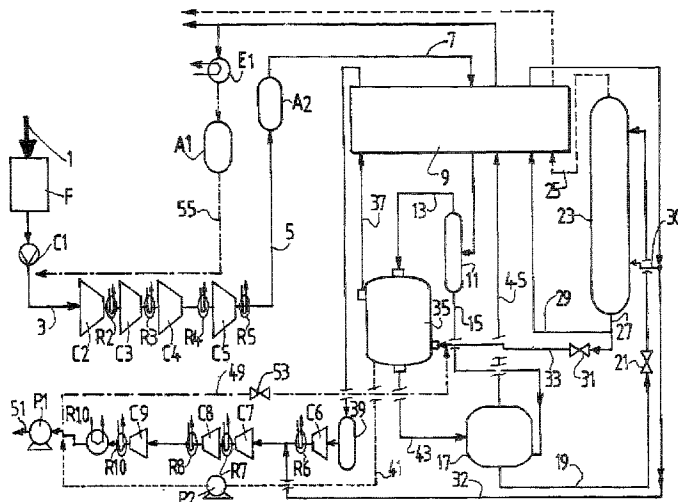




(86) Date de dépôt PCT/PCT Filing Date: 2013/07/10
 (87) Date publication PCT/PCT Publication Date: 2014/01/16
 (45) Date de délivrance/Issue Date: 2022/10/04
 (85) Entrée phase nationale/National Entry: 2014/12/12
 (86) N° demande PCT/PCT Application No.: FR 2013/051649
 (87) N° publication PCT/PCT Publication No.: 2014/009658
 (30) Priorité/Priority: 2012/07/13 (FR1256778)

(51) Cl.Int./Int.Cl. *F25J 3/08* (2006.01),
B01D 3/00 (2006.01), *B01D 5/00* (2006.01),
B01D 53/00 (2006.01), *C01B 32/50* (2017.01),
F25J 3/06 (2006.01)
 (72) Inventeurs/Inventors:
 BRIGLIA, ALAIN, FR;
 DARDE, ARTHUR, FR
 (73) Propriétaire/Owner:
 L'AIR LIQUIDE, SOCIETE ANONYME POUR L'ETUDE
 ET L'EXPLOITATION DES PROCEDES GEORGES
 CLAUDE, FR
 (74) Agent: ROBIC

(54) Titre : PROCÉDE ET APPAREIL DE PURIFICATION D'UN MÉLANGE RICHE EN DIOXYDE DE CARBONE A BASSE TEMPERATURE
 (54) Title: METHOD AND APPARATUS FOR PURIFYING A CARBON DIOXIDE-RICH MIXTURE AT A LOW TEMPERATURE



(57) Abrégé/Abstract:

Dans un procédé de purification d'un mélange contenant du dioxyde de carbone à basse température pour produire un fluide riche en dioxyde de carbone, le mélange riche en dioxyde de carbone est refroidi dans un premier échangeur de chaleur en plaques d'aluminium brasées(9), constitué de tapis d'ondes séparés par des plaques, au moins un fluide (19) dérivé du mélange refroidi est envoyé à une étape de purification comprenant une étape de distillation et/ou au moins deux étapes successives de condensation partielle,l'étape de purification produit un gaz appauvri en dioxyde de carbone (25) qui se réchauffe dans le premier échangeur,l'étape de purification produit un liquide riche en dioxyde de carbone (33) qui est détendu puis envoyé à un deuxième échangeur de chaleur (35) où il est réchauffé au moyen d'un fluide du procédé(13), l'échangeur effectuant un échange de chaleur indirect uniquement entre le liquide riche en dioxyde de carbone et le fluide du procédé, le liquide riche en dioxyde de carbone se vaporise au moins partiellement dans le deuxième échangeur et le gaz vaporisé formé se réchauffe dans le premier échangeur pour former un gaz riche en dioxyde de carbone(37), pouvant être le produit final du procédé.

(12) DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITÉ DE COOPÉRATION EN MATIÈRE DE BREVETS (PCT)

(19) Organisation Mondiale de la
Propriété Intellectuelle
Bureau international(10) Numéro de publication internationale
WO 2014/009658 A2(43) Date de la publication internationale
16 janvier 2014 (16.01.2014)

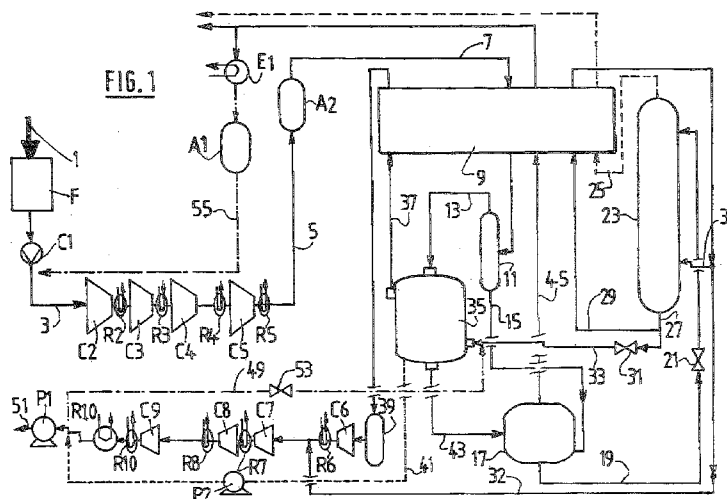
WIPO | PCT

- (51) Classification internationale des brevets : Non classée
- (21) Numéro de la demande internationale : PCT/FR2013/051649
- (22) Date de dépôt international : 10 juillet 2013 (10.07.2013)
- (25) Langue de dépôt : français
- (26) Langue de publication : français
- (30) Données relatives à la priorité : 1256778 13 juillet 2012 (13.07.2012) FR
- (71) Déposant : L'AIR LIQUIDE, SOCIETE ANONYME POUR L'ETUDE ET L'EXPLOITATION DES PROCEDES GEORGES CLAUDE [FR/FR]; 75, Quai d'Orsay, F-75007 Paris (FR).
- (72) Inventeurs : BRIGLIA, Alain; Les Epineaux, F-49140 Corze (FR). DARDE, Arthur; 32 boulevard Saint-Marcel, F-75005 Paris (FR).
- (74) Mandataire : MERCEY, Fiona; L'AIR LIQUIDE S.A, Direction de la Propriété Intellectuelle, 75, Quai d'Orsay, F-75321 Paris Cedex 07 (FR).
- (81) États désignés (sauf indication contraire, pour tout titre de protection nationale disponible) : AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) États désignés (sauf indication contraire, pour tout titre de protection régionale disponible) : ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasien (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), européen (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM,

[Suite sur la page suivante]

(54) Title : METHOD AND APPARATUS FOR PURIFYING A CARBON DIOXIDE-RICH MIXTURE AT A LOW TEMPERATURE

(54) Titre : PROCÉDÉ ET APPAREIL DE PURIFICATION D'UN MÉLANGE RICHE EN DIOXYDE DE CARBONE À BASSE TEMPÉRATURE



(57) Abstract : In a method for purifying a mixture containing carbon dioxide at a low temperature in order to produce a carbon-dioxide rich fluid, the carbon dioxide-rich mixture is cooled in a first brazed aluminium plate-fin heat exchanger (9), consisting of wave mats separated by plates, at least one fluid (19) derived from the cooled mixture is sent to a purification step comprising a distillation step and/or at least two successive partial condensation steps, the purification step produces a carbon dioxide-depleted gas (25) which heats up again in the first exchanger, the purification step produces a carbon-dioxide rich liquid (33) which is expanded, then sent to a second heat exchanger (35) where it is heated by means of a fluid of the method (13), the exchanger carrying out an indirect heat exchange only between the carbon dioxide-rich liquid and the fluid of the method, the carbon dioxide-rich liquid at least partially vaporises in the second exchanger and the vaporised gas formed heats up again in the first exchanger to form a carbon dioxide-rich gas (37) which can be the end product of the method.

(57) Abrégé :

[Suite sur la page suivante]



WO 2014/009658 A2

WO 2014/009658 A2 

TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, **Publiée :**
KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

— *sans rapport de recherche internationale, sera republiée
dès réception de ce rapport (règle 48.2.g)*

Déclarations en vertu de la règle 4.17 :

— *relative à la qualité d'inventeur (règle 4.17.iv)*

Dans un procédé de purification d'un mélange contenant du dioxyde de carbone à basse température pour produire un fluide riche en dioxyde de carbone, le mélange riche en dioxyde de carbone est refroidi dans un premier échangeur de chaleur en plaques d'aluminium brasées(9), constitué de tapis d'ondes séparés par des plaques, au moins un fluide (19) dérivé du mélange refroidi est envoyé à une étape de purification comprenant une étape de distillation et/ou au moins deux étapes successives de condensation partielle, l'étape de purification produit un gaz appauvri en dioxyde de carbone (25) qui se réchauffe dans le premier échangeur, l'étape de purification produit un liquide riche en dioxyde de carbone (33) qui est détendu puis envoyé à un deuxième échangeur de chaleur (35) où il est réchauffé au moyen d'un fluide du procédé(13), l'échangeur effectuant un échange de chaleur indirect uniquement entre le liquide riche en dioxyde de carbone et le fluide du procédé, le liquide riche en dioxyde de carbone se vaporise au moins partiellement dans le deuxième échangeur et le gaz vaporisé formé se réchauffe dans le premier échangeur pour former un gaz riche en dioxyde de carbone(37), pouvant être le produit final du procédé.

Procédé et appareil de purification d'un mélange riche en dioxyde de carbone à basse température

5 La présente invention est relative à un procédé et à un appareil de purification d'un mélange riche en dioxyde de carbone à basse température.

Une température basse est en dessous de 0°C, de préférence en dessous de -40°C.

Un mélange riche en dioxyde de carbone contient au moins 60% mol. de
10 dioxyde de carbone, voire au moins 80% mol. de dioxyde de carbone.

Le reste du mélange peut contenir un ou plusieurs des composants suivants : de l'oxygène, de l'azote, de l'argon, de l'oxyde d'azote (NO, NO₂ ou N₂O), du monoxyde de carbone, de l'hydrogène, du mercure.

La purification peut être réalisée par une ou plusieurs étapes successives
15 de condensation partielle et/ou par distillation.

US-A-2010/0326134 et WO-A-2012/030223 décrivent tous deux un procédé de purification d'un mélange contenant du dioxyde de carbone à basse température pour produire un fluide riche en dioxyde de carbone sauf qu'ils ne mentionnent pas la technologie utilisée pour le premier échangeur de chaleur.

20 Dans l'état de l'art, le procédé utilisé pour purifier du CO₂ en grande quantité consiste à refroidir le mélange gazeux riche en CO₂ jusqu'à la température la plus proche possible du gel du CO₂ (-56,5°C) afin de condenser le maximum de CO₂. Le froid est apporté en général par la vaporisation du CO₂ récupéré et le réchauffage des différents fluides, par exemple le CO₂ vaporisé, les
25 gaz incondensables, ou des recyclages divers. Une intégration thermique poussée permet de réduire la consommation énergétique du procédé. Ainsi, les échangeurs à plaques en aluminium brasé sont particulièrement bien adaptés pour refroidir le mélange gazeux riche en CO₂ car ils permettent des échanges thermiques entre de nombreux fluides (6 est un chiffre courant) avec un faible
30 écart de température entre les fluides chauds et les fluides froids (une approche de 2°C est une pratique courante aussi).

La température la plus froide de l'échange est fournie par la vaporisation de CO₂ proche du point triple. Cette vaporisation présente ainsi le risque de faire

apparaître une phase de CO₂ solide si la pression chute à la valeur du point triple. En effet, en deçà de la pression du point triple (5,185 bars a), le CO₂ liquide ne peut exister et il se transforme alors en une phase solide (pour environ 60% des molécules) et une phase gazeuse. La vaporisation du liquide fournit le froid nécessaire pour solidifier le reste.

Cette phase solide, qui peut apparaître à l'occasion d'une fluctuation de la pression du gaz vaporisé, par exemple si le compresseur qui le récupère aspire plus de molécules qu'il n'en est vaporisé dans l'échangeur, peut boucher l'échangeur et l'endommager lors des phases de réchauffage. C'est une limitation pour l'utilisation d'un échangeur en aluminium brasé.

Il y a plusieurs façons pour réduire le risque d'endommager l'unité:

1. Opérer à plus haute pression, c'est-à-dire réchauffer le bout froid, et donc condenser moins de CO₂ dans le CPU. Cela va augmenter le coût énergétique du CO₂.

2. Élever la position du pot d'alimentation en liquide au-dessus de l'échangeur, de manière à s'assurer que la pression du liquide dans l'échangeur soit toujours supérieure à la pression du liquide dans le pot grâce à la hauteur hydrostatique et donc qu'il ne peut se former de solide dans l'échangeur. Cette solution, plus élégante car elle évite dans presque tous les cas la formation de solide dans l'échangeur (ce que ne permet pas le point 1), dégrade tout de même l'efficacité énergétique car la vaporisation de CO₂ va s'effectuer à plus haute pression (la hauteur hydrostatique) et donc plus haute température.

L'invention proposée ici vise à permettre d'opérer au plus proche du point triple, voire même avec le CO₂ liquide au point triple.

Selon un objet de l'invention, il est prévu un procédé de purification d'un mélange contenant du dioxyde de carbone à basse température pour produire un fluide riche en dioxyde de carbone comprenant les étapes de:

i) refroidir le mélange contenant du dioxyde de carbone dans un premier échangeur de chaleur en plaques d'aluminium brasées, constitué de tapis d'ondes séparés par des plaques,

ii) envoyer le mélange refroidi à une étape de purification comprenant au moins deux étapes successives de condensation partielle dans un premier et un deuxième séparateur de phases et éventuellement une étape de distillation,

iii) envoyer un gaz appauvri en dioxyde de carbone produit par l'étape de purification dans le premier échangeur pour se faire réchauffer,

iv) produire par l'étape de purification un liquide riche en dioxyde de carbone, le détendre puis l'envoyer à un deuxième échangeur de chaleur, l'y réchauffer au moyen d'un fluide du procédé, le deuxième échangeur effectuant un échange de chaleur indirect uniquement entre le liquide riche en dioxyde de carbone et le fluide du procédé, et

v) vaporiser le liquide riche en dioxyde de carbone au moins partiellement dans le deuxième échangeur et envoyer le gaz vaporisé se faire réchauffer dans le premier échangeur pour former un gaz riche en dioxyde de carbone ;

dans lequel le fluide du procédé qui chauffe le liquide riche en dioxyde de carbone dans le deuxième échangeur est constitué par le gaz du premier séparateur de phases et le procédé comprend les étapes de condenser le mélange refroidi au moins partiellement dans le premier échangeur et envoyer le mélange condensé au premier séparateur de phases et envoyer le gaz du premier séparateur de phases au deuxième échangeur et l'y condenser au moins partiellement pour former du liquide condensé ; et

dans lequel le deuxième échangeur est un échangeur à tubes et à calandre, le procédé comprenant les étapes d'envoyer le liquide riche en dioxyde de carbone se réchauffer dans la calandre et envoyer le gaz du premier séparateur de phases se refroidir dans les tubes.

Selon d'autres aspects facultatifs :

- le gaz riche en dioxyde de carbone est comprimé et condensé pour former un liquide riche en dioxyde de carbone qui est un produit final du procédé.

- le liquide du premier séparateur de phases est détendu et envoyé à un deuxième séparateur de phases.

- le liquide condensé est envoyé à un (au) deuxième séparateur de phases.

- le liquide du deuxième séparateur de phases est détendu et est envoyé en tête d'une colonne de distillation où s'effectue la distillation, pour alimenter la colonne de distillation.

- le gaz du deuxième séparateur de phases se réchauffe dans le premier échangeur.

- le liquide du premier séparateur de phases est détendu et envoyé en tête d'une colonne de distillation où s'effectue la distillation, pour alimenter la colonne de distillation.

- le mélange refroidi se condense au moins partiellement dans le premier échangeur et est envoyé à un premier séparateur de phases, le liquide du premier séparateur de phases étant détendu et envoyé à un deuxième séparateur de phases, le gaz du premier séparateur de phases est envoyé au deuxième échangeur où il se condense pour former du liquide condensé, le liquide condensé est envoyé au deuxième séparateur de phases et le liquide du deuxième séparateur de phases est envoyé en tête de la colonne de distillation pour alimenter la colonne de distillation

- le deuxième échangeur est un échangeur à tubes et à calandre, le liquide riche en dioxyde de carbone étant envoyé se réchauffer dans le calandre et le fluide du procédé étant envoyé se refroidir dans les tubes.

- un deuxième liquide riche en dioxyde de carbone est produit par l'étape de purification et envoyé au premier échangeur sans passer par le deuxième échangeur et de préférence sans avoir été détendu, ce deuxième liquide se vaporise dans le premier échangeur pour former un gaz riche en dioxyde de carbone.

- un liquide de purge du deuxième échangeur est vaporisé pour fournir des frigories au procédé.

- le liquide riche en dioxyde de carbone est envoyé au deuxième échangeur après détente à une pression correspondant à celle du point triple du dioxyde de carbone et à une température égale à son point triple.

- la densité de la phase liquide riche en dioxyde de carbone utilisé dans le deuxième échangeur pour refroidir le mélange gazeux riche en dioxyde de carbone est comprise entre 1171 kg/m^3 et 1562 kg/m^3 .

Selon un autre objet de l'invention, il est prévu un appareil de purification d'un mélange contenant du dioxyde de carbone à basse température pour produire un fluide riche en dioxyde de carbone comprenant un premier échangeur de chaleur en plaques d'aluminium brasées, constitué de tapis d'ondes séparés par des plaques, un deuxième échangeur, à tubes et à calandre, capable de permettre un échange de chaleur indirect entre seulement deux fluides, une unité de purification comprenant au moins deux

séparateurs de phases reliés en série dont un premier séparateur de phases et un deuxième séparateur de phases et éventuellement au moins une colonne de distillation, une conduite pour envoyer un mélange contenant du dioxyde de carbone se refroidir dans le premier échangeur, une conduite pour envoyer le mélange refroidi ou au moins un fluide dérivé du mélange refroidi à l'unité de purification, une conduite pour sortir de l'unité de purification un gaz appauvri en dioxyde de carbone reliée au premier échangeur, une conduite pour sortir de l'unité de purification un liquide riche en dioxyde de carbone reliée à une vanne, la vanne étant reliée au deuxième échangeur de chaleur et une conduite pour envoyer le gaz du premier séparateur de phases aux tubes du deuxième échangeur pour vaporiser le liquide riche en dioxyde de carbone dans le calandre du deuxième échangeur et une conduite pour envoyer le gaz produit par la vaporisation du liquide riche en dioxyde de carbone dans le deuxième échangeur au premier échangeur pour se réchauffer, et des moyens pour envoyer le mélange refroidi du premier échangeur au premier séparateur de phases.

Il peut y avoir des moyens pour envoyer un liquide du premier et/ou d'un deuxième séparateur de phases à la colonne de distillation.

Selon d'autres objets facultatifs, l'appareil comprend :

- un compresseur pour comprimer le gaz riche en dioxyde de carbone et un refroidisseur pour condenser le gaz comprimé pour former un liquide riche en dioxyde de carbone qui est un produit final du procédé.
- le fluide du procédé qui chauffe le liquide riche en dioxyde de carbone dans le deuxième échangeur est constitué par un gaz dérivé du mélange refroidi dans le premier échangeur.
- un deuxième séparateur de phases, des moyens pour détendre le liquide du premier séparateur de phases et pour l'envoyer au deuxième séparateur de phases, des moyens pour envoyer le gaz du premier séparateur de phases au deuxième échangeur où il se condense pour former du liquide condensé, des moyens pour envoyer le liquide condensé au deuxième séparateur de phases et des moyens pour envoyer le liquide du deuxième séparateur de phases en tête de la colonne de distillation pour alimenter la colonne de distillation.

- une conduite pour envoyer le gaz du deuxième séparateur de phases se réchauffer dans le premier échangeur.
- le deuxième échangeur est un échangeur à tubes et à calandre, des moyens pour envoyer le liquide riche en dioxyde de carbone se réchauffer dans la calandre et des moyens pour envoyer le fluide du procédé se refroidir dans les tubes.
- des moyens pour envoyer un deuxième liquide riche en dioxyde de carbone produit par l'étape de purification au premier échangeur sans passer par le deuxième échangeur et de préférence sans avoir été détendu,
- des moyens pour envoyer un liquide de purge du deuxième échangeur se vaporiser dans un échangeur pour fournir des frigories au procédé.

Le principe selon l'invention est de revenir à un échangeur permettant un échange de chaleur indirect entre seulement deux fluides, par exemple un échangeur « tubes-calandre » où le CO₂ se vaporise dans la calandre et le flux à condenser partiellement se trouve dans les tubes. Le liquide bouillant se trouvant dans une calandre, il n'est plus à craindre que l'apparition d'une phase solide bouche les passages et conduise à des surpressions locales lorsque du solide se sublime entre deux bouchons de glace.

Il est donc possible d'opérer le pot à la pression du point triple pour le liquide bouillant, le CO₂ solide qui apparaît ponctuellement fondra lorsque la pression remontera au-dessus du point triple ou lorsque le liquide alimentant l'échangeur sera un peu surchauffé.

Les impuretés éventuellement présentes dans le CO₂ liquide vaporisé seront évacuées de l'échangeur :

- Soit dans la phase gazeuse pour les plus légères.
- Soit dans une purge liquide pour les plus lourdes.

Cette purge liquide sera évacuée de l'échangeur.

L'invention sera décrite en plus détail en se référant aux figures.

Brève description des figures

Les Figures 1 à 4 sont des schémas illustrant divers modes de réalisation du procédé selon l'invention.

Dans la Figure 1, un mélange 1 contenant au moins 60% mol. de dioxyde de carbone, voire au moins 80% mol. de dioxyde de carbone.

Le reste du mélange 1 peut contenir un ou plusieurs des composants suivants : de l'oxygène, de l'azote, de l'argon, de l'oxyde d'azote (NO, NO₂ ou N₂O), du monoxyde de carbone, de l'hydrogène.

Le mélange est filtré dans un filtre F pour enlever les poussières puis comprimé dans un premier étage de compresseur C1 pour former un débit comprimé 3. Le débit comprimé 3 est comprimé dans un deuxième étage de compression C2, refroidi dans un refroidisseur R2, comprimé dans un troisième étage de compression C3, refroidi dans un refroidisseur R3, comprimé dans un quatrième étage de compression C4, refroidi dans un refroidisseur R4, comprimé dans un cinquième étage de compression C5 et refroidi dans un refroidisseur R5 pour former un débit 5 à entre 6 et 20 bars abs. Ce débit du mélange 5 est épuré en eau dans un lit d'absorbant A2 pour former un débit épuré 7. Le débit épuré 7 est partiellement condensé dans un premier échangeur 9, qui est un échangeur en aluminium constitué par un empilement de tapis d'ondes séparé par des plaques.

Le débit partiellement condensé est envoyé dans un premier séparateur de phases 11. Le gaz formé 13 est envoyé aux tubes d'un deuxième échangeur 35, permettant un échange indirect de chaleur entre seulement deux fluides, du type tubes et calandre. La figure n'illustre pas la multiplicité de tubes où se condense le gaz 13 dérivé du mélange. Le liquide formé 43 est envoyé à un deuxième séparateur de phases 17, où est envoyé également le liquide 15 du premier séparateur de phases 11.

Un gaz 45 du deuxième séparateur de phases 17 se réchauffe dans le premier échangeur de chaleur. Le liquide 19 du deuxième séparateur 17 est détendu dans une vanne 21 et envoyé en tête de la colonne de distillation 23.

Un gaz de tête 25 appauvri en dioxyde de carbone mais enrichi en au moins une des impuretés (de l'oxygène, de l'azote, de l'argon, de l'oxyde d'azote (NO, NO₂ ou N₂O), du monoxyde de carbone, de l'hydrogène) se réchauffe dans le premier échangeur de chaleur 9.

Un liquide de cuve 27 est soutiré en cuve de la colonne et contient au moins 80% mol de dioxyde de carbone. Le liquide 27 est divisé en deux, un débit 29 se vaporise dans le premier échangeur de chaleur 9 sans avoir été détendu. Une partie 30 du gaz formé est envoyée en cuve de la colonne de distillation. Le reste 32 fait partie du produit du procédé.

Le liquide 33 provenant de la cuve est détendu dans une vanne 31 jusqu'à une pression équivalente au point triple du dioxyde de carbone qu'il contient. Le liquide est ensuite envoyé à la calandre du deuxième échangeur 35 où il se vaporise partiellement. Le gaz 37 formé est réchauffé dans le premier échangeur 9 et envoyé à une capacité intermédiaire pour absorber les variations de pression 39. De là il est comprimé par un étage de compression C6 et refroidi dans un refroidisseur R6 avant d'être mélangé avec le liquide vaporisé 32. Le gaz ainsi formé est comprimé par les étages C7, C8, C9 et refroidi par les refroidisseurs R7, R8, R9, R10 afin de former un gaz condensé. Ce gaz condensé est mélangé avec la purge liquide 41 du deuxième échangeur et en partie pompé par une pompe P1 pour former un produit liquide sous pression 51, à au moins 50 bars. La purge liquide 41 a précédemment été pompée dans une pompe P2. Une partie 49 du liquide sert de liquide de cycle, est détendu au point triple dans la vanne 53 et envoyé au deuxième échangeur 35, mélangé avec le débit 33.

Une partie du gaz 45 est réchauffé dans un échangeur E1 et sert à régénérer le lit d'adsorbant A1 qui est en régénération. Le débit 55 ayant servi à la régénération est mélange avec le débit 3 en aval de l'étage C1.

Il est bien évidemment possible de vaporiser le liquide 33 dans le deuxième échangeur 35 par échange de chaleur indirect avec un autre fluide du procédé, par exemple une partie du liquide de cuve vaporisé.

Le liquide de purge 41 est pompé par la pompe P2 jusqu'à la pression où le reste du CO₂ est condensé (contre de l'air ou de l'eau dans le refroidisseur R10) vers 80 bars a) afin d'y être mélangée.

Un inconvénient est que ce liquide froid représente une importante perte thermique pour la boîte froide, l'avantage est que ce fluide ne transitant pas par le compresseur de produit, ce dernier est de taille réduite

Il est possible de réchauffer le liquide 41 ainsi pompé dans la pompe P2 avant de le mélanger avec le CO₂ liquide à température ambiante afin de récupérer les frigories de la chaleur sensible de la purge, par exemple pour réduire l'énergie de compression du CO₂ produit via l'échangeur 9 dans la Figure 2.

Ainsi le liquide pompé sert de fluide frigorigène dans un refroidisseur E10 entre le refroidisseur R8 et l'étage de compression C9.

Une autre variante va produire de l'eau glacée dans l'échangeur E10 ou toute autre valorisation envisageable de ce froid

Dans la Figure 3, le liquide de purge 41 est pressurisé dans une pompe P3 jusqu'à une pression supérieure à laquelle le CO₂, produit par la ou les condensations partielles et/ou la distillation, est vaporisé. La purge 41 est alors mélangée avec ce CO₂ liquide 29 et elle se vaporise dans le flux à plus haute pression. Puisque cette vaporisation s'effectue dans l'échangeur principal en aluminium brasé 9, la purge peut se vaporiser intégralement et il n'y alors plus de perte frigorifique et on peut annuler le CO₂ recyclé 49 pour apporter des frigories des figures précédentes.

Dans la Figure 4, le débit de purge 41 est vaporisée à l'extérieur de la boîte froide dans un échangeur E4 afin de produire de l'eau glacée 55. Sinon, le débit 41 peut servir à pré-refroidir le gaz d'alimentation de la boîte froide ou refroidir le CO₂ produit ou pour toute autre valorisation du froid contenu. Le gaz ainsi obtenu en vaporisant le liquide 41 peut alors être mis à l'air s'il contient des impuretés que l'on ne souhaite pas valoriser autrement, le gaz pourrait être traité pour réduire la teneur en impuretés (lavage, adsorption, lit catalytique, etc.). Sinon le gaz peut être recyclé à la chaudière ou à l'unité de désulfuration d'où vient le mélange 1 pour réduire la teneur en NOx ou autre teneur en impureté combustible (hydrocarbures, alcool, etc.) ou bien utilisé pour toute autre application (récupération des NOx contenus, des hydrocarbures, des alcools, etc.)

La pompe P2, P3 devra pouvoir faire face à des phases solides (CO₂ solide, cristallisation de N₂O₄ ou d'autres impuretés) car tous les éléments lourds devraient s'y concentrer.

Enfin, il faut noter que l'échangeur en aluminium brasé 9, bien que ne refroidissant le gaz d'alimentation que jusqu'à -40°C environ, concentre tous les fluides pouvant permettre de récupérer des frigories afin d'assurer ce premier refroidissement. Ainsi l'utilisation d'un échangeur à deux fluides 35 uniquement pour le bout froid ne nuit pas trop à la performance thermique de l'ensemble. Il conviendra d'arranger convenablement les passages dans l'échangeur afin d'éviter de trop grands écarts thermiques, notamment avec les fluides les plus froids, par exemple le CO₂ à basse pression vaporisé dans l'échangeur « tubes – calandre ». Le principe est de positionner les fluides gazeux froids sur les

extrémités, uniquement en contact (indirectement bien sûr) avec le flux de CO₂ « HP » qui se vaporise. Ce dernier sera le seul fluide en contact (indirect) avec le fluide chaud qui se condense partiellement.

5 Ce point est d'autant plus important pour l'application où il faut éviter d'accumuler du mercure dans cet échangeur. Ainsi il faut éviter que le fluide chaud soit en contact avec des fluides plus froids que le point triple du mercure, soit -38°C. En effet, il pourrait alors localement descendre sous les -38°C et déposer le mercure sous forme solide dans l'échangeur.

10 Dans toutes les figures, la colonne 23 peut être remplacée par une série de séparateurs de phases qui séparent le liquide 19 pour former un gaz 25 appauvri en dioxyde de carbone et un liquide 33 enrichi en dioxyde de carbone.

La colonne 23, l'échangeur 9, les séparateurs de phases 11, 17 et l'échangeur 35 sont contenus à l'intérieur d'une enceinte thermique comme ils opèrent à basse température.

Revendications

1. Un procédé de purification d'un mélange contenant du dioxyde de carbone à basse température pour produire un fluide riche en dioxyde de carbone comprenant
5 les étapes de :

i) refroidir le mélange contenant du dioxyde de carbone dans un premier échangeur de chaleur en plaques d'aluminium brasées, constitué de tapis d'ondes séparés par des plaques,

10 ii) envoyer le mélange refroidi à une étape de purification comprenant au moins deux étapes successives de condensation partielle dans un premier et un deuxième séparateur de phases et éventuellement une étape de distillation ,

iii) envoyer un gaz appauvri en dioxyde de carbone produit par l'étape de purification dans le premier échangeur pour se faire réchauffer,

15 iv) produire par l'étape de purification un liquide riche en dioxyde de carbone, le détendre puis l'envoyer à un deuxième échangeur de chaleur, l'y réchauffer au moyen d'un fluide du procédé, le deuxième échangeur effectuant un échange de chaleur indirect uniquement entre le liquide riche en dioxyde de carbone et le fluide du procédé, et

20 v) vaporiser le liquide riche en dioxyde de carbone au moins partiellement dans le deuxième échangeur et envoyer le gaz vaporisé se faire réchauffer dans le premier échangeur pour former un gaz riche en dioxyde de carbone ;

25 dans lequel le fluide du procédé qui chauffe le liquide riche en dioxyde de carbone dans le deuxième échangeur est constitué par le gaz du premier séparateur de phases et le procédé comprend les étapes de condenser le mélange refroidi au moins partiellement dans le premier échangeur et envoyer le mélange condensé au premier séparateur de phases et envoyer le gaz du premier séparateur de phases au deuxième échangeur et l'y condenser au moins partiellement pour former du liquide condensé ; et

dans lequel le deuxième échangeur est un échangeur à tubes et à calandre, le procédé comprenant les étapes d'envoyer le liquide riche en dioxyde de carbone se réchauffer dans le calandre et envoyer le gaz du premier séparateur de phases se refroidir dans les tubes.

5

2. Le procédé selon la revendication 1, comprenant les étapes de comprimer et de condenser le gaz riche en dioxyde de carbone pour former le fluide riche en dioxyde de carbone qui est un produit final du procédé.

10

3. Le procédé selon la revendication 1 ou 2, comprenant les étapes de détendre le liquide du premier séparateur de phases et de l'envoyer au deuxième séparateur de phases.

15

4. Le procédé selon la revendication 3, comprenant l'étape d'envoyer le liquide condensé au deuxième séparateur de phases.

20

5. Le procédé selon la revendication 3 ou 4, comprenant les étapes de détendre le liquide du deuxième séparateur de phases et de l'envoyer en tête d'une colonne de distillation où s'effectue l'étape de distillation, pour alimenter la colonne de distillation.

25

6. Le procédé selon l'une quelconque des revendications 3 à 5, comprenant l'étape de réchauffer le gaz du deuxième séparateur de phases dans le premier échangeur.

7. Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 6, comprenant les étapes de produire un deuxième liquide riche en dioxyde de carbone par l'étape de purification, de l'envoyer au premier échangeur sans passer par le deuxième

échangeur et de vaporiser ce deuxième liquide dans le premier échangeur pour former un deuxième gaz riche en dioxyde de carbone.

8. Le procédé selon la revendication 7, comprenant l'étape d'envoyer le
5 deuxième liquide riche en dioxyde de carbone au premier échangeur sans avoir été détendu.

9. Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 8, comprenant
l'étape de vaporiser un liquide de purge du deuxième échangeur pour fournir des
10 frigories au procédé.

10. Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 9, comprenant
l'étape d'envoyer le liquide riche en dioxyde de carbone au deuxième échangeur
après détente à une pression correspondant à celle du point triple du dioxyde de
15 carbone et à une température égale à son point triple.

11. Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 10, dans lequel
la densité du liquide riche en dioxyde de carbone utilisé dans le deuxième échangeur
pour refroidir le gaz du premier séparateur de phases est comprise entre 1171 kg/m^3
20 et 1562 kg/m^3 .

12. Un appareil de purification d'un mélange contenant du dioxyde de carbone
à basse température pour produire un fluide riche en dioxyde de carbone comprenant
un premier échangeur de chaleur en plaques d'aluminium brasées, constitué de tapis
25 d'ondes séparés par des plaques, un deuxième échangeur, à tubes et à calandre,
capable de permettre un échange de chaleur indirect entre seulement deux fluides,
une unité de purification comprenant au moins deux séparateurs de phases reliés en
série dont un premier séparateur de phases et un deuxième séparateur de phases et
éventuellement au moins une colonne de distillation, une conduite pour envoyer un

mélange contenant du dioxyde de carbone se refroidir dans le premier échangeur, une conduite pour envoyer le mélange refroidi ou au moins un fluide dérivé du mélange refroidi à l'unité de purification, une conduite pour sortir de l'unité de purification un gaz appauvri en dioxyde de carbone reliée au premier échangeur, une
5 conduite pour sortir de l'unité de purification un liquide riche en dioxyde de carbone reliée à une vanne, la vanne étant reliée au deuxième échangeur de chaleur et une conduite pour envoyer le gaz du premier séparateur de phases aux tubes du deuxième échangeur pour vaporiser le liquide riche en dioxyde de carbone dans le calandre du deuxième échangeur et une conduite pour envoyer le gaz produit par la
10 vaporisation du liquide riche en dioxyde de carbone dans le deuxième échangeur au premier échangeur pour se réchauffer, et des moyens pour envoyer le mélange refroidi du premier échangeur au premier séparateur de phases.

13. L'appareil selon la revendication 12, comprenant des moyens pour
15 envoyer le liquide du premier et/ou du deuxième séparateur de phases à la colonne de distillation.

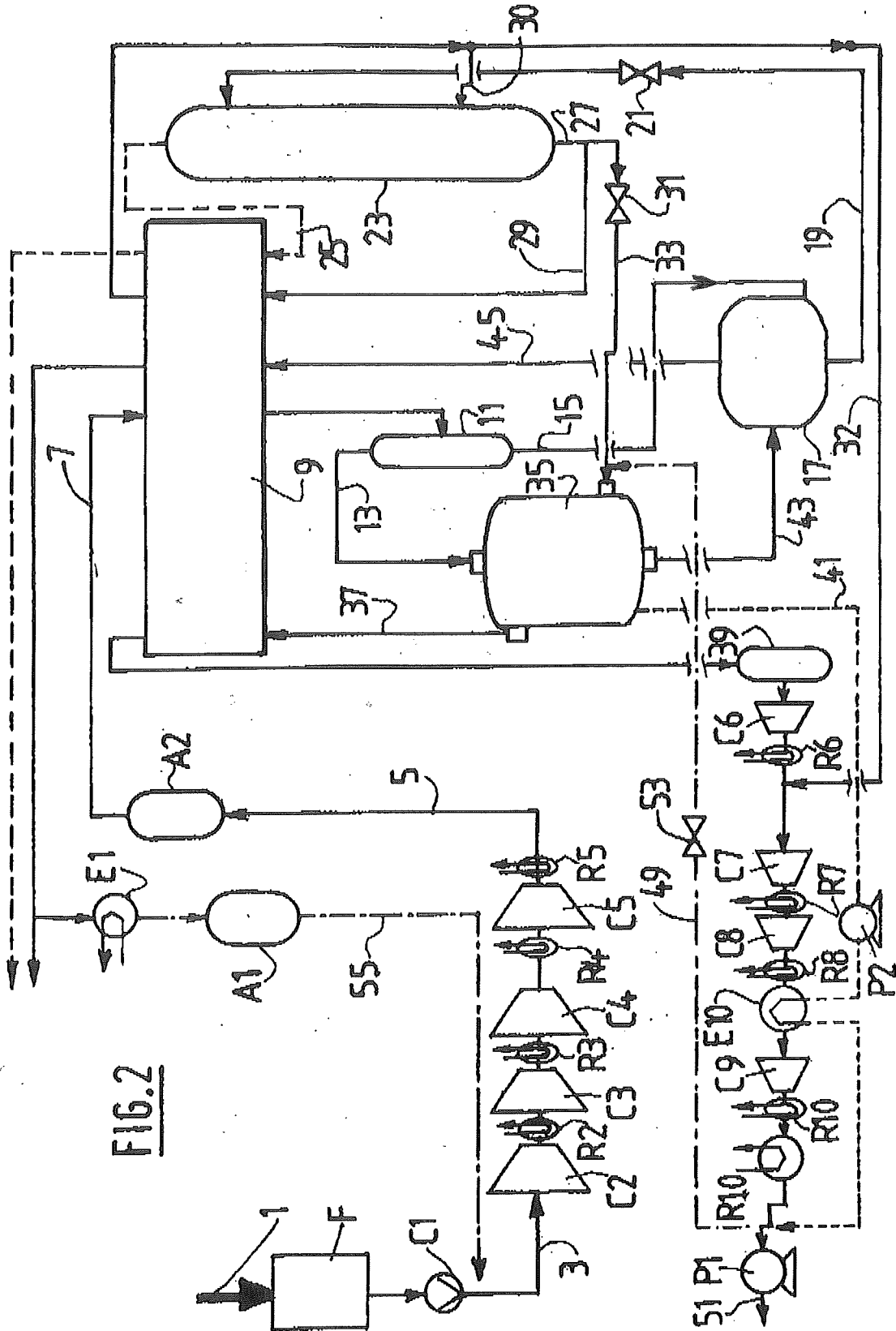


FIG. 2

3/4

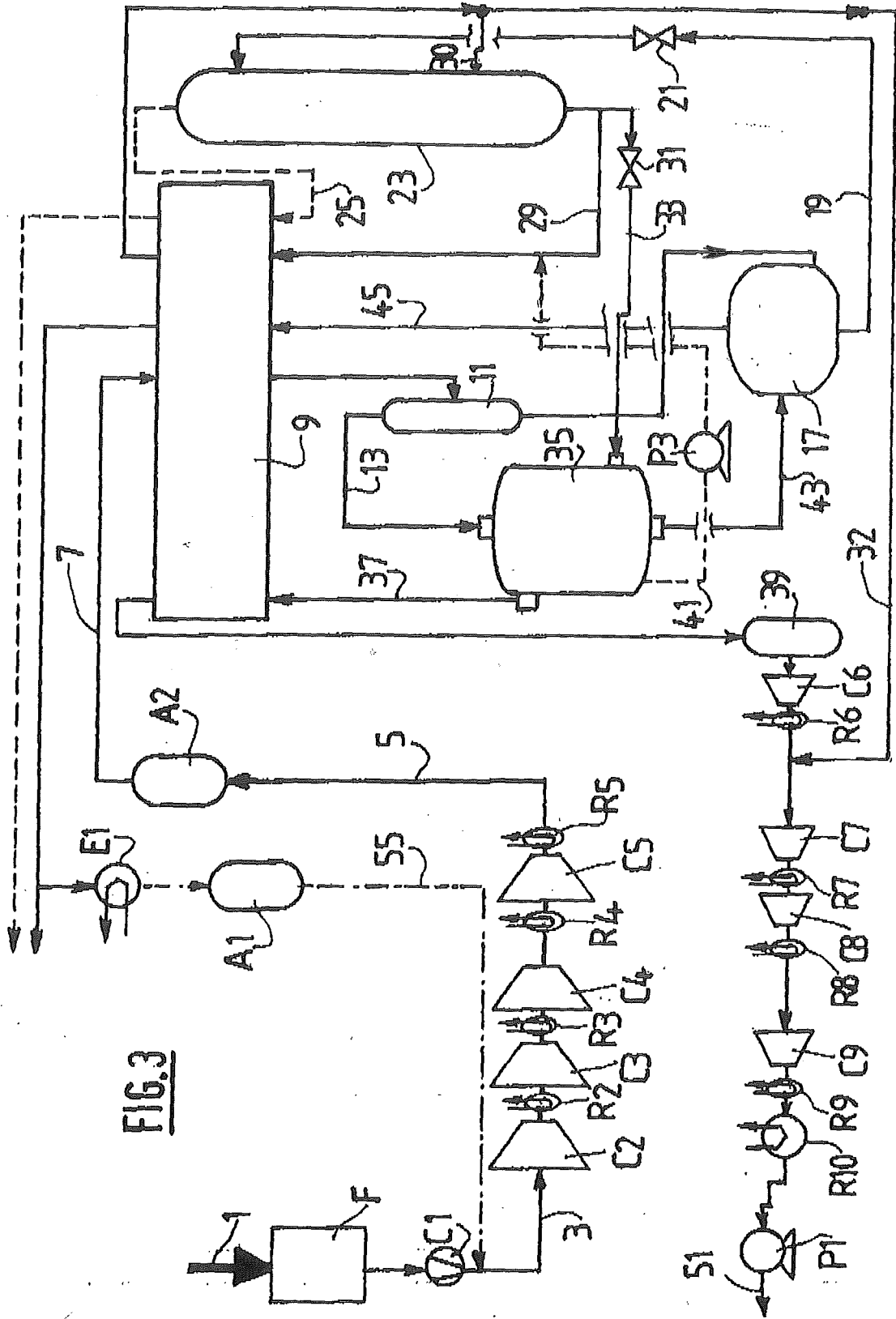


FIG. 3

4/4

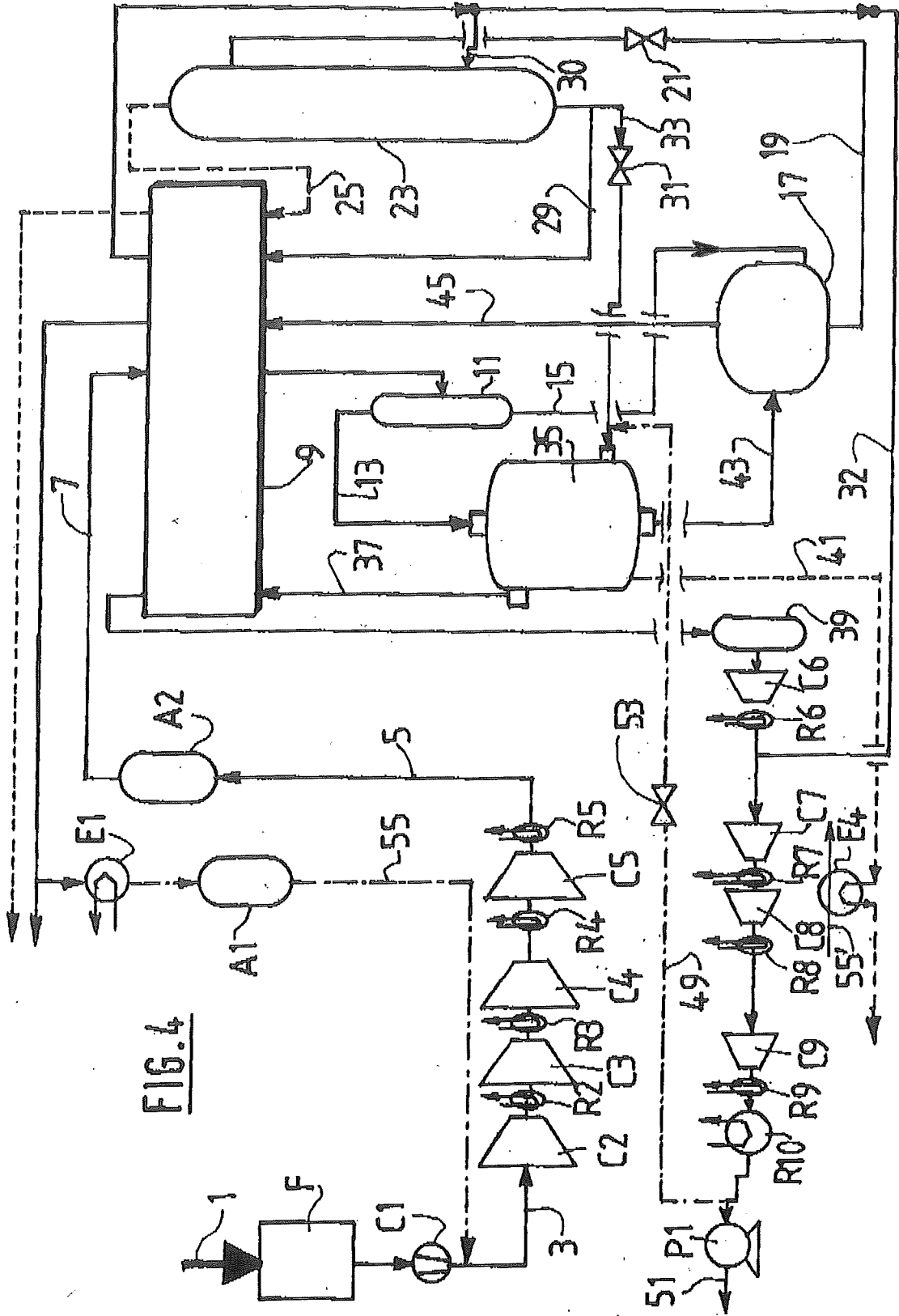


FIG. 4

