

⑫

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

②② Date de dépôt : 19.09.01.

③⑦ Priorité :

④③ Date de mise à la disposition du public de la
demande : 21.03.03 Bulletin 03/12.

⑤⑥ Liste des documents cités dans le rapport de
recherche préliminaire : *Se reporter à la fin du
présent fascicule*

⑥⑦ Références à d'autres documents nationaux
apparentés :

⑦① Demandeur(s) : L'AIR LIQUIDE SOCIETE ANONYME
POUR L'ETUDE ET L'EXPLOITATION DES PROCE-
DES GEORGES CLAUDE — FR.

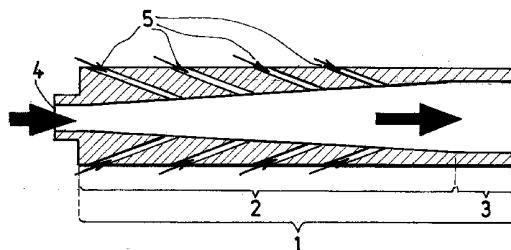
⑦② Inventeur(s) : DUGUE JACQUES et ILLY FABIEN.

⑦③ Titulaire(s) :

⑦④ Mandataire(s) :

⑤④ PROCEDE ET DISPOSITIF DE MELANGE DE DEUX GAZ REACTIFS.

⑤⑦ L'invention concerne un procédé de mélange d'au
moins deux gaz susceptibles de réagir ensemble dans un
mélangeur, dans lequel le temps de séjour moyen des gaz
dans le mélangeur est inférieur ou égal au temps chimique
de réaction des gaz à mélanger, et l'écart type de la distri-
bution des temps de séjour (e) représente au plus 20 % du
temps de séjour moyen (t_m) de la distribution des temps de
séjour. L'invention concerne également un mélangeur
adapté à la mise en oeuvre de ce procédé.



L'invention concerne un procédé de mélange de gaz réactifs potentiellement inflammables.

Pour divers procédés chimiques où interviennent plusieurs gaz à titre de réactifs, il
5 peut être recommandé de préalablement mélanger ces gaz réactifs avant leur introduction dans le procédé chimique auquel ils sont destinés. Or, au cours de la réalisation du mélange préalable des gaz réactifs, des risques liés à la réactivité des gaz peuvent apparaître. Des méthodes existent pour déterminer le risque d'inflammabilité du mélange d'au moins deux gaz réactifs et déterminer le schéma d'injection des gaz en prenant en
10 compte l'évolution de la composition du problème d'inflammabilité, il faut également que le mélange final soit de qualité, c'est-à-dire homogène.

L'invention porte donc sur un procédé de mélange de gaz réactifs potentiellement inflammables permettant d'obtenir une excellente homogénéité du mélange pour le procédé auquel il est destiné tout en prévenant le développement d'une réaction dans le mélangeur.

15 On peut identifier plusieurs types de mélangeurs. Les opérations de mélange sont le plus souvent réalisées à l'aide de mélangeurs statiques. Ceux-ci présentent un motif qui crée une perte de charge lorsque les gaz à mélanger passent au contact de ce motif, ce qui génère le mélange des gaz. Ces mélangeurs sont très efficaces mais aussi très encombrants. Ils ne peuvent pas facilement s'adapter à des installations déjà existantes
20 comme il serait nécessaire pour les dégoulottages. De plus, ils peuvent constituer un risque de bouchage ou de pièges à particules. La présence de particules de catalyseur a déjà été à l'origine d'accidents et d'explosions, en particulier dans la fabrication de l'acide nitrique. Les mécanismes de mélange étant peu accessibles à l'intérieur du mélangeur, ce type de matériel n'est généralement pas utilisé quand le mélange à réaliser est très réactif car la
25 distribution des temps de séjours dans de tels mélangeurs est difficile à connaître.

On utilise aussi des mélangeurs à jets transverses, tels que celui décrit dans la demande FR-A-2 665 088 : il s'agit d'un injecteur de gaz radial à mouvement tournant utilisable par exemple pour les opérations de suroxygénation dans les craqueurs catalytiques fluides (dits FCC), les oxydations catalytiques ou les fours (métallurgie, verre
30 ou ciment). Ces mélangeurs sont très efficaces pour obtenir un mélange homogène sur une courte distance. Mais ils sont limités dans les quantités de gaz qu'il est possible de mélanger et dans leur flexibilité par rapport aux débits des gaz. Ce type de mélangeur permet d'obtenir un mélange macroscopique homogène, mais on peut observer dans certains cas des zones de recirculation fluide derrière le panache des jets (quasi sillage) ou
35 derrière les injecteurs (traînée), ce qui peut augmenter les temps de séjour locaux qui peut être à l'origine d'une inflammation spontanée.

Il existe également des mélangeurs à jets coaxiaux basés sur le principe de la création de multiples petits jets coaxiaux à l'écoulement principal. Ils comprennent de nombreux injecteurs dits de type "râteau" assurant l'injection d'un gaz très combustible dans de l'air ou un oxydant pour limiter le risque d'allumage (ou vice-versa). On trouve ce type d'injecteur dans le procédé de synthèse d'oxyde d'éthylène (injection oxygène) ou d'anhydride maléique (injection butane). Ces mélangeurs sont peu flexibles et encombrants (présence d'un long faisceau de petits tubes). Du fait des jets coaxiaux, le mélange est majoritairement diffusionnel ce qui pénalise les performances car il se crée une large surface de contact entre les gaz réactifs, où le mélange a lieu principalement par diffusion (mélange plus lent).

Le but de la présente invention est de proposer un procédé de mélange de deux gaz réactifs potentiellement inflammables permettant d'obtenir un mélange homogène en un temps inférieur au temps chimique de la réaction des deux gaz.

Un autre but est de proposer un mélangeur susceptible de mettre en œuvre ce procédé.

Les caractéristiques et avantages de l'invention apparaîtront à la lecture de la description qui va suivre. Des formes et des modes de réalisation de l'invention sont donnés à titre d'exemples non limitatifs, illustrés par la figure 1 qui est une vue schématique d'un dispositif selon l'invention et par la figure 2 qui est un exemple de distribution des temps de séjour obtenue par utilisation du dispositif de la figure 1.

L'invention concerne tout d'abord un procédé de mélange d'au moins deux gaz réactifs dans un mélangeur dans lequel :

- le temps de séjour moyen (t_m) des gaz dans le mélangeur est inférieur ou égal au temps chimique de réaction des gaz à mélanger, et
- l'écart type de la distribution des temps de séjour (e) représente au plus 20 %, de préférence au plus 10 %, du temps de séjour moyen (t_m) de la distribution des temps de séjour.

Le respect de ces conditions assure l'obtention d'un mélange homogène de deux gaz potentiellement inflammables sans danger. Le temps chimique de réaction des gaz est défini comme le délai d'allumage par auto-inflammation de ces gaz aux conditions de pression et température du mélange. Selon une mise en œuvre particulière du procédé de l'invention, le temps de séjour maximum est inférieur ou égal au temps chimique de réaction des gaz à mélanger. Ce temps de séjour maximum est défini par la formule suivante $T = 3 X e + t_m$, e représentant la largeur de la gaussienne de la distribution des temps de séjour et

t_m la moyenne des temps de séjour de la distribution. Ce temps de séjour maximum est représentatif des temps de séjour pour la quasi totalité de l'écoulement (99,8 % de l'écoulement).

Une telle distribution des temps de séjour peut être contrôlée par le choix de la géométrie du mélangeur et des vitesses et/ou débits des gaz à mélanger. Ainsi, pour mettre en œuvre le procédé précédent, l'invention propose d'utiliser un mélangeur présentant la géométrie suivante :

- une première partie de forme tronconique divergente,
- une deuxième partie cylindrique placée dans la prolongation de la première partie et présentant le même axe de symétrie, dit axe du mélangeur,
- un orifice situé à l'extrémité de la première partie et permettant l'injection axiale d'au moins un gaz de manière à former un écoulement axial dans le mélangeur, dit écoulement principal,
- des orifices percés dans la paroi de la première partie et permettant l'injection sous forme de jets du ou des autres gaz au sein de l'écoulement principal, lesdits orifices étant orientés vers le centre du mélangeur dans le sens d'injection des gaz dans le mélangeur et selon un angle β compris entre 20° et 70° par rapport à l'axe du dispositif.

La première partie du mélangeur permet de contrôler la distribution du temps de séjour des gaz tandis que la deuxième partie permet d'achever le mélange des gaz jusqu'aux caractéristiques imposées par le procédé aval telles que : degré d'homogénéité ou une dispersion de particules par exemple. L'invention concerne plus spécifiquement ce type de dispositif se composant de deux parties placées dans le prolongement l'une de l'autre et coopérant l'une avec l'autre. La première partie est de forme tronconique divergente. Les gaz sont introduits du côté du tronc de cône présentant la section droite de plus petit diamètre de manière à ce qu'ils se dirigent vers l'autre côté du cône, vers la deuxième partie du mélangeur. Le demi-angle γ au sommet du cône formé par la première partie du mélangeur est généralement d'au plus 10° , de préférence compris entre 2° et 8° , encore plus préférentiellement entre 4° et 6° . La deuxième partie est placée dans la prolongation de la première partie divergente, donc du côté du tronc de cône présentant la section droite de plus grand diamètre. Cette deuxième partie a la forme d'un cylindre centré sur le même axe symétrie que la première partie tronconique. La deuxième partie coopère avec la première partie : ainsi, le diamètre du cylindre est le même que celui de la plus grande extrémité du cône. La longueur de la deuxième partie cylindrique est de préférence comprise entre 1 D et 100 D, de préférence comprise entre 10 D et 70 D, encore plus préférentiellement comprise entre 20 D et 50 D, avec D diamètre du cylindre formé par cette deuxième partie. Cette longueur est généralement fonction du degré d'homogénéité

du mélange requis ; elle doit également assurer le respect des conditions quant à la distribution des temps de séjour. L'injection des gaz à mélanger se fait par des orifices qui sont tous situés dans la première partie du dispositif de mélange. On distingue deux types d'orifices. Tout d'abord, le dispositif comprend un orifice situé à l'extrémité de la première partie du mélangeur qui présente la section droite de plus petit diamètre. L'orifice présente une forme telle qu'il permet l'injection axiale d'au moins un gaz de manière à former un écoulement parallèle à l'axe du mélangeur. Le dispositif comprend ensuite des orifices percés dans la paroi de la première partie du mélangeur. De préférence, ces orifices sont répartis de manière uniforme sur la paroi du tronc de cône de la première partie. Ils présentent généralement tous la même forme, souvent ronde. Ils ont de préférence tous le même diamètre. Selon une variante préférée, ils sont répartis sous forme de couronnes, lesdites couronnes correspondant à des sections droites du tronc de cône. Sur une même couronne, les orifices sont généralement placés uniformément à la même distance les uns des autres ; cette distance représente préférentiellement au moins deux fois le diamètre de ces orifices. De préférence, on utilise un mélangeur présentant le plus grand nombre de rangées de couronnes d'orifices possible dans la première partie du mélangeur. Il est préférable que pour deux couronnes adjacentes les trous de l'une soient décalés par rapport à l'autre. Pour chacun de ces orifices percés dans la paroi de la première partie du mélangeur, l'axe central de cet orifice est orienté vers le centre du mélangeur dans le sens d'injection des gaz dans le mélangeur selon un angle compris entre 20° et 60°. De préférence, tous ces orifices présentent le même angle d'orientation. Ces orifices peuvent être configurés de manière à donner un effet radial à mouvement tournant au(x) gaz provenant desdits orifices. De préférence, cet effet n'est pas mis en œuvre pour l'écoulement principal. Les diamètres des orifices sont généralement fixés en fonction des rapports des vitesses des gaz que l'on injecte dans le mélangeur : ainsi ils peuvent permettre de déterminer la vitesse du gaz injecté afin qu'elle soit supérieure à celle du mélange de gaz s'écoulant dans la section tronconique.

L'invention concerne plus particulièrement le dispositif de mélange dans lequel tous les orifices percés dans la paroi de la première partie du dispositif présentent la même forme de section et le même diamètre.

Le mélangeur précédemment décrit convient particulièrement aux mélanges de gaz dont le rapport V_2^2/V_1^2 est compris entre 1 et 2, et de préférence entre 1 et 1,5, avec :

V_1 : vitesse du ou des gaz injectés par l'orifice situé à l'extrémité de la première partie,

V_2 : vitesse du ou des gaz injectés par les orifices percés dans la paroi de la première partie

du mélangeur

Les mélanges gazeux de méthane et de gaz oxygénés peuvent particulièrement être traités par ce mélangeur : on injecte dans l'orifice situé à l'extrémité de la première partie du méthane et dans les orifices percés dans la paroi de la première partie un gaz oxygéné..

5 La figure 1 illustre une coupe d'un dispositif de mélange selon l'invention. Le mélangeur (1) présente une première partie de forme tronconique divergente (2) (demi-angle au sommet = 6° , longueur = 35 mm) et une deuxième partie cylindrique droite (3) placé dans la prolongation de la première partie (diamètre = 34 mm, longueur = 1190 mm). Un orifice (4) situé à l'extrémité de la première partie permet l'injection axiale d'au moins un gaz. Des orifices (5) (diamètre = 2,5 mm) sont percés dans la paroi de la première partie et
10 permettent l'injection sous forme de jets du ou des autres gaz au sein de l'écoulement principal. Ils sont répartis sous forme de quatre couronnes de 16 orifices chacune, l'axe de chaque couronne étant parallèle à l'axe du mélangeur. Ces orifices sont orientés vers le centre du mélangeur dans le sens d'injection des gaz dans le mélangeur selon un angle de
15 50° par rapport à l'axe du mélangeur.

EXEMPLE

Le mélangeur défini par la figure 1 est utilisé pour le mélange de CH_4 et d'un prémélange d'oxygène et de dioxyde de carbone. CH_4 est introduit avec une vitesse de 46
20 m/s et le prémélange d'oxygène et de dioxyde de carbone avec une vitesse de 54 m/s. Le temps chimique de la réaction est de 400 ms.

La figure 2 est la distribution des temps de séjour obtenue lors de ce mélange par le suivi des particules dans l'écoulement. Les résultats suivants sont obtenus :

- le temps de séjour moyen des gaz dans le mélangeur pour atteindre un degré
25 d'homogénéité du coefficient de variation (CV) de 5 % est de seulement 27 ms donc inférieur au temps chimique de réaction des gaz à mélanger, qui est de 400 ms (résultat obtenu par calcul statistique sur la distribution des concentrations en CH_4 sur chaque section droite du mélangeur),
- l'écart type de la distribution des temps de séjour (e) représente 3,5 ms, soit moins de
30 20 % du temps de séjour moyen (t_m) de la distribution des temps de séjour,
- le temps de séjour maximum $T = 3 \times e + t_m$ est de 37,5 ms donc est inférieur au temps chimique de 400 ms d'un facteur 10.

On vérifie que l'on obtient à la sortie du mélangeur un mélange homogène en s'assurant que l'homogénéité atteinte à 5 % est compatible avec l'utilisation procédé
35 désirée.

REVENDEICATIONS

1. Procédé de mélange d'au moins deux gaz susceptibles de réagir ensemble dans un mélangeur, caractérisé en ce que :

- 5
- le temps de séjour moyen des gaz dans le mélangeur est inférieur ou égal au temps chimique de réaction des gaz à mélanger, et
 - l'écart type de la distribution des temps de séjour (e) représente au plus 20 % du temps de séjour moyen (t_m) de la distribution des temps de séjour.

10 2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'écart type de la distribution des temps de séjour (e) représente au plus 10 % du temps de séjour moyen de la distribution des temps de séjour (t_m).

15 3. Procédé selon la revendication 1 ou 2, caractérisé en ce que le temps de séjour maximum est inférieur ou égal au temps chimique de réaction des gaz à mélanger.

4. Procédé de mélange selon l'une des revendications 1 à 3, caractérisé en ce qu'on utilise un mélangeur présentant la géométrie suivante :

- 20
- une première partie de forme tronconique divergente,
 - une deuxième partie cylindrique placée dans la prolongation de la première partie et présentant le même axe de symétrie, dit axe du dispositif,
 - un orifice situé à l'extrémité de la première partie et permettant l'injection axiale d'au moins un gaz de manière à former un écoulement axial dit écoulement principal,
 - au moins deux orifices percés dans la paroi de la première partie et permettant
- 25 l'injection sous forme de jets du ou des autres gaz au sein de l'écoulement principal, lesdits orifices étant orientés vers le centre du mélangeur dans le sens d'injection des gaz dans le mélangeur et selon un angle β compris entre 20° et 70° par rapport à l'axe du dispositif.

30 5. Dispositif de mélange d'au moins deux gaz susceptibles de réagir ensemble comprenant :

- une première partie de forme tronconique divergente,
- une deuxième partie cylindrique placée dans la prolongation de la première partie et présentant le même axe de symétrie, dit axe du dispositif,
- 35 - un orifice situé à l'extrémité de la première partie et permettant l'injection axiale d'au moins un gaz de manière à former un écoulement axial dit principal,

- des orifices percés dans la paroi de la première partie et permettant l'injection sous forme de jets du ou des autres gaz au sein de l'écoulement principal, lesdits orifices étant orientés vers le centre du mélangeur dans le sens d'injection des gaz dans le mélangeur et selon un angle β compris entre 20° et 70° par rapport à l'axe du dispositif.

5

6. Dispositif selon la revendication précédente, caractérisé en ce que le demi-angle γ au sommet du cône formé par la première partie est d'au plus 10° , de préférence compris entre 2° et 8° , encore plus préférentiellement entre 4° et 6° .

10

7. Dispositif selon l'une des revendications 5 ou 6, caractérisé en ce que la longueur de la deuxième partie cylindrique droite est comprise entre 1 et 100 D, avec D diamètre du cylindre formé par cette deuxième partie.

15

8. Dispositif selon l'une des revendications 5 à 7, caractérisé en ce que les orifices percés dans la paroi de la première partie sont répartis sous forme de couronnes, lesdites couronnes correspondant à des sections droites de la première partie de forme tronconique.

20

9. Dispositif selon l'une des revendications 5 à 8, caractérisé en ce que tous les orifices percés dans la paroi de la première partie présentent la même forme de section et le même diamètre.

25

10. Dispositif selon l'une des revendications 5 à 9 caractérisé en ce que les orifices percés dans la paroi de la première partie sont configurés de manière à donner un effet radial à mouvement tournant au(x) gaz provenant de ces orifices.

11. Procédé de mélange d'au moins deux gaz susceptibles de réagir ensemble dans lequel on utilise le dispositif selon l'une des revendications 5 à 10.

30

12. Procédé selon la revendication précédente, caractérisé en ce que le rapport V_2^2/V_1^2 est compris entre 1 et 2, et de préférence entre 1 et 1,5, avec :

V_1 : vitesse du ou des gaz injectés par l'orifice situé à l'extrémité de la première partie,

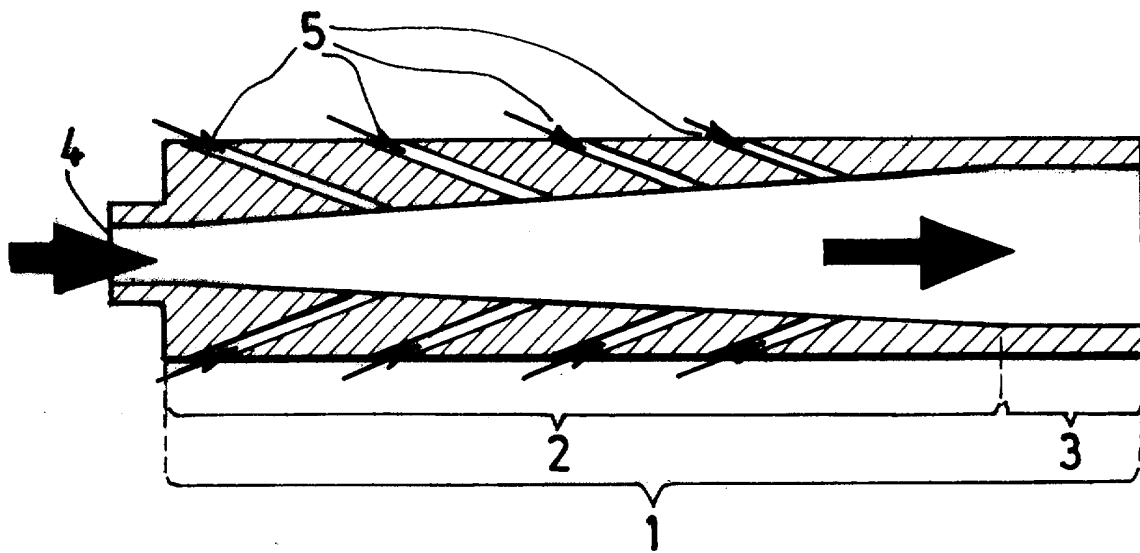
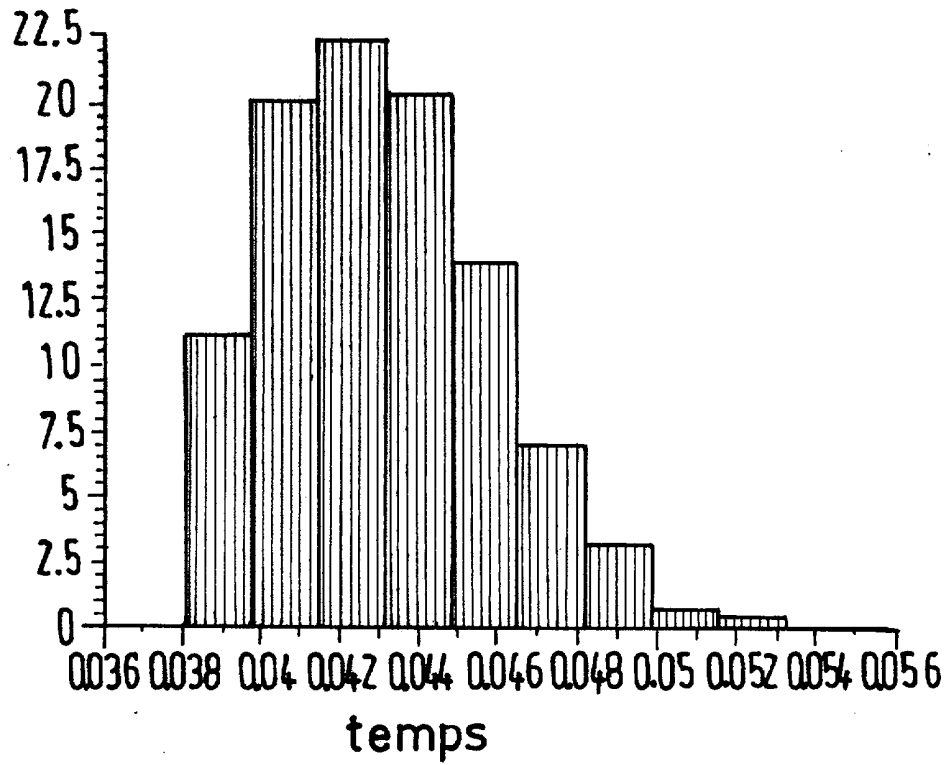
V_2 : vitesse du ou des gaz injectés par les orifices percés dans la paroi de la première partie du mélangeur.

35

13. Procédé selon la revendication 11 ou 12, caractérisé en ce qu'il est mis en œuvre pour mélanger du méthane et un gaz oxygéné et en ce qu'on injecte dans l'orifice situé à

l'extrémité de la première partie le méthane et dans les orifices percés dans la paroi de la première partie le gaz oxygéné.

1/1

FIG.1FIG.2

**RAPPORT DE RECHERCHE
PRÉLIMINAIRE**

établi sur la base des dernières revendications
déposées avant le commencement de la recherche

2829707

N° d'enregistrement
national

FA 608043
FR 0112101

DOCUMENTS CONSIDÉRÉS COMME PERTINENTS		Revendication(s) concernée(s)	Classement attribué à l'invention par l'INPI
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes		
A	FR 2 357 738 A (SNECMA) 3 février 1978 (1978-02-03) * page 1, ligne 32 - page 2, ligne 2 * ---	1	B01F3/02 B01F5/04
X	GB 618 481 A (SAMUEL HARRY WHITE) 22 février 1949 (1949-02-22) * page 2, ligne 76 - ligne 99; figure 2 * ---	5-9	
A	EP 0 765 839 A (MITSUBISHI ELECTRIC CORP) 2 avril 1997 (1997-04-02) * figures 30A, 30B * ---	4-9, 11, 13	
A	DE 34 12 808 A (NIEDERRHEINISCHE GAS UND WASSE) 17 octobre 1985 (1985-10-17) * revendication 1; figure 2 * ---	5	
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 2000, no. 11, 3 janvier 2001 (2001-01-03) & JP 2000 213681 A (TOSHIBA CORP), 2 août 2000 (2000-08-02) * abrégé * -----	5	
			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (Int.CL.7)
			B01F F23D F23C B01J
Date d'achèvement de la recherche		Examineur	
3 juin 2002		Van Belleghem, W	
CATÉGORIE DES DOCUMENTS CITÉS X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure. D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant			

**ANNEXE AU RAPPORT DE RECHERCHE PRÉLIMINAIRE
RELATIF A LA DEMANDE DE BREVET FRANÇAIS NO. FR 0112101 FA 608043**

La présente annexe indique les membres de la famille de brevets relatifs aux documents brevets cités dans le rapport de recherche préliminaire visé ci-dessus.
Les dits membres sont contenus au fichier informatique de l'Office européen des brevets à la date du 03-06-2002
Les renseignements fournis sont donnés à titre indicatif et n'engagent pas la responsabilité de l'Office européen des brevets, ni de l'Administration française

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
FR 2357738 A	03-02-1978	FR 2357738 A1	03-02-1978
		DE 2730791 A1	19-01-1978
		GB 1539136 A	24-01-1979
		US 4162611 A	31-07-1979
GB 618481 A	22-02-1949	AUCUN	
EP 0765839 A	02-04-1997	JP 9086904 A	31-03-1997
		JP 9165206 A	24-06-1997
		CN 1160016 A , B	24-09-1997
		EP 0765839 A2	02-04-1997
		US 5785824 A	28-07-1998
DE 3412808 A	17-10-1985	DE 3412808 A1	17-10-1985
JP 2000213681 A	02-08-2000	AUCUN	