

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 630 217**

51 Int. Cl.:

<b>C01B 3/34</b>	(2006.01) <i>H01M 8/14</i>	(2006.01)
<b>C01B 3/06</b>	(2006.01) <i>H01M 8/1016</i>	(2006.01)
<b>H01M 8/06</b>	(2006.01) <i>H01M 8/1007</i>	(2006.01)
<b>C10J 3/46</b>	(2006.01) <i>B01J 7/00</i>	(2006.01)
<b>C10J 3/72</b>	(2006.01) <i>C25B 1/04</i>	(2006.01)
<b>C10K 1/00</b>	(2006.01) <i>C25B 3/00</i>	(2006.01)
<b>C10K 1/02</b>	(2006.01)	
<b>C10K 3/02</b>	(2006.01)	
<i>H01M 8/0612</i>	(2006.01)	
<i>H01M 8/124</i>	(2006.01)	

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

- 86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **08.09.2010 PCT/US2010/048125**
- 87 Fecha y número de publicación internacional: **17.03.2011 WO11031755**
- 96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **08.09.2010 E 10760504 (0)**
- 97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **03.05.2017 EP 2475613**

54 Título: **Integración de reformatión/división de agua y sistemas electromagnéticos para generación de energía con captura de carbono integrada**

30 Prioridad:

**08.09.2009 US 240508 P**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:  
**18.08.2017**

73 Titular/es:

**THE OHIO STATE UNIVERSITY RESEARCH  
FOUNDATION (100.0%)  
1524 North High Street  
Columbus, OH 43201, US**

72 Inventor/es:

**FAN, LIANG-SHIH;  
LI, FANXING;  
ZENG, LIANG y  
SRIDHAR, DEEPAK**

74 Agente/Representante:

**SÁEZ MAESO, Ana**

ES 2 630 217 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

## DESCRIPCIÓN

Integración de reformación/división de agua y sistemas electromagnéticos para generación de energía con captura de carbono integrada

5 La presente invención en general se dirige a sistemas y métodos de generación de electricidad con captura de CO<sub>2</sub> in-situ. En ciertas realizaciones, un sistema de reducción-oxidación (redox) utilizando uno o más intermedios químicos se utiliza para convertir combustible carbonoso con captura de CO<sub>2</sub>. Esto se sigue por la integración estratégica con un dispositivo de conversión electroquímica para producir electricidad. En otras realizaciones, se integran sistemas de división de agua con los sistemas electromagnéticos. A través de las integraciones del proceso, se minimizan el consumo de potencia auxiliar de proceso y/o utilización de agua y la energía utilizada para la generación de vapor.

10 Los combustibles fósiles, que incluyen el petróleo crudo, gas natural y carbón representan la mayor parte del suministro de energía de hoy en todo el mundo. El uso de combustibles fósiles, sin embargo, requiere que sean transformados a un portador tal como calor, electricidad, combustibles líquidos o productos químicos a través de procesos de conversión química. Con una creciente demanda de energía y las preocupaciones concomitantes sobre las emisiones de carbono por el uso de combustibles fósiles, se han orientado grandes esfuerzos hacia el desarrollo de carbono neutros, sistemas de energía eficientes y económicos que sean sostenibles. Una transición desde el uso de combustibles fósiles hasta aquella de los recursos nucleares y renovables tales como solar y biomasa, por lo tanto, representa la progresión natural de dichos esfuerzos.

15 Las tecnologías existentes de generación de electricidad tienen una o más de las siguientes limitaciones/inconvenientes: 1) altos costes (por ejemplo, fotovoltaica, gasificación, combustión de carbón pulverizado ultra supercrítico); 2) baja eficiencia (por ejemplo, combustión de carbón pulverizada sub-crítica); 3) preocupaciones ambientales (por ejemplo, plantas de energía de combustible fósil); y 4) problemas de seguridad (por ejemplo, energía nuclear).

20 Uno de los problemas comunes con respecto a una planta de energía térmica convencional es la gran cantidad de pérdida de exergía durante el enfriamiento y recalentamiento de vapor. Por lo tanto es deseable un sistema y método que minimiza los requisitos para la generación de vapor.

25 Las reacciones químicas entre los combustibles carbonosos y de aire/vapor/CO<sub>2</sub> a través de la ayuda de un medio de reacción puede representar un modo eficaz para minimizar la pérdida de exergía en el proceso de conversión de combustible. Se han propuesto una serie de técnicas para convertir combustibles carbonosos utilizando óxido de metal. Por ejemplo, Watkins, Patente Estadounidense No. 3,027,238, describe un método para producir gas de hidrógeno que incluye reducir un óxido de metal en una zona de reducción, y oxidar el metal reducido con vapor para producir hidrógeno en una zona de oxidación. Sin embargo, esta técnica, se limita a la conversión del combustible gaseoso. Más aún, el combustible gaseoso solo se convierte parcialmente por el óxido de metal. Thomas, US 2005/0175533 (Patente Estadounidense No. 7,767,191); y Fan, Solicitud PCT No. WO 2007082089; y Fan, Solicitud PCT No. WO 2010037011 describen métodos para la producción de gas de hidrógeno al reducir un óxido de metal en una reacción de reducción entre un combustible a base de carbón y un óxido metálico para proporcionar un metal reducido u óxido de metal que tiene un estado de oxidación inferior, y oxidar el metal u óxido de metal educido para producir hidrógeno y un óxido de metal que tiene un estado de oxidación más alto.

El hidrógeno también se puede producir a partir de disociación de agua a través de fitoelectrólisis, termólisis, y rutas termoquímicas.

40 Para producir electricidad, los procesos anteriormente mencionados enseñan la conversión adicional del producto de hidrógeno en una turbina de gas, motor de gas, y/o celda de combustible. Sin embargo, una gran cantidad de vapor se utiliza en estos procesos para la generación de hidrógeno. La conversión simple de hidrógeno en dispositivos de generación de energía alimentados con hidrógeno convencional conducirá a un enfriamiento y recalentamiento de grandes cantidades de vapor/agua, lo que resulta en una gran irreversibilidad del sistema de generación de energía.

45 Con el aumento de la demanda de electricidad, surge la necesidad de procesos, sistemas y componentes del sistema mejorados del mismo, que producen electricidad con mayor eficacia y menos contaminantes.

50 Por lo tanto, la presente invención proporciona un método para producir electricidad y una corriente rica en CO<sub>2</sub> separada a partir de un combustible carbonoso y vapor que comprende: reducir un portador que comprende una pluralidad de partículas de material compuesto de cerámica que tienen por lo menos Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dispuesto sobre un soporte a un estado de oxidación más bajo, que incluye hierro metálico al hacer reaccionar la partícula con un combustible carbonoso en una primera zona de reacción, en la que la primera zona de reacción comprende un reductor; oxidar por lo menos una porción del hierro metálico que contiene partículas con un vapor o gas rico en CO<sub>2</sub> de un ánodo de celda de combustible en una segunda zona de reacción mientras que genera una corriente de gas rica en combustible (H<sub>2</sub> y/o CO); devolver la corriente de gas rica en combustible desde la segunda zona de reacción hasta el ánodo de la celda de combustible a través de un bucle cerrado entre la segunda zona del reactor y la celda de combustible; oxidar el hierro

5 metálico restante que contiene partículas desde la primera zona de reacción y el óxido de hierro que contiene partículas obtenido a partir de la reacción de oxidación en la segunda zona de reacción con un gas que contiene oxígeno para producir una  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  que contiene partículas en una tercera zona de reacción; y devolver las partículas que contienen  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  a la primera zona de reacción; en la que por lo menos una porción del gas que contiene oxígeno utilizado en la tercera zona de reacción es el gas que contiene oxígeno producido desde la salida del cátodo de una celda de combustible.

10 Las realizaciones de la presente invención en general se dirigen a procesos y sistemas de generación de electricidad de alta eficiencia con sustancialmente cero emisiones de  $\text{CO}_2$ . Se forma un bucle cerrado entre la unidad que genera combustible gaseoso ( $\text{H}_2$ ,  $\text{CO}$ , etc.) y el lado del ánodo de celda de combustible. El gas que contiene oxígeno de escape del lado del cátodo de celda de combustible se utiliza para la generación de combustible gaseoso. Las eficiencias de generación de energía de los sistemas divulgados aquí son significativamente mayores que los métodos del estado de la técnica debido al consumo de vapor minimizado para la producción de combustible gaseoso, en el bucle del ánodo de celdas de combustible, así como los esquemas de integración de masa y energía estratégicos.

15 Las características y ventajas adicionales proporcionadas por las realizaciones de la presente invención serán más completamente entendidas en vista de los siguientes dibujos y descripción detallada.

La siguiente descripción detallada de las realizaciones ilustradas de la presente invención se puede entender mejor cuando se lee en conjunto con los siguientes dibujos, en los que la estructura similar se indica con números de referencia similares y en los que:

20 La Figura 1 es una ilustración esquemática general de un proceso para producir electricidad con mínimo consumo de vapor en el que una celda de combustible se integra con un sistema de reforma y división de agua para minimizar requerimientos de generación de vapor en el proceso.

La Figura 2 es una ilustración esquemática general de un sistema de la integración de una celda de combustible y bloque de reformación/división de agua a base de redox para generación de electricidad con mínimos requerimientos de vapor.

25 La Figura 3 ilustra adicionalmente la integración de un bloque de reformación/división de agua a base de redox de óxido de hierro y un sistema de celda de combustible.

La Figura 4 es un esquema de una realización de un proceso redox a base de óxido de hierro utilizando gas natural sintético derivado de combustibles sólidos tales como hulla o biomasa como materia prima.

30 La Figura 5 es un esquema de una realización de un proceso redox a base de óxido de hierro que utiliza combustibles sólidos tales como hulla, biomasa, y/o desperdicios sólidos directamente como materia prima y su integración con una celda de combustible.

La Figura 6 es un esquema de un bloque de reformación/división de agua a base de calcio integrada con una celda de combustible.

35 La Figura 7 es un esquema de un bloque de reformación/división de agua mejorado con membrana integrado con una celda de combustible para generación de energía.

La Figura 8 es un esquema de un bloque de división de agua a base de zinc utilizando energía térmica solar o nuclear y su integración con una celda de combustible utilizando energía solar o nuclear.

La Figura 9 es un esquema más detallado que ilustra una realización de una hulla integrada al sistema de electricidad utilizando reacciones redox y una celda de combustible de óxido sólido (SOFC).

40 La Figura 10 ilustra un sistema en el que el combustible no convertido desde el reductor de un bloque de reformación/división de agua a base de redox se convierte en una celda de combustible auxiliar seguida por una etapa de pulido de oxígeno. El fluido de trabajo entre el oxidante y el bloque de celda de combustible permanece en un bucle cerrado.

45 En general con referencia a la Figura 1, las realizaciones de la presente invención se dirigen a sistemas y métodos para convertir fuentes de energía térmica y química en electricidad con mínimo consumo de vapor y/o generación de energía auxiliar y emisiones de carbono bajas a cero. Se reportan todos los porcentajes como porcentaje en peso a menos que se indique lo contrario o el contexto requiera lo contrario.

5 En una realización, el sistema se divide en dos bloques o subsistemas, es decir un bloque de reformación/división de agua y un bloque de celda de combustible. El bloque de reformación/división de agua genera combustibles gaseosos tales como hidrógeno, gas natural sintético, y/o hidrocarburos ligeros de vapor/CO<sub>2</sub> y una fuente de energía tal como solar, nuclear, y combustible carbonoso. El bloque de celda de combustible convierte el combustible gaseoso del bloque de reformación/división de agua en electricidad mientras que genera una corriente de efluente que contiene combustible no convertido y vapor y/o CO<sub>2</sub>, para el bloque de reformación/división de agua.

10 El efluente de vapor/CO<sub>2</sub> del bloque de celdas de combustible, que puede contener de combustible no convertido, se recicla al bloque de reformación/división de agua para generar combustible gaseoso. En ciertos casos, se requiere recalentamiento menor y represurización del efluente. La condensación del vapor y de recalentamiento es mínima en todos los casos.

15 Para mantener la presión de operación de el bloque de reformación/división de agua y el bloque de celda de combustible, un escape de efluente y/o combustible gaseoso se divide de la corriente gaseosa principal y se represuriza. Mientras tanto, una corriente de conformación represurizada se fusionó con la corriente gaseosa principal. Debido a que el CO<sub>2</sub>/vapor circula entre el bloque de reformación/división de agua y el bloque de celda de combustible junto con el combustible de CO/H<sub>2</sub>, el vapor/CO<sub>2</sub> actúa como un fluido de trabajo para generación de electricidad. El uso de turbinas, tanto turbinas de vapor como turbinas de gas, se minimiza en este esquema ya que el combustible gaseoso parcialmente convertido de la celda de combustible se recicla casi completamente a la etapa de producción de combustible. Un bucle cerrado de fluido de trabajo se forma entre el bloque de reformación/división de agua y el bloque de celda de combustible. Al minimizar la condensación de vapor y recalentar y maximizar la conversión de combustible en la celda de combustible, se minimiza la irreversibilidad del proceso.

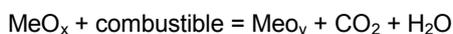
20 En el caso cuando se utiliza una celda de combustible a alta temperatura, tal como una celda de combustible de óxido sólido (SOFC), el nivel de tolerancia de azufre es relativamente alto. Por lo tanto, un simple gas caliente limpia la unidad de tal manera que un lecho de sorbente de óxido de calcio se puede integrar con el bucle de fluido de trabajo.

25 La presión de operación del bloque de reformación/división de agua es comparable al bloque de celda de combustible. Ambos bloques operan a presiones entre 1.01 x 10<sup>5</sup> Pa y 8.11 x 10<sup>6</sup> Pa (1 atm y 80 atm). La temperatura de las unidades varía entre 300°C - 1300°C. Se puede utilizar corriente de paso a alta temperatura, alta presión desde el sistema para precalentar las corrientes de alimentación, generar energía, y volver a presurizar la corriente de constitución.

30 La fuente de energía para el bloque de reformación/división de agua puede ser ya sea energía térmica de combustibles carbonosos o energía térmica a partir de otras fuentes tales como solar o nuclear. Los combustibles carbonosos pueden incluir carbón, metano, biomasa, gas de síntesis, coque de petróleo, crudo extra pesado, cera y esquisto bituminoso.

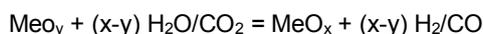
35 En el caso cuando se utiliza combustible carbonoso, un sorbente portador de oxígeno o CO<sub>2</sub> se utiliza para reformar/gasificar el combustible en hidrógeno y/o CO. En el caso cuando se utiliza energía térmica ya sea solar o nuclear, se utiliza un esquema de división de agua termoquímico para convertir la energía térmica a hidrógeno y oxígeno.

La Figura 2 ilustra una configuración de proceso general en la que un combustible carbonoso se reforma o gasifica indirectamente con vapor de agua/CO<sub>2</sub> utilizando un óxido de metal a base de oxígeno que lleva partículas. La reacción en la etapa de reducción es



40 En la mayoría de los casos, el óxido de metal, el diseño del reactor, y el modo de operación se seleccionan de tal manera que por lo menos 80% del combustible se convierte en CO<sub>2</sub> y vapor. En algunos casos, se utiliza una etapa de pulido de oxígeno para quemar completamente el combustible no convertido (<20%) en CO<sub>2</sub> secuestrable y H<sub>2</sub>O. En algunos casos por lo menos 95% del combustible se convierte en CO<sub>2</sub> y vapor. La corriente de gas de escape de la etapa de reducción es, pues, secuestrable.

45 La reacción en la etapa de oxidación de la Figura 2 es



50 La alimentación para la etapa de oxidación, directamente retirada de los gases de escape del lado del ánodo de celda de combustible (se lleva a cabo menor recompresión en ciertos casos), contiene combustibles tales como H<sub>2</sub>/CO. La concentración de combustible en la alimentación de escape/oxidación de celdas de combustible normalmente varía de 0 a 60%. El H<sub>2</sub>O/CO<sub>2</sub> en la corriente de alimentación se convierte por lo menos parcialmente a H<sub>2</sub>/CO, por lo tanto, se incrementa la concentración de combustible en la corriente gaseosa. La concentración de H<sub>2</sub>/CO en la corriente de producto de la etapa de oxidación varía normalmente de 30% a 99% y es por lo menos 5% mayor que la de la corriente

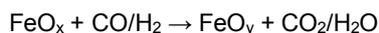
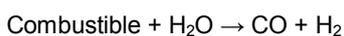
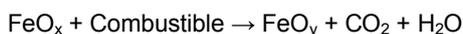
de escape del ánodo de celda de combustible. La corriente enriquecida en combustible de la etapa de oxidación luego se introduce directamente de nuevo a la celda de combustible para generación de energía.

La Figura 3 ilustra una configuración de proceso específico en el que se utiliza un combustible carbonoso como el combustible y se utiliza óxido de hierro como el portador de oxígeno. En esta realización, un sistema redox de tres reactores se utiliza para convertir el combustible de una manera similar a la descrita en Thomas, US 2005/0175533 (Patente Estadounidense No. 7,767,191); Fan, Solicitud PCT No. WO 2007082089; y Fan, Solicitud PCT No. WO 2010037011. El primer reactor, el reductor, se configura para oxidar el combustible carbonoso en CO<sub>2</sub> y vapor de agua, mientras que reduce un portador de oxígeno a base de óxido de metal. Se proporciona o se elimina el calor requerido por la partícula de portador de oxígeno. El segundo reactor, el oxidante, se configura para oxidar (parcialmente) una porción del portador de oxígeno reducido, ya sea con el vapor o CO<sub>2</sub>. El tercer reactor, la cámara de combustión, quema el portador de oxígeno parcialmente oxidado en el oxidante y la porción restante del portador de oxígeno reducido desde el reductor utilizando aire.

La alimentación para el oxidante es el escape del lado del ánodo de celdas de combustible y el producto del oxidante se utiliza directamente como la alimentación para el ánodo de celda de combustible. El oxidante enriquece el contenido de combustible en la corriente de fluido de trabajo (CO/H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O). En las realizaciones preferidas, la corriente gaseosa del lado del ánodo de celdas de combustible y el oxidante forman un bucle cerrado en el que la adición y purga de la corriente gaseosa es mínima. Para mantener la presión del fluido de trabajo, la represurización del fluido se realiza dentro del bucle principal o un bucle de división. En ciertas realizaciones, un lecho de sorbente de alta temperatura, tal como aquel que utiliza sorbente a base de óxido de calcio se integra en el bucle para evitar la acumulación de contaminantes tales como H<sub>2</sub>S. En otros casos, el tratamiento de azufre se lleva a cabo sólo en la corriente de purga, no se trata la corriente principal del fluido de trabajo.

El portador de oxígeno comprende una pluralidad de partículas de material compuesto de cerámica que tienen por lo menos un óxido metálico dispuesto sobre un soporte. Las partículas de material compuesto de cerámica se describen en Thomas, US 2005/0175533 (Patente Estadounidense No. 7,767,191); Fan, Solicitud PCT No. WO 2007082089; y Fan, Solicitud PCT No. WO 2010037011.

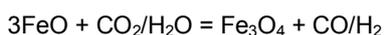
Con referencia de nuevo a la reacción de reducción en el primer reactor de la Figura 3, es decir, el reductor, este utiliza diversos combustibles carbonosos tales como gas de síntesis, metano e hidrocarburos ligeros, carbón, alquitranes, esquistos bituminosos, arenas de crudo, arena de alquitrán, biomasa, cera y coque para reducir el óxido de hierro que contiene material compuesto de cerámica para producir una mezcla de metal reducido y/o de óxido de metal. Las posibles reacciones de reducción incluyen:



Específicamente, el hierro metálico (Fe) se forma en el reductor. Simultáneamente, una corriente de escape que contiene por lo menos 60% de CO<sub>2</sub> (base seca) se produce a partir del reductor. En los esquemas preferidos, la concentración de CO<sub>2</sub> supera el 95% y es directamente secuestrable.

Los diseños preferidos para el reductor incluyen un reactor de lecho móvil con una o más etapas, un reactor de lecho fluidizado de múltiples etapas, un reactor de paso, un horno rotatorio o cualquier reactores o recipientes adecuados conocidos por un experto medianamente versado en la técnica que proporcionan un patrón de contacto gas-sólido en contracorriente. El patrón de flujo a contracorriente entre sólido y el gas se adopta para mejorar la conversión de gas y sólido. El patrón de flujo a contracorriente minimiza la retromezcla de sólidos y gas. Más aún, se mantiene la salida de sólidos del reactor a un entorno más reductor, mientras que la salida de gas del reactor se mantiene a un entorno más oxidativo. Como resultado, se mejoran las conversiones de gas y sólidos.

Con referencia de nuevo a la reacción de oxidación en el segundo reactor en la Figura 3, es decir, el oxidante, el oxidante convierte las partículas de soporte de oxígeno que contienen hierro del reductor a un estado de oxidación más alto utilizando la corriente de gas de escape del ánodo de la celda de combustible, que es rica en CO<sub>2</sub> y/o vapor. La presencia de combustible no convertido en esta corriente no participará en la reacción. Las posibles reacciones incluyen:

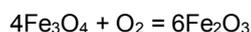
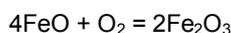


5 En algunos casos, sólo una porción del portador de oxígeno reducido desde el reductor se introduce en el oxidante con el resto sin pasar por el oxidante y se envía directamente a la cámara de combustión. Al hacer esto, más calor se genera desde el bloque de redox para compensar el calor de reacción requerido en el reductor. Alternativamente, una cantidad sub-estequiométrica de gas de escape del ánodo de celda de combustible de se envía al oxidante de tal manera que se produce más calor en la cámara de combustión que sigue.

Aunque el combustible no convertido puede estar presente en la corriente de escape de ánodo de celdas de combustible, el contenido de combustible en esta corriente de gas es significativamente enriquecido lo que resulta de la reacción entre el óxido de hierro/hierro y H<sub>2</sub>O/CO<sub>2</sub>.

10 Los diseños preferidos del oxidante también incluyen un reactor de lecho en movimiento y otros diseños de reactores que proporcionan un patrón de contacto gas-sólido en contracorriente. Un patrón de flujo en contracorriente se prefiere de tal manera que se consigue un alta conversión de vapor a hidrógeno y CO<sub>2</sub> a CO.

15 Con referencia de nuevo a la reacción de oxidación en el tercer reactor en la Figura 3, es decir, la cámara de combustión, el gas que contiene oxígeno tal como aire y/o aire parcialmente convertido desde el lado del cátodo de celda de combustible se utiliza para, por lo menos oxidar parcialmente el hierro en el portador de oxígeno generado del oxidante a Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Las reacciones en la cámara de combustión incluyen:



20 Los diseños de reactores preferidos para la cámara de combustión incluyen de un reactor de lecho fluidizado rápido, un reactor de lecho atrapado, un reactor de lecho de transporte, o un sistema de transporte mecánico. Las funciones de la cámara de combustión incluyen: oxidación del portador de oxígeno a un estado de oxidación más alto; y recirculación del portador de oxígeno a la entrada del reductor para otro ciclo redox.

25 La Figura 4 ilustra un diagrama de flujo esquemático de una realización del bloque de reformación/división de agua que convierte el combustible gaseoso. En esta realización, un sistema de gasificación se utiliza para convertir combustible sólido tal como carbón, biomasa, coque de petróleo, y cera en un combustible gaseoso. El azufre en el combustible gaseoso se elimina utilizando un sorbente de alta temperatura, tales como los que contienen óxido de calcio, óxido de zinc, etc. El nivel de azufre requerido en el combustible gaseoso es <500 ppm. En los esquemas preferidos, el nivel de azufre en el combustible gaseoso se reduce a <20 ppm.

30 Luego se introduce el gas combustible al reductor en la Figura 4 como el combustible para los ciclos redox. Alternativamente al combustible gaseoso del gasificador, también se pueden utilizar combustibles del reformador o pirolizador en el sistema redox. Los combustibles gaseosos tales como metano e hidrocarburos ligeros también se pueden introducir directamente en el sistema redox como el combustible.

35 Una de las diferencias entre el proceso y sistema descrito en Fan, Solicitud PCT No. WO 2010037011 y realizaciones de la presente invención es que la alimentación gaseosa para el segundo reactor, el oxidante, contiene gas combustible tal como H<sub>2</sub> y CO además de H<sub>2</sub>O y CO<sub>2</sub>. En ciertas realizaciones, el gas que contiene oxígeno para la cámara de combustión comprende por lo menos una porción del gas de escape del cátodo.

La cámara de combustión es altamente exotérmica. El calor generado en la cámara de combustión se puede utilizar para compensar el calor requerido en el reductor. Este calor también se puede utilizar para precalentar las corrientes de alimentación y para generar energía para consumos de energía parasitarios. La corriente gaseosa a alta presión descargada desde el sistema se puede utilizar para conducir expansores para la compresión de gas.

40 La Tabla 1 ilustra el flujo de masa de las corrientes principales en una realización del proceso. La Tabla 2 ilustra el balance de energía de una realización del sistema. En este caso, se utiliza metano como combustible. Se utiliza H<sub>2</sub>O/H<sub>2</sub> como fluido de trabajo. El bloque de celda de combustible, que utiliza un sistema de SOFC, convierte corriente rica en gas combustible (H<sub>2</sub>) en 70% de vapor en equilibrio con H<sub>2</sub>. La eficiencia HHV del proceso, definida como la energía en el producto de electricidad dividida por el valor de calentamiento más alto de la alimentación de metano, es mayor de 60%. En este caso, sustancialmente todo el CO<sub>2</sub> producido se comprime a 1.52 x 10<sup>7</sup> Pa (2200 psi) y está listo para el secuestro.

Tabla 1. Balance de masa de la reforma integrada - Celda de combustible para generación de energía utilizando metano como el combustible

## ES 2 630 217 T3

Metano (alimentación, kmol/s)	CO <sub>2</sub> de Reductor (kmol/s)*	corriente rica en H <sub>2</sub> de oxidante (kmol/s)+	corriente rica en H <sub>2</sub> O de ánodo de celda de combustible (kmol/s)
1.12	1.12	6.99	6.99
* la corriente de CO <sub>2</sub> contiene menos de 0.5% de impurezas tales como combustible no convertido			
+ escape del oxidante que contiene 70% de H <sub>2</sub> y 30% de vapor			

Tabla 2. Balance de energía de la reforma integrada - Celda de combustible para generación de energía utilizando metano como el combustible

Metano (MW <sub>th</sub> )	Energía parasitaria (MWe)	Producción de energía (MWe)	Energía neta(M)We
1000	80	700	620

- 5 En el caso de que el se utilicen carbón y un gasificador de carbón, la eficiencia del proceso varía entre 38 y 60% (HHV, con captura de CO<sub>2</sub>) en función del tipo de carbón y gasificador de carbón. Cuando la biomasa se gasifica y se utiliza para el sistema redox, la eficiencia es 1 - 10% menor que su contraparte de carbón. Debido a que todo el CO<sub>2</sub> en la biomasa es capturado, la emisión neta de CO<sub>2</sub> del sistema es negativa desde el punto de vista de análisis de ciclo de vida.
- 10 Haciendo referencia a la realización ilustrada en la Figura 5, el combustible sólido tal como carbón, biomasa, cera, residuos pesados, coque de petróleo, y arenas de alquitrán se convierten directamente en el sistema redox sin la necesidad de un gasificador/pirolizador/reformador. Esta realización representa un sistema redox de carbón directo integrado con celdas de combustible de óxido sólido (SOFC) como se ejemplifica aquí.
- 15 Debido a las altas temperaturas de operación en un sistema de SOFC, entre aproximadamente 800°C a 1000°C, una cantidad significativa de calor se libera y necesita ser recuperada para mejorar la eficiencia del proceso. Los diseños del proceso actual usualmente combinan SOFC y un sistema de turbina de gas - turbina de vapor para conversión completa del combustible en electricidad. Aproximadamente 60% ~ 90% del combustible se convierte primero en el SOFC, y el resto se convierte completamente en un sistema de turbina de gas junto con un ciclo Rankine de fondo. Sin embargo, el sistema es costoso porque los tres componentes, es decir, el sistema de producción de hidrógeno, la celda de combustible, y el sistema de la turbina, son de capital intensivo. Las rutas GICC-SOFC convencionales para generación de electricidad pueden alcanzar una eficiencia de un máximo de 55%.
- 20 El proceso de formación de bucle químico directo (DCL), descrito en Fan, Solicitud PCT No. WO 2010037011, convierte los combustibles sólidos en hidrógeno. Dentro del sistema de DCL, un portador de oxígeno a base de óxido de hierro circula entre tres reactores que son el reductor, el oxidante y la cámara de combustión. En el reductor, el carbón y/o la biomasa se gasifican a CO<sub>2</sub> y H<sub>2</sub>O por partículas que contienen Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> que se reducen a Fe y FeO. Una porción de las partículas reducidas reaccionan con vapor en el oxidante para producir hidrógeno, mientras que las restantes partículas reducidas junto con las partículas parcialmente oxidadas del oxidante, se cargan en la cámara de combustión. Finalmente, las partículas que contienen Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> se regeneran y se reciclan de nuevo mediante combustión con gases que contienen oxígeno tales como aire a presión. El calor, liberado en la cámara de combustión y transferido al reductor por los óxidos de hierro, puede compensar completamente cualquier déficit de calor en el sistema. Mediante el sistema de DCL, se generan hidrógeno y dióxido de carbono en diferentes reactores, lo que ahorra una cantidad considerable de energía al eliminar la necesidad de separación del producto. También, se ahorra los costes de inversión en equipos sobre las unidades de eliminación de CO<sub>2</sub> y separación de aire. El sistema de DCL puede producir hidrógeno a una eficiencia del 70 - 85% a partir de carbón y el 60 - 75% de partir de biomasa.
- 25 El proceso de formación de bucle químico directo (DCL), descrito en Fan, Solicitud PCT No. WO 2010037011, convierte los combustibles sólidos en hidrógeno. Dentro del sistema de DCL, un portador de oxígeno a base de óxido de hierro circula entre tres reactores que son el reductor, el oxidante y la cámara de combustión. En el reductor, el carbón y/o la biomasa se gasifican a CO<sub>2</sub> y H<sub>2</sub>O por partículas que contienen Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> que se reducen a Fe y FeO. Una porción de las partículas reducidas reaccionan con vapor en el oxidante para producir hidrógeno, mientras que las restantes partículas reducidas junto con las partículas parcialmente oxidadas del oxidante, se cargan en la cámara de combustión. Finalmente, las partículas que contienen Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> se regeneran y se reciclan de nuevo mediante combustión con gases que contienen oxígeno tales como aire a presión. El calor, liberado en la cámara de combustión y transferido al reductor por los óxidos de hierro, puede compensar completamente cualquier déficit de calor en el sistema. Mediante el sistema de DCL, se generan hidrógeno y dióxido de carbono en diferentes reactores, lo que ahorra una cantidad considerable de energía al eliminar la necesidad de separación del producto. También, se ahorra los costes de inversión en equipos sobre las unidades de eliminación de CO<sub>2</sub> y separación de aire. El sistema de DCL puede producir hidrógeno a una eficiencia del 70 - 85% a partir de carbón y el 60 - 75% de partir de biomasa.
- 30 El proceso de formación de bucle químico directo (DCL), descrito en Fan, Solicitud PCT No. WO 2010037011, convierte los combustibles sólidos en hidrógeno. Dentro del sistema de DCL, un portador de oxígeno a base de óxido de hierro circula entre tres reactores que son el reductor, el oxidante y la cámara de combustión. En el reductor, el carbón y/o la biomasa se gasifican a CO<sub>2</sub> y H<sub>2</sub>O por partículas que contienen Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> que se reducen a Fe y FeO. Una porción de las partículas reducidas reaccionan con vapor en el oxidante para producir hidrógeno, mientras que las restantes partículas reducidas junto con las partículas parcialmente oxidadas del oxidante, se cargan en la cámara de combustión. Finalmente, las partículas que contienen Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> se regeneran y se reciclan de nuevo mediante combustión con gases que contienen oxígeno tales como aire a presión. El calor, liberado en la cámara de combustión y transferido al reductor por los óxidos de hierro, puede compensar completamente cualquier déficit de calor en el sistema. Mediante el sistema de DCL, se generan hidrógeno y dióxido de carbono en diferentes reactores, lo que ahorra una cantidad considerable de energía al eliminar la necesidad de separación del producto. También, se ahorra los costes de inversión en equipos sobre las unidades de eliminación de CO<sub>2</sub> y separación de aire. El sistema de DCL puede producir hidrógeno a una eficiencia del 70 - 85% a partir de carbón y el 60 - 75% de partir de biomasa.
- 35 En esta realización, que integran el sistema de DCL y el sistema de SOFC para la generación de electricidad de alta eficiencia a partir del carbón. El proceso de DCL-SOFC y el sistema tienen un número de configuraciones, ya sea a alta presión o baja presión. Específicamente, se describe la realización en la que el oxidante y el ánodo se integran dentro de un bucle cerrado de hidrógeno y vapor de agua como se muestra en las Figuras 5 y 9.
- 40 Se considera la entrada térmica de 1000 MW y, de acuerdo con lo anterior 131.8 toneladas/h de carbón bituminoso se procesa en el sistema de DCL-SOFC. El carbón se pulveriza primero en partículas de tamaño apropiado y después se seca a 5% de humedad desde 7.23% en el gas de combustión. En el sistema de DCL, un diseño de lecho móvil se

adopta tanto para reducir como el oxidante. Aproximadamente 3549,5 toneladas/hora portador de oxígeno, que contiene 45.6% de Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> y el 54.4% Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (como inerte) en peso, se carga en la parte superior del reductor, y el carbón se inyecta desde la parte media del reductor. En el reductor de lecho móvil, los sólidos fluyen hacia abajo mientras que el gas asciende hacia arriba. El diseño de contracorriente puede convertir totalmente el carbón en CO<sub>2</sub> y H<sub>2</sub>O a 900°C, 1.01 x 10<sup>5</sup> Pa (1 atm). El óxido de hierro se reduce a la forma de Fe, FeO y una traza de FeS. Se utilizan 71.5% de partículas de hierro reducido para la generación de hidrógeno en el oxidante, y se quema el otro 28.5% en la cámara de combustión. El oxidante funciona a 850°C, al convertir una mezcla gaseosa de 90.4% de H<sub>2</sub>O y 9.6% de H<sub>2</sub> en moles en una mezcla de 35.9% de H<sub>2</sub>O y 64.1% de H<sub>2</sub> y el nivel de ppm de H<sub>2</sub>S. Después, la mezcla gaseosa se carga al ánodo de un SOFC tolerante de azufre para generación de electricidad. Al mismo tiempo, Fe y FeO se oxidarán a Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, que fluye a la cámara de combustión para regeneración de Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Un soplador de aire impulsa 1992 toneladas/h de aire para alimentar el sistema DCL-SOFC. El aire se precalienta hasta 900°C en la sección HRSG, y luego se va al cátodo del dispositivo de SOFC. 30% del oxígeno y 85% del hidrógeno se consumen en SOFC que opera a 900°C. El aire gastado se utiliza en la cámara de combustión para regenerar Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> a 1280°C. La mezcla de hidrógeno/vapor gastada luego se enfrió a aproximadamente 240°C para unidad de eliminación de azufre posterior. Sólo se constituirá una pequeña cantidad de vapor hasta que la mezcla de hidrógeno/vapor de agua anterior se recicle de vuelta al oxidante.

Durante el proceso de DCL-SOFC, > 99% de CO<sub>2</sub> puro se obtuvo por condensación sencilla seguido de compresión a 1.37 x 10<sup>7</sup> Pa (> 135 atm) para el control de gases de efecto invernadero. La etapa de compresión consume alrededor de 35.8 MW de trabajo. Los otros contaminantes tales como Cl, S, y Hg pueden ya sea ser cosecuistrados con CO<sub>2</sub> o eliminados por técnicas convencionales. Las cenizas se pueden quitar del portador de oxígeno mediante un ciclón colocado antes del reductor.

La Tabla 3 resume el flujo de las principales corrientes de proceso. Como resultado de la integración de DCL y SOFC, se puede producir 535 MW de energía eléctrica por el sistema de DCL-SOFC, y se pueden generar 96 MW de energía eléctrica desde el sistema de turbina de vapor al recuperar calor de bajo grado. El proceso completo puede producir electricidad de 640 MW con la compresión de CO<sub>2</sub>, esto es igual a una eficiencia de carbono a energía del 64% (HHV). El ejemplo ilustrado se puede optimizar adicionalmente para lograr más del 70% de eficiencia.

El sistema de DCL-SOFC puede convertir un amplio rango de combinaciones de carbón y biomasa en electricidad con alta eficiencia. Posibles diseños también incluyen operación a baja presión y temperatura para el fluido de trabajo (la mezcla de hidrógeno y vapor de agua). También se puede eliminar H<sub>2</sub>S en la mezcla de hidrógeno/vapor de agua antes de SOFC con gas caliente para limpiar la unidad. Se observa que cuando se alimenta el sistema con combustible bajo en azufre (aproximadamente menos de 0.2% en peso) tal como biomasa, no se necesita la unidad de eliminación de azufre.

Tabla 3 Diagrama de flujo de proceso para el proceso de DCL-SOFC

Corriente	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Temperatura °C	30	1280	901	901	850	1279.6	901	30	159.9	1279.6
Presión MPA (atm)	3.04 (30)	3.04 (30)	0.10 (1)	0.10 (1)	3.04 (30)	1.62 (16)	0.10 (1)	0.10 (1)	13.7 (135)	1.62 (16)
Flujo de masa tonelada/h r	131.878	3549.459	2336.231	931.225	2475.293	3549.459	402.831	348.195	348.195	1709.881
Flujo de volumen m <sup>3</sup> /s (cum/hr)	0.0257 (92.642)	0.242 (871.979)	0.238 (855.716)	0.095 (341.089)	0.185 (667.534)	0.242 (871.979)	291.7 (1.05E+06)	54.38 (195768.7)	0.487 (1754.619)	133.6 (481020.7)
Densidad kg/m <sup>3</sup> (lb/cubo)	1423.5 (88.868)	4070.6 (254.118)	2730.15 (170.438)	2730.2 (170.438)	3708.1 (231.49)	4070.6 (254.118)	0.3844 (0.024)	1.778 (0.111)	198.44 (12.388)	3.556 (0.222)

ES 2 630 217 T3

Corriente	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Flujo de masa tonelada/h r										
H <sub>2</sub> O	0	0	0	0	0	0	53.058	0	0	0
CO <sub>2</sub>	0	0	0	0	0	0	348.195	348.195	348.195	0
O <sub>2</sub>	0	0	0	0	0	0	0	0	0	180.486
N <sub>2</sub>	0	0	0	0	0	0	1.19	0	0	1526.995
H <sub>2</sub> S	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
H <sub>2</sub>	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
O <sub>2</sub> S	0	0	0	0	0	0	0.388	0	0	0.141
O <sub>3</sub> S	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0.006
NO	0	0	0	0	0	0	0	0	0	2.212
NO <sub>2</sub>	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0.039
Fe	0	0	326.047	129.963	0	0	0	0	0	0
Fe <sub>0.947</sub> O	0	0	630.558	251.341	391.333	0	0	0	0	0
Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	0	0	0	0	704.799	0	0	0	0	0
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0	1620.562	0	0	0	1620.562	0	0	0	0
Corriente	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Fe <sub>0.877</sub> S	0	0	0.464	0.185	0	0	0	0	0	0
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0	1928.897	1379.162	549.736	1379.162	1928.897	0	0	0	0
Carbón	131.878	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Corriente	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19
Temperatura °C	120	25	59.1	900	900	850	900	240	30	600
Presión MPa (atm)	1.62 (16)	0.10 (1)	0.20 (2)	0.20 (2)	0.20 (2)	3.04 (30)	3.04 (30)	3.04 (30)	12.6 (124)	12.6 (124)

ES 2 630 217 T3

Corriente	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Flujo de masa tonelada/hr	1709.881	1992.014	1992.014	1992.014	1852.821	123.993	263.185	263.185	360.398	360.398
Flujo de volumen m <sup>3</sup> /s (cum/hr)	33.86 (121911.2)	469.4 (1.69E+06)	261.4 (940966.6)	922.2 (3.32E+06)	866.7 (3.12E+06)	13.67 (49218.57)	14.22 (51174.16)	5.641 (20307.05)	0.118 (425.414)	2.996 (10786.28)
Densidad kg/m <sup>3</sup> (lb/cubo)	14.03 (0.876)	1.185 (0.074)	2.114 (0.132)	0.593 (0.037)	0.594 (0.037)	2.515 (0.157)	5.142 (0.321)	12.96 (0.809)	847.2 (52.887)	33.41 (2.086)
Flujo de masa tonelada/hr										
H <sub>2</sub> O	0	0	0	0	0	103.165	259.895	259.895	360.398	360.398
CO <sub>2</sub>	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
O <sub>2</sub>	180.486	463.974	463.974	463.974	324.782	0	0	0	0	0
N <sub>2</sub>	1526.995	1528.04	1528.04	1528.04	1528.04	0	0	0	0	0
H <sub>2</sub> S	0	0	0	0	0	0.195	0.195	0.195	0	0
H <sub>2</sub>	0	0	0	0	0	20.633	3.095	3.095	0	0
O <sub>2</sub> S	0.141	0	0	0	0	0	0	0	0	0
O <sub>3</sub> S	0.006	0	0	0	0	0	0	0	0	0
NO	2.212	0	0	0	0	0	0	0	0	0
NO <sub>2</sub>	0.039	0	0	0	0	0	0	0	0	0

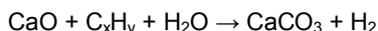
Tabla 4. Configuraciones de Procesos de Carbón a Electricidad y Eficiencias de Procesos

configuración de Proceso	Gasificación convencional WGS -SOFC	DCL-SOFT sin integración	DCL-SOFC con Cámara de combustión-cátodo integración	DCL-SOFC con oxidante de bucle cerrado -ánodo e integración de cámara de combustión	DCL-SOFC con Integración de calor adicional de reductor

Eficiencia (% HHV con captura de CO <sub>2</sub> )	38 -48%	50 -55%	51 -57%	58 -64%	66 -71%
---	---------	---------	---------	---------	---------

5 Aunque el sistema de DCL-SOFC y el proceso ejemplificado en esta realización es específico de composiciones de fluido de trabajo, el tipo de reforma/bloque de división de agua, y el bloque de celda de combustible, las opciones de los parámetros antes mencionados tienen un gran grado de libertad. Por ejemplo, el CO y el CO<sub>2</sub> se pueden utilizar en lugar de H<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O como fluido de trabajo. Las diversas configuraciones descritas en Fan, Solicitud PCT No. WO 2010037011 se pueden utilizar en el bloque de reformación/división de agua. Otras celdas de combustible tales como celda de combustible de carbonato fundido (MCFC) también se pueden integrar con el sistema de DCL. En este caso, una porción del CO<sub>2</sub> generado del reductor de DCL se inyecta al lado del cátodo de la MCFC para facilitar la conversión. Además, el sistema de DCL se puede configurar de tal manera que el escape gaseoso desde el reductor no se convierta completamente. En este caso, el combustible no convertido se envía a otra celda de combustible y/o etapa de pulido de oxígeno previa a la obtención de una corriente de CO<sub>2</sub> concentrada (véase Figura 10). Cuando se utilizan todas las partículas portadoras de oxígeno reducido para la producción de hidrógeno, es decir la relación de división para la combustión directa es 0, y asumiendo calor de alto grado en los gases de escape de la cámara de combustión se puede utilizar para calentar el reductor, la eficiencia de la generación de electricidad puede alcanzar 70% con compresión de CO<sub>2</sub>. La Tabla 4 muestra las diversas configuraciones y eficiencias de generación de energía correspondientes.

La Figura 6 ilustra un sistema en el que un sorbente de calcio mejora el proceso de reformado y se utiliza como el bloque de reformación/división de agua. En este caso, se reforma/cambia el combustible a H<sub>2</sub> con la presencia de sorbente de CaO/Ca(OH)<sub>2</sub> y gas de escape rico en vapor/vapor del ánodo de celdas de combustible:



20 El sorbente gastado luego se regenera a altas temperaturas utilizando el calor residual desde el sistema en el calcinador:



25 Una etapa de hidratación se agrega opcionalmente para reactivar el sorbente. El CO<sub>2</sub> concentrado del calcinador luego se comprime y secuestra. En este caso, una porción del fluido de trabajo se puede dividir para evitar la acumulación de fluido de trabajo.

La Figura 7 ilustra la opción de utilizar un reformador/agua del reactor como el bloque de reformación/división de agua. El combustible se reforma/desplaza en el reformador, y el CO<sub>2</sub> se retira simultáneamente de la membrana. El lado del material retenido de reformador enriquece el fluido de trabajo con combustible reformado, mientras que el lado del permeado produce CO<sub>2</sub> concentrado.

30 La Figura 8 ilustra un sistema que muestra la integración de un ciclo de división de agua óxido de zinc y la celda de combustible. La energía térmica de una fuente solar o nuclear se utiliza para facilitar el ciclo de división de agua a base de óxido de zinc. El hidrógeno obtenido de la división de agua se utiliza para enriquecer el fluido de trabajo que comprende H<sub>2</sub>O y H<sub>2</sub>.

**REIVINDICACIONES**

1. Un método para producir electricidad y una corriente rica en CO<sub>2</sub> separada de un combustible y vapor carbonoso que comprende:
- 5 reducir un portador que comprende una pluralidad de partículas de compuesto de cerámica que tiene por lo menos Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dispuesto sobre un soporte a un bajo estado de oxidación que incluye hierro metálico al hacer reaccionar la partícula con un combustible carbonoso en una primera zona de reacción, en la que la primera zona de reacción comprende un reductor;
- 10 oxidar por lo menos una porción de el hierro metálico que contiene partículas con un vapor o gas rico en CO<sub>2</sub> desde un ánodo de celda de combustible en una segunda zona de reacción mientras que genera una corriente de gas rico en combustible (H<sub>2</sub> y/o CO);
- regresar la corriente de gas rica en combustible desde la segunda zona de reacción hasta el ánodo de la celda de combustible a través de un bucle cerrado entre la segunda zona de reactor y la celda de combustible;
- 15 oxidar el hierro metálico restante que contiene partículas desde la primera zona de reacción y el óxido de hierro que contiene la partícula obtenida de la reacción de oxidación en la segunda zona de reacción con un gas que contiene oxígeno para producir una partícula que contiene Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> en una tercera zona de reacción; y
- regresar la partícula que contiene Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> a la primera zona de reacción;
- en la que por lo menos una porción de el gas que contiene oxígeno utilizado en la tercera zona de reacción es el gas que contiene oxígeno producido desde la salida de la celda de el cátodo de combustible.
- 20 2. Un método como se reivindica en la reivindicación 1 en el que la celda de combustible comprende una pila de celdas de combustible de óxido sólido.
3. Un método como se reivindica en la reivindicación 1 en el que el combustible carbonoso comprende gas natural sintético, monóxido de carbono, gas rico en metano, hidrocarburos ligeros, combustibles carbonosos líquidos, hulla, biomasa, arena de alquitrán, esquisto bituminoso, coque de petróleo, hidrocarburos líquidos pesados, cera, y mezclas de los mismos.
- 25 4. Un método como se reivindica en la reivindicación 1 en el que se secuestra el CO<sub>2</sub> restante.
5. Un método como se reivindica en la reivindicación 1 en el que las partículas de compuesto de cerámica contienen material de soporte que comprende un material de cerámica seleccionado de por lo menos uno del grupo que consiste de óxidos de Al, Ti, Zr, Y, Si, La, Cr, Mg, Mn, Cu, Ca, carburos de Si y Ti, sepiolita, bentonita, y caolín.
- 30 6. Un método como se reivindica en la reivindicación 1 en el que la corriente de gas rico en CO<sub>2</sub> se introduce en el fondo de la primera zona de reacción para mejorar las conversiones de las partículas de óxido de hierro y los combustibles carbonosos.
7. Un método como se reivindica en la reivindicación 1 en el que el calor liberado desde dicha tercera zona de reacción se utiliza para precalentar las corrientes de gas de alimentación a la celda de cátodo de combustible o la tercera zona de reacción.
- 35 8. Un método como se reivindica en la reivindicación 1 en el que se proporciona la celda de combustible comprende una celda de combustible de carbonato fundido y por lo menos una porción de el CO<sub>2</sub> requerido por la celda de cátodo de combustible por la corriente de gas rico en CO<sub>2</sub> producida por la primera zona de reacción.

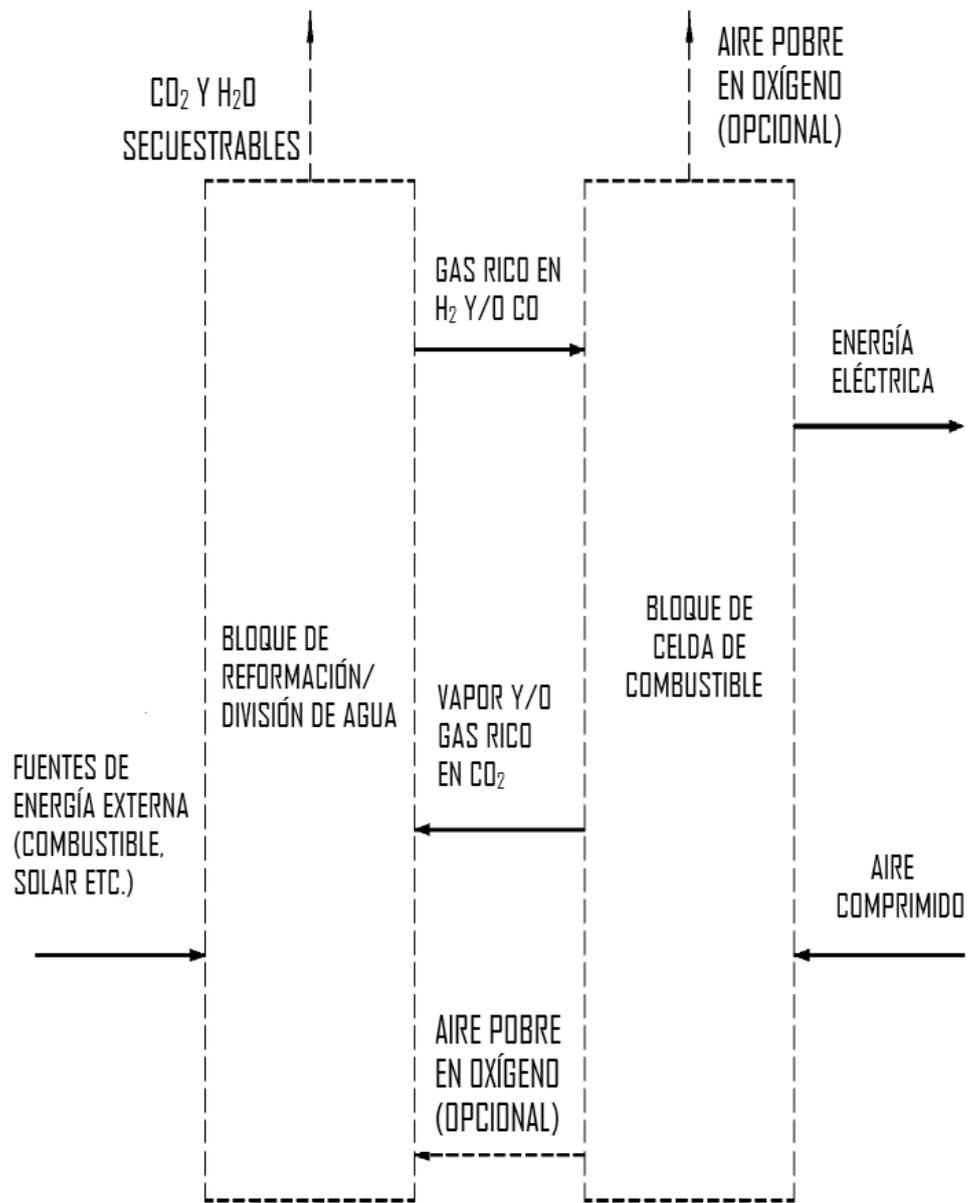


FIG.1

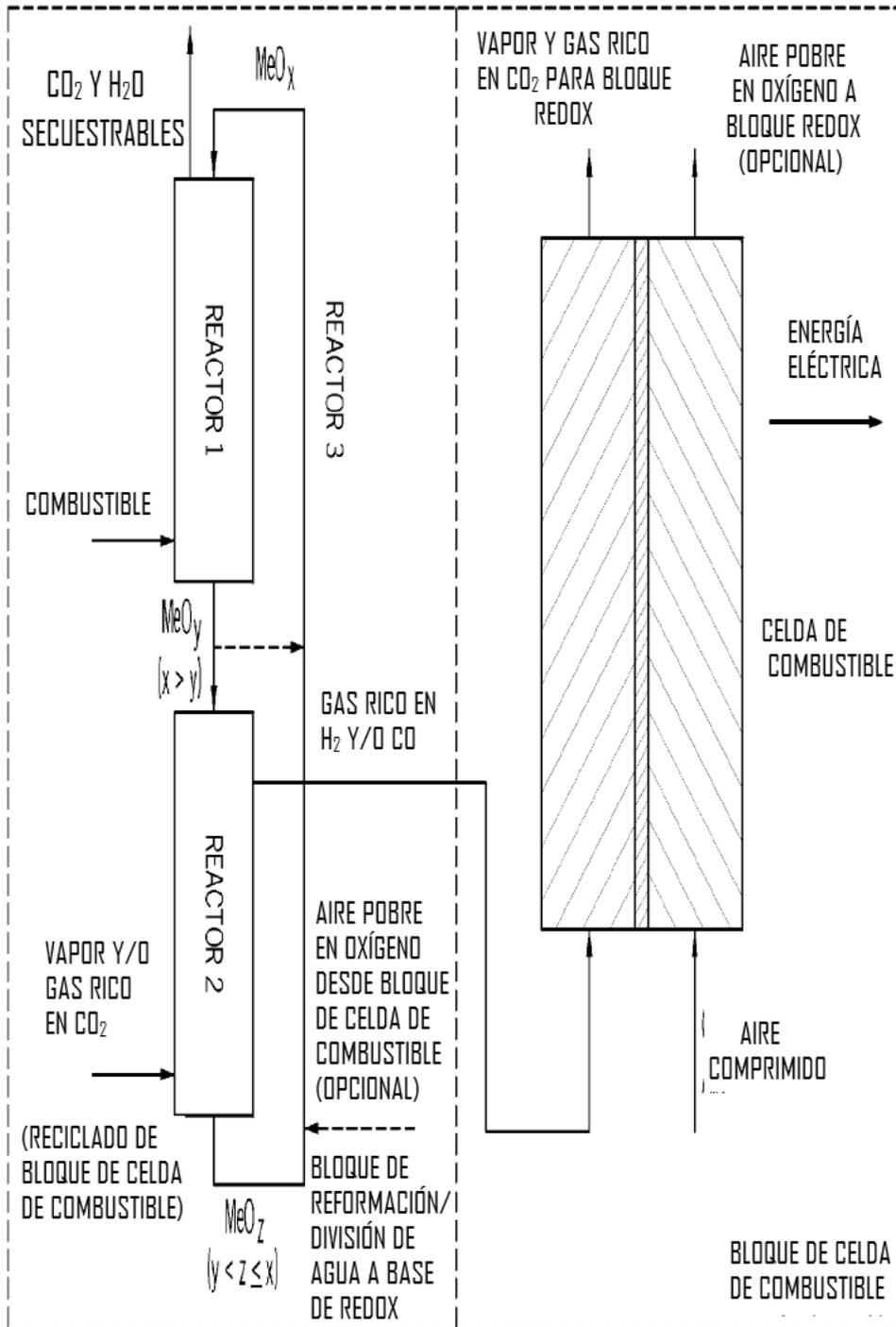


FIG. 2

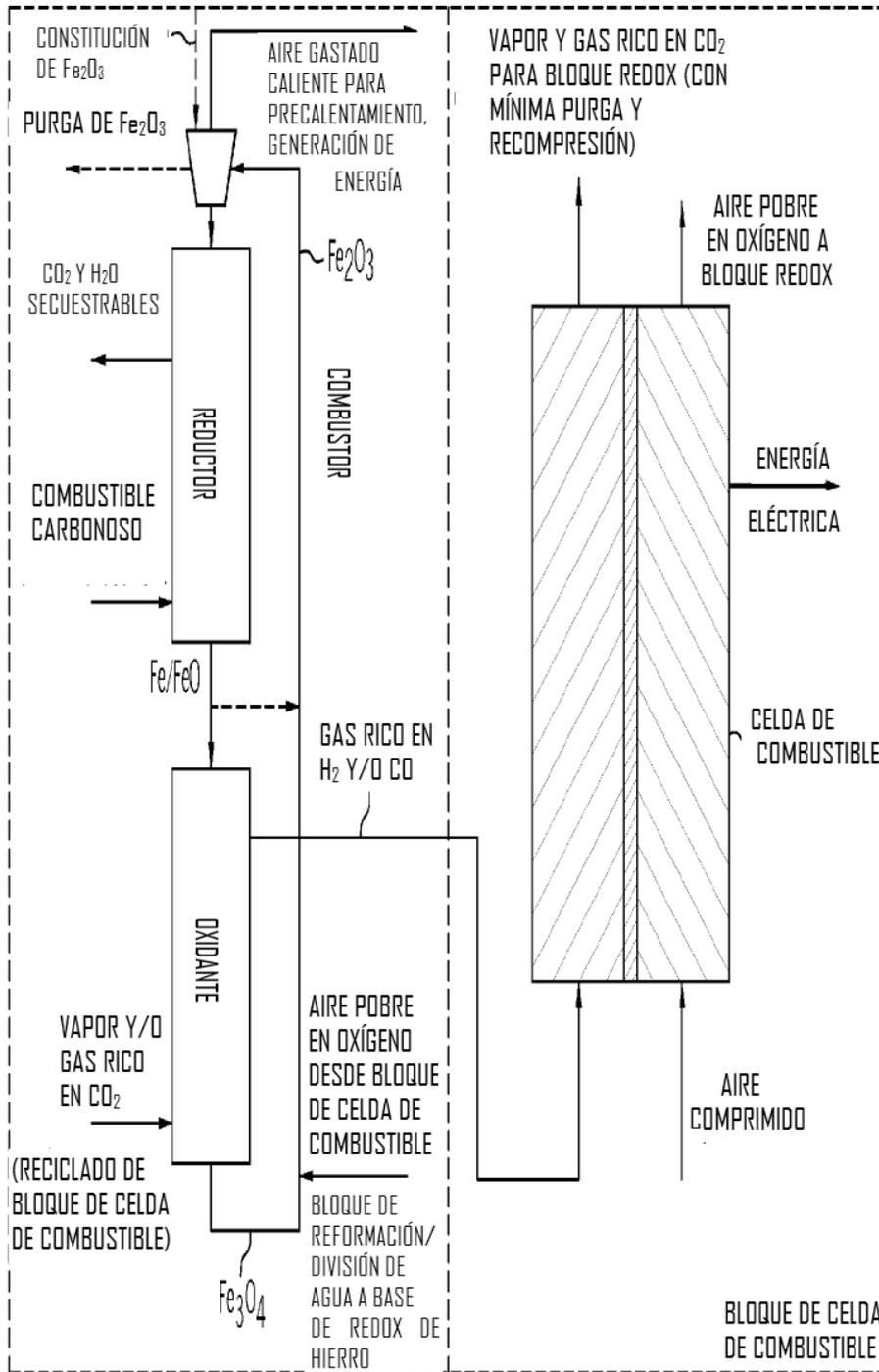


FIG. 3

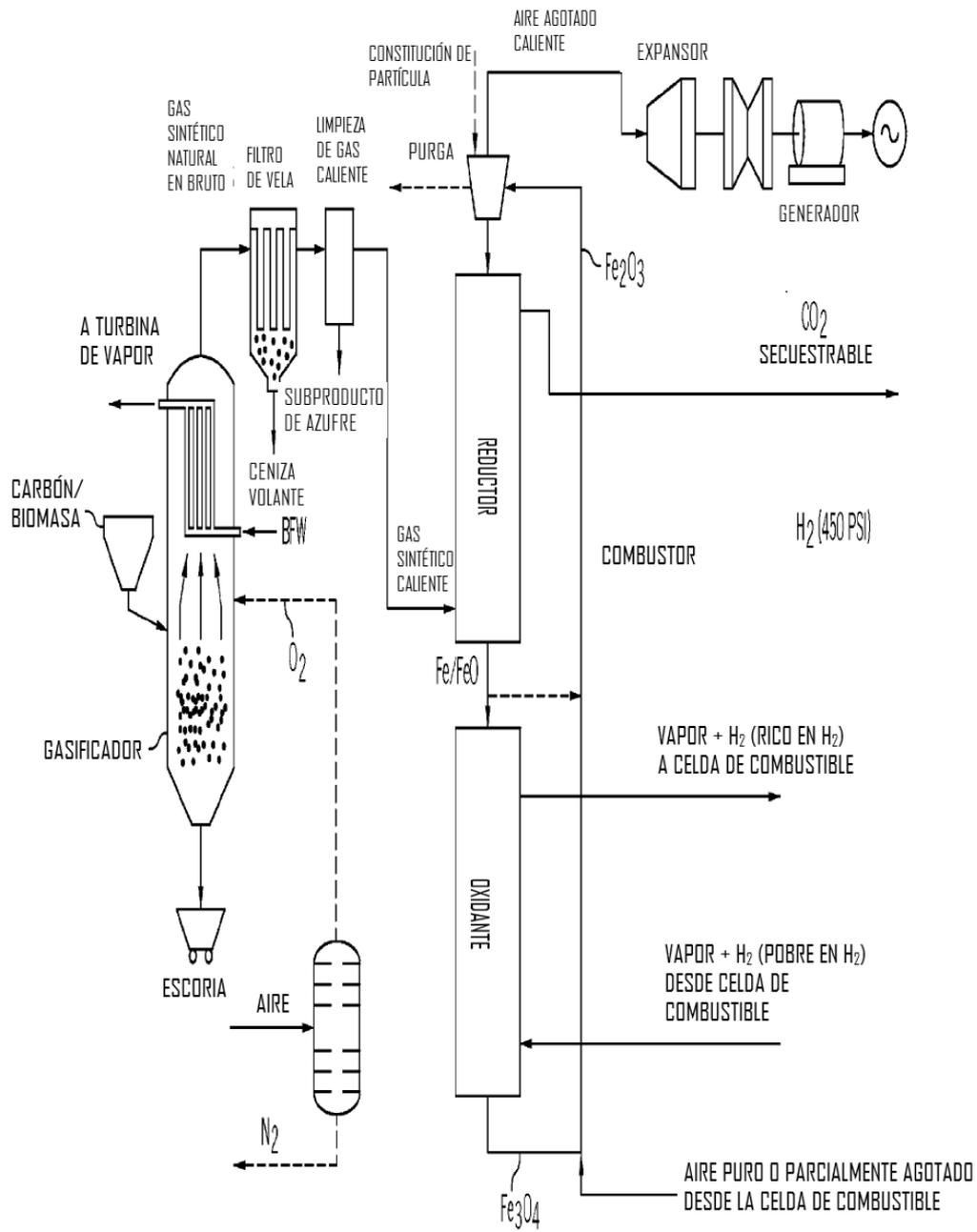


FIG. 4

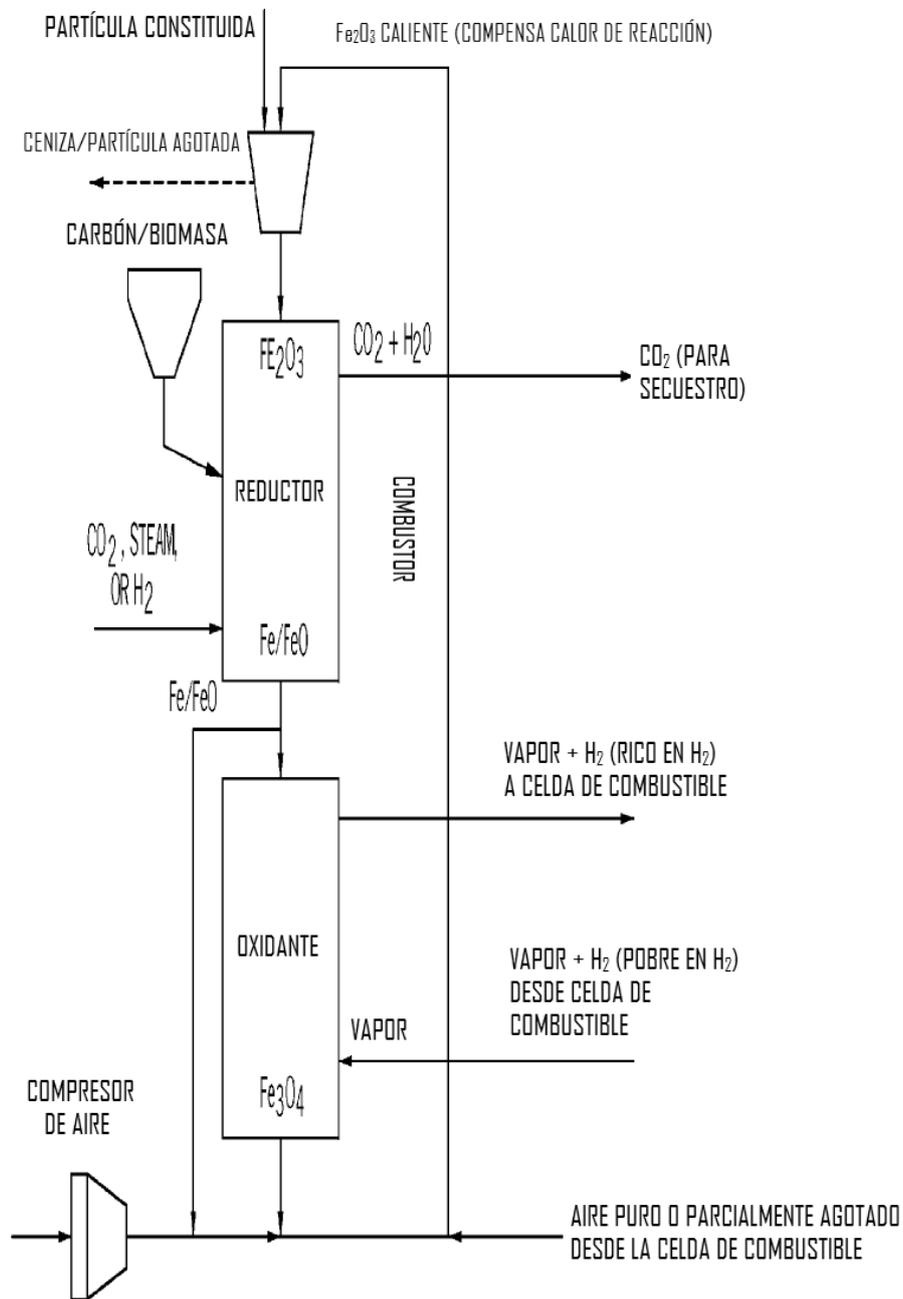


FIG. 5

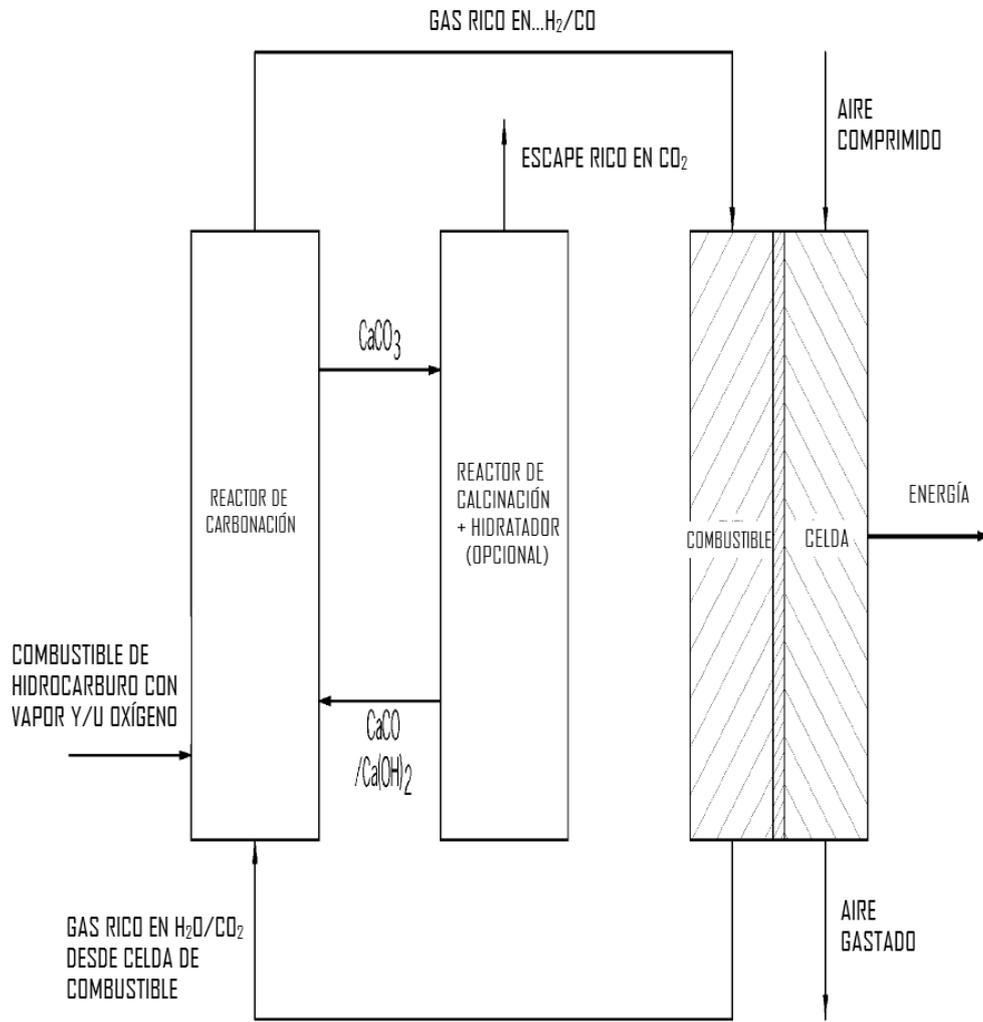


FIG. 6

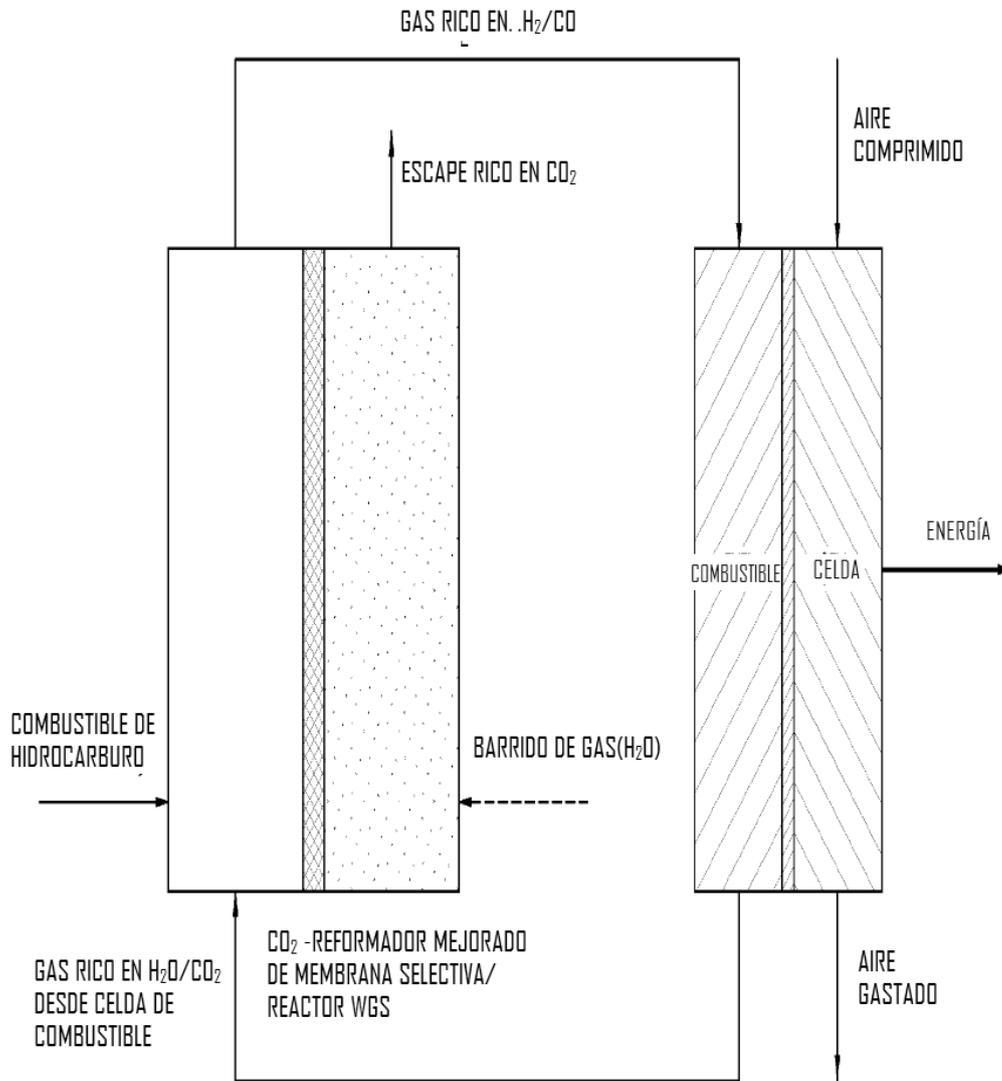


FIG. 7

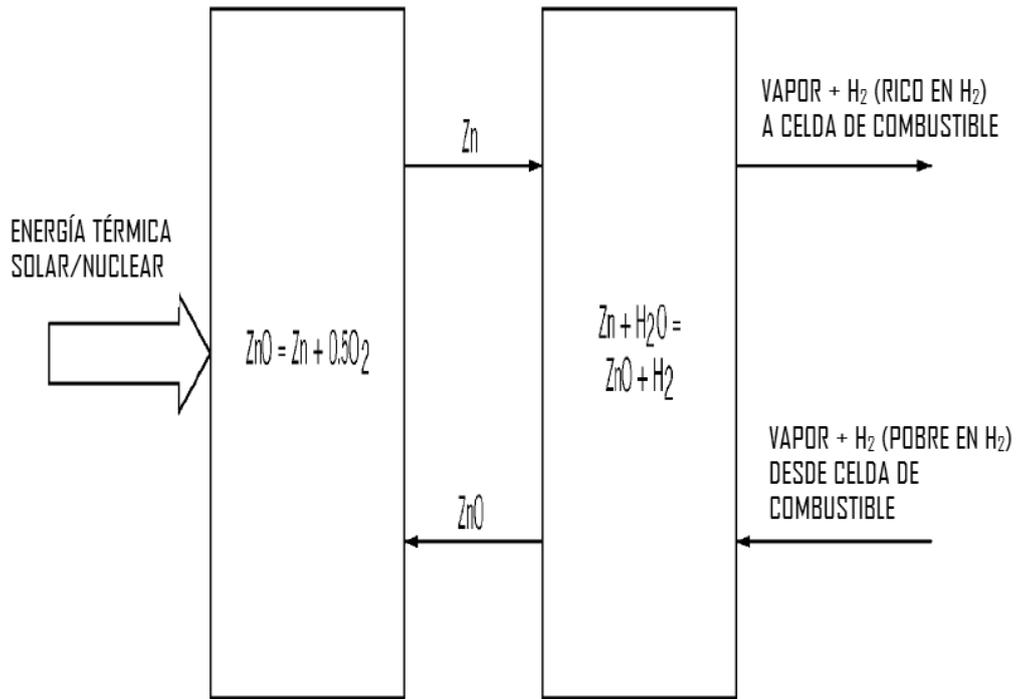


FIG. 8



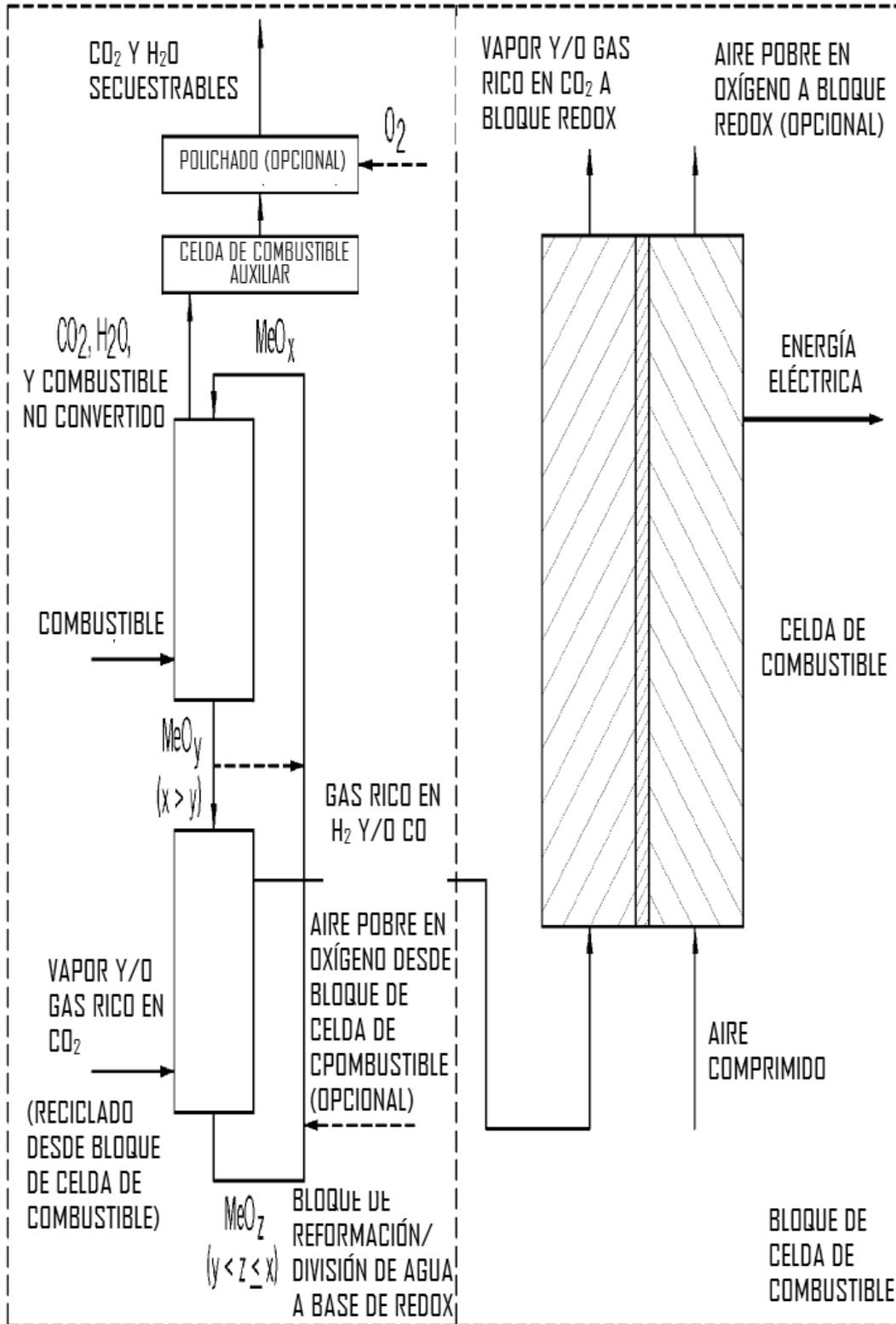


FIG. 10