

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

(19) Organisation Mondiale de la Propriété  
Intellectuelle  
Bureau international



(43) Date de la publication internationale  
26 février 2009 (26.02.2009)

PCT

(10) Numéro de publication internationale  
**WO 2009/024664 A1**

(51) Classification internationale des brevets :  
**B01J 8/06** (2006.01)      **B01J 19/24** (2006.01)

(21) Numéro de la demande internationale :  
PCT/FR2008/000888

(22) Date de dépôt international : 24 juin 2008 (24.06.2008)

(25) Langue de dépôt : français

(26) Langue de publication : français

(30) Données relatives à la priorité :  
0705316      20 juillet 2007 (20.07.2007) FR

(71) Déposant (*pour tous les États désignés sauf US*) : **IFP** [FR/FR]; 1-4, avenue de Bois Préau, F-92852 Rueil Malmaison Cedex (FR).

(72) Inventeurs; et

(75) Inventeurs/Déposants (*pour US seulement*) :

**GIROUDIERE, Fabrice** [FR/FR]; 0197, chemin du Creux, F-69530 Orléans (FR). **TRICARD, Jean, Christian** [FR/FR]; 113, rue Maximilien Robespierre, F-91550 Paray Vieille Poste (FR). **LANGLOS, Bernard** [FR/FR]; 25, rue Jean Paul Lamare, F-78100 ST Germain en Laye (FR).

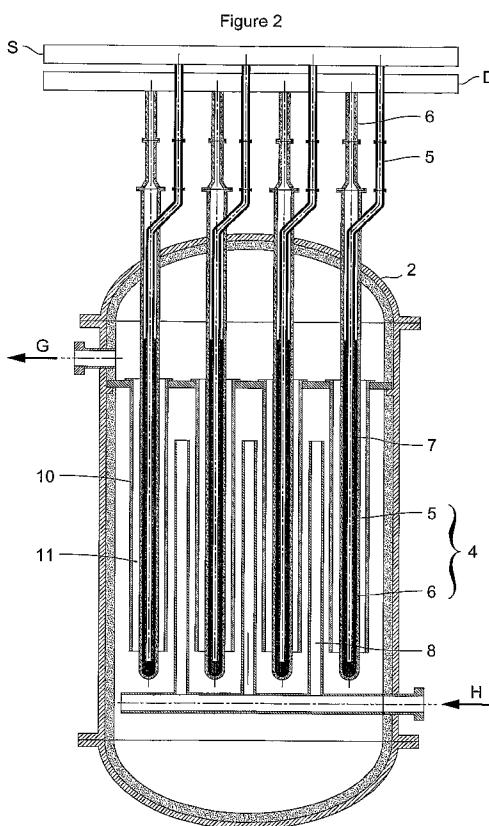
(74) Mandataire : **ELMALEH, Alfred**; IFP, 1-4, avenue Bois Préau, F-92852 Rueil-Malmaison Cedex (FR).

(81) États désignés (*sauf indication contraire, pour tout titre de protection nationale disponible*) : AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY,

[Suite sur la page suivante]

(54) Title: EXCHANGER REACTOR HAVING A BAYONET TUBE ALLOWING OPERATION WITH PRESSURE DIFFERENCES OF THE ORDER OF 100 BAR BETWEEN THE TUBE SIDE AND THE SHELL SIDE.

(54) Titre : REACTEUR ECHANGEUR A TUBE BAÏONNETTE PERMETTANT DE FONCTIONNER AVEC DES DIFFÉRENCES DE PRESSION DE L'ORDRE DE 100 BARS ENTRE LE CÔTE TUBE ET LE CÔTE CALANDRE



(57) Abstract: The present invention describes an exchanger reactor intended for implementing endothermic reactions, comprising a shell inside which the heat-transfer fluid flows, said shell enclosing a plurality of tubes inside which the reactive fluid flows, the tubes being of the bayonet type, and the reactor not having a tube plate. This reactor may operate with a pressure difference between the tube side and the shell side that may range up to 100 bar.

(57) Abrégé : La présente invention décrit un réacteur échangeur destiné à la mise en oeuvre de réactions endothermiques, comportant une calandre à l'intérieur de laquelle circule le fluide caloporteur (11), ladite calandre enfermant une pluralité de tubes (4) à l'intérieur desquels circule le fluide réactif (5,6), les tubes étant, de type baïonnette, et le réacteur ne présentant pas de plaque tubulaire. Ce réacteur peut fonctionner avec une différence de pression entre le côté tube et le côté calandre pouvant aller jusqu'à 100 bars.

WO 2009/024664 A1



TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

**(84) États désignés (sauf indication contraire, pour tout titre de protection régionale disponible) :** ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasien (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), européen (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL,

**Publiée :**

- avec rapport de recherche internationale
- avant l'expiration du délai prévu pour la modification des revendications, sera republiée si des modifications sont reçues

## REACTEUR ECHANGEUR A TUBE BAIONNETTE PERMETTANT DE FONCTIONNER AVEC DES DIFFERENCES DE PRESSION DE L'ORDRE DE 100 BARS ENTRE LE COTE TUBE ET LE COTE CALANDRE.

### 5 DOMAINE DE L'INVENTION

La présente invention concerne un réacteur échangeur consistant en une calandre enfermant une pluralité de tubes, structure que l'homme du métier qualifie de tubes/calandre, ledit réacteur échangeur permettant la mise en oeuvre de réactions fortement endothermiques telles que la réaction de vaporeformage du gaz naturel, le fluide réactif circulant à l'intérieur des tubes, et le fluide caloporteur circulant à l'extérieur des tubes (appelé aussi côté calandre par l'homme du métier).

Le réacteur échangeur selon l'invention permet d'atteindre des tailles de réacteur ayant un diamètre supérieur à 4 mètres, voire supérieur à 10 mètres, avec une différence de pression entre l'intérieur des tubes et l'extérieur des tubes pouvant atteindre 30 bars à 100 bars (1 bar = 0,1 MegaPascal), sans utilisation d'une plaque tubulaire pour assurer la distribution du fluide réactif sur l'ensemble des tubes. Néanmoins, le réacteur selon l'invention est parfaitement réalisable à des tailles inférieures à 4 mètres de diamètre.

20 Dans la suite du texte, on parlera de "côté tube" pour désigner ce qui concerne la réaction chimique et la circulation des fluides réactionnels à l'intérieur desdits tubes, et de "côté calandre" pour désigner ce qui se rapporte au transfert de chaleur depuis le fluide caloporteur vers le fluide réactionnel et la circulation dudit fluide caloporteur.

### 25 EXAMEN DE L'ART ANTERIEUR

L'art antérieur dans le domaine des réacteurs échangeurs destinés à la mise en oeuvre de réactions fortement endothermiques telle que la réaction de vaporeformage d'une coupe hydrocarbonée, correspond au réacteur représenté sur la figure 1.

30 Ce type de réacteur échangeur présente un système de distribution du fluide réactif au moyen d'une première plaque tubulaire et un système de collecte des effluents au moyen d'une seconde plaque tubulaire.

Un tube baïonnette (4) peut être défini comme étant constitué d'un tube interne (5) contenu dans un tube externe (6), le tube interne (5) et le tube externe (6) étant sensiblement coaxiaux.

Le fluide caloporteur est généralement généré par une combustion réalisée à l'extérieur du réacteur échangeur par tout système de combustion tel que fours ou chaudières faisant appel à des brûleurs. Le fluide caloporteur peut également être constitué de fumées de récupération, ou d'un fluide chaud disponible sur le site tel que de la vapeur.

La circulation du fluide caloporteur peut être canalisée à l'intérieur de cheminées (10) entourant, au moins sur une certaine longueur, les tubes baïonnette (4) et définissant un espace annulaire (10) adéquat à la circulation du fluide caloporteur à l'intérieur dudit espace annulaire.

La compréhension de l'invention nécessite d'exposer les limitations liées à la plaque tubulaire.

Selon l'art antérieur, la plaque tubulaire dans les réacteurs échangeur peut se définir comme une plaque perforée s'étendant sensiblement selon une section du réacteur, chaque perforation recevant un tube réactionnel. L'ensemble des tubes réactionnels a donc son extrémité d'entrée (ou de sortie) située sur la plaque tubulaire d'entrée (respectivement de sortie).

La plaque tubulaire d'entrée (i) sépare donc le volume du réacteur en un premier espace (20) situé au dessus de ladite plaque tubulaire, ce premier espace contenant le fluide réactionnel et permettant sa distribution dans chacun des tubes réactionnels, et un second espace (21) situé au dessous de ladite plaque tubulaire, ce second espace entourant les tubes et ne contenant que le fluide caloporteur.

De la même manière, la plaque tubulaire de sortie (s) sépare le volume du réacteur en un troisième espace (22) situé au dessus de ladite plaque tubulaire, ce troisième espace ne contenant que les effluents de la réaction issus de chaque tube réactionnel.

Le premier espace (20) est en fait compris entre la plaque tubulaire d'entrée (i) et la plaque tubulaire de sortie (s) et ne contient que le fluide réactionnel introduit dans ledit espace(20) par la tubulure notée A sur la figure 1.

Dans le cas d'un réacteur échangeur selon l'art antérieur comportant des tubes baïonnettes, tel que représenté sur la figure 1, le réacteur possède deux plaques tubulaires l'une supérieure (s) recevant l'extrémité de sortie des tubes centraux (5), l'autre inférieure (i) recevant l'extrémité d'entrée de la zone annulaire comprise entre 5 le tube central (5) et le tube externe (6). La distribution du fluide réactionnel se fait par l'espace (20) compris entre la plaque tubulaire inférieur (i) et la plaque tubulaire supérieure (s), au moyen de la tubulure d'entrée (A).

Le côté calandre correspond dans le cas de la figure 1 à l'espace (21) extérieur aux tubes réactionnels et situé au dessous de la plaque tubulaire inférieure (i).

10 La figure 1 permet de voir clairement que dans un réacteur échangeur selon l'art antérieur et comportant des tubes baïonnettes, l'entrée et la sortie de chaque tube baïonnette (4) se fait au niveau des plaques tubulaires d'entrée et de sortie, donc à l'intérieur du réacteur.

Or la différence de pression entre l'intérieur des tubes (5) et l'extérieur des tubes 15 (21), ou côté calandre, qui contient le fluide caloporteur, peut être de plusieurs dizaines de bars. Dans le cas particulier de la réaction de vaporeformage, cette différence de pression peut atteindre de 25 bars à 40 bars (1 bar = 0,1 MPa).

La plaque tubulaire inférieure (i) peut donc avoir sa face supérieure attenante à la zone d'introduction des fluides (20), et sa face inférieure attenante à la zone de 20 circulation du fluide caloporteur (21) qui subissent une différence de pression de 25 à 50 bars.

Il est connu de l'homme du métier que le dimensionnement d'une plaque tubulaire capable de résister à de telles différences de pression conduit à des épaisseurs très importantes, et en pratique non réalisables, dès que le diamètre du réacteur atteint 25 une valeur d'une dizaine de mètres.

A titre d'exemple, le tableau ci dessous donne les épaisseurs de plaque tubulaire en mm ( $10^{-3}$  mètres) pour des diamètres de réacteur allant de 2 à 10 mètres, et pour une différence de pression de part et d'autre de la plaque tubulaire de 25, 30 et 35 bars (en ordonnées).

		Diamètre du réacteur		
		2 m	5 m	10 m
Delta de pression	25 bar	193 mm	483 mm	967 mm
	30 bar	212 mm	530 mm	1059 mm
	35 bar	229 mm	572 mm	1144 mm

Si l'on admet une épaisseur maximale de la plaque tubulaire de l'ordre de 400 mm, il en résulte une limite dans la taille du réacteur qui s'établit à environ 5 mètres de 5 diamètre pour une différence de pression de part et d'autre de la plaque tubulaire de 25 bars. Cette taille limite est encore inférieure si la différence de pression de part et d'autre de la plaque tubulaire est plus importante. Ainsi, si la différence de pression de part et d'autre de la plaque tubulaire atteint 35 bars, le diamètre maximum du réacteur n'est plus que de 3 mètres environ.

10 Du point de vue résistance mécanique, il existe également une limite dans la densité de tubes admissible sur la plaque tubulaire, limite qui dépend du diamètre des tubes et se situe à environ 10 tubes/  $m^2$  pour un diamètre de tube de 170 mm. Le réacteur selon la présente invention permet de dépasser la limite en taille des réacteurs selon l'art antérieur, c'est à dire comportant une plaque tubulaire, en 15 supprimant ladite plaque tubulaire, la distribution des fluides réactifs et la collecte des effluents se faisant entièrement à l'extérieur du réacteur.

Le réacteur échangeur selon la présente invention permet de résoudre un second problème lié au remplissage en catalyseur des tubes baïonnette. En effet, dans un réacteur selon l'art antérieur, le remplissage en catalyseur des tubes baïonnettes se 20 fait par l'espace (20) compris entre les deux plaques tubulaires. Or cet espace est limité et rendu très malcommode par la présence des nombreux tubes fixés à la plaque tubulaire supérieure.,.

Dans le réacteur selon la présente invention, le remplissage des tubes baïonnette se fait par leur extrémité située à l'extérieur du réacteur qui se trouve dans un 25 environnement beaucoup moins contraignant.

Un autre intérêt du réacteur selon l'invention est qu'il fonctionne avec un fluide caloporeur dont la génération est réalisée *in situ*, c'est à dire au moyen d'une combustion effectuée au sein même du réacteur échangeur, côté calandre. Une telle combustion "in situ" peut être réalisée au moyen de brûleurs tels que ceux décrits

dans la demande française 06/10.999, les dits brûleurs, généralement de forme longiligne, s'intercalant entre les tubes baïonnette.

#### DESCRIPTION SOMMAIRE DES FIGURES

- 5 La figure 1 représente un réacteur échangeur à tubes baïonnettes selon l'art antérieur présentant une plaque tubulaire inférieure pour la distribution des fluides réactifs, et une plaque tubulaire supérieure pour la collecte des effluents.
- La figure 2 représente un réacteur échangeur selon l'invention, c'est à dire sans plaque tubulaire, avec l'extrémité des tubes baïonnettes située à l'extérieur du
- 10 réacteur, le fluide caloporteur étant issu d'une combustion réalisée à l'intérieur du réacteur au moyen de brûleurs longilignes s'intercalant entre les tubes baïonnettes.
- La figure 3 représente un exemple de dispositif de distribution et de collecte des fluides réactionnels dans le réacteur selon l'invention.
- La figure 4 représente un exemple de brûleurs pouvant être utilisés pour assurer la
- 15 génération du fluide caloporteur à l'intérieur même du réacteur échangeur selon l'invention.

#### DESCRIPTION SOMMAIRE DE L'INVENTION

- 20 Le réacteur échangeur selon la présente invention consiste en une calandre de forme cylindrique fermée par une calotte supérieure et un fond inférieur, à l'intérieur de laquelle circule le fluide caloporteur, ladite calandre enfermant une multiplicité de tubes parallèles, d'axe sensiblement vertical, à l'intérieur desquels circule le fluide réactionnel, les tubes réactionnels étant de type baïonnette et ayant une densité
- 25 comprise entre 2 et 12 tubes par  $m^2$  de section du réacteur, l'espacement entre chaque tube baïonnette, ou distance centre à centre, étant comprise entre 2 et 5 fois le diamètre intérieur du tube externe (6), l'entrée et la sortie de chaque tube baïonnette étant situées à l'extérieur du réacteur, et le fluide caloporteur étant obtenu par une combustion réalisée *in situ* au moyen de brûleurs longilignes (8)
- 30 s'intercalant entre lesdits tubes baïonnettes (4) en formant un pas triangulaire, l'entraxe entre les brûleurs étant compris entre 2 et 5 fois le diamètre du tube externe (6) d'un tube baïonnette.

Le réacteur selon l'invention ne comporte pas de plaque tubulaire.

Dans le réacteur échangeur selon la présente invention, l'entrée et la sortie de chaque tube baïonnette sont situées à l'extérieur du réacteur tel que cela est montré sur la figure 2.

Selon une variante préférée du réacteur échangeur, chaque tube baïonnette (4) est entouré d'une cheminée cylindrique (10) sensiblement coaxiale au tube baïonnette, le fluide calopورteur circulant à l'intérieur de l'espace annulaire (11) compris entre la paroi externe du tube baïonnette (4) et la dite cheminée (10) avec une vitesse comprise entre 20 m/s et 50 m/s.

Les tubes baïonnettes sont préférentiellement assemblés selon un pas triangulaire.

10 L'espacement entre chaque tube baïonnette, ou distance centre à centre, est généralement compris entre 2 et 5 fois le diamètre intérieur du tube externe (6). Un espacement selon un pas carré reste néanmoins parfaitement dans le cadre de la présente invention.

15 Le tube interne (5) de chaque tube baïonnette (4) traverse le tube externe (6) en un point situé à l'extérieur du réacteur, à une distance d'au moins 1 mètre par rapport à la calotte supérieure du réacteur échangeur, et sous un angle compris entre 30° et 60° par rapport à la verticale. Cette disposition permet de séparer nettement l'entrée et la sortie de chaque tube baïonnette (4), de manière à faciliter la mise en place du dispositif de distribution des fluides réactionnels, et du dispositif de collecte des 20 effluents réactionnels tels que représentés sur la figure 3.

De manière préférée, le tube interne (5) de chaque tube baïonnette (4) est alimenté depuis un conduit d'alimentation principal se ramifiant en N branches, chaque branche alimentant un tube interne, N étant compris entre 5 et 100, et étant préférentiellement compris entre 10 et 50.

25 De manière préférée, le tube externe (6) de chaque tube baïonnette (4) est connecté à un collecteur primaire, lui même connecté à un collecteur secondaire et ainsi de suite jusqu'au collecteur final qui correspond à un nombre M de collecteurs compris entre 2 et 10.

De manière préférée, le fluide réactif est introduit par l'extrémité d'entrée de la zone 30 annulaire (7) comprise entre le tube externe (6) et le tube interne (5), ladite zone annulaire (7) étant au moins en partie remplie de catalyseur.

Les effluents réactionnels sont récupérés par l'extrémité de sortie du tube central (5).

De manière générale, le fluide caloporteur est constitué de fumées de combustion, ladite combustion ayant lieu *in situ*, c'est à dire au moyen de brûleurs situés à l'intérieur même du réacteur et s'intercalant entre les tubes baïonnettes dans un équipement distinct du présent réacteur échangeur. Les fumées de combustion quittent le réacteur par la tubulure de sortie (G) située en partie supérieure du réacteur.

Selon l'invention, le fluide caloporteur apportant la chaleur nécessaire à la réaction est obtenu par une combustion réalisée *in situ* au moyen de brûleurs longilignes (8) s'intercalant entre les tubes baïonnettes (4).

Ces brûleurs longilignes sont décrits dans la demande de brevet français n° 06/10.999

Ils sont dans la suite du texte compris au moyen de la figure 4 comme des brûleurs sans pré mélange de géométrie cylindrique, de longueur Lb et de diamètre Db, avec un rapport Lb/Db compris entre 10 et 500, et préférentiellement compris entre 30 et 300.

Ces brûleurs possèdent un distributeur central de combustible (27) ayant une répartition d'orifices (30) éventuellement non uniforme, et possédant un élément poreux (28) de forme annulaire entourant le distributeur central (27) au moins sur toute sa longueur Lb, l'épaisseur dudit élément poreux (28) étant comprise entre 0,5 et 5 cm, et la surface interne dudit poreux (28) étant située à une distance du distributeur central (27) comprise entre 0,5 cm et 10 cm. Il s'agit précisément de la distance correspondant à la zone notée (29) sur la figure 4.

Préférentiellement, les brûleurs longilignes forment un pas triangulaire, l'entraxe entre les brûleurs étant compris entre 2 et 5 fois le diamètre externe des tubes baïonnettes.

L'invention consiste également en un procédé de vaporeformage d'une coupe hydrocarbure utilisant le présent réacteur échangeur.

Selon une variante du procédé selon l'invention, le combustible utilisé pour réaliser la combustion *in situ* est un gaz contenant plus de 90% d'hydrogène.

De manière générale, le procédé de vaporeformage d'une coupe hydrocarbure utilisant le réacteur échangeur selon l'invention est opéré à une pression côté calandre comprise entre 1 et 10 bars absous, ( 1 bar =  $10^5$  pascal), et à une pression à l'intérieur des tubes baïonnettes comprise entre 25 et 50 bars absous.

- 5 La température à l'intérieur des tubes réactionnels est généralement comprise entre 700°C et 950°C.

#### DESCRIPTION DETAILLEE DE L'INVENTION

Le réacteur échangeur selon la présente invention est destiné à la mise en oeuvre 10 de réactions fortement endothermiques et à des niveaux de températures pouvant aller jusqu'à 950°C. Typiquement, il pourra être utilisé pour le vaporeformage de coupes hydrocarbures, notamment le naphta ou le gaz naturel en vue de la production d'hydrogène.

La description qui suit se rapporte à la figure 2.

15 Le réacteur échangeur selon l'invention est constitué d'une calandre de forme globalement cylindrique (1) fermée dans sa partie supérieure par une calotte (2) de forme sensiblement ellipsoïdale et dans sa partie inférieure par un fond (3) de forme sensiblement ellipsoïdale, la dite calandre (1) enfermant une pluralité de tubes 20 verticaux (4) de longueur (L) s'étendant le long de la partie cylindrique de la calandre (1).

Les tubes (4) sont de type baïonnette, c'est à dire qu'ils sont constitués d'un tube interne (5) contenu dans un tube externe (6), le tube interne et le tube externe étant sensiblement coaxiaux. La coaxialité est obtenue par exemple à l'aide d'ailettes de 25 centrage soudées à distance régulière sur le tube intérieur (5) et qui permettent de maintenir un écartement fixe avec le tube externe (6).

L'espace annulaire (7) compris entre le tube interne (5) et le tube externe (6) est généralement rempli de catalyseur, ce catalyseur ayant la forme de particules cylindriques, qui dans le cas de la réaction de vaporeformage, ont une longueur typique de quelques millimètres et un diamètre de quelques millimètres.

La forme des particules de catalyseur n'est pas un élément caractéristique de l'invention qui est compatible avec toute forme des particules de catalyseur dont la taille permet l'introduction dans la partie annulaire (7) des tubes verticaux (4).

Le fluide réactionnel est préférentiellement introduit dans le tube baïonnette (4) par 5 la zone annulaire catalytique (7) dont l'extrémité d'entrée se trouve à l'extérieur du réacteur, les réactions de vaporeformage se développant dans la zone annulaire catalytique, et les effluents étant récupérés en sortie du tube central (5), ladite sortie étant également située à l'extérieur du réacteur.

Une autre configuration dans laquelle le fluide réactionnel est introduit par le tube 10 central (5) et les effluents récupérés en sortie de la zone annulaire (7) est également possible.

Les fluides réactifs circulent donc à l'intérieur des tubes baïonnette (4), d'abord en descendant le long de la zone annulaire (7) du tube, puis en remontant le long du tube central (5), les dits tubes (4) ayant leur extrémité d'entrée/sortie situées à 15 l'extérieur du réacteur échangeur, et lesdits tubes (4) étant chauffés par un fluide caloporteur circulant du côté calandre (8).

La nature du fluide caloporteur n'a pas d'importance dans le cadre de la présente invention. Il s'agit de fumées issues d'une combustion réalisée à l'intérieur même du réacteur échangeur au moyen de brûleurs spécifiques tels que ceux décrits dans la 20 demande de brevet français n° 06/10.999.

Le rapport H/D entre la hauteur H du réacteur et son diamètre D est généralement compris entre 2 et 8, et préférentiellement compris entre 2,5 et 6.

Les tubes baïonnettes (4) sont généralement équipés d'une cheminée (10) qui les entoure de manière sensiblement coaxial, permettant d'obtenir une vitesse de 25 circulation des fumées de combustion le long du tube à chauffer comprise entre 5 m/s et 50 m/s, et préférentiellement comprise entre 20 m/s et 40 m/s.

Le nombre de tubes à chauffer par  $\text{m}^2$  de section du réacteur est généralement compris entre 2 et 12, et préférentiellement compris entre 3 et 8. On entend par section du réacteur la section géométrique supposée vide de tout interne.

Les tubes baïonnettes (4) forment le plus souvent un pas triangulaire avec une 5 distance centre à centre comprise entre 2 et 5 fois le diamètre intérieur du tube externe (6).

Lorsque la combustion in situ générant le fluide caloporeur est réalisée au moyen de brûleurs longiligne, ceux ci s'intercalent entre les tubes baïonnette et forment donc un pas triangulaire avec une distance centre à centre entre brûleur comprise entre 2 10 et 5 fois le diamètre externe desdits tubes baïonnettes.

#### EXEMPLE SELON L'INVENTION

L'exemple ci dessous fournit le dimensionnement d'un réacteur échangeur selon l'invention destiné à produire 90000 Nm<sup>3</sup>/heure d'H<sub>2</sub> par vaporeformage de gaz 15 naturel.

Le combustible utilisé pour apporter les calories nécessaires à la réaction de vaporeformage a la composition suivante en % molaire:

H<sub>2</sub>: 92,10%

CH<sub>4</sub>: 5,35%

20 CO<sub>2</sub>: 0,78%

CO: 1,5%

N<sub>2</sub>: 0,25%.

La température à l'intérieur des tubes baïonnettes est de: 900°C.

La température des fumées circulant côté calandre est en moyenne de: 1200°C.

25 La pression à l'intérieur des tubes baïonnettes est de: 35 bars

La pression des fumées circulant côté calandre est de: 5 bars

La différence de pression entre tube et calandre est donc de 30 bars.

Les dimensions principales du réacteur selon l'invention sont les suivantes:

Hauteur totale du réacteur (avec les fonds supérieur et inférieur): 16m

Diamètre du réacteur: 7m

5 Rapport H/D: 2,3

Les tubes sont de type baïonnette

Longueur des tubes: 12m

Diamètre extérieur des tubes à chauffer: 200mm

Diamètre du tube central : 50mm

10 Distance centre à centre des tubes à chauffer: 300mm

Nombre de tubes : 235 tubes répartis en pas triangulaire

Diamètre extérieur des brûleurs poreux: 100mm

Longueur des brûleurs poreux: 5m

15 Nombre de brûleurs poreux: 470

Distance centre à centre entre brûleur poreux: 600mm

La partie annulaire des tubes baïonnettes est remplie au moyen d'un catalyseur de vaporeformage à base de nickel sous forme de pastilles cylindriques, chaque

20 particule de catalyseur ayant les dimensions suivantes:

- diamètre des pastilles: 10mm,

- longueur des pastilles: 13 mm.

Le fluide réactionnel est amené dans chaque tube réactionnel par l'extrémité d'entrée du tube extérieur (6).

25 Le distributeur d'entrée des fluides réactionnels a une forme à 20 branches telle que celle représenté sur la figure 3.

L'effluent réactionnel est récupéré par l'extrémité de sortie du tube central (5).

Le collecteur de sortie des effluents réactionnels a une forme à 4 branches telle que celle représentée sur la figure 3.

30 Le tube central (5) se sépare du tube externe (6) à une distance de 2 mètres au dessus du dôme supérieur du réacteur selon un angle de 30° par rapport à la verticale.

Le remplissage du catalyseur se fait par l'extrémité d'entrée des tubes externes (6).

L'accès à la zone annulaire du tube externe (6) est facilité par le démontage des manchons en partie supérieure. Le tube central (5) ayant son extrémité déviée à l'extérieur du tube externe (6) de la baïonnette, il n'y a pas de risque de mettre du catalyseur dans le tube central (5) lors du chargement de l'espace annulaire.

- 5 Pour favoriser le chargement, les tubes baïonnette peuvent être mis en vibration, par exemple par leur extrémité inférieur accessible via un trou d'homme dans la calandre et à l'aide d'un vibreur attaché le temps du chargement au tube concerné.

## REVENDICATIONS

- 1- Réacteur échangeur consistant en une calandre de forme cylindrique fermée par une calotte supérieure et un fond inférieur, à l'intérieur de laquelle circule le fluide caloporeur, ladite calandre enfermant une multiplicité de tubes parallèles d'axe sensiblement vertical à l'intérieur desquels circule le fluide réactionnel, les tubes étant de type baïonnette et ayant une densité comprise entre 2 et 12 tubes par m<sup>2</sup> de section du réacteur, l'espacement entre chaque tube baïonnette, ou distance centre à centre, étant comprise entre 2 et 5 fois le diamètre intérieur du tube externe (6), l'entrée et la sortie de chaque tube baïonnette étant situées à l'extérieur du réacteur, et le fluide caloporeur étant obtenu par une combustion réalisée in situ au moyen de brûleurs longilignes (8) s'intercalant entre lesdits tubes baïonnettes (4) en formant un pas triangulaire, l'entraxe entre les brûleurs étant compris entre 2 et 5 fois le diamètre du tube externe (6) d'un tube baïonnette.
- 15
- 2- Réacteur échangeur selon la revendication 1, dans lequel chaque tube baïonnette est entouré d'une cheminée cylindrique (10) sensiblement coaxiale au tube externe (6).
- 20
- 3- Réacteur échangeur selon l'une quelconque des revendications 1 à 2, dans lequel le tube interne (5) de chaque tube baïonnette traverse le tube externe (6) en un point situé à l'extérieur du réacteur, à une distance d'au moins 1 mètre par rapport à la calotte supérieure du réacteur échangeur et sous un angle compris entre 30° et 60° par rapport à la verticale.
- 25
- 4- Réacteur échangeur selon l'une quelconque des revendications 1 à 3, dans lequel le tube interne (5) de chaque tube baïonnette est alimenté depuis un tube d'alimentation principal se ramifiant en N branches, chaque branche alimentant un tube interne (5), N étant compris entre 5 et 100, et étant préférentiellement compris entre 10 et 50.

30

5- Réacteur échangeur selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, dans lequel le tube externe (6) de chaque tube baïonnette est connecté à un collecteur primaire,

lui même connecté à un collecteur secondaire, et ainsi de suite jusqu'au collecteur final correspondant à un nombre M de collecteurs compris entre 2 et 10.

6- Procédé de vaporeformage d'une coupe hydrocarbure utilisant le réacteur  
5 échangeur selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, dans lequel la pression côté calandre est comprise entre 1 et 10 bars absolus, et la pression à l'intérieur des tubes baïonnettes est comprise entre 25 et 50 bars absolus.

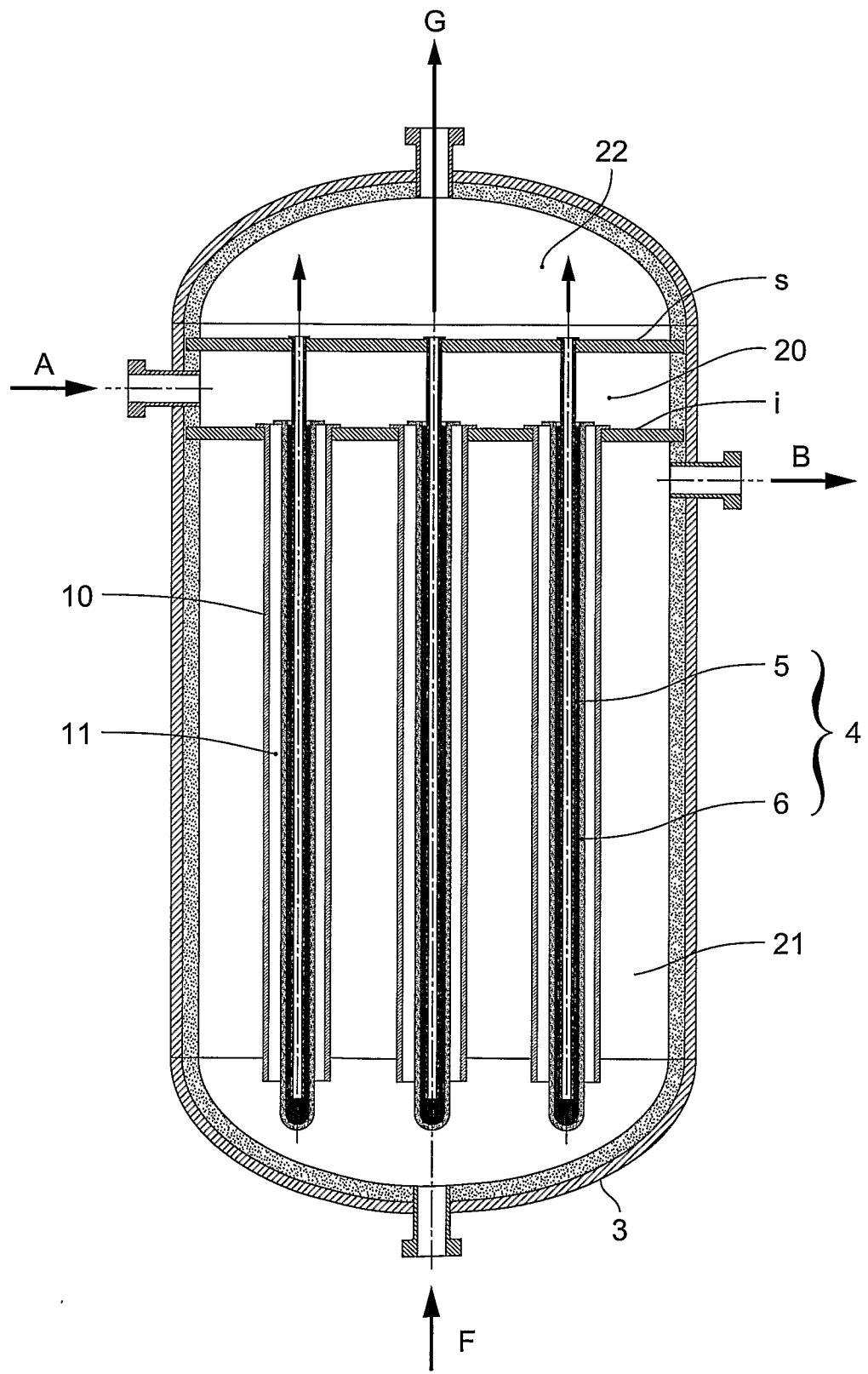
7- Procédé de vaporeformage d'une coupe hydrocarbure utilisant le réacteur  
10 échangeur selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, dans lequel le combustible utilisé pour réaliser la combustion in situ est une partie de l'effluent de vaporeformage.

8- Procédé de vaporeformage d'une coupe hydrocarbure utilisant le réacteur  
15 échangeur selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, dans lequel le fluide caloporeur circule à l'intérieur de l'espace annulaire (11) compris entre la paroi externe (6) du tube baïonnette et la cheminée (10) entourant ledit tube avec une vitesse comprise entre 20 m/s et 50 m/s.

20 9- Procédé de vaporeformage d'une coupe hydrocarbure utilisant le réacteur selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, dans lequel le fluide réactif est introduit par l'extrémité d'entrée de la zone annulaire (7), et les effluents sont récupérés par l'extrémité de sortie du tube central (5).

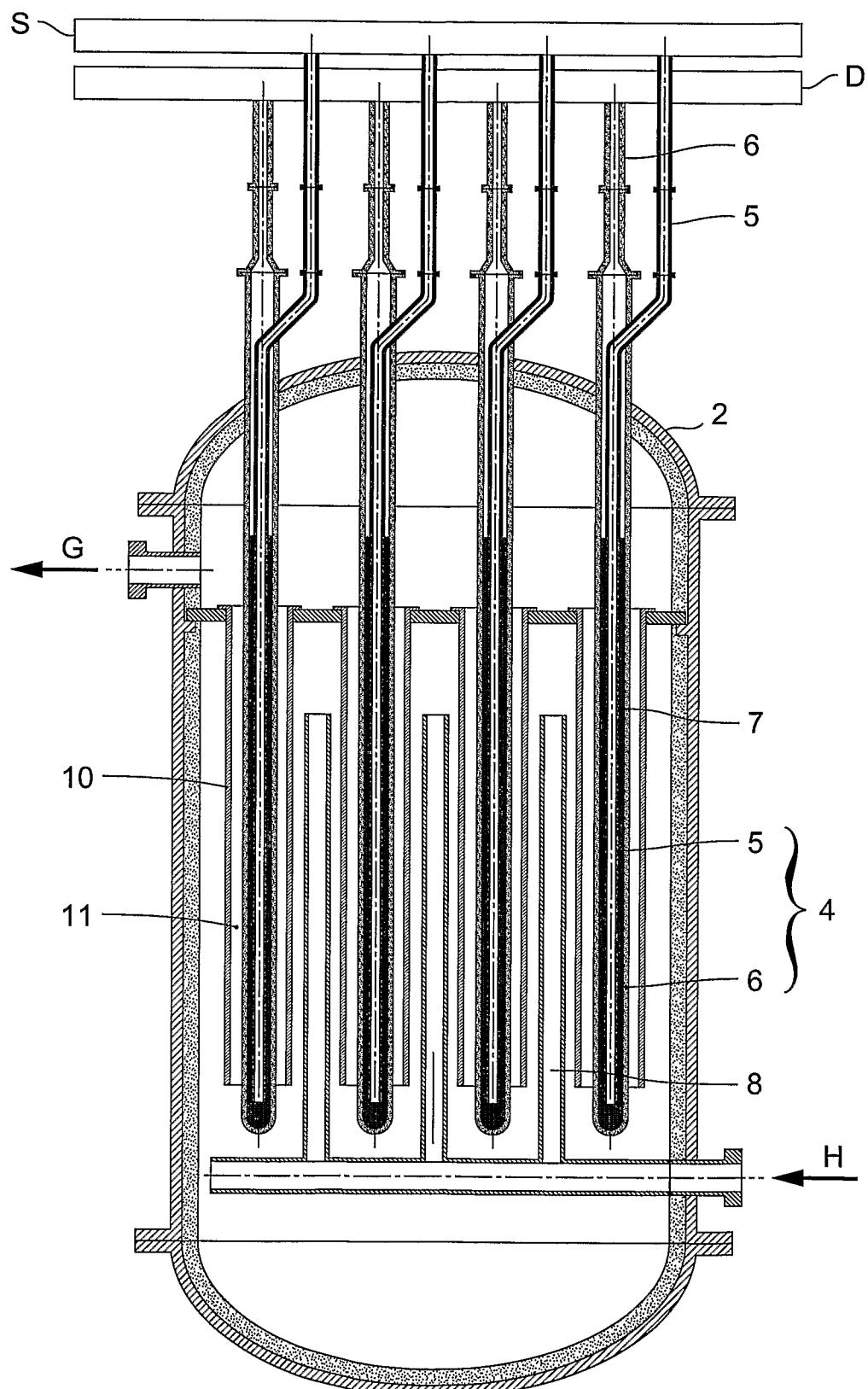
1 / 4

Figure 1



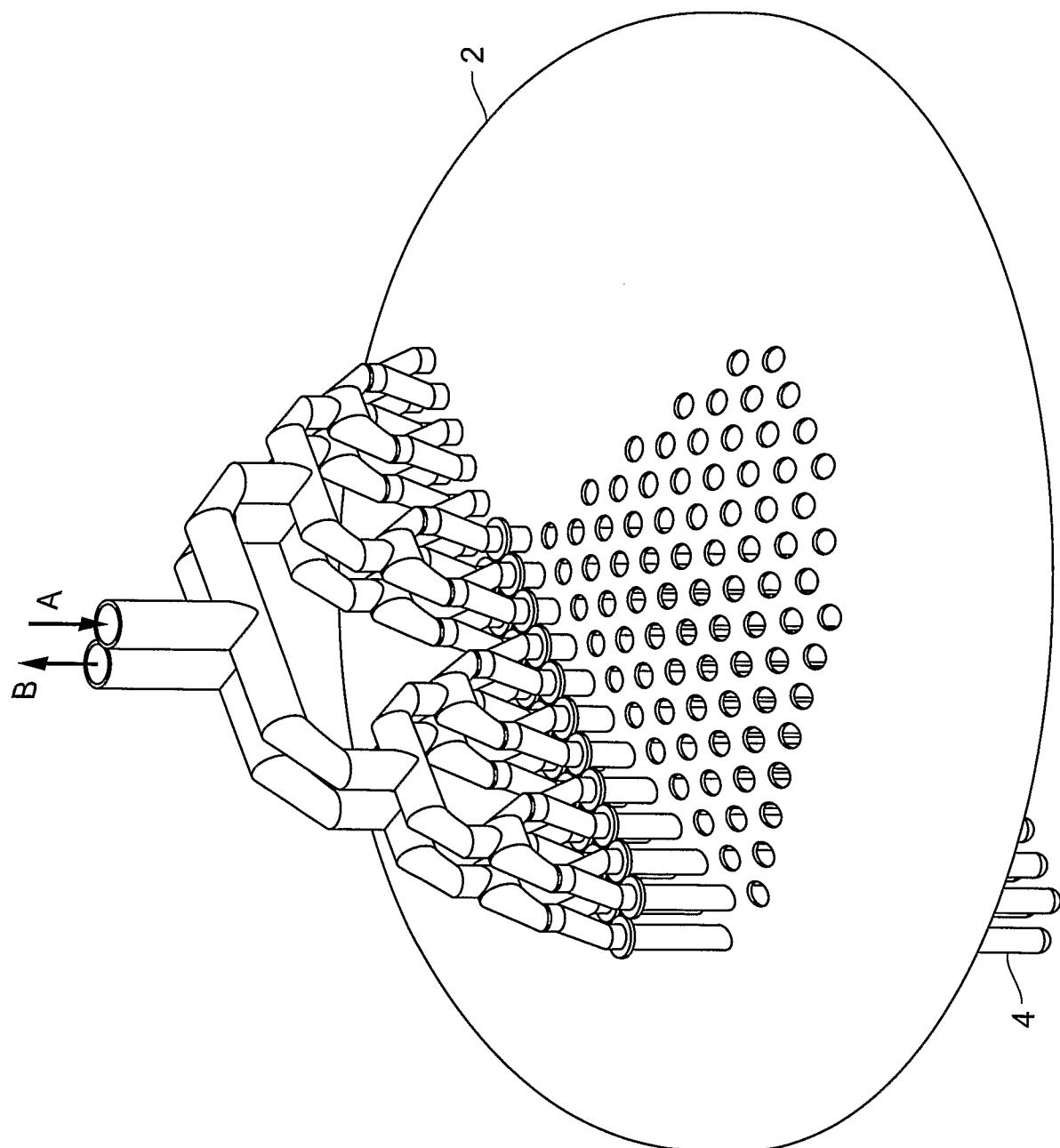
2 / 4

Figure 2



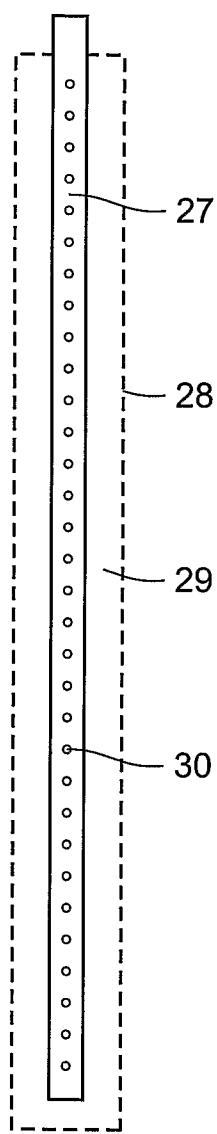
3 / 4

Figure 3



4 / 4

Figure 4



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/FR2008/000888

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
INV. B01J8/06 B01J19/24

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, COMPENDEX

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 3 119 671 A (RUSSELL JAMES GEORGE ET AL) 28 January 1964 (1964-01-28) column 1, line 20 - line 40 column 2, line 41 - column 4, line 61 column 5, line 42 - column 6, line 36; figures ----- FR 2 588 564 A (VYZK USTAV CHEM ZARIZENI [CS]) 17 April 1987 (1987-04-17) abstract page 2, line 8 - line 25 page 4, line 1 - page 5, line 7 page 6, line 34 - page 8, line 15; claims; figures; examples ----- -/-	1-13
X		1-13

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

\* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

Date of mailing of the international search report

18 décembre 2008

12/01/2009

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Nazario, Luis

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/FR2008/000888

## C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 3 220 385 A (JAN SELLIN) 30 November 1965 (1965-11-30) column 1, line 9 - line 20 column 3, line 41 - line 48 column 4, line 41 - column 5, line 39; figures -----	1-13
X	GB 2 050 413 A (TOYO ENGINEERING CORP) 7 January 1981 (1981-01-07) page 1, line 117 - line 127 page 2, line 85 - line 87 page 3, line 58 - line 73 page 4, line 38 - page 5, line 20; figures -----	1-13
X	US 5 935 531 A (GIACOBBE FRANCESCO [IT]) 10 August 1999 (1999-08-10) abstract column 2, line 36 - line 65 column 3, line 66 - column 7, line 4; figures -----	1-13
A	FR 2 374 076 A (OTTO & CO GMBH DR C [DE]) 13 July 1978 (1978-07-13) page 1, line 38 - page 2, line 38 page 4, line 12 - page 5, line 40; figures -----	1-13
A	WO 01/56690 A (ICI PLC [GB]; DAVIES RAYMOND [GB]) 9 August 2001 (2001-08-09) abstract page 2, line 1 - page 3, line 13 page 3, line 26 - page 6, line 17; figures -----	1-13

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/FR2008/000888

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)			Publication date
US 3119671	A 28-01-1964	NONE			
FR 2588564	A 17-04-1987	CS JP NL SU	8507258 A1 62091589 A 8602405 A 1613481 A1		16-07-1987 27-04-1987 04-05-1987 15-12-1990
US 3220385	A 30-11-1965	NONE			
GB 2050413	A 07-01-1981	CA DD DE FR IT JP JP NL US	1168051 A1 150905 A5 3018127 A1 2456708 A1 1148865 B 55154303 A 57054441 B 8002798 A 4371452 A		29-05-1984 23-09-1981 22-01-1981 12-12-1980 03-12-1986 01-12-1980 18-11-1982 20-11-1980 01-02-1983
US 5935531	A 10-08-1999	NONE			
FR 2374076	A 13-07-1978	DE GB JP US	2656726 A1 1539306 A 53075172 A 4229419 A		22-06-1978 31-01-1979 04-07-1978 21-10-1980
WO 0156690	A 09-08-2001	AU EP JP	2384801 A 1251952 A1 2003521371 T		14-08-2001 30-10-2002 15-07-2003

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale n°

PCT/FR2008/000888

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE  
INV. B01J8/06 B01J19/24

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)  
B01J

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si cela est réalisable, termes de recherche utilisés)

EPO-Internal, WPI Data, COMPENDEX

C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie*	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
X	US 3 119 671 A (RUSSELL JAMES GEORGE ET AL) 28 janvier 1964 (1964-01-28) colonne 1, ligne 20 - ligne 40 colonne 2, ligne 41 - colonne 4, ligne 61 colonne 5, ligne 42 - colonne 6, ligne 36; figures -----	1-13
X	FR 2 588 564 A (VYZK USTAV CHEM ZARIZENI [CS]) 17 avril 1987 (1987-04-17) abrégé page 2, ligne 8 - ligne 25 page 4, ligne 1 - page 5, ligne 7 page 6, ligne 34 - page 8, ligne 15; revendications; figures; exemples ----- -/--	1-13



Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents



Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe

\* Catégories spéciales de documents cités:

- \*A\* document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent
- \*E\* document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date
- \*L\* document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)
- \*O\* document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens
- \*P\* document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée

\*T\* document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention

\*X\* document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément

\*Y\* document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier

\*&\* document qui fait partie de la même famille de brevets

Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée

Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale

18 décembre 2008

12/01/2009

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale  
Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Fonctionnaire autorisé

Nazario, Luis

## RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale n° PCT/FR2008/000888
--

## C(suite). DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie*	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
X	US 3 220 385 A (JAN SELLIN) 30 novembre 1965 (1965-11-30) colonne 1, ligne 9 - ligne 20 colonne 3, ligne 41 - ligne 48 colonne 4, ligne 41 - colonne 5, ligne 39; figures -----	1-13
X	GB 2 050 413 A (TOYO ENGINEERING CORP) 7 janvier 1981 (1981-01-07) page 1, ligne 117 - ligne 127 page 2, ligne 85 - ligne 87 page 3, ligne 58 - ligne 73 page 4, ligne 38 - page 5, ligne 20; figures -----	1-13
X	US 5 935 531 A (GIACOBBE FRANCESCO [IT]) 10 août 1999 (1999-08-10) abrégé colonne 2, ligne 36 - ligne 65 colonne 3, ligne 66 - colonne 7, ligne 4; figures -----	1-13
A	FR 2 374 076 A (OTTO & CO GMBH DR C [DE]) 13 juillet 1978 (1978-07-13) page 1, ligne 38 - page 2, ligne 38 page 4, ligne 12 - page 5, ligne 40; figures -----	1-13
A	WO 01/56690 A (ICI PLC [GB]; DAVIES RAYMOND [GB]) 9 août 2001 (2001-08-09) abrégé page 2, ligne 1 - page 3, ligne 13 page 3, ligne 26 - page 6, ligne 17; figures -----	1-13

**RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE**

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Demande internationale n°

PCT/FR2008/000888

Document brevet cité au rapport de recherche		Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)		Date de publication
US 3119671	A	28-01-1964	AUCUN		
FR 2588564	A	17-04-1987	CS 8507258 A1 JP 62091589 A NL 8602405 A SU 1613481 A1		16-07-1987 27-04-1987 04-05-1987 15-12-1990
US 3220385	A	30-11-1965	AUCUN		
GB 2050413	A	07-01-1981	CA 1168051 A1 DD 150905 A5 DE 3018127 A1 FR 2456708 A1 IT 1148865 B JP 55154303 A JP 57054441 B NL 8002798 A US 4371452 A		29-05-1984 23-09-1981 22-01-1981 12-12-1980 03-12-1986 01-12-1980 18-11-1982 20-11-1980 01-02-1983
US 5935531	A	10-08-1999	AUCUN		
FR 2374076	A	13-07-1978	DE 2656726 A1 GB 1539306 A JP 53075172 A US 4229419 A		22-06-1978 31-01-1979 04-07-1978 21-10-1980
WO 0156690	A	09-08-2001	AU 2384801 A EP 1251952 A1 JP 2003521371 T		14-08-2001 30-10-2002 15-07-2003