

(12)

## CERERE DE BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: a 2020 00693

(22) Data de depozit: 03/11/2020

(41) Data publicării cererii:  
30/03/2021 BOPI nr. 3/2021

(71) Solicitant:  
• INSTITUTUL NAȚIONAL DE  
CERCETARE-DEZVOLTARE PENTRU  
TEHNOLOGII CRIOGENICE ȘI  
IZOTOPICE-ICSI -, STR. UZINEI NR.4,  
COD 240050, RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO

(72) Inventatori:  
• ȘOFÎLCĂ NICOLAE-CONSTANTIN,  
STR. PRIVIGHETORII, NR.4, BL.11, SC.B,  
AP.9, RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO;  
• VĂSUȚ FELICIA, STR.I.C.BRĂȚIANU,  
NR.3, BL.S1, SC.A, AP.17,  
RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO;  
• JIANU CĂTĂLIN-CONSTANTIN,  
STR.CALEA LUI TRAIAN, NR.144,  
RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO

### (54) PROCEDU ȘI DISPOZITIV DE MATRIȚARE/FORMARE A CATALIZATORILOR HIDROFOBI DIN CĂRBUNE IMPREGNAT CU PLATINĂ ȘI TEFLON

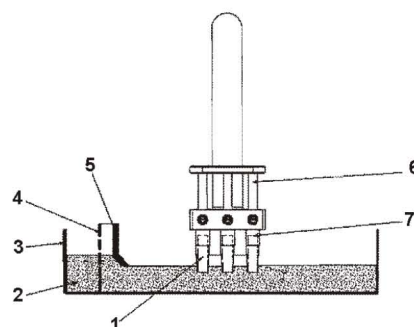
(57) Rezumat:

Invenția se referă la un dispozitiv de matrițare/formare a catalizatorilor hidrofobi din cărbune impregnat cu platină și teflon, și la un procedeu de preparare a acestora, catalizatorii fiind utilizați în instalațiile de schimb izotopic catalizat din cadrul instalațiilor de detrițiere a apei grele. Dispozitivul conform invenției poate fi manual sau automatizat fiind constituit din trei cilindri (1) calibrați cu diametrul interior de 3,5 mm, aceștia fiind imersați cu o anumită viteză în stratul (2) de pulbere care este omogenizată și afânată într-o tavă (3) cu ajutorul unui pieptene (4) metalic, a cărui înălțime este controlată prin reglarea poziției racletei (5), dispozitivul are trei poansoane (6) care se deplasează în interiorul cilindrilor (1) comprimând pulberea, după care continuă cursa până la evacuarea catalizatorilor (7) comprimați. Procedeu conform invenției constă în prepararea amestecului pentru matrițare utilizând un amestec uscat din pulbere de cărbune impregnat cu platină și teflon care este umectat cu o soluție formată din 5...15% raport volumic de surfactant, 5...15% raport volumic de alcool etilic și apă, amestecul prezentându-se sub forma unei paste vâscoase cu bule fine de surfactant care se lasă timp de 24 ore la o temperatură < 19°C într-o nișă ventilată pentru evaporarea alcoolului, pulberea astfel obținută este introdusă în tava (3), se afânează și se nivelează cu pieptenele (4) metalic și cu racleta (5) până la obținerea unui strat uniform, cilindrii (7) se introduc în stratul de pulbere cu mișcări

scurte și repetate până când pulberea este deversată pe la partea superioară a cilindrilor, se introduc poansoanele (6) în cilindri și se comprimă pulberea cu o presiune prestabilă, se evacuează catalizatorii într-o tavă de colectare urmând să fie supuși unui tratament suplimentar de uscare și sinterizare pentru vaporizarea și evacuarea surfactantului din catalizatori.

Revendicări: 3

Figuri: 1



Cu începere de la data publicării cererii de brevet, cererea asigură, în mod provizoriu, solicitantului, protecția conferită potrivit dispozițiilor art.32 din Legea nr.64/1991, cu excepția cazurilor în care cererea de brevet de invenție a fost respinsă, retrasă sau considerată ca fiind retrasă. Întinderea protecției conferite de cererea de brevet de invenție este determinată de revendicările conținute în cererea publicată în conformitate cu art.23 alin.(1) - (3).



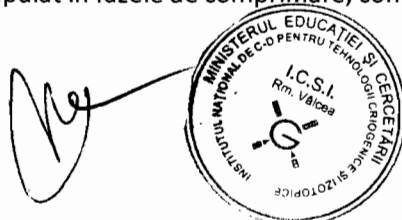
## **Procedeu și dispozitiv de matrițare/formare a catalizatorilor hidrofobi din cărbune impregnat cu platină și teflon**

Invenția se referă la un procedeu de preparare și la un dispozitiv de matrițare/formare a catalizatorilor hidrofobi cărbune impregnat cu platină și teflon, care să permită o productivitate mare.

Catalizatorii hidrofobi de tip cărbune impregnat cu platină și pulberi de teflon sunt utilizați în instalațiile de schimb izotopic catalizat din cadrul instalațiilor de detritiere a apei grele, care, prin proprietățile lor fizice și chimice, permit contactul intim între faza lichida reprezentată de apa grea tritiată și faza gazoasă reprezentând hidrogenul, astfel încât prin caracterul hidrofob, apa grea tritiată să fie respinsă de catalizatori în timp ce faza gazoasă să intre în contact cu elementul activ al catalizatorului, respectiv platina, iar prin contactul controlat între faze să se facă schimbul tritiului și speciilor tritiate din apă în gaz, rezultând o apă grea curată care poate fi reutilizată în instalațiile nucleare, respectiv un gaz tritiat care va fi purificat și prelucrat ulterior prin distilare criogenică, urmând să fie stocat și valorificat.

Literatura de specialitate prezintă diverse metode de preparare și metode de formare sau matrițare a pulberilor, majoritatea fiind metode uscate sau sub formă de pastă, iar matrițarea se face continuu prin comprimare continuă sau prin extrudare. Principalele aspecte care trebuie avute în vedere în cadrul fabricării catalizatorilor hidrofobi de tip cărbune platinizat-teflon sunt:

- Raportul dimensional al acestora care este defavorabil în sensul că diametrul acestora este de 3.4 mm, iar lungimea este de 12-15 mm. Acest raport face dificilă introducerea pulberii în matrițe din cauza aglomerării, efectelor electrostatice și adeziunii teflonului la suprafețele de lucru;
- Abraziunea pulberii care îngreunează alimentarea matriței și extragerea comprimatului;
- Tendința de aglomerare a teflonului la temperaturi de peste 19 grade Celsius;
- Timpii de încărcare a matrițelor prin metoda gravitațională sunt foarte mari, rezultând o productivitate redusă. S-a constatat că utilizând metode de încărcare cu ajutorul vibrațiilor produce catalizatori neomogeni datorită separării mecanice a teflonului de cărbune în timpul vibrației, cauzată de diferențele de greutate specifică a celor două materiale;
- Extrudarea semi-umedă sau a pastelor preparate din pulbere cu diverși lianți aduce probleme suplimentare cum ar fi: impurificarea catalizatorului cu elemente chimice nedorite și greu de eliminat ulterior, pericolul aprinderii liantului în faza finală de producere care presupune sinterizarea la temperatura de 370 grade, separarea selectivă a liantului față de pulberea solidă în extruder care conduce la colmatarea acestuia și blocarea rapidă cu material compactat;
- Diferențele mari între proprietățile cărbunelui platinizat și pulberea de teflon fac ca amestecul să fie foarte greu de manipulat în fazele de comprimare, conduc la fisurarea comprimatelor în timpul manipulării



*[Handwritten signature]*

Literatura de specialitate prezintă, de asemenea, o diversitate de metode și soluții pentru prepararea și manipularea amestecurilor pulverulente aplicabile în tehnologia pulberilor, industria farmaceutică, materiale compozite etc.

Pe plan național se cunoaște procedeul de preparare al catalizatorilor, brevet nr. **147684/1994 [1]** care are dezavantajul că are o productivitate scăzută prin faptul că are un singur post de lucru iar încărcarea gravitațională este dificilă pentru diametre mai mici de 5 mm din cauza aglomerării și electricizării pulberii care aderă la suprafețele de lucru.




În brevetul **US 3739048 A [2]** este prezentată o metodă de comprimare a pulberilor utilizând un material auxiliar, numit agent de spumare, material care este îndepărtat prin vaporizare ulterioară. Prin această tehnică se elimină dezavantajul pe care îl prezintă pulberile fine în timpul manipulării și procesului de matrițare. De asemenea se arată că comprimarea pulberilor fine produce piese cu variații mari ale distribuției și densității materialelor constituente, iar prin utilizarea agentului se formează granule mai mari care se matrițează mult mai ușor.

În brevetul **US 3885026 A [3]** se prezintă un procedeu prin care se pot crea tablete poroase din pulberi fine, iar dezavantajul friabilității acestora după extragerea din matriță este eliminat prin adăugarea unor adjuvanți solizi, inerti față de substanța activă și care, ulterior, se îndepărtează prin sublimare în vid. În descrierea brevetului este prezentată o metodă de preparare a adjuvantului pe baza unei soluții de polietilenglicol dizolvat în alcool, la care se adaugă substanțele active și o cantitate precizată de uretan. După comprimare, tabletele obținute sunt supuse unui proces de sublimare a adjuvantului la 110 °C, rezultând tablete cu o structură poroasă.

În brevetul **US 3175521 A [4]** se prezintă un aparat pentru producerea prin ștanțare a unor comprimate utilizând compresia din două direcții. Se prezintă o soluție în care lungimea și cursa poansonelor de ștanțare este bine determinată în raport cu diametrul și înălțimea tabletelor obținute.

În brevetul **US 5407339 A [5]** se prezintă o mașină pentru matrițarea tabletelor farmaceutice cu un număr de 4 posturi de lucru. Mașina este rotativă și este antrenată de un motor și un mecanism intermitent care poziționează și blochează fiecare post al matriței în poziție aliniată față de sistemele de alimentare care sunt fixe. Pulberea este preparată în stare semi umedă și este introdusă în matrițe prin intermediul unui furtun flexibil conectat la un dozator pneumatic.

Prezenta invenție propune rezolvarea problemelor privind manipularea și matrițarea catalizatorilor care au un diametru mic în raport cu lungimea lor, prin utilizarea unei metode noi de alimentare/încărcare a matrițelor. În plus, dispozitivul este prevăzut cu trei posturi de încărcare și matrițare simultană și poate



fi scalat la un număr mai mare de posturi și automatizat, astfel încât să poată fi utilizat la producerea unor cantități mari de catalizatori.

Avantajele pe care le propune prezenta invenție sunt legate de posibilitatea de a elimina sau limita efectul electrostatic specific teflonului, prin utilizarea unei soluții compuse dintr-un surfactant inert față de materialele care compun catalizatorul, alcool etilic și apă demineralizată. De asemenea, metoda de încărcare prin impuls este rapidă și permite umplerea simultană a cilindrilor matriței, comprimarea catalizatorilor și evacuarea acestora rapid. Un alt avantaj îl reprezintă posibilitatea de reprocessare a pulberii rămase de la operațiuni anterioare, pulbere care are tendința de aglomerare și fibrozare sub forma unor granule mari, sub solicitări mecanice repetate. De asemenea, o parte din pulbere se tasează la partea frontala a cilindrilor, când aceștia sunt introduși în stratul de pulbere.

În ceea ce urmează se prezintă un exemplu de realizare:

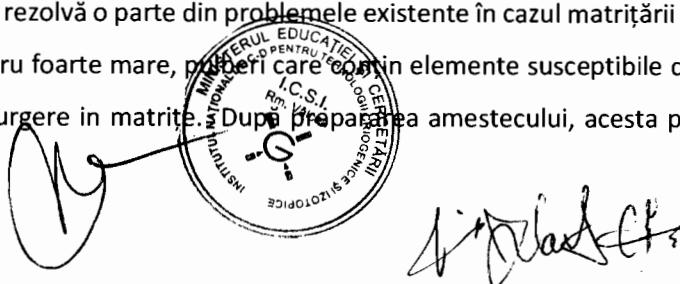
Amestecul uscat format din pulberea de cărbune impregnat cu platină și teflon este umectat cu o soluție formată dintr-un surfactant, un alcool și apă demineralizată. Soluția de umectare are în compoziție 5-15% (raport volumic) surfactant, 5-15% (raport volumic) alcool etilic și apă. Surfactantul se utilizează pentru a modifica temporar caracterul hidrofob al pulberii pentru ca aceasta să poată fi amestecată cu apă. Surfactantul este îndepărtat la etapa de sinterizarea la temperaturi înalte a catalizatorului (această etapă nu face obiectul prezentei invenții). Alcoolul etilic este utilizat pentru a permite dizolvarea surfactantului în apă deoarece acesta are tendința de a forma un gel vâscos în contact cu apă. Alcoolul etilic se elimină din amestecul final prin evaporare.

Prepararea soluției de umectare este făcută în următorii pași:

- peste o cantitate precisă de apă demineralizată se toarnă cantitatea de surfactant.
- se amestecă câteva minute soluția până apar formațiuni gelificate
- se adaugă alcoolul etilic pur și se amestecă până când tot gelul este dizolvat, iar soluția este transparentă și fluidă

Prepararea materialului pentru matrițare se face prin amestecarea pulberii cu soluție de umectare. Amestecul se omogenizează ușor până se obține o pasta vâscoasă care conține bule fine de surfactant în masa sa și formează o spumă la suprafață. Înainte de a fi utilizată la obținerea granulelor de catalizator, pasta se lasă 24 ore la o temperatură mai mică de 19 grade, într-o nișă ventilată pentru a permite evaporarea alcoolului și a permite o umectare uniformă în întreaga masă de pulbere.

Invenția pe care o propunem rezolvă o parte din problemele existente în cazul matrițării unor pulberi fine, cu un raport lungime-diametru foarte mare, pulberi care conțin elemente susceptibile de a se electriză și de a îngreuna procesul de curgere în matrițe. După prepararea amestecului, acesta poate fi umezit cu



ușurință, fenomenele electrostatice și de separare sunt eliminate, forțele de frecare ale pulberii la contactul cu suprafețele metalice sunt reduse.

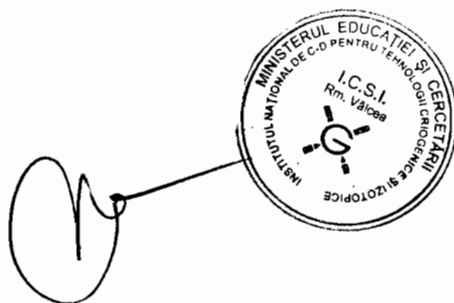
În Figura 1 este prezentat desenul conceptual al dispozitivului de matrițare.

Dispozitivul propus este compus din 3 cilindri calibrați, cu diametrul interior 3.5 mm (1), care sunt imersați cu o anumită viteză în stratul de pulbere (2). Pulberea este omogenizată și afânată în tava (3) cu ajutorul unui pieptene metalic (4) și are o înălțime controlată prin reglarea poziției racletei (5). Dispozitivul are în componență trei poansoane (6) care se deplasează în interiorul cilindrilor și comprimă pulberea încărcată în cilindri, după care continuă cursa până la evacuarea catalizatorilor comprimați (7). Având o înălțime inițială egală, dată de lungimea cilindrilor, lungimea finală a celor trei comprimate este egală, rezultând seturi de catalizatori uniformi din punct de vedere dimensional și morfologic.

Funcționarea dispozitivului, conform invenției este secvențială după cum urmează:

- a- Pulberea, preparată conform metodei descrise în prezenta invenție, este introdusă în tavă
- b- Se face afânarea și nivelarea pulberii în tava cu ajutorul pieptenului metalic și al racletei până se obține un strat uniform
- c- Se introduc simultan cei 3 cilindri calibrați în stratul de pulbere, cu mișcări scurte și repetate, până când pulberea care intră din partea inferioară se deversează prin capătul superior al cilindrilor.
- d- Se mențin cilindrii în contact cu tava, iar cu ajutorul unei lamele se curăță surplusul de pulbere de la capătul superior al cilindrilor
- e- Se introduc poansoanele în cilindri și se comprimă cu ajutorul unei greutăți bine stabilite.
- f- Se ridică dispozitivul din tavă și se continuă cursa poansoanelor până la evacuarea comprimatelor pe o tavă de colectare, aceștia urmând a fi supuși unui tratament suplimentar de uscare și sinterizare, etapă în care surfactantul este vaporizat și evacuat din catalizator.
- g- Se reia procesul conform punctelor a-f.

Cu ajutorul dispozitivului propus în prezenta invenție, în varianta manuală se pot realiza un număr de aproximativ 600 de comprimate pe ora, adică aproximativ 200 g/ora. De asemenea, toate etapele de matrițare se pot grupa și automatiza într-o mașină de matrițat automată, de la faza de alimentare cu pulbere preparată anterior, dozarea, amestecarea, omogenizarea, comprimarea și reprocesarea pulberii rezultate din prelucrările anterioare.



Handwritten signature.




**BIBLIOGRAFIE:**

- [1] Brevet RSR Nr.147684/1994, Procedeu de preparare a catalizatorilor hidrofobi
- [2] US Patent 3739048A, Method of granulating powder
- [3] US Patent 3885026A, Preparation of porous tablets
- [4] US Patent 3175521A, Apparatus for punching miniature tablets
- [5] US Patent 5407339A, Triturate tablet machine
- [6] Modelling of Dosator Filling and Discharge Oscar Andres, Angulo Pinzon, University of Greenwich, 2012
- [7] DuPont™ Teflon® AF, Amorphous Fluoroplastic Resin Processing and Use



**REVENICĂRI:**

- 1- **Procedeu de matrițare/ formare a catalizatorilor hidrofobi de tipul platinei pe cărbune și teflon, caracterizat prin aceea că înainte de matrițare mixtura (amestecul) de materii prime este umectată cu o soluție specială și omogenizată corespunzător și **dispozitiv de matrițare, cu productivitate ridicată, caracterizat prin aceea că** este constituit din minim trei posturi de matrițare simultană și este alimentat prin inerție atunci când este imersat în stratul de pulbere.**
- 2- **Procedeu de matrițare/ formare a catalizatorilor hidrofobi de tipul platinei pe cărbune și teflon, conform revendicării (1) caracterizat prin aceea că** înainte de etapa de matrițare/formare, mixtura de materii prime este tratată cu o soluție surfactantă ce conține: 5-15% surfactant, 5-15% alcool etilic și apă demineralizată, prin care efectul electrostatic al mixturii uscate este temporar eliminat iar forțele de frecare la introducerea pulberii în matrițe sunt reduse.
- 3- **Dispozitiv de matrițare/ formare cu productivitate ridicată, conform revendicării (1) caracterizat prin aceea că** este echipat cu minim trei posturi de matrițare iar alimentarea/umplerea cilindrilor având un raport lungime-diametru foarte mare se face prin inerție, de la partea inferioară, prin imersarea în stratul de pulbere, iar timpul de umplere este foarte mic.



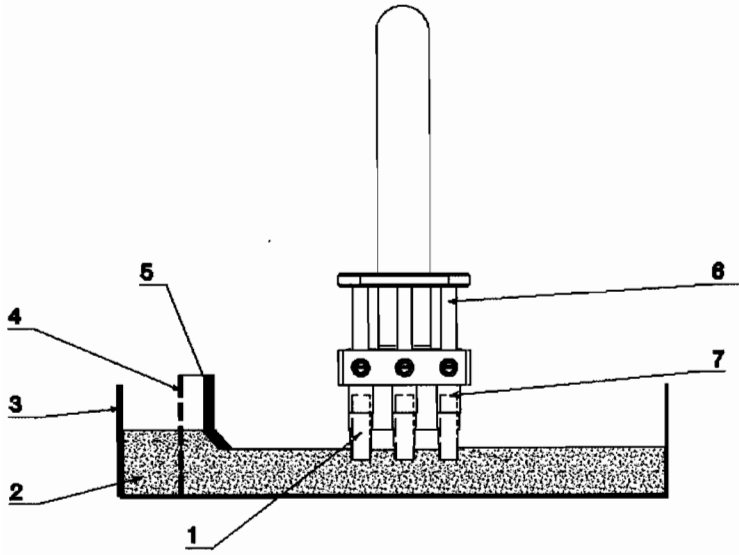
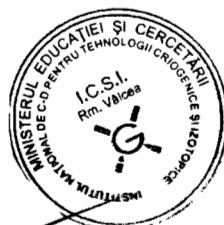


Figura 1



*[Handwritten signature]*

*[Handwritten signature]*