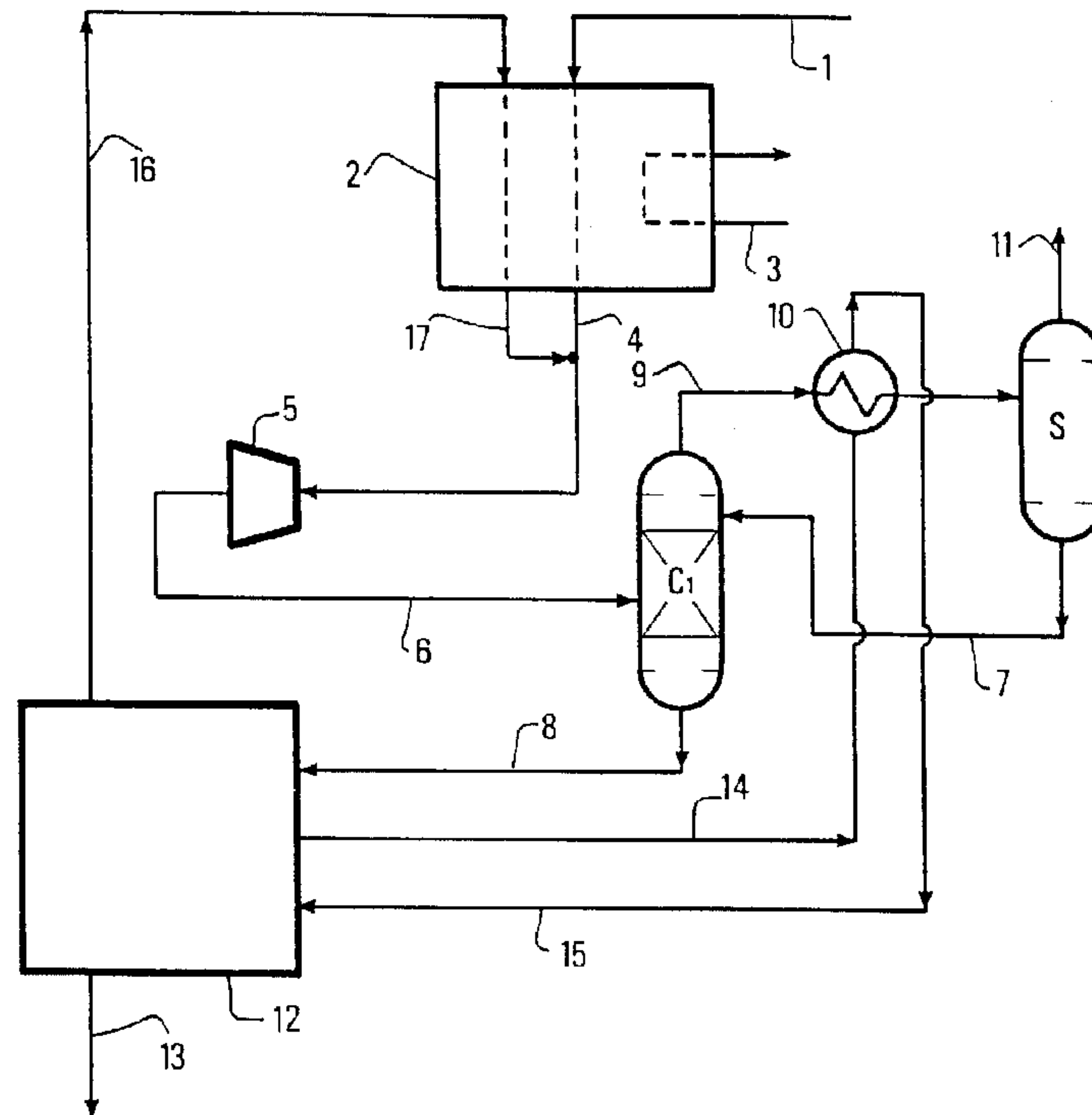




(22) Date de dépôt/Filing Date: 1998/12/21  
(41) Mise à la disp. pub./Open to Public Insp.: 1999/06/22  
(45) Date de délivrance/Issue Date: 2008/02/12  
(30) Priorité/Priority: 1997/12/22 (FR97 16 275)

(51) Cl.Int./Int.Cl. *F25J 3/02* (2006.01),  
*F25J 1/02* (2006.01)  
(72) Inventeur/Inventor:  
CAPRON, PIERRE, FR  
(73) Propriétaire/Owner:  
INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE, FR  
(74) Agent: ROBIC

(54) Titre : PROCÉDE DE LIQUEFACTION D'UN GAZ, NOTAMMENT UN GAZ NATUREL OU AIR, COMPORTANT UNE PURGE A MOYENNE PRESSION ET SON APPLICATION  
(54) Title: GAS LIQUEFACTION PROCESS AND METHOD, ESPECIALLY FOR NATURAL GAS OR AIR, COMPRISING AVERAGE PRESSURE BLEED



(57) Abrégé/Abstract:

- Procédé de liquéfaction d'un composé A à partir d'un mélange comportant au moins ledit composé A et un ou plusieurs composés B, ledit mélange étant disponible à une pression P1, au cours duquel on effectue la séparation du ou desdits composés B et/ou la séparation du composé A par distillation à une pression sensiblement voisine de la pression P2 pour produire au moins un flux F1 comportant en majorité ledit composé A et au moins un flux F4 comportant la quasi-totalité des composés B.
- Application pour extraire le méthane et/ou l'hélium lors de la liquéfaction d'un gaz naturel

PRECIS DE LE DIVULGATION

PROCÉDÉ DE LIQUÉFACTION D'UN GAZ, NOTAMMENT UN GAZ NATUREL OU AIR, COMPORTANT UNE PURGE À MOYENNE PRESSION ET SON APPLICATION

- Procédé de liquéfaction d'un composé A à partir d'un mélange comportant au moins ledit composé A et un ou plusieurs composés B, ledit mélange étant disponible à une pression P1, au cours duquel on effectue la séparation du ou desdits composés B et/ou la séparation du composé A par distillation à une pression sensiblement voisine de la pression P2 pour produire au moins un flux F1 comportant en majorité ledit composé A et au moins un flux F4 comportant la quasi-totalité des composés B.
- Application pour extraire le méthane et/ou l'hélium lors de la liquéfaction d'un gaz naturel

PROCÉDÉ DE LIQUÉFACTION D'UN GAZ, NOTAMMENT UN GAZ NATUREL OU AIR, COMPORTANT UNE PURGE À MOYENNE PRESSION ET SON APPLICATION

La présente invention concerne un procédé et un dispositif de liquéfaction d'un composé A à partir d'un mélange constitué du composé A et d'un ou plusieurs composés B, chacun des composés B ayant un point d'ébullition inférieur à celui du composé A.

La méthode selon l'invention s'applique notamment pour extraire l'azote et/ou l'hélium, au cours d'un procédé de liquéfaction du gaz naturel constitué en majorité de méthane.

L'art antérieur décrit différents procédés pour liquéfier le gaz naturel. Dans la plupart de ces procédés, par exemple ceux décrits dans les brevets US 4,490,867 et US 4,445,916, la liquéfaction comporte une étape de réfrigération et une étape de dégazolinage, qui sont suivies d'une étape de liquéfaction par réfrigération du gaz dégazoliné en utilisant un mélange de réfrigérants circulant en boucle fermée. Après l'étape de liquéfaction, on extrait les composés non combustibles non désirables, tels que l'azote et/ou de l'hélium, par détente après l'étape de réfrigération. Le gaz de flash issu du séparateur basse température placé après la détente contient la majorité de ces composés non combustibles présents dans la charge. Il peut être utilisé comme fuel gaz car il contient en général une fraction importante de composés combustibles présents initialement. Le liquide issu du séparateur basse-température constitue le GNL commercial. Le gaz naturel liquéfié n'est pas recyclé.

On désigne sous l'expression « composés non combustibles non désirables », des composés qui abaissent le pouvoir calorifique du gaz et dont la teneur est limitée dans le gaz naturel commercial.

Selon un autre principe, certains bailleurs de procédé utilisent des étapes de détente, de recompression et de recyclage du gaz naturel, qui sont couplées en général à des étapes préliminaires de réfrigération externe par un mélange de réfrigérant en boucle fermée, tel que celui décrit dans le brevet US-5,363,655.

Au cours de ces procédés de liquéfaction, le gaz naturel en général préréfrigéré par un premier cycle externe est détendu, après dégazolinage, à travers une série de turbines, recomprimé puis recyclé. Ces procédés ne permettent pas l'utilisation de gaz naturel contenant une teneur notable d'azote ou d'hélium. En effet au-delà d'une certaine teneur, même faible, l'azote ou l'hélium s'accumulent dans la boucle de recyclage et rendent le procédé non économique, voire même impossible techniquement.

La présente invention propose de remédier aux inconvénients de l'art antérieur, en procédant à l'extraction des composés non désirables au cours du procédé de liquéfaction. Les composés non désirables sont extraits à l'issue de la première étape de détente du procédé de liquéfaction, c'est-à-dire à une valeur de pression moyenne.

Avantageusement, le procédé selon l'invention peut s'appliquer dans tout procédé de liquéfaction d'un composé A à partir d'un mélange de ce composé A et de composés non désirables B qui présentent des points d'ébullition inférieurs à celui du composé A.

L'invention concerne un procédé de liquéfaction d'un composé A (méthane) à partir d'un mélange comportant au moins ledit composé A (méthane) et un ou plusieurs composés B (azote et/ou hélium), chacun desdits composés B ayant un point d'ébullition inférieur à celui dudit composé A, ledit mélange étant disponible sous une pression P1, ledit procédé de liquéfaction comportant au moins deux étapes de détente successives, et produisant :

- d'une part un effluent gazeux sous une pression P2 inférieure à P1, constitué de la quasi-totalité du ou desdits composés B et pouvant contenir des proportions variables du composé A, et
- d'autre part, un effluent liquéfié à une pression P3 inférieure à P2, constitué de la majeure partie dudit composé A et appauvri en majorité du ou desdits composés B.

Le procédé est caractérisé en ce que l'on effectue la séparation du ou desdits composés B et/ou la séparation du composé A par distillation à une pression sensiblement voisine de la pression P2 pour produire au moins un flux F1 comportant en majorité ledit composé A et au moins un flux F4 comportant au moins le ou lesdits composés B.

On peut opérer la distillation à l'intérieur d'une colonne de distillation et générer le reflux de la colonne par échange de chaleur entre le flux F2 issu de la tête de colonne de distillation et au moins un des fluides froids récupérés à l'issue des étapes de détente ultérieures du procédé de liquéfaction.

Par exemple, on utilise une partie du liquide produit à l'issue de la deuxième étape de détente.

La valeur de la pression avant la première détente est par exemple comprise entre 3 et 15 MPa et après cette première détente par exemple comprise entre 1 et 5 MPa.

La première détente peut être réalisée à une valeur de température comprise entre -100°C et 0°C.

Une manière de procéder consiste à utiliser des turbo-expandeurs pour réaliser les opérations de détentes.

5 Selon un mode de mise en oeuvre du procédé, on utilise au moins une partie du ou des constituants extraits (B), comme agent de réfrigération pour le procédé de liquéfaction.

Le procédé de liquéfaction peut comporter au moins 2 étapes de détente et de préférence 2 à 4 étapes de détente.

10

Le procédé selon l'invention s'applique particulièrement bien pour extraire l'azote et/ou l'hélium (composés B) au cours d'un procédé de liquéfaction d'un gaz tel que le gaz naturel comportant du méthane (composé A).

15

Il trouve aussi son application pour réaliser l'extraction de l'argon et/ ou de l'azote au cours d'un procédé de liquéfaction de l'air, destiné à produire entre autre de l'oxygène.

20

Par rapport à l'art antérieur, la méthode selon l'invention présente l'avantage de liquéfier un gaz naturel riche en azote et/ou en hélium, en cycle ouvert, en évitant l'accumulation de ces composés, et en produisant une purge à moyenne pression pouvant alimenter des turbines à gaz, la valeur de la pression moyenne étant de l'ordre de 3 MPa. La purge moyenne pression est composée des composés non désirables à extraire et d'une quantité ajustable de gaz combustible.

25

### Description brève des figures

L'invention pourra bien être comprise et tous ses avantages apparaîtront clairement à la lecture de la description d'exemples de réalisation du dispositif selon l'invention qui suit, illustrée par les figures annexées dans lesquelles :

30

- les figures 1A et 1B illustrent schématiquement le principe de la méthode selon l'invention appliquée lors d'un procédé de liquéfaction d'un gaz naturel,
- les figures 2A, 2B, 3 et 4 sont utilisées pour l'exemple numérique donné.

35

La figure 1A montre schématiquement un exemple de dispositif pour mettre en oeuvre la méthode d'extraction selon l'invention de l'azote et/ou de l'hélium qui se trouvent présents en teneur notable (de l'ordre de 1 à 10% et au moins égale à 1%)

dans un gaz naturel comportant en majorité du méthane. L'étape d'extraction est réalisée à moyenne pression et après la première étape d'un procédé de liquéfaction.

Sans sortir du cadre de l'invention, il est possible d'étendre la méthode à un autre fluide comportant un constituant principal A et des constituants B non  
5 désirables qui présentent la particularité d'être plus volatils que le constituant de type A au point de bulle.

Les constituants présents dans le gaz naturel qui sont moins volatils que le méthane sont par exemple extraits au cours d'une étape de dégazolinage décrite par exemple à la figure 3 et connue de l'Homme du métier (article de Chen-Hwa Chiu  
10 intitulé "LPG recovery un baseload LNG plant" paru dans GASTECH 96 Vienna, 3-6 december 1996 Conference papers Vol 2 Session 10).

Le gaz naturel est introduit par un conduit 1 dans un dispositif de réfrigération 2 associé à un cycle de réfrigération référencé 3. Le gaz naturel refroidi est évacué à une pression P1 et à une température T1 par un conduit 4, puis détendu à travers  
15 une turbine de détente 5 ou encore une vanne de détente jusqu'à un niveau de pression P2 qui est supérieur à la valeur de pression P3 du gaz naturel liquéfié évacué par un conduit 13 (à l'issue du procédé de liquéfaction).

Le gaz naturel détendu est introduit par un conduit 6 dans un contacteur C1, qui est pourvu, en tête d'un conduit d'introduction 7 d'un reflux (troisième flux F3),  
20 d'un conduit d'évacuation 8 d'un premier flux F1 de gaz naturel comportant principalement du méthane, et d'un conduit d'évacuation 9 d'un second flux F2 composé de méthane et de la majorité de l'azote et/ou de l'hélium initialement présents dans le gaz naturel introduit par le conduit 1.

Le second flux F2 est refroidi à travers un condenseur 10 pour être envoyé  
25 vers un séparateur S. En sortie de ce séparateur, on évacue en tête par un conduit 11, l'azote et/ou l'hélium qui ont été séparés et qui sont accompagnés d'une quantité variable de méthane, et par le conduit 7, le troisième flux F3 formé en majorité de méthane qui est utilisé comme reflux dans le contacteur C1. Le mélange d'azote et/ou de l'hélium et de méthane constitue la purge ou flux F4.

30 Le premier flux F1 extrait par le conduit 8 et comportant du méthane en majorité, est envoyé vers une ou plusieurs étapes de traitement ultérieures, référencées 12 sur la figure, pour obtenir le gaz naturel sous forme liquide à la pression P3. Ce gaz liquéfié est ensuite évacué par le conduit 13, par exemple vers une cuve de stockage, ou envoyé dans une conduite de transport.

35 La méthode d'extraction à moyenne pression et selon l'invention de l'azote et/ou de l'hélium du gaz naturel comporte donc :

- une première étape de détente (turbine 5), le gaz naturel étant, avant cette étape de détente, à une pression comprise entre 3 et 15 MPa, et après détente à une pression variant entre 1 et 5 MPa par exemple. La température du gaz naturel se situe dans la fourchette variant entre - 100 et 0°C,
- 5 • une étape de distillation (C1) du gaz naturel détendu où l'on utilise un reflux comportant du méthane pour extraire l'azote et/ou l'hélium du gaz naturel,
- à l'issue de l'étape de distillation on obtient un premier flux F1 comportant en majorité du méthane et un second flux F2 comportant du méthane et de l'azote et/ou de l'hélium,
- 10 • à l'issue d'une étape de séparation suivant l'étape de distillation, on produit un flux F4 ou purge constitué d'azote et/ou d'hélium et d'une teneur variable en méthane.

Selon un mode de réalisation, l'agent réfrigérant utilisé dans le condenseur 10 peut être formé par une fraction du gaz naturel extraite d'une étape ultérieure du procédé de liquéfaction, qui est envoyée vers le condenseur 10 par un conduit 14, et recyclée par un conduit 15 et après échange thermique avec le second flux F2, vers les étapes de traitement ultérieures du procédé de liquéfaction. Avantageusement, cette fraction se présente sous une forme liquide.

Avantageusement, on ajuste le débit d'injection du fluide réfrigérant pour contrôler la composition du flux F4 extrait en tête du ballon 5 et produire un fluide dont les spécificités de pouvoir calorifique correspondent aux besoins en fuel gaz de l'unité de GNL.

Dans le cas d'un procédé de liquéfaction par détente, les étapes ultérieures produisent une fraction gazeuse avec la phase liquide formant le GNL ou gaz naturel liquéfié. Cette fraction gazeuse est recyclée par un conduit 16 vers le dispositif de réfrigération 2 avant d'être évacuée par un conduit 17 et mélangée avec le gaz naturel refroidi évacué par le conduit 4.

La figure 1B schématise une variante de réalisation qui intègre à l'intérieur d'une même enceinte les étapes de mise en contact, de condensation et de séparation correspondant aux références C1, 10 et S sur la figure 1A.

On utilise par exemple un échangeur déphlegmateur D1 qui est pourvu du conduit 6, du conduit 8 et du conduit 11 de la figure 1A.

Les conduits 14 et 15 permettent la circulation du mélange de réfrigérant nécessaire pour condenser le méthane à l'intérieur de l'échangeur déphlegmateur D1.

Le méthane à l'intérieur de l'échangeur déphlegmateur se condense au moins partiellement et s'écoule en sens descendant, en jouant le rôle de reflux permettant de réaliser la séparation des composés non combustibles et non désirables du méthane.

5 La circulation du mélange de réfrigérant peut être réalisée sur une portion du déphlegmateur qui peut être concentrée au niveau d'une zone en haut du déphlegmateur, ou encore s'étendre sur la majorité de sa longueur.

Sans sortir du cadre de l'invention, le mélange de réfrigérants peut être remplacé par tout moyen de réfrigération équipant le déphlegmateur.

10

Un exemple numérique est donné en relation avec les figures 2A, 2B, 3 et 4 pour illustrer l'application de la méthode selon l'invention à un procédé de liquéfaction du gaz naturel.

15 L'étape d'extraction de l'azote et/ou de l'hélium est réalisée par exemple après la première étape de détente selon le schéma des figures 2A et 2B scindées en deux pour des raisons de clarté alors que les figures 3 et 4 montrent les étapes de dégazolinage et de stabilisation des condensats.

La composition du gaz naturel exprimée en fraction molaire est la suivante :

20

C1	89,42	%mol
N2	4,19	
C2	5,23	
C3	1,81	
25 iC4	0,35	
nC4	0,55	
iC5	0,19	
nC5	0,15	
nC6	0,11	

30

Avant de procéder à sa liquéfaction, le gaz naturel aura été traité dans le but d'éliminer l'eau et/ou les gaz acides.

35 Dans cet exemple d'application, le dispositif de réfrigération 2 (figure 2A) comporte trois échangeurs E1, E2, et E3 disposés en série.

Le gaz naturel est introduit par le conduit 1 dans le premier échangeur E1 à une pression voisine de 10 MPa et à une température de 45°C. Il en ressort refroidi à

une température voisine de 11°C par un conduit 20 pour être envoyé vers une étape de dégazolinage réalisée selon un schéma décrit à la figure 3 dont les explications sont données après.

Le gaz naturel débarrassé de ses fractions les plus lourdes après l'étape de  
5 dégazolinage est ensuite introduit par un conduit 21 dans l'échangeur E3 où il est réfrigéré jusqu'à une température voisine de - 70°C. Il est envoyé par le conduit 4 et à une pression de 9 MPa vers l'étape d'extraction des constituants B, ici l'azote et/ou l'hélium.

Cette extraction est réalisée selon un schéma sensiblement identique à celui  
10 décrit à la figure 1 en mettant en oeuvre les étapes décrites à la figure 2B.

Le gaz naturel extrait par le conduit 4 est détendu à travers le dispositif de détente X1 (référéncé 5 sur la figure 1), par exemple une turbine liquide en entrée et diphasique gaz-liquide en sortie, jusqu'à une pression suffisamment basse pour vaporiser la majorité de l'azote. Le gaz naturel détendu est ensuite envoyé par le  
15 conduit 6 vers le contacteur C1 en sortie duquel on évacue, par le conduit 8, le premier flux F1 comportant du méthane en majorité qui se présente sous une forme liquide au point de bulle, et par le conduit 9, le second flux F2 composé au moins du méthane, de l'azote et/ou de l'hélium.

Le second flux F2 passe à travers le condenseur 10 pour obtenir la  
20 condensation du méthane qui ensuite est séparé de l'azote et/ou de l'hélium dans le ballon de séparation S.

La fraction liquide issue du ballon S, enrichie en méthane séparé est renvoyée vers le contacteur C1 par le conduit 7 pour servir de reflux (flux F3), alors que la fraction gazeuse enrichie en azote et/ou en hélium (flux F4) est évacuée par le  
25 conduit 11 et constitue la purge du système, pouvant être utilisée comme fuel gaz dont la composition en méthane peut être contrôlée et ajustée en fonction de spécificités requises en faisant varier par exemple le débit de réfrigérant 14. Le flux F4, évacué par le conduit, est envoyé vers un échangeur de chaleur E5 où il est utilisé comme agent réfrigérant avant d'être évacué sans être recyclé vers le procédé de  
30 liquéfaction

Le premier flux F1 de gaz naturel se présentant sous forme liquide est envoyé par le conduit 8 vers une deuxième étape du procédé de liquéfaction comportant une turbine de détente X2 à travers laquelle le premier flux F1 est détendu jusqu'à une pression voisine de 1MPa pour produire une phase gazeuse et une phase liquide.  
35 Ces deux phases sont séparées dans un ballon DX2, en sortie duquel la phase liquide est évacué par un conduit 23, et la phase gazeuse est évacuée par un conduit 24.

La phase liquide peut être séparée en une première fraction L1 de liquide qui est envoyée par le conduit 14 dans le condenseur 10 pour jouer le rôle de réfrigérant, et une seconde fraction L2 de liquide envoyée par un conduit 25 vers une troisième étape du procédé de liquéfaction où elle est détendue à travers une turbine de détente X3, jusqu'à une pression 0,3 MPa pour produire une phase liquide et une phase gazeuse envoyées vers un ballon DX3 par un conduit 26.

En sortie du ballon DX3, on extrait la phase liquide par un conduit 27 et la phase gazeuse par un conduit 28.

La phase liquide est détendue dans une turbine X4 (quatrième étape) jusqu'à une pression de l'ordre de 0,1 MPa choisie pour obtenir une phase liquide et une phase gazeuse à la pression de stockage du gaz naturel liquéfié ou GNL. Ces deux phases sont évacuées par un conduit 30 et séparées dans un ballon DX4 en sortie duquel on extrait le gaz naturel liquéfié par le conduit 13 (figure 1), et une phase gazeuse par un conduit 31.

Le boil-off, produit de la cuve de stockage du GNL non représentée sur la figure, peut être introduit par un conduit 31b pour être mélangé avec la phase gazeuse du conduit 31.

La phase gazeuse issue de ce mélange est comprimée à travers un compresseur KX4 entraîné par la turbine de détente X4, envoyée par un conduit 32 vers un compresseur K4 où elle est comprimée jusqu'à une pression sensiblement voisine de la pression de la phase gazeuse évacuée par le conduit 28 environ à 0,3 MPa. Ces deux phases gazeuses sont réunies pour être comprimées dans un compresseur KX3 entraîné par la turbine X3, puis envoyées par un conduit 33 vers un compresseur K3 et comprimées jusqu'à une pression sensiblement voisine de la pression de la phase gazeuse évacuée par le conduit 24. Ces deux phases gazeuses sont mélangées ensemble avec le flux 52 issu de la vaporisation du réfrigérant 14 et comprimées par un compresseur KX2 entraîné par la turbine X2, envoyées par un conduit 34 dans un compresseur K2 où elles sont comprimées jusqu'à une pression voisine de 3 MPa.

La phase gazeuse issue de K2 est envoyée vers un compresseur KX1 entraîné par la turbine X1, pour donner une phase gazeuse envoyée par un conduit 36 vers un compresseur K1. Préalablement, elle peut être mélangée aux fractions gazeuses provenant du dééthaniseur et du déméthaniseur (figures 3 et 4) introduites par des conduits 37, 38. Le mélange des trois phases gazeuses est comprimé jusqu'à une valeur de pression légèrement supérieure à celle du flux gazeux introduit par le conduit 21 dans l'échangeur E3 (figure 2A). Cette fraction gazeuse est au moins en partie recyclée vers l'échangeur E1 par le conduit 16 après réfrigération

dans un dispositif 39. La valeur de pression est déterminée pour compenser au moins la perte de charge engendrée par les échangeurs E1, E2 et E3 et de façon que le flux principal de gaz naturel introduit par le conduit 1 et le flux de recycle introduit par 16 soient sensiblement à la même pression en sortie d'échangeur E3,  
5 pour une température voisine de  $-70^{\circ}\text{C}$ .

Le flux de recycle (16 et 40) est refroidi par exemple en utilisant comme source de chaleur extérieure référencée 39, de l'eau, de l'air ou un autre agent de réfrigération. Il passe à travers les différents échangeurs E1, E2 et E3 et est évacué par le conduit 17 pour être mélangé avec le gaz naturel issu du conduit 4 (figure 1).

10 A travers ces différents échangeurs, le flux de recycle est successivement refroidi aux températures de  $11^{\circ}\text{C}$ ,  $-29^{\circ}\text{C}$  et  $-70^{\circ}\text{C}$ . Le mélange du flux de gaz naturel recyclé et du flux principal de gaz naturel dans le conduit d'évacuation 4 est réalisé à  $-70^{\circ}\text{C}$  et 9 MPa.

Une partie minoritaire du flux de recycle peut être extraite par un conduit 40,  
15 puis refroidie à l'intérieur d'un échangeur de chaleur E5 en sortie duquel elle est détendue à travers une vanne de détente 41, par exemple, avant d'être mélangée avec le flux issu de la turbine de détente X1. Avantagement pour assurer la réfrigération dans l'échangeur E5, on utilise une partie au moins de la purge froide riche en azote et/ou en hélium provenant du conduit 11.

20 Le fluide réfrigérant utilisé au niveau du condenseur 10 peut être constitué d'une partie du liquide prélevé en cours du procédé de liquéfaction, par exemple au niveau du deuxième étage de détente (X2). Une partie de la fraction liquide comportant du méthane évacuée par le conduit 23 peut être soutirée et envoyée par  
25 le conduit 14 pour jouer le rôle d'agent de réfrigération du condenseur 10. Cette fraction, après échange thermique avec le flux F2 comportant du méthane, de l'azote et/ou de l'hélium, est envoyée par un conduit 50 vers un dispositif de séparation 51 en sortie duquel on évacue en tête par un conduit 52 une phase gazeuse qui est envoyée vers le conduit 24 au niveau du compresseur KX2 et en fond par un conduit  
30 53 une phase liquide qui est reprise par une pompe 54 pour être mélangée avec la phase liquide (flux F1) comportant du méthane extraite par le conduit 8, le mélange des deux étant envoyé vers la turbine de détente X2.

L'utilisation comme agent de réfrigération d'un liquide qui provient d'une des étapes ultérieures de la liquéfaction présente comme avantage d'éviter l'utilisation  
35 d'un cycle froid annexe. Quelque soit le procédé de réfrigération, la présente invention présente comme avantage de pouvoir condenser la fraction de méthane nécessaire correspondant à la composition optimale de la purge (flux gazeux

comportant de l'azote et/ou de l'hélium issu par le conduit 11). La composition optimale en méthane de la purge peut être choisie en fonction de la quantité de méthane nécessaire aux besoins en fuel gaz de l'usine de liquéfaction par exemple.

5 Le cycle de réfrigération externe décrit sur la figure 2A et référencé 3 sur la figure 1 comporte par exemple le schéma suivant : un mélange réfrigérant liquide sous-pression ayant une température légèrement supérieure à la température d'une source froide référencée 70 est introduit par un conduit 60 dans l'échangeur E1 où il circule à co-courant avec le gaz naturel introduit par le conduit 1 et le gaz naturel  
10 recyclé introduit par le conduit 16.

En sortie du premier échangeur E1, le mélange réfrigérant est séparé en une première fraction M1 qui est envoyée par un conduit 61a vers le deuxième échangeur E2 et une seconde fraction M2 qui est détendue à travers une vanne de détente V1 disposée sur la conduite 61b, envoyée par cette conduite dans l'échangeur E1 où elle  
15 circule à contre-courant des flux de gaz naturel et du mélange réfrigérant pour les refroidir. Après échange thermique, cette deuxième fraction est envoyée par un conduit 62 vers un compresseur K10.

La première fraction M1 du mélange réfrigérant extraite par le conduit 61a circule à co-courant avec la fraction de gaz naturel recyclé introduit par le conduit 18 dans l'échangeur E2. Le mélange réfrigérant est séparé après passage dans l'échangeur E2, en deux fractions, une troisième fraction M3 qui est envoyée par un conduit 63a dans le troisième échangeur E3 alors qu'une quatrième fraction M4 est extraite par un conduit 63b, détendue à travers une vanne de détente V2 avant d'être  
20 envoyée vers l'échangeur E2 dans laquelle elle circule à contre-courant pour réfrigérer la fraction de mélange réfrigérant circulant dans E2 et le gaz naturel recyclé. Une autre fraction M5 du mélange réfrigérant peut être extraite par un conduit 63c pour assurer la réfrigération de la tête de la colonne de dégazolinage (figure 3).

La quatrième fraction M4 de mélange réfrigérant après échange thermique dans l'échangeur E2 est envoyée par un conduit 64 vers un compresseur K11, puis elle est mélangée après refroidissement dans un dispositif 71 avec la deuxième fraction M2 du conduit 62 avant d'être envoyée vers le compresseur K10.  
30

La troisième fraction M3 de mélange réfrigérant introduite par le conduit 63a circule à co-courant à l'intérieur de l'échangeur E3 avec le gaz recyclé extrait de l'échangeur E2 par un conduit 19 et le gaz naturel introduit par le conduit 21 et provenant de l'étape de dégazolinage (figure 3). Elle est ensuite évacuée de cet échangeur E3 par un conduit 65, détendue à travers une vanne de détente V3 et  
35

envoyée pour circuler à contre-courant afin de refroidir les deux flux de gaz naturel et la troisième fraction de réfrigérant. Après échange thermique le mélange réfrigérant est évacué par un conduit 66 vers un compresseur K12 puis envoyé par un conduit 67 vers le compresseur K11.

5 Au préalable, le réfrigérant du conduit 66 peut être mélangé avec la fraction de réfrigérant provenant de la tête du condenseur de dégazolinage (figure 3) qui est introduite dans l'échangeur E2 par un conduit 68, circule à l'intérieur de cet échangeur à contre-courant des flux à réfrigérer, puis extraite par un conduit 69. L'ensemble des deux fractions de réfrigérants est comprimé dans le compresseur  
10 K12 et les compresseurs K11 et K10 et refroidi par les sources externes 70 et 71.

Un calcul de procédé complet réalisé à l'aide d'un logiciel utilisé dans le domaine du génie chimique a permis de vérifier les performances de la méthode d'extraction selon l'invention.

15

### Données initiales

Le gaz naturel préalablement déshydraté et déacidifié est dans les conditions suivantes :

Composé	Fraction molaire
C1	0,8742
N2	0,0419
C2	0,0523
C3	0,0181
iC4	0,0035
nC4	0,0055
iC5	0,0019
nC5	0,0015
nC6	0,0011
Débit	10850 kmol/h
Pression	10 MPa
Température	45°C

Température de pré-refroidissement avant détente : -70°C

20 Performances :

Consommation énergétique : 1175 kJ/kg de GNL produit (puissance de compression ramenée au débit de GNL produit)

Puissance de compression : 55355 kW

**Produits obtenus****GNL en fin du procédé de liquéfaction**

	Composé	Fraction molaire
	C1	0,9185
	N2	0,0005
	C2	0,0585
	C3	0,0180
10	iC4	0,0022
	nC4	0,0023
	iC5	0,0000
	nC5	0,0000
	nC6	0,0000
	Débit	9660 kmol/h
	Pression	0,1 MPa
	Température	-161,0 °C

20 **Débit de purge composée d'azote et/ou d'hélium à extraire:**

	Composé	Fraction molaire
	C1	0,5504
	N2	0,4496
	C2	0,0000
	C3	0,0000
	iC4	0,0000
	nC4	0,0000
	iC5	0,0000
	nC5	0,0000
30	nC6	0,0000
	Débit	1000 kmol/h
	Pression	3,16 MPa
	Température	33 °C

Ces performances prennent en compte la recompression du boil-off. En outre, on note que la pression de fuel gaz permet de se passer d'un compresseur de fuel gaz avant l'alimentation de turbines à gaz. La purge est absolument exempte de produits plus lourds que le méthane (aucun risque de condensation dans les brûleurs).

Le débit de fuel gaz peut être régulé en jouant sur le débit de réfrigérant qui circule dans le condenseur.

En supposant que le débit de fuel gaz nécessaire à l'usine de liquéfaction soit plutôt 1300 que 1000 kmol/h, les différences de design sont les suivantes :

10

Performances :

Consommation énergétique : 1174 kJ/kg de GNL produit (puissance de compression ramenée au débit de GNL produit)

Puissance de compression : 53740 kW

### Produits obtenus

#### GNL

	Composé	Fraction molaire
20	C1	0,9159
	N2	0,0005
	C2	0,0604
	C3	0,0186
	iC4	0,0023
	nC4	0,0023
	iC5	0,0000
	nC5	0,0000
	nC6	0,0000
30	Débit	9359 kmol/h
	Pression	0,1 MPa
	Température	-161.0 °C

**Débit de purge composé de l'azote et/ou de l'hélium à extraire :**

Composé	Fraction molaire
C1	0,6540
N2	0,3460
C2	0,0000
C3	0,0000
iC4	0,0000
nC4	0,0000
iC5	0,0000
nC5	0,0000
nC6	0,0000
Débit	1300 kmol/h
Pression	3,16 MPa
Température	33 °C

L'unité de GNL est peu sensible à une variation importante du débit de purge, ce  
5 qui permet une bonne flexibilité opératoire.

La figure 3 décrit brièvement un schéma permettant d'effectuer l'étape de  
dégazolinage du gaz naturel prérefroidi dans l'échangeur E1.

Le gaz naturel prérefroidi à 11°C évacué par le conduit 20, comporte des  
10 fractions lourdes. Il est détendu à travers une turbine X0 jusqu'à une pression voisine  
de 5,2 MPa, le flux diphasique ainsi produit étant à une température voisine de  
-28°C.

Le flux diphasique est introduit par un conduit 80 dans une colonne C2 sans  
15 rebouilleur mais avec un condenseur. Un flux en fond de colonne comportant des  
condensats est extrait par un conduit 82 pour être envoyé vers une étape de  
stabilisation décrite à la figure 4. La fraction vapeur du flux diphasique circule dans la  
colonne C2 de manière ascendante où elle est mise en contact à contre-courant d'un  
reflux introduit par un conduit 83a. Ce reflux est généré dans le condenseur partiel E,  
20 en faisant circuler le flux issu en tête de la colonne C2 par le conduit 81 à contre-  
courant d'un fluide réfrigérant pouvant provenir du cycle de prérefrigération décrit à la  
figure 2A, introduit par le conduit 63c et détendu avant son passage dans E à travers  
une vanne V. Le fluide réfrigérant réchauffé après avoir échangé ses calories est

ensuite renvoyé vers le cycle de préréfrigération dans l'échangeur E2 (figure 2A) pour céder sa chaleur, puis évacué de cet échangeur par le conduit 69 pour être recomprimé dans l'échangeur K12 (figure 2A) après mélange avec le fluide de réfrigération principal.

5 Le flux de tête de la colonne C2 réfrigéré dans E produit un fluide diphasique qui est envoyé dans un ballon de séparation D, en sortie duquel, une fraction vapeur est extraite par un conduit 82 pour être envoyée au compresseur KX0, alors qu'une fraction liquide est évacuée en fond du ballon D par un conduit 83 se séparant en deux sous-conduits 83a et 83b. Une fraction majoritaire de liquide est envoyée par le  
10 conduit 83a pour servir de reflux dans la colonne C2 et le reste est évacué par le conduit 83b vers l'étape de stabilisation décrite à la figure 4.

La fraction vapeur majoritaire est comprimée jusqu'à une pression voisine de 8,7 MPa à une température voisine de  $-13^{\circ}\text{C}$  avant d'être envoyée vers l'échangeur E3 (figure 2A) pour être réfrigérée et condensée.

15

Sur la figure 4, on a représenté un dispositif permettant de réaliser la stabilisation des condensats.

Le fond de la colonne de dégasolinage C2 extrait par le conduit 82 (figure 3) est détendu jusqu'à une pression de 4,8 MPa et envoyé à une colonne de  
20 déméthanisation DEC1. Le reflux de cette colonne est assuré par le liquide provenant du conduit 83b et détendu. En tête de colonne, un flux constitué en majorité de méthane, d'azote et d'éthane à  $-40^{\circ}\text{C}$ , est extrait par un conduit 92 pour être envoyé vers le recyclage du procédé décrit à la figure 2A par le conduit 37 (figure 2B). Le produit du fond de colonne est évacué par un conduit 93, refroidi à travers un dispositif  
25 REC1 avant d'être détendu à travers une vanne par exemple jusqu'à une pression sensiblement égale à 3,9 MPa et envoyé par un conduit 94 vers une seconde colonne DEC2 de dééthanisation. Le flux issu de la tête de cette colonne DEC2 par un conduit 95 est condensée partiellement dans un condenseur EC2 à l'aide d'une utilité froide à une température voisine de  $50^{\circ}\text{C}$  légèrement supérieure à la température de la source  
30 froide du système (eau, air ou autre). Le mélange diphasique produit par la condensation est séparé dans un ballon DC2 en sortie duquel, la phase liquide est extraite par un conduit 96 pour servir de reflux dans la colonne DEC2 alors que la phase vapeur constituée en majorité d'éthane est extraite par un conduit 97 et envoyée vers le recyclage du procédé (conduit 38 figure 2B). Une fraction non  
35 significative de cette phase vapeur est prélevée régulièrement pour compenser les pertes en éthane du cycle frigorifique principal et introduit en 60 par exemple.

Le fond de colonne est évacué par un conduit 98 avant d'être refroidi dans REC2 et détendu à travers une vanne jusqu'à une pression sensiblement voisine de 1,5 MPa et envoyé par un conduit 99 vers une colonne de dépropanisation DEC3. Le flux issu de la tête de cette colonne par un conduit 100 est condensé dans un condenseur EC3 à l'aide d'une utilité froide à une température de 50°C légèrement supérieure à la température de la source froide du système (eau, air ou autre). Le liquide issu du condenseur est séparé dans un ballon DC3 pour produire une première fraction de liquide évacuée par un conduit 101 pour servir de reflux dans la colonne DEC3 et une seconde fraction de liquide évacuée par un conduit 102 vers un stockage de propane commercial. Une fraction non significative de ce flux est prélevée régulièrement pour compenser les pertes en propane du cycle frigorifique principal.

Le fond de colonne est évacué par un conduit 103 pour être refroidi par un dispositif REC3 et détendu à travers une vanne jusqu'à une pression voisine de 0,5 MPa avant d'être envoyé par un conduit 104 vers une colonne de débutanisation DEC4. La tête de cette colonne est extraite par un conduit 105, puis condensée dans un condenseur EC4 à l'aide d'une utilité froide à une température voisine de 50°C légèrement supérieure à la température de la source froide du système (eau, air ou autre). Le liquide est ensuite séparé dans un ballon DC4 en une première fraction liquide envoyée par un conduit 106 pour être utilisée comme reflux de la colonne DEC4 et une seconde fraction extraite par un conduit 107 pour être envoyée vers un stockage de butane commercial. Une fraction non significative de ce flux est prélevée régulièrement pour compenser les pertes en butane du cycle frigorifique principal. Le fond de la colonne de débutanisation extrait par un conduit 108 est refroidie à travers REC4 et peut être envoyée au stockage de condensats (essence légère).

**REVENDEICATIONS**

- 10 1 - Procédé de liquéfaction d'un composé A à partir d'un mélange comportant au moins ledit composé A et un ou plusieurs composés B, chacun desdits composés B ayant un point d'ébullition inférieur à celui dudit composé A, ledit mélange étant disponible sous une pression P1, ledit procédé de liquéfaction comportant au moins deux étapes de détente successives, et produisant, d'une part un effluent gazeux sous une pression P2 inférieure à P1, constitué de la quasi-totalité du ou desdits composés B et pouvant contenir des proportions variables du composé A, et d'autre part, un effluent liquéfié à une pression P3 inférieure à P2, constitué de la majeure partie dudit composé A et appauvri en majorité du ou desdits composés B, caractérisé en ce que l'on effectue la séparation du ou desdits composés B et/ou la séparation du composé A par distillation à une pression sensiblement voisine de la pression P2 pour produire au moins un flux F1 comportant en majorité ledit composé A et au moins un flux F4 comportant la quasi-totalité des composés B.
- 2 - Procédé selon la revendication 1 caractérisé en ce que l'on réalise l'étape de distillation à l'intérieur d'une colonne, on condense un flux F2 sortant de la colonne de distillation, ledit flux F2 comportant le ou lesdits composés B et une partie des composés A, de manière à obtenir un flux F3 riche en composés A et le flux F4, et on utilise au moins une partie du flux F3 comme reflux.
- 20 3 - Procédé selon l'une des revendications 1 et 2 caractérisé en ce que l'on opère la distillation à l'intérieur d'une colonne de distillation et on génère le reflux de la colonne par échange de chaleur entre le flux F2 issu de la tête de colonne de distillation et au moins un des fluides froids récupérés à l'issue des étapes de détente ultérieures du procédé de liquéfaction.
- 4 - Procédé selon la revendication 3 caractérisé en ce que le ou lesdits fluides froids issus d'une étape ultérieure dudit procédé de liquéfaction se présentent sous forme liquide au point de bulle.
- 5 - Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que la valeur de la pression avant la première détente est comprise entre 3 et 15 MPa et après cette première détente est comprise entre 1 et 5 MPa.

- 6 - Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, caractérisé en ce que l'on opère la première détente à une valeur de température comprise entre  $-100^{\circ}\text{C}$  et  $0^{\circ}\text{C}$ .
- 7 - Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 6, caractérisé en ce que l'on utilise des turbo-expandeurs pour réaliser les étapes de détente.
- 8 - Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 7, caractérisé en ce que l'on réfrigère ledit mélange en utilisant un fluide réfrigérant externe.
- 9 - Procédé selon la revendication 8, caractérisé en ce que l'on réfrigère ledit mélange en utilisant le fluide réfrigérant externe avant les étapes de détente.
- 10 10 -Procédé selon la revendication 8 ou 9, caractérisé en ce que l'on réfrigère ledit mélange en utilisant le fluide réfrigérant externe après les étapes de détente.
- 11 -Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 10, caractérisé en ce que l'on utilise au moins une partie du ou des constituants extraits (B), comme agent de réfrigération pour le procédé de liquéfaction.
- 12 -Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 11, caractérisé en ce que le procédé de liquéfaction comporte au moins 2 étapes de détente.
- 13 -Procédé selon la revendication 12, caractérisé en ce que le procédé de liquéfaction comporte de 2 à 4 étapes de détente.
- 20 14 -Application du procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 13, pour extraire le méthane et/ou l'hélium au cours d'un procédé de liquéfaction d'un gaz.

15 -Application selon la revendication 14, caractérisé en ce que le gaz est un gaz naturel comportant du méthane comme constituant principal et de l'azote et/ou de l'hélium comme constituants B à extraire.

16 -Application du procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 12, pour extraire l'argon et/ou l'azote au cours d'un procédé de liquéfaction de l'air.

1/5

FIG.1A

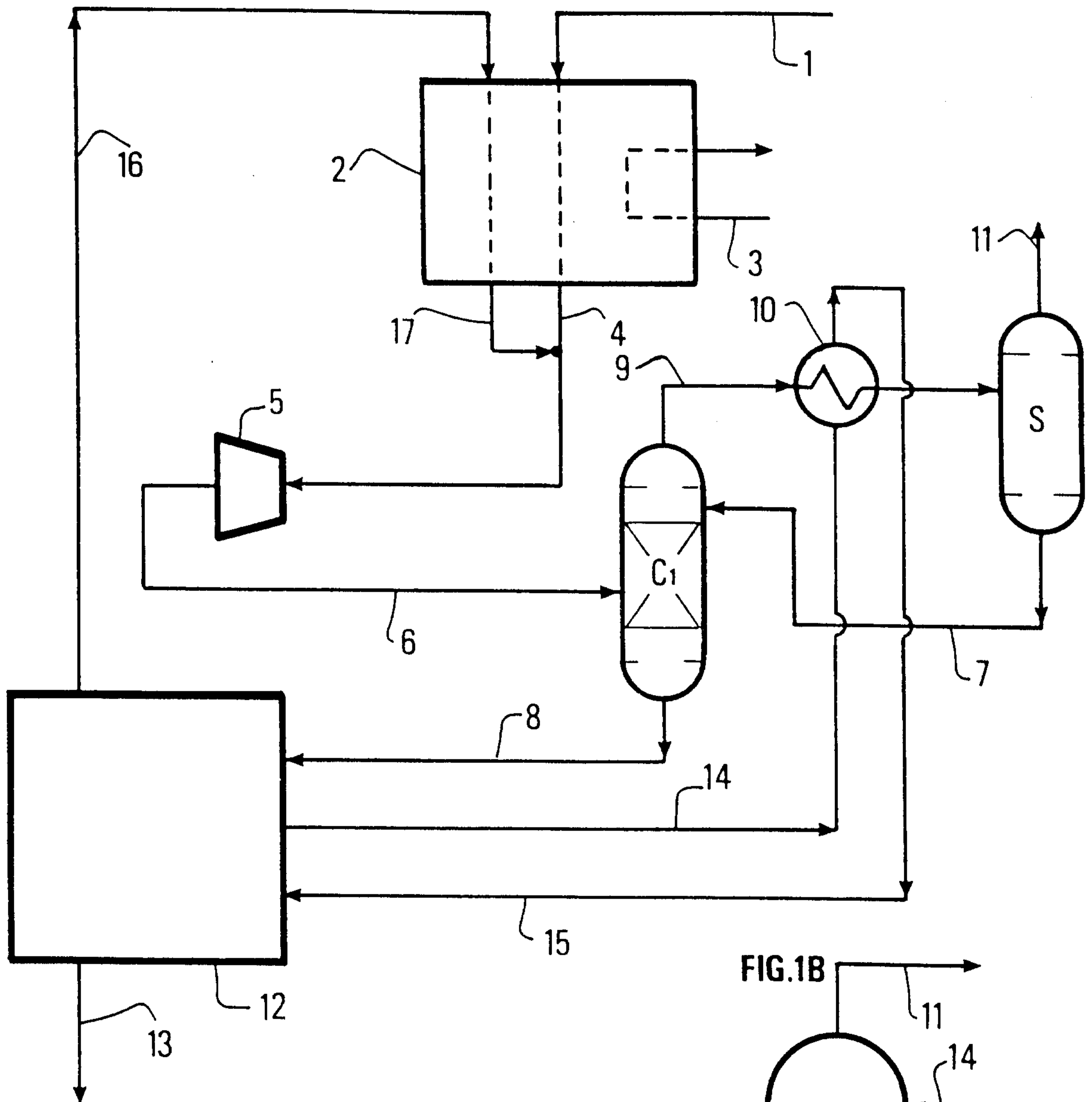
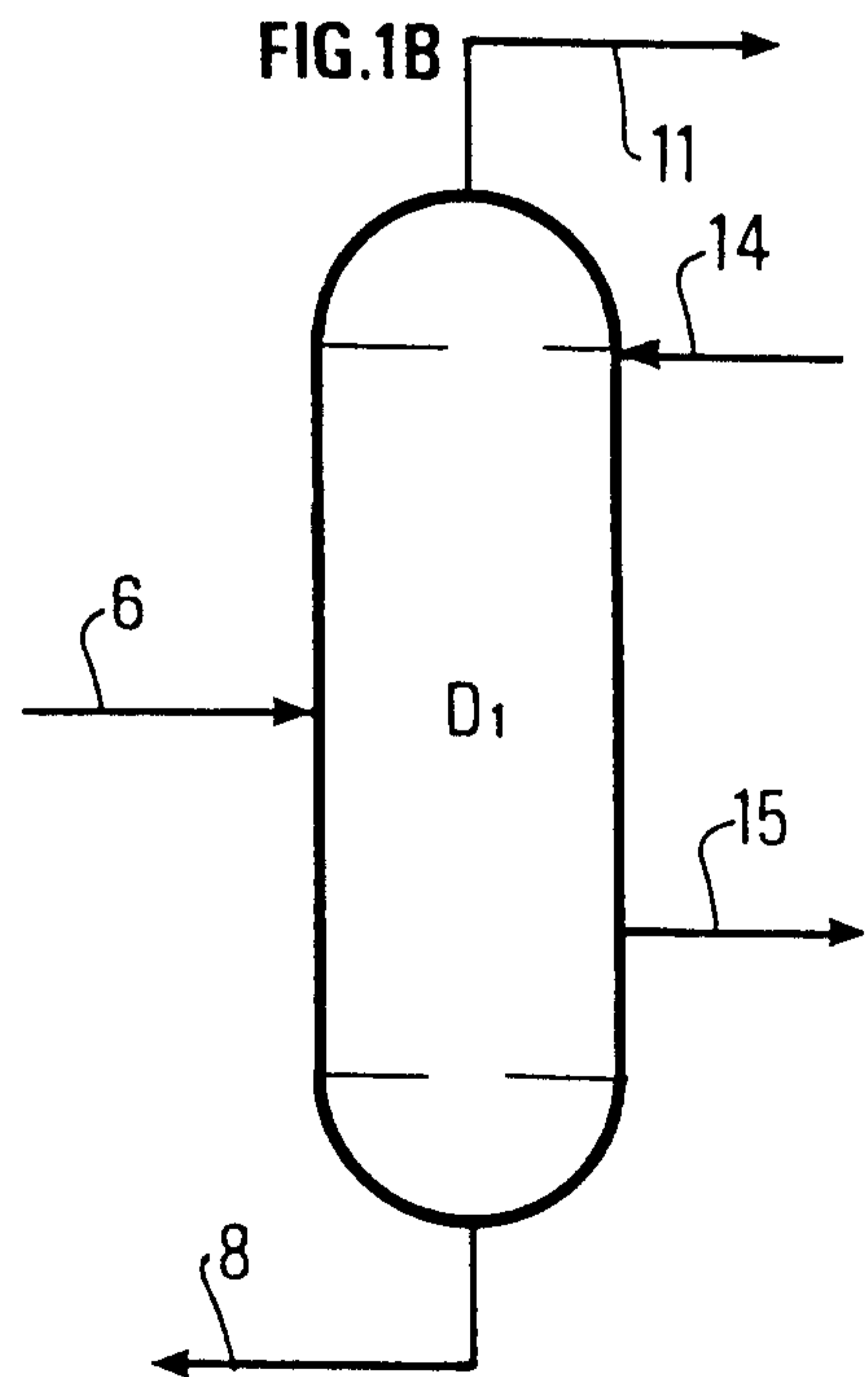


FIG.1B





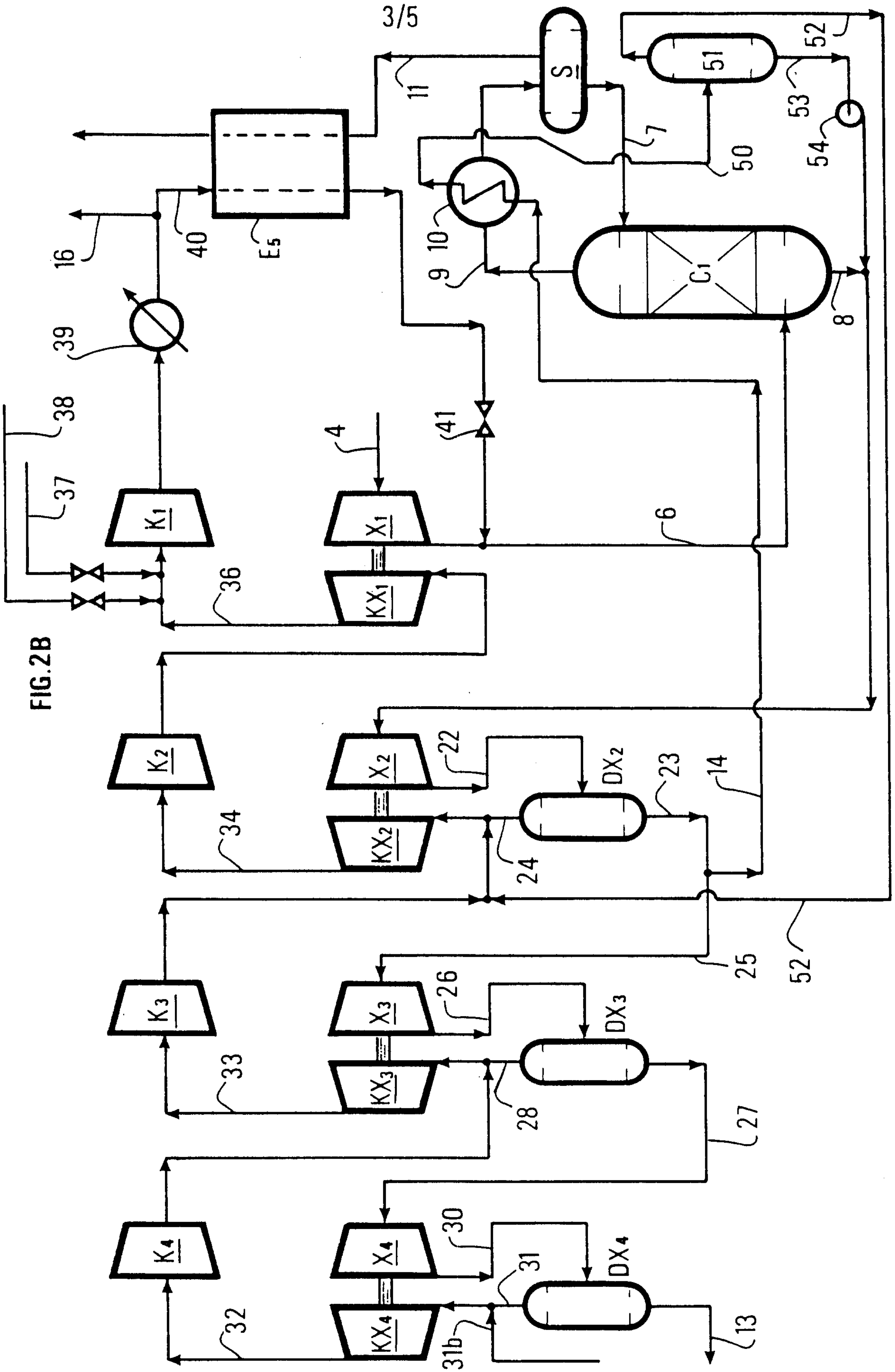


FIG. 2B

4/5

FIG. 3

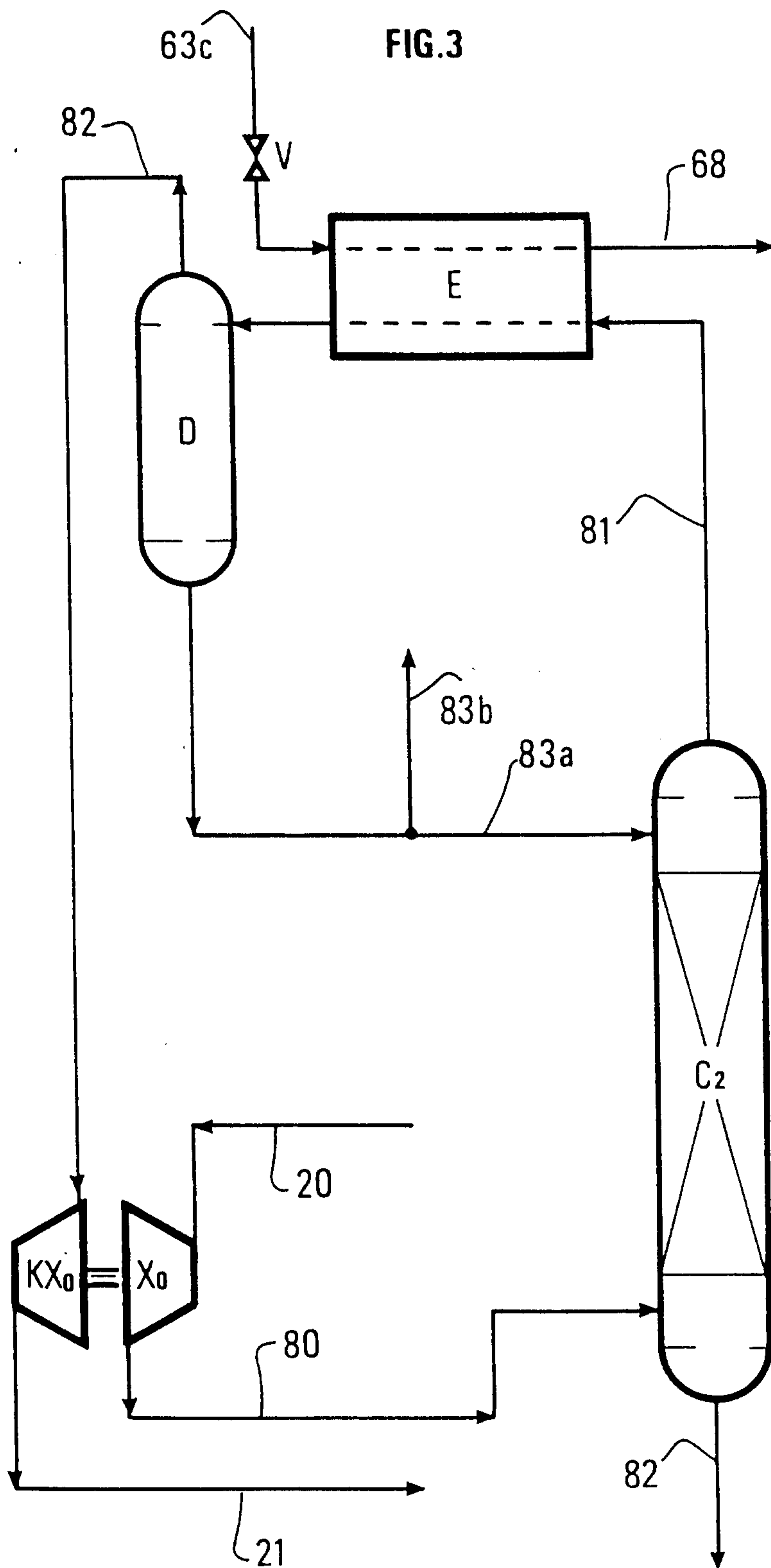


FIG. 4

