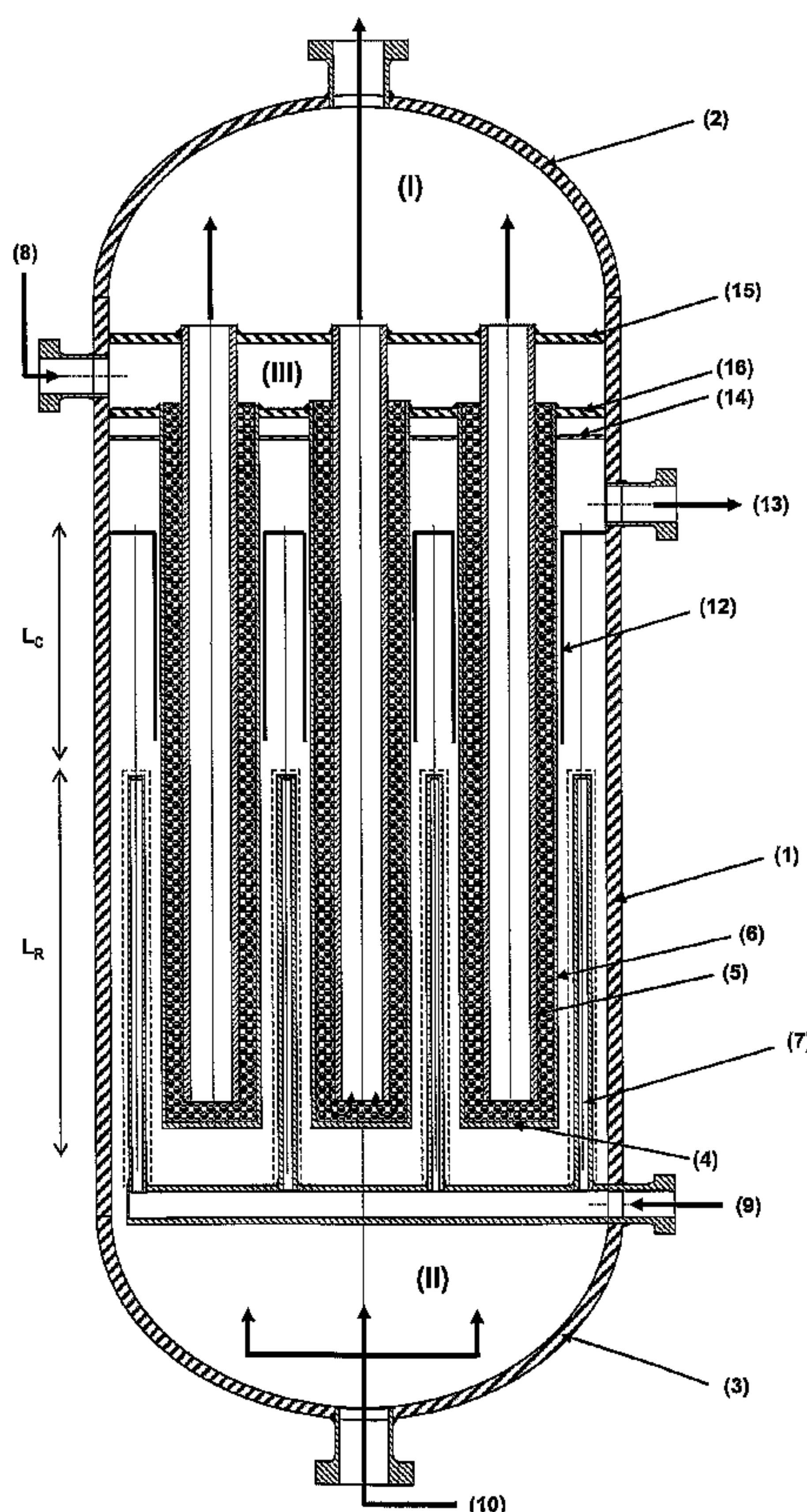




(86) Date de dépôt PCT/PCT Filing Date: 2008/03/05  
 (87) Date publication PCT/PCT Publication Date: 2008/11/06  
 (45) Date de délivrance/Issue Date: 2015/09/15  
 (85) Entrée phase nationale/National Entry: 2009/08/28  
 (86) N° demande PCT/PCT Application No.: FR 2008/000293  
 (87) N° publication PCT/PCT Publication No.: 2008/132313  
 (30) Priorité/Priority: 2007/03/30 (FR0702410)

(51) Cl.Int./Int.Cl. *F23D 14/20* (2006.01),  
*F23D 14/16* (2006.01)  
 (72) Inventeurs/Inventors:  
GIROUDIERE, FABRICE, FR;  
FISCHER, BEATRICE, FR  
 (73) Propriétaire/Owner:  
IFP ENERGIES NOUVELLES, FR  
 (74) Agent: ROBIC

(54) Titre : REACTEUR ECHANGEUR COMPACT UTILISANT UNE PLURALITE DE BRULEURS POREUX  
 (54) Title: COMPACT EXCHANGER REACTOR USING A PLURALITY OF POROUS BURNERS



(57) Abrégé/Abstract:

La présente invention décrit un nouveau réacteur échangeur destiné à mettre en oeuvre des réactions fortement endothermiques, telles que le vaporeformage de gaz naturel ou de naphta, et faisant appel à des brûleurs poreux placés in situ.

(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  
6 novembre 2008 (06.11.2008)

PCT

(10) Numéro de publication internationale  
WO 2008/132313 A3(51) Classification internationale des brevets :  
F23D 14/20 (2006.01) F23D 14/16 (2006.01)F-69530 Orléans (FR). FISCHER, Béatrice [FR/FR];  
0008 Mte des Génovéfains, F-69005 Lyon (FR).(21) Numéro de la demande internationale :  
PCT/FR2008/000293(74) Mandataire : ELMALEH, Alfred; IFP, 1-4 Avenue de  
Bois Préau, F-92852 Rueil Malmaison Cedex (FR).

(22) Date de dépôt international : 5 mars 2008 (05.03.2008)

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

(25) Langue de dépôt : français

(26) Langue de publication : français

(30) Données relatives à la priorité :  
0702410 30 mars 2007 (30.03.2007) FR(71) Déposant (pour tous les États désignés sauf US) : IFP  
[FR/FR]; 1-4 Avenue de Bois Préau, F-92852 Rueil Mal-  
maison Cedex (FR).

(72) Inventeurs; et

(75) Inventeurs/Déposants (pour US seulement) :  
GIROUDIERE, Fabrice [FR/FR]; 0197 Che du Creux,(84) États désignés (sauf indication contraire, pour tout titre  
de protection régionale disponible) : ARIPO (BW, GH,

[Suite sur la page suivante]

(54) Title: COMPACT EXCHANGER REACTOR USING A PLURALITY OF POROUS BURNERS

(54) Titre : RÉACTEUR ÉCHANGEUR COMPACT UTILISANT UNE PLURALITÉ DE BRÛLEURS POREUX

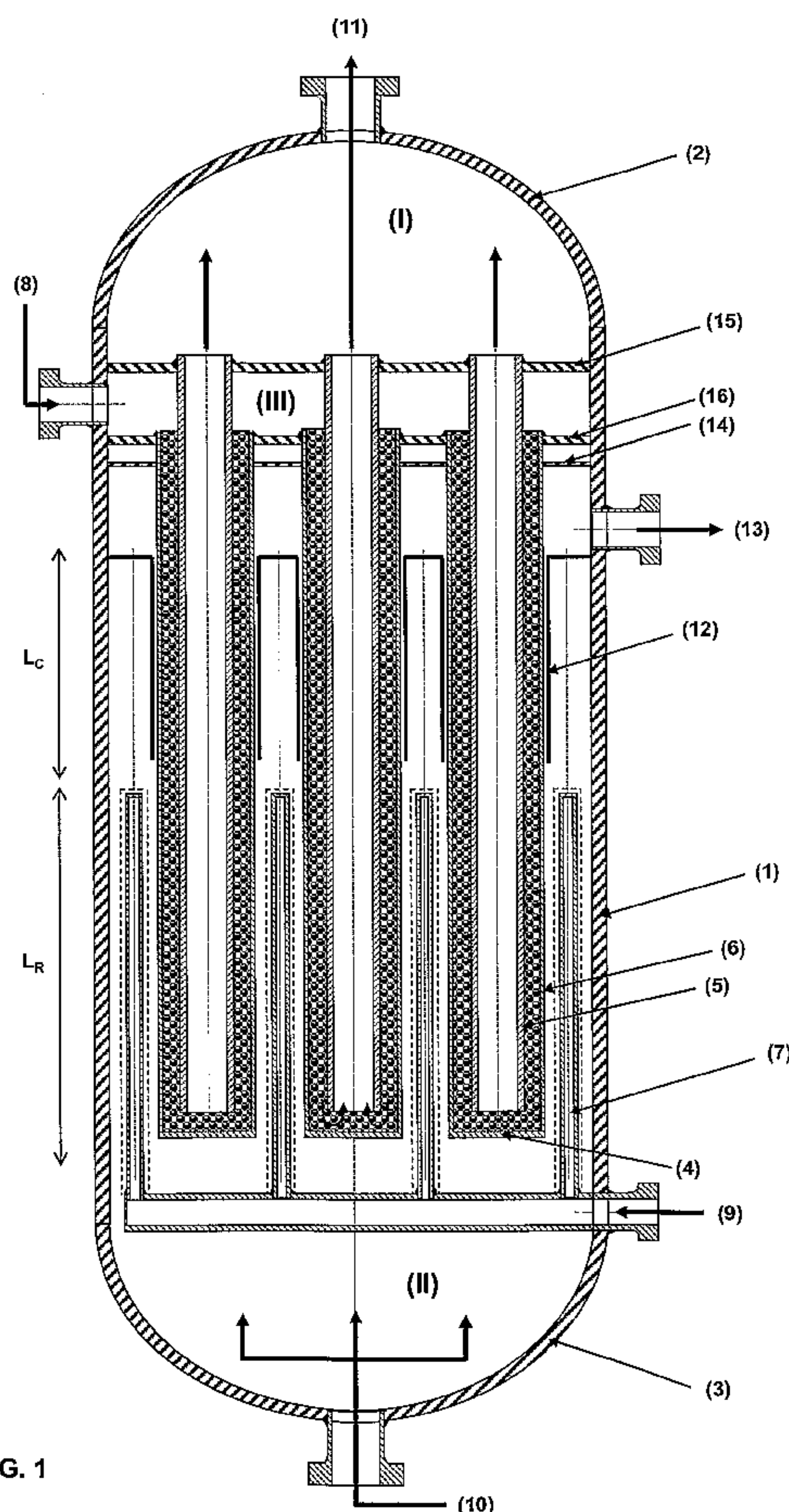


FIG. 1

(57) Abstract: The invention relates to a novel exchanger reactor intended to perform highly endothermic reactions, such as the steam reforming of natural gas or naphtha, using porous burners installed *in situ*.(57) Abrégé : La présente invention décrit un nouveau réacteur échangeur destiné à mettre en oeuvre des réactions fortement endothermiques, telles que le vaporeformage de gaz naturel ou de naphtha, et faisant appel à des brûleurs poreux placés *in situ*.

WO 2008/132313 A3

**WO 2008/132313 A3**



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, 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).

**Publiée :**

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

**(88) Date de publication du rapport de recherche internationale:**

8 janvier 2009

## Réacteur échangeur compact utilisant une pluralité de brûleurs poreux

### Domaine de l'invention

L'invention concerne un nouveau réacteur échangeur destiné à mettre en oeuvre des réactions chimiques fortement endothermiques, telles que les réactions de vaporeformage  
5 de naphta ou de gaz naturel.

On entend par réacteur échangeur un réacteur chimique dans lequel la ou les réactions se déroulent à l'intérieur d'un faisceau de tubes enfermés dans une calandre, l'énergie nécessaire aux réactions étant apportée par un fluide chaud circulant à l'intérieur de ladite calandre et à l'extérieur des tubes, et cédant sa chaleur aux tubes de réaction  
10 essentiellement par convection.

Dans le réacteur échangeur selon la présente invention, l'énergie est apportée par la combustion d'un combustible contenant éventuellement de l'hydrogène, ladite combustion ayant lieu à l'intérieur même du réacteur échangeur et générant des fumées de combustion qui, pour une partie, cèdent leur énergie principalement par radiation, et, pour une autre  
15 partie, principalement par convection. On entend par "principalement" une contribution par rayonnement d'au moins 70% dans la zone dite de rayonnement, et une contribution par convection d'au moins 70 % dans la zone dite de convection.

La nouveauté du réacteur échangeur selon l'invention réside donc dans l'existence d'une zone de chauffe des tubes de réaction dans laquelle le transfert de chaleur est obtenu  
20 principalement par rayonnement.

Les brûleur équipant le réacteur échangeur selon l'invention sont des brûleurs sans pré mélange, de géométrie cylindrique, et présentant un élément poreux séparant le côté combustible du côté comburant, la combustion ayant lieu soit à l'intérieur dudit élément poreux, soit au voisinage de sa surface externe et permettant de générer dans ce dernier  
25 cas une flamme plate. Dans la suite du texte on parlera de brûleurs poreux pour désigner les brûleurs spécifiques utilisés dans le réacteur échangeur selon l'invention. On trouvera une description complète de ces brûleurs poreux dans la demande de brevet 06/10.999.

Le combustible utilisé dans le cadre de la présente invention peut être un combustible gazeux à base d'hydrocarbures, tel que du gaz naturel. Il pourra dans certains cas contenir  
30 de l'hydrogène, voire même dans certains cas être essentiellement constitué d'hydrogène.

Le comburant peut être tout gaz contenant de l'oxygène, en particulier de l'air, mais aussi de l'air enrichi ou appauvri en oxygène. Le comburant peut même dans un cas particulier être de l'oxygène pur.

De manière générale, les réacteurs échangeurs peuvent se définir comme une catégorie de  
35 réacteurs dans lesquels l'énergie nécessaire aux réactions chimiques est apporté par un

fluide chaud, l'échange de chaleur entre ledit fluide chaud et la charge à traiter circulant à l'intérieur d'une pluralité de tubes, se faisant essentiellement par convection. Le plus souvent, les réacteurs échangeurs sont de faible capacité (de l'ordre de 1000 à 5000 Nm<sup>3</sup>/h de production d'H<sub>2</sub>), et utilisés pour de petites productions locales. On peut citer  
5 comme exemple d'un réacteur échangeur de petite capacité, le réacteur décrit dans la demande de brevet WO2001056690, ou dans le brevet US 4 919 844.

Le réacteur selon la présente invention est un réacteur échangeur qui peut réaliser de petites productions d'hydrogène, comme ceux de l'art antérieur, mais également atteindre de grandes capacités, de l'ordre de 100 000 Nm<sup>3</sup>/h de production d'H<sub>2</sub>, telles que celles  
10 couramment atteintes dans les fours de vaporeformage.

Dans la mesure où la production de l'énergie dans le réacteur échangeur selon l'invention est réalisée par une combustion à l'intérieur même du réacteur échangeur, sous la forme d'une flamme plate, on peut aussi le comparer à un four. Il se distingue néanmoins d'un four de vaporeformage par sa capacité à travailler sous pression, alors que le niveau de pression  
15 à l'intérieur des fours de vaporeformage est généralement limité à 2 bars absolus.

Le présent réacteur peut, moyennant certains aménagements au niveau de la distribution des fluides réactifs, admettre des pressions côté calandre de l'ordre de la dizaine de bars (1 bar = 10<sup>5</sup> Pascal).

Le réacteur échangeur selon l'invention est donc un réacteur échangeur à génération de  
20 chaleur par combustion in situ, utilisant un brûleur spécifique permettant de générer une flamme plate, et permettant de couvrir des capacités de production d'hydrogène allant de à 500 à 100 000 Nm<sup>3</sup>/h.

#### Examen de l'art antérieur

25 L'art antérieur dans le domaine des réacteur échangeur présentant une combustion "in situ" est représenté par:

La demande de brevet WO 2007 000 244 A1 décrit un réacteur échangeur de petite capacité destiné à des productions d'hydrogène de l'ordre de 1000 Nm<sup>3</sup>/heure et  
30 comprenant une première zone de génération de chaleur au moyen d'un brûleur, suivie d'une seconde zone d'échange par convection entre les fumées de combustion générées dans la première zone et des tubes à l'intérieur desquels circule le mélange réactif. Dans ce réacteur la zone de génération de chaleur au moyen d'un brûleur ne contient pas de tubes réactionnels, et le brûleur est un brûleur conventionnel.

Le brevet US 6,136,279 décrit un four de vaporeformage comprenant une enveloppe cylindrique enfermant une pluralité de tubes à chauffer et un brûleur lui même contenu dans une enveloppe interne à l'enveloppe cylindrique et définissant une chambre de combustion. L'enveloppe interne contenant le brûleur est séparée des tubes à chauffer de telle manière  
5 que les tubes ne voient pas la flamme et sont chauffés uniquement par la convection des fumées chaudes.

Dans le réacteur selon la présente invention du fait de l'utilisation d'un brûleur spécifique comportant un élément poreux, il est possible d'implanter les dits brûleurs directement entre  
10 les tubes à chauffer, lesquels sont donc chauffés à la fois par la convection des fumées chaudes, mais aussi sur une partie au moins de leur longueur, par radiation directe.

#### Description sommaire des figures

La figure 1 représente une section de profil du réacteur échangeur selon l'invention.

15 La figure 2 représente une section horizontale du réacteur échangeur qui permet de visualiser la disposition relative des tubes et des brûleurs.

la figure 3 représente un brûleur poreux utilisé dans le réacteur échangeur selon l'invention.

#### Description sommaire de l'invention

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

Étant donné la nature des brûleurs utilisés dans le réacteur et la configuration de ces  
25 brûleurs par rapport aux tubes à chauffer, il est possible de réaliser le long desdits tubes un profil thermique beaucoup plus fin que celui que l'on peut atteindre par les technologies de l'art antérieur.

Les brûleurs utilisés possèdent en effet un distributeur de combustible qui est conçu sous forme de plusieurs tronçons ayant chacun un diamètre d'orifice donné de manière à  
30 permettre une modulation du flux thermique selon l'axe longitudinal du brûleur qui se confond avec l'axe longitudinal des tubes à chauffer, et avec l'axe longitudinal du réacteur échangeur lui même.

En second lieu, du fait de l'existence d'un élément poreux dans la structure du brûleur, la flamme résultante est une flamme "plate" qui permet une combustion beaucoup plus  
35 homogène qu'une flamme traditionnelle ( c'est à dire se développant dans un volume à 3

dimensions plus ou moins bien contrôlé). Cette flamme plate diminue considérablement le risque de points chauds, ce qui est un aspect particulièrement important vis-à-vis de la sécurité opératoire de ce type de réacteurs mettant en oeuvre côté tube des pressions pouvant atteindre plusieurs dizaines de bars, et générant des effluents contenant de l'hydrogène.

Enfin, la forme "plate" de cette flamme, c'est-à-dire confinée sous forme d'un anneau entourant le brûleur au voisinage immédiat de l'élément poreux faisant partie dudit brûleur, va permettre de rapprocher les tubes à chauffer et d'atteindre un degré de compacité nettement amélioré par rapport aux technologies de l'art antérieur, notamment celle décrite dans la demande de brevet WO 2007 000244.

10

La présente invention vise un réacteur échangeur pour la mise en oeuvre de réactions fortement endothermiques de rapport (H/D) soit hauteur (H) sur diamètre (D) compris entre 2 et 8, comportant 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 ellipsoïde, ladite calandre (1) enfermant une pluralité de tubes verticaux (4) de type baïonnette, à l'intérieur desquels circulent les réactifs, les tubes baïonnettes (4) formant un pas triangulaire avec une distance centre à centre comprise entre 2 et 4 fois le diamètre intérieur de l'enveloppe externe (6) desdits tubes, les tubes baïonnettes (4) s'étendant le long de la partie cylindrique de la calandre (1) et ayant une longueur  $L_t$ , lesdits tubes baïonnettes ayant au moins une extrémité communiquant avec l'extérieur du réacteur échangeur, et lesdits tubes baïonnettes étant chauffés par une pluralité de brûleurs poreux sans pré-mélange (7) de longueur  $L_b$ , s'étendant verticalement entre les tubes à chauffer (4) de telle manière que le rapport  $L_b/L_t$  soit compris entre 0,1 et 0,8 et de manière que la distance centre à centre entre un brûleur poreux donné et le ou les tubes baïonnettes voisins (4) est comprise entre 100 mm et 500 mm, et le nombre de tubes baïonnettes (4) à chauffer par  $m^2$  de section utile du réacteur étant compris entre 4 et 17.

20

De préférence, le réacteur échangeur selon l'invention peut donc se définir comme un réacteur échangeur pour la mise en oeuvre de réactions fortement endothermiques. Il 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, ladite calandre (1) enfermant une pluralité de tubes verticaux (4) de longueur  $L_t$  qui s'étendent le long de la partie cylindrique de la calandre (1). Les fluides réactifs circulent à l'intérieur des tubes (4), lesdits tubes ayant au moins une extrémité communiquant avec l'extérieur du réacteur échangeur, et lesdits tubes étant chauffés par une pluralité de brûleurs poreux sans pré-mélange (7) de longueur  $L_b$ , s'étendant verticalement entre les tubes à chauffer (4) de telle manière que le rapport  $L_b/L_t$  soit compris entre 0,1 et 0,8 et préférentiellement entre 0,2 et 0,7.

De préférence, la distance centre à centre entre un brûleur donné et le ou les tubes voisins est généralement comprise entre 100 mm et 500 mm.

De préférence, le rapport  $H/D$  entre la hauteur  $H$  du réacteur et son diamètre  $D$  est généralement compris entre 1 et 10, et préférentiellement compris entre 2 et 8.

Les tubes à chauffer (4) sont de préférence des tubes baïonnette, l'entrée des réactifs et la sortie des effluents pouvant se faire dans la partie supérieure du réacteur (I), la distribution du combustible dans les brûleurs poreux (7) étant alors située dans la partie inférieure (II) du réacteur.

De préférence, la zone de chauffe par convection est généralement équipée d'un baffle permettant d'obtenir une vitesse de circulation des fumées de combustion le long du tube à chauffer généralement comprise entre 5 m/s et 60 m/s, et préférentiellement comprise entre 20 m/s et 50 m/s.

De préférence, le nombre de tubes à chauffer par  $m^2$  de section du réacteur est généralement compris entre 4 et 17, et préférentiellement compris entre 5 et 13. On

## 5a

entend par section du réacteur la section géométrique supposée vide de tout interne.

De préférence, les tubes forment le plus souvent un pas triangulaire avec une distance centre à centre préférentiellement comprise entre 2 et 4 fois le diamètre intérieur du tube.

De préférence, plus précisément, lorsque les tubes sont de type baïonnette, ils forment le plus souvent un pas triangulaire avec une distance centre à centre préférentiellement comprise entre 2 et 4 fois le diamètre intérieur de l'enveloppe externe (6).

10 La zone de circulation des fumées peut comporter dans certains cas, dans sa partie supérieure, une plaque de déflexion (14) située à une distance d'au moins 5 cm par rapport à la plaque tubulaire (15) qu'elle protège.

De préférence, le combustible utilisé dans les brûleurs poreux est généralement un combustible gazeux de composition chimique quelconque, tel en particulier que du gaz naturel. Il peut dans certains cas contenir une partie de l'effluent réactionnel, après réaction de transformation du CO en CO<sub>2</sub> et élimination dudit CO<sub>2</sub> et de l'eau. Dans certains cas, il peut être constitué d'hydrogène dans une proportion molaire pouvant aller de 5% à 100%, c'est-à-dire qu'il peut éventuellement être constitué d'hydrogène pur.

20 L'invention concerne également un procédé de vaporeformage mettant en oeuvre le réacteur échangeur selon l'invention, et utilisant préférentiellement comme charge du gaz naturel en vue de la production d'hydrogène.

#### Description détaillée de l'invention

La description qui suit est faite au moyen de la figure 1 qui correspond à une coupe longitudinale du réacteur selon l'invention.

Le réacteur échangeur est composé d'une enveloppe externe comprenant une partie cylindrique (1) approximativement verticale, complétée dans sa partie

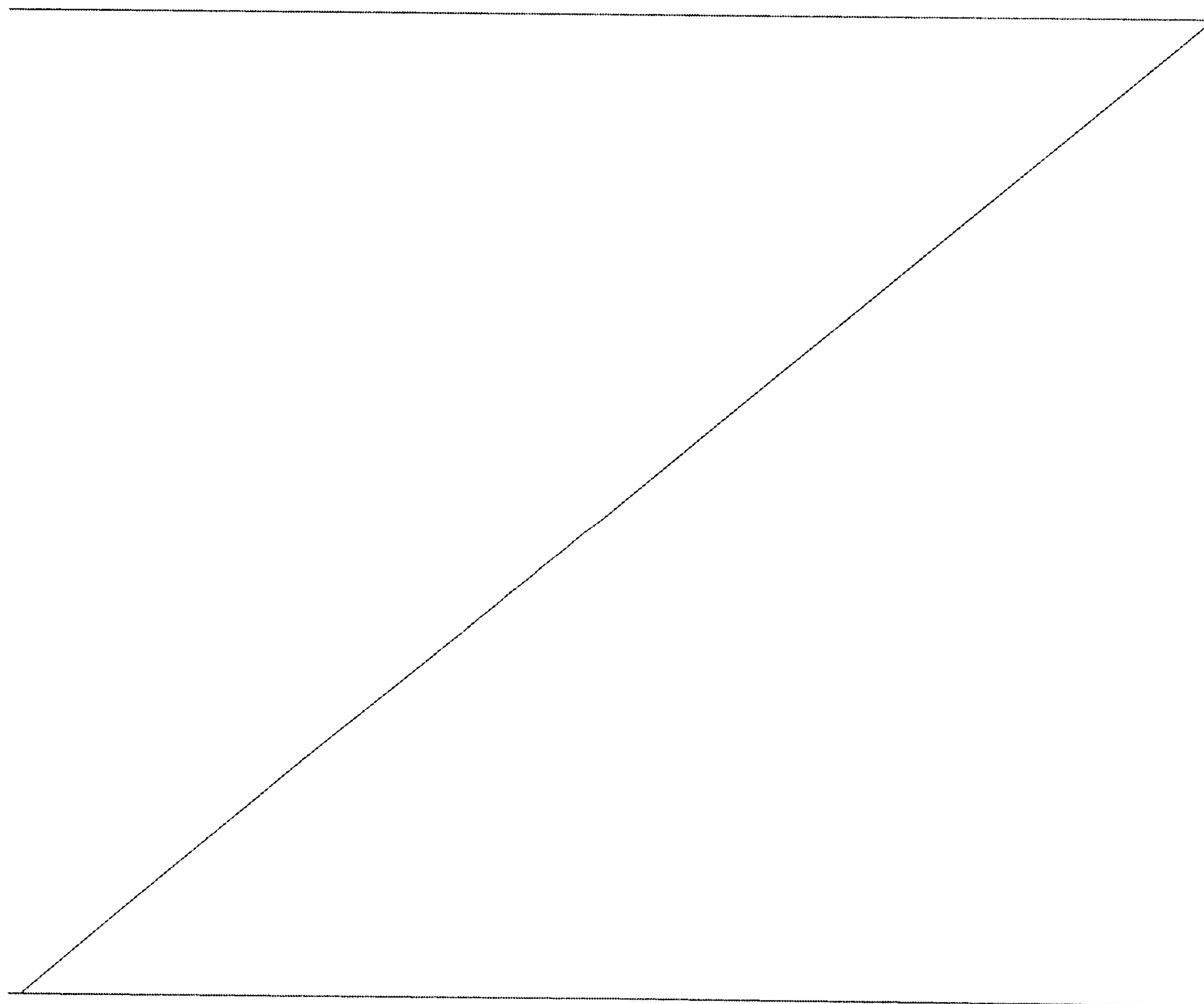
5b

supérieure par une calotte de forme approximativement ellipsoïdale (2), et dans sa partie inférieure par un fond (3) de forme approximativement ellipsoïdale. L'ensemble des parties (1), (2) et (3) est appelé calandre.

La calandre enferme une pluralité de tubes (4) s'étendant selon l'axe vertical du réacteur, et possédant un organe de distribution (8) des réactifs et un organe de collecte (11) des effluents, traversant la calandre et permettant la communication dudit réacteur avec l'extérieur.

Sur la figure (1) on a représenté des tubes de type baïonnette ayant l'entrée (8) des fluides réactifs et la sortie (11) des effluents situés sur la même extrémité supérieure du réacteur.

10



Bien entendu, cette représentation n'a rien de limitatif, et l'entrée et la sortie des fluides réactifs pourraient être situées à l'extrémité inférieure du réacteur.

Le type de tube baïonnette est le type de tube préféré dans le cadre de la présente invention, mais le réacteur selon l'invention peut également fonctionner avec de simples  
5 tubes ayant leur entrée et leur sortie situées l'une à l'extrémité supérieure (/ou respectivement inférieure/), l'autre à l'extrémité inférieure (/ou respectivement supérieure/) dudit réacteur.

Les tubes baïonnette (4) du fluide à traiter sont constitués d'une enveloppe externe cylindrique (6) à l'intérieur de laquelle se trouve un tube (5) ouvert à son extrémité  
10 supérieure débouchant dans la partie supérieure (I) du réacteur, et ouvert à son extrémité inférieure débouchant dans l'enveloppe cylindrique (6).

Pour la bonne clarté de la description qui suit, on supposera que l'entrée du fluide à traiter se fait par la partie supérieure (III) du réacteur au moyen d'un organe de distribution possédant au moins une ouverture (8) communiquant avec l'extérieur du réacteur  
15 échangeur, permettant l'entrée du fluide à traiter, et possédant une pluralité d'ouvertures communiquant directement avec la partie annulaire des tubes (4).

La zone (III) est comprise entre la première plaque tubulaire (15) à laquelle sont fixées les enveloppes externes (6) des tubes (4) et la seconde plaque tubulaire (16) à laquelle sont fixés les tubes internes (5).

20 La zone annulaire des tubes (4) est délimitée par la paroi interne de l'enveloppe (6) et la paroi externe du tube interne (5), ladite zone annulaire étant généralement remplie de catalyseur. Le catalyseur de vaporeformage est généralement à base de nickel et se présente le plus souvent sous la forme de petits cylindres de diamètre compris entre 8 mm et 15 mm, et de hauteur comprise entre 5 mm et 10 mm. L'invention n'est aucunement liée à  
25 un type de catalyseur ou à une forme particulière de ce dernier.

Le fluide à traiter circule en descendant le long de la dite zone annulaire jusqu'à son extrémité inférieure, puis passe après un retournement à 180° dans l'intérieur du tube interne (5). Le fluide à traiter remonte le long dudit tube interne (5) dont l'extrémité supérieure débouche dans la partie supérieure (I) du réacteur échangeur.

30 Le long de la partie descendante de son parcours à l'intérieur de la zone annulaire du tube (4), le fluide à traiter est en premier lieu chauffé sur une longueur  $L_c$  principalement par convection, puis en second lieu chauffé sur une longueur  $L_r$  principalement par radiation. Les zones correspondantes à la longueur  $L_c$  et à la longueur  $L_r$  sont appelées respectivement zone convective et zone radiative. C'est un aspect important de la présente  
35 invention de pouvoir moduler la répartition de la zone convective et de la zone radiative en

jouant d'une part sur la longueur des brûleurs poreux (7), d'autre part sur la répartition des orifices de sortie du combustible au niveau des brûleurs poreux (7).

La portion Lc correspondant au chauffage par convection peut comporter un baffle ou tout autre système équivalent (12) permettant d'accélérer les fumées de combustion selon une direction sensiblement parallèle à la longueur des tubes (4) de manière à favoriser l'échange de chaleur par convection.

De manière préférée, la vitesse longitudinale des fumées le long de la zone convective est comprise entre 5 m/s et 60 m/s, et de manière encore préférée est comprise entre 10 m/s et 50 m/s.

10 La figure 3 est une vue schématique d'un brûleur poreux utilisé dans le réacteur échangeur selon la présente invention.

Les brûleurs poreux utilisés dans le réacteur échangeur selon l'invention sont des brûleur sans pré mélange, de géométrie cylindrique, de longueur Lb et de diamètre Db, avec un rapport Lb/Db généralement compris entre 10 et 500, et préférentiellement compris entre 30 et 300. Ces brûleurs possèdent un distributeur central de combustible (17) ayant une répartition d'orifices (20) non uniforme, et possèdent un élément poreux (18) de forme annulaire entourant le distributeur central (17) au moins sur toute sa longueur Lb, l'épaisseur dudit élément poreux (18) étant de préférence comprise entre 0,5 et 5 cm, et la surface interne dudit poreux (18) étant de préférence située à une distance du distributeur central (17) comprise entre 0,5 cm et 10 cm. Il s'agit précisément de la distance correspondant à la zone notée (19) sur la figure 3.

La porosité de l'élément poreux (18) est généralement inférieure à 50 %, et préférentiellement inférieure à 30 %. Cette porosité est définie comme le volume vide rapportée au volume apparent de l'élément poreux. Le plus souvent cette porosité est homogène sur l'ensemble de l'élément poreux, mais dans certains cas, elle pourra être différenciée, c'est à dire posséder une valeur différente selon plusieurs zones dudit élément poreux.

Les brûleurs poreux (7) utilisés dans la présente invention ont un distributeur central (17) qui peut posséder un unique tronçon avec un seul diamètre d'orifice ou être divisé en au moins deux tronçons, chaque tronçon ayant des orifices (20) de même diamètre, et les différents tronçons ayant des diamètres différents de l'un à l'autre.

Par exemple, le distributeur central (17) peut être divisé en au moins deux tronçons, chaque tronçon ayant des orifices (20) de diamètre croissant avec la distance axiale le long du distributeur dans le sens d'écoulement du combustible.

A titre d'exemple nullement limitatif des différents modes de réalisation du distributeur des brûleurs poreux (7), le distributeur central (17) peut être divisé en au moins deux tronçons, chaque tronçon ayant des orifices (20) de diamètre croissant selon une loi de type exponentiel dans le sens de l'écoulement du combustible. Cette disposition permet de  
5 réaliser tout au long du brûleur poreux (7) un flux thermique approximativement constant, ce qui ne serait pas le cas avec un unique diamètre d'orifice, en raison de la perte de charge le long du distributeur qui aboutirait nécessairement à un débit de combustible plus faible sur les orifices les plus éloignés de l'extrémité d'introduction du combustible dans ledit distributeur. Cet aspect est d'autant plus important dans le cadre de la présente invention  
10 que les brûleurs poreux peuvent avoir des longueurs  $L_b$  de 10 m ou plus, et pouvant aller jusqu'à 15 mètres.

Les brûleurs poreux (7) sont alimentés en combustible (noté (H) sur la figure 3) par l'organe de distribution (9) qui peut être de tout type connu de l'homme du métier, par exemple en forme de râteau, de manière à alimenter uniformément la pluralité des brûleurs poreux (7).  
15 La présente invention n'est aucunement liée à un type particulier de distributeur de combustible.

Les brûleurs (7) s'étendent verticalement sur une longueur  $L_b$  et sont disposés de manière que la distance entre un brûleur donné et le (ou les) tubes à chauffer les plus proches soit de préférence comprise entre 100 mm et 700 mm et de manière plus préférée comprise  
20 entre 150 mm et 500 mm. Cette distance est définie comme la distance séparant l'axe du brûleur de l'axe du tube, dite distance "centre à centre".

la longueur  $L_b$  des brûleurs poreux est en relation avec la longueur  $L_t$  des tubes à chauffer, et sera généralement comprise entre 0,1 et 0,8 fois la longueur desdits tubes, et préférentiellement comprise entre 0,2 et 0,7 fois la longueur des tubes. Compte tenu de la  
25 longueur des tubes à chauffer, la longueur des brûleurs poreux sera généralement comprise entre 2 et 15 mètres, et préférentiellement entre 4 et 12 mètres.

La figure 2 montre une disposition typique des tubes à chauffer (4) et des brûleurs poreux (7) dans le cas particulier où les tubes sont organisés selon un pas triangulaire avec une distance centre à centre entre tubes égale à 3 fois le diamètre intérieur de l'enveloppe  
30 externe (6) des tubes (4).

On constate sur la vue de dessus de la figure 2 qu'un tube donné se trouve entouré en moyenne de 6 brûleurs, les brûleurs formant un pas hexagonal.

La figure 2 n'est en aucun cas limitative des diverses configurations de répartition que peuvent prendre les brûleurs (7) et les tubes (4). En particulier, les tubes peuvent dans

certaines cas former un pas carré. Pour des raisons de compacité, la configuration préférée est celle de tubes formant un pas triangulaire.

Le combustible pourra être de tout type disponible sur le site où est installé le réacteur échangeur, le plus souvent une raffinerie ou un complexe pétrochimique. Par exemple, le  
5 combustible peut être du gaz naturel ou un gaz issu de la purge de certaines unités de la raffinerie ( appelé "off gaz" dans la terminologie anglo saxonne qu'on peut traduire par gaz de purge).

Le combustible peut contenir de l'hydrogène dans une proportion comprise entre 5% et 100% molaire, c'est à dire qu'il peut être constitué d'hydrogène pur.

10 Un exemple de composition en pourcentage molaire d'un tel gaz est donnée ci dessous:

H<sub>2</sub>: 27,6%

CH<sub>4</sub>: 35,6%

C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>: 19,2%

C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>: 9,9%

15 C<sub>4</sub>H<sub>10</sub> et plus lourds: 7,7%

Le combustible pourra aussi être constitué d'une partie de la production du gaz riche en H<sub>2</sub>, effluent du réacteur échangeur après réaction de conversion du CO en CO<sub>2</sub>, extraction dudit CO<sub>2</sub> et condensation de l'eau.

Un exemple typique d'un tel combustible est donné ci dessous en pourcentage molaire:

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

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

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

CO: 1,5%

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

25 Le brûleur poreux utilisé dans la présente invention permet de traiter tout combustible contenant de l'hydrogène, dans une proportion comprise entre 5% et 100% molaire.

Dans certains cas, le combustible peut être en partie constitué d'une fraction de l'effluent réactionnel du réacteur échangeur.

Le comburant, généralement de l'air éventuellement enrichi en oxygène, est admis par la  
30 tubulure (10) située dans la partie inférieure du réacteur.

La combustion a lieu généralement à la surface de l'élément poreux constituant le brûleur (7). Du fait de cet élément poreux, le brûleur est sans prémélange. La flamme résultant de la combustion est une flamme localisée au voisinage immédiat de l'élément poreux, et pour cette raison appelée flamme plate.

Les fumées de combustion libérées à une température pouvant atteindre 1000°C (la valeur précise dépend de l'excès d'air pratiqué) chauffent les tubes principalement par rayonnement sur une fraction de leur longueur ( $L_r$ ) correspondant approximativement à la longueur du brûleur ( $L_b$ ), puis principalement par convection sur le reste de la longueur du tube ( $L_c$ ) qui s'étend jusqu'à la plaque de protection (14).

Les fumées ne sont pas en contact avec la plaque tubulaire (15) pour éviter tout problème d'écart de température trop important entre les 2 faces de ladite plaque tubulaire, la face orientée vers la région (III) étant à la température d'admission des fluides réactifs soit une température généralement comprise entre 300°C et 550 °C, et la face orientée vers la région (I) étant à une température voisine de la température de sortie des effluents réactionnels, soit une température généralement comprise entre 550°C et 850°C.

Une plaque de protection (14) sensiblement parallèle à la plaque tubulaire (15) est donc installée en amont de ladite plaque tubulaire (15) de manière à réaliser une protection thermique de ladite plaque (15).

Les fumées sont évacuées du réacteur échangeur par la tubulure de sortie (13), préférentiellement située entre la plaque de protection (14) et le baffle (12).

### **Exemples**

Exemple 1: Dimensionnement d'un réacteur échangeur selon l'invention avec une capacité de production d'hydrogène de 7 000 Nm<sup>3</sup>/heure.

Le réacteur échangeur est destiné à produire 7000 Nm<sup>3</sup>/heure d'hydrogène par vaporeformage de gaz naturel.

Le combustible utilisé est un gaz de purge de raffinerie qui a la composition molaire suivante:

H<sub>2</sub>: 27,6%

CH<sub>4</sub>: 35,6%

C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>: 19,2%

C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>: 9,9%

C<sub>4</sub>H<sub>10</sub> et plus lourds: 7,7%

Le débit de combustible est de 150 kilomoles/h:

Hauteur total du réacteur ( avec les fonds supérieur et inférieur): 15m

Diamètre du réacteur: 2m

Rapport H/D: 7,5

Les tubes sont de type baïonnette

Longueur des tubes: 12m

Diamètre extérieur des tubes à chauffer: 200mm

Diamètre extérieur du tube interne: 40 mm

5 Diamètre extérieur des brûleurs poreux: 100mm

Longueur des brûleurs poreux: 5m

Distance entre à centre des tubes à chauffer: 300mm

Nombre de tubes : 19 tubes répartis en pas triangulaire

Nombre de brûleurs poreux: 36

10

Exemple 2: Dimensionnement d'un réacteur échangeur selon l'invention avec une capacité de production d'hydrogène de 90 000Nm<sup>3</sup>/heure.

Le réacteur échangeur est destiné à produire 90 000 Nm<sup>3</sup>/heure d'hydrogène par vaporeformage de gaz naturel.

15 Le combustible utilisé est une partie de l'effluent du réacteur échangeur après réaction de transformation du CO en CO<sub>2</sub> et captation de l'eau.

Le combustible a la composition suivante en % molaire:

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

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

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

CO: 1,5%

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

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

Diamètre du réacteur: 7m

Rapport H/D: 2,3

Les tubes sont de type baïonnette

Longueur des tubes: 12m

30 Diamètre extérieur des tubes à chauffer: 200mm

Diamètre extérieur du tube interne: 40 mm

Diamètre extérieur des brûleurs poreux : 100mm

Longueur des brûleurs poreux: 5m

Distance entre à centre des tubes à chauffer: 300mm

35 Nombre de tubes : 235 tubes répartis en pas triangulaire

Nombre de brûleurs poreux : 445

## REVENDICATIONS

- 10 1. Réacteur échangeur pour la mise en oeuvre de réactions fortement endothermiques de rapport (H/D) soit hauteur (H) sur diamètre (D) compris entre 2 et 8, comportant 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 ellipsoïde, ladite calandre (1) enfermant une pluralité de tubes verticaux (4) de type baïonnette, à l'intérieur desquels circulent les réactifs, les tubes baïonnettes (4) formant un pas triangulaire avec une distance centre à centre comprise entre 2 et 4 fois le diamètre intérieur de l'enveloppe externe (6) desdits tubes, les tubes baïonnettes (4) s'étendant le long de la partie cylindrique de la calandre (1) et ayant une longueur  $L_t$ , lesdits tubes baïonnettes ayant au moins une extrémité communiquant avec l'extérieur du réacteur échangeur, et lesdits tubes baïonnettes étant chauffés par une pluralité de brûleurs poreux sans pré-mélange (7) de longueur  $L_b$ , s'étendant verticalement entre les tubes à chauffer (4) de telle manière que le rapport  $L_b/L_t$  soit compris entre 0,1 et 0,8 et de manière que la distance centre à centre entre un brûleur poreux donné et le ou les tubes baïonnettes voisins (4) est comprise entre 100 mm et 500 mm, et le nombre de tubes baïonnettes (4) à chauffer par  $m^2$  de section utile du réacteur étant compris entre 4 et 17.
- 20 2. Réacteur échangeur selon la revendication 1, dans lequel le nombre de tubes baïonnettes (4) à chauffer par  $m^2$  de section utile du réacteur est compris entre 5 et 13.
3. Réacteur échangeur selon la revendication 1 ou 2, dans lequel le rapport  $L_b/L_t$  est compris entre 0,2 et 0,7.
4. Réacteur échangeur selon l'une quelconque des revendications 1 à 3, dans lequel l'entrée des réactifs et la sortie des effluents se fait dans la partie supérieure

du réacteur (I), et la distribution du combustible dans les brûleurs poreux (7) est située dans la partie inférieure (II) du réacteur.

**5.** Réacteur échangeur selon l'une quelconque des revendications 1 à 4, dans lequel la zone de circulation des fumées comporte dans sa partie supérieure une plaque de déflexion (14) située à une distance d'au moins 5 cm par rapport à la plaque tubulaire (15) qu'elle protège.

**6.** Réacteur échangeur selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, dans lequel le combustible utilisé dans les brûleurs poreux contient de l'hydrogène dans une proportion molaire comprise entre 5% et 100%.

10 **7.** Réacteur échangeur selon l'une quelconque des revendications 1 à 6, dans lequel l'élément poreux constitutif des brûleurs poreux (7) a une porosité inférieure à 50%.

**8.** Réacteur échangeur selon la revendication 7, dans lequel la porosité est inférieure à 30%.

**9.** Réacteur échangeur selon l'une quelconque des revendications 1 à 8, dans lequel les brûleurs (7) ont un distributeur central (17) divisé en au moins deux tronçons, chaque tronçon ayant des orifices (20) de diamètre croissant avec la distance axiale le long du distributeur dans le sens d'écoulement du combustible.

20 **10.** Procédé de vaporeformage mettant en œuvre le réacteur échangeur selon l'une quelconque des revendications 1 à 9, utilisant comme charge une coupe naphta en vue de la production d'hydrogène.

**11.** Procédé de vaporeformage mettant en œuvre le réacteur échangeur selon l'une quelconque des revendications 1 à 9, utilisant comme charge du gaz naturel en vue de la production d'hydrogène.

**12.** Procédé de vaporeformage mettant en œuvre le réacteur échangeur selon l'une quelconque des revendications 1 à 9, dans lequel la zone de chauffe par convection dudit réacteur échangeur est équipée d'un baffle permettant d'obtenir

une vitesse de circulation des fumées de combustion le long du tube à chauffer comprise entre 5 m/s et 60 m/s.

**13.** Procédé de vaporeformage selon la revendication 12, dans lequel la vitesse de circulation des fumées de combustion le long du tube à chauffer est comprise entre 20 m/s et 50 m/s.

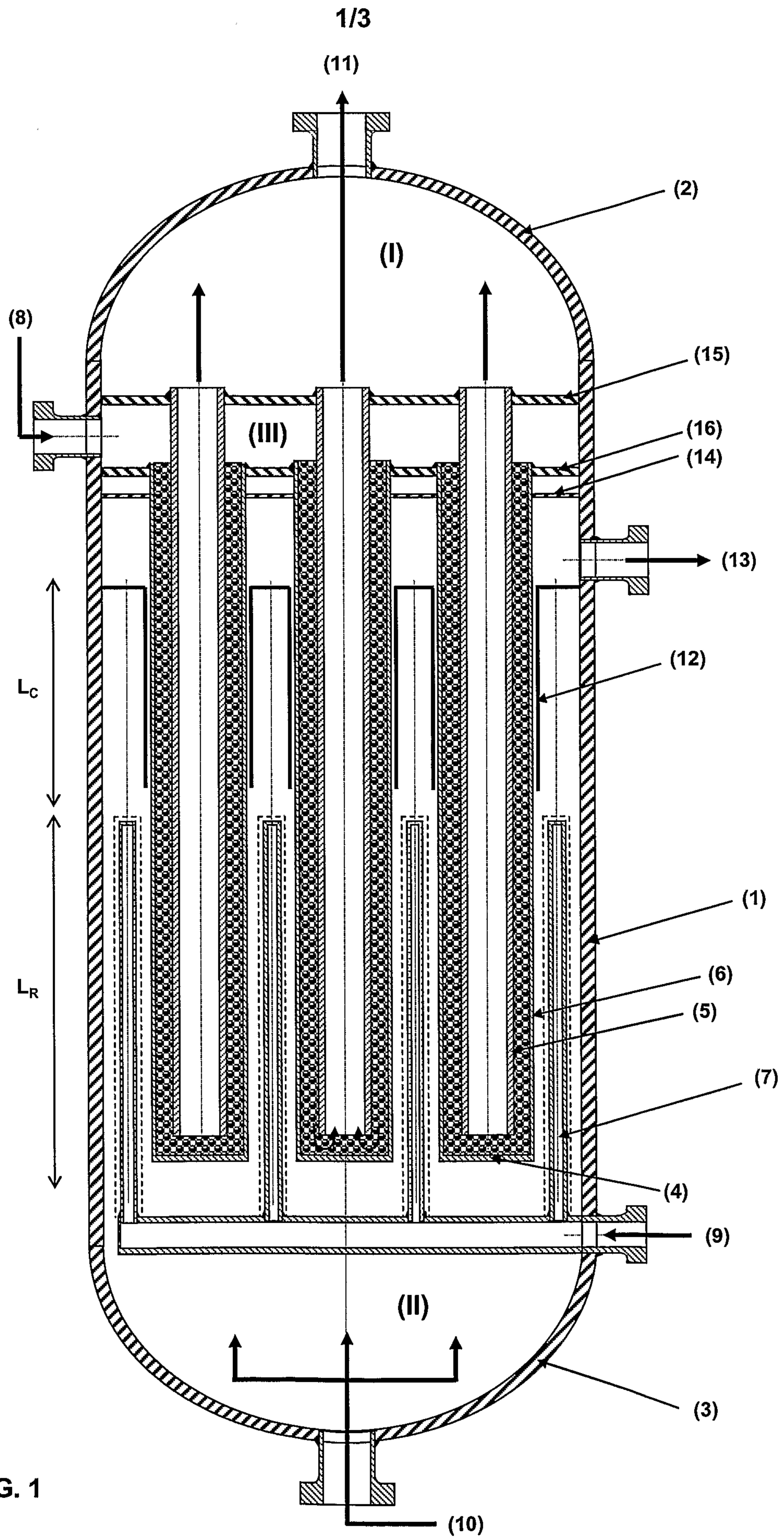


FIG. 1

2/3

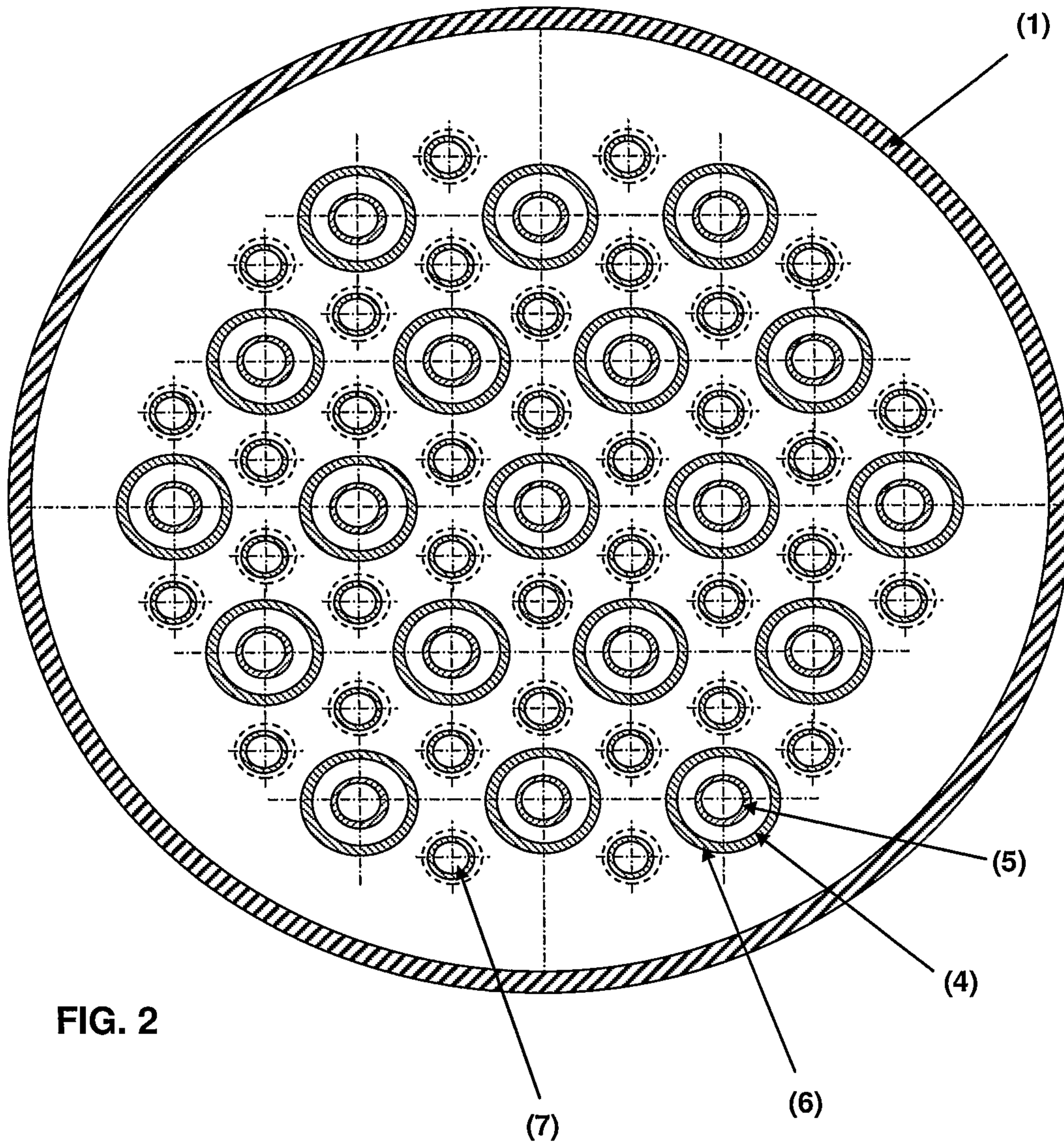


FIG. 2

3/3

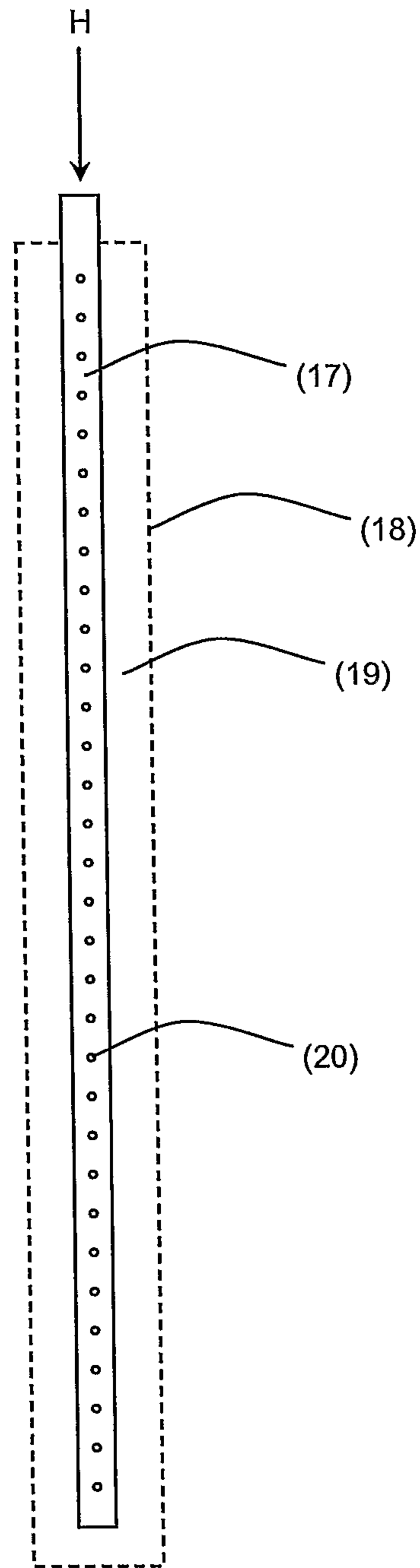


FIG. 3

