



(12) Translation of
European patent specification

(11) NO/EP 2973818 B1

NORWAY

(19) NO
(51) Int Cl.
C01B 3/50 (2006.01)
C01B 3/34 (2006.01)
C01B 3/48 (2006.01)
C10G 2/00 (2006.01)
C10K 3/04 (2006.01)
C25B 3/02 (2006.01)
H01M 8/04111 (2016.01)
H01M 8/0668 (2016.01)
H01M 8/14 (2006.01)

Norwegian Industrial Property Office

(21)	Translation Published	2019.09.23
(80)	Date of The European Patent Office Publication of the Granted Patent	2019.04.17
(86)	European Application Nr.	14721064.5
(86)	European Filing Date	2014.03.13
(87)	The European Application's Publication Date	2016.01.20
(30)	Priority	2013.03.15, US, 201361787587 P 2013.03.15, US, 201361787697 P 2013.03.15, US, 201361787879 P 2013.03.15, US, 201361788628 P 2013.09.30, US, 201361884376 P 2013.09.30, US, 201361884545 P 2013.09.30, US, 201361884565 P 2013.09.30, US, 201361884586 P 2013.09.30, US, 201361884605 P 2013.09.30, US, 201361884635 P 2013.10.11, US, 201361889757 P
(84)	Designated Contracting States:	AL ; AT ; BE ; BG ; CH ; CY ; CZ ; DE ; DK ; EE ; ES ; FI ; FR ; GB ; GR ; HR ; HU ; IE ; IS ; IT ; LI ; LT ; LU ; LV ; MC ; MK ; MT ; NL ; NO ; PL ; PT ; RO ; RS ; SE ; SI ; SK ; SM ; TR
(73)	Proprietor	ExxonMobil Research and Engineering Company, 1545 Route 22 East P.O. Box 900, Annandale, NJ 08801-0900, USA
(72)	Inventor	BERLOWITZ, Paul, J., 4 Nicole Terrace, Glen Gardner, NJ 08826, USA BARCKHOLTZ, Timothy, Andrew, 224 Johnson Road, Whitehouse Station, NJ 08889, USA LEE, Anita, S., 227 Columbus Dr.Unit 302 B, Jersey City, NJ 07302, USA HERSHKOWITZ, Franz, 509 Lyons Road, Basking Ridge, New Jersey 07920, USA

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

(54) Title **INTEGRATION OF MOLTEN CARBONATE FUEL CELLS IN A REFINERY SETTING**

(56) References

Cited:

US-A1- 2005 164 051

US-A1- 2003 143 448

CAMPANARI S ET AL: "CO₂ capture from combined cycles integrated with Molten Carbonate Fuel Cells", INTERNATIONAL JOURNAL OF GREENHOUSE GAS CONTROL, ELSEVIER LTD, GB, vol. 4, no. 3, 1 May 2010 (2010-05-01), pages 441-451, XP027009346, ISSN: 1750-5836 [retrieved on 2010-04-14]

CLIFF LOWE ET AL: "Technology assessment of hydrogen firing of process heaters", ENERGY PROCEDIA, vol. 4, 1 July 2011 (2011-07-01), pages 1058-1065, XP028213015, ISSN: 1876-6102, DOI: 10.1016/J.EGYPRO.2011.01.155 [retrieved on 2011-04-01]

UMBERTO DESIDERI ET AL: "MCFC-based CO₂ capture system for small scale CHP plants", INTERNATIONAL JOURNAL OF HYDROGEN ENERGY, vol. 37, no. 24, 1 December 2012 (2012-12-01), pages 19295-19303, XP055125101, ISSN: 0360-3199, DOI: 10.1016/j.ijhydene.2012.05.048

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 å generere hydrogen i raffineri, hvor fremgangsmåten omfatter: innføring av en brenselstrøm som omfatter et reformbart brensel inn i en anode av en brenselcelle med smeltet karbonat, et internt reformeringselement
5 assosiert med anoden, eller en kombinasjon derav; mottak av en eller flere CO₂-holdige strømmen utledet fra en eller flere første raffineriprosesser, introdusering av en katodeinnløpsstrøm som omfatter CO₂ og O₂ inn til katoden av brenselcellen med smeltet karbonat; generering av elektrisitet i brenselcellen med smeltet karbonat; generering av en anodeeksos omfattende H₂ og CO₂; gjennomføring av
10 en separering av anodeeksosen for å danne en CO₂-rik gasstrøm som har et CO₂-innhold større enn et CO₂-innhold i anodeeksosen, og en CO₂-utarmet gasstrøm som har et CO₂-innhold mindre enn CO₂-innholdet i anodeeksosen, hvor en CO₂-utarmet gasstrøm omfatter en H₂-rik gasstrøm og en syngass-strøm; og leverer en CO₂-utarmet gasstrøm til en eller flere andre raffineriprosesser, hvor CO₂-
15 utnyttelsen i brenselcellen er minst 60 %.
2. Fremgangsmåte ifølge krav 1, hvor katodeinnløpsstrømmen omfatter en eller flere CO₂-innholdende strømmen direkte eller indirekte utledet fra en eller flere første raffineriprosesser.
20
3. Fremgangsmåte ifølge krav 1 eller 2, hvor brenselcellen med smeltet karbonat drives ved et termisk forhold fra omtrent 0,25 til omtrent 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, eller fra 0,25 til 0,75, hvor det termiske forhold er varmen produsert av eksoterme reaksjoner i en
25 brenselcellesammenstilling dividert med det endotermiske varmekrav fra reformeringsreaksjoner som forekommer i brenselcellesammenstillingen.
4. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, videre omfattende å separere H₂O fra minst en av anodeeksosene, den CO₂-utarmede
30 strømmen, og den CO₂-rike strømmen i en eller flere separate faser.
5. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, hvor mengden av det reformerbare brenselet introdusert i anoden, det indre reformeringselementet assosiert med anoden, eller en kombinasjon derav,
35 tilveiebringer et formelt brenseloverskuddsforhold på minst ca. 1,5, spesielt minst 2,0, minst 2,5 eller minst 3,0, hvor reformerbart brenseloverskuddsforhold er lavere oppvarmingsverdi 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 brenselcelleanodereaksjonen, hvor den nedre varmeverdien er entalpien av forbrenning av brenselkomponenten til dampfase, fulloksidert CO_2 og H_2O -produkt.

5

6. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, hvor det er et forhold på netto mol syngass i anodeeksosen til mol CO_2 i katodeeksosen på minst omtrent 2,0, spesielt minst 3,0, minst 4,0, minst 5,0, minst 10,0 eller minst 20,0, og eventuelt 40,0 eller mindre, spesielt 30,0 eller mindre eller 20,0 eller 10 mindre, hvorav nettomengden syngass i anodeeksosen er det kombinerte antall mol H_2 og antall mol CO som er tilstede i anodeeksosen, utlignet av mengden av H_2 og CO tilstede i anodeinnløpet.

7. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de ovennevnte krav, hvor 15 brennselsutnyttelsen i anoden er 50 % eller mindre, spesielt 45 % eller mindre, 40 % eller mindre, 35 % eller mindre, 30 % eller mindre, 25 % eller mindre eller 20 % eller mindre og CO_2 -utnyttelse i katoden er minst 60 %, spesielt minst 65 %, minst 70 % eller minst 75 %, hvor drivstoffutnyttelsen er forholdet mellom mengden hydrogen oksidert i anoden for produksjon av elektrisitet i forhold til det 20 reformerbare hydrogeninnholdet i anodens inngang, hvor reformerbart hydrogeninnhold er antall H_2 -molekyler som kan utdrives fra et drivstoff ved å reformere drivstoffet og deretter kjøre en vanngass-skiftreaksjonen til komplettering for å maksimere H_2 -produksjonen.

25 8. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, hvor, en brenselcelle med smeltet karbonat betjenes ved en første driftstilstand for å generere elektrisk kraft ved minst 50 mW/cm^2 , spesielt minst 80 mW/cm^2 eller minst 100 mW/cm^2 spillvarme, idet den første driftstilstanden gir en aktuell tetthet på minst 150 mA/cm^2 , og hvor en effektiv mengde av en endoterm reaksjon 30 utføres for å opprettholde en temperaturforskjell mellom et anodeinnløp og et anodeutløp på 100°C eller mindre, spesielt 80°C eller mindre eller 60°C eller mindre, hvor spillvarmen beregnes som $(V_0 - V_A) \cdot I$ basert på differansen mellom den faktiske driftsspenningen V_A og den ideelle spenningen V_0 for en brenselcelle som gir strømtetthet på I .

35

9. Fremgangsmåte ifølge krav 8, hvor gjennomføringen av den endoterme reaksjon forbruker minst 40 %, spesielt minst 50 %, minst 60 % eller minst 75 % av spillvarmen.

10. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, hvor en elektrisk virkningsgrad for brenselcellen med smeltet karbonat er mellom 10 % og 40 %, spesielt mellom 10 % og 35 %, mellom 10 % og 30 %, mellom 10 % og 25 %, eller mellom 10 % og 20 % og en total virkningsgrad til brenselcellen med smeltet karbonat er minst 55 %, spesielt minst 60 %, minst 65 %, ved minst 70 %, minst 75 %, eller minst 80 %, hvor den elektriske effektivitet er den elektrokjemiske kraft produsert av brenselcellen dividert med frekvensen av lavere oppvarmingsverdi for brenseltilførselen til brenselcellen, hvor den nedre varmeverdien er entalpien av forbrenning av brenselkomponenten til dampfase, fulloksidert CO₂- og H₂O-produkter, og hvor total brenselcellevirkningsgrad er den elektrokjemiske kraften som genereres av brenselcellen, pluss forholdet av lavere varmeverdi av syngass produsert i brenselcellen, dividert på forholdet av lavere varmeverdi av brenseltilførsel til anoden.
11. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, hvor en eller flere av det følgende er tilfredsstilt: minst én prosess i den ene eller flere første raffineri-prosess er en prosess i den ene eller flere andre raffineriprosess; brenselstrømmen avledes fra en eller flere tredje raffineriprosesser; og anodenes eksos har et molarforhold mellom H₂ og CO på minst 3,0: 1, og har et CO₂ innhold på minst 10 volum %.
12. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, hvor i det minste en del av brenselstrømmen passerer gjennom et for-reformeringsstadium før det innføres i anoden.
13. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, hvor i det minste en del av brenselstrømmen passerer gjennom et avsvovlingsstadium før det innføres i anoden.
14. Fremgangsmåte ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, videre omfattende å modifisere et H₂-innhold av en eller flere av anodeeksosen, den CO₂-rike gasstrømmen, og den CO₂-utarmede gasstrømmen ved hjelp av en vanngass-skiftprosess.
15. Fremgangsmåten ifølge et hvilket som helst av de foregående krav, hvor den CO₂-utarmede gass-strømmen blir videre separert i en første H₂-rik strøm med en første H₂-renhet og en andre H₂-rik strøm som har en andre H₂-renhet, hvor den

andre H₂-rike strømmen komprimeres til et større trykk enn den første H₂-rike strømmen.