

---

Octrooiraad



[10] A **Terinzagelegging** [11] **7704064**

---

Nederland

[19] NL

- 
- [54] Palladiumlegeringen voor waterstofdiffusie.  
[51] Int.Cl.: C22C5/04, B01D53/22, C01B1/03, C01B1/27.  
[71] Aanvrager: Europese Gemeenschap voor Atoomenergie (Euratom) te Luxemburg.  
[74] Gem.: Ir. J.G. Rhijnsburger  
's-Gravenbroekseweg 32  
Reeuwijk.

- 
- [21] Aanvraag Nr. 7704064.  
[22] Ingediend 14 april 1977.  
[32] Voorrang vanaf 28 april 1976.  
[33] Land van voorrang: Groot-Brittannië (GB).  
[31] Nummer van de voorrangsaanvraag: 17370/76.  
[23] --  
[61] --  
[62] --

---

[43] Ter inzage gelegd 1 november 1977.

De aan dit blad gehechte stukken zijn een afdruk van de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en).

EUROPESE GEMEENSCHAP VOOR ATOOMENERGIE (EURATOM)

Luxemburg

Uitvinders: G.

Musso, G

Piatti

Palladiumlegeringen voor waterstofdiffusie.

De uitvinding heeft betrekking op palladiumlegeringen voor waterstofdiffusie. Het is bekend dat waterstof dringt door niet-poreuze films of vellen van palladium of legeringen daarvan en daarin diffundeert. Tot dusver heeft men voor diffusie inrichtingen voor het scheiden van waterstof uit een mengsel gassen gebruik gemaakt van dunne films van palladium of legeringen daarvan in de vorm van dunwandige buizen of dunne folies. Aangezien de diffusiesnelheid van waterstof een functie is van het specifieke oppervlak van het toegepaste niet-poreuze septum, de dikte daarvan, het drukverschil daarover alsmede de temperatuur heeft men naar middelen gezocht om te voorzien in een septum van minimale dikte doelmatig ondersteund op een drukbestendige en temperatuur stabiele gestructureerde drager teneinde de waterstofstroomsnelheid door het septum maximaal te maken. Het dragermateriaal kan een sterk, poreus keramisch materiaal zijn. De dikte van de metaallaag is dikwijls 0,025-0,125 mm (1-5 mil). Indien men waterstof wenst af te scheiden uit een gasmengsel of extreem zuivere waterstof wenst te produceren waarbij men uitgaat van commercieel beschikbaar waterstof als uitgangsmateriaal bij hoge temperaturen van b.v. 500°C dient men palladiumlegeringen te gebruiken in plaats van zuivere palladium aangezien de laatste bij verhitting een faseverandering vertoont en daarna verbreekt. De palladiumlegering die het best bij hoge temperaturen kan worden gebruikt is een palladiumzilverlegering die ongeveer 25 gew.% zilver bevat. Kleine hoeveelheden iridium en/of platina kunnen tevens aanwezig zijn.

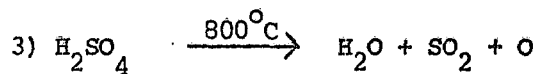
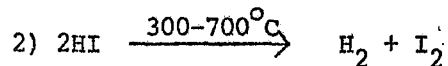
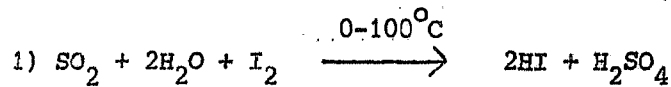
Wegens aanwezigheid van zilver is deze legering niet bestendig in een zure omgeving en corrodeert snel in aanwezigheid van

7704064

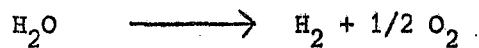
waterstofhalogeenzuren zoals HI.

Het is bekend waterstof te produceren uit water met behulp van thermische energie via slechts een cyclus van chemische reacties.

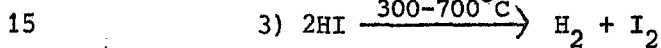
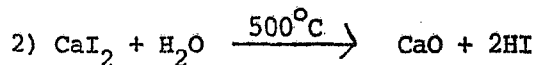
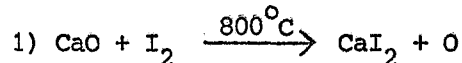
5 Een dergelijke cyclus kan zijn:



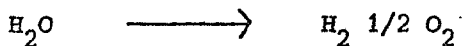
10 Het totale resultaat, wanneer  $\text{SO}_2$ ,  $\text{I}_2$  en  $\text{H}_2\text{O}$  gerecirculeerd worden is:



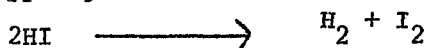
Een andere voorgestelde cyclus was:



Bij het recirculeren van  $\text{I}_2$  en  $\text{CaO}$  is het totale resultaat weer:



20 Beide cyclussen hebben de waterstof-producerende trap gemeenschappelijk:



Zoals de meeste chemische reacties is dit een evenwichtsreactie die alleen volledig naar rechts kan verlopen indien de waterstof uit het hete reactiemengsel zou kunnen worden verwijderd. Derhalve dient de reactie te worden uitgevoerd in een diffusie-inrichting met een palladiumlegeringsmembraan waardoor slechts waterstofgas kan diffunderen.

25  
30 Gevonden is dat een membraan, bestaande uit een palladiumlegering die silicium en/of tin bevat een goed corrosiegedrag heeft alsmede een zeer goede waterstofdiffusiesnelheid.

7704064

De palladiumtinlegering dient bij voorkeur 5-23 gew.% tin te bevatten. Goede resultaten zijn verkregen met de legering die 23 gew.% tin bevat.

5 Indien silicium wordt gebruikt heeft het de voorkeur dat de palladiumlegering 2-7 gew.% silicium bevat.

Er werd een legering gemaakt uit geringe onzuiverheden bevattend palladium en 23 gew.% tin. Deze had de volgende mechanische eigenschappen:

10 Treksterkte bij 20°C : 80 kg/mm<sup>2</sup>

Treksterkte bij 600°C : 70 kg/mm<sup>2</sup>

Rek bij breuk 20°C : 4,9%

Rek bij breuk 600°C : 5,8%.

Het smeltpunt van deze legering is 1280°C.

15 De legering werd gewalst teneinde een dunne folie te maken met een dikte van 0,031 mm. Een reactor werd verdeeld in twee delen door een scheidingswand bestaande uit deze dunne folie op een poreuze keramische dragerwand met een dikte van 5 cm. In een deel werd een mengsel van HI, H<sub>2</sub> en I<sub>2</sub> op een temperatuur van 600°C en een druk van 40 atm gebracht. Het andere deel van de reactor was op atmosferische druk. De waterstofdifusiesnelheid was 12 m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup> per uur. (m<sup>2</sup> is het oppervlak van de palladiumfolie).

20

Na 1000 uur bij de voornoemde reactieomstandigheden werd de folie uit de reactor en onderzocht. Er kon geen verandering in gewicht of uiterlijk worden waargenomen.

25 De Legeringen volgens de uitvinding worden gemaakt door smelten en mengen van de bestanddelen in een neutrale atmosfeer (stikstof of edele gassen) of een vacuum. De legering wordt daarna geëxtrudeerd of gelamineerd.

CONCLUSIES

1. Palladiumlegering bevattende ondergeschikte hoeveelheden onzuiverheden, waarbij de legerende component tin en/of silicium is.
2. Legering volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat deze 5-23 gew.% tin bevat.
- 5 3. Legering volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat deze 2-7 gew.% silicium bevat.
- 10 4. Werkwijze voor het produceren van waterstof met water als uitgangsmateriaal en met behulp van thermische energie via een cyclus van chemische reacties waarvan er één de ontleding van HI in H<sub>2</sub> en I<sub>2</sub> is, met het kenmerk, dat de waterstof die door deze reactie ontstaat uit het reactiemengsel wordt afgescheiden door diffusie door een membraan bestaande uit een legering volgens één der conclusies 1-3.

7704064