

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 561 033**

51 Int. Cl.:

B01D 61/10 (2006.01)
B01D 71/02 (2006.01)
B01D 63/06 (2006.01)
B01D 53/22 (2006.01)
B01D 65/00 (2006.01)
B01D 67/00 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **28.09.2007 E 07834757 (2)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **11.11.2015 EP 2083938**

54 Título: **Método de fabricación de un elemento de membrana a prueba de fugas**

30 Prioridad:

29.09.2006 US 847914 P

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

24.02.2016

73 Titular/es:

**SINVENT AS (100.0%)
7465 Trondheim, NO**

72 Inventor/es:

**KLETTE, HALLGEIR;
BREDESEN, RUNE y
SLOTFELDT-ELLINGSEN, DAG**

74 Agente/Representante:

VEIGA SERRANO, Mikel

ES 2 561 033 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

Método de fabricación de un elemento de membrana a prueba de fugas

5 Sector de la técnica

La presente invención se refiere a la separación o limpieza de gases por medio de membranas de metal muy delgadas que son selectivamente permeables para gases específicos.

10 Se comenta un elemento de membrana a prueba de fugas para la limpieza o separación selectiva de gas. El elemento de membrana está compuesto por una lámina de metal (membrana) depositada sobre un sustrato de soporte de metal, cerámica, polímero, o combinaciones de los mismos, y medios de conexión que permiten que el elemento se instale en una carcasa. El sustrato debe poder penetrarse por el/los gas(es) que se hace(n) pasar a través de la membrana, y puede ser o bien un material poroso o bien un material que puede penetrarse por los gases deseados mediante difusión en fase sólida (por ejemplo conductores mixtos de materiales cerámicos o metales de los grupos IVB y VB que conducen protones y/o que conducen iones de oxígeno y electrónicos) o combinaciones estratificadas de los mismos. Cuando se ha completado la instalación del elemento de membrana dentro de una carcasa, el gas individual que fluye en cada lado del elemento de membrana permanecerá separado (de ahí el término a prueba de fugas), excepto el/los gas(es) que la membrana permite pasar selectivamente de un lado de la membrana al otro.

La invención se refiere a un método para proporcionar un elemento de membrana a prueba de fugas tal como se describió anteriormente.

25 Estado de la técnica

Muchos metales tienen la propiedad de ser selectivamente permeables para gases específicos. Por ejemplo, al hacer pasar una mezcla de gases en un lado de una tubería de metal que presenta un flujo de gas selectivo de este tipo, será posible bombear el/los gas(es) que difunde(n) a través de la tubería de metal hacia fuera por el otro lado de la tubería. Este principio está aprovechándose actualmente para la separación y limpieza de gas hidrógeno, por ejemplo, usando tuberías de aleación de paladio. En este caso, el grosor de la pared de tales tuberías de paladio es normalmente del orden de 100 micrómetros. La cantidad de hidrógeno que pasa a través de la membrana por unidad de tiempo (el flujo de hidrógeno) es inversamente proporcional al grosor de la pared de la tubería y proporcional al área de superficie de la tubería. Sin embargo, en la limpieza o separación de grandes cantidades de hidrógeno en instalaciones con membranas usando tales tuberías de paladio, los costes asociados son altos ya que el flujo de hidrógeno es relativamente lento debido al grosor relativamente grande de la membrana, y ya que el paladio es un metal muy caro. Sin embargo, al reducir el grosor de la membrana de paladio, puede aumentarse el flujo de hidrógeno (flujo de hidrógeno por área unitaria) y reducirse los costes. Esto es esencial en muchas aplicaciones, por ejemplo en la separación de hidrógeno en relación con la eliminación de CO₂ en grandes instalaciones de producción de energía o en relación con la producción de hidrógeno para una estación de servicio para vehículos impulsados por hidrógeno. En tales casos, un grosor de membrana del orden de 1 micrómetro es preferible. Hoy en día, puesto que hay un límite en lo delgadas aunque suficientemente estables en conformación que pueden producirse tuberías de metal, se forman membranas de metal delgadas principalmente depositando un recubrimiento de metal sobre un sustrato de soporte poroso de metal, cerámica o polímero (tubería, hoja, mm). Es ventajoso que la permeabilidad a los gases del sustrato (por ejemplo que resulta de poros pasantes de tamaño suficiente o de una gran capacidad para difundir gas en fase sólida) sea tan alta que el flujo de hidrógeno no se vea limitado por la permeabilidad del sustrato. La membrana de metal puede depositarse sobre el sustrato de soporte usando diversos métodos bien conocidos, tales como deposición física (bombardeo catódico) y deposición química (chapado), por ejemplo. Cuando se aplica este tipo de recubrimiento a sustratos porosos, se ha mostrado que es necesario que el recubrimiento de metal tenga un determinado grosor mínimo (normalmente 5-10 micrómetros) con el fin de lograr membranas a prueba de fugas. Una visión general de la tecnología de técnica anterior en cuanto a las propiedades, la fabricación y el uso de membranas de paladio se proporciona, entre otros, por S. Uemiyá en Sep. Purif. Methods 28 (1999) 51-85, y por S. N. Paglieri y J. D. Way en "Innovations in Palladium Membrane Research" en Separation and Purification Methods, 31(1), 1-169 (2002), Marcel Dekker, Inc. Se usan métodos de recubrimiento similares a los descritos en las referencias anteriores para otros metales y aleaciones.

A temperaturas elevadas, un sustrato de metal y una membrana de metal pueden reaccionar entre sí químicamente degradando o estropeando las propiedades funcionales de la membrana y/o el sustrato. Tales reacciones químicas pueden evitarse o aliviarse mediante el uso de una capa de barrera de material no metálico, que puede penetrarse por gases (preferiblemente poroso). Tales capas intermedias pueden usarse también para lograr un mejor contacto entre la membrana de metal y el sustrato en casos para los que esto se requiera. Tales capas pueden fabricarse usando diversos métodos, tal como se expone en la patente estadounidense n.º 5.217.506, por ejemplo.

En algunos casos, la membrana de metal puede degradarse por la influencia física y/o química del flujo de gas. Esto también puede evitarse o aliviarse añadiendo una capa protectora delgada sobre el lado externo de la membrana de metal, que está hecha de un material que tiene una alta permeabilidad para el gas que va a separarse/limpiarse.

Tales capas pueden fabricarse usando métodos físicos o químicos bien conocidos tal como se expone en las referencias anteriores, por ejemplo.

Objeto de la invención

5 Un método más especializado para formar láminas de metal y membranas de metal no porosas, muy finas (normalmente con un grosor de 1-5 micrómetros) se describe en la patente noruega n.º 304220 / patente estadounidense n.º 6.086.729. La presente invención se basa en estas últimas publicaciones, ya que usa las láminas de metal dadas a conocer en las mismas. Con el fin de poder fabricar elementos de membrana que tienen un área de superficie grande a partir de tales láminas de metal delgadas, deben colocarse bandas o escamas de las láminas unas junto a otras sobre el sustrato (tira a tira o escama a escama), y con uniones solapantes, próximas.

10 Esto puede lograrse de varios modos: En el caso de sustratos tubulares, puede enrollarse una lámina de metal en forma de bandas largas alrededor de la tubería sustrato. El enrollamiento es un método bien conocido que se usa en diversos aspectos. Sin embargo, lo que es esencial para esta aplicación de un recubrimiento de metal enrollado, es la capacidad para soldar las uniones entre sí logrando un recubrimiento continuo y a prueba de fugas. La soldadura satisfactoria de láminas de metal requiere normalmente que las láminas se coloquen sobre una base uniforme o plana, así como el uso de procedimientos y un aparato de soldadura especializados, tal como se describe en el documento EP A1 1184125, por ejemplo, en el que se dobló una lámina de paladio que tenía un grosor de 35-50 micrómetros alrededor de un sustrato tubular y se soldó entre sí (con extremos solapantes) usando un aparato especial que aprovecha el fenómeno físico bien conocido que se conoce como unión por difusión. Sin embargo, en la presente invención, las láminas de metal que se usan son tan delgadas que la unión por difusión puede lograrse sucesivamente sin el uso de ningún aparato de soldadura especializado.

15 En el caso de sustratos laminares, la lámina de metal debe disponerse en tiras o escamas de una manera similar, y con uniones solapantes, sobre el sustrato. En este caso, también será crítico obtener uniones a prueba de fugas entre escamas o tiras solapantes de la lámina de metal. Como para un sustrato tubular, según la presente invención, esto puede lograrse mediante unión por difusión sin el uso de ningún aparato de soldadura mecánica especializado.

20 La presente invención también da a conocer cómo puede reducirse drásticamente la probabilidad de fugas debidas a defectos en la lámina de metal o en la soldadura de las uniones de la lámina de metal mediante el uso de dos o más capas de lámina de metal extremadamente delgadas añadidas una en el exterior de la otra de tal manera que las uniones de una capa no se ubican conjuntamente con las de la capa por debajo o por encima. Esto es cierto tanto si el sustrato es tubular como plano.

25 La presente invención también da a conocer un método alternativo de formar una capa de barrera protectora, delgada, entre la membrana de metal y el sustrato y/o una capa de superficie protectora, delgada, sobre el lado de la membrana de metal orientado al flujo de gas entrante. En el método, tales capas se depositan en la lámina de metal antes de que la lámina se enrolle o se aplique sobre el sustrato. Pueden usarse métodos de recubrimiento bien conocidos tales como el descrito en las referencias anteriores para recubrir la lámina de metal.

30 Cuando van a instalarse elementos de membrana tales como los descritos anteriormente en una carcasa, es necesario usar medios de conexión, lo que también puede evitar la migración de gases no deseables desde un lado de la membrana al otro. Ya existen diversas soluciones comúnmente usadas, y en algunos casos patentadas, para este fin, que se basan en el uso de juntas de diferente tipo y conformación entre el sustrato, incluyendo la membrana de metal, y el dispositivo conector. Tales juntas están hechas de diversos materiales (caucho, grafito, etc.) dependiendo de la temperatura y las condiciones químicas a las que se expone el elemento de membrana. Además, se conocen diversas soluciones diferentes para retener tales juntas en su sitio así como en compresión, de modo que puedan mantener un sello adecuado. En la presente invención, se muestra cómo pueden solucionarse los problemas anteriores de una manera particularmente sencilla debido a que la propia membrana de metal puede usarse como junta. Si es necesario, se usa más de una capa de la membrana de metal como junta.

35 La presente invención se basa en las patentes a las que se hizo referencia anteriormente: patente noruega n.º 304220 / patente estadounidense n.º 6.086.729. Un objeto de la presente invención es proporcionar un elemento de membrana a prueba de fugas para la separación o limpieza de gas para casos en los que son necesarias membranas que tienen, en particular, un alto flujo para gases seleccionados, un bajo coste de material asociado y que pueden ensamblarse para formar plantas de procesamiento grandes.

40 Otro objeto es proporcionar un método particularmente sencillo de fabricación de un elemento de membrana a prueba de fugas tal como se expuso anteriormente.

45 La característica que distingue a la invención de otras tecnologías de técnica anterior que tienen un diseño similar es que el recubrimiento de metal es tan delgado que pueden usarse métodos particularmente sencillos para su aplicación, para unir las uniones del mismo y para sellar en los extremos de las tuberías así como contra superficies de base uniformes.

50

55

60

65

Además, los objetos de la presente invención se logran mediante un método para proporcionar un elemento de membrana a prueba de fugas para la separación selectiva o limpieza de gas en el que una lámina de metal (membrana) o tal lámina de metal que tiene un grosor de menos de 10 micrómetros, y que es selectivamente permeable para gases específicos, se deposita sobre un material de partida de soporte también denominado sustrato que presenta un alto flujo de gas y que está hecho de metal, cerámica, polímero, o combinaciones de los mismos, caracterizado porque el método comprende:

a) enrollar con uniones (8) solapantes bandas que tienen un grosor de menos de 10 micrómetros de la lámina (3) de metal que está parcialmente recubierta con recubrimientos de barrera/protectores encima / en el exterior del sustrato (2, 20) tubular,

b) luego sellar los extremos/bordes del sustrato ajustando medios (4, 21, 34) de conexión sobre el sustrato con la membrana, usando un material (7, 25) sellante entre el sustrato y los medios de conexión que no deja pasar gases no deseados,

c) luego unir mediante unión por difusión las uniones (8) solapantes para formar una capa de membrana no porosa, continua, calentando el sustrato (2, 20) recubierto con la lámina (3) de metal mientras hay una sobrepresión nula o positiva sobre el lado de metal,

d) en el que una o más capas de la lámina de metal se usan como material (6, 25) sellante entre el sustrato (2, 20) y los medios (4, 21, 34) de conexión.

En las reivindicaciones 2 a 11, incluidas, se detallan realizaciones preferidas del método para proporcionar el elemento de membrana a prueba de fugas.

Descripción de las figuras

A continuación se facilita una descripción más detallada de la invención a modo de ejemplos típicos:

Ejemplo 1: Elemento de membrana tubular, con referencia a los siguientes dibujos de principio:

La figura 1 muestra un dibujo de principio de la implementación de un elemento de membrana tubular según la presente invención. La figura muestra una mitad del elemento en una vista longitudinal.

La figura 2a muestra el principio de una primera fase de un método según la invención para enrollar una banda de metal delgada sobre un sustrato tubular.

La figura 2b muestra el principio de una fase final del procedimiento de enrollado de la figura 2a; y

La figura 3a muestra un dibujo de principio de la implementación de un aparato detector de fugas, mientras que

La figura 3b muestra un dibujo de principio de este método de detección de fugas.

Descripción detallada de la invención

Haciendo referencia a la figura 1, en el presente ejemplo se muestra un elemento (1) de membrana que incluye un material de soporte en forma de un (sustrato) (2) de tubería poroso hecho de metal, cerámica, polímero, o combinaciones de los mismos. El elemento de membrana incluye además un recubrimiento (3) de metal delgado (que tiene un grosor del orden de 1 micrómetro) hecho de una aleación de paladio, por ejemplo (la propia membrana es selectivamente permeable para gases, concretamente hidrógeno en este ejemplo) y piezas (4) de extremo que permiten que varias tuberías se conecten en paralelo en un conjunto de separación de gases más grande con tubos de suministro y de descarga, etc. Las piezas (4) de extremo se presionan contra la tubería mediante un anillo (5) de sujeción. En una zona (6) en cada extremo de la tubería sustrato en la que van a ajustarse las piezas de extremo, la superficie externa de la tubería se ha mecanizado de modo que su superficie es lisa y la tubería tiene una sección transversal circular perfecta. En este ejemplo, se usa el recubrimiento (3) de metal como junta (7) para el sellado entre la tubería (2) y las piezas (4) de extremo. Además, en este ejemplo, el recubrimiento (3) de metal se aplica sobre el sustrato (2) enrollando una banda (3) de metal alrededor de la tubería (2) sustrato, con uniones (8) solapantes entre las tiras de banda. Las uniones se sueldan entre sí mediante unión por difusión.

En el presente ejemplo, el elemento de membrana tal como se describió anteriormente se fabrica por medio de un banco de pruebas y ensamblaje. Haciendo referencia a la figura 2a, el banco (9) está dispuesto de modo que una tubería (2) sustrato puede sujetarse en el banco por medio de un dispositivo (10) de sujeción con el eje longitudinal de la tubería en una orientación horizontal. El banco está dotado además de dos servomotores que pueden mover la tubería sustrato en su dirección longitudinal al mismo tiempo que la tubería está haciéndose girar simultáneamente alrededor de su eje longitudinal. Los dos movimientos separados pueden sincronizarse entre sí y las velocidades de movimiento pueden variarse. El banco comprende además un árbol (11) que tiene un apoyo para un carrete (12) que

contiene un cilindro de una banda (13) de metal delgada (la membrana de metal). El carrete forma un ángulo (14) en relación con la dirección longitudinal de la tubería sustrato.

5 La primera etapa del procedimiento de fabricación es sujetar una tubería sustrato previamente adaptada de las dimensiones, materiales y propiedades deseados en el banco de ensamblaje. A lo largo de una longitud de unos cuantos centímetros en cada extremo de la tubería sustrato, donde las piezas de extremo de la tubería van a ajustarse (véase a continuación en el presente documento), la superficie de la tubería tiene que ser lisa, el diámetro de la tubería debe estar bien definido y la sección transversal de la tubería debe ser circular. Tales tuberías se conocen bien y están ampliamente disponibles comercialmente, y por tanto no son una parte de la presente invención. En este ejemplo, se ha usado una tubería sustrato de acero inoxidable, porosa.

10 La siguiente etapa del procedimiento de fabricación es colocar un carrete (12) que contiene un cilindro de banda (13) de metal en su lugar en el banco de ensamblaje. Tales cilindros de banda de metal muy delgada se conocen previamente (véanse las patentes a las que se hizo referencia anteriormente), y por tanto no son una parte de la presente invención. En el presente ejemplo, se han usado bandas de metal que tienen un grosor en el intervalo de 1-5 micrómetros de una aleación de paladio. El procedimiento de aplicación por enrollamiento de la banda (13) de metal delgada se inicia tirando de la banda de metal y fijándola a un extremo de la tubería (15). Dado que el extremo de la tubería sustrato se ha pulido, la lámina de metal delgada se adhiere a la superficie de la misma sin más acción, garantizando una buena adhesión.

15 El procedimiento de enrollamiento se inicia porque el movimiento giratorio y lineal de la tubería comienza y discurre de manera sincrónica de modo que la banda se enrolla uniformemente sobre la tubería. El ángulo (14) entre la banda de metal y la tubería sustrato se ajusta de modo que se forma un cierto solapamiento (8), concretamente 5 milímetros en este ejemplo (véase la figura 2b). Durante este procedimiento, el movimiento del carrete se limita de modo que se presiona la banda contra la tubería base. Este estiramiento de la banda también es necesario con el fin de lograr un solapamiento adecuado. Se coloca un microscopio que incluye una videocámara (16) directamente por encima de la ubicación en la que se aplica la banda sobre la tubería, permitiendo que se monitorice el procedimiento de enrollamiento en un dispositivo de visualización. Según se requiera, las velocidades, el ángulo y el estiramiento de la banda pueden ajustarse manualmente, y en el caso de que haya algún problema el procedimiento de enrollamiento puede detenerse o revertirse, y opcionalmente reiniciarse.

20 Cuando se alcanza el extremo de la tubería (17) (véase la figura 2b), la banda de metal se une a la superficie de la tubería, tras lo cual se corta la banda.

25 Como alternativa, pueden enrollarse dos o más capas una encima de la otra, de tal manera que las uniones de una capa no se solapan con las uniones de otra capa. Además, las capas pueden enrollarse de manera cruzada. El fin de tener varias capas es reducir el riesgo de fugas debidas a pequeñas imperfecciones (orificios) en la lámina y/o uniones.

30 El resultado del procedimiento de enrollamiento se inspecciona visualmente, y la tubería sustrato que tiene la membrana de metal enrollada sobre la misma se retira entonces del banco de ensamblaje.

35 La siguiente etapa del procedimiento de fabricación es ajustar las piezas de extremo sobre la tubería. Para este fin, se usa una plantilla especialmente diseñada que sostiene la tubería mientras se montan las piezas de extremo. Pueden usarse diversos dispositivos para ajustar las piezas de extremo sobre la tubería y sellar su conexión de modo que no puedan pasar gases no deseados desde un lado de la membrana hasta el otro. En este ejemplo, se han usado piezas (4) de extremo tubulares que tienen un diámetro interno en la zona de sellado que es algo mayor que el diámetro externo del sustrato (2) tubular con película (3) de metal. La pieza de extremo se enrosca cuidadosamente sobre la tubería sustrato con la membrana de metal sin causar daño a la misma. Se presiona un anillo (5) de sujeción sobre la pieza (4) de extremo y aprieta la pieza de extremo contra la membrana de metal / tubería sustrato, usando la membrana de metal (que es flexible) como junta (7). Para asegurarse de que esta junta estará de hecho apretada, es posible, en esta región de la tubería sustrato, enrollar una o más capas de membrana de metal adicionales sobre la tubería sustrato. El resultado es una conexión entre la tubería y las piezas de extremo que no dejará pasar gases no deseados. Además, las piezas de extremo están conformadas de modo que uno o más elementos de membrana pueden instalarse en una carcasa que tiene canales de entrada y salida de gases, etc.

40 Una implementación alternativa de la pieza de extremo que también se ha mostrado que puede aplicarse es el uso de una pieza de extremo que, en un estado calentado (en relación con el sustrato), tiene un diámetro interno que es suficiente para permitir que la pieza de extremo se enrosque sobre el sustrato con la membrana sin dañar la membrana, y cuyo diámetro, cuando se enfría hasta la misma temperatura que el sustrato, se contrae y presiona alrededor del sustrato con membrana y forma un sello a prueba de fugas y fijación para las piezas de extremo. También en este caso la membrana de metal se usa como junta entre la pieza de extremo y el sustrato.

45 La siguiente etapa del procedimiento de fabricación es la soldadura entre sí de los bordes laterales solapantes de la banda de metal enrollada, de modo que se forme una capa de metal a prueba de fugas, continua. Como tales, los bordes laterales solapantes de la banda de metal proporcionan un sello adecuado por sí mismos ya que la banda de

5 metal se estira durante el procedimiento de enrollamiento y luego se adapta de manera apretada a la base y las irregularidades porque es muy fina. También hay una buena adhesión entre las bandas de metal en la zona solapante. Esto, combinado con las propiedades de autodifusión del metal, hace posible que se suelden las uniones entre sí colocando el elemento de membrana (sustrato con banda de metal enrollada y piezas de extremo ajustadas sobre el mismo) en un dispositivo en el que el conjunto se calienta, quizá con una presión en exceso dada sobre el lado de la membrana. El ciclo de calentamiento (tiempo/temperatura/presión) dependerá del material seleccionado para la membrana de metal, etc. (en el presente ejemplo que usa una aleación de paladio, se usaron 300-400°C). Por tanto, la característica especial de este método es que la lámina de metal es tan fina y se adhiere de manera tan tirante y apretada sobre el sustrato para empezar que no es necesario usar un aparato de soldadura especial ni aplicar una presión mecánica.

10 La última etapa del procedimiento de fabricación es verificar que el elemento de membrana está de hecho apretado y realizar cualquier reparación necesaria. La detección de fugas se inicia colocando el elemento (1) de membrana en el banco (9) de pruebas (véanse las figuras 3a y 3b). En este banco, el elemento de membrana puede moverse en la dirección axial del mismo así como hacerse girar alrededor de su eje longitudinal (como en el procedimiento de enrollamiento). A través de una boquilla (18), puede pulverizarse gas helio u otro gas de detección de fugas hacia un punto sobre la superficie de la membrana. Dentro del soporte de la tubería, se crea una presión negativa por medio de una bomba. En el interior, a través de la tubería sustrato, se hace fluir un gas de purga. El gas helio migrará a través de cualquier orificio a través de la membrana. Se coloca una tubería (19) de succión de gas aguas abajo de la boquilla (18). Se aspirará el helio que ha migrado a través de cualquier orificio en la membrana y se conducirá a un aparato que mide la concentración de helio u otros gases, tal como un espectrómetro de masas. El conjunto de membrana se pone entonces en movimiento en la dirección longitudinal del mismo y se hace girar en relación con la boquilla de helio / tubería de succión de modo que se comprueba cada punto sobre la membrana de metal. Si existe un orificio en algún lugar en la membrana, el gas helio fluirá a través de ese orificio cuando el orificio pasa por la boquilla (18) y acabará dentro de la tubería sustrato, desde donde el gas se aspirará inmediatamente por la tubería (19) de succión de gas y entonces se detectará por el espectrómetro de masas. Por tanto, de esta manera es posible comprobar si hay un orificio en la membrana e indicar la ubicación de cualquier orificio. El banco de pruebas puede controlarse tanto automática como manualmente.

25 30 Cualquier fuga en la membrana puede parchearse usando diferentes métodos. En este ejemplo, se ha intentado reparar las fugas añadiendo una placa de empalme de una película de Pd delgada y luego realizando unión por difusión tal como se describió anteriormente. También se ha usado un material sellante comercial.

35 Los elementos de membrana contruidos y fabricados de esta manera se han sometido a prueba con buenos resultados en la separación de hidrógeno. Usando membranas de aleación de paladio que tienen un grosor de 2,5 micrómetros, se logró un flujo de hidrógeno de $2,5 \cdot 10^{-6}$ mbar / (m²*s*Pa) con una selectividad mejor de 1000 a 25 bar de presión diferencial absoluta.

40 Ejemplo 2: Elemento de membrana laminar, con referencia a los siguientes dibujos de principio (no según la invención)

La figura 4 muestra un dibujo de principio de una implementación de un elemento de membrana laminar. La figura muestra una vista en sección transversal del elemento.

45 La figura 5 muestra lo mismo que la figura 4, usando otro dispositivo de sujeción a modo de ejemplo.

La figura 6 muestra un dibujo de principio de un módulo de membrana en el que varios elementos de membrana están dispuestos en capas en unos medios de conexión.

50 Haciendo referencia a la figura 4, en el presente ejemplo se muestra un elemento de membrana que consiste en un sustrato (20) de cerámica plano, poroso que está cubierto con una lámina (3) de metal (la membrana) que tiene un grosor de 1 micrómetro y que está hecha de una aleación de paladio. El sustrato de este ejemplo se fabricó prensando óxido de aluminio en polvo en una herramienta de compresión para formar una hoja delgada en forma de disco, que entonces se sinterizó a 1160°C y finalmente se esmeriló en superficie en ambos lados. Alternativamente, pueden producirse sustratos de cerámica usando diversos otros métodos bien conocidos, por ejemplo mediante "colada laminar", calandrado y moldeo en suspensión, antes de la sinterización si se realiza. También pueden producirse sustratos que tienen una configuración estratificada usando tales métodos bien conocidos. En este ejemplo, el sustrato con la membrana sobre el mismo tenía una conformación circular, pero también puede tener una conformación rectangular, etc. Algunas implementaciones de la membrana de este ejemplo se realizaron como una escama continua que cubriría toda la hoja de sustrato. En otras implementaciones, se añadieron varias capas unas junto a otras sobre el sustrato con uniones solapantes que se habían soldado entre sí mediante unión por difusión.

60 El elemento de membrana de este ejemplo comprende además unos medios (21) de conexión, que consisten en dos mitades (21a) y (21b) que se sujeta entre sí mediante pernos (22). Entre las dos mitades, está prevista una junta (23) de una aleación de cobre u otro material adecuado. Los pernos (22) se aprietan de modo que la junta es estanca a los gases. El sustrato con la membrana sobre el mismo se sujetó dentro de estos medios de conexión

mediante un resorte (24) de metal cónico-circular que presiona el sustrato (20) con la membrana (3) sobre el mismo contra una junta (25) que hace tope contra una mitad de los medios de conexión. La fuerza aplicada por el resorte sobre el sustrato con la membrana sobre el mismo es suficiente para hacer que la junta (25) sea estanca a los gases. La junta (25) puede estar hecha de una aleación de paladio u otro material adecuado que no provocará daños a la membrana a la temperatura de funcionamiento. Como alternativa, puede usarse una junta que está compuesta por varios materiales dispuestos en capas, y que proporciona un sello adecuado sin provocar ningún daño a la membrana. Tales juntas pueden fabricarse usando varios métodos bien conocidos, y deben estar adaptadas a la temperatura, presión, etc. de funcionamiento del elemento de membrana. En las dos mitades de los medios de conexión están previstas además entradas y salidas para gas que entra en/sale de la membrana. En la mitad (21a) que hace tope contra la membrana, están previstas tuberías (26) de entrada y (27) de salida de gas para la parte del gas que no pasa a través de la membrana. En la otra mitad (21b), están previstas tuberías (28) de salida para gas que ha pasado a través de la membrana. En caso de usarse un gas de purga, también están previstas tuberías (29) de entrada para tal gas.

Como alternativa a lo anterior, el resorte (25) de metal interno puede sustituirse por unos medios (30) de compresión (véase la figura 5) en el exterior de los medios de conexión. Una tubería interna que incluye un resorte que forma una parte de la pared (31) de la misma y una tubería externa que incluye un resorte que forma una parte de la pared (32) de la misma, que a través de unos medios (33) de soporte presionan el sustrato (20) con la membrana (3) contra las juntas (25) haciendo que sean estancas a los gases.

En la figura 6 se muestra otro ejemplo de un elemento de membrana laminar. En este ejemplo, varias hojas (20) de sustrato planas, rectangulares, con membrana (3) se apilan en capas en unos medios (34) de conexión, que consisten en dos mitades (34a) y (34b) que se sujetan entre sí mediante pernos (35). En este ejemplo, se usan sustratos que tienen bordes (36) periféricos sellados. La primera capa de sustrato con membrana se añade sobre el lado del sustrato que está orientado a los medios de conexión, y después se añade la siguiente capa en un sentido opuesto, y así sucesivamente de manera estratificada tal como se muestra en la figura 6. Entre la pila de hojas de sustrato con membrana y los medios de conexión, están previstas juntas (25) estancas a los gases de un tipo descrito en la figura 4. Entre cada capa de hoja de sustrato con membrana, están previstos espaciadores (37) que mantienen la distancia entre las capas. Los espaciadores pueden ser del mismo material que las juntas (25), o de otro material adecuado que no reacciona con la membrana (3) de metal para destruir esta última. Los medios de conexión del presente ejemplo incluyen tuberías de entrada para gas (38) de alimentación que conducen a un área (39) de distribución de gas que distribuye el gas en el intervalo (40) entre las membranas. El gas que no pasa a través de las membranas sale a través de la tubería (41) de salida. El gas que sí que pasa a través de las membranas sale al interior del intervalo entre las hojas (42) de sustrato y avanza a través de tuberías de salida orientadas perpendicularmente con respecto a la orientación de la entrada (38) y la salida (41) para el gas de alimentación (es decir en perpendicular al plano de la figura, no mostrado en la figura). Las juntas (25) hacen que el gas de alimentación se separe del gas que ha pasado por la membrana ("gas permeado"). Si se desea el uso de un gas de purga, en el lado de permeado, tal gas puede alimentarse a través de una entrada de gas de purga en el lado de permeado (no mostrada en la figura).

Ejemplo 3: Membrana de metal que tiene un recubrimiento protector, con referencia al siguiente dibujo de principio:

La figura 7 muestra un dibujo de principio de una implementación de una hoja (no según la invención) o elemento de membrana tubular con una membrana dotada de un recubrimiento protector según la presente invención. La figura muestra una vista en sección transversal del elemento.

Haciendo referencia la figura 7, en este ejemplo se muestra una membrana (3) de metal que tiene una capa (43) de barrera en el lado orientado hacia el interior contra el sustrato (2) y una capa (44) de superficie protectora en el lado orientado hacia el gas de alimentación. El propósito de la capa (43) de barrera es prevenir que la membrana (3) de metal reaccione químicamente con el sustrato 2 para degradar la membrana. De manera similar, el propósito de la capa (44) de superficie es proteger la membrana (3) de metal frente a la degradación debida a reacciones químicas o físicas con el gas de alimentación. En el método, tales capas se añaden sobre la lámina de metal antes de enrollar o aplicar esta última sobre el sustrato. Como alternativa, puede aplicarse la capa (44) de superficie después de haber enrollado o aplicado la membrana de metal sobre el sustrato. Entonces pueden usarse métodos de recubrimiento bien conocidos, tales como los descritos en las referencias anteriores, por ejemplo, para recubrir la lámina de metal.

REIVINDICACIONES

1. Método para proporcionar un elemento (1) de membrana a prueba de fugas para la separación selectiva o limpieza de gas del tipo en el que una lámina (3) de metal que tiene un grosor de menos de 10 micrómetros y que está recubierta sobre uno o ambos lados de la misma con otros materiales, también denominados capas (43, 44) de barrera y/o protectoras, y que es selectivamente permeable para gases específicos, se deposita sobre un sustrato (2, 20) de partida de soporte tubular que presenta un alto flujo de gas y que está hecho de metal, cerámica, polímero, o combinaciones de los mismos, y en el que están previstos medios (4, 21, 34) de conexión en los extremos del sustrato que permiten que el elemento de membrana se instale en una carcasa, caracterizado porque el método comprende:
- a) enrollar con uniones (8) solapantes bandas de la lámina (3) en el exterior de dicho sustrato (2, 20) tubular,
- b) luego sellar los extremos del sustrato ajustando medios (4, 21, 34) de conexión sobre el sustrato con la membrana, usando un material (7, 25) sellante entre el sustrato y los medios de conexión que no deja pasar gases no deseados,
- c) luego unir mediante unión por difusión las uniones (8) solapantes a una capa de membrana no porosa, continua, calentando el sustrato (2, 20) recubierto con la lámina (3) de metal mientras hay una sobrepresión nula o positiva sobre el lado de metal,
- d) en el que una o más capas de la lámina de metal se usan como material (6, 25) sellante entre el sustrato (2, 20) y los medios (4, 21, 34) de conexión.
2. Método según la reivindicación 1, caracterizado porque la lámina (3) de metal está constituida por una banda larga que se enrolla manualmente o en una disposición automatizada, o combinaciones de las mismas, sobre un sustrato (2) tubular.
3. Método según las reivindicaciones 1 y 2, caracterizado porque la lámina de metal está constituida por una banda larga que se enrolla en dos o más capas una encima de la otra, en el que tales capas se enrollan en la misma dirección o en direcciones que se cruzan, y en el que las uniones de una capa no se ubican conjuntamente con las de la capa por debajo o por encima.
4. Método según las reivindicaciones 1 a 3, caracterizado porque, en primer lugar, se deposita una capa de lámina de metal que tiene una capa (43) de barrera sobre el lado orientado al sustrato.
5. Método según la reivindicación 4, caracterizado porque una o más capas de una lámina de metal pura se añaden sobre la capa que comprende la capa de barrera.
6. Método según las reivindicaciones 1 a 5, caracterizado porque la última capa de lámina de metal que se deposita comprende una capa (44) protectora sobre el lado orientado al flujo de gas.
7. Método según las reivindicaciones 1 a 6, caracterizado porque se aplica una capa (44) protectora externa de un material adecuado usando un método de recubrimiento adecuado, bien conocido, tras haberse añadido la membrana sobre el sustrato.
8. Método según las reivindicaciones 1 a 7, caracterizado porque la membrana (3) se inspecciona para detectar fugas por medio de un detector de fugas automático o parcialmente automático que puede indicar si existe cualquier fuga en la membrana e identificar la ubicación de cualquier defecto en la membrana.
9. Método según las reivindicaciones 1 a 8, caracterizado porque se parchea cualquier fuga en la membrana aplicando una película de Pd o sellante que se une por difusión a la membrana.
10. Método según las reivindicaciones 1 a 9, caracterizado porque la lámina (3) de metal está hecha de paladio o una aleación de paladio que presenta una difusión de hidrógeno selectiva.
11. Método según las reivindicaciones 1 a 9, caracterizado porque la lámina (3) de metal está hecha de plata o una aleación de plata que presenta una difusión de oxígeno selectiva.

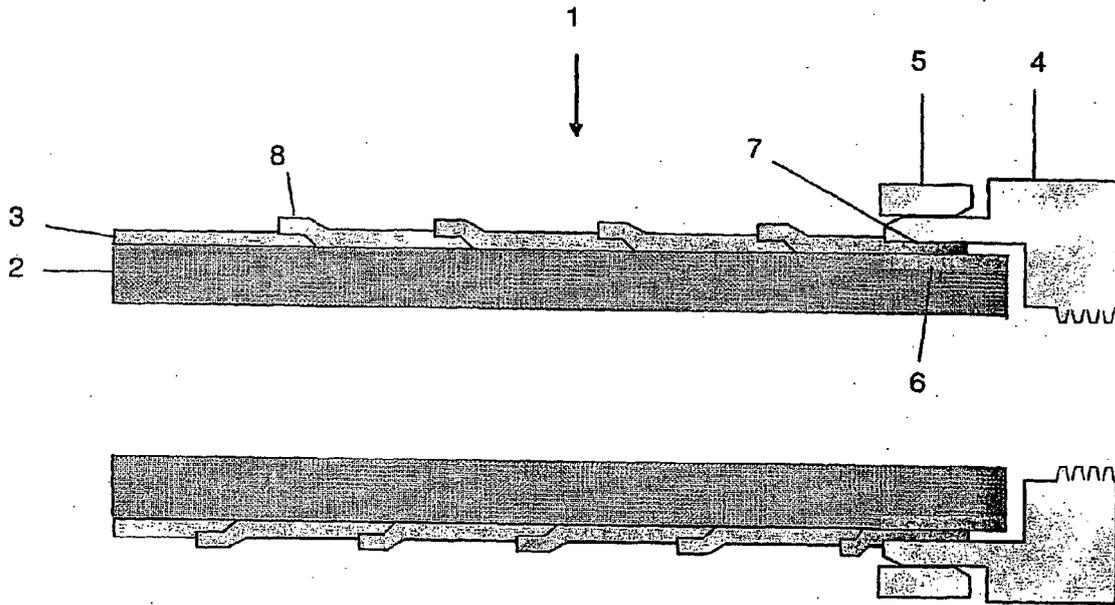


FIG. 1

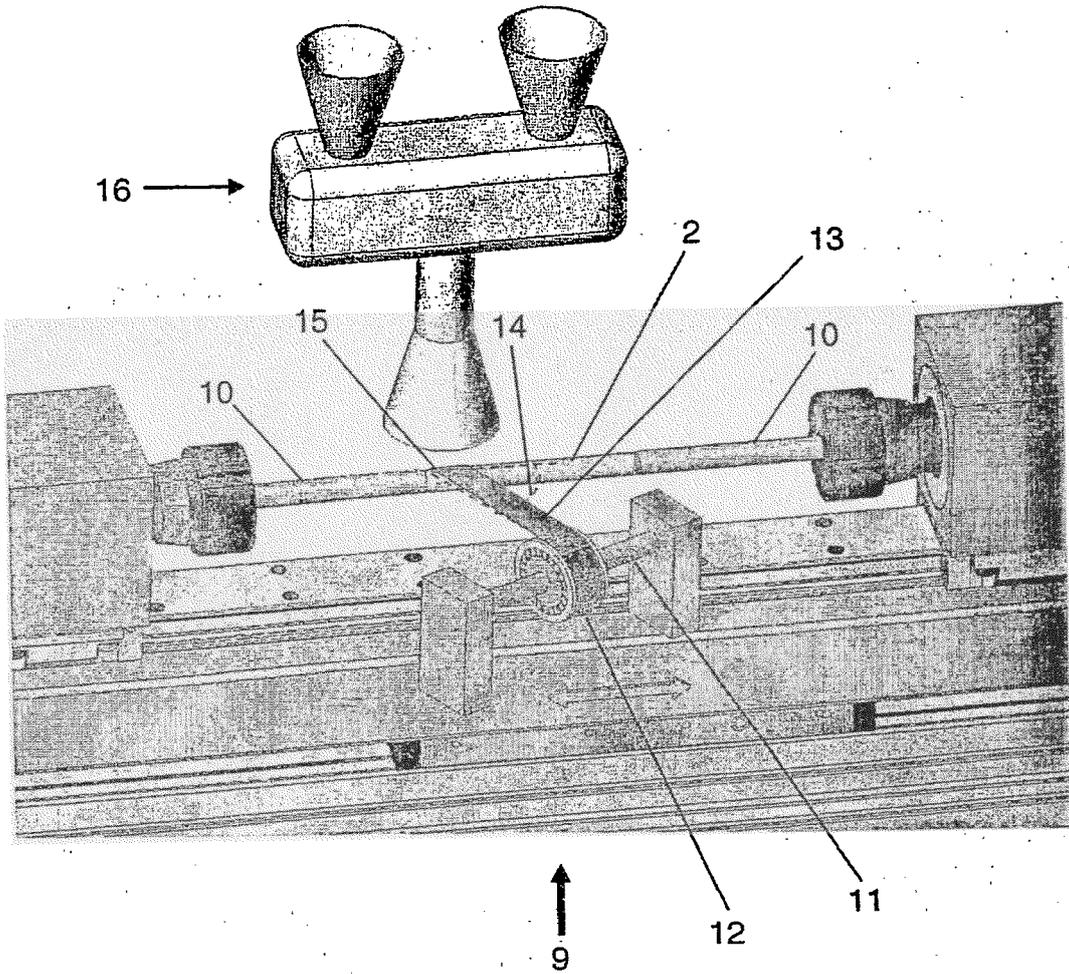


FIG. 2a

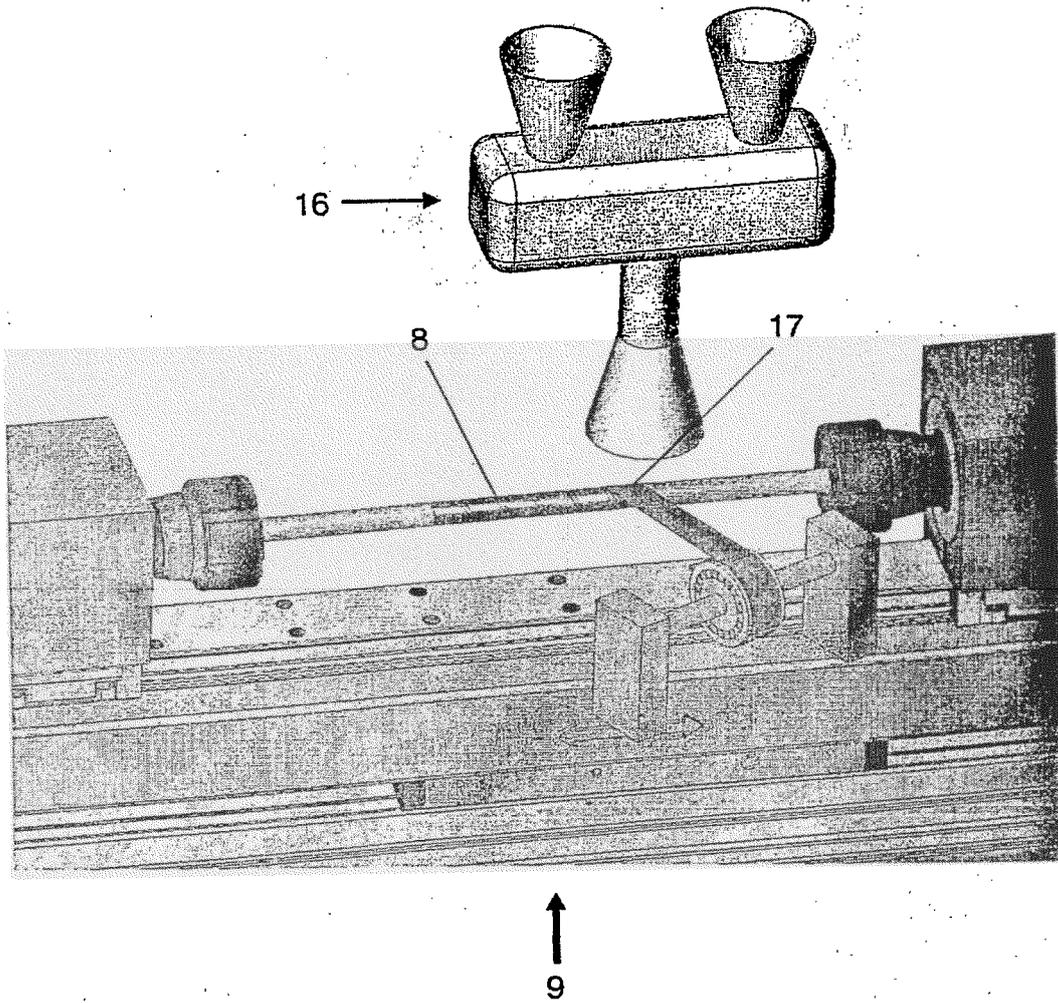


FIG. 2b

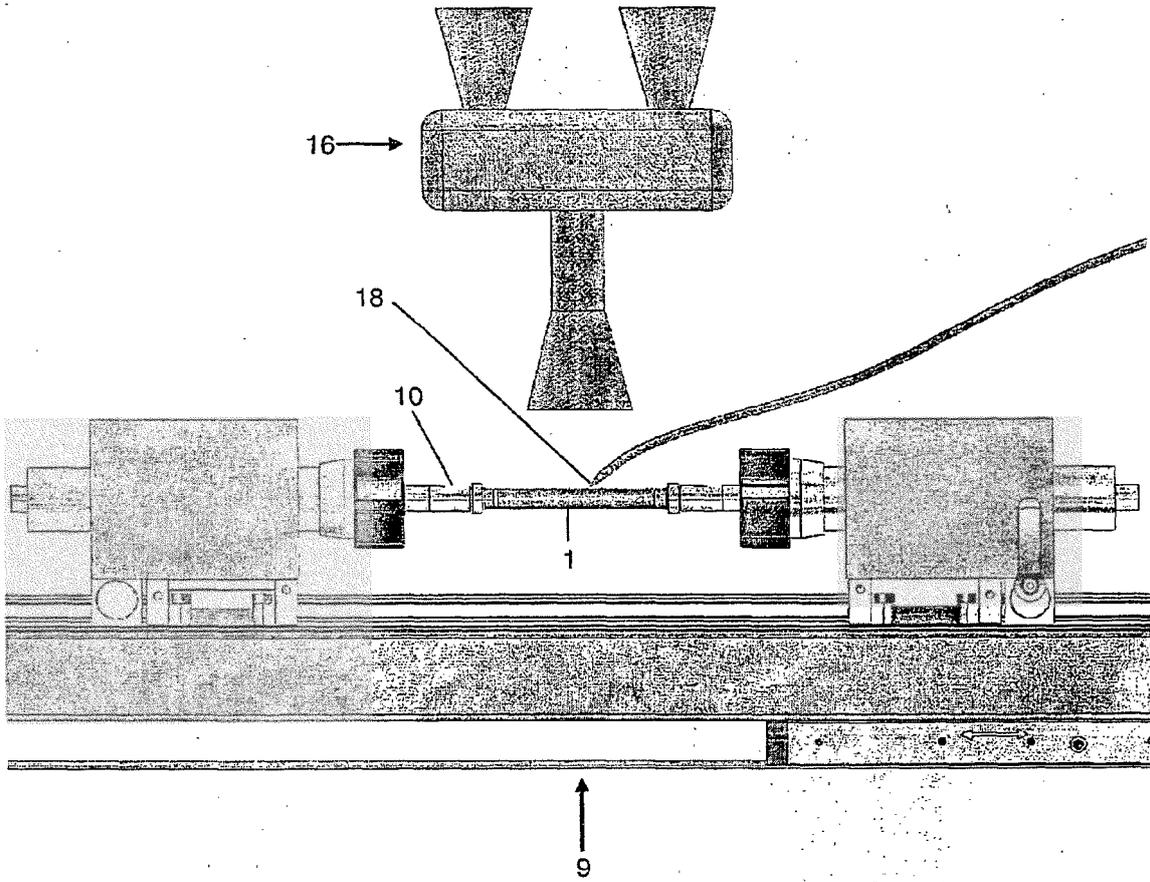


FIG. 3a

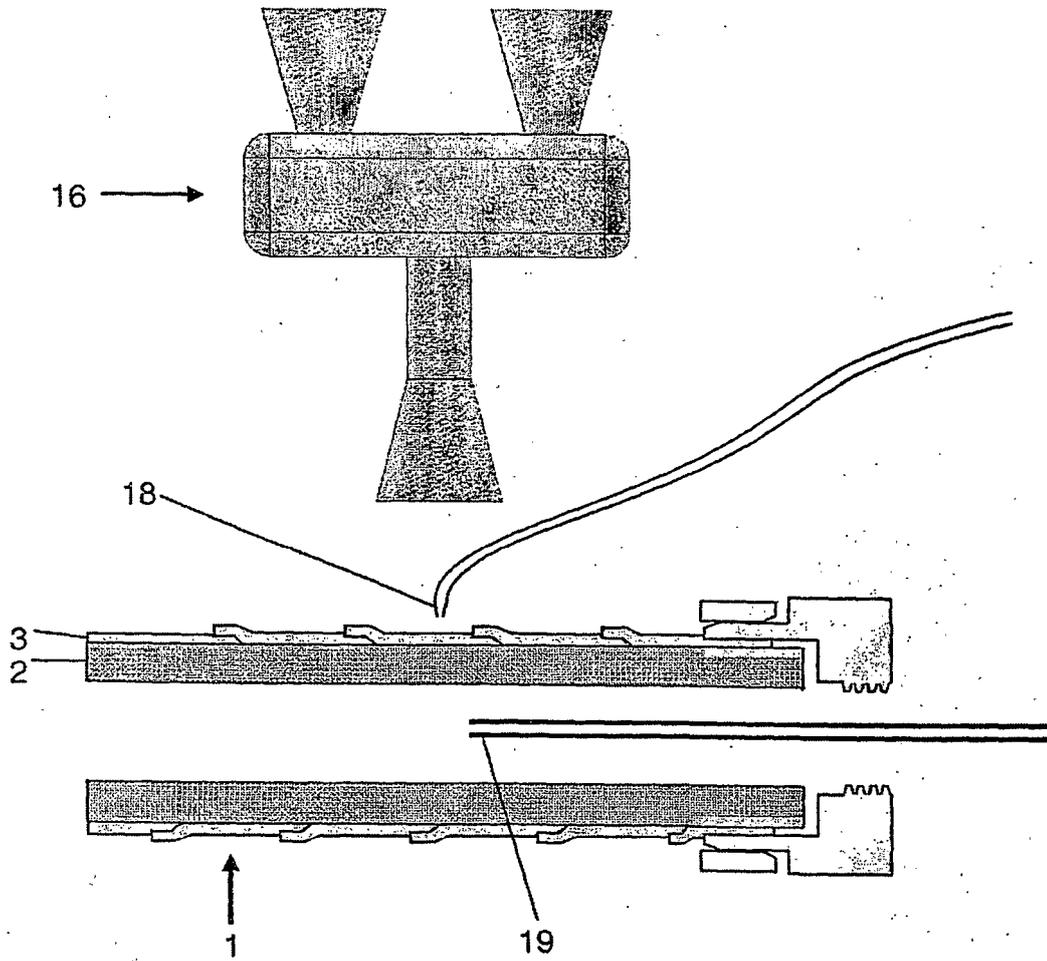


FIG. 3b

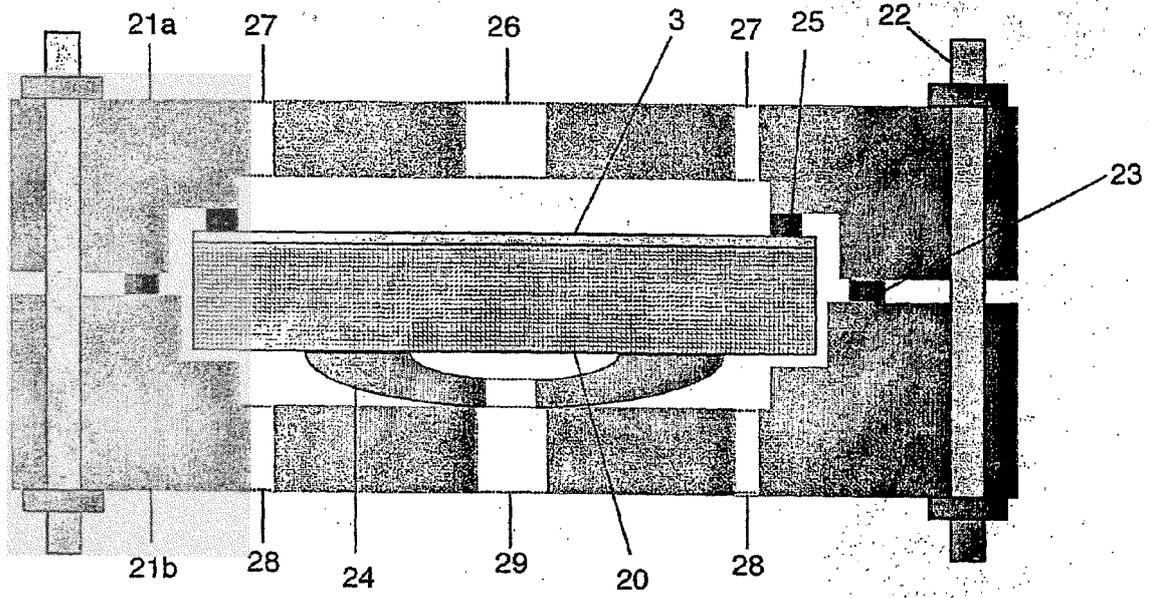


FIG. 4

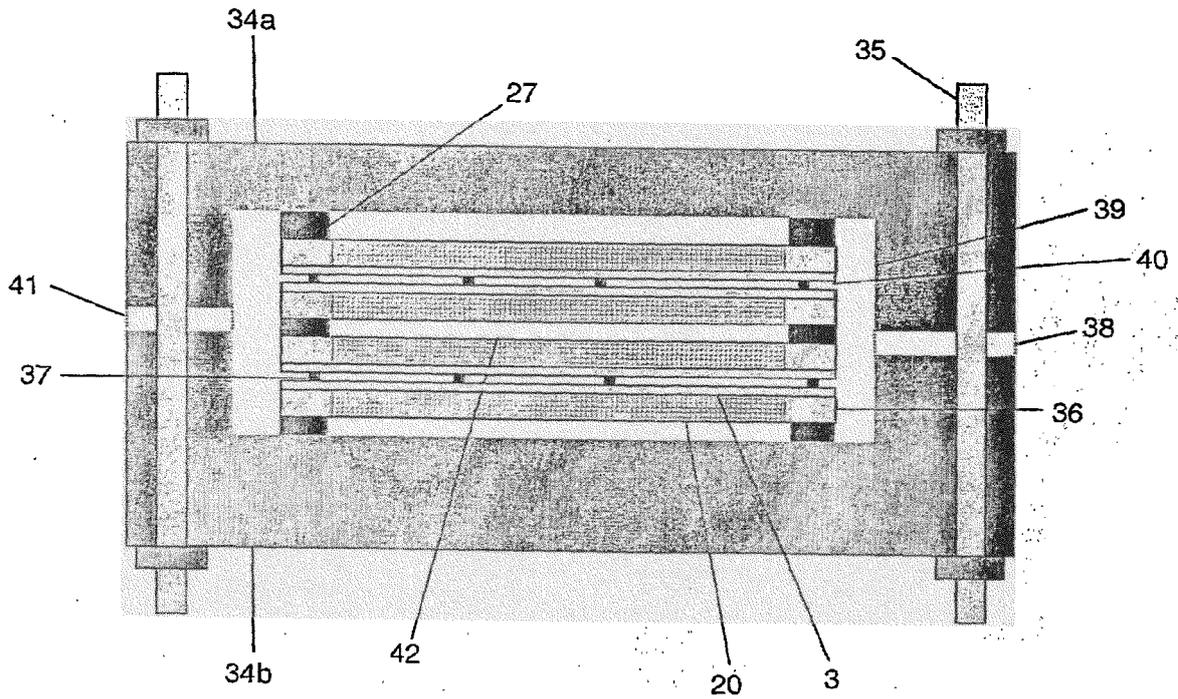


FIG. 6

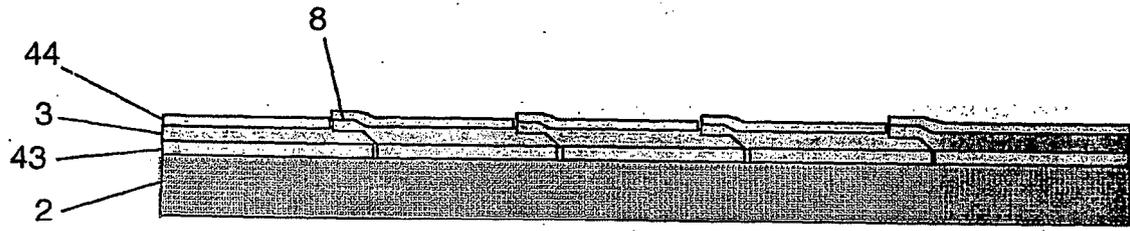


FIG. 7