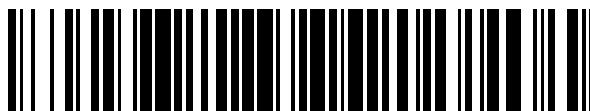


19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 398 902**

51 Int. Cl.:

<b>C04B 35/26</b>	(2006.01)	<b>C04B 41/45</b>	(2006.01)
<b>C04B 35/622</b>	(2006.01)	<b>B01D 69/12</b>	(2006.01)
<b>C04B 38/00</b>	(2006.01)	<b>B01D 63/08</b>	(2006.01)
<b>B01D 69/10</b>	(2006.01)	<b>B01D 71/02</b>	(2006.01)
<b>B01J 12/00</b>	(2006.01)	<b>B01J 19/24</b>	(2006.01)
<b>B01J 35/06</b>	(2006.01)	<b>C01B 13/02</b>	(2006.01)
<b>B32B 18/00</b>	(2006.01)	<b>B01D 53/22</b>	(2006.01)
<b>C01B 3/38</b>	(2006.01)		
<b>C04B 35/626</b>	(2006.01)		
<b>C04B 37/00</b>	(2006.01)		

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **18.03.2004 E 11164561 (0)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **09.01.2013 EP 2353703**

54 Título: **Conjunto de capa de soporte con conductos de cerámica plana y método para la fabricación del mismo**

30 Prioridad:

**21.03.2003 US 394620**

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

**22.03.2013**

73 Titular/es:

**AIR PRODUCTS AND CHEMICALS, INC. (100.0%)  
7201 HAMILTON BOULEVARD  
Allentown, PA 18195-1501, US**

72 Inventor/es:

**CAROLAN, MICHAEL FRANCIS;  
DYER, PAUL NIGEL;  
WILSON, MERILL ANDERSON;  
OHRN, TED R.;  
KNEIDEL, KURT E.;  
PETERSON, DAVID;  
CHEN, CHRISTOPHER M. y  
RACKERS, KEITH GERARD**

74 Agente/Representante:

**UNGRÍA LÓPEZ, Javier**

ES 2 398 902 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

Conjunto de capa de soporte con conductos de cerámica plana y método para la fabricación del mismo

5 **Declaración concerniente al desarrollo o a la investigación patrocinada por el gobierno federal**

La presente invención se realizó con el respaldo gubernamental con el Contrato DE-FC26-97FT96052 entre Air Products and Chemicals, Inc. y el Departamento de Energía de los Estados Unidos. El gobierno de los Estados Unidos dispone de ciertos derechos sobre la invención, tal como se define en las reivindicaciones.

10

**Antecedentes de la invención**

Se puede separar el oxígeno de los gases que contienen oxígeno por medio de membranas cerámicas de conducción mixta que funcionan a temperaturas elevadas, caso en el que las membranas conducen tanto iones de oxígeno como electrones. Se produce gas oxígeno en el lado del permeado de la membrana y se puede recuperar como un producto de alta pureza. De manera alternativa, se puede hacer reaccionar el oxígeno permeado directamente con un gas que contenga hidrocarburos, de forma o bien catalítica o bien no catalítica, para producir un producto de oxidación de hidrocarburos. Se pueden usar varios gases que contienen oxígeno, tales como aire, y son posibles numerosos productos de oxidación de hidrocarburos alternativos dependiendo de las condiciones de funcionamiento y del catalizador, si es que se usa.

Existe un interés comercial creciente y significativo en la producción de gas de síntesis a partir de gas natural y de sistemas de reactor de membrana cerámica de conducción mixta con uso de aire. En la actualidad, esta tecnología se encuentra en fase de desarrollo y se prevén aplicaciones comerciales en los años futuros a medida que madure la tecnología. Los sistemas de reactor de membranas cerámicas de conducción mixta producen gas de síntesis mediante la oxidación parcial de metano para formar los componentes de gas de síntesis CO, H<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> y H<sub>2</sub>O. El proceso se lleva a cabo introduciendo un gas de alimentación que contiene metano y un gas de alimentación de aire en el interior del sistema de reactor de membrana, poniendo en contacto una superficie de la membrana con el metano, y poniendo en contacto la otra superficie con aire. El oxígeno permea a través de la membrana, el metano reacciona con el oxígeno permeado para formar una mezcla de metano/ gas de síntesis, y posteriormente el metano se convierte en gas de síntesis a medida que la mezcla viaja a través del reactor a la vez que reacciona con oxígeno permeado adicional.

Este proceso se puede integrar de manera favorable con los procesos aguas arriba y aguas abajo si la corriente de metano/ gas de síntesis se encuentra a presión elevada, típicamente de 18,2–32,0 bar (250–450 psig). Además, los costes del proceso son los más favorables si el aire se encuentra a baja presión, típicamente menor que 4,5 bar (50 psig). Por lo tanto, las membranas del sistema de reactor de membrana se deben diseñar de manera que soporten un diferencial de presión importante entre el lado de aire y el lado de metano/ gas de síntesis. Para conseguir unos flujos de oxígeno elevados a través de la membrana, la capa separadora activa de la membrana debe ser delgada, típicamente menor que 200 micrómetros. No obstante, una membrana independiente de este espesor no podría soportar un diferencial de presión típico de 13,8–27,6 bar (200–400 psid) y, por lo tanto, la capa separadora delgada debe estar soportada estructuralmente de algún modo.

Se han descrito en la técnica varios diseños de sistemas de membrana cerámica conductora de oxígeno capaces de soportar diferenciales de presión elevados. Por ejemplo, se puede someter una membrana cerámica tubular a metano a presión elevada por un lado y a aire a baja presión por el otro lado, pero dicha membrana debe presentar una pared de espesor suficiente para aguantar el diferencial de presión; como consecuencia de ello, esta membrana no puede conseguir un elevado flujo de oxígeno. Para abordar este problema, se han desarrollado unas membranas tubulares compuestas que incorporan una capa densa, delgada y permeable a oxígeno sobre un soporte poroso más grueso.

Se han descrito configuraciones de membrana en placa plana en la técnica en las que la capa separadora activa se encuentra soportada por una capa o capas porosas en el lado de baja presión de la membrana, que típicamente es el lado del permeado de la membrana. Típicamente, estos sistemas de membrana están diseñados para producir un producto de oxígeno puro en el lado del permeado. Si se usan estas membranas con aire a baja presión en el lado de baja presión de la membrana, las capas de soporte poroso en el lado de baja presión de la membrana introducen una resistencia a la difusión en fase de gas para el transporte de oxígeno desde el oxidante o el aire hasta la superficie de la capa separadora densa. Las capas porosas que son lo bastante gruesas para proporcionar soporte a la capa separadora activa delgada introducen una resistencia a la difusión para el transporte de oxígeno hacia la superficie de la membrana, y esta resistencia disminuirá el flujo de oxígeno a través de la membrana. Por lo tanto, existe una necesidad de unos diseños de membranas compuestas que usen una membrana activa delgada bajo un diferencial de presión elevado sin una resistencia a la difusión en fase de gas inaceptablemente elevada en el lado de oxidante de la membrana.

El documento EP 0732138 da a conocer un conjunto de membrana cerámica plana que comprende un material de óxido de metal de múltiples componentes de conducción mixta, una capa de soporte sin conductos de cerámica en

contacto con la capa densa y una capa porosa de un óxido de metal de múltiples componentes de conducción mixta en contacto con el soporte sin conductos.

5 Los materiales porosos presentan una menor resistencia mecánica que los materiales densos. Los diseños de membrana que usan soportes porosos en el lado de baja presión someten el soporte poroso a un esfuerzo de compresión. Este esfuerzo puede superar la resistencia al aplastamiento de la capa de soporte poroso si el diferencial de presión es lo bastante elevado, lo que da lugar a que la capa de soporte falle y a que la capa activa delgada falle o tenga fugas. La resistencia de la capa porosa es una función de la porosidad del material de capa – en general, un material de porosidad menor es más fuerte que un material de porosidad mayor.  
10 Desafortunadamente, un material más fuerte con una menor porosidad es menos permeable que un material más débil con porosidad más elevada, y el aumento de la resistencia de la capa de soporte porosa aumenta, por lo tanto, la resistencia a la difusión en fase de gas de la capa. Esta compensación entre resistencia y permeabilidad en los materiales porosos hace difícil diseñar membranas compuestas que puedan soportar unos diferenciales de presión elevados y los esfuerzos de compresión elevados resultantes. Por lo tanto, resultan necesarios unos diseños de membrana que eviten la colocación de capas porosas bajo esfuerzos de compresión elevados.  
15

El transporte de oxígeno a través de la membrana cerámica conductora de oxígeno densa se activa de forma térmica. Esto significa que el flujo de oxígeno a través de la membrana aumenta de forma exponencial con la temperatura en ausencia de cualesquiera otras resistencias de transferencia de masa. Cuando se usa una membrana conductora de oxígeno densa en un sistema de reactor de membranas para llevar a cabo una reacción exotérmica tal como una oxidación de hidrocarburos, el transporte de oxígeno activado de forma térmica puede conducir a puntos calientes locales sobre la membrana. Un punto delgado en la membrana experimenta un flujo de oxígeno más elevado con respecto a las zonas circundantes más gruesas en la membrana, y la membrana se calentará en este punto delgado en relación con sus alrededores a medida que aumenta la velocidad de oxidación.  
20 Esto aumenta el flujo adicionalmente, aumentando de ese modo adicionalmente la temperatura en ese punto. Estos gradientes de temperatura locales generan unos esfuerzos térmicos no deseados que son perjudiciales para la integridad mecánica de la membrana.  
25

En el campo de los reactores de membrana cerámicos, existe una necesidad de un diseño de membrana capaz de soportar unos diferenciales de presión elevados a la vez que evita también que tengan lugar puntos calientes locales. En particular, existe una necesidad de un diseño de membrana de reactor de oxidación parcial de hidrocarburos que permita el uso de una capa de membrana permeable a oxígeno delgada que funcione bajo un diferencial de presión elevado sin desarrollar puntos calientes provocados por una difusión de oxígeno elevada localizada y por elevadas velocidades de oxidación exotérmica. Esta necesidad es abordada por la presente invención tal como se describe a continuación y se define en las reivindicaciones siguientes.  
30  
35

### Breve resumen de la invención

40 Un aspecto de la invención incluye un conjunto de capa de soporte con conductos de cerámica plana que comprende

(a) una capa de soporte con ranuras de cerámica plana que tiene una primera superficie, una segunda superficie y una periferia exterior, en el que la capa de soporte con ranuras incluye

45 (1) una región definida por un paralelogramo recto que encierra una primera pluralidad de ranuras paralelas que pasan a través de la capa de soporte y se encuentran orientadas en paralelo a un primer lado y a un segundo lado opuesto del paralelogramo,  
(2) una segunda pluralidad de ranuras paralelas que se extienden a través de la capa de soporte desde el primer lado hasta el segundo lado, son perpendiculares a la primera pluralidad de ranuras paralelas y están dispuestas entre la periferia y el primer lado del paralelogramo, y  
50 (3) una tercera pluralidad de ranuras paralelas que pasan a través del soporte desde el primer lado hasta el segundo lado, son perpendiculares a la primera pluralidad de ranuras paralelas y están dispuestas entre la periferia y el segundo lado del paralelogramo;

55 (b) una primera capa de conductos de flujo de cerámica plana en contacto con la primera superficie de la capa de soporte con ranuras de cerámica plana, en el que la primera capa de conductos de flujo de cerámica plana incluye una pluralidad de conductos de flujo paralelos que se extienden a través de la cerámica, y en el que la pluralidad de conductos de flujo paralelos son adyacentes a, perpendiculares a y se encuentran en comunicación de fluidos fluida con, la primera pluralidad de ranuras paralelas en la capa de soporte;

60 (c) una segunda capa de conductos de flujo de cerámica plana en contacto con la segunda superficie de la capa de soporte con ranuras de cerámica plana, en el que la segunda capa de conductos de flujo plana incluye una pluralidad de conductos de flujo paralelos que se extienden a través de la misma, y en el que la pluralidad de conductos de flujo paralelos son adyacentes a, perpendiculares a y se encuentran en comunicación de fluidos fluida con, la primera pluralidad de ranuras paralelas en la capa de soporte; y  
65 (d) unas series primera y segunda de ranuras paralelas que pasan a través del conjunto de capa de soporte

con conductos de cerámica formado por la primera capa de conductos de flujo de cerámica plana, la capa de soporte y la segunda capa de conductos de flujo de cerámica plana, en el que

- 5 (1) las series primera y segunda de ranuras paralelas son perpendiculares a la pluralidad de conductos de flujo paralelos en las capas de conductos de flujo de cerámica planas primera y segunda,  
 (2) la primera serie de ranuras paralelas está dispuesta entre la periferia y el primer lado del paralelogramo y las ranuras en la primera serie de ranuras paralelas pasan a través de, e intersectan, la segunda pluralidad de ranuras paralelas que se extienden a través de la capa de soporte, y  
 10 (3) la segunda serie de ranuras paralelas está dispuesta entre la periferia y el segundo lado del paralelogramo y las ranuras en la segunda serie de ranuras paralelas pasan a través de, e intersectan, la tercera pluralidad de ranuras paralelas que se extienden a través de la capa de soporte;

15 en el que las ranuras en las series primera y segunda de ranuras paralelas se encuentran en comunicación de fluidos fluida con todas las ranuras en la primera capa de conductos de flujo de cerámica plana, la capa de soporte y la segunda capa de conductos de flujo de cerámica plana.

20 La anchura de cada ranura en la primera pluralidad de ranuras paralelas en la capa de soporte con ranuras de cerámica plana puede ser de entre aproximadamente 0,2 y aproximadamente 2 mm y la distancia entre ranuras paralelas adyacentes en la primera pluralidad de ranuras paralelas puede ser de entre aproximadamente 0,2 y aproximadamente 4 mm.

25 >

El gas de alimentación que contiene hidrocarburos puede comprender uno o más compuestos de hidrocarburo que contienen entre uno y seis átomos de carbono. El gas de alimentación de oxidante que contiene oxígeno puede estar seleccionado del grupo que consiste en aire, aire empobrecido en oxígeno, y productos de combustión que contienen oxígeno, nitrógeno, dióxido de carbono y agua. El producto de oxidación de hidrocarburos puede comprender hidrocarburos oxidados, hidrocarburos parcialmente oxidados, hidrógeno y agua.

30 El gas de alimentación de oxidante que contiene oxígeno y el gas de alimentación que contiene hidrocarburos pueden fluir de manera concurrente a través del conjunto de reactor de membrana de cerámica. La capa de soporte puede incluir uno o más catalizadores que comprenden metales seleccionados de o compuestos que contienen metales seleccionados del grupo que consiste en platino, paladio, rodio, rutenio, iridio, oro, níquel, cobalto, cobre, potasio y mezclas de los mismos.

40 Otra realización de la invención se refiere a un método de fabricación de un conjunto de capa de soporte con conductos plana de cerámica en crudo que comprende

(a) preparar una capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo que tiene una primera superficie, una segunda superficie y una periferia exterior, en el que la capa de soporte con ranuras incluye

- 45 (1) unas regiones sobre las superficies primera y segunda, definida cada región por un paralelogramo recto dentro de la periferia exterior en el que cada paralelogramo tiene un primer lado y un segundo lado opuesto,  
 (2) una primera pluralidad de ranuras paralelas que se extienden a través de la capa de soporte desde el primer lado hasta el segundo lado, son perpendiculares al primer lado de cada paralelogramo y están dispuestas entre la periferia y el primer lado de cada paralelogramo, y  
 50 (3) una segunda pluralidad de ranuras paralelas que pasan a través del soporte desde el primer lado hasta el segundo lado, son perpendiculares al segundo lado de cada paralelogramo y están dispuestas entre la periferia y el segundo lado de cada paralelogramo;

55 (b) preparar una primera y una segunda capa de conductos de flujo plana de cerámica en crudo, cada unas de las cuales incluye una pluralidad de conductos de flujo paralelos que se extienden a través de la misma;

(c) colocar la primera capa de conductos de flujo plana de cerámica en crudo en contacto con la primera superficie de la capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo de tal modo que la pluralidad de conductos de flujo paralelos están orientados en paralelo a la primera y a la segunda pluralidad de ranuras paralelas en la capa de soporte y están dispuestos en el interior de la región sobre la primera superficie definida por el paralelogramo recto;

60 (d) colocar la segunda capa de conductos de flujo plana de cerámica en crudo en contacto con la segunda superficie de la capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo de tal modo que la pluralidad de conductos de flujo paralelos están orientados en paralelo a la primera y a la segunda pluralidad de ranuras paralelas en la capa de soporte y están dispuestos en el interior de la región sobre la segunda superficie definida por el paralelogramo recto; y  
 65

(e) cortar unas series primera y segunda de ranuras paralelas a través del conjunto de capa de soporte con conductos plana de cerámica en crudo formado por la primera capa con conductos de flujo plana de cerámica en crudo, la capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo y la segunda capa con conductos de flujo plana de cerámica en crudo, en el que

5 (1) las series primera y segunda de ranuras paralelas son perpendiculares a la pluralidad de conductos de flujo paralelos en las capas de conductos de flujo planas de cerámica en crudo primera y segunda,

10 (2) la primera serie de ranuras paralelas está dispuesta entre la periferia y el primer lado del paralelogramo y las ranuras en la primera serie de ranuras paralelas pasan a través de, e intersectan, la primera pluralidad de ranuras paralelas que se extienden a través de la capa de soporte,

15 (3) la segunda serie de ranuras paralelas está dispuesta entre la periferia y el segundo lado del paralelogramo y las ranuras en la segunda serie de ranuras paralelas pasan a través de, e intersectan, la segunda pluralidad de ranuras paralelas que se extienden a través de la capa de soporte; y

20 (f) cortar una tercera serie de ranuras paralelas a través del conjunto de capa de soporte con conductos plana de cerámica en crudo formado por la primera capa con conductos de flujo plana de cerámica en crudo, la capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo y la segunda capa con conductos de flujo plana de cerámica en crudo, en el que las ranuras en la tercera serie de ranuras paralelas se encuentran en paralelo a las ranuras en las series primera y segunda de ranuras paralelas y se encuentran entre las series primera y segunda de ranuras paralelas;

25 en el que las ranuras en las series primera y segunda de ranuras paralelas se encuentran en comunicación de fluidos fluida con todas las ranuras en la primera capa de conductos de flujo plana de cerámica en crudo, la capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo y la segunda capa de conductos de flujo plana de cerámica en crudo.

30 El revestimiento puede incluir uno o más catalizadores de reducción de oxígeno que comprenden metales seleccionados de, o compuestos que contienen metales seleccionados del grupo que consiste en platino, paladio, rutenio, oro, plata, bismuto, bario, vanadio, molibdeno, cerio, praseodimio, cobalto, rodio y manganeso.

#### 35 **Breve descripción de varias vistas de los dibujos**

La figura 2 es una vista en planta de una capa de conductos de flujo para un conjunto de membrana a modo de ejemplo que es una realización de la presente invención.

La figura 3 es una vista ampliada de una región de conductos de flujo de la capa de conductos de flujo de la figura 2.

La figura 4 es una vista en planta de una capa de soporte con ranuras para el conjunto de membrana a modo de ejemplo que es una realización de la presente invención.

La figura 5 es una vista en planta de una capa de soporte con conductos completada usando los componentes de las figuras 2 y 4.

#### 50 **Descripción detallada de la invención**

55 En un reactor de membrana que tiene una elevada presión diferencial entre los lados de reactivo y de oxidante de la membrana activa, en el que la presión es más elevada en el lado de reactivo, una capa porosa en el lado de oxidante se somete a unos esfuerzos de compresión más elevados que los que tendrían lugar si el soporte poroso se colocara en el lado de reactivo de la membrana activa. Esta es otra razón para colocar preferiblemente la capa de soporte porosa en el lado de reactivo de la membrana activa. Colocar el soporte poroso en el lado de reactivo de la membrana puede controlar los puntos calientes en la membrana activa a la vez que también minimiza los esfuerzos de compresión sobre el material poroso.

La capa de soporte con conductos 5 puede fabricarse de un material de óxido de metal de múltiples componentes y puede tener un espesor típico en el intervalo de aproximadamente 100  $\mu\text{m}$  a aproximadamente 4 mm. La capa de soporte porosa 3 puede tener un espesor en el intervalo de aproximadamente 50  $\mu\text{m}$  a aproximadamente 1 mm, una porosidad, que se define como la fracción de volumen de los poros, entre aproximadamente un 10 % y aproximadamente un 40 %, y una tortuosidad, entre aproximadamente 3 y aproximadamente 10. La tortuosidad se define como la relación de la difusividad en fase de gas multiplicada por la porosidad dividida por la difusividad efectiva medida a través de la capa porosa. Una definición más detallada de tortuosidad puede encontrarse en el documento Chemical Engineering Kinetics and Reactor Design, de Charles Hill, John Wiley and Sons, 1977, página 65 435.

La figura 2 es una vista en planta (no necesariamente a escala) de una capa de conductos de flujo. Esta capa se forma a partir de un material de cerámica en crudo densa plana que tiene una composición seleccionada y puede ser cuadrada, rectangular, redonda o de cualquier otra forma apropiada. La capa de conductos de flujo 201 es rectangular y tiene dos regiones con conductos rectangulares 203 y 205 formados en el interior de la misma. Cada región con conductos tiene un patrón de conductos de paso que pasan a través de la capa con una retícula de nervaduras sólidas formada entre los conductos. Este patrón se ilustra mejor en la figura 3, que es una vista en planta ampliada (no necesariamente a escala) de los conductos en las regiones 203 y 205 de la figura 2, que muestra un patrón de conductos abiertos alternos 301 formado por unas nervaduras de soporte alternas representativas 303 que se encuentran en paralelo a los conductos de paso 301 y unas nervaduras de soporte intermedias 305 que son perpendiculares a los conductos de paso 301.

La figura 4 es una vista en planta (no necesariamente a escala) de una capa de soporte con ranuras. Esta capa se forma a partir de un material de cerámica en crudo densa plana que tiene una composición seleccionada y puede ser cuadrada, rectangular, redonda o de cualquier otra forma apropiada, y típicamente tiene una forma y unas dimensiones de perímetro exterior similares a las de la capa de conductos de flujo de la figura 2. La capa de soporte con ranuras 401 tiene una primera región generalmente rectangular que contiene unas ranuras paralelas 403 que pasan a través de la capa entre las nervaduras de soporte 405 y una segunda región generalmente rectangular que contiene unas ranuras paralelas 407 que pasan a través de la capa entre las nervaduras de soporte 409. Típicamente, la anchura de las nervaduras de soporte 405 y 409 (o la distancia entre las ranuras 403 y 407) es de entre aproximadamente 0,2 y aproximadamente 4 mm y la anchura de las ranuras 403 y 407 es de entre aproximadamente 0,2 y aproximadamente 2 mm.

La capa de soporte con ranuras 401 también tiene una pluralidad de ranuras paralelas 411 que pasan a través de la capa que son perpendiculares a las ranuras paralelas 403 y están dispuestas entre un lado de la primera región generalmente rectangular y la periferia exterior 413. La capa de soporte con ranuras 401 también tiene una pluralidad de ranuras paralelas 415 que pasan a través de la capa que son perpendiculares a las ranuras paralelas 403 y están dispuestas entre un lado opuesto de la primera región generalmente rectangular y la periferia exterior 417. La capa de soporte con ranuras 401 también tiene una pluralidad de ranuras paralelas 419 que pasan a través de la capa que son perpendiculares a las ranuras paralelas 407 y están dispuestas entre un lado de la segunda región generalmente rectangular y la periferia exterior 419. La capa de soporte con ranuras 401 también tiene una pluralidad de ranuras paralelas 423 que pasan a través de la capa que son perpendiculares a las ranuras paralelas 407 y están dispuestas entre el lado opuesto de la segunda región generalmente rectangular y la periferia exterior 425.

Una capa de soporte con ranuras, tal como la capa de soporte con ranuras 401, está intercalada entre dos capas de conductos de flujo, tal como la capa de conductos de flujo 201, para formar una capa de soporte con conductos intermedia. En esta capa de soporte con conductos intermedia, las nervaduras de soporte alternas 303 (figura 3) de la capa de conductos de flujo 201 se soportan mediante las nervaduras de soporte 405 y 409. Las nervaduras de soporte intermedias 305 está superpuestas sobre las ranuras 403 y 407 y son más estrechas que la anchura de las ranuras paralelas 403 y 407, de tal modo que los conductos 301 colindantes en la dirección longitudinal pueden encontrarse en comunicación de fluidos, es decir, las nervaduras de soporte intermedias 305 no bloquean o unen a modo de puente las ranuras 403 y 407.

La capa de soporte con conductos de cerámica en crudo intermedia formada colocando una capa de soporte con ranuras entre dos capas de conductos de flujo se modifica según se ilustra en la figura 5, que es una vista en planta (no necesariamente a escala) de una capa de soporte con conductos completada 501. La modificación comprende cortar unas ranuras paralelas 503 y 505 a cada lado de la región con conductos rectangular 507, en la que estas ranuras se encuentran en paralelo a las ranuras 403 y 407 en la capa de soporte con ranuras. Estas ranuras pasan completamente a través de la capa de soporte con conductos 501 y por lo tanto cortan a través de, e intersectan, las ranuras 411 y 415 (figura 4) en la capa de soporte con ranuras (que no se muestra en la figura 5). La modificación también incluye cortar unas ranuras paralelas 509 y 511 a cada lado de la región con conductos rectangular 513. Estas ranuras pasan completamente a través de la capa de soporte con conductos 501 y por lo tanto cortan a través de, e intersectan, las ranuras 419 y 423 (figura 4) en la capa de soporte con ranuras (que no se muestra en la figura 5).

Las ranuras 503 y 505 se encuentran, por lo tanto, en comunicación de fluidos con las ranuras 403 (figura 4) y con las ranuras en la región con conductos rectangular 507, y también con la otra región con conductos rectangular (que no se muestra en la presente vista) en el lado opuesto de la capa de soporte con conductos 501. Además, las ranuras 509 y 511 se encuentran, por lo tanto, en comunicación de fluidos con las ranuras 407 (figura 4) y con las ranuras en la región con conductos rectangular 513, y también con la otra región con conductos rectangular (que no se muestra en la presente vista) en el lado opuesto de la capa de soporte con conductos 501.

En un método alternativo de fabricación de una capa de soporte con conductos de cerámica en crudo intermedia, las ranuras 403 y 407 no se cortan inicialmente en la capa 401 (figura 4). En su lugar, una capa central similar a la capa 401 (pero sin las ranuras 403 y 407) se lamina entre dos capas 201 (figura 2) y, a continuación, unas ranuras similares a las ranuras 403 y 407 se cortan completamente a través de la capa central y de las dos capas exteriores

201.

La capa de soporte con conductos de cerámica en crudo completada 501 se modifica a continuación colocando una capa delgada de un material de cerámica en crudo que es un precursor del material de membrana activa en contacto con cada lado de la capa de soporte 501. En una realización, una capa de un material de cerámica en crudo que es un precursor de la capa de soporte porosa que se describe anteriormente se coloca en contacto con cada una de las capas delgadas del material de cerámica en crudo que es el precursor del material de membrana activa. En una realización alternativa, una capa de soporte de material compuesto de un material de cerámica en crudo se coloca en contacto con cada una de las capas delgadas del material de cerámica en crudo que es el precursor del material de membrana activa.

En un método a modo de ejemplo de preparación de las juntas descritas anteriormente, se prepara una tira añadiendo 920,2 gramos de polvo de  $(La_{0,9}Ca_{0,1})_{1,005}FeO_3$  y 9,2 gramos de  $Fe_2O_3$  a un recipiente de polietileno de alta densidad de un litro que contiene un kilogramo de un medio de circonia esférico, 242,1 gramos de tolueno de calidad de reactivo, 60,5 gramos de etanol desnaturalizado y 4,65 gramos de polivinil butiral. Se colocó la tira sobre un dispositivo de agitación de pintura durante 30 minutos. Se añadieron un plastificante (53,56 gramos de ftalato de butil bencilo) y un aglutinante (48,8 gramos de polivinil butiral) al objeto y se colocó de nuevo en el dispositivo de agitación de pintura durante una hora adicional. Se enrolló la tira durante la noche y se midió una viscosidad de 1.500 mPa·s usando un viscosímetro a 25 °C. Posteriormente, la tira se filtró, se desgasificó y se coló sobre poliéster para preparar una cinta seca de aproximadamente 250 µm de espesor. Se cortaron unas juntas con la forma y las dimensiones apropiadas a partir de la cinta y se colocaron entre las obleas y los espaciadores a unir, formando de este modo una pila. Se aplicó una presión de 170 kPa a las juntas y a la pila, y se calentó lentamente el conjunto hasta 1.250 °C para retirar las sustancias orgánicas y para sinterizar el compuesto de junta, formando de este modo una pila estanca frente a fugas.

Se da a conocer una tecnología similar en dos solicitudes en trámite junto con la presente, expedidas en la misma fecha que la presente, una titulada "Method of Joining ITM Materials Using a Partially or Fully-Transient Liquid Phase" y que tiene un n.º de expediente del mandatario 06272 de EE.UU., y la otra titulada "Method of Forming a Joint" y que tiene un n.º de expediente de mandatario 06067 de EE.UU.

Además, la invención se refiere a los siguientes aspectos:

#### 12. Un conjunto de capa de soporte con conductos de cerámica plana que comprende

(a) una capa de soporte con ranuras de cerámica plana que tiene una primera superficie, una segunda superficie y una periferia exterior, en el que la capa de soporte con ranuras incluye

- (1) una región definida por un paralelogramo recto que encierra una primera pluralidad de ranuras paralelas que pasan a través de la capa de soporte y se encuentran orientadas en paralelo a un primer lado y a un segundo lado opuesto del paralelogramo,
- (2) una segunda pluralidad de ranuras paralelas que se extienden a través de la capa de soporte desde el primer lado hasta el segundo lado, son perpendiculares a la primera pluralidad de ranuras paralelas y están dispuestas entre la periferia y el primer lado del paralelogramo, y
- (3) una tercera pluralidad de ranuras paralelas que pasan a través del soporte desde el primer lado hasta el segundo lado, son perpendiculares a la primera pluralidad de ranuras paralelas y están dispuestas entre la periferia y el segundo lado del paralelogramo;

(b) una primera capa de conductos de flujo de cerámica plana en contacto con la primera superficie de la capa de soporte con ranuras de cerámica plana, en el que la primera capa de conductos de flujo de cerámica plana incluye una pluralidad de conductos de flujo paralelos que se extienden a través de la misma, y en el que la pluralidad de conductos de flujo paralelos son adyacentes a, perpendiculares a y se encuentran en comunicación de fluidos fluida con, la primera pluralidad de ranuras paralelas en la capa de soporte;

(c) una segunda capa de conductos de flujo de cerámica plana en contacto con la segunda superficie de la capa de soporte con ranuras de cerámica plana, en el que la segunda capa de conductos de flujo plana incluye una pluralidad de conductos de flujo paralelos que se extienden a través de la misma, y en el que la pluralidad de conductos de flujo paralelos son adyacentes a, perpendiculares a y se encuentran en comunicación de fluidos fluida con, la primera pluralidad de ranuras paralelas en la capa de soporte; y

(d) unas series primera y segunda de ranuras paralelas que pasan a través del conjunto de capa de soporte con conductos de cerámica formado por la primera capa de conductos de flujo de cerámica plana, la capa de soporte y la segunda capa de conductos de flujo de cerámica plana, en el que

- (1) las series primera y segunda de ranuras paralelas son perpendiculares a la pluralidad

de conductos de flujo paralelos en las capas de conductos de flujo de cerámica planas primera y segunda,

5 (2) la primera serie de ranuras paralelas está dispuesta entre la periferia y el primer lado del paralelogramo y las ranuras en la primera serie de ranuras paralelas pasan a través de, e intersectan, la segunda pluralidad de ranuras paralelas que se extienden a través de la capa de soporte, y

10 (3) la segunda serie de ranuras paralelas está dispuesta entre la periferia y el segundo lado del paralelogramo y las ranuras en la segunda serie de ranuras paralelas pasan a través de, e intersectan, la tercera pluralidad de ranuras paralelas que se extienden a través de la capa de soporte;

en el que las ranuras en las series primera y segunda de ranuras paralelas se encuentran en comunicación de fluidos fluida con todas las ranuras en la primera capa de conductos de flujo de cerámica plana, la capa de soporte y la segunda capa de conductos de flujo de cerámica plana.

15 19. Un método de fabricación de un conjunto de capa de soporte con conductos plana de cerámica en crudo que comprende

20 (a) preparar una capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo que tiene una primera superficie, una segunda superficie y una periferia exterior, en el que la capa de soporte con ranuras incluye

25 (1) unas regiones sobre las superficies primera y segunda, definida cada región por un paralelogramo recto dentro de la periferia exterior en el que cada paralelogramo tiene un primer lado y un segundo lado opuesto,

(2) una primera pluralidad de ranuras paralelas que se extienden a través de la capa de soporte desde el primer lado hasta el segundo lado, son perpendiculares al primer lado de cada paralelogramo y están dispuestas entre la periferia y el primer lado de cada paralelogramo, y

30 (3) una segunda pluralidad de ranuras paralelas que pasan a través del soporte desde el primer lado hasta el segundo lado, son perpendiculares al segundo lado de cada paralelogramo y están dispuestas entre la periferia y el segundo lado de cada paralelogramo;

35 (b) preparar una primera y una segunda capa de conductos de flujo plana de cerámica en crudo, cada una de las cuales incluye una pluralidad de conductos de flujo paralelos que se extienden a través de la misma;

40 (c) colocar la primera capa de conductos de flujo plana de cerámica en crudo en contacto con la primera superficie de la capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo de tal modo que la pluralidad de conductos de flujo paralelos están orientados en paralelo a la primera y a la segunda pluralidad de ranuras paralelas en la capa de soporte y están dispuestos en el interior de la región sobre la primera superficie definida por el paralelogramo recto;

45 (d) colocar la segunda capa de conductos de flujo plana de cerámica en crudo en contacto con la segunda superficie de la capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo de tal modo que la pluralidad de conductos de flujo paralelos están orientados en paralelo a la primera y a la segunda pluralidad de ranuras paralelas en la capa de soporte y están dispuestos en el interior de la región sobre la segunda superficie definida por el paralelogramo recto; y

50 (e) cortar unas series primera y segunda de ranuras paralelas a través del conjunto de capa de soporte con conductos plana de cerámica en crudo formado por la primera capa con conductos de flujo plana de cerámica en crudo, la capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo y la segunda capa con conductos de flujo plana de cerámica en crudo, en el que

55 (1) las series primera y segunda de ranuras paralelas son perpendiculares a la pluralidad de conductos de flujo paralelos en las capas de conductos de flujo planas de cerámica en crudo primera y segunda,

(2) la primera serie de ranuras paralelas está dispuesta entre la periferia y el primer lado del paralelogramo y las ranuras en la primera serie de ranuras paralelas pasan a través de, e intersectan, la primera pluralidad de ranuras paralelas que se extienden a través de la capa de soporte,

60 (3) la segunda serie de ranuras paralelas está dispuesta entre la periferia y el segundo lado del paralelogramo y las ranuras en la segunda serie de ranuras paralelas pasan a través de, e intersectan, la segunda pluralidad de ranuras paralelas que se extienden a través de la capa de soporte; y

65 (f) cortar una tercera serie de ranuras paralelas a través del conjunto de capa de soporte con conductos plana de cerámica en crudo formado por la primera capa con conductos de flujo plana de cerámica en crudo, la capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo y la segunda



## ES 2 398 902 T3

capa con conductos de flujo plana de cerámica en crudo, en el que las ranuras en la tercera serie de ranuras paralelas se encuentran en paralelo a las ranuras en las series primera y segunda de ranuras paralelas y se encuentran entre las series primera y segunda de ranuras paralelas;

- 5 en el que las ranuras en las series primera y segunda de ranuras paralelas se encuentran en comunicación de fluidos fluida con todas las ranuras en la primera capa de conductos de flujo plana de cerámica en crudo, la capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo y la segunda capa de conductos de flujo plana de cerámica en crudo.

**REIVINDICACIONES**

1. Un conjunto de capa de soporte con conductos de cerámica plana que comprende

5 (a) una capa de soporte con ranuras de cerámica plana (401) que tiene una primera superficie, una segunda superficie y una periferia exterior, en el que la capa de soporte con ranuras incluye

10 (1) una región definida por un paralelogramo recto que encierra una primera pluralidad de ranuras paralelas (403) que pasan a través de la capa de soporte (401) y se encuentran orientadas en paralelo a un primer lado y a un segundo lado opuesto del paralelogramo,

(2) una segunda pluralidad de ranuras paralelas (411) que se extienden a través de la capa de soporte (401) desde el primer lado hasta el segundo lado, son perpendiculares a la primera pluralidad de ranuras paralelas (403) y están dispuestas entre la periferia (413) y el primer lado del paralelogramo, y

15 (3) una tercera pluralidad de ranuras paralelas (415) que pasan a través del soporte desde el primer lado hasta el segundo lado, son perpendiculares a la primera pluralidad de ranuras paralelas (403) y están dispuestas entre la periferia (417) y el segundo lado del paralelogramo;

20 (b) una primera capa de conductos de flujo de cerámica plana (201) en contacto con la primera superficie de la capa de soporte con ranuras de cerámica plana (401), en el que la primera capa de conductos de flujo de cerámica plana (201) incluye una pluralidad de conductos de flujo paralelos (301) que se extienden a través de la misma, y en el que la pluralidad de conductos de flujo paralelos son adyacentes a, perpendiculares a y se encuentran en comunicación de fluidos fluida con, la primera pluralidad de ranuras paralelas en la capa de soporte;

25 (c) una segunda capa de conductos de flujo de cerámica plana (201) en contacto con la segunda superficie de la capa de soporte con ranuras de cerámica plana, en el que la segunda capa de conductos de flujo plana (201) incluye una pluralidad de conductos de flujo paralelos que se extienden a través de la misma (301), y en el que la pluralidad de conductos de flujo paralelos son adyacentes a, perpendiculares a y se encuentran en comunicación de fluidos fluida con, la primera pluralidad de ranuras paralelas en la capa de soporte; y

30 (d) unas series primera y segunda de ranuras paralelas (503, 505) que pasan a través del conjunto de capa de soporte con conductos de cerámica formado por la primera capa de conductos de flujo de cerámica plana (201), la capa de soporte (401) y la segunda capa de conductos de flujo de cerámica plana (201), en el que

35 (1) las series primera y segunda de ranuras paralelas (503, 505) son perpendiculares a la pluralidad de conductos de flujo paralelos (301) en las capas de conductos de flujo de cerámica planas primera y segunda (201),

40 (2) la primera serie de ranuras paralelas (503) está dispuesta entre la periferia y el primer lado del paralelogramo y las ranuras en la primera serie de ranuras paralelas pasan a través de, e intersectan, la segunda pluralidad de ranuras paralelas (411) que se extienden a través de la capa de soporte (401), y

45 (3) la segunda serie de ranuras paralelas (505) está dispuesta entre la periferia y el segundo lado del paralelogramo y las ranuras en la segunda serie de ranuras paralelas pasan a través de, e intersectan, la tercera pluralidad de ranuras paralelas (415) que se extienden a través de la capa de soporte (401);

50 en el que las ranuras en las series primera y segunda de ranuras paralelas (503, 505) se encuentran en comunicación de fluidos fluida con todas las ranuras en la primera capa de conductos de flujo de cerámica plana, la capa de soporte y la segunda capa de conductos de flujo de cerámica plana.

2. El conjunto de capa de soporte con conductos de cerámica plana de acuerdo con la reivindicación 1, en el que la anchura de cada ranura en la primera pluralidad de ranuras paralelas (403) en la capa de soporte con ranuras de cerámica plana es de entre aproximadamente 0,2 y aproximadamente 2 mm y la distancia entre ranuras paralelas adyacentes en la primera pluralidad de ranuras paralelas (403) es de entre aproximadamente 0,2 y aproximadamente 4 mm.

3. Un método de fabricación de un conjunto de capa de soporte con conductos plana de cerámica en crudo que comprende

60 (a) preparar una capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo (401) que tiene una primera superficie, una segunda superficie y una periferia exterior, en el que la capa de soporte con ranuras (401) incluye

65 (1) unas regiones sobre las superficies primera y segunda, definida cada región por un paralelogramo recto dentro de la periferia exterior en el que cada paralelogramo tiene un primer

lado y un segundo lado opuesto,

(2) una primera pluralidad de ranuras paralelas (411, 419) que se extienden a través de la capa de soporte desde el primer lado hasta el segundo lado, son perpendiculares al primer lado de cada paralelogramo y están dispuestas entre la periferia (413, 421) y el primer lado de cada paralelogramo, y

(3) una segunda pluralidad de ranuras paralelas (415, 423) que pasan a través del soporte desde el primer lado hasta el segundo lado, son perpendiculares al segundo lado de cada paralelogramo y están dispuestas entre la periferia (417, 425) y el segundo lado de cada paralelogramo;

(b) preparar una primera y una segunda capa de conductos de flujo plana de cerámica en crudo (201), cada una de las cuales incluye una pluralidad de conductos de flujo paralelos (301) que se extienden a través de la misma;

(c) colocar la primera capa de conductos de flujo plana de cerámica en crudo (201) en contacto con la primera superficie de la capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo (401) de tal modo que la pluralidad de conductos de flujo paralelos (301) están orientados en paralelo a la primera y a la segunda pluralidad de ranuras paralelas (415, 423) en la capa de soporte (401) y están dispuestos en el interior de la región sobre la primera superficie definida por el paralelogramo recto;

(d) colocar la segunda capa de conductos de flujo plana de cerámica en crudo (201) en contacto con la segunda superficie de la capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo (401) de tal modo que la pluralidad de conductos de flujo paralelos (301) están orientados en paralelo a la primera y a la segunda pluralidad de ranuras paralelas (415, 423) en la capa de soporte (401) y están dispuestos en el interior de la región sobre la segunda superficie definida por el paralelogramo recto; y

(e) cortar unas series primera y segunda de ranuras paralelas (503, 505) a través del conjunto de capa de soporte con conductos plana de cerámica en crudo formado por la primera capa con conductos de flujo plana de cerámica en crudo (201), la capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo (401) y la segunda capa con conductos de flujo plana de cerámica en crudo (201), en el que

(1) las series primera y segunda de ranuras paralelas (503, 505) son perpendiculares a la pluralidad de conductos de flujo paralelos (301) en las capas de conductos de flujo planas de cerámica en crudo primera y segunda (201),

(2) la primera serie de ranuras paralelas (503) está dispuesta entre la periferia y el primer lado del paralelogramo (507) y las ranuras en la primera serie de ranuras paralelas (503) pasan a través de, e intersectan, la primera pluralidad de ranuras paralelas (411, 419) que se extienden a través de la capa de soporte (401),

(3) la segunda serie de ranuras paralelas (505) está dispuesta entre la periferia y el segundo lado del paralelogramo (507) y las ranuras en la segunda serie de ranuras paralelas (505) pasan a través de, e intersectan, la segunda pluralidad de ranuras paralelas (413, 421) que se extienden a través de la capa de soporte (401); y

(f) cortar una tercera serie de ranuras paralelas a través del conjunto de capa de soporte con conductos plana de cerámica en crudo formado por la primera capa con conductos de flujo plana de cerámica en crudo (201), la capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo (401) y la segunda capa con conductos de flujo plana de cerámica en crudo (201),

en el que las ranuras en la tercera serie de ranuras paralelas se encuentran en paralelo a las ranuras en las series primera y segunda de ranuras paralelas y se encuentran entre las series primera y segunda de ranuras paralelas; en el que las ranuras en las series primera y segunda de ranuras paralelas se encuentran en comunicación de fluidos fluida con todas las ranuras en la primera capa de conductos de flujo plana de cerámica en crudo, la capa de soporte con ranuras plana de cerámica en crudo y la segunda capa de conductos de flujo plana de cerámica en crudo.

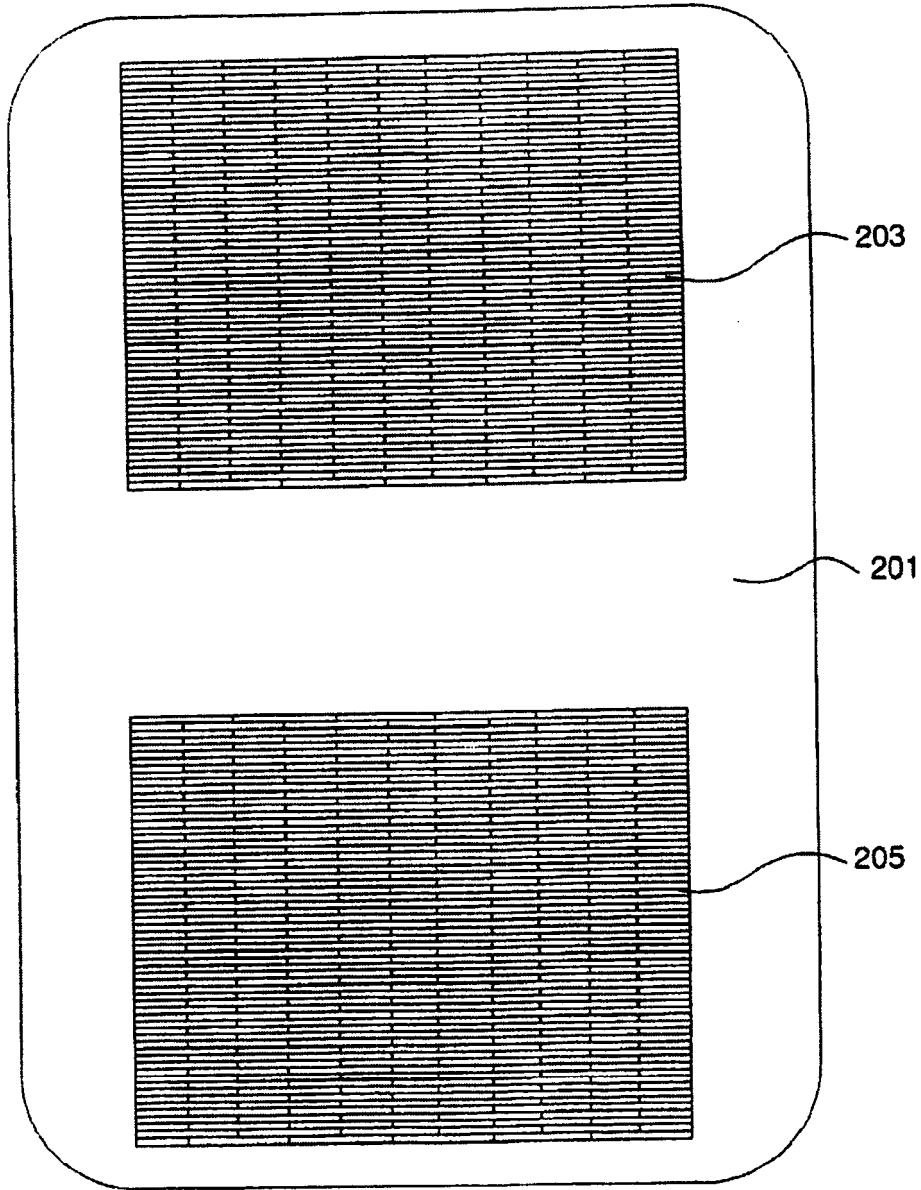


FIG. 2

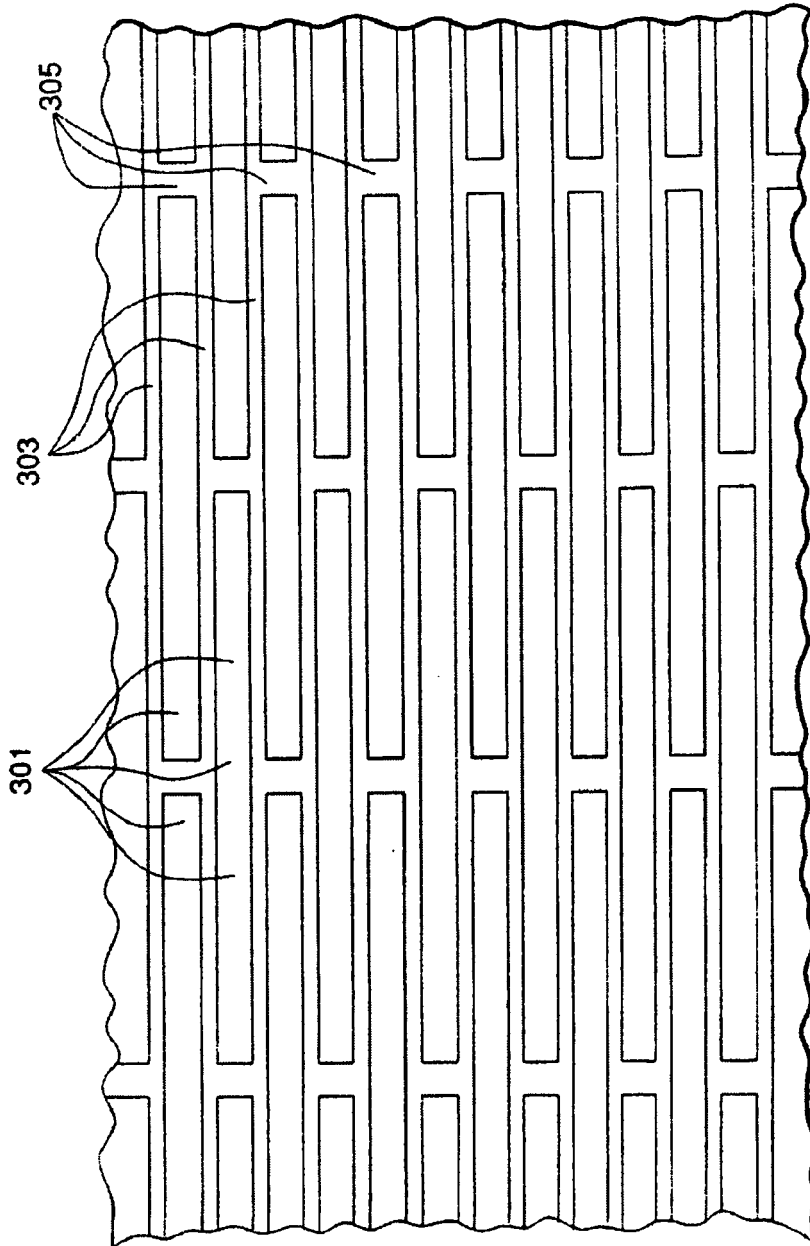


FIG. 3

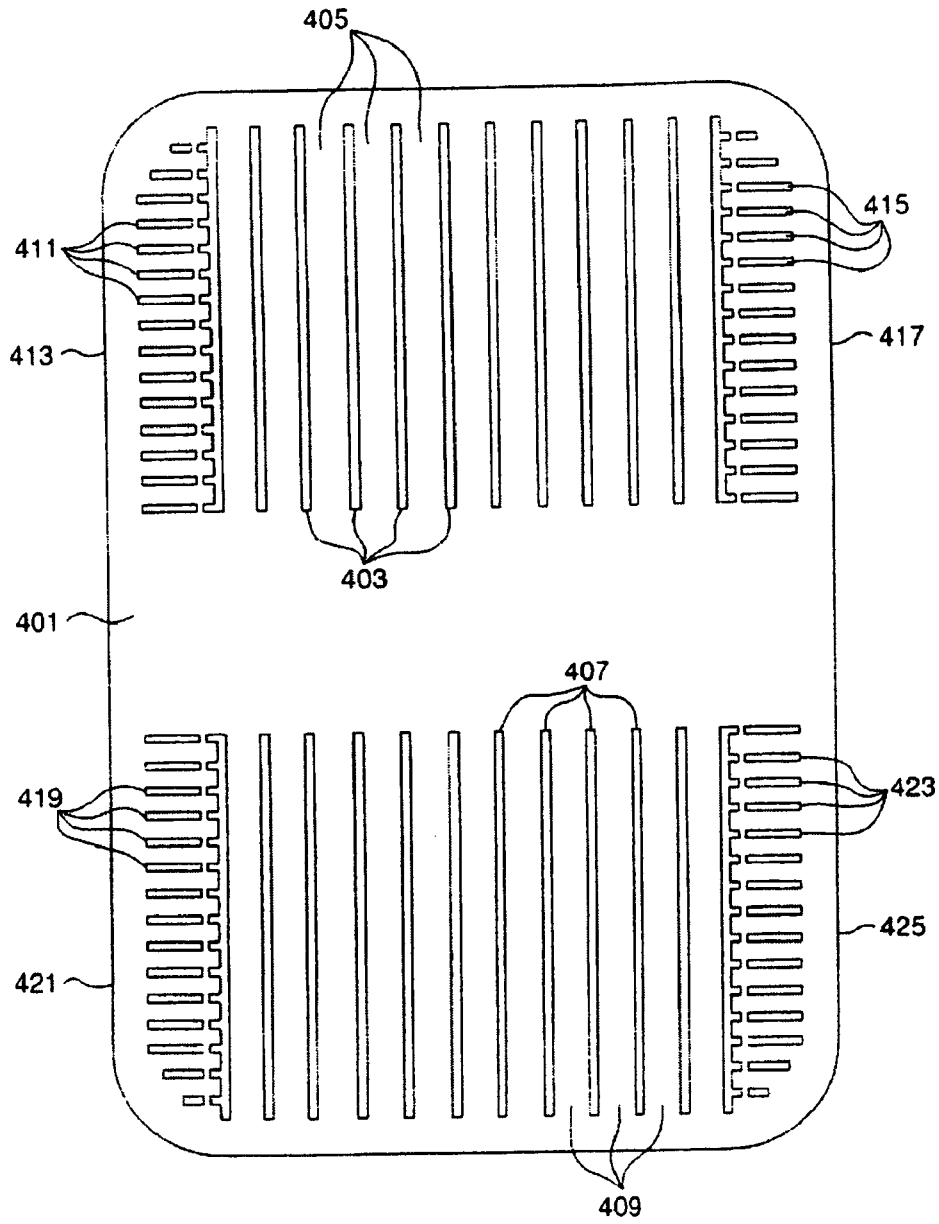


FIG. 4

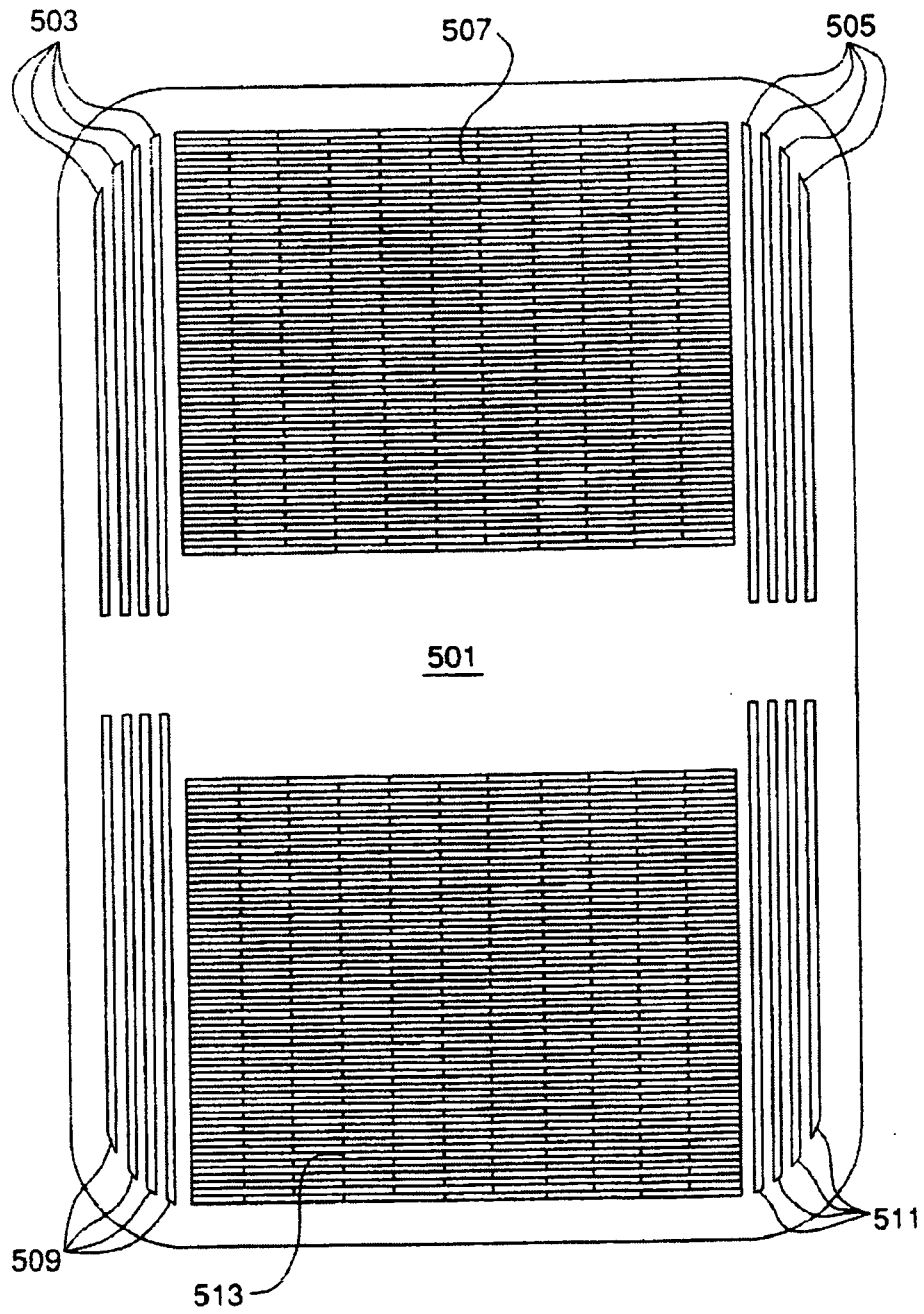


FIG. 5