

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

①1 N° de publication : **3 140 155**
(à n'utiliser que pour les
commandes de reproduction)
②1 N° d'enregistrement national : **22 09731**
⑤1 Int Cl⁸ : **F 28 D 21/00 (2022.01), B 01 J 8/02**

⑫

BREVET D'INVENTION

B1

⑤4 Réacteur-échangeur à lit fixe muni d'au moins une grille à barreaux creux de circulation d'un fluide caloporteur.

②2 Date de dépôt : 26.09.22.

③0 Priorité :

④3 Date de mise à la disposition du public
de la demande : 29.03.24 Bulletin 24/13.

④5 Date de la mise à disposition du public du
brevet d'invention : 25.10.24 Bulletin 24/43.

⑤6 Liste des documents cités dans le rapport de
recherche :

Se reporter à la fin du présent fascicule

⑥0 Références à d'autres documents nationaux
apparentés :

Demande(s) d'extension :

⑦1 Demandeur(s) : *COMMISSARIAT A L'ENERGIE
ATOMIQUE ET AUX ENERGIES ALTERNATIVES
Etablissement public à caractère industriel et
commercial — FR.*

⑦2 Inventeur(s) : BERTIER Luc.

⑦3 Titulaire(s) : *COMMISSARIAT A L'ENERGIE
ATOMIQUE ET AUX ENERGIES ALTERNATIVES
Etablissement public à caractère industriel et
commercial.*

⑦4 Mandataire(s) : Cabinet NONY.

FR 3 140 155 - B1



Description

Titre de l'invention : Réacteur-échangeur à lit fixe muni d'au moins une grille à barreaux creux de circulation d'un fluide caloporteur.

Domaine technique

- [0001] La présente invention concerne de manière générale des réacteurs-échangeur. Plus particulièrement, la présente invention se rapporte au domaine des réacteurs-échangeur catalytiques mettant en œuvre un catalyseur solide, et notamment un catalyseur solide sous forme d'un lit fixe de poudre.
- [0002] Elle a trait à un réacteur échangeur catalytique susceptible de mettre en œuvre des procédés de synthèses de composés organiques exothermiques. Les composés organiques obtenus peuvent notamment comprendre des carburants de synthèse et du combustible.
- [0003] Bien que décrite plus spécifiquement en relation avec des procédés exothermiques, notamment à la réaction de méthanation, les applications envisagées pour un réacteur selon l'invention concernent aussi bien les procédés endothermiques qu'exothermiques, en particulier pour lesquelles le contrôle de la température au niveau du catalyseur est critique.

Technique antérieure

- [0004] Les réacteurs catalytiques utilisant des catalyseurs solides sont largement mis en œuvre pour la synthèse de composés organiques tels que les carburants de synthèse ou les combustibles parmi lesquels on cite les substituts de gaz naturel, le diméthyléther ou encore le méthanol.
- [0005] Ces composés sont notamment obtenus par réaction d'hydrogène et d'oxyde de carbone en présence d'un catalyseur solide approprié.
- [0006] Toutefois, les réactions chimiques relatives à la synthèse de ces composés sont très exothermiques, et dégagent par voie de conséquence une quantité de chaleur susceptible de dégrader le catalyseur solide. Il résulte de cette dégradation une réduction du taux de conversion des espèces chimiques en présence, et une diminution de la sélectivité des réactions mises en jeu. Par ailleurs, le catalyseur solide se désactive sous l'effet de la chaleur.
- [0007] Ainsi, en pratique, ces réactions peuvent être mises en œuvre dans un réacteur-échangeur du type tube-calandre qui comprend une pluralité de canaux réactifs pourvus chacun du catalyseur solide et refroidi continuellement par un fluide caloporteur. Dans ce type de réacteurs, les gaz réactifs circulent axialement dans les tubes qui contiennent un catalyseur, par exemple en poudre.

- [0008] Néanmoins, en dépit de la mise en œuvre d'un refroidissement par le fluide caloporteur, ce type de réacteur reste sensible à la chaleur dégagée par les réactions se produisant au sein du réacteur.
- [0009] En particulier, un point chaud, généralement observé à proximité de l'entrée des gaz réactifs, dégrade le catalyseur solide, et réduit donc les performances du réacteur-échangeur.
- [0010] Afin de limiter ces effets, les solutions suivantes ont été proposées :
- [0011] - une réduction de la densité volumique de catalyseur, notamment en déposant ce dernier sur les parois du tube ou d'un insert ou en le diluant dans un milieu non réactif ;
- [0012] - une dilution des gaz réactifs avec une partie des produits générés pour diminuer l'activité de la réaction ;
- [0013] - la réalisation de plusieurs points d'injection d'un ou de plusieurs réactifs pour répartir la zone du point chaud sur une plus grande surface ;
- [0014] - une réduction des dimensions des tubes ou en y plaçant des pièces conductrices de la chaleur afin d'améliorer le refroidissement des tubes.
- [0015] Ces solutions ne sont toutefois pas satisfaisantes. En effet, quand bien même elles permettent de réduire les effets du point chaud, elles sont complexes à mettre en œuvre. Par ailleurs, leur mise en œuvre diminue la flexibilité d'utilisation du réacteur échangeur, et rendent ce dernier peu compact.
- [0016] Afin de pallier ces inconvénients, il a alors été proposé un agencement permettant de répartir la distribution des réactifs sur toute la longueur des tubes. Cette solution permet alors d'obtenir une meilleure homogénéité de la température sur toute la longueur du réacteur. Ainsi, les brevets US3758279, US4374094, EP0560157, I T8021172 et US2997374 proposent des réacteurs-échangeurs mettant en œuvre une distribution des réactifs à partir d'un espace de distribution annulaire. Notamment, ces réacteurs-échangeur, de forme généralement cylindrique, comprennent, agencés de manière coaxiale et à partir de l'extérieur du réacteur, un tube, l'espace de distribution annulaire, une charge de catalyseur et un espace de collecte.
- [0017] Cet agencement n'est toutefois pas satisfaisant. En effet, la présence de l'espace de distribution annulaire autour de la charge de catalyseur, limite les transferts de chaleur du catalyseur vers le tube rendant peu efficace les systèmes de refroidissement généralement mis en œuvre. Il reste néanmoins possible d'insérer des éléments conducteurs de chaleur dans le réacteur. Une telle solution reste toutefois incompatible avec les réacteurs comprenant des tubes de faible diamètre.
- [0018] Afin de pallier ces inconvénients, la Demanderesse a proposé dans le brevet EP3827895 B1 un réacteur-échangeur avec un tube creux logeant un lit fixe de poudre catalytique et entourant un insert creux dont la forme permet de répartir la distribution

des réactifs sur toute la longueur du tube. Cette solution permet alors d'obtenir une meilleure homogénéité de la température sur toute la longueur du réacteur, tout en obtenant un très bon contrôle thermique. Cependant, la complexité de la forme de l'insert rend sa production et donc celle du réacteur-échangeur compliquée et coûteuse. En outre, pouvoir remplir et changer le catalyseur n'est pas aisé. Notamment dans le cas d'un catalyseur qui a mal vieilli et dont l'écoulement pourrait être difficile.

[0019] La demande de brevet US2004/0141893A1, propose, pour contrôler des réactions endothermiques ou exothermiques, de réaliser ces deux réactions simultanément au sein d'un même réacteur de sorte que la réaction exothermique échange directement sa chaleur à la réaction endothermique. Cette solution ne permet pas d'éviter les variations thermiques le long des canaux du réacteur. Surtout, elle nécessite d'avoir à réaliser deux types de réactions simultanément et à des températures similaires, ce qui est très contraignant en pratique.

[0020] Le brevet JP5362553B2 divulgue, quant à lui, un réacteur-échangeur avec une géométrie très complexe à l'intérieur des canaux pour maximiser la surface d'échange. Cette géométrie doit permettre un très bon échange thermique, mais pas une uniformisation de la réaction au sein du réacteur. En outre, la géométrie n'est pas simple à réaliser par usinage.

[0021] Il existe donc un besoin pour améliorer les réacteurs-échangeurs, notamment à lit fixe, notamment afin d'obtenir un très bon échange thermique et donc un bon contrôle de la température dans le lit fixe tout en permettant une fabrication et une maintenance aisées.

[0022] Le but de l'invention est de répondre au moins en partie à ce besoin.

Exposé de l'invention

[0023] Pour ce faire, l'invention concerne un réacteur-échangeur à lit fixe, destiné à mettre en œuvre une réaction de conversion thermochimique.

[0024] Le réacteur-échangeur comprend au moins un sous-ensemble comprenant:

- au moins une chambre d'alimentation en gaz réactifs;
- au moins une chambre d'évacuation des gaz produits par la réaction;
- au moins une grille d'échange thermique, agencée entre la chambre d'alimentation et la chambre d'évacuation, la grille d'échange thermique comprenant des barreaux creux adaptés pour faire circuler en leur sein un fluide caloporteur, les ouvertures délimitées entre les barreaux étant dimensionnées pour loger un lit fixe de catalyseur(s) de la réaction et agencées pour déboucher dans la chambre d'évacuation;
- au moins un élément de répartition, agencée entre la chambre d'alimentation et la grille d'échange thermique, les ouvertures de l'élément de répartition

étant dimensionnées pour maintenir le lit fixe de catalyseur(s) en l'empêchant de s'échapper par gravité et agencées pour laisser passer les gaz réactifs depuis la chambre d'alimentation vers les ouvertures de la grille d'échange thermique logant le lit fixe de catalyseur(s).

- [0025] Selon un mode de réalisation avantageux, l'élément de répartition est une grille.
- [0026] De préférence, le(s) catalyseur(s) étant sous la forme d'une poudre catalytique.
- [0027] Selon une configuration avantageuse, la grille d'échange thermique est accolée à l'élément de répartition. Selon cette configuration, la grille d'échange thermique est de préférence fixée ou réalisée intégralement avec l'élément de répartition.
- [0028] Selon un mode de réalisation avantageux, le réacteur-échangeur s'étend selon une première direction longitudinale (X), les barreaux creux s'étendant selon une deuxième direction longitudinale orthogonale (Y) à la première direction longitudinale (X), les ouvertures de la grille d'échange thermique et de l'élément de répartition s'étendant selon une troisième direction longitudinale (Z) orthogonale aux première et deuxième directions longitudinales.
- [0029] Selon une variante de réalisation avantageuse, chacune des deux extrémités des barreaux creux est reliée à un autre barreau creux, agencé à l'extérieur des chambres d'alimentation et d'évacuation, chaque autre barreau creux formant respectivement un collecteur d'entrée et un collecteur de sortie du fluide caloporteur.
- [0030] Les barreaux creux peuvent être de section transversale rectangulaire ou carrée, qui permettent un fonctionnement optimal. D'autres sections peuvent être envisagées, comme une section transversale ronde ou ovale, notamment pour des raisons de coût.
- [0031] Selon un autre mode de réalisation avantageux, le réacteur-échangeur comprend une première plaque de délimitation délimitant l'ouverture d'alimentation et la chambre d'alimentation des gaz réactifs et une deuxième plaque de délimitation délimitant la chambre d'évacuation et l'ouverture d'évacuation des gaz produits.
- [0032] Selon ce mode, et une configuration avantageuse, le réacteur-échangeur comprend un empilement de plusieurs sous-ensembles les uns sur les autres, chaque chambre d'alimentation commune à deux sous-ensembles débouchant sur les ouvertures d'un élément de répartition et celles d'une grille d'échange thermique adjacente et chaque chambre d'évacuation commune à deux sous-ensembles débouchant sur les ouvertures d'une grille d'échange thermique et celles d'un élément de répartition adjacent, chaque première plaque de délimitation délimitant une ouverture d'alimentation et une chambre d'alimentation commune à deux sous-ensembles et chaque deuxième plaque de délimitation délimitant une ouverture d'évacuation et une chambre d'évacuation commune à deux sous-ensembles, à l'exception des extrémités de l'empilement délimitées chacune par une deuxième plaque de délimitation délimitant une ouverture d'évacuation et une chambre d'évacuation d'un unique sous-ensemble.

- [0033] Cette configuration de réacteur à empilement de plusieurs sous-ensembles permet notamment de diminuer le coût de réalisation (coût matière) en supprimant une partie des plaques de délimitation puisqu'on mutualise les chambres d'alimentation et d'évacuation sans avoir à les délimiter par une plaque dédiée. Cette configuration nécessite d'adapter les chambres agencées aux extrémités de l'empilement de sorte qu'elles ne doivent pas faire circuler un débit deux fois supérieur pour une même quantité de catalyseur, ce qui pourrait générer un risque de moins bonne conversion thermo-chimique localement et d'inhomogénéité thermique. Les chambres d'évacuation des produits obtenus étant agencées aux deux extrémités, le risque de maldistribution du débit est supprimé à tout le moins fortement limité.
- [0034] Selon une variante d'assemblage avantageuse, chaque sous-ensemble est un élément, monobloc ou préassemblé, constitué d'une grille d'échange thermique, d'un élément de répartition et d'au moins une première ou deuxième plaque de délimitation, les sous-ensembles empilés étant assemblés entre eux au moyen de tirants de compression traversant les plaques de délimitation. On peut envisager de réaliser un élément par soudage ou brasage ou soudage-diffusion brasage-diffusion de plaques usinées, notamment par une technique de Compression Isostatique à Chaud (CIC). On peut aussi envisager une réalisation par soudage avec thermocompression de plaques. Cette variante permet avantageusement de garder tous les sous-ensembles indépendants les uns des autres, et de maintenir l'étanchéité entre eux au moyen des tirants que l'on peut visser pour assurer la compression souhaitée. Par-là, le montage et démontage du réacteur est aisé et permet de faciliter la maintenance notamment avec un accès facile au catalyseur au sein de chaque élément de répartition, pour le retirer et le remplacer.
- [0035] L'invention a également pour objet l'utilisation d'un réacteur-échangeur tel que décrit précédemment, pour mettre en œuvre une réaction catalytique de conversion thermo-chimique, exothermique ou endothermique, en particulier une réaction de méthanation.
- [0036] Ainsi, l'invention consiste essentiellement à réaliser un réacteur-échangeur à lit fixe avec une grille d'échange thermique dont les ouvertures délimitées entre barreaux adjacents permettent d'y faire circuler les réactifs de la réaction de conversion thermo-chimique désirée, les barreaux étant creux et constituent de fait des canaux de circulation d'un fluide caloporteur permettant d'évacuer (ou d'apporter) la chaleur de la réaction.
- [0037] Le catalyseur de la réaction, de préférence sous forme de poudre, remplit l'espace entre deux barreaux adjacents et est maintenu par un élément de préférence sous la forme d'une grille de répartition des réactifs.
- [0038] Le réacteur-échangeur selon l'invention permet donc un très bon échange entre le catalyseur (lieu de la réaction et donc source ou puits de chaleur) et chaque canal de

circulation de fluide caloporteur formé par le creux d'un barreau, ce qui permet de contrôler au mieux la température dans le catalyseur.

- [0039] Au final, l'invention apporte de nombreux avantages, notamment par à la solution selon le brevet EP3827895 B1, parmi lesquels on peut citer :
- un réacteur-échangeur plus compact ;
 - une géométrie de réacteur-échangeur plus simple et donc plus simple à usiner ;
 - dans le cas d'une pluralité de grilles indépendantes, alors le démontage et facilité, ce qui permet de changer le catalyseur usagé de façon aisée, même si ce dernier a subi un frittage important.

[0040] D'autres avantages et caractéristiques ressortiront mieux à la lecture de la description détaillée, faite à titre illustratif et non limitatif, en référence aux figures suivantes.

Brève description des dessins

- [0041] [Fig.1A] la [Fig.1A] est une vue schématique en coupe longitudinale d'un réacteur-échangeur à lit fixe selon l'invention.
- [0042] [Fig.1B] la [Fig.1B] est une vue schématique du dessus du réacteur-échangeur à lit fixe selon la [Fig.1A].
- [0043] [Fig.2] la [Fig.2] est une vue en coupe longitudinale d'un réacteur-échangeur selon l'invention avant empilement de plusieurs sous-ensembles chacun à une grille d'échange thermique, une grille de répartition et une plaque de délimitation.
- [0044] [Fig.3] la [Fig.3] reprend la [Fig.2] et montre une variante avantageuse d'assemblage au moyen de tirants de compression.
- [0045] [Fig.4] la [Fig.4] est une vue du dessus de la [Fig.3].
- [0046] [Fig.5] la [Fig.5] illustre en vue de face deux plaques métalliques servant à la réalisation d'une grille d'échange thermique d'un réacteur-échangeur selon l'invention.
- [0047] [Fig.6] la [Fig.6] illustre de manière schématique l'étape d'empilement de plaques selon la [Fig.5] pour une réalisation par thermocompression d'une grille d'échange thermique d'un réacteur-échangeur selon l'invention.
- [0048] [Fig.7] la [Fig.7] reprend la [Fig.1B] en montrant des éléments d'un exemple de dimensionnement.
- [0049] [Fig.7A] la [Fig.7A] est une figure de détail de la [Fig.7] en montrant des éléments d'un exemple de dimensionnement.
- [0050] [Fig.8] la [Fig.8] est une vue schématique en coupe longitudinale d'un réacteur-échangeur selon un mode de réalisation à empilement de plusieurs sous-ensembles.

Description détaillée

- [0051] Par souci de clarté, les mêmes éléments sont désignés par les mêmes références numériques selon l'état de l'art et selon l'invention.

- [0052] On précise que dans l'ensemble de la demande, les termes « entrée », « sortie », « amont », « aval » sont à comprendre en relation avec le sens de la circulation du fluide considéré au sein d'un réacteur-échangeur selon l'invention.
- [0053] De même, les termes « supérieur », « inférieur », « dessus », « dessous » sont à comprendre en référence à un réacteur-échangeur selon l'invention agencé à l'horizontal dans sa configuration de fonctionnement.
- [0054] En figures 1 et 1A, on a représenté un réacteur-échangeur 1 à lit fixe selon un mode de réalisation de l'invention, en référence avec une réaction de méthanation qu'il met en œuvre.
- [0055] Ce réacteur 1 s'étend selon une première direction longitudinale (X) et comprend tout d'abord une chambre d'alimentation 2 en gaz réactifs (CO_2 , H_2) depuis une ouverture d'alimentation 20 et une chambre d'évacuation 3 des gaz produits par la réaction (CH_4 , H_2O) vers une ouverture d'évacuation 30.
- [0056] Une grille d'échange thermique 4 est agencée entre la chambre d'alimentation 2 et la chambre d'évacuation 3. La grille d'échange thermique 4 selon l'invention comprend des barreaux creux 40 qui s'étendent selon une deuxième direction longitudinale (Y) orthogonale à (X) et qui sont adaptés pour faire circuler en leur sein un fluide caloporteur, tel qu'une huile minérale thermique. Ces barreaux creux 40 peuvent être de section transversale rectangulaire ou carrée comme dans le mode illustré.
- [0057] Les ouvertures 41 délimitées entre les barreaux 40 sont dimensionnées pour loger un lit fixe de catalyseur(s) (C) de la réaction sous la forme de poudre. Ces ouvertures 41 s'étendent selon une troisième direction longitudinale (Z) orthogonale à (X) et à (Y) et sont agencées pour déboucher dans la chambre d'évacuation 3.
- [0058] Le réacteur 1 comprend en outre une grille de répartition 5, agencée entre la chambre d'alimentation 2 et la grille d'échange thermique 4. Les ouvertures 50 de cette grille de répartition 5 sont dimensionnées pour maintenir le lit fixe de catalyseur(s) en l'empêchant de s'échapper par gravité. Ces ouvertures 50 comme les ouvertures 41 s'étendent selon une troisième direction longitudinale (Z) orthogonale à (X) et à (Y). Ces ouvertures 50 sont agencées pour laisser passer les gaz réactifs depuis la chambre d'alimentation 2 vers les ouvertures 41 de la grille d'échange thermique dans lesquelles se produit la réaction, les produits étant évacués dans la chambre d'évacuation 3.
- [0059] Selon les configurations, en particulier, si le réacteur-échangeur doit être agencé dans une autre position de fonctionnement qu'une position horizontale, une autre grille de répartition 5 peut être agencée entre la grille d'échange thermique 4 et la chambre d'évacuation 3.
- [0060] Comme illustré en [Fig.1B], chacune des deux extrémités des barreaux creux 40 est avantageusement reliée à un autre barreau creux 42, 43, agencé à l'extérieur des

chambres d'alimentation et d'évacuation, qui forme respectivement un collecteur d'entrée et un collecteur de sortie du fluide caloporteur.

- [0061] Pour délimiter le réacteur vis-à-vis de l'extérieur, une première plaque de délimitation 6 délimite l'ouverture d'alimentation 20 et la chambre d'alimentation des gaz réactifs 2 tandis qu'une deuxième plaque de délimitation 7 délimitant la chambre d'évacuation 3 et l'ouverture d'évacuation 30 des gaz produits.
- [0062] Le fonctionnement d'un réacteur-échangeur à lit fixe 1 selon l'invention est le suivant.
- [0063] Les gaz réactifs, CO_2 et H_2 dans l'exemple de la réaction de méthanation, entrent dans le réacteur 1 par la chambre d'alimentation 2 depuis l'ouverture d'alimentation 20. Dans l'exemple de la méthanation, la température d'entrée des gaz, et de l'huile peut être avantageusement comprise entre 280 et 320°C et la pression entre 1 et 30 bar.
- [0064] Du fait de la perte de charge induite par les ouvertures 50 de la grille 5 et le catalyseur sous forme de poudre, dans les ouvertures 41, le flux de gaz réactifs se répartit uniformément dans ces dernières, et donc entre les différents barreaux creux 40 formant les canaux de circulation du fluide caloporteur. Du fait de la fermeture de la chambre 2 par la plaque 6 à l'opposé de l'ouverture d'alimentation 20, l'intégralité du flux de gaz ne peut s'écouler qu'à travers les ouvertures 41.
- [0065] Au moment d'entrer au contact du catalyseur C logé dans les ouvertures 41, la composition du flux gazeux et la température sont donc proche d'être uniformes dans toute la chambre 2.
- [0066] Dans le catalyseur C, la vitesse des gaz réactifs est faible, la hauteur du lit catalytique définie par la hauteur des ouvertures 41 peut être optimisée en fonction du débit ciblé pour que le temps de contact entre les gaz réactifs et le catalyseur C soit suffisant pour atteindre une conversion élevée, proche de l'équilibre thermodynamique.
- [0067] Comme le débit dans le catalyseur est faible, il n'est pas nécessaire d'avoir un lit catalytique C de grande longueur pour avoir un temps de séjour suffisant. Grâce à cette faible longueur et à la présence des canaux de circulation du fluide caloporteur délimités par l'intérieur des barreaux creux 40, la chaleur est répartie au mieux, ce qui permet d'éviter tout point chaud (ou froid).
- [0068] Les gaz convertis et les réactifs non convertis débouchent dans la chambre 3 puis sont évacués du réacteur par l'ouverture d'évacuation 30.
- [0069] En ce qui concerne la construction d'un réacteur-échangeur 1, on peut constituer au préalable un sous-ensemble en fixant ou réalisant intégralement la grille d'échange thermique 4 avec la grille de répartition 5 et avantageusement au moins une des plaques de délimitation 6, 7.

- [0070] Comme illustré à la [Fig.2], un mode de réalisation avantageux de construction consiste à empiler plusieurs sous-ensembles 1.1, 1.2, 1.3 les uns sur les autres en ayant au préalable rempli les ouvertures 41 en poudre catalytique C.
- [0071] Pour assembler ces différents sous-ensembles 1.1 à 1.3, on peut avantageusement utiliser des tirants de compression 8 qui traversent l'ensemble des plaques de délimitation 6, 7 aux coins de l'empilement, comme illustré aux figures 3 et 4. Ces tirants 8 que l'on serre pour assurer la compression permettent de garder les différents sous-ensembles 1.1 à 1.3 indépendants les uns et des autres, et de maintenir l'étanchéité entre eux. Ces moyens d'assemblage 8 permettent donc de garantir un montage/démontage aisé du réacteur 1 ainsi qu'un accès facile au catalyseur C pour le retirer et le remplacer, notamment une fois complètement utilisé.
- [0072] Pour la réalisant intégralement la grille d'échange thermique 4, plusieurs techniques de fabrication peuvent être envisagées, telles que l'extrusion, le laminage à partir de tubes à section rectangulaire ou carrée suivi d'un soudage classique, un soudage par compression isostatique à chaud (CIC) ou par thermocompression.
- [0073] Le choix de la technique de fabrication, sera fait en tenant compte des dimensions/épaisseurs ou sur les limites de tailles atteignables.
- [0074] Un exemple de réalisation par une technique de soudage par thermocompression est illustré aux figures 5 et 6. On précise que sur la [Fig.5] les lignes L en pointillés désignent les lignes de découpe des plaques pour l'ouvertures des canaux une fois l'empilage et le soudage par thermocompression réalisés.
- [0075] On réalise tout d'abord deux types de plaques usinées 4.1, 4.2 qui vont être empilées puis assemblées entre elles par soudage par thermocompression pour constituer une grille d'échange thermique 4.
- [0076] Les fenêtres débouchantes 400 d'une plaque 4.1 vont délimiter les ouvertures de passage des gaz réactifs. Une fois assemblées, les plaques 4.1 vont fermer les canaux 40 du fluide caloporteur mais pas ceux des gaz réactifs.
- [0077] Les fenêtres débouchantes 410 d'une plaque 4.2 vont délimiter les ouvertures de passage du fluide caloporteur.
- [0078] L'empilement est ensuite réalisé de la façon suivante :
- une plaque 4.1 à une première extrémité,
 - un nombre de N plaques 4.2 au centre de l'empilement, le nombre N étant fonction de l'épaisseur des plaques et la hauteur de lit catalytique désirée,
 - une plaque 4.1 à une deuxième extrémité opposée à la première extrémité.
- [0079] Comme illustré à la [Fig.6], on peut prévoir deux plaques 4.2 entre deux plaques 4.1
- [0080] A titre indicatif, les matériaux qui peuvent être envisagés sont les suivants.
- [0081] Pour une réaction de méthanation:
- catalyseur C : poudre de nickel et/ou d'alumine ;

- grille d'échange thermique 4 en acier inoxydable ou en cuivre ;
 - plaque de séparation 7 en acier inoxydable 316L
- [0082] Pour une réaction de conversion Fischer-Tropsch :
- catalyseur C en fer, cobalt, ruthénium ou nickel ;
 - grille d'échange thermique 4 en acier inoxydable ou en aluminium;
- [0083] plaque de séparation 7 en acier inoxydable 316L ou en aluminium. L'inventeur a réalisé un exemple dimensionnement d'un réacteur-échangeur 1 selon l'invention.
- [0084] Les notations des dimensions caractéristiques sont indiquées sur les figures 7 et 7A et sont évaluées ici, en ordre de grandeurs pour une réaction de méthanation.
- [0085] Le tableau 1 ci-dessous synthétise les valeurs et résultats obtenus. On précise que l'acronyme anglo-saxon GHSV désigne « Gas hourly space velocity », c'est-à-dire la vitesse spatiale horaire du gaz.
- [0086] [Tableaux1]

	Valeur	U nité	Notation	
<u>Dimensions des canaux/catalyseur</u>				
Longueur de canaux du fluide caloporteur délimités par barreaux creux 40	0.5	m	LC	
Longueur chambres 2, 3	0.476	m	X1	
Largeur ouvertures 41 logeant la poudre catalytique C	0.004	m	l	
Largeur d'un canal 40	2.00E-03	m	lc	
Nombre de canaux 40	60	-		
Epaisseur d'un barreau 20	1.00E-03	m	e	
Hauteur du lit catalytique C	3.50E-03	m	hl	
Volume de catalyseur dans une ouverture 41	7.0E-06	m ³		
Section de passage des gaz réactifs	0.002	m ²		
<u>Dimensions des c hambres</u>				
Hauteur d'une chambre 2 ou 3	3.00E-03	m	Pp et Pr	
Hauteur d'une grille 5	1.00E-03	m		
Hauteur empilement plaque	1.05E-02	m		
Volume plaque	2.50E-03	m		
<u>Conditions de la réaction</u>				

Vitesse dans le catalyseur	0.005292	m/s		
Débit gaz réactif	0.000011	m ³ /s		
Température	573	K		
Pression	8	bar		
Débit molaire de gaz réactifs entrant dans une ouverture 41	0.1452	Nm ³ /h		
Débit molaire de gaz réactifs entrant dans toutes les ouvertures 41	8.56829	Nm ³ /h		
GHSV	20746.5	h ⁻¹		
Densité de la réaction	3.43E+03	Nm ³ /h/m ³		

[0087] On constate à la lecture de ce tableau, qu'en ayant fixé le même GHSV que pour un réacteur tubulaire à lit fixe, comme décrit dans la demande de brevet EP3827895, ce qui correspond à une même performance du catalyseur, la densité de conversion est augmentée d'environ 50%, puisque respectivement égales à 3400 Nm³/h/m³ et 2300 Nm³/h/m³.

[0088] On précise que la valeur de 0,5 m pour la longueur totale des canaux de circulation du caloporteur délimitée par les barreaux creux 40 a été choisie de manière purement arbitraire. En fait, cette valeur sera à adapter en fonction principalement des contraintes du fabricant du réacteur-échangeur 1. Par exemple, en cas de réalisation par une technique de CIC (Compression Isostatique à Chaud) alors, la longueur des canaux 40 et la longueur des chambres 2, 3 devrait être limitée par la taille du four CIC utilisé.

[0089] On a représenté à la [Fig.8], un mode de réalisation avantageux d'un réacteur-échangeur 1 à empilements de plusieurs sous-ensembles 1.1, 1.2, 1.3, 1.4, avec mise en commun des ouvertures 20 et chambre 2 d'alimentation ainsi que des ouvertures 30 et chambre 3 d'évacuation.

[0090] Ainsi, chaque chambre d'alimentation 2 commune à deux sous-ensembles débouche sur les ouvertures 50 d'une grille de répartition et les ouvertures 41 d'une grille d'échange thermique adjacente.

[0091] Il en va de même avec chaque chambre d'évacuation 3 commune à deux sous-ensembles débouchant sur les ouvertures 41 d'une grille d'échange thermique et les ouvertures 50 d'une grille de répartition adjacente.

[0092] Chaque première plaque de délimitation 6 délimite une ouverture d'alimentation 20 et une chambre d'alimentation 20 commune à deux sous-ensembles et chaque deuxième plaque de délimitation 7 délimite une ouverture d'évacuation 30 et une chambre d'évacuation 3 commune à deux sous-ensembles.

- [0093] Seules les extrémités de l'empilement délimitées chacune par une deuxième plaque de délimitation 7 délimitant une seule ouverture d'évacuation 30 et une seule chambre d'évacuation 3 d'un unique sous-ensemble 1.1 ou 1.4.
- [0094] D'autres variantes et améliorations peuvent être envisagées sans pour autant sortir du cadre de l'invention.
- [0095] Par exemple, le nombre de sous-ensembles que l'on empile et assemble pour réaliser un réacteur-échangeur selon l'invention peut être adapté à souhait en fonction de la réaction visée et des performances recherchées.
- [0096] En tant qu'élément de répartition, on peut envisager un matériau poreux en lieu et place d'une grille 5 dont les pores permettent le passage des gaz réactifs tout en maintenant le lit fixe du catalyseur(s) en l'empêchant de s'échapper par gravité.

Revendications

- [Revendication 1] Réacteur-échangeur (1) à lit fixe, destiné à mettre en œuvre une réaction de conversion thermochimique, comprenant au moins un sous-ensemble (1.1, 1.2, 1.3, 1.4) comprenant:
- au moins une chambre d'alimentation (2) en gaz réactifs;
 - au moins une chambre d'évacuation (3) des gaz produits par la réaction;
 - au moins une grille d'échange thermique (4), agencée entre la chambre d'alimentation et la chambre d'évacuation, la grille d'échange thermique comprenant des barreaux creux (40) adaptés pour faire circuler en leur sein un fluide caloporteur, les ouvertures (41) délimitées entre les barreaux étant dimensionnées pour loger un lit fixe de catalyseur(s) (C) de la réaction et agencées pour déboucher dans la chambre d'évacuation;
 - au moins un élément de répartition (5), agencé entre la chambre d'alimentation et la grille d'échange thermique, les ouvertures (50) de l'élément de répartition étant dimensionnées pour maintenir le lit fixe de catalyseur(s) en l'empêchant de s'échapper par gravité et agencées pour laisser passer les gaz réactifs depuis la chambre d'alimentation vers les ouvertures de la grille d'échange thermique logeant le lit fixe de catalyseur(s), le réacteur-échangeur s'étendant selon une première direction longitudinale (X), les barreaux creux s'étendant selon une deuxième direction longitudinale orthogonale (Y) à la première direction longitudinale (X), les ouvertures de la grille d'échange thermique et de l'élément de répartition s'étendant selon une troisième direction longitudinale (Z) orthogonale aux première et deuxième directions longitudinales.
- [Revendication 2] Réacteur-échangeur selon la revendication 1, l'élément de répartition étant une grille (5).
- [Revendication 3] Réacteur-échangeur selon la revendication 1 ou 2, le(s) catalyseur(s) étant sous la forme d'une poudre catalytique.
- [Revendication 4] Réacteur-échangeur selon l'une des revendications 1 à 3, la grille d'échange thermique étant accolée à l'élément de répartition.

- [Revendication 5] Réacteur-échangeur selon la revendication 4, la grille d'échange thermique étant fixée ou réalisée intégralement avec l'élément de répartition.
- [Revendication 6] Réacteur-échangeur selon l'une des revendications précédentes, chacune des deux extrémités des barreaux creux étant reliée à un autre barreau creux (42, 43), agencé à l'extérieur des chambres d'alimentation et d'évacuation, chaque autre barreau creux formant respectivement un collecteur d'entrée et un collecteur de sortie du fluide caloporteur.
- [Revendication 7] Réacteur-échangeur selon l'une des revendications précédentes, les barreaux creux étant de section transversale rectangulaire ou carrée.
- [Revendication 8] Réacteur-échangeur selon l'une des revendications précédentes, comprenant une première plaque de délimitation (6) délimitant l'ouverture d'alimentation (20) et la chambre d'alimentation des gaz réactifs et une deuxième plaque de délimitation (7) délimitant la chambre d'évacuation et l'ouverture d'évacuation (30) des gaz produits.
- [Revendication 9] Réacteur-échangeur selon la revendication 8, comprenant un empilement de plusieurs sous-ensembles les uns sur les autres, chaque chambre d'alimentation commune à deux sous-ensembles débouchant sur les ouvertures d'un élément de répartition et celles d'une grille d'échange thermique adjacente et chaque chambre d'évacuation commune à deux sous-ensembles débouchant sur les ouvertures d'une grille d'échange thermique et celles d'un élément de répartition adjacent, chaque première plaque de délimitation délimitant une ouverture d'alimentation et une chambre d'alimentation commune à deux sous-ensembles et chaque deuxième plaque de délimitation délimitant une ouverture d'évacuation et une chambre d'évacuation commune à deux sous-ensembles, à l'exception des extrémités de l'empilement délimitées chacune par une deuxième plaque de délimitation délimitant une ouverture d'évacuation et une chambre d'évacuation d'un unique sous-ensemble.
- [Revendication 10] Réacteur-échangeur selon la revendication 9, chaque sous-ensemble étant un élément, monobloc ou préassemblé, constitué d'une grille d'échange thermique, d'un élément de répartition et d'au moins une première ou deuxième plaque de délimitation, les sous-

ensembles empilés étant assemblés entre eux au moyen de tirants de compression traversant les plaques de délimitation.

[Revendication 11]

Utilisation d'un réacteur-échangeur selon l'une des revendications précédentes, pour mettre en œuvre une réaction catalytique de conversion thermochimique, exothermique ou endothermique, en particulier une réaction de méthanation.

[Fig. 1A]

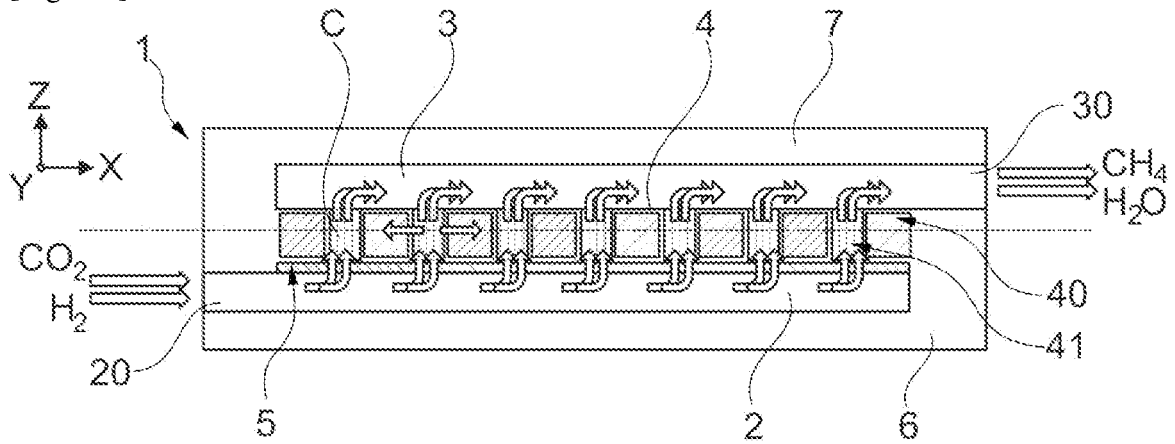


Fig. 1A

[Fig. 1B]

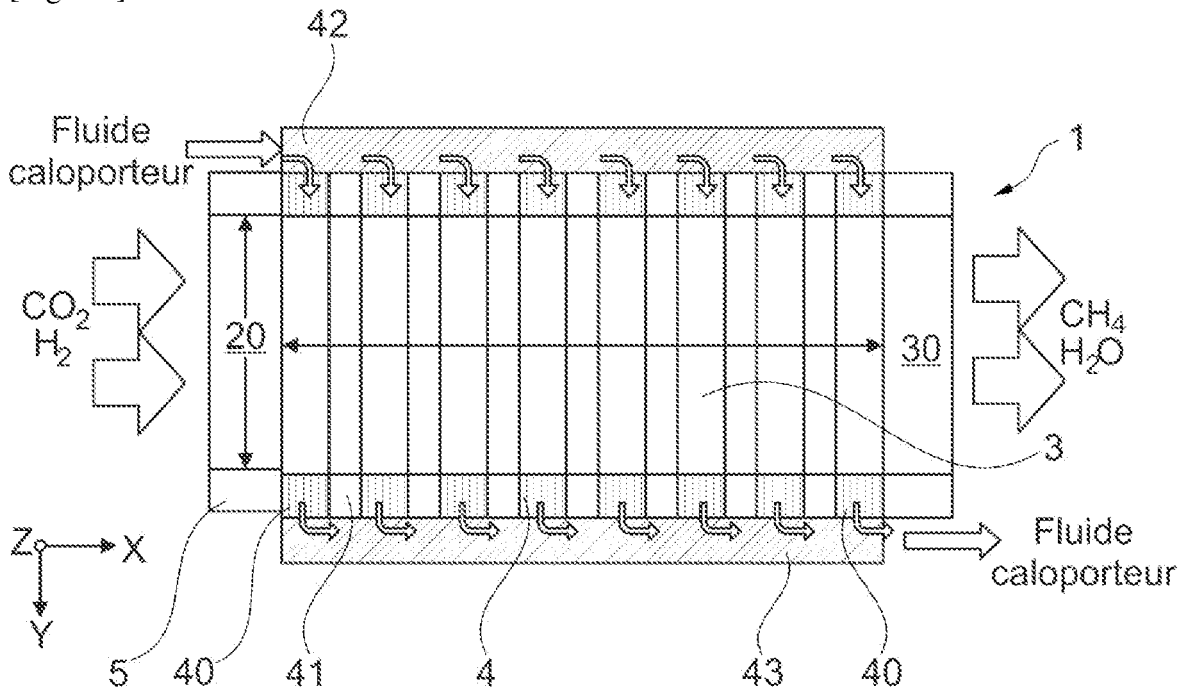


Fig. 1B

[Fig. 2]

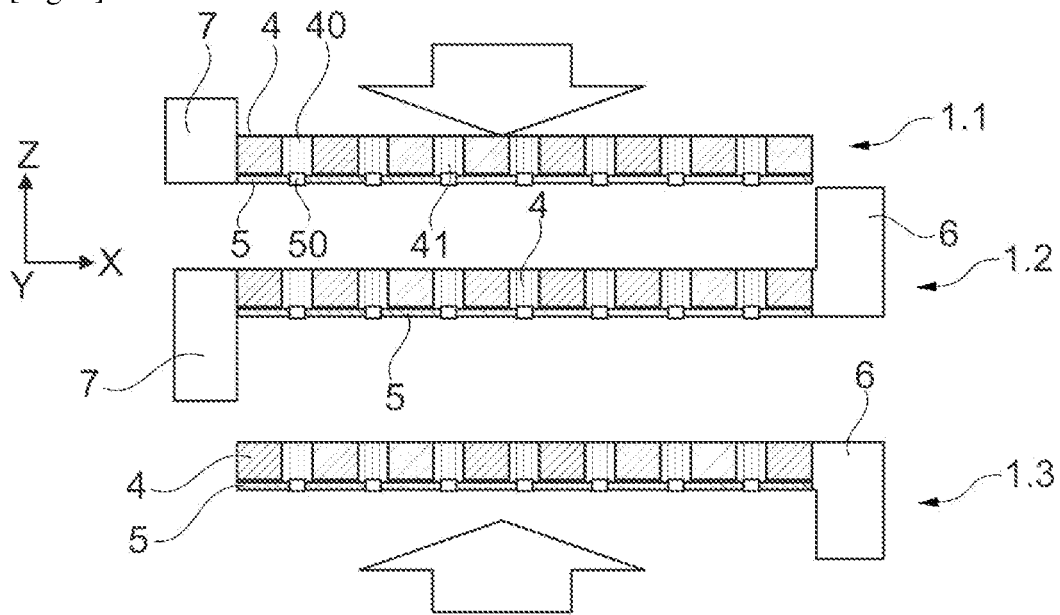


Fig. 2

[Fig. 3]

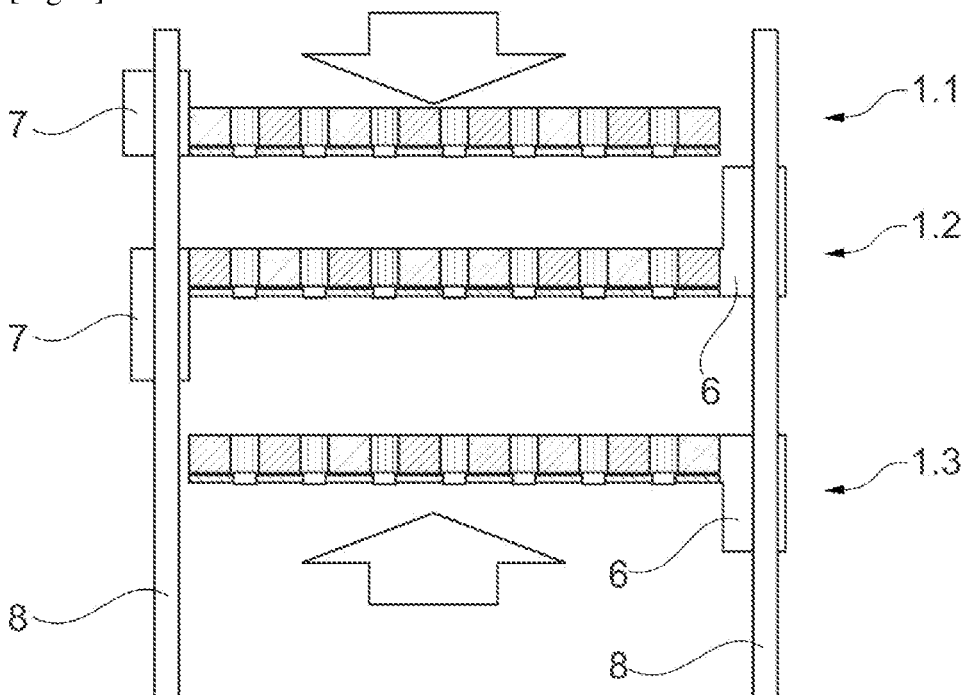


Fig. 3

[Fig. 4]

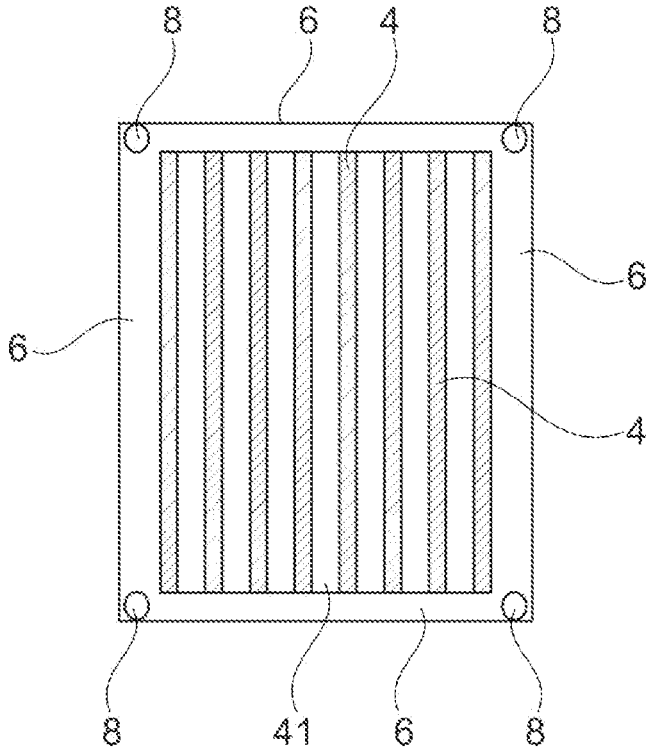


Fig. 4

[Fig. 5]

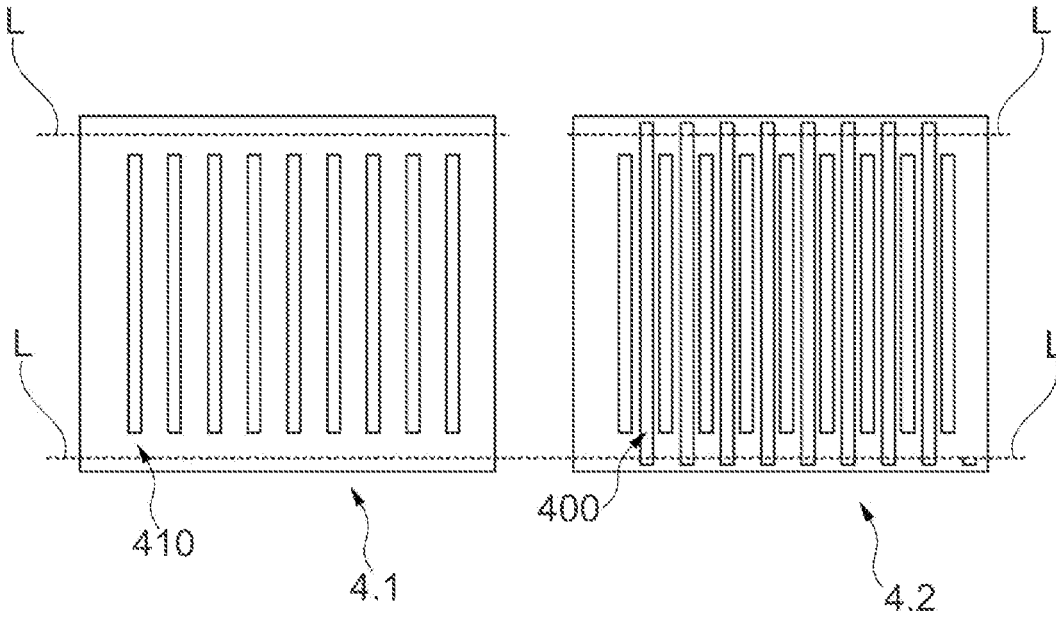


Fig. 5

[Fig. 6]

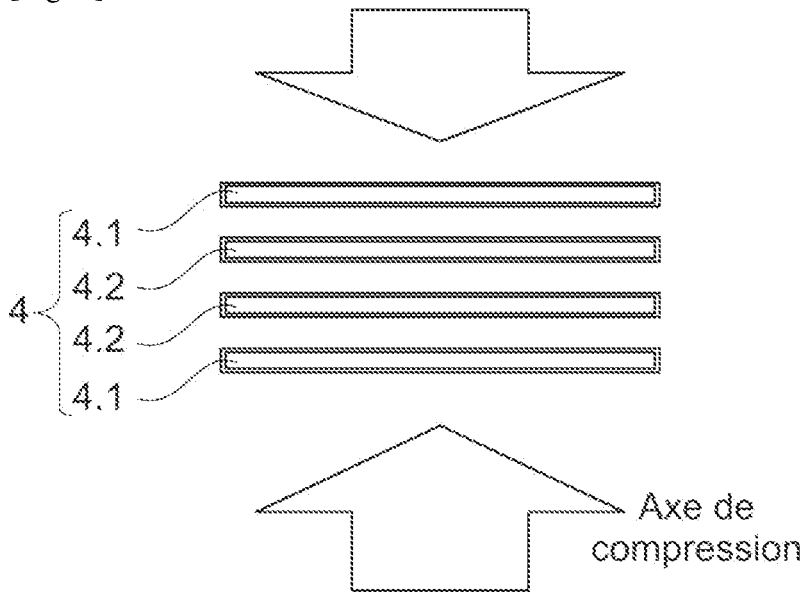


Fig. 6

[Fig. 7]

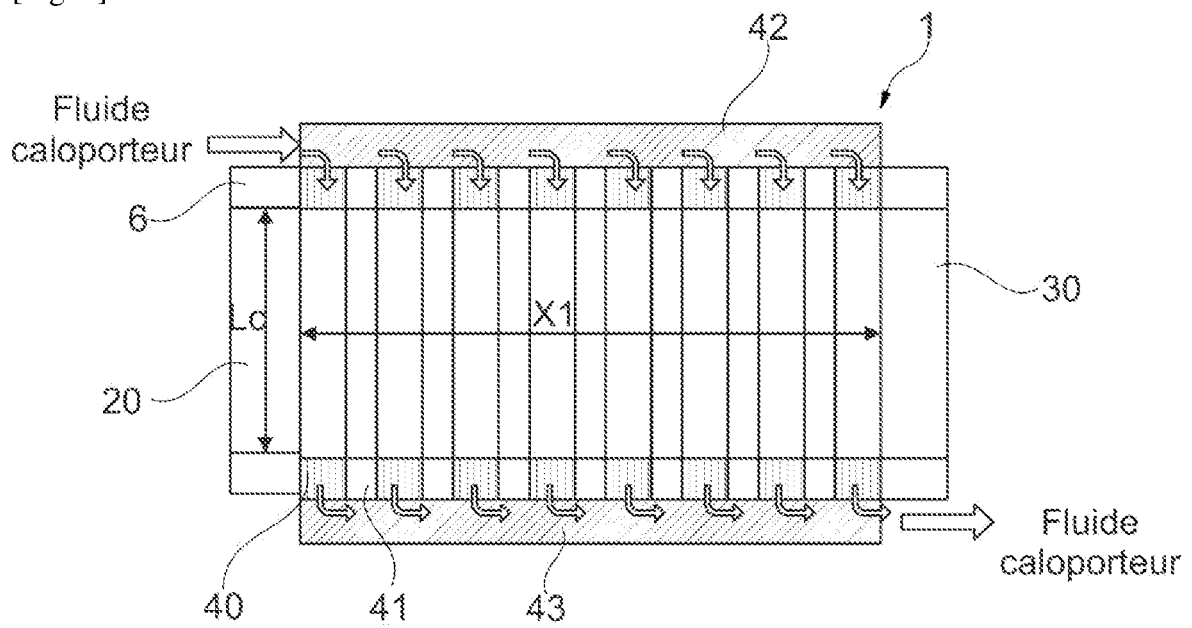


Fig. 7

[Fig. 7A]

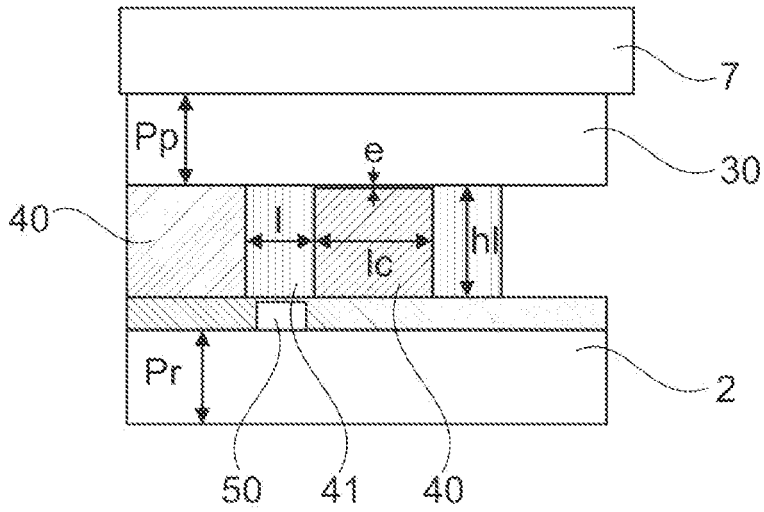


Fig. 7A

[Fig. 8]

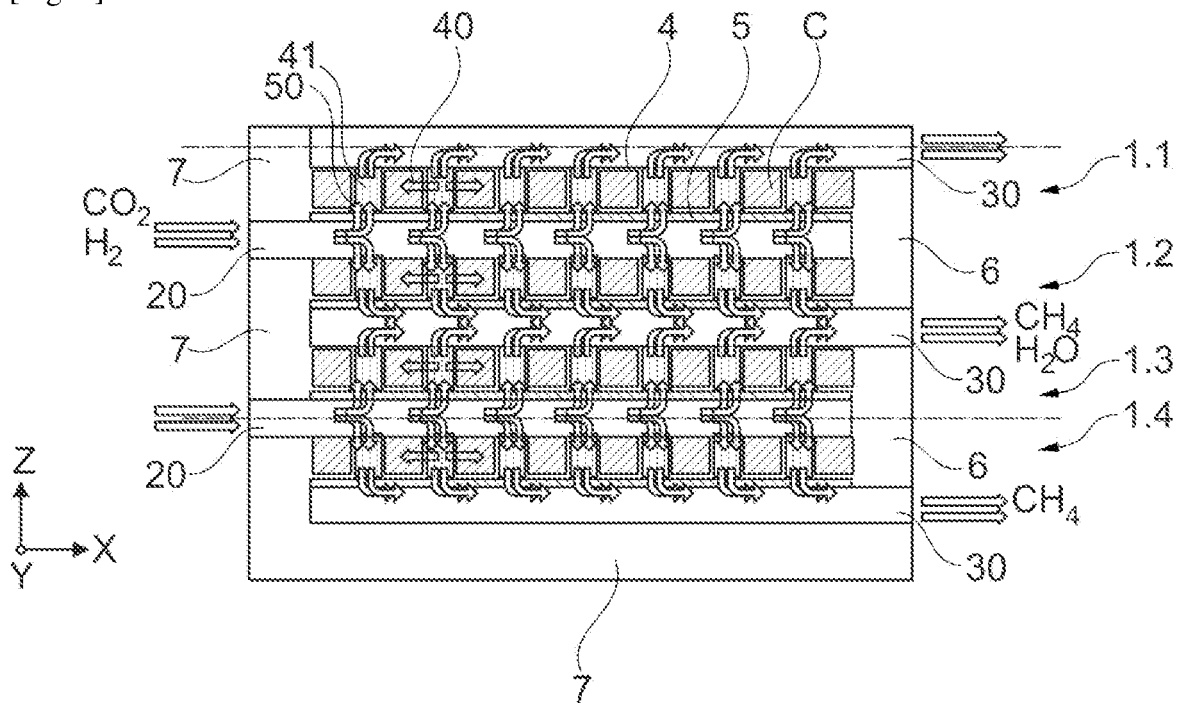


Fig. 8

RAPPORT DE RECHERCHE

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

OBJET DU RAPPORT DE RECHERCHE

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

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

CONDITIONS D'ETABLISSEMENT DU PRESENT RAPPORT DE RECHERCHE

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

Le demandeur a maintenu les revendications.

Le demandeur a modifié les revendications.

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

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

Un rapport de recherche préliminaire complémentaire a été établi.

DOCUMENTS CITES DANS LE PRESENT RAPPORT DE RECHERCHE

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

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

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

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

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

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

US 2 852 545 A (JENNY FRANK J)
16 septembre 1958 (1958-09-16)

EP 0 081 948 B1 (ICI PLC [GB])
13 mai 1987 (1987-05-13)

CN 100 528 320 C (HANGZHOU LINDA CHEMICAL
TECHNO [CN]) 19 août 2009 (2009-08-19)

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

NEANT

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

NEANT