



**ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА  
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ**

**(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ**

(21)(22) Заявка: 2012156154/05, 24.12.2012

(24) Дата начала отсчета срока действия патента:  
24.12.2012

Приоритет(ы):

(22) Дата подачи заявки: 24.12.2012

(43) Дата публикации заявки: 27.06.2014 Бюл. № 18

(45) Опубликовано: 10.05.2015 Бюл. № 13

(56) Список документов, цитированных в отчете о поиске: RU 2203216 C2, 27.04.2003. RU 2071019 C1, 27.12.1996. SU 1816734 A1, 23.05.1993. JP 61040807 A, 27.02.1986. US 0003857927, 31.12.1974;

Адрес для переписки:

456770, Челябинская обл., г. Снежинск, ул. Васильева, 13, а/я 245, ФГУП "РФЯЦ-ВНИИТФ им. академ. Е.И. Забабахина", Отдел интеллектуальной собственности, Бакалову Г.В.

(72) Автор(ы):

**Борисов Виктор Николаевич (RU),  
Седов Евгений Владимирович (RU),  
Матвеева Ольга Борисовна (RU),  
Морозова Наталия Валерьевна (RU)**

(73) Патентообладатель(и):

**Федеральное государственное унитарное предприятие "РОССИЙСКИЙ ФЕДЕРАЛЬНЫЙ ЯДЕРНЫЙ ЦЕНТР-ВСЕРОССИЙСКИЙ НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ИНСТИТУТ ТЕХНИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ ИМЕНИ АКАДЕМИКА Е.И. ЗАБАБАХИНА" (RU)**

**(54) СПОСОБ ОЧИСТКИ ГАЗОВОЙ СМЕСИ ОТ ВОДОРОДА И/ИЛИ ЕГО ИЗОТОПОВ**

(57) Реферат:

Изобретение относится к способу очистки газовой смеси от водорода и/или его изотопов. В способе очистки газовой смеси от водорода и/или его изотопов, включающем окисление водорода кислородом в присутствии палладийсодержащего катализатора, согласно изобретению формируют оптимизированный слой адсорбента, защищающий палладийсодержащий катализатор от воздействия компонентов газовой смеси, при этом используют кислородсодержащее перекисное соединение щелочного металла, поглощающее воду, образующуюся на палладийсодержащем катализаторе и

распределяющуюся между адсорбентом и кислородсодержащим перекисным соединением щелочного металла, при поглощении получают кислород, компенсирующий его потери из газовой смеси на окисление водорода. Технический результат заключается в повышении эффективности извлечения водорода из газообразной смеси в замкнутых объемах за счет оптимизации диффузионного потока водорода из газовой смеси и его окисления кислородом с воздействием образующейся воды на кислородовыделяющее соединение с восполнением потерь кислорода, расходуемого на окисление водорода. 2 з.п. ф-лы, 9 пр.

**RU 2 550 201 C 2**

**RU 2 550 201 C 2**



FEDERAL SERVICE  
FOR INTELLECTUAL PROPERTY

(12) **ABSTRACT OF INVENTION**(21)(22) Application: **2012156154/05, 24.12.2012**(24) Effective date for property rights:  
**24.12.2012**

Priority:

(22) Date of filing: **24.12.2012**(43) Application published: **27.06.2014** Bull. № 18(45) Date of publication: **10.05.2015** Bull. № 13

Mail address:

**456770, Cheljabinskaja obl., g. Snezhinsk, ul.  
Vasil'eva, 13, a/ja 245, FGUP "RFJaTs-VNIITF im.  
akadem. E.I. Zababakhina", Otdel intellektual'noj  
sobstvennosti, Bakalovu G.V.**

(72) Inventor(s):

**Borisov Viktor Nikolaevich (RU),  
Sedov Evgenij Vladimirovich (RU),  
Matveeva Ol'ga Borisovna (RU),  
Morozova Natalija Valer'evna (RU)**

(73) Proprietor(s):

**Federal'noe gosudarstvennoe unitarnoe  
predpriyatie "ROSSIJSKIJ FEDERAL'NYJ  
JaDERNYJ TsENTR-VSEROSSIJSKIJ  
NAUChNO-ISSLEDOVATEL'SKIJ INSTITUT  
TEKhNICHESKOJ FIZIKI IMENI  
AKADEMIKA E.I. ZABABAKhINA" (RU)**

(54) **METHOD OF PURIFYING GAS MIXTURE FROM HYDROGEN AND/OR ISOTOPES THEREOF**

(57) Abstract:

FIELD: chemistry.

SUBSTANCE: invention relates to a method of purifying a gas mixture from hydrogen and/or isotopes thereof. A method of purifying a gas mixture from hydrogen and/or isotopes thereof, which includes oxidising hydrogen with oxygen in the presence of a palladium-containing catalyst, according to the invention, includes generating a hydrogen stream through diffusion from the gas mixture through an optimised adsorbent layer which protects the palladium-containing catalyst from components of the gas mixture, wherein the method employs an oxygen-containing peroxide compound of an alkali metal which absorbs water formed on the palladium-containing catalyst and

distributed between the adsorbent and the oxygen-containing peroxide compound of an alkali metal; during absorption, oxygen is obtained, which compensates for the loss thereof from the gas mixture during oxidation of hydrogen.

EFFECT: high efficiency of extracting hydrogen from a gaseous mixture in closed volumes owing to optimisation of the diffusion hydrogen stream from the gas mixture and oxidation thereof with oxygen while exposing the formed water to an oxygen-extracting compound and compensating for loss of oxygen during oxidation of hydrogen.

3 cl, 9 ex

Изобретение относится к технологии очистки газовых смесей от водорода или его изотопов в статическом режиме из газоздушных и кислородообедненных газовых смесей, в которых необходимо минимизировать потери кислорода и уменьшить или исключить накопление паров воды в замкнутых объемах, и может быть использовано в электрохимической, химической, радиоэлектронной, приборостроительной и других областях промышленности.

Известен способ поглощения водорода из газовых смесей, описанный в патенте РФ №2112737 от 31.03.1995 г., МПК C01B 3/00, 3/02, опубл. 10.06.1998 г.

К недостаткам известного способа следует отнести необратимые потери кислорода и обогащение водой газовой смеси при каталитическом окислении водорода в присутствии палладийсодержащего катализатора, доминирующим над процессом гидрирования в условиях кислородсодержащей газовой смеси.

Наиболее близким и выбранным в качестве прототипа является способ регенерации газообразных отходов, загрязненных водородом или его изотопом, описанный в патенте РФ №2 203 216 от 06.04.2000 г., МПК C01B 5/00, 5/02, опубл. 27.04.2003 г. Способ регенерации включает окисление водорода кислородом в присутствии палладийсодержащего катализатора.

К недостаткам данного способа для статического режима следует отнести невосполнимые потери кислорода на каталитическое окисление водорода в присутствии палладийсодержащего катализатора и, как следствие, снижение эффективности регенерации, вплоть до потери работоспособности при полном израсходовании кислорода, а также образование воды и ее накопление в газовой смеси.

Задачей изобретения является создание условий максимально эффективной очистки газоздушной и кислородообедненной газовой смеси от водорода с минимальным расходом кислорода и ограничением или исключением накопления паров воды в газовой смеси.

Технический результат заключается в повышении эффективности извлечения водорода из газообразной смеси в замкнутых объемах за счет оптимизации диффузионного потока водорода из газовой смеси и его окисления кислородом с воздействием образующейся воды на кислородовыделяющее соединение с восполнением потерь кислорода, расходуемого на окисление водорода.

Это достигается тем, что в способе очистки газовой смеси от водорода и/или его изотопов, включающем окисление водорода кислородом в присутствии палладийсодержащего катализатора, формируют диффузией поток водорода из газовой смеси через оптимизированный слой адсорбента, защищающий палладийсодержащий катализатор от воздействия компонентов газовой смеси, при этом используют кислородсодержащее перекисное соединение щелочного металла, поглощающее воду, образующуюся на палладийсодержащем катализаторе и распределяющуюся между адсорбентом и кислородсодержащим перекисным соединением щелочного металла, при поглощении получают кислород, компенсирующий его потери из газовой смеси на окисление водорода.

Кроме того, в качестве адсорбента используют силикагель и/или цеолит.

Кроме того, в качестве кислородсодержащего перекисного соединения щелочного металла используют пероксид и/или надпероксид щелочного металла.

Наличие в заявляемом изобретении признаков, отличающих его от прототипа, позволяет считать его соответствующим условию «новизна».

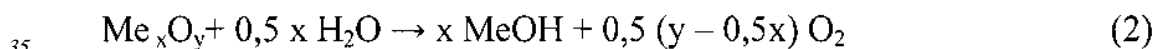
Новые признаки способа очистки газовой смеси от водорода и/или его изотопов (формируют диффузией поток водорода из газовой смеси через оптимизированный

слой адсорбента, защищающий палладийсодержащий катализатор от воздействия компонентов газовой смеси, при этом используют кислородсодержащее перекисное соединение щелочного металла, поглощающее воду, образующуюся на палладийсодержащем катализаторе и распределяющуюся между адсорбентом и кислородсодержащим перекисным соединением щелочного металла, при поглощении получают кислород, компенсирующий его потери из газовой смеси на окисление (водорода) не выявлены в технических решениях аналогичного назначения. На этом основании можно сделать вывод о соответствии заявляемого изобретения условию «изобретательский уровень».

Предлагаемый способ осуществляют следующим образом.

Палладийсодержащий катализатор и кислородсодержащее перекисное соединение щелочного металла (пероксид и/или надпероксид щелочного металла) отделены от очищаемой газовой смеси слоем адсорбента, выполняющим функции защиты от воды и каталитических ядов, присутствие которых возможно в газовой смеси, а также оптимизации газовых потоков. Компоненты очищаемой газовой смеси в результате диффузионных процессов поступают через оптимизированный слой адсорбента к поверхности палладийсодержащего катализатора, на которой происходит взаимодействие водорода и кислорода с образованием воды. Таким образом, формируется диффузионный поток удаления водорода из газовой смеси к поверхности палладийсодержащего катализатора, обусловленный перепадом парциального давления водорода. Образующаяся вода в виде паров распределяется между адсорбентом и кислородсодержащим перекисным соединением щелочного металла (пероксидом и/или надпероксидом щелочного металла), необратимо взаимодействует с ним, в результате чего выделяется кислород, который, по меньшей мере, частично компенсирует потери кислорода из газовой смеси на окисление водорода. Вода, поглощенная адсорбентом, ввиду обратимости адсорбции, со временем также поступает на кислородсодержащее перекисное соединение щелочного металла (пероксид и/или надпероксид щелочного металла) и необратимо взаимодействует с выделением кислорода.

Эмпирический вид реакций окисления водорода и выделения кислорода можно представить в виде уравнений:



Реакции (1) и (2) интенсивно протекают при больших концентрациях водорода и кислорода. «Мягкие» условия реагирования обеспечиваются за счет малых, диффузионных скоростей поступления водорода и кислорода через слой адсорбента к поверхности палладийсодержащего катализатора, а также образующейся воды через слой палладийсодержащего катализатора к поверхности кислородсодержащего перекисного соединения щелочного металла (пероксида и/или надпероксида щелочного металла). Оптимизация потоков газов осуществляется изменением вида и толщины слоя адсорбента.

Возможность применения способа была подтверждена следующими примерами.

Пример 1. Заявляемый способ реализован в лабораторных условиях при помощи опытного устройства, размещенного в герметичной емкости (объем 8 л) с исходной воздушной средой, куда было организовано поступление водорода со скоростью 0,02 л/сутки. В качестве палладийсодержащего катализатора в опытном устройстве был

использован металлический палладий, нанесенный на гранулы оксида алюминия в количестве  $\approx 2\%$  масс. Масса палладийсодержащего катализатора составила 4 г. В качестве кислородсодержащего перекисного соединения щелочного металла использовали порошкообразную смесь пероксида и надпероксида натрия по ТУ 6-09-2706-79. Масса смеси составила 15 г (соотношение масс пероксида и надпероксида составляло  $\approx 1:1$ ). В качестве адсорбента применяли цеолит NaA-Y массой 23 г по ТУ 2163-096-47539605-2008. Длительность лабораторного эксперимента составила 130 суток. Объемы газов расчетным путем приводили к нормальным условиям (температура  $0^\circ\text{C}$ , давление 101,325 кПа). За время эксперимента в герметичную емкость поступило 2,6 л водорода. Количество водорода, обнаруженное в емкости в конце эксперимента, составило 0,06 л. Количество кислорода, суммарно израсходованное на окисление поступившего в емкость водорода, составило 1,3 л. Наблюдаемое в эксперименте снижение количества кислорода в газовой смеси составило 0,5 л. Количество кислорода, выделившееся из смеси пероксида и надпероксида натрия, составило, соответственно, 0,8 л. Таким образом, установлено, что заявляемый способ обеспечил очистку газовой среды емкости от водорода в статических условиях и частичную компенсацию кислорода, израсходованного на каталитическое окисление водорода.

Пример 2. Заявляемый способ реализован в лабораторных условиях при помощи опытного устройства, отличающегося от использованного в примере 1 тем, что в качестве адсорбента использован силикагель КСМГ по ГОСТ 3956-76. Длительность эксперимента составляла 185 суток. За время эксперимента в герметичную емкость поступило 3,7 л водорода, в конце эксперимента его количество в газовой среде составляло 0,005 л. Количество кислорода, суммарно израсходованное на окисление поступившего в емкость водорода, составило  $\approx 1,9$  л. Наблюдаемое в конце эксперимента снижение количества кислорода в газовой смеси составило 0,1 л. Количество кислорода, выделившееся из смеси пероксида и надпероксида натрия, составило  $\approx 1,8$  л. Влажность газовой смеси в ходе эксперимента снизилась с 6 г/л до 0,5 г/л. Таким образом, установлено, что наряду с очисткой газовой среды от водорода в статических условиях и частичной компенсацией расходуемого кислорода заявляемый способ предотвратил поступление воды в газовую смесь.

Пример 3. Заявляемый способ реализован в лабораторных условиях при помощи опытного устройства, отличающегося от использованного в примере 1 тем, что в качестве адсорбента использован силикагель КСМГ по ГОСТ 3956-76 массой 5,0 г и цеолит NaA-Y по ТУ 2163-096-47539605-2008 массой 18,5 г. Слой силикагеля находился между катализатором и цеолитом. Длительность эксперимента составляла 220 суток. За время эксперимента в герметичную емкость поступило 3,7 л водорода, в конце эксперимента его количество в газовой среде составляло 0,008 л. Количество кислорода, суммарно израсходованное на окисление поступившего в емкость водорода, составило  $\approx 1,9$  л. Количество кислорода в емкости в конце эксперимента соответствовало исходному. Количество кислорода, выделившееся из смеси пероксидов натрия, составило  $\approx 2,0$  л. Таким образом, установлено, что заявляемый способ позволил осуществить очистку газовой смеси от водорода и избежать снижения количества кислорода в ней.

Пример 4. Заявляемый способ реализован в лабораторных условиях при помощи опытного устройства, отличающегося от использованного в примере 1 тем, что в качестве кислородсодержащего перекисного соединения использован надпероксид натрия по ТУ 2611-018-15008450-2010 с массовой долей основного вещества 94%. В качестве адсорбента использован силикагель КСМГ по ГОСТ 3956-76 массой 34 г. Длительность эксперимента составляла 300 суток. За время эксперимента в герметичную

емкость поступило 2 л водорода, в ходе эксперимента его количество в газовой среде не превышало 0,008 л. Количество кислорода в емкости в начале эксперимента повысилось по сравнению с исходным на 0,4 л и в ходе эксперимента сохранялось на постоянном уровне. Количество кислорода, выделившееся из надпероксида натрия, 5 составило  $\approx 1,3$  л.

Пример 5. Заявляемый способ реализован в лабораторных условиях при помощи опытного устройства, отличающегося от использованного в примере 4 тем, что в качестве адсорбента использован цеолит NaA-Y по ТУ 2163-096-47539605-2008, что 10 позволило достичь аналогичного результата с меньшим количеством выделяемого кислорода в указанное время, что объясняется более сильным удерживанием воды на цеолите по сравнению с силикагелем.

Пример 6. Заявляемый способ реализован в лабораторных условиях при помощи опытного устройства, отличающегося от использованного в примере 4 тем, что адсорбента использована смесь цеолита NaA-Y по ТУ 2163-096-47539605-2008 и 15 силикагеля КСМГ по ГОСТ 3956-76, что позволило достичь аналогичного результата с меньшим количеством выделяемого кислорода в указанное время, что объясняется более сильным удерживанием воды на цеолите по сравнению с силикагелем.

Пример 7. Заявляемый способ реализован в лабораторных условиях при помощи опытного устройства, отличающегося от использованного в примере 1 тем, что в 20 качестве кислородсодержащего перекисного соединения использован пероксид натрия по ТУ 6-16-124-93, в качестве адсорбента использован силикагель КСМГ по ГОСТ 3956-76 массой 34 г. Длительность эксперимента составляла 60 суток. За время эксперимента в герметичную емкость поступило 1,2 л водорода, в ходе эксперимента его количество в газовой среде не превышало 0,005 л. Количество кислорода в емкости 25 снизилось по сравнению с исходным на  $\approx 0,5$  л. Количество кислорода, выделившееся из пероксида натрия, составило  $\approx 0,13$  л.

Пример 8. Заявляемый способ реализован в лабораторных условиях при помощи опытного устройства, отличающегося от использованного в примере 7 тем, что в 30 качестве адсорбента использован цеолит NaA-Y по ТУ 2163-096-47539605-2008, что позволило достичь аналогичного результата с меньшим количеством выделяемого кислорода в течение указанного времени вследствие более сильного удерживания воды на цеолите по сравнению с силикагелем.

Пример 9. Заявляемый способ реализован в лабораторных условиях при помощи опытного устройства, отличающегося от использованного в примере 7 тем, что в 35 качестве адсорбента использована смесь цеолита NaA-Y по ТУ 2163-096-47539605-2008 и силикагеля КСМГ по ГОСТ 3956-76, что позволило достичь аналогичного результата с меньшим количеством выделяемого кислорода в течение указанного времени вследствие более сильного удерживания воды на цеолите по сравнению с силикагелем.

Использование настоящего изобретения позволило обеспечить очистку газовой 40 смеси от водорода в статических условиях, предотвратить поступление воды в очищаемую газовую смесь и, по меньшей мере, частично обеспечить восполнение потерь кислорода из газовой смеси.

Для заявленного изобретения в том виде, как оно охарактеризовано в формуле изобретения, подтверждена возможность осуществления способа очистки газовой смеси 45 от водорода и/или его изотопов и способность обеспечения достижения усматриваемого заявителем технического результата.

Следовательно, заявленное изобретение соответствует условию «промышленная применимость».

## Формула изобретения

1. Способ очистки газовой смеси от водорода и/или его изотопов, включающий окисление водорода кислородом в присутствии палладийсодержащего катализатора, отличающийся тем, что формируют диффузией поток водорода из газовой смеси через оптимизированный слой адсорбента, защищающий палладийсодержащий катализатор от воздействия компонентов газовой смеси, при этом используют кислородсодержащее перекисное соединение щелочного металла, поглощающее воду, образующуюся на палладийсодержащем катализаторе и распределяющуюся между адсорбентом и кислородсодержащим перекисным соединением щелочного металла, при поглощении получают кислород, компенсирующий его потери из газовой смеси на окисление водорода.

2. Способ очистки газовой смеси от водорода и/или его изотопов по п. 1, отличающийся тем, что в качестве адсорбента используют силикагель и/или цеолит.

3. Способ очистки газовой смеси от водорода и/или его изотопов по п. 1, отличающийся тем, что в качестве кислородсодержащего перекисного соединения используют пероксид и/или надпероксид щелочного металла.