



УКРАЇНА

(19) **UA** (11) **99863** (13) **C2**
(51) МПК (2012.01)
C25B 3/00
H01M 8/22 (2006.01)

ДЕРЖАВНА СЛУЖБА
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ
ВЛАСНОСТІ
УКРАЇНИ

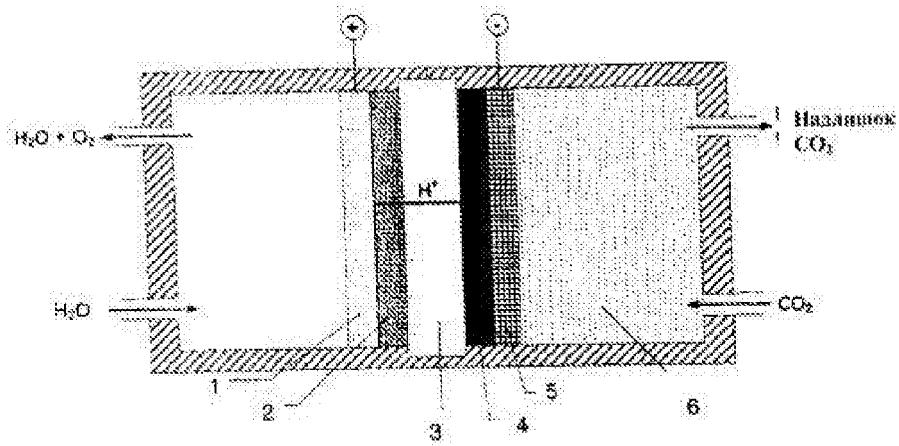
(12) ОПИС ДО ПАТЕНТУ НА ВІНАХІД

(21) Номер заявки: а 2010 15042	(72) Винахідник(и): Полункін Євген Васильович (UA), Зубенко Степан Олександрович (UA), Кривошеєва Людмила Іванівна (UA), Старжинська Людмила Іванівна (UA)
(22) Дата подання заявки: 14.12.2010	
(24) Дата, з якої є чинними права на винахід: 10.10.2012	
(41) Публікація відомостей про заяву: 25.07.2011, Бюл.№ 14	(73) Власник(и): ІНСТИТУТ БІООРГАНІЧНОЇ ХІМІЇ ТА НАФТОХІМІЇ НАН УКРАЇНИ, вул. Мурманська, 1, м. Київ-94, МСП-660, 02660 (UA)
(46) Публікація відомостей про видачу патенту: 10.10.2012, Бюл.№ 19	(56) Перелік документів, взятих до уваги експертизою: WO 2006025758 A2, 09.03.2006 Фильштих В. Топливные элементы. - М.: Мир, 1968, с. 144-159 US 3266941 A, 26.06.1962 GB 2158287 A, 06.11.1985 JP 05242901 A, 21.09.1993

(54) СПОСІБ СУМІСНОЇ УТИЛІЗАЦІЇ СІРКОВОДНЮ І ОКСИДІВ ВУГЛЕЦЮ ТА ПРИСТРІЙ ДЛЯ ЙОГО РЕАЛІЗАЦІЇ**(57) Реферат:**

Винахід належить до електрохімії, а саме до перетворення хімічної енергії в електричну з отриманням корисних продуктів. Заявлено спосіб сумісної утилізації сірководню та оксидів вуглецю електролітичним методом, який відрізняється тим, що використовують як окисник газу, що містять оксиди вуглецю (CO₂, CO), як відновник - газу, що містять сірководень. Також заявлено пристрій для сумісної утилізації сірководню та оксидів вуглецю електролітичним методом, який має корпус, заповнений електролітною сумішшю з гомогенним каталізатором (катодним та анодним) або без нього, всередині корпусу розміщено позитивний окисниковий і негативний паливний газодифузійні електроди з струмовідводами, і катодну та анодну камери відділяє протон-провідна мембрана, як електроліт використано водний розчин солей, як електроди використано вуглець в різних алотропних модифікаціях, як каталізатор використано метал з d- та p-груп, оксиди, карбіди, сульфідні та карбонати металів на електроді, як гомогенний каталізатор в електролітній суміші використано каталізатор на основі комплексу металу або 2-х чи більше металів з d- чи p-групи, а гомогенний каталізатор анодний та катодний можуть бути однакові або відмінні за будовою.

UA 99863 C2



Фиг.1

Винахід належить до електрохімії, а саме до перетворення хімічної енергії в електричну з отриманням корисних продуктів, і може бути використаний в електричних пристроях різного призначення, наприклад в електричних генераторах струму, паливних елементах. Пристрій для сумісної утилізації оксидів вуглецю та сірководню може бути використаний для очищення газів від сірководню, для очищення газів нафтохімічної промисловості. Утилізація оксидів вуглецю з продукуванням речовин, які мають перехідний ступінь окиснення (відмінний від +4), дасть нове джерело вихідних речовин для нафтохімії.

На даний час серед поданих до загального відома робіт по утилізації газів, до складу якого входить сірководень з отриманням при цьому електричної енергії існує ряд досягнень.

Серед них є роботи по утилізації газів, що містять сірководень як домішки, що можуть отруювати каталізатор при роботі на основному паливі (водні) [1, 2], при температурах 600 °C [1] та 1000 °C [2], з отриманням електричної енергії.

Головним сірковмісним продуктом окиснення сірководню була сірка [3-12]. Відповідно до агрегатних станів сірки (температура плавлення 113 °C, температура кипіння 445 °C) та температур проведення процесів отримують сірку у наступних агрегатних станах: газоподібну [3,4], при температурах 650-1050 °C [3], 700-1200 °C [4]; ріdkу [5-7] при температурах 120-370 °C [5], >120 °C [6], 120-180 °C [7]; сірка у колоїдному стані [7-12] при температурах: 20-120 °C [7], 60 °C [8], 25 °C [9], кімнатна [10, 11], >4 °C [12].

Згідно з температурою проведення процесу використовують різні конструкції та системи.

Передусім визначальною є мембрана, що розділяє катодну та анодну камери та електроліт, у якому розчиняється паливо.

Конструкція, що продукує газоподібну сірку, має у своєму складі твердооксидну іон-провідну мембрану [3, 4], ріdkу - цеолітну мембрану [5], протон-провідну полімерну мембрану [6,7], колоїдну - протон-провідну полімерну мембрану [7-12].

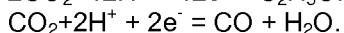
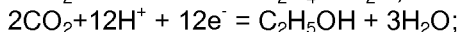
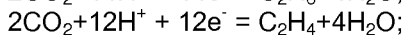
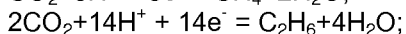
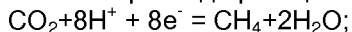
Головною проблемою при проведенні процесу окиснення сірководневих кислот є накопичення колоїдної сірки на активній частині каталізатор-електродної системи [7-9, 12], та/або вивід її з електроліту.

Як окисник у системах, що окиснюють сірковмісні сполуки, виступає кисень у чистому вигляді та/або повітря.

Окиснення палива може відбуватися не тільки за допомогою кисню, а і за допомогою інших окисників, передусім кисневмісних сполук, таких як оксиди нітрогену, оксиди сірки, оксиди фосфору, перекис водню, та неокисневмісних сполук: хлору, броду [13].

Спосіб та пристрій для одержання корисних продуктів з CO₂ було показано [14] (прототип), де CO₂ відновлюється протонами у електролізній комірці, де протони продукуються електролізом води з виділенням кисню та пропускаються через протон-провідну мембрану. У камері відновлення CO₂ протони з першої камери та електрони з зовнішнього джерела струму відновлюють CO₂ у вуглеводні та метанол.

Основні приклади реакцій відновлення CO₂ на катоді мають наступний вигляд:



Спосіб і пристрій ілюструються наступним прикладом.

Приклад 1

Дослідний зразок відомої комірки, що вибрана за прототип, зображено на Фіг.

Комірка містить протон-провідну мембрану 3 платиновий подрібнений анод 1 та мідний подрібнений катод 5. В комірці протон-провідна мембрана, зроблена з гідрофільного іонного матеріалу, що описано у [15] ділить структуру на дві камери. В анодній камері, платинова маса 1 утримується проволоченою сіткою, яка слугує струмовідводом для аноду. У ролі електрокаталізатора 2 у аноді для окиснення води слугує платинова чернь розміщена у вуглецевій тканині, в кількості 2 мг/см². Електрокаталізатор 4, що використовується як катод, складається з суміші оксидів Cu, Zn та Al з загальною кількістю 45 % мас. CuO, 27,5 % мас. ZnO, 27,5 % мас. Al₂O₃, розміщені у вуглецевій тканині, в кількості 1 мг/см² CuO, та розміщений у комірці у внутрішньому контакті з протон-провідною мембраною 3. Провідник струму для катоду є мідна маса 5, з'єднана з зовнішньою електропроводкою. Комірка спроектована в такому вигляді, що монтаж провідників струму 1 та 5, електрокаталізатори 2 та 4, протон-провідна мембрана 3 стиснуті разом в структурі комірки задля забезпечення хорошого транспорту іонів, електронів та молекул в реакційну зону на електрокаталізаторі.

Катодна камера 6 заповнена водним розчином 0,1М KHCO_3 , який виступає в ролі полегшувача транспортування CO_2 та утримання для наступного аналізу виробництва метанолу в комірці. CO_2 пропускається крізь цей розчин протягом електрохімічного синтезу для забезпечення насичення продуктом. CO_2 , що подається в катодну камеру 6, спочатку

пропускали крізь захоплювач вологи, захоплювач вуглеводнів та захоплювач кисню. Перед електросинтезом в анодну камеру додають воду. Після цього у кількості 0,5 $\text{дм}^3/\text{хв}$. CO_2 подають в катодну камеру протягом години. Патенціостатичний електросинтез потім підключається, контролюючись патенціостатом/гальваностатом, протягом 3 годин. Рідкий електроліт був при температурі навколишнього середовища близько $19 \pm 2^\circ \text{C}$, та CO_2 на катоді подається з тиском 1 бар. Експеримент електросинтезу проходив з загальним комірковим потенціалом в межах від 250 до 800 мВ. Електросинтетичні продукти містилися в рідкому електроліті в катодній камері 6 та були проаналізовані шляхом газової хроматографії.

Недоліком способу, вибраного як прототип, є те, що він використовує для відновлення CO_2 протони з води, що продукуються шляхом прикладання електричного струму, що висуває

додаткові вимоги до якості води. Недоліком пристрою, вибраного як прототип, є те, що електрична енергія має подаватися ззовні, призводячи до додаткових затрат електричної енергії.

В основу винаходу поставлена задача удосконалення способу з метою одночасної утилізації оксидів вуглецю та сірководню з отриманням корисних продуктів для промисловості.

Поставлена задача вирішується застосуванням способу сумісної утилізації сірководню та оксидів вуглецю електролітичним методом, який відрізняється тим, що використовує:

- як окисник оксиди вуглецю (CO_2 , CO) або суміш оксидів вуглецю (CO_2 , CO) та нітрогену (N_2);

- як відновник - сірководень;

- як електроліт - водний розчин солей;

- як електроди - вуглець в різних алотропних модифікаціях з каталізатором - металом з d- та p-груп, оксидами, карбідами, сульфідами та карбонатами металів або як електрод (катод чи/та анод) - вуглець у різних алотропних модифікаціях без каталізатора на його поверхні;

- та містить у електролітній суміші гомогенний каталізатор на основі комплексу металу з d- або p-групи або гомогенний каталізатор на основі комплексів 2-х або більше металів з d- та p-груп;

- або містить у катодній електролітній суміші гомогенний каталізатор на основі комплексу металу з d- або p-групи або гомогенний каталізатор на основі комплексів 2-х або більше металів з d- та p-груп, а у анодній електролітній суміші відмінний за будовою гомогенний каталізатор на основі комплексу металу з d- або p-групи або гомогенний каталізатор на основі комплексів 2-х або більше металів з d- та p-груп,

а також відрізняється тим, що одержують одночасно електричний струм, корисні продукти складу $\text{H}_A\text{S}_B\text{O}_C$ з відновника, корисні неорганічні сірковмісні продукти з відновника, корисні органічні продукти з окисника (спирти, альдегіди, кетони, кислоти, карбамід).

Поставлену задачу вирішують тим, що як відновник виступає сірководень, який має нижчу енергію іонізації ніж водень та вода. Це дає можливість не прикладати електричну енергію, а отримувати її додатково.

В основу винаходу поставлена задача удосконалення пристрою з метою заміни енергозатрат на добування електричної енергії та отримання корисних продуктів.

Поставлена задача вирішується застосуванням пристрою для сумісної утилізації сірководню та оксидів вуглецю електролітичним методом, який відрізняється тим, що має корпус, заповнений електролітною сумішшю з гомогенним каталізатором (катодним та анодним) або без нього, в середині корпусу розміщується позитивний окисниковий і негативний паливний газодифузійні електроди з струмовідводами, і в якому катодну та анодну камери відділяє протон-провідна мембрана, як електроліт використовують водний розчин солей, як електроди використовують вуглець в різних алотропних модифікаціях з каталізаторами або без них, як каталізатор використовують метал з d- та p-груп, оксиди, карбіди, сульфіди та карбонати металів на електроді, як гомогенний каталізатор в електролітній суміші використовують каталізатор на основі комплексу металу або 2-х чи більше металів з d- чи p-групи, а гомогенний каталізатор анодний та катодний можуть бути однакові або відмінні за будовою.

Дані задачі досягаються наступними чином:

- 1) створення газорідинного пристрою, який має позитивний газодифузійний вуглецевий, платиновий або скелетно-срібляний електрод, негативний вуглецевий металізований або оксидний електрод з каталізатором та паливно-електролітну суміш, яка містить в собі сірководень. Як каталізатор використовуються елементи групи, в склад якої входить платина,

паладій, іридій, осмій, рутеній, родій, золото, магній, алюміній, титан, кремній, германій, оксиди, карбіди, сульфіді і карбонати металів; або створення газорідного пристрою, який має газодифузійний вуглецевий анод, паливно-електролітно-каталітичну суміш, яка містить в собі сірководень та гомогенний каталізатор на основі комплексів металів групи, до складу якої

5

входить d-елементи та метали р-групи;
2) створення газорідного пристрою, який має газодифузійний вуглецевий катод, окиснико-електролітно-каталітичну суміш, яка містить в собі оксид чи оксиди вуглецю, продукти реакції та гомогенний каталізатор на основі комплексів металів групи, до складу якої входить d- елементи та метали р-групи;

10

3) як паливно-електролітну суміш використовує розчин сірководню та солей, які розчиняються у воді, в тому числі морська вода, або газоподібний сірководень, який пропускається через каталітичний шар, який знаходиться в середовищі електроліту у наступному співвідношенні компонентів, % мас.:

сірководень	0,3-90,0
вода (у тому числі морська)	1,0-98,9
хлорид натрію	0,1-45,0
сульфат натрію	0,1-45,0
хлорид калію	0,1-40,0
сульфат калію	0,1-30,0
хлорид магнію	0,1-45,0
сульфат магнію	0,1-45,0
карбонат натрію	0,01-10,0;

15

4) як окиснико-електролітну суміш використовує розчин оксидів вуглецю та солей, які розчиняються у воді, в тому числі морська вода, або газоподібні оксиди вуглецю, які пропускається через каталітичний шар, який знаходиться в середовищі електроліту у наступному співвідношенні компонентів, % мас.:

CO ₂	0,1-90,0
CO	0,0-90,0
вода (у тому числі морська)	1,0-98,2
хлорид натрію	0,1-45,0
сульфат натрію	0,1-45,0
хлорид калію	0,1-40,0
сульфат калію	0,1-30,0
хлорид магнію	0,1-45,0
сульфат магнію	0,1-45,0
карбонат натрію	0,01-45,0
карбонат калію	0,0-45,0
гідрооксид калію	0,0-45,0
гідрооксид натрію	0,0-45,0.

Новим у заявленому способі є: використання як окисника сірководню оксидів вуглецю (CO₂, CO), спосіб на відміну від попередніх здатен виробляти одночасно електричну енергію та корисні продукти.

20

Порівняльний аналіз з прототипами показав, що цей винахід має наявність нових складових: окисника - оксидів вуглецю; продуктів - вуглеводні, кисневмісні органічні сполуки, карбамід; електродів з каталізатором, підібраних для цього виду палива; гомогенних каталізаторів для окиснення сірководню; гомогенних каталізаторів для відновлення оксидів вуглецю.

25

Таким чином, запропонований спосіб відповідає критерію винаходу "новизна". В науковій та реферативній літературі нами не знайдені публікації по використанню як окисника в електролітичному методі оксиду вуглецю (IV) та/або оксиду вуглецю (II) з одержанням електричної енергії, що дозволяє зробити висновок про відповідність критерію "винахідницький рівень".

30

На Фіг. 2 схематично зображено запропонований пристрій, який має наступний вигляд: корпус 1 з пористими мембранами; 2 заповнений електролітною сумішшю. В середині корпусу розміщується позитивний електрод 3; та негативний паливний електрод 4 з струмовідводами 5 (-) і 6 (+).

В процесі роботи пристрою на катоді протікає відновлення CO₂ та CO за реакціями:

35

(1) $\text{CH}_3\text{OH}_{(\text{aq})} + 2\text{OH}^- = \text{HCHO}_{(\text{aq})} + 2\text{H}_2\text{O} + 2\text{e}^-$	$E_0 = 0,95 \text{ B}$
(2) $\text{CO}_{(\text{r})} + 6\text{H}^+ + 6\text{e}^- = \text{CH}_{4(\text{r})} + \text{H}_2\text{O}$	$E_0 = 0,497 \text{ B}$
(3) $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH} + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^- = \text{C}_2\text{H}_6 + \text{H}_2\text{O}$	$E_0 = 0,46 \text{ B}$
(4) $\text{CH}_3\text{OH}_{(\text{aq})} + \text{CO}_{2(\text{r})} + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^- = \text{CH}_3\text{COOH}_{(\text{aq})} + \text{H}_2\text{O}$	$E_0 = 0,35\text{B}$
(5) $\text{CH}_{4(\text{r})} + 2\text{OH}^- = \text{CH}_3\text{OH}_{(\text{aq})} + \text{H}_2\text{O} + 2\text{e}^-$	$E_0 = 0,25 \text{ B}$
(6) $\text{CH}_3\text{CHO} + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^- = \text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$	$E_0 = 0,192\text{B}$
(7) $\text{CO}_{2(\text{r})} + \text{N}_{2(\text{r})} + 6\text{H}^+ + 6\text{e}^- = \text{CO}(\text{NH}_2)_2 + \text{H}_2\text{O}$	$E_0 = 0,1\text{B}$
(8) $\text{HCHO}_{(\text{aq})} + \text{H}_2\text{O} = \text{HCOOH}_{(\text{aq})} + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^-$	$E_0 = -0,056 \text{ B}$
(9) $\text{CH}_3\text{COOH}_{(\text{aq})} + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^- = \text{CH}_3\text{CHO}_{(\text{aq})} + \text{H}_2\text{O}$	$E_0 = -0,118 \text{ B}$
(10) $\text{CO}_{2(\text{r})} + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^- = \text{CO}_{(\text{r})} + \text{H}_2\text{O}$	$E_0 = -0,12\text{B}$
А у електроліті наступні реакції:	
(11) $2\text{CO}_3^{2-} + 4\text{H}^+ + 2\text{e}^- = \text{C}_2\text{O}_4^{2-} + 2\text{H}_2\text{O}$	$E_0 = 0,441\text{B}$
(12) $\text{CO}_3^{2-} + 3\text{H}^+ + 2\text{e}^- = \text{HCOO}^- + \text{H}_2\text{O}$	$E_0 = 0,227 \text{ B}$
(13) $\text{HCOO}^- + 5\text{H}^+ + 4\text{e}^- = \text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O}$	$E_0 = 0,199\text{B}$
(14) $\text{CO}_3^{2-} + 6\text{H}^+ + 4\text{e}^- = \text{HCHO} + 2\text{H}_2\text{O}$	$E_0 = 0,197\text{B}$
(15) $\text{HCOO}^- + 3\text{H}^+ + 2\text{e}^- = \text{HCHO} + 3\text{OH}^-$	$E_0 = 0,167\text{B}$

Як видно з наведених реакцій окиснювальну здатність мають також продукти реакції, які при продовженні відновлення будуть виступати в ролі напівпродуктів.

5 На аноді сірководень окиснюється з утворенням різних аніонів за реакцією:

(16) $\text{H}_2\text{S}_{(\text{r})} + 4\text{H}_2\text{O} - 8\text{e}^- = \text{SO}_4^{2-} + 10\text{H}^+$	$E_0 = -0,311 \text{ B}$
або:	
(17) $5\text{HS}^- - 7\text{e}^- = \text{S}_5^{2-} + 5\text{H}^+$	$E_0 = -0,003 \text{ B}$
(18) $4\text{HS}^- - 6\text{e}^- = \text{S}_4^{2-} + 4\text{H}^+$	$E_0 = -0,033 \text{ B}$
(19) $3\text{HS}^- - 4\text{e}^- = \text{S}_3^{2-} + 3\text{H}^+$	$E_0 = -0,097 \text{ B}$
або:	
(20) $\text{H}_2\text{S}_{(\text{aq})} = \text{S} + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^-$	$E_0 = -0,142\text{B}$

10 Електрорушійна сила (Е.Р.С.) системи $E = E_{\text{окисника}} - E_{\text{відновника}}$ може коливатися від $E_1=0,95 - (-0,311) = 1,261 \text{ B}$ до $E_2=0,1 - (-0,003) = 0,097 \text{ B}$, але при цьому не будуть перебігати деякі реакції (8-10), але у кожному разі $E_{\text{е.р.с.}} > 0$, що підтверджує електрохімічну дійсність роботи цього елемента.

15 Мінімальний вміст сірководню в паливно-електролітній суміші визначають розчинністю H_2S у водно-солевих розчинах. Як позитивний електрод використовують різні модифікації вуглецевих електродів з гідрофобізованим запірним шаром, які й досі потребують досконалості через отруєння їх продуктами відновлення, які дозволяють забезпечити стабільність характеристик реактора та інертні у морській воді.

20 Негативний та позитивний електроди виконують з вуглецю різних алотропних форм (в залежності від призначення устрою) з каталізатором, вибраним з груп: 1 - Pt, Pd, Rh, Ir, Os, Ru; 2 - Au, Ag, Cu; 3 - Mg, Al, Cd; 4 - Si, Ti, Ge; 5 - Mo, W, V; їх оксидів, карбідів, сульфідів та карбонатів або без нього. Каталізатори вибрані за критеріями достатньої активності та стійкості при умовах роботи реактора.

25 Каталізатор використовують у вигляді металу або його сполук і наносять на електрод хімічним або електрохімічним осадженням, напиленням або у суміші з струмопровідним зв'язуючим. Нанесені на графіт сплави металів з алюмінієм обробляють лугом для отримання пористої структури каталізатора.

Приготовлені таким методом електроди, володіють високою питомою поверхнею та достатньою активністю у реакціях окиснення сірководню.

Як позитивний електрод використовують електропровідний графіт з гідро- та електроізолюваним сталевим струмовідводом.

30 Електролітична суміш може містити гомогенний каталізатор на основі комплексів металів групи, до складу якої входить d-елементи та метали р-групи.

Пропонований винахід ілюструється схемою для здійснення пропонованого способу і пристрою. Фіг. 2.

35 Як електроди (3, 4) використовують електропровідний графіт, у комірку засипають активоване вугілля з нанесеним на нього каталізатором: для сірководню - з Cu; для O_2 та CO_2 - з Fe з гідро- та електроізолюваним мідним струмовідводом (6). Як паливно-електролітну суміш

використовують водний розчин складу: сірководню 0,378 % мас., NaCl 18 г/л. Процес перебігає у динамічних умовах з пропусканням паливно-електролітної суміші зі швидкістю 100 мл/год. Між комітками знаходиться протон-провідна мембрана МФ-4-СК (2). Вольт-амперні характеристики знімаються при прикладанні опору від 10 до 10000 Ом, вимірювання проводять при температурі 20 °С.

Результати наведені на Фіг. 3, де як порівняння роботи пристрою по утилізації сірководню з окисненням повітрям та окисненням сірководню за допомогою CO₂. При значеннях густини струму більших за "0" реакція окиснення сірководню перебігає з утворенням електричного струму, на обох кривих воно більше за "0", що свідчить про окиснення сірководню киснем повітря та CO₂. При відсутності подачі окисника (повітря чи CO₂) та подачі сірководню значення струму складає 0,0 мкА/см².

Спосіб та пристрій для сумісної утилізації оксидів вуглецю та сірководню може бути використаний для очищення газів від сірководню, наприклад газів газових та газоконденсатних родовищ, запобігаючи втратам вуглеводнів, очищення газів нафтохімічної промисловості (передусім, викидів процесу гідроочищення), очищення водню від сірководню (окиснення сірководню перебігає м'яко без втрат водню). Утилізація оксидів вуглецю з продукуванням речовин, які мають перехідний ступінь окиснення (відмінний від +4), дасть нове джерело вихідних речовин для нафтохімії, оминаючи процеси роботи з синтез-газом, які перебігають при високих температурах і тисках.

Перелік посилань:

1. Патент 3431146US, H01M 27/30, "Method of oxidizing residual H₂S to SO₂ in a fuel cell", filed 13.08.1964, 4.03.1969.

2. 2007/112435WO, H01M 8/12, "Solid oxide fuel cell process and apparatus", filed 28.03.2006, 4.10.2007.

3. Патент 4920015US, H01H 8/06, "Electrochemical H₂S conversion" filed 29.09.1988, 24.04.1990.

4. Патент 2486672CA, H01M 4/88, H01M 4/90, H01M 8/22, "Electrode catalyst for H₂S fuel cell", filed 13.05.2003, 20.11.2003.

5. Патент 4544461 US, C25B 1/00, C25B 11/00, "Hydrogen sulfide decomposition cell and catalytic materials therefor", filed 28.03.1983, 1.10.1985.

6. Патент 2328355CA, H01M 8/22, H01M 8/06, H01M 8/12, C25B 1/00, C01B 17/04, "Electrochemical oxidation of hydrogen sulfide", filed 16.04.1999, 28.10.1999.

7. Патент 3249522US, US Cl. 204-92, "Electrochemical oxidation of hydrogen sulfide", filed 23.02.1965, 3.05.1966.

8. Патент US 3874930, H01M 27/30, "Fuel cell system including source of fuel containing hydrogen sulfide and method of using", filed 29.01.1970, 1.04.1975.

9. Патент 0127595EP, C25B 11/4, H01M 4/90, H01M 8/22, C10K 1/10, "Hydrogen sulfide decomposition cell catalytic materials therefor", filed 26.03.1984, 05.12.1984.

10. Патент 4320180US, H01M 8/18, "Fuel cell", filed 14.10.1980, 16.03.1982.

11. Патент 2004/114430WO, H01M, "Химический источник тока - топливный элемент, работающий на сероводороде", заявка 22.06.2004, 29.12.2004.

12. Патент 2006/025758WO, H01M 8/08, H01M 8/20, "Process and fuel cell using H₂S fuel for generating electric power", filed 30.08.2005, 9.03.2006.

13. Фильштин В. Топливные элементы. - М.: Мир, 1968.-419с.

14. Патент 2008/017838WO, C25B 3/04, "Fuel synthesis", filed 08.08.2007, 14.02.2008.

15. Патент 03/023890WO, H01M 8/10, H01B 1/12, C08F 26/00, 226/00, C25B 9/02, "Hydrophilic polymers and their use in electrical cells", filed 9.09.2002, 20.03.2003.

ФОРМУЛА ВИНАХОДУ

1. Спосіб сумісної утилізації сірководню та оксидів вуглецю електролітичним методом, який **відрізняється** тим, що проводять процес окиснення із використанням як окисника газів, що містять оксиди вуглецю CO₂, CO, а також проводять процес відновлення із використанням газів, що містять сірководень, а також як електроліт використовують водний розчин солей, а як електроди використовують вуглець в різних алотропних модифікаціях, як каталізатор використовують метал з d- та p-груп, оксиди, карбіди, сульфідні та карбонати металів на електроді, як гомогенний каталізатор в електролітній суміші використовують каталізатор на основі комплексу металу або 2-х чи більше металів з d- чи p-групи.

2. Пристрій для сумісної утилізації сірководню та оксидів вуглецю електролітичним методом, який **відрізняється** тим, що має корпус, заповнений електролітною сумішшю з гомогенним

- каталізатором катодним та анодним, всередині корпусу розміщено позитивний окисниковий і негативний паливний газодифузійні електроди з струмовідводами, і в якому катодну та анодну камери відділяє протон-провідна мембрана, як електроліт використано водний розчин солей, як електроди використано вуглець в різних алотропних модифікаціях, як каталізатор використано метал з d- та p-груп, оксиди, карбіди, сульфіди та карбонати металів на електроді, як гомогенний каталізатор в електролітній суміші використано каталізатор на основі комплексу металу або 2-х чи більше металів з d- чи p-групи, а гомогенний каталізатор анодний та катодний можуть бути однакові або відмінні за будовою.

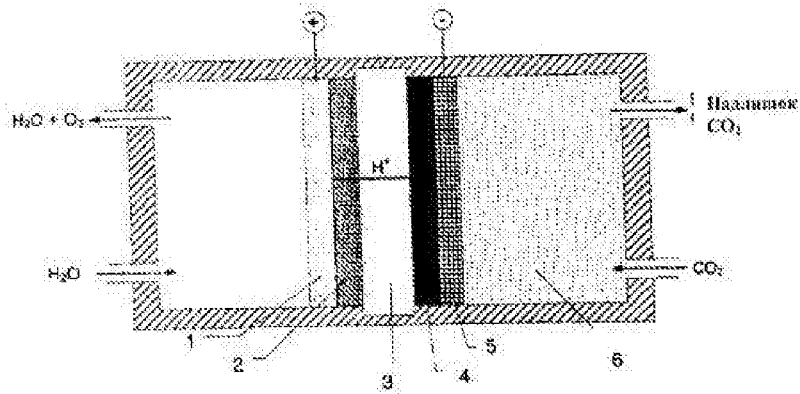


Fig. 1

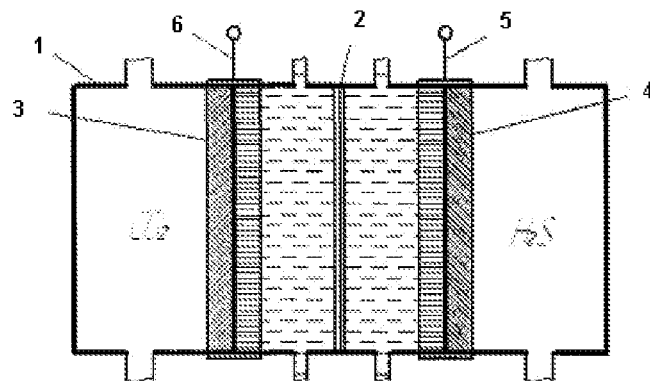
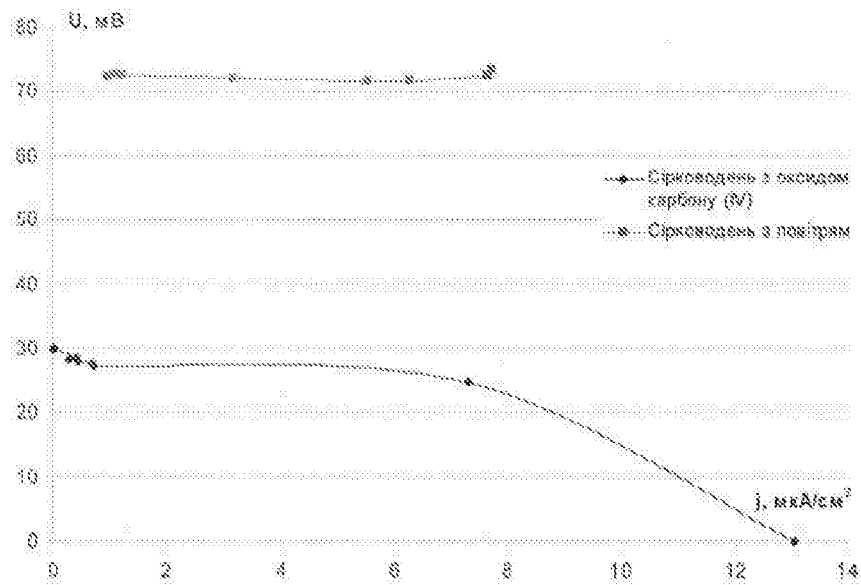
Пристрій сумісної утилізації CO₂ та H₂S.

Fig. 2



Порівняльні вольт-амперна характеристика пристрою для систем з повітряним окисненням та окисненням за допомогою CO₂

Фіг.3

Комп'ютерна верстка М. Ломалова

Державна служба інтелектуальної власності України, вул. Урицького, 45, м. Київ, МСП, 03680, Україна

ДП "Український інститут промислової власності", вул. Глазунова, 1, м. Київ – 42, 01601