

①9 RÉPUBLIQUE FRANÇAISE  
—  
**INSTITUT NATIONAL  
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE**  
—  
COURBEVOIE  
—

①1 N° de publication : **3 090 832**

(à n'utiliser que pour les  
commandes de reproduction)

②1 N° d'enregistrement national : **18 73355**

⑤1 Int Cl<sup>8</sup> : **F 25 J 3/06 (2019.01), F 25 J 3/08, B 01 D 53/62**

⑫

## BREVET D'INVENTION

**B1**

⑤4 Procédé et appareil de séparation d'un courant d'alimentation comprenant au moins du CO<sub>2</sub> ainsi qu'au moins un composé léger.

②2 Date de dépôt : 19.12.18.

③0 Priorité :

④3 Date de mise à la disposition du public  
de la demande : 26.06.20 Bulletin 20/26.

④5 Date de la mise à disposition du public du  
brevet d'invention : 12.08.22 Bulletin 22/32.

⑤6 Liste des documents cités dans le rapport de  
recherche :

*Se reporter à la fin du présent fascicule*

⑥0 Références à d'autres documents nationaux  
apparentés :

○ Demande(s) d'extension :

⑦1 Demandeur(s) : *L'AIR LIQUIDE, SOCIETE  
ANONYME POUR L'ETUDE ET L'EXPLOITATION  
DES PROCEDES GEORGES CLAUDE Société  
Anonyme — FR.*

⑦2 Inventeur(s) : KHAN Oumar, LECLERC Mathieu et  
TERRIEN Paul.

⑦3 Titulaire(s) : *L'AIR LIQUIDE, SOCIETE ANONYME  
POUR L'ETUDE ET L'EXPLOITATION DES  
PROCEDES GEORGES CLAUDE Société Anonyme.*

⑦4 Mandataire(s) : *L'AIR LIQUIDE, SOCIETE  
ANONYME POUR L'ETUDE ET L'EXPLOITATION  
DES PROCEDES GEORGES CLAUDE.*

**FR 3 090 832 - B1**



## Description

### **Titre de l'invention : Procédé et appareil de séparation d'un courant d'alimentation comprenant au moins du CO<sub>2</sub> ainsi qu'au moins un composé léger**

- [0001] La présente invention concerne un procédé et un appareil de séparation d'un courant d'alimentation comprenant au moins du CO<sub>2</sub> ainsi qu'au moins un composé léger.
- [0002] Du fait du réchauffement climatique, de la demande croissante en gaz pour l'EOR ou de la nécessité de purifier le gaz naturel en gaz acide, la séparation du CO<sub>2</sub> est de plus en plus employée. Les solutions de séparation par voie cryogénique couplées avec des membranes permettent notamment des rendements de capture du CO<sub>2</sub> très élevés, jusqu'à 99%.
- [0003] Dans ces schémas, les gaz à purifier en CO<sub>2</sub> sont mélangés avec le perméat des membranes à relativement basse pression, comprimés puis refroidis et partiellement condensés. La partie liquide forme la production en CO<sub>2</sub>. La partie gaz quant à elle est envoyée aux membranes. Ces deux parties sont séparées dans un séparateur de phase. Le résidu des membranes est constitué du gaz purifié en CO<sub>2</sub>.
- [0004] EP2685190A1 présente un exemple d'un tel procédé avec la particularité d'utiliser le perméat des membranes pour effectuer une étape supplémentaire de régénération des sécheurs.
- [0005] L'avantage de ce schéma est la mutualisation de la fonction de compression du gaz à purifier et du perméat des membranes dans le même compresseur. Des coûts significatifs sont alors économisés. Comme la pureté du perméat est souvent assez proche de celle du gaz à purifier, les deux gaz peuvent être mélangés sans perte significative d'énergie de séparation.
- [0006] En ce qui concerne la génération des frigories pour assurer le refroidissement du mélange du gaz à purifier et du perméat, une part au moins du liquide issu de la condensation est le plus souvent détendue à plusieurs niveaux de pression puis vaporisée et réchauffée contre ce mélange. En ce qui concerne les différents niveaux de pressions :
- [0007] • Une part du liquide est le plus souvent détendue à une pression proche de celle du point triple du CO<sub>2</sub>, permettant de générer un fluide à la plus basse température sans former de solide. La pression correspondante est comprise entre 5,1 et 7 bara.
- La température nécessaire pour former la première goutte de CO<sub>2</sub> lors de la condensation du mélange gaz à purifier et perméat est d'autant plus basse que le mélange est pauvre en CO<sub>2</sub>. De ce fait, il est nécessaire de détendre le

liquide obtenu à des pressions d'autant plus basses pour générer des fluides froids à des températures d'autant plus basses.

- [0008] [Fig.4] représente en abscisses la température en °C et le transfert de chaleur en kcal/h en ordonnées. Comme on peut voir, la majorité des frigories doit être générée à des températures plus basses que -25°C. De plus, dans ce cas, les courbes sont très écartées au bout chaud (plus de 10°C de différence) ce qui signifie qu'il est nécessaire de générer une quantité de froid très importante pour assurer le refroidissement dans les températures les plus basses.
- [0009] • Les gaz obtenus réchauffés sont le plus souvent comprimés afin de permettre le transport du CO<sub>2</sub>. Dans ce cas, on utilise le plus souvent le même compresseur pour les différents flux gazeux. Ainsi, les différents niveaux de pression doivent être compatibles avec les pressions intermédiaires du compresseur. On aura ainsi le deuxième niveau de pression compris entre 8 et 14 bara. Un troisième niveau de compression n'est pas envisageable car le froid généré pour ce niveau serait à trop haute température (cf. point précédent).
- [0010] Mais dans certains cas, la pureté du perméat en CO<sub>2</sub> est nettement supérieure à celle du gaz à purifier. C'est en particulier le cas quand le gaz à purifier a des teneurs en CO<sub>2</sub> en deçà de 50 % mol. Ainsi, en mélangeant le perméat avec le gaz à purifier, on dilue le perméat. Une part significative de la séparation qui a été réalisée est perdue du fait de cette dilution.
- [0011] Ce cas se présente notamment pour la séparation du CO<sub>2</sub> du gaz naturel où le perméat des membranes peut contenir jusqu'à 90 % mol de CO<sub>2</sub> alors que le gaz naturel acide à purifier peut contenir seulement 30 % mol de CO<sub>2</sub>.
- [0012] De plus, un certain nombre de composés peuvent aussi être séparés dans les membranes et évacués dans le résidu. Mélanger le perméat des membranes appauvries en ces composés avec le gaz à purifier qui en contient ne permet pas de profiter pleinement de la séparation opérée dans les membranes.
- [0013] Ce cas se présente aussi pour la séparation du CO<sub>2</sub> du gaz naturel où les hydrocarbures ne traversent que très peu la membrane. Le perméat contenant majoritairement du CO<sub>2</sub> et du CH<sub>4</sub> est ainsi significativement appauvri en C<sub>2+</sub>. Le mélanger avec le gaz à purifier qui en contient de manière plus conséquente ne permet pas de profiter de cette séparation.
- [0014] La présente invention permet l'optimisation énergétique de schémas procédé employant la séparation cryogénique et les membranes ou un autre procédé de séparation sélectif.
- [0015] Dans une variante utilisant des membranes, elle consiste à ne pas mélanger le perméat des membranes avec le gaz à purifier et de le refroidir et condenser partiellement dans un pot séparateur dédié.

[0016] Selon un objet de l'invention, il est prévu un procédé de séparation d'un courant d'alimentation comprenant au moins du CO<sub>2</sub> ainsi qu'au moins un composé léger choisi parmi CH<sub>4</sub>, CO, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, Ar, C<sub>2</sub>+ comprenant au moins les étapes suivantes :

[0017] a) Production d'un produit riche en CO<sub>2</sub> et d'un gaz appauvri en CO<sub>2</sub> par un procédé de condensation partielle et éventuellement de distillation utilisant au moins un premier pot de séparation de phase,

[0018] b) Introduction du gaz appauvri en CO<sub>2</sub> dans un procédé de séparation sélectif au CO<sub>2</sub> afin d'obtenir un premier fluide dont la concentration en CO<sub>2</sub> est supérieure à celle du courant d'alimentation et un fluide enrichi en au moins un des composés légers et

[0019] c) Production d'un second produit riche en CO<sub>2</sub> et d'un second gaz appauvri en CO<sub>2</sub> à partir du premier fluide chargé en CO<sub>2</sub> obtenu en b) ou d'un fluide, dérivé de celui-ci par un procédé de condensation partielle et éventuellement de distillation, utilisant un deuxième pot de séparation de phase différent du premier pot de séparation de phase.

[0020] Selon d'autres aspects facultatifs :

[0021] • le premier fluide contient au moins 70% mol de CO<sub>2</sub>.

• le courant d'alimentation contient au plus 50% mol de CO<sub>2</sub> et le procédé de séparation sélectif au CO<sub>2</sub> est un procédé de perméation et/ou d'adsorption.

[0022] • le courant contient du C<sub>2</sub>+ et le fluide enrichi en composé léger est enrichi en C<sub>2</sub>+

• moins de 10% du premier fluide est mélangé avec le courant d'alimentation.

• aucune partie du premier fluide n'est mélangée avec le courant d'alimentation

• au moins lors de l'étape a), le procédé comprend de la distillation dans une colonne de distillation

• une partie du premier fluide est injectée sous forme gazeuse en cuve de la colonne de distillation.

• la partie du premier fluide est un fluide provenant d'une étape de compression en aval du procédé de séparation sélectif.

• au moins lors de l'étape a), le procédé comprend de la distillation dans une colonne de distillation et au moins une partie du second produit alimente la colonne de distillation.

• l'étape a) comprend une condensation partielle dans un échangeur de chaleur à tubes et à calandre.

[0023] Selon un autre aspect de l'invention, il est prévu un appareil de séparation d'un courant d'alimentation comprenant au moins du CO<sub>2</sub> ainsi qu'au moins un composé léger choisi parmi CH<sub>4</sub>, CO, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, Ar, C<sub>2</sub>+ comprenant au moins les étapes suivantes :

[0024] a) Un appareil de condensation partielle et éventuellement de distillation comprenant au moins un premier pot de séparation de phase pour produire un produit riche en CO<sub>2</sub>

et d'un gaz appauvri en CO<sub>2</sub>,

[0025] b) Un appareil de séparation sélectif au CO<sub>2</sub> alimenté par du gaz appauvri en CO<sub>2</sub> afin d'obtenir un premier fluide dont la concentration en CO<sub>2</sub> est supérieure à celle du courant d'alimentation et un fluide enrichi en au moins un des composés légers et

[0026] c) Un appareil de condensation partielle et éventuellement de distillation, comprenant un deuxième pot de séparation de phase différent du premier pot de séparation de phase pour produire un second produit riche en CO<sub>2</sub> et d'un second gaz appauvri en CO<sub>2</sub> à partir du premier fluide chargé en CO<sub>2</sub> obtenu en b).

[0027] Cette solution présente un certain nombre d'avantages :

- [0028] • Le perméat étant plus chargé en CO<sub>2</sub>, sa condensation est entamée à plus haute température. Cela permet de générer une part des frigorifiques à plus haute température et donc à plus haute pression. Ainsi, une part du CO<sub>2</sub> liquide peut être détendue à une pression plus haute permettant un gain en énergie de re-compression.
- [Fig.5] représente en abscisses la température en °C et le transfert de chaleur en kcal/h en ordonnées, ce qui est visualisé grâce au diagramme correspondant.

[0029] Par rapport à la [Fig.4], on constate qu'un palier de vaporisation supplémentaire a été ajouté vers -15°C (~21bara).

- [0030] • Dans le cas particulier de la séparation du CO<sub>2</sub> du gaz naturel, le perméat des membranes est faiblement chargé en hydrocarbures C<sub>2+</sub>. Dans le cas où ces derniers sont à séparer, en particulier dans le cas de la séparation des C<sub>2</sub> comme décrit dans WO2016/156691, le liquide issu de la condensation partielle du perméat des membranes nécessite un strippage moins important que le reste du liquide obtenu par condensation partielle du gaz d'alimentation. Il n'est donc pas nécessaire de dépenser de l'énergie à distiller ce gaz dans le but de séparer l'éthane. Il y a donc aussi un gain énergétique. De plus, le gaz résultant du strippage étant recyclé à la machine de compression du perméat, la réduction de son débit permet des gains sur la taille de la machine et sur le nombre de modules nécessaires.
- Dans le cas particulier de la séparation du CO<sub>2</sub> du gaz naturel, le gaz naturel étant déjà disponible à haute pression, un compresseur pour le perméat des membranes est nécessaire. Ainsi, que le perméat soit mélangé avec le gaz à purifier comme dans l'art antérieur ou condensé séparément selon l'invention, cela ne nécessite pas de machine supplémentaire.

[0031] L'invention est applicable pour tout procédé de séparation sélectif au CO<sub>2</sub> ajouté à une séparation cryogénique (PSA, TSA, absorption) à la place ou en complément de la membrane. Ainsi dans les commentaires précédents, on comprendra que le terme

perméat qui vaut quand la séparation est effectuée par perméation peut être substitué par un autre terme correspondant à la séparation par une autre technique, par exemple le débit enrichi en CO<sub>2</sub> produit par PSA ou TSA.

- [0032] De préférence le procédé de séparation sélectif opère à une température entre -30°C et 100°C. Il peut néanmoins opérer à une température en dessous de -30°C ou entre 30°C et 90°C. La pression d'opération est entre 1,5 bara et 90 bara.
- [0033] L'invention sera décrite de manière plus détaillée en se référant aux figures qui montrent des procédés de séparation d'un mélange contenant du dioxyde de carbone et un composé plus léger selon l'invention.
- [0034] [Fig.1] représente un procédé de séparation d'un courant d'alimentation comprenant au moins du CO<sub>2</sub> selon l'invention.
- [0035] [Fig.2] représente un procédé de séparation d'un courant d'alimentation comprenant au moins du CO<sub>2</sub> selon l'invention.
- [0036] [Fig.3] représente un procédé de séparation d'un courant d'alimentation comprenant au moins du CO<sub>2</sub> selon l'invention.
- [0037] Dans le procédé de la [Fig.1], un courant d'alimentation 1 comprenant au moins du CO<sub>2</sub>, éventuellement moins que 50% mol de CO<sub>2</sub> ainsi qu'au moins un composé léger choisi parmi CH<sub>4</sub>, CO, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, Ar. Le courant peut également contenir des hydrocarbures C<sub>2+</sub>. Ce courant peut par exemple être du gaz naturel, disponible à haute pression, par exemple environ 50 bara.
- [0038] Le courant 1 est éventuellement comprimé par un compresseur 3 et est refroidi dans un échangeur de chaleur 5 à plaques et à ailettes jusqu'à une température inférieure à -20°C où il se condense partiellement. Le débit partiellement condensé est envoyé à un séparateur de phases 7 opérant à une température en dessous de 0°C. Le liquide 9 produit par le séparateur de phases 7 constitue un produit riche en dioxyde de carbone, éventuellement contenant au moins 70% mol de CO<sub>2</sub>, voire au moins 90% mol de CO<sub>2</sub>. Le gaz 11 du séparateur de phases se réchauffe dans l'échangeur de chaleur, après avoir été mélangé avec un débit 25 pour former un débit 13. Le débit 13 réchauffé dans l'échangeur 5 est envoyé à un procédé 15 permettant de produire un gaz 19 enrichi en dioxyde de carbone par rapport au gaz 13 et de préférence par rapport au gaz 1. Le gaz 19 peut également être significativement appauvri en C<sub>2+</sub> si le gaz 1 en contient.
- [0039] Le procédé permettant cet enrichissement et éventuellement cet appauvrissement peut être un procédé de perméation, par exemple par membrane et/ou un procédé d'adsorption, par exemple TSA, PSA, VSA.
- [0040] Le procédé 15 produit également un gaz 17 appauvri en CO<sub>2</sub> et enrichi en au moins un composant léger. Le gaz 17 peut être enrichi en au moins un composant choisi dans le groupe CH<sub>4</sub>, CO, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, Ar, C<sub>2+</sub>.
- [0041] Le gaz 19 est refroidi dans l'échangeur 6 après compression par un compresseur 21.

Il est partiellement condensé dans l'échangeur 6 et séparé dans un deuxième séparateur de phases 23 qui produit un produit liquide 27 enrichi en dioxyde de carbone. Il produit également un débit appauvri en dioxyde de carbone 25 qui est mélangé avec le débit 11 comme décrit ci-dessus. Ainsi le gaz 19 qui constitue ici le perméat des membranes n'est pas mélangé avec le gaz 1 à purifier mais est refroidi et condensé partiellement dans un pot séparateur dédié 23.

- [0042] Le froid pour le procédé est fourni au moins en partie par une source de froid 29 qui envoie un fluide frigorigène 31 à l'échangeur 5.
- [0043] Le procédé de la [Fig.2] utilise un procédé de condensation partielle suivie de distillation pour séparer le courant d'alimentation 1.
- [0044] Le procédé comprend une seule colonne de distillation (pas de première colonne dont l'objectif principal est de stripper le  $C_2+$ ) mais utilise une pression intermédiaire de condensation.
- [0045] Le courant 1 comprend au moins du  $CO_2$ , éventuellement moins que 50% mol de  $CO_2$  ainsi qu'au moins un composé léger choisi parmi  $CH_4$ ,  $CO$ ,  $H_2$ ,  $N_2$ ,  $O_2$ ,  $Ar$ . Le courant peut également contenir des hydrocarbures  $C_2+$ . Dans cette variante le courant 1 est humide.
- [0046] Il passe dans une vanne 2, dans deux systèmes 4,6 pour enlever l'eau puis est refroidi dans un échangeur de chaleur 5 à plaques et à ailettes où il se condense partiellement. Le débit partiellement condensé est envoyé à un séparateur de phases 22 opérant à une température en dessous de  $0^\circ C$ . Le liquide 202 produit par le séparateur de phases 22 constitue un produit riche en dioxyde de carbone, éventuellement contenant au moins 70% mol de  $CO_2$ , voire au moins 90% mol de  $CO_2$ . Le gaz 201 du séparateur de phases 22 est partiellement condensé dans l'échangeur 10 (en anglais « shell and tube »). Le fluide biphasique est séparé dans un deuxième séparateur de phases 7. Les liquides 202,9 du premier séparateur de phases 22 et du deuxième séparateur de phases 7 sont mélangés, détendus par une vanne 203 et envoyés comme débit 204 à une colonne de distillation 206.
- [0047] Le liquide de cuve 207 de la colonne de distillation est un débit constituant un produit riche en  $CO_2$ . Le débit 207 est détendu par une vanne 208 et envoyé à l'échangeur 10 où il se vaporise partiellement. Le gaz formé 209 est réchauffé dans l'échangeur 6, comprimé par un compresseur 210 et constitue une partie du produit riche en  $CO_2$  211. Le reste du produit 211 est produit en pressurant le liquide 213 de l'échangeur 10 avec une pompe 215 pour former un liquide pressurisé 219 qui passe dans une vanne 220 et puis est vaporisé dans l'échangeur 6 pour former un débit à mélanger avec le débit 209.
- [0048] Le gaz de tête 221 de la colonne de distillation 206 est réchauffé dans l'échangeur de chaleur 6, comprimé par le compresseur 223 et rejoint le débit 1 en amont de

l'échangeur de chaleur 6.

- [0049] Le gaz 11 du deuxième séparateur de phases 7 est réchauffé dans le séparateur de phases et puis est séparé par un procédé 15 permettant de produire un gaz 19 enrichi en dioxyde de carbone par rapport au gaz 13 et de préférence par rapport au gaz 1. Le gaz 19 peut également être significativement appauvri en  $C_2+$  si le gaz 1 en contient.
- [0050] Le procédé permettant cet enrichissement et éventuellement cet appauvrissement peut être un procédé de perméation, par exemple par membrane et/ou un procédé d'adsorption, par exemple TSA, PSA, VSA.
- [0051] Le procédé 15 produit également un gaz 17 appauvri en  $CO_2$  et enrichi en au moins un composant léger. Le gaz 17 peut être enrichi en au moins un composant choisi dans le groupe  $CH_4$ ,  $CO$ ,  $H_2$ ,  $N_2$ ,  $O_2$ ,  $Ar$ ,  $C_2+$ .
- [0052] Le gaz 19 est refroidi dans l'échangeur 6 après compression par un compresseur 21A,21B,21C. Il est partiellement condensé dans l'échangeur 6 et séparé dans un deuxième séparateur de phases 23 qui produit un liquide 27 enrichi en dioxyde de carbone. Il produit également un débit appauvri en dioxyde de carbone 25 qui est mélangé avec le gaz 221 venant de la colonne de distillation. Le liquide 27 enrichi en dioxyde de carbone est détendu par la vanne 28 et envoyé à la colonne de distillation 206 comme débit d'alimentation. Ainsi le gaz 19 qui constitue ici le perméat des membranes n'est pas mélangé avec le gaz 1 à purifier mais est refroidi et condensé partiellement dans un pot séparateur dédié 23.
- [0053] Le procédé de la [Fig.2] utilise un procédé de condensation partielle suivie de distillation pour séparer le courant d'alimentation 1.
- [0054] Le procédé comprend une seule colonne de distillation (pas de première colonne dont l'objectif principal est de stripper le  $C_2+$ ) mais utilise une pression intermédiaire de condensation.
- [0055] Le courant 1 comprend au moins du  $CO_2$ , éventuellement moins que 50% mol de  $CO_2$  ainsi qu'au moins un composé léger choisi parmi  $CH_4$ ,  $CO$ ,  $H_2$ ,  $N_2$ ,  $O_2$ ,  $Ar$ . Le courant peut également contenir des hydrocarbures  $C_2+$ . Dans cette variante le courant 1 est humide.
- [0056] Il passe dans une vanne 2, dans deux systèmes 4,6 pour enlever l'eau puis est refroidi dans un échangeur de chaleur 5 à plaques et à ailettes où il se condense partiellement. Le débit partiellement condensé est envoyé à un séparateur de phases 22 opérant à une température en dessous de  $0^\circ C$ . Le liquide 202 produit par le séparateur de phases 22 constitue un produit riche en dioxyde de carbone, éventuellement contenant au moins 70% mol de  $CO_2$ , voire au moins 90% mol de  $CO_2$ . Le gaz 201 du séparateur de phases 22 est partiellement condensé dans l'échangeur 10 (en anglais « shell and tube »). Le fluide biphasique est séparé dans un deuxième séparateur de phases 7. Les liquides 202,9 du premier séparateur de phases 22 et du deuxième séparateur de phases 22 sont

mélangés, détendus par une vanne 203 et envoyés comme débit 204 à une colonne de distillation 206.

- [0057] Le liquide de cuve 207 de la colonne de distillation est un débit constituant un produit riche en CO<sub>2</sub>. Le débit 207 est détendu par une vanne 208 et envoyé à l'échangeur 10 où il se vaporise partiellement. Le gaz formé 209 est réchauffé dans l'échangeur 6, comprimé par un compresseur 210 et constitue une partie du produit riche en CO<sub>2</sub> 211. Le reste du produit 211 est produit en pressurant le liquide 213 de l'échangeur 10 avec une pompe 215 pour former un liquide pressurisé 219 qui passe dans une vanne 220 et puis est vaporisé dans l'échangeur 6 pour former un débit à mélanger avec le débit 209.
- [0058] Eventuellement une partie du premier fluide 19 comprimé dans les compresseurs 21A, 21B, 21C peut être envoyée en cuve de la colonne pour s'y séparer (illustré en pointillés).
- [0059] Le gaz de tête 221 de la colonne de distillation 206 est réchauffé dans l'échangeur de chaleur 6, comprimé par le compresseur 223 et rejoint le débit 1 en amont de l'échangeur de chaleur 6.
- [0060] Le gaz 11 du deuxième séparateur de phases 7 est réchauffé dans le séparateur de phases et puis est séparé par un procédé 15 permettant de produire un gaz 19 enrichi en dioxyde de carbone par rapport au gaz 13 et de préférence par rapport au gaz 1. Le gaz 19 peut également être significativement appauvri en C<sub>2+</sub> si le gaz 1 en contient.
- [0061] Le procédé permettant cet enrichissement et éventuellement cet appauvrissement peut être un procédé de perméation, par exemple par membrane et/ou un procédé d'adsorption, par exemple TSA, PSA, VSA.
- [0062] Le procédé 15 produit également un gaz 17 appauvri en CO<sub>2</sub> et enrichi en au moins un composant léger. Le gaz 17 peut être enrichi en au moins un composant choisi dans le groupe CH<sub>4</sub>, CO, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, Ar, C<sub>2+</sub>.
- [0063] Le gaz 19 est refroidi dans l'échangeur 6 après compression par un compresseur 21A,21B,21C. Il est partiellement condensé dans l'échangeur 6 et séparé dans un deuxième séparateur de phases 23 qui produit un liquide 27 enrichi en dioxyde de carbone. Il produit également un débit appauvri en dioxyde de carbone 25 qui est mélangé avec le gaz 221 venant de la colonne de distillation. Le liquide 27 enrichi en dioxyde de carbone est détendu par la vanne 28 et envoyé à la colonne de distillation 206 comme débit d'alimentation. Ainsi le gaz 19 qui constitue ici le perméat des membranes n'est pas mélangé avec le gaz 1 à purifier mais est refroidi et condensé partiellement dans un pot séparateur dédié 23.
- [0064] Le procédé de la [Fig.2] utilise un procédé de condensation partielle suivie de distillation pour séparer le courant d'alimentation 1.
- [0065] Le procédé ne comprend pas d'étape de strippage de C<sub>2+</sub> mais utilise une pression in-

termédiaire de condensation. Le courant 1 comprend au moins du CO<sub>2</sub>, éventuellement moins que 50% mol de CO<sub>2</sub> ainsi qu'au moins un composé léger choisi parmi CH<sub>4</sub>, CO, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, Ar. Le courant peut également contenir des hydrocarbures C<sub>2</sub>+. Dans cette variante le courant 1 est humide.

- [0066] Il passe dans une vanne 2, dans deux systèmes 4,6 pour enlever l'eau puis est refroidi dans un échangeur de chaleur 5 à plaques et à ailettes où il se condense partiellement. Le débit partiellement condensé est envoyé à un séparateur de phases 22 opérant à une température en dessous de 0°C. Le liquide 202 produit par le séparateur de phases 22 constitue un produit riche en dioxyde de carbone, éventuellement contenant au moins 70% mol de CO<sub>2</sub>, voire au moins 90% mol de CO<sub>2</sub>. Le gaz 201 du séparateur de phases 22 est partiellement condensé dans les tubes de l'échangeur de chaleur à tubes et à calandre 10 (en anglais « shell and tube »). Le fluide biphasique est séparé dans un deuxième séparateur de phases 7. Les liquides 202,9 du premier séparateur de phases 22 et du deuxième séparateur de phases 22 sont mélangés, détendus par une vanne 203 et envoyés comme débit 204 à une colonne de distillation 206.
- [0067] Le liquide de cuve 207 de la colonne de distillation est un débit constituant un produit riche en CO<sub>2</sub>. Le débit 207 est détendu par une vanne 208 et envoyé à l'échangeur 10 où il se vaporise partiellement. Le gaz formé 209 est réchauffé dans l'échangeur 6, comprimé par un compresseur 210 et constitue une partie du produit riche en CO<sub>2</sub> 211. Le reste du produit 211 est produit en pressurant le liquide 213 de l'échangeur 10 avec une pompe 215 pour former un liquide pressurisé 219 qui passe dans une vanne 220 et puis est vaporisé dans l'échangeur 6 pour former un débit à mélanger avec le débit 209.
- [0068] Le gaz de tête 221 de la colonne de distillation 206 est réchauffé dans l'échangeur de chaleur 6, comprimé par le compresseur 223 et rejoint le débit 1 en amont de l'échangeur de chaleur 6.
- [0069] Le gaz 11 du deuxième séparateur de phases 7 est réchauffé dans le séparateur de phases et puis est séparé par un procédé 15 permettant de produire un gaz 19 enrichi en dioxyde de carbone par rapport au gaz 13 et de préférence par rapport au gaz 1. Le gaz 19 peut également être significativement appauvri en C<sub>2</sub>+ si le gaz 1 en contient.
- [0070] Le procédé permettant cet enrichissement et éventuellement cet appauvrissement peut être un procédé de perméation, par exemple par membrane et/ou un procédé d'adsorption, par exemple TSA, PSA, VSA.
- [0071] Le procédé 15 produit également un gaz 17 appauvri en CO<sub>2</sub> et enrichi en au moins un composant léger. Le gaz 17 peut être enrichi en au moins un composant choisi dans le groupe CH<sub>4</sub>, CO, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, Ar, C<sub>2</sub>+.
- [0072] Le gaz 19 est refroidi dans l'échangeur 6 après compression par un compresseur 21A,21B,21C. Il est partiellement condensé dans l'échangeur 6 et séparé dans un

deuxième séparateur de phases 23 qui produit un liquide 27 enrichi en dioxyde de carbone. Il produit également un débit appauvri en dioxyde de carbone 25 qui est mélangé avec le gaz 221 venant de la colonne de distillation. Le liquide 27 enrichi en dioxyde de carbone est détendu par la vanne 28 et envoyé à la colonne de distillation 206 comme débit d'alimentation. Ainsi le gaz 19 qui constitue ici le perméat des membranes n'est pas mélangé avec le gaz 1 à purifier mais est refroidi et condensé partiellement dans un pot séparateur dédié 23.

- [0073] Une partie 217 du liquide pompe 213 est détendue et vaporisée dans l'échangeur 5. Ensuite elle est envoyée en cuve de la colonne de distillation 206 sans avoir été refroidi dans l'échangeur de chaleur 5, pour apporter de la chaleur de rebouillage. C'est la vaporisation de ce liquide 213 qui apportera le palier de vaporisation supplémentaire vers  $-15^{\circ}\text{C}$  ( $\sim 25$  bara).
- [0074] Le procédé de la [Fig.3] utilise un procédé de condensation partielle suivie de distillation pour séparer le courant d'alimentation 1.
- [0075] Le procédé diffère de celui de la [Fig.2] en ce qu'il comprend une étape de strippage de  $\text{C}_2+$ . Comme la [Fig.2], il utilise une pression intermédiaire de condensation.
- [0076] Le courant 1 comprend au moins du  $\text{CO}_2$ , éventuellement moins que 50% mol de  $\text{CO}_2$  ainsi qu'au moins un composé léger choisi parmi  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{N}_2$ ,  $\text{O}_2$ , Ar. Le courant peut également contenir des hydrocarbures  $\text{C}_2+$ . Dans cette variante le courant 1 est humide.
- [0077] Il passe dans une vanne 2, dans deux systèmes 4,6 pour enlever l'eau puis est refroidi dans un échangeur de chaleur 5 à plaques et à ailettes où il se condense partiellement. Le débit partiellement condensé est envoyé à un séparateur de phases 22 opérant à une température en dessous de  $0^{\circ}\text{C}$ . Le liquide 202 produit par le séparateur de phases 22 constitue un produit riche en dioxyde de carbone, éventuellement contenant au moins 70% mol de  $\text{CO}_2$ , voire au moins 90% mol de  $\text{CO}_2$ . Le gaz 201 du séparateur de phases 22 est partiellement condensé dans l'échangeur 10 (en anglais « shell and tube »). Le fluide biphasique est séparé dans un deuxième séparateur de phases 7. Les liquides 202,9 du premier séparateur de phases 22 et du deuxième séparateur de phases 22 sont mélangés, détendus par une vanne 203 et envoyés comme débit 204 à une colonne de distillation 206.
- [0078] Le liquide de cuve 207 de la colonne de distillation est un débit constituant un produit riche en  $\text{CO}_2$ . Le débit 207 est détendu par une vanne 208 et envoyé à l'échangeur 10 où il se vaporise partiellement. Le gaz formé 209 est réchauffé dans l'échangeur 6, comprimé par un compresseur 210 et constitue une partie du produit riche en  $\text{CO}_2$  211. Le reste du produit 211 est produit en pressurant le liquide 213 de l'échangeur 10 avec une pompe 215 pour former un liquide pressurisé 219 qui passe dans une vanne 220 et puis est vaporisé dans l'échangeur 6 pour former un débit à

mélanger avec le débit 209.

- [0079] Le gaz de tête 221 de la colonne de distillation 206 est réchauffé dans l'échangeur de chaleur 6, comprimé par le compresseur 223 et rejoint le débit 1 en amont de l'échangeur de chaleur 6.
- [0080] Le gaz 11 du deuxième séparateur de phases 7 est réchauffé dans le séparateur de phases et puis est séparé par un procédé 15 permettant de produire un gaz 19 enrichi en dioxyde de carbone par rapport au gaz 13 et de préférence par rapport au gaz 1. Le gaz 19 peut également être significativement appauvri en  $C_2+$  si le gaz 1 en contient.
- [0081] Le procédé permettant cet enrichissement et éventuellement cet appauvrissement peut être un procédé de perméation, par exemple par membrane et/ou un procédé d'adsorption, par exemple TSA, PSA, VSA.
- [0082] Le procédé 15 produit également un gaz 17 appauvri en  $CO_2$  et enrichi en au moins un composant léger. Le gaz 17 peut être enrichi en au moins un composant choisi dans le groupe  $CH_4$ ,  $CO$ ,  $H_2$ ,  $N_2$ ,  $O_2$ ,  $Ar$ ,  $C_2+$ .
- [0083] Le gaz 19 est refroidi dans l'échangeur 6 après compression par un compresseur 21A,21B,21C. Il est partiellement condensé dans l'échangeur 6 et séparé dans un deuxième séparateur de phases 23 qui produit un liquide 27 enrichi en dioxyde de carbone. Il produit également un débit appauvri en dioxyde de carbone 25. Le liquide 27 enrichi en dioxyde de carbone est détendu par la vanne 28 et envoyé à la colonne de distillation 206 comme débit d'alimentation. Ainsi le gaz 19 qui constitue ici le perméat des membranes n'est pas mélangé avec le gaz 1 à purifier mais est refroidi et condensé partiellement dans un pot séparateur dédié 23.
- [0084] Optionnellement une partie 217 du liquide pompe 213 peut être détendue et vaporisée dans l'échangeur 5. Ensuite elle est envoyée en cuve de la colonne de distillation 206 sans avoir été refroidi dans l'échangeur de chaleur 5, pour apporter de la chaleur de rebouillage.
- [0085] Le débit appauvri en dioxyde de carbone 25 est mélangé avec le gaz 217 et sert également au rebouillage de la colonne 206.
- [0086] Eventuellement une partie du premier fluide 19 comprimé dans les compresseurs 21A,21B,21C peut être envoyée en cuve de la colonne pour s'y séparer (illustré en pointillés).

## Revendications

- [Revendication 1] Procédé de séparation d'un courant d'alimentation (1) comprenant au moins du CO<sub>2</sub> ainsi qu'au moins un composé léger choisi parmi CH<sub>4</sub>, CO, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, Ar, C<sub>2</sub>+ comprenant au moins les étapes suivantes :
- a. Production d'un produit riche en CO<sub>2</sub> (9,207) et d'un gaz appauvri en CO<sub>2</sub> (11, 221) par un procédé de condensation partielle et éventuellement de distillation utilisant au moins un premier pot de séparation de phase (7, 10, 22,206),
  - b. Introduction du gaz appauvri en CO<sub>2</sub> dans un procédé de perméation sélectif au CO<sub>2</sub> (15) afin d'obtenir comme perméat un premier fluide (19) dont la concentration en CO<sub>2</sub> est supérieure à celle du courant d'alimentation et comme non-perméat un fluide (17) enrichi en au moins un des composés légers et
  - c. Production d'un second produit riche en CO<sub>2</sub> (27) et d'un second gaz appauvri en CO<sub>2</sub> (25) à partir du premier fluide chargé en CO<sub>2</sub> obtenu en b) ou d'un fluide, dérivé de celui-ci par un procédé de condensation partielle et éventuellement de distillation, utilisant un deuxième pot de séparation de phase (23) différent du premier pot de séparation de phase, aucune partie du premier fluide n'étant mélangée avec le courant d'alimentation.
- [Revendication 2] Procédé selon la revendication 1 où le courant d'alimentation (1) contient au plus 50% mol de CO<sub>2</sub> et le premier fluide (19) contient au moins 70% mol de CO<sub>2</sub>.
- [Revendication 3] Procédé selon l'une des revendications précédentes dans lequel le courant (1) contient du C<sub>2</sub>+ et le fluide enrichi en composé léger est enrichi en C<sub>2</sub>+
- [Revendication 4] Procédé selon l'une des revendications précédentes dans lequel :
- au moins lors de l'étape a), le procédé comprend de la distillation dans une colonne de distillation (206)
  - une partie du premier fluide (19) est injectée sous forme gazeuse en cuve de la colonne de distillation.
- [Revendication 5] Procédé selon la revendication 4 dans lequel la partie du premier fluide

est un fluide provenant d'une étape de compression (21A,21B,21C) en aval du procédé de perméation sélectif (15).

[Revendication 6]

Procédé selon l'une des revendications précédentes dans lequel au moins lors de l'étape a), le procédé comprend de la distillation dans une colonne de distillation (206) et au moins une partie du second produit (27) alimente la colonne de distillation.

[Revendication 7]

Procédé selon l'une des revendications précédentes dans lequel l'étape a) comprend une condensation partielle dans un échangeur de chaleur à tubes et à calandre.

[Revendication 8]

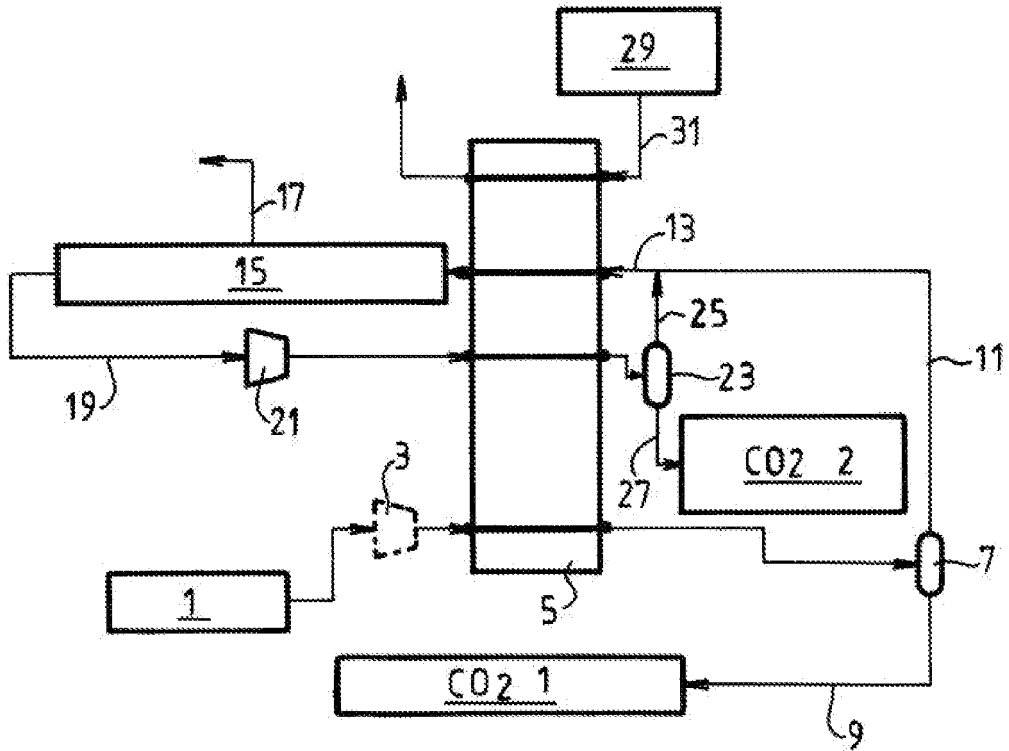
Appareil de séparation d'un courant d'alimentation (1) comprenant au moins du CO<sub>2</sub> ainsi qu'au moins un composé léger choisi parmi CH<sub>4</sub>, CO, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, Ar, C<sub>2</sub>+ comprenant au moins les étapes suivantes :

a) Un appareil de condensation partielle et éventuellement de distillation comprenant au moins un premier pot de séparation de phase (7, 10, 22,206) pour produire un produit riche en CO<sub>2</sub> (9,207) et d'un gaz appauvri en CO<sub>2</sub> (11, 221),

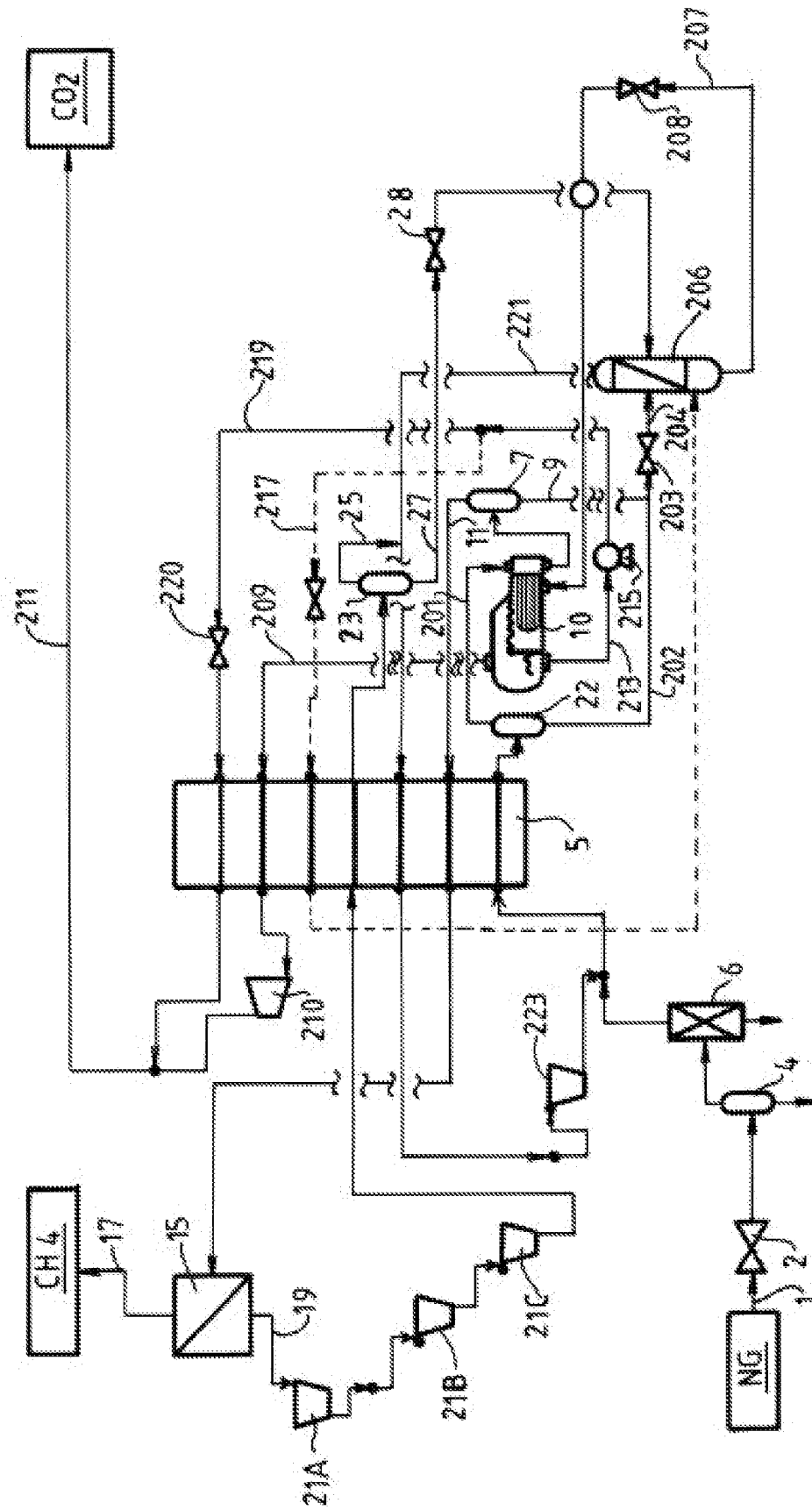
b) Un appareil de perméation sélectif au CO<sub>2</sub> (15) alimenté par du gaz appauvri en CO<sub>2</sub> afin d'obtenir comme perméat un premier fluide (19) dont la concentration en CO<sub>2</sub> est supérieure à celle du courant d'alimentation et comme non-perméat un fluide (17) enrichi en au moins un des composés légers et

c) Un appareil de condensation partielle et éventuellement de distillation, comprenant un deuxième pot de séparation de phase (23) différent du premier pot de séparation de phase pour produire un second produit riche en CO<sub>2</sub> (27) et d'un second gaz appauvri en CO<sub>2</sub> (25) à partir du premier fluide chargé en CO<sub>2</sub> obtenu en b), aucune partie du premier fluide n'étant mélangée avec le courant d'alimentation.

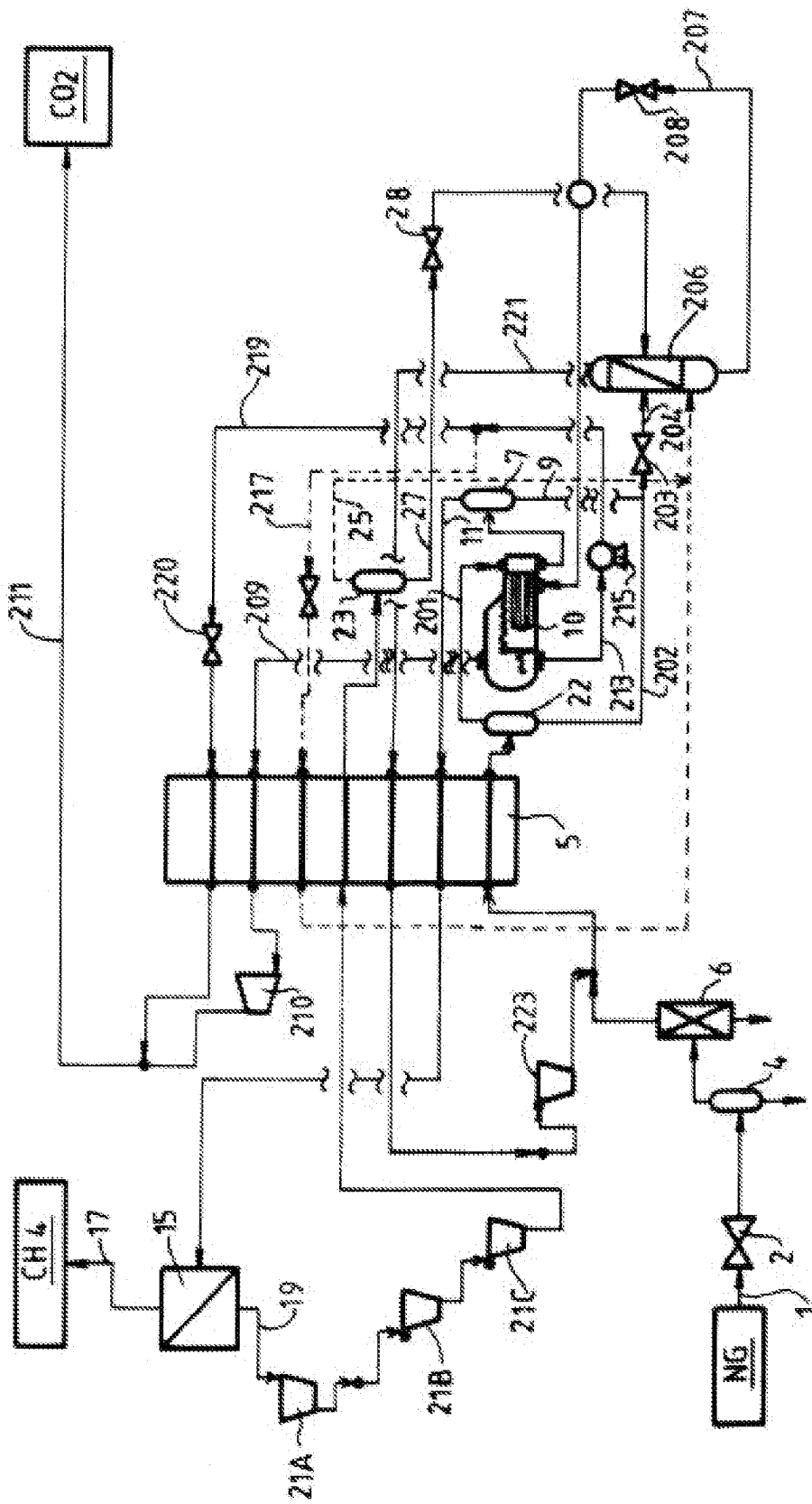
[Fig. 1]



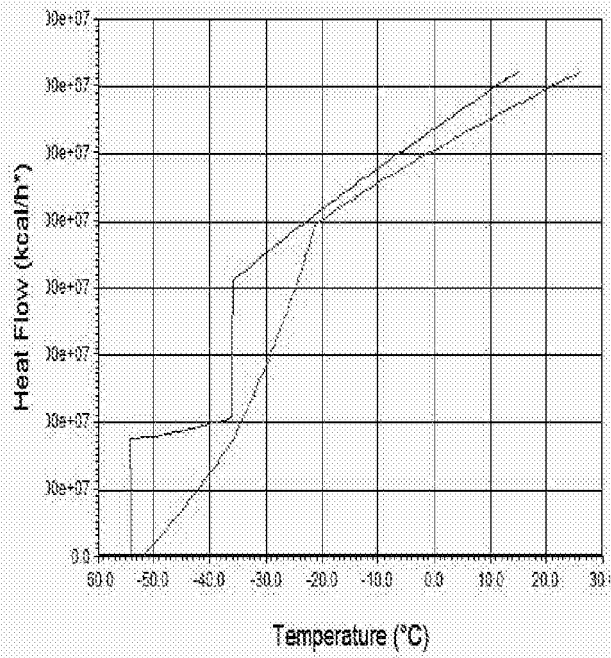
[Fig. 2]



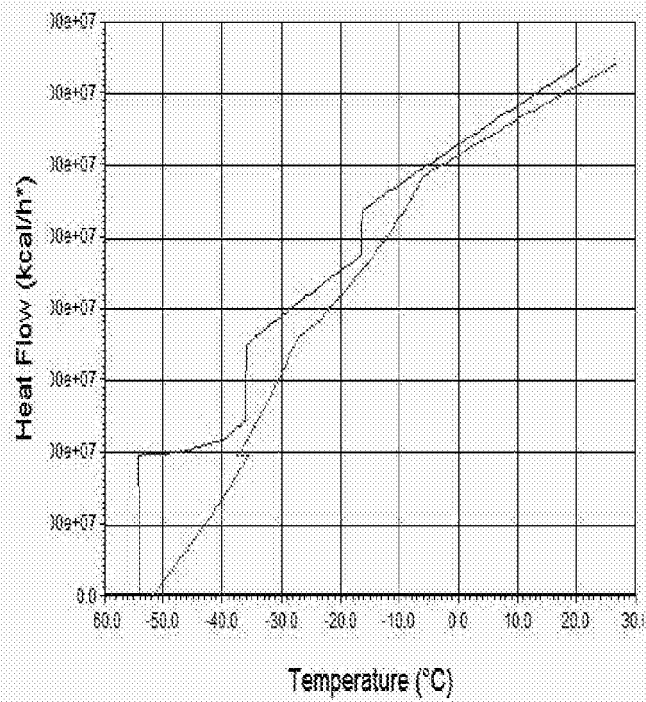
[Fig. 3]



[Fig. 4]



[Fig. 5]



# RAPPORT DE RECHERCHE

articles L.612-14, L.612-53 à 69 du code de la propriété intellectuelle

## OBJET DU RAPPORT DE RECHERCHE

---

L'I.N.P.I. annexe à chaque brevet un "RAPPORT DE RECHERCHE" citant les éléments de l'état de la technique qui peuvent être pris en considération pour apprécier la brevetabilité de l'invention, au sens des articles L. 611-11 (nouveau) et L. 611-14 (activité inventive) du code de la propriété intellectuelle. Ce rapport porte sur les revendications du brevet qui définissent l'objet de l'invention et délimitent l'étendue de la protection.

Après délivrance, l'I.N.P.I. peut, à la requête de toute personne intéressée, formuler un "AVIS DOCUMENTAIRE" sur la base des documents cités dans ce rapport de recherche et de tout autre document que le requérant souhaite voir prendre en considération.

## CONDITIONS D'ETABLISSEMENT DU PRESENT RAPPORT DE RECHERCHE

---

Le demandeur a présenté des observations en réponse au rapport de recherche préliminaire.

Le demandeur a maintenu les revendications.

Le demandeur a modifié les revendications.

Le demandeur a modifié la description pour en éliminer les éléments qui n'étaient plus en concordance avec les nouvelles revendications.

Les tiers ont présenté des observations après publication du rapport de recherche préliminaire.

Un rapport de recherche préliminaire complémentaire a été établi.

## DOCUMENTS CITES DANS LE PRESENT RAPPORT DE RECHERCHE

---

La répartition des documents entre les rubriques 1, 2 et 3 tient compte, le cas échéant, des revendications déposées en dernier lieu et/ou des observations présentées.

Les documents énumérés à la rubrique 1 ci-après sont susceptibles d'être pris en considération pour apprécier la brevetabilité de l'invention.

Les documents énumérés à la rubrique 2 ci-après illustrent l'arrière-plan technologique général.

Les documents énumérés à la rubrique 3 ci-après ont été cités en cours de procédure, mais leur pertinence dépend de la validité des priorités revendiquées.

Aucun document n'a été cité en cours de procédure.

**1. ELEMENTS DE L'ETAT DE LA TECHNIQUE SUSCEPTIBLES D'ETRE PRIS EN  
CONSIDERATION POUR APPRECIER LA BREVETABILITE DE L'INVENTION**

US 2012/006054 A1 (KELLER ARNOLD [US])  
12 janvier 2012 (2012-01-12)

FR 2 997 866 A3 (AIR LIQUIDE [FR])  
16 mai 2014 (2014-05-16)

US 2017/081186 A1 (CHAMBRON NICOLAS [FR]  
ET AL) 23 mars 2017 (2017-03-23)

WO 2016/156691 A1 (AIR LIQUIDE [FR])  
6 octobre 2016 (2016-10-06)

**2. ELEMENTS DE L'ETAT DE LA TECHNIQUE ILLUSTRANT L'ARRIERE-PLAN  
TECHNOLOGIQUE GENERAL**

NEANT

**3. ELEMENTS DE L'ETAT DE LA TECHNIQUE DONT LA PERTINENCE DEPEND  
DE LA VALIDITE DES PRIORITES**

NEANT