



(12) Translation of  
European patent specification

(11) NO/EP 2969932 B1

NORWAY

(19) NO  
(51) Int Cl.  
*C01B 3/50 (2006.01)*  
*C01B 3/34 (2006.01)*  
*C01B 3/48 (2006.01)*  
*C01C 1/04 (2006.01)*  
*C07C 1/04 (2006.01)*  
*C07C 29/152 (2006.01)*  
*C10G 2/00 (2006.01)*  
*C10K 3/04 (2006.01)*  
*C21B 15/00 (2006.01)*  
*C25B 3/02 (2006.01)*  
*F02C 3/22 (2006.01)*  
*F02C 6/18 (2006.01)*  
*H01M 8/04 (2016.01)*  
*H01M 8/0668 (2016.01)*

Norwegian Industrial Property Office

---

|      |                                                                            |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    |
|------|----------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| (21) | Translation Published                                                      | 2019.09.23                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |
| (80) | Date of The European<br>Patent Office Publication of<br>the Granted Patent | 2019.04.17                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |
| (86) | European Application Nr.                                                   | 14719453.4                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |
| (86) | European Filing Date                                                       | 2014.03.13                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |
| (87) | The European Application's<br>Publication Date                             | 2016.01.20                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |
| (30) | Priority                                                                   | 2013.03.15, US, 201361787587 P<br>2013.03.15, US, 201361787697 P<br>2013.03.15, US, 201361787879 P<br>2013.03.15, US, 201361788628 P<br>2013.09.30, US, 201361884376 P<br>2013.09.30, US, 201361884545 P<br>2013.09.30, US, 201361884565 P<br>2013.09.30, US, 201361884586 P<br>2013.09.30, US, 201361884605 P<br>2013.09.30, US, 201361884635 P<br>2013.10.11, US, 201361889757 P |
| (84) | Designated Contracting<br>States:                                          | AL ; AT ; BE ; BG ; CH ; CY ; CZ ; DE ; DK ; EE ; ES ; FI ; FR ; GB ; GR ; HR ; HU ;<br>IE ; IS ; IT ; LI ; LT ; LU ; LV ; MC ; MK ; MT ; NL ; NO ; PL ; PT ; RO ; RS ; SE ; SI ;<br>SK ; SM ; TR                                                                                                                                                                                  |
| (73) | Proprietor                                                                 | ExxonMobil Research and Engineering Company, 1545 Route 22 East P.O. Box<br>900, Annandale, NJ 08801-0900, USA                                                                                                                                                                                                                                                                     |
| (72) | Inventor                                                                   | BERLOWITZ, Paul, J., 4 Nicole Terrace, Glen Gardner, NJ 08826, USA<br>BARCKHOLTZ, Timothy, Andrew, 224 Johnson Road, Whitehouse Station, NJ<br>08889, USA                                                                                                                                                                                                                          |

LEE, Anita, S., 227 Columbus Dr., Unit 302 B, 07302 Jersey City, NJ, USA  
HERSHKOWITZ, Frank, 509 Lyons Road, Basking Ridge, NJ 07920, USA

(74) Agent or Attorney OSLO PATENTKONTOR AS, Hoffsvæien 1A, 0275 OSLO, Norge

---

(54) Title **INTEGRATION OF MOLTEN CARBONATE FUEL CELLS IN METHANOL SYNTHESIS**

(56) References

Cited:

US-A- 6 162 556

US-A- 4 772 634

US-A- 4 917 971

JP-A- H05 163 180

US-A1- 2005 164 051

CAVALLARO S ET AL: "Syngas and electricity production by an integrated autothermal reforming/molten carbonate fuel cell system", JOURNAL OF POWER SOURCES, ELSEVIER SA, CH, vol. 76, no. 2, 1 December 1998 (1998-12-01), pages 190-196, XP004151858, ISSN: 0378-7753, DOI: 10.1016/S0378-7753(98)00165-7

Enclosed is a translation of the patent claims in Norwegian. Please note that as per the Norwegian Patents Acts, section 66i the patent will receive protection in Norway only as far as there is agreement between the translation and the language of the application/patent granted at the EPO. In matters concerning the validity of the patent, language of the application/patent granted at the EPO will be used as the basis for the decision. The patent documents published by the EPO are available through Espacenet (<http://worldwide.espacenet.com>) or via the search engine on our website here: <https://search.patentstyret.no/>

## Krav

1. Fremgangsmåte for syntetisering av hydrokarbonholdige forbindelser, hvor fremgangsmåten omfatter:

5                   innføring av en brenselstrøm som omfatter et reformerbart brensel inn i  
                       en anode av en brenselcelle med smeltet karbonat, et indre  
                       reformeringsselement assosiert med anoden, eller en kombinasjon derav;  
                       innføring av en katodeinnløpsstrøm som omfatter CO<sub>2</sub> og O<sub>2</sub> inn i en  
                       katode av brenselcellen, idet katodeinnløpsstrømmen eventuelt omfatter  
                       eksos fra en forbrenningsturbin; generere elektrisitet innen brenselcellen  
 10                   av smeltet karbonat; generering av en anodeeksos omfattende H<sub>2</sub>, CO,  
                       og CO<sub>2</sub>; separere CO<sub>2</sub> fra i det minste en del av anodeeksosen for å  
                       produsere en anode utstrømningsgass; reagerer i det minste en del av  
                       anodeutstrømningsgassen i nærvær av en metanol syntesekatalysator  
                       under effektive betingelser for å danne metanol til å produsere minst en  
 15                   metanolholdig strøm og en eller flere strømmer omfattende gassformige  
                       eller væskeformige produkter; og resirkulering av minst en del av den  
                       ene eller den andre strøm av gassformige eller væskeformige produkter  
                       for å danne i det minste en del av en katode innløpsstrøm, hvor CO<sub>2</sub>  
                       utnyttelsen i katoden er minst 60 %.

20    2. Fremgangsmåte ifølge krav 1, videre omfatter justering av komposisjonen  
           av anodeeksosen, anodeutstrømningsgassen eller en kombinasjon derav,  
           fortrinnsvis ved fjerning av CO<sub>2</sub> derfra, ved å gjennomføre en omvendt vanngass-  
           skifteprosess, eller en kombinasjon derav, for å oppnå en Modul-verdi M for  
           anodeutstrømningsgassen på 1,7 til 2,3, spesielt 1,8 til 2,3; 1,9 til 2,3; 1,7 til 2,2;  
 25           1,8 til 2,2; 1,9 til 2,2; 1,7 til, 2,1; 1,8 til 2,1 eller 1,9 til 2,1, hvor M er definert som  
            $M = [H_2 - CO_2] / [CO + CO_2]$ .

3. Fremgangsmåte ifølge krav 2, hvor justeringssteget omfatter: å dele  
           anodeeksosen eller anodeutstrømningsgassen for å danne en første delt strøm og  
 30           en andre delt strøm; utføre en omvendt vanngass skifte på den første delte  
           strømmen for å danne en første skiftet strøm; og kombinere minst en del av den  
           første skiftede strømmen med minst en del av andre delte strømmen for å danne  
           en justert anodeeksos eller en justert anodeutstrømningsgass.

4. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, hvor anodeeksosen, har et molarforhold til  $H_2:CO$  på minst 3,0:1, spesielt minst 4,0:1 eller minst 5,0:1 og eventuelt 10:1 eller mindre.
- 5 5. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, som omfatter komprimering av minst en del av anodeutstrømngassen før reaksjon i nærvær av metanolsyntesekatalysatoren.
- 10 6. Fremgangsmåte ifølge hvilket som helst av de foregående krav, hvor den ene eller flere strømmer omfatter gassformige eller væskeformige produkter som inkluderer: (i) minst en gruppe med  $C_2+$  alkoholer; (ii) minst en strøm omfattende  $H_2$ ,  $CO$ , det reformerbare brenselet eller en kombinasjon derav; eller (iii) både (i) og (ii).
- 15 7. Fremgangsmåte ifølge hvilket som helst av de foregående krav, hvor reaksjonssteget videre frembringer minst en strøm bestående av syngass som resirkuleres for å reagere i nærvær av metanolsyntesekatalysatoren.
- 20 8. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, hvor minst 90 volum % av det reformerbare brenselet er metan.
- 25 9. Fremgangsmåte ifølge hvilket som helst av de foregående krav, hvor brenselet ytterligere omfatter minst 5 volum %, spesielt minst 10 volum %, minst 20 volum %, minst 30 volum %, minst 35 volum % eller minst 40 volum % inerte gasser omfattende spesielt  $CO_2$  og/eller  $N_2$ .
- 30 10. Fremgangsmåte ifølge hvilket som helst av de foregående krav, hvor den effektive metanolsyntesebetingelse omfatter et trykk fra 5 MPag til 10 MPag og en temperatur fra 250 °C til 300 °C.
11. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, som videre omfatter å separere  $H_2O$  fra anodeeksosen, anodeutstrømngassen eller en kombinasjon derav.
- 35 12. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, hvor brenselcellen med smeltet karbonat drives ved et temperaturforhold fra 0,25 til 1,5, spesielt fra 0,25 til 1,3, fra 0,25 til 1,15, fra 0,25 til 1,0, fra 0,25 til 0,85, fra 0,25 til 0,8, eller fra 0,25 til 0,75, hvor termisk utnyttelsesforhold er varmen produsert

av eksoterme reaksjoner i en brenselcellesammenstilling dividert med endotermisk varmetilførsel av reformeringsreaksjoner som forekommer i brenselcellesammenstillingen.

- 5 13. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, hvor en mengde av det reformerbare brenselet introdusert i anoden, det indre reformeringselementet assosiert med anoden, eller kombinasjon av dette, leverer et reformerbart brenseloverskuddsforhold på minst 1,5, spesielt minst 2,0, minst 2,5 eller ved omtrent 3,0, hvor det reformerbare brenseloverskuddsforhold er den
- 10 nedre varmeverdi av reformerbart brensel levert til anoden og/eller et reformeringsstadium forbundet med anoden i forhold til den nedre varmeverdi av hydrogen oksidert i anoden på grunn av brenselcelle anodereaksjonen, hvor den nedre varmeverdien er entalpien av forbrenning av en brenselkomponent til dampfase, fulloksidert  $\text{CO}_2$  og  $\text{H}_2\text{O}$  produkter.
- 15 14. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, hvor et forhold av netto mol av syngass i anodeeksosen til mol  $\text{CO}_2$  i katodeeksosen er minst 2,0, spesielt minst 3,0, minst 4,0, minst 5,0, minst 10,0 eller minst 20,0, eventuelt 40,0 eller mindre, 30,0 eller mindre eller 20,0 eller mindre.
- 20 15. Fremgangsmåten ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, hvor utnyttelsen av brenselet i anoden, er 50 % eller mindre, spesielt 30 % eller mindre, 25 % eller mindre, eller 20 % eller mindre og at  $\text{CO}_2$  utnyttelse i katoden er minst 60 %, minst 65 %, minst 70 %, eller minst 75 %.
- 25 16. Fremgangsmåten ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, hvor brenselcellen med smeltet karbonat er drevet for å generere elektrisk kraft ved en strømtetthet på minst 150 mA/cm<sup>2</sup> og minst 40 mW/cm<sup>2</sup>, spesielt minst 50 mW/cm<sup>2</sup>, minst 60 mW/cm<sup>2</sup>, minst 80 mW/cm<sup>2</sup> eller ved minst 100 mW/cm<sup>2</sup> av
- 30 spillvarme, hvor fremgangsmåten videre omfatter å utføre en effektiv mengde av en endoterm reaksjon for å opprettholde en temperaturforskjell mellom et anodeinnløp og en anodeutløp på 100 °C eller mindre, hvor den endoterme reaksjon som utføres bruker eventuelt minst 40 % av spillvarmen.
- 35 17. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, som utgjør en elektrisk effektivitet for brenselcellen med smeltet karbonat mellom ca. 10 % og ca. 40 %, spesielt mellom 10 % og 35 %, mellom 10 % og 30 %, mellom 10 % og 25 %, mellom 10 % og 20 %, effektivitet for brenselcellen på minst 50 %,

spesielt minst 55 %, minst 60 %, minst 65 %, minst 70 %, minst 75 %, eller minst 80 %.