

12 DEMANDE DE BREVET D'INVENTION A1

22 Date de dépôt : 16.09.96.

30 Priorité :

43 Date de la mise à disposition du public de la demande : 20.03.98 Bulletin 98/12.

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

60 Références à d'autres documents nationaux apparentés :

71 Demandeur(s) : INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE
— FR.

72 Inventeur(s) : LECOMTE FABRICE, VILTARD JEAN
CHARLES et DEZAEI CLAUDE.

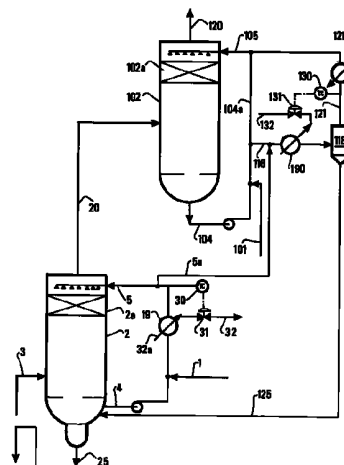
73 Titulaire(s) : .

74 Mandataire :

54 PROCÉDE ET DISPOSITIF DE TRAITEMENT D'UN GAZ CONTENANT DE L'HYDROGENE SULFURE ET DU DIOXYDE DE SOUFRE COMPORTANT UNE ETAPE D'APPAUVRISSMENT EN SOUFRE DU SOLVANT RECYCLE.

57 On décrit un procédé et un dispositif de traitement d'un gaz contenant de l'hydrogène sulfuré et du dioxyde de soufre ayant pour but de réduire sensiblement les émissions de soufre vapeur dans les gaz traités, le procédé étant caractérisé en ce que l'on met en contact dans un réacteur-contacteur (2) gaz-liquide le gaz avec un solvant (5) et l'on récupère un gaz (20) qui est envoyé dans un second réacteur (102) où il est mis à nouveau en contact avec un solvant (105), ledit solvant étant refroidi par des moyens appropriés (190), ce qui permet de séparer une partie du soufre du solvant. Ce solvant désaturé en soufre est utilisé pour réaliser le contact avec le gaz (20) provenant du premier réacteur (2). Le gaz (120) issu du second réacteur est très appauvri en soufre vapeur. Au moins un des réacteurs contient un catalyseur.

Application à l'épuration d'effluents d'unités Claus.

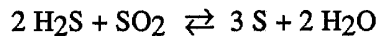


La présente invention a pour objet un procédé et un dispositif de traitement d'un effluent gazeux d'une unité Claus ou d'un gaz contenant de l'hydrogène sulfuré et de l'anhydride sulfureux.

5 Elle concerne notamment le traitement d'effluents d'unités Claus provenant d'unités d'hydrodésulfuration et de craquage catalytique. Elle concerne aussi le traitement d'épuration du gaz naturel.

10 Le procédé Claus est largement utilisé pour récupérer du soufre élémentaire à partir de charges gazeuses contenant de l'hydrogène sulfuré (H₂S). Cependant, même après plusieurs étages catalytiques, les fumées émises par les installations d'unités de type Claus, renferment des quantités non négligeables de gaz acides. Il est alors nécessaire de traiter ces effluents (tail gas) d'unités Claus pour éliminer la majorité des composés toxiques de façon à
15 respecter les normes antipollution. Ces normes deviennent de plus en plus sévères et il est nécessaire d'améliorer en permanence la technologie existante.

Il est connu par exemple de récupérer, à partir d'une unité Claus, environ
20 95% poids de soufre présent; un traitement de cet effluent d'unité Claus (par une unité Clauspol par exemple) permet d'atteindre par exemple 99,8% en poids de soufre récupéré, à partir de la réaction:



25

qui met en oeuvre un milieu réactionnel constitué par un solvant organique et un catalyseur comprenant un sel alcalin ou alcalino-terreux d'un acide organique. La réaction s'effectue à contre-courant dans un réacteur-contacteur et sa température est contrôlée par passage du solvant qui a été
30 soutiré à l'extrémité inférieure du réacteur par une pompe de circulation, dans un échangeur thermique, de façon à favoriser le taux de plus élevé de conversion en soufre, tout en évitant la formation de soufre solide. Le soufre est donc récupéré sous forme liquide. Le procédé quoique très performant, est limité par différentes contraintes :

35

- 5 - l'équilibre thermodynamique de la réaction est tel que la réaction n'est jamais complète. De l'hydrogène sulfuré et du dioxyde de soufre restent en équilibre avec le soufre et l'eau formés. Typiquement, la quantité de soufre présent dans H_2S et SO_2 qui n'ont pas réagi et que l'on retrouve dans l'effluent réactionnel (de Clauspol) correspond à environ 0,1% du soufre total de la charge initiale de l'unité Claus. Une meilleure conversion peut être envisagée à une température opératoire plus faible mais cette température doit être maintenue au-dessus du point de congélation du soufre (environ $120^\circ C$), sinon le réacteur serait obstrué par du soufre solide ;
- 10 - la présence de soufre liquide non séparé dans le réacteur-contacteur, qui est entraîné dans le solvant et le catalyseur qui circulent et que l'on recycle dans le réacteur-contacteur. En effet, toutes les gouttelettes de soufre liquide ne sont pas séparées du solvant et la présence de soufre liquide entraîne irrémédiablement la présence de soufre gazeux dans l'effluent due à la tension de vapeur du soufre. Par exemple, la quantité de soufre non récupéré attribuable à sa tension de vapeur est d'environ 0,1% poids de soufre de la charge initiale.
- 15
- 20 L'objet de l'invention est de remédier aux inconvénients de l'art antérieur.
- Un autre objet de l'invention est de satisfaire aux normes les plus sévères de lutte contre la pollution atmosphérique par les composés soufrés.
- 25 Un autre objet de l'invention est de pouvoir modifier les installations existantes disposant d'une unité Claus et d'une unité de traitement des effluents de ladite unité (Unité Clauspol) à un coût très faible.
- 30 On a constaté qu'en éliminant sensiblement tout le soufre vapeur dans les effluents d'unités de traitement de gaz et par exemple d'effluents de queue d'unités Claus, on pouvait récupérer jusqu'à 99,9% du soufre total et minimiser ainsi la quantité de soufre rejeté dans l'atmosphère lors de l'incinération du gaz.
- 35 Plus précisément, l'invention concerne un procédé de traitement d'un gaz contenant de l'hydrogène sulfuré et de l'anhydride sulfureux dans lequel on

met en contact dans au moins un réacteur-contacteur gaz-liquide, à une température adéquate, le gaz avec un solvant organique contenant un catalyseur et on récupère un effluent gazeux ne contenant sensiblement plus d'hydrogène sulfuré et d'anhydride sulfureux mais contenant du soufre sous forme vapeur, le procédé étant caractérisé en ce que l'effluent gazeux du réacteur-contacteur est mis en contact avec le même solvant organique ou un autre solvant organique à une température inférieure à celle de la solidification du soufre (95°C par exemple) dans un réacteur-refroidisseur.

10 On a observé qu'en mettant en contact un solvant organique partiellement appauvri en soufre avec une charge gazeuse dont une partie de H₂S et SO₂ a été retirée, on obtenait de très bons résultats.

De manière plus détaillée l'invention concerne un procédé de traitement d'un gaz contenant de l'hydrogène sulfuré et de l'anhydride sulfureux dans lequel on met en contact dans une première zone de contact et de réaction gaz-liquide à une température adéquate le gaz (3) avec au moins un solvant organique et on récupère séparément un effluent contenant de l'eau et du soufre vapeur, et du soufre, le procédé étant caractérisé en ce qu'on introduit l'effluent gazeux dans une deuxième zone de contact, on le met en contact, dans des conditions appropriées, avec au moins un solvant organique recyclé appauvri en soufre, on récupère séparément un gaz épuré ne contenant sensiblement pas de soufre vapeur et ledit solvant riche en soufre, on prélève une partie au moins dudit solvant riche en soufre, avantageusement au plus 50% du débit, on refroidit ladite partie du solvant de façon à obtenir une suspension de cristaux de soufre dans le solvant, on sépare les cristaux de soufre du solvant et on recycle ladite partie de solvant refroidie, appauvrie en soufre, au moins en partie, dans la deuxième zone de contact, le procédé étant caractérisé en ce qu'au moins une des deux zones de contact contient au moins un catalyseur.

Selon une caractéristique de l'invention, la partie restante du solvant organique riche en soufre provenant de la seconde zone de contact peut être recyclée dans la seconde zone de contact et plus précisément dans sa partie supérieure après avoir été éventuellement refroidie.

Selon une autre caractéristique du procédé, on peut refroidir la partie de solvant destinée à être appauvrie en soufre par un échange indirect de chaleur ou par mélange avec une quantité adéquate d'eau ou par une combinaison de ces moyens à une température généralement inférieure à la

5 température de fusion du soufre et de préférence à une température comprise entre 40 et 110°C. La quantité d'eau avantageusement introduite est telle qu'on obtient un mélange solvant/eau de 30 à 70% en poids d'eau.

L'opération d'appauvrissement en soufre consiste à prélever une partie au

10 moins du solvant organique enrichi en soufre, qui correspond généralement à au plus 50% du débit sortant de la deuxième zone de contact et de préférence de 2 à 10% du débit de la phase liquide, à la refroidir à une température telle que l'on obtient une suspension de cristaux de soufre dans le solvant saturé en soufre à ladite température de refroidissement. Après séparation des

15 cristaux de soufre, le solvant appauvri en soufre par rapport à celui présent dans le second réacteur-contacteur, peut être réchauffé à la température de ce second réacteur-contacteur avant d'y être réintroduit.

Selon une caractéristique du procédé, on peut soutirer au moins en partie

20 une solution monophasique dudit solvant organique, de la partie inférieure de la première zone de contact, on la refroidit de façon à éliminer une partie au moins de la chaleur de réaction mise en jeu et on la recycle dans la première zone de contact.

Avantageusement, la température de la seconde zone de contact peut être

25 inférieure à la température de la première, de préférence de 15 à 20°C.

Il est très avantageux d'utiliser le même solvant organique dans la première et dans la deuxième zone de contact. Dans ce cas, une ligne de solvant peut être connectée entre les moyens de recyclage de la solution monophasique

30 provenant du premier réacteur dont la température a été abaissée, et l'entrée de l'échangeur thermique refroidissant la partie au moins du solvant enrichi en soufre. Cette ligne sert de ligne d'appoint en solvant pour le second réacteur-contacteur.

Il a été observé qu'il était préférable d'introduire le catalyseur dans le

35 premier réacteur-contacteur. On élimine ainsi la majorité du soufre présent

sous forme de H₂S et SO₂ et contenu dans le gaz à traiter, le second réacteur n'assurant qu'un traitement de finition avec des dimensionnements d'appareillage réduits. Bien évidemment, il peut être introduit seulement dans le second réacteur-contacteur, ou même dans les deux.

5

Le procédé selon l'invention peut être mis en oeuvre selon deux variantes, dans des réacteurs verticaux.

10 Conformément à une première variante, on peut effectuer la mise en contact du gaz et du solvant organique dans la première zone de contact et celle de l'effluent gazeux et du solvant organique dans la deuxième zone de contact à co-courant, l'alimentation en gaz ou en effluent gazeux étant réalisée dans la partie supérieure des zones de contact ainsi que l'alimentation en solvant organique.

15

Conformément à une deuxième variante préférée, on peut effectuer la mise en contact du gaz et du solvant organique dans la première zone de contact et celle de l'effluent gazeux et du solvant organique dans la deuxième zone de contact à contre-courant, l'alimentation en gaz ou en effluent gazeux étant 20 réalisée dans la partie inférieure des zones de contact, et l'alimentation en solvant organique dans la partie supérieure des zones de contact.

Bien évidemment, on peut aussi mettre en oeuvre le procédé dans des réacteurs-contacteurs horizontaux.

25

L'invention concerne aussi un dispositif de traitement d'un gaz contenant de l'hydrogène sulfuré et de l'anhydride sulfureux. Habituellement il comprend un premier réacteur-contacteur (2) gaz-liquide, des moyens (3) d'alimentation en gaz à traiter et des moyens (5) d'alimentation en solvant organique, des moyens de récupération (25) du soufre et des moyens (20) de 30 sortie d'un effluent gazeux contenant du soufre sous forme vapeur, le dispositif étant caractérisé en ce qu'il comporte un deuxième réacteur-contacteur (102) connecté aux moyens de sortie de l'effluent gazeux, des moyens d'alimentation (105) en un solvant organique appauvri en soufre connectés au deuxième réacteur-contacteur, des moyens de récupération 35 (120) d'un effluent gazeux épuré en soufre reliés au deuxième réacteur-

contacteur, des moyens de soutirage (104) d'une phase liquide contenant le solvant organique et du soufre reliés au deuxième réacteur-contacteur, au moins un moyen d'appauvrissement en soufre d'une partie au moins de la phase liquide relié aux moyens de soutirage de la phases liquide, comprenant
5 au moins un moyen (190) de refroidissement de ladite phase connecté à un moyen de séparation (118) du soufre solide qui délivre une phase solide (125) de soufre à une première extrémité et une phase (121) liquide appauvrie en soufre à une deuxième extrémité, la deuxième extrémité étant connectée aux moyens (105) d'alimentation en solvant appauvri en soufre, le dispositif étant
10 en outre caractérisé en ce qu'un au moins des réacteurs-contacteurs contient un catalyseur.

Selon une caractéristique du dispositif, lorsqu'une partie seulement de la phase liquide contenant le solvant organique et du soufre, qui provient du
15 second réacteur-contacteur est refroidie pour éliminer du soufre, une ligne connectée aux moyens de soutirage de ladite phase liquide peut être reliée aux moyens d'alimentation en solvant appauvri en soufre du deuxième réacteur-contacteur pour y recycler la partie restante de la phase liquide.

20 Il peut être avantageux de réunir le premier réacteur-contacteur et le second réacteur-contacteur dans une même enceinte. Mais ces deux réacteurs-contacteurs peuvent être dissociés.

C'est le cas notamment où le deuxième réacteur-contacteur comprend un mélangeur-contacteur de type venturi-scrubber associé à un séparateur de
25 l'effluent gazeux épuré, de la phase liquide dont la ligne de soutirage est connectée au moyen d'appauvrissement en soufre.

Le solvant organique peut être refroidi de différentes façons:

30 - selon une première variante, si le solvant organique est miscible à l'eau, il peut être refroidi par échange de chaleur dans un échangeur de chaleur, avant d'être mélangé à l'effluent gazeux à épurer, par un appoint d'eau à une température inférieure à celle du solvant organique dont la chaleur de vaporisation au contact de l'effluent gazeux permettra d'abaisser la
35 température du mélange, ou par une combinaison des deux étapes ci-dessus. De préférence, on refroidira par injection d'eau.

- selon une deuxième variante, si le solvant organique n'est pas miscible à l'eau, il peut être refroidi de la même manière que celles selon la première variante. De préférence, on refroidira par un échangeur de chaleur.

5 Les différents types de solvants peuvent être les suivants:

- dans la catégorie des solvants insolubles dans l'eau, on trouve les hydrocarbures de température d'ébullition supérieurs à 250°C et de préférence le dodécane, le tridécane, le naphta de points d'ébullition compris
10 entre 225 et 335°C.

- dans la catégorie des solvants solubles dans l'eau de température d'ébullition supérieure à 200°C, on trouve les polyols de 2 à 15 atomes de carbone et de préférence le glycérol, le thiodiglycol, le cyclohexane
15 diméthyléthanol, les esters d'acides de 5 à 15 atomes de carbone et plus particulièrement le triméthylpentane-diol monoisobutyrate et le diméthyladipate, les éthers de glycol de 5 à 15 atomes de carbone et
20 avantagement le butoxytriglycol, l'éthoxytriglycol, le diéthylène glycol butyléther, l'éthylène glycol phényl éther, le terpinyl éthylène glycol monobenzyl éther, l'éthylène glycol butyl phényl éther, le diéthylène glycol, le diéthylène glycol diméthyléther, le diéthylène glycol dibutyl éther, le triéthylène glycol, le tétra éthylène glycol diméthyl éther, le propylène n-butyl éther, le dipropylène n-butyléther, le tripropylène n-butyléther, le tripropylène n-butyléther, et les polyéthylènes glycol de
25 masses moléculaires 200, 300, 400 ou 600.

Les catalyseurs et solvants généralement utilisés sont ceux décrits par exemple dans les brevets FR2115 721 (US 3796796), FR 2122674 et FR 2138371 (US 3832454) incorporés comme références. Plus particulièrement, on peut
30 utiliser des sels alcalins d'acides organiques tels que l'acide benzoïque et l'acide salicylique en tant que catalyseurs.

L'invention sera mieux comprise au vu des figures suivantes, illustrant de manière schématique un dispositif selon l'art antérieur (figure 1) et deux
35 variantes de dispositif parmi lesquelles :

- la figure 2 montrant deux réacteurs-contacteurs dissociés,
- et la figure 3 représentant les deux réacteurs-contacteurs dans une même enceinte.

5 Selon la figure 1, un réacteur-contacteur (2) vertical reçoit par une ligne d'alimentation (3) en sa partie inférieure, un gaz contenant H_2S et SO_2 . Ce réacteur comprend une colonne (2) contenant un lit de garnissage de selles Intalox par exemple, ayant la propriété de retenir les sels de sodium formés

10 alimenté par une ligne (1) et provenant d'une ligne (4) de recyclage à la partie inférieure du réacteur-contacteur (2), est introduit par une ligne (5) à la partie supérieure de ce réacteur de sorte que le contact du gaz à traiter et du solvant soit effectué à contre-courant. Le solvant de la ligne (4) est refroidi par un échangeur thermique (19) dont la température est contrôlée

15 et régulée par un système de mesure (30) associé à une vanne (31) située sur une ligne d'introduction d'eau chaude (32) vers $80^\circ C$. Cette eau est évacuée par une ligne (32a).

Le gaz épuré est soutiré du réacteur par une ligne (20) en tête de réacteur

20 tandis que le soufre formé décante en fond de réacteur et est extrait par une ligne (25).

Selon la figure 2 illustrant un mode de réalisation du dispositif selon l'invention, celui-ci comporte deux réacteurs-contacteurs verticaux séparés,

25 dont le premier est conforme à la description de la figure 1 avec les mêmes références.

La ligne (20) récupérant l'effluent gazeux du premier réacteur-contacteur (2), alimente un second réacteur-contacteur (102) en sa partie inférieure. Ce

30 réacteur (102) comporte un lit de garnissage (102a) qui peut être identique ou pas à celui du premier réacteur.

Du catalyseur amené par la ligne (101) et du solvant organique sont introduits par des lignes (104), (104a) et (105) en tête du second réacteur-

35 contacteur qui réalise donc un contact gaz liquide à contre-courant dans le garnissage.

Une partie, 2 à 10% par exemple, du solvant contenant du soufre et du catalyseur soutirée par la ligne (104) est refroidie à 60-70°C par un échangeur indirect de chaleur (190) via une ligne (116), ce qui produit la cristallisation du soufre et l'appauvrissement en soufre du solvant.

5 L'échange de chaleur est réalisé par injection d'eau (132) et évacuation (132a) sur une ligne (121) en amont d'un échangeur (121a).

10 Le soufre en suspension est envoyé dans un hydrocyclone (118) où le solvant est séparé du soufre. En tête de l'hydrocyclone, une ligne (121) sur laquelle est situé éventuellement un autre échangeur de chaleur (121a) destiné à réchauffer le solvant appauvri en soufre est relié à la ligne (104a), éventuellement refroidie à son tour, et leur contenu est recyclé par la ligne (105) au dessus du garnissage (102a).

15 Une vanne de contrôle du refroidissement (131) connectée à l'échangeur (190) est associée à un contrôle de température (130) relié à une sonde de température qui est disposée en amont de l'échangeur (121a) sur la ligne (121).

20 En fond de l'hydrocyclone (118), on récupère par une ligne (125) du soufre qui est mélangé avec celui qui provient du premier réacteur-contacteur (2) et qui y est fondu avant d'être soutiré par la ligne (25).

25 Le gaz épuré enfin, est récupéré en tête du second réacteur-contacteur par une ligne (120).

30 Lorsque le solvant organique et le catalyseur sont les mêmes dans les deux réacteurs, une ligne (5a) connectée à la ligne (5) du premier réacteur-contacteur permet de réaliser un appoint de solvant et de catalyseur dans le second en l'introduisant à l'entrée de l'échangeur (190).

Bien évidemment, lorsque les solvants dans les deux réacteurs sont différents, cette ligne (5a) est supprimée et le soufre provenant de l'hydrocyclone (118) est produit et fondu séparément via la ligne (125)

35

Selon la figure 3, on utilise un réacteur-contacteur vertical composé de deux étages (2 et 102) de réaction et de contact, conforme aux premier et second réacteurs-contacteurs de la figure 2, sauf que:

- 5 - le premier réacteur-contacteur ne contient pas de catalyseur et donc de ligne d'alimentation (1) en catalyseur dans la ligne de solvant (4),
- le gaz en partie débarrassé de H₂S et SO₂ (20) est introduit directement dans la partie inférieure du second étage (102) par l'intermédiaire de la cheminée
- 10 (20) qui récupère en outre le solvant, le catalyseur et du soufre soutiré par la ligne (104) pour être appauvri en partie en soufre par l'échangeur (190) et l'hydrocyclone (118).

Les exemples suivant illustrent l'invention:

15

Exemple 1 selon l'art antérieur (fig.1).

Les caractéristiques sont les suivantes :

20

Charge : gaz de queue d'unité Claus, débit: 12302 Nm³/h.

Température du réacteur: 125°C.

Garnissage : selles Intalox en céramique, surface spécifique: 250 m²/m³.

Solvant : Polyéthylène glycol M=400, débit: 500m³/h.

25 Catalyseur : salicylate de sodium à une concentration de 100 millimoles par kg de solvant.

Solvant recyclé (lignes 4 et 5).

- Débit : 500 m³/h.

- Température : 123°C.

30 - Débit de soufre produit (ligne 25): 315 kg/h.

Les compositions des gaz d'entrée et de sortie de l'unité sont dans le tableau I suivant :

35

Tableau I

	Gaz entrée (ligne 3)	Gaz sortie (ligne 20)
	% volume	% volume
H ₂ S	1,234	0,126
SO ₂	0,617	0,063
CO ₂	4,000	4,072
CO _S	0,015	0,009
CS ₂	0,015	0,009
S _v *	0,140	0,031
N ₂	60,000	61,079
H ₂ O	34,000	34,612
somme des composés soufrés	2,036	0,247

S_v* = soufre vapeur + soufre vésiculaire

5

Le rendement en composés soufrés dans le réacteur est égal à:

$$\frac{(\% \text{ composés soufrés entrée} - \% \text{ composés soufrés sortie}) \times 100}{\% \text{ composés soufrés entrée}}$$

10

$$= \frac{(2,036 - 0,247) \times 100}{2,036} = 88\%$$

L'unité Claus a un rendement de 94%.

Le rendement de l'ensemble unité Claus + unité de finition égale:

15

$$94 + (6 \times 0,88) = 99,28$$

Exemple 2 selon l'invention (figure 2).

20 La charge, le solvant organique, le catalyseur et le garnissage sont ceux de l'exemple 1.

Les conditions opératoires du premier réacteur-contacteur (2) sont celles de l'exemple 1.

5 Les conditions relatives du second réacteur-contacteur (102) sont les suivantes :

Température: 110°C.

10 Débit de solvant et de soufre (ligne 104): 500 m³/h.

Débit de solvant refroidi (ligne 116): 50 m³/h.

Température du solvant refroidi: 65°C.

15 Température du solvant recyclé (ligne 105) : 108°C.

Soufre recueilli (ligne 25) : 344,3 kg/h.

20 Les compositions de gaz d'entrée (ligne 3) et de sortie de l'unité sont données dans le tableau II suivant :

Tableau II

	Gaz entrée (ligne 3)	Gaz sortie (ligne 20)
	% volume	% volume
H ₂ S	1,234	0,040
SO ₂	0,617	0,020
CO ₂	4,000	4,084
COS	0,015	0,009
CS ₂	0,015	0,009
S _v *	0,140	0,003
N ₂	59,990	61,180
H ₂ O	33,990	34,670
somme des composés soufrés	2,032	0,090

25 S_v^* = soufre vapeur + soufre vésiculaire

Le rendement en composés dans le réacteur est égal à :

$$\frac{(\% \text{ composés soufrés entrée} - \% \text{ composés soufrés sortie}) \times 100}{\% \text{ composés soufrés entrée}}$$

$$5 \quad = \frac{(2,032 - 0,090) \times 100}{2,032} = 95,57\%$$

L'unité Claus a un rendement de 94%.

Le rendement de l'ensemble unité Claus + unité de finition égale:

$$10 \quad 94 + \frac{(6 \times 95,57)}{100} = 99,73$$

Exemple III selon l'invention (figure 3)

15

On utilise un réacteur-contacteur vertical composé de 2 étages parcourus successivement par le gaz à traiter :

- Étage inférieur (2)

20

Les conditions sont similaires à celles du réacteur de l'exemple 1 ; les conditions de débit gazeux et de composition de gaz à traiter sont les mêmes.

En revanche, on n'utilise pas de catalyseur à cet étage.

25

- Étage supérieur (102)

Les conditions opératoires sont strictement les mêmes que celles du réacteur (102) de l'exemple 2. Tout le catalyseur est introduit par la ligne (101).

30

La composition d'entrée (ligne 3) et de sortie (ligne 120) de l'unité sont données dans le tableau III.

35

Tableau III

	Gaz entrée (ligne 3)	Gaz sortie (ligne 20)
	% volume	% volume
H ₂ S	1,234	0,063
SO ₂	0,617	0,0315
CO ₂	4,000	4,000
COS	0,015	0,006
CS ₂	0,015	0,006
S _v *	0,140	0,004
N ₂	60,000	60,000
H ₂ O	34,000	34,000
somme des composés soufrés	2,036	0,1165

S_v* = soufre vapeur + soufre vésiculaire.

5 Le rendement en composés dans le réacteur est égal à :

$$\frac{(\% \text{ composés soufrés entrée} - \% \text{ composés soufrés sortie}) \times 100}{\% \text{ composés soufrés entrée}}$$

10
$$= \frac{(2,036 - 0,1165) \times 100}{2,036} = 94,27 \%$$

L'unité Claus a un rendement de 94%.

Le rendement de l'ensemble unité Claus + unité de finition égale :

15
$$94 + \frac{(6 \times 94,27)}{100} = 99,65$$

REVENDICATIONS

- 1- Procédé de traitement d'un gaz contenant de l'hydrogène sulfuré et de l'anhydride sulfureux dans lequel on met en contact dans une première zone de contact et de réaction gaz-liquide à une température adéquate le gaz (3) avec au moins un solvant organique et on récupère séparément un effluent contenant de l'eau et du soufre vapeur, le procédé étant caractérisé en ce qu'on introduit l'effluent gazeux dans une deuxième zone de contact, dans des conditions appropriées, avec au moins un solvant organique recyclé appauvri en soufre ; on récupère séparément un gaz épuré ne contenant sensiblement pas de soufre vapeur et ledit solvant riche en soufre, on prélève une partie au moins dudit solvant riche en soufre, avantageusement au plus 50% du débit, on refroidit ladite partie du solvant de façon à obtenir une suspension de cristaux de soufre dans le solvant, on sépare les cristaux de soufre du solvant et on recycle ladite partie de solvant refroidie, appauvrie en soufre au moins en partie, dans la deuxième zone de contact, le procédé étant en outre caractérisé en ce qu'au moins une des deux zones de contact contient au moins un catalyseur.
- 2- Procédé selon la revendication 1 dans lequel la partie restante du solvant riche en soufre est recyclée en tête dans la seconde zone de contact.
- 3- Procédé selon la revendication 1 ou 2 dans lequel on refroidit ladite partie de solvant destinée à être appauvrie en soufre par un échange indirect de chaleur.
- 4- Procédé selon l'une des revendications 1 à 3 dans lequel on refroidit ladite partie de solvant destinée à être appauvrie par mélange avec une quantité adéquate d'eau et de préférence avec une quantité telle qu'on obtient un mélange solvant-eau contenant de 30 à 70% en poids d'eau.
- 5- Procédé selon l'une des revendications 1 à 4 dans lequel on refroidit ladite partie de solvant à une température inférieure à la température de fusion du soufre et de préférence à une température comprise entre 40 et 110°C.

- 6- Procédé selon l'une des revendications 1 à 5 dans lequel on soutire au moins en partie une solution monophasique du dit solvant organique de la partie inférieure de la première zone de contact, on la refroidit de façon à éliminer une partie au moins de la chaleur de réaction mise en jeu et on la recycle dans la première zone de contact.
- 5
- 7- Procédé selon l'une des revendications 1 à 6 dans lequel la température de la seconde zone de contact est inférieure à la température de la première.
- 10 8- Procédé selon l'une des revendications 1 à 7 dans lequel le solvant organique de la première zone de contact et le solvant organique de la seconde zone de contact sont un même solvant.
- 15 9- Procédé selon l'une des revendications 1 à 8 dans lequel la première zone de contact contient le catalyseur.
- 20 10- Procédé selon l'une des revendications 1 à 9, dans lequel on effectue la mise en contact du gaz et du solvant organique dans la première zone de contact et celle de l'effluent gazeux et du solvant organique dans la deuxième zone de contact à contre-courant, l'alimentation en gaz ou en effluent gazeux étant réalisée dans la partie inférieure des zones de contact, et l'alimentation en solvant organique dans la partie supérieure des zones de contact.
- 25 11- Procédé selon l'une des revendications 1 à 10 dans lequel on effectue la mise en contact du gaz et du solvant organique dans la première zone de contact et celle de l'effluent gazeux et du solvant organique dans la deuxième zone de contact à co-courant, l'alimentation en gaz ou en effluent gazeux étant réalisée dans la partie supérieure des zones de contact ainsi que l'alimentation en solvant organique.
- 30
- 35 12- Dispositif de traitement d'un gaz contenant de l'hydrogène sulfuré et de l'anhydride sulfureux comprenant un premier réacteur-contacteur (2) gaz-liquide, des moyens (3) d'alimentation en gaz à traiter et des moyens (5) d'alimentation en solvant organique, des moyens de récupération (25) du soufre et des moyens (20) de sortie d'un effluent gazeux contenant du soufre sous forme vapeur, le dispositif étant caractérisé en ce qu'il comporte un

deuxième réacteur-contacteur (102) connecté aux moyens de sortie de l'effluent gazeux, des moyens d'alimentation (105) en un solvant organique appauvri en soufre connectés au deuxième réacteur-contacteur, des moyens de récupération (120) d'un effluent gazeux épuré en soufre reliés au
5 deuxième réacteur-contacteur, des moyens de soutirage (104) d'une phase liquide contenant le solvant organique et du soufre reliés au deuxième réacteur-contacteur, au moins un moyen d'appauvrissement en soufre d'une partie au moins de la phase liquide relié aux moyens de soutirage de la phases
10 liquide, comprenant au moins un moyen (190) de refroidissement de ladite phase connecté à un moyen de séparation (118) du soufre solide qui délivre une phase solide (125) de soufre à une première extrémité et une phase (121) liquide appauvrie en soufre à une deuxième extrémité, la deuxième extrémité étant connectée aux moyens (105) d'alimentation en solvant appauvri en soufre, le dispositif étant en outre caractérisé en ce qu'un au moins des
15 réacteurs-contacteurs contient un catalyseur.

13- Dispositif selon la revendication 12, dans lequel une ligne (104a) connectée aux moyens (104) de soutirage de la phase liquide contenant le solvant organique et du soufre est reliée aux moyens (105) d'alimentation en
20 solvant organique appauvri en soufre.

14- Dispositif selon l'une des revendications 12 à 13 dans laquelle le moyen de refroidissement est choisi dans le groupe formé par un échangeur de chaleur, un appoint d'eau et une combinaison des deux.
25

15- Dispositif selon l'une des revendications 12 à 14 dans lequel le premier réacteur-contacteur (2) comporte côté extrémité inférieure un moyen (4) de soutirage d'une solution monophasique, des moyens (19) de contrôle de température de la solution associés à un échangeur thermique et connectés
30 au moyen de soutirage de la solution et des moyens de recyclage (5) de la solution monophasique refroidie dans le premier réacteur-contacteur.

16- Dispositif selon l'une des revendications 12 à 15 dans lequel le premier réacteur-contacteur (2) et le second réacteur-contacteur (102) sont contenus
35 dans une même enceinte.

17- Dispositif selon la revendication (12) dans lequel le deuxième réacteur-contacteur comprend un mélangeur-contacteur de type venturi-scrubber associé à un séparateur de l'effluent gazeux épuré, de la phase liquide.

- 5 18- Dispositif selon l'une des revendications 12 à 17 dans lequel une ligne (5a) est connectée entre les moyens (5) de recyclage dans le premier réacteur-contacteur de la solution monophasique provenant du premier réacteur-contacteur, qui a été refroidie et l'entrée du moyen de refroidissement (190) de la phase liquide.

10

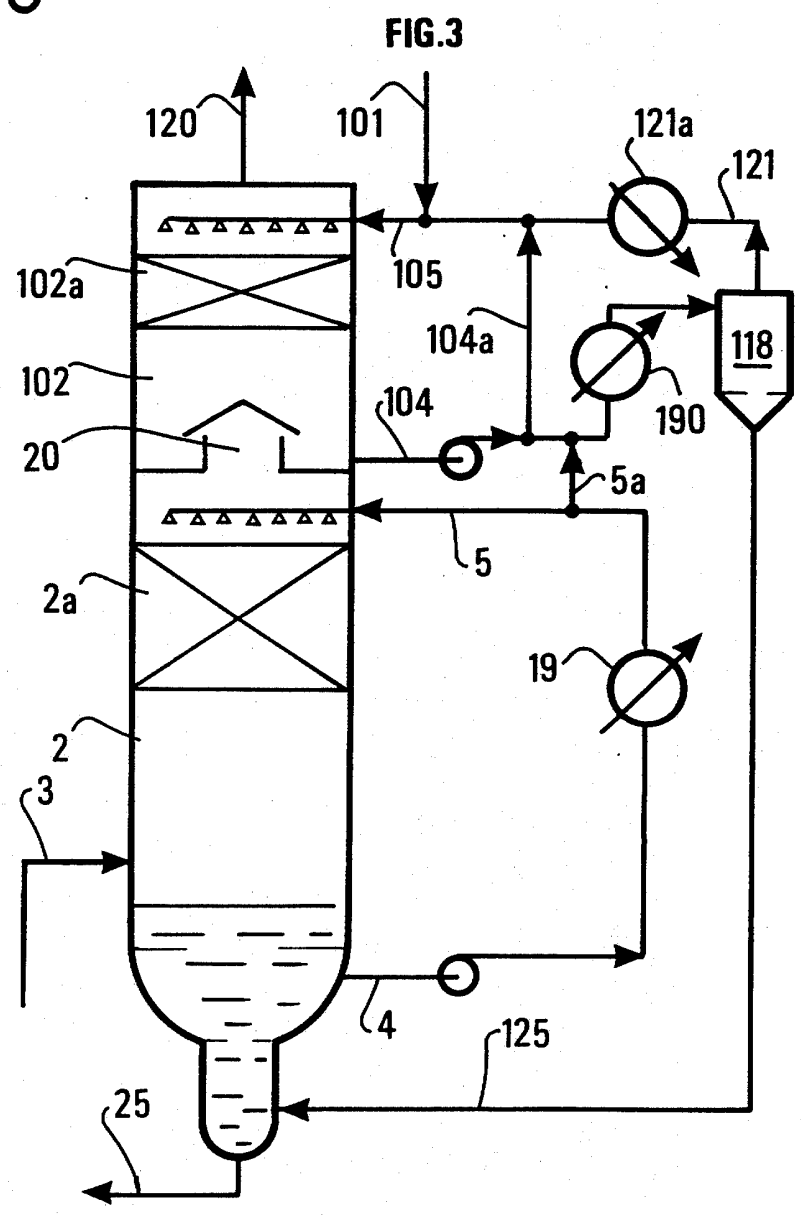
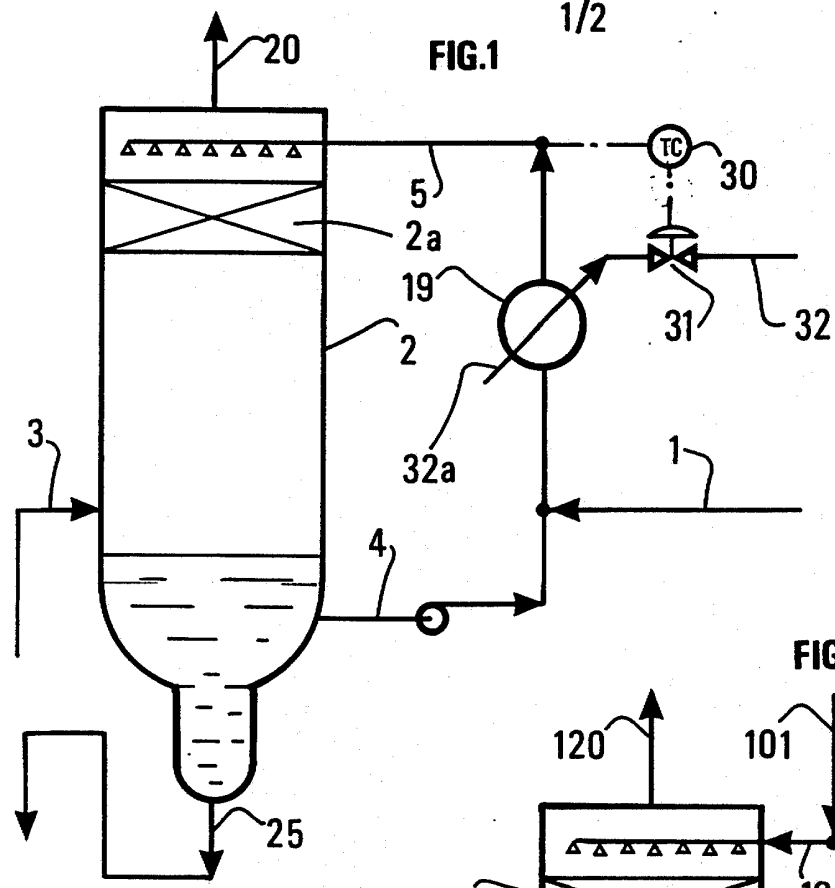
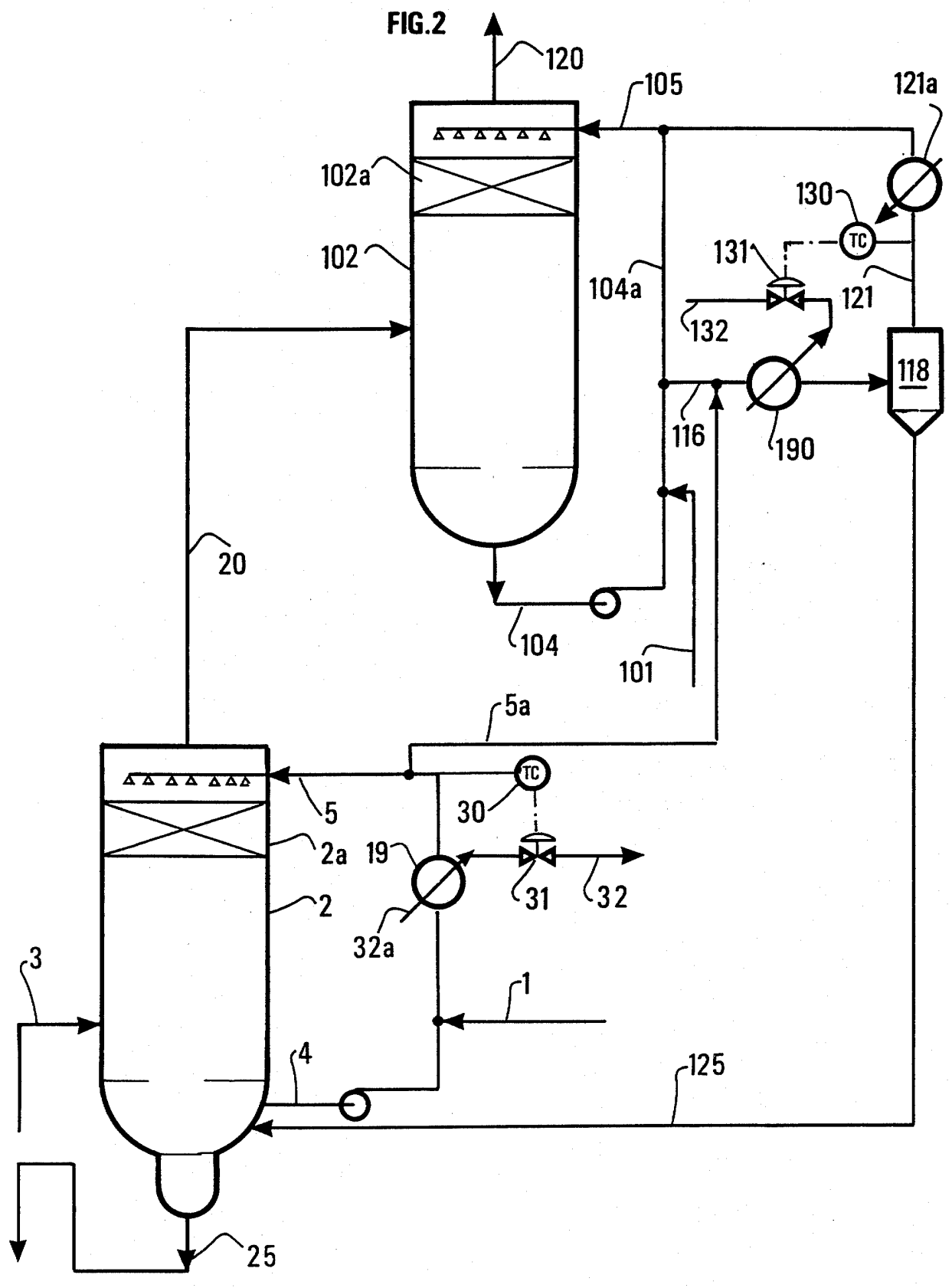


FIG.2



INSTITUT NATIONAL

RAPPORT DE RECHERCHE
PRELIMINAIRE

de la
PROPRIETE INDUSTRIELLE

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

FA 533369
FR 9611409

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS		Revendications concernées de la demande examinée
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	
A	FR 2 411 802 A (RAFFINAGE CIE FRANCAISE) 13 Juillet 1979 * revendication 1; figure 1 * ---	1-18
D,A	FR 2 122 674 A (INSTITUT FRANÇAIS DU PETROLE) 1 Septembre 1972 *document entier* -----	1-18
		DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int.CL.6)
		C01B B01D
Date d'achèvement de la recherche		Examineur
3 Juin 1997		Faria, C
<p>CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES</p> <p>X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : pertinent à l'encontre d'au moins une revendication ou arrière-plan technologique général O : divulgation non-écrite P : document intercalaire</p> <p>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</p> <p>..... & : membre de la même famille, document correspondant de la même famille, document</p>		

2

EPO FORM 1503 03.82 (P04C13)