(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
3 novembre 2016 (03.11.2016)

WIPO | PCT

(10) Numéro de publication internationale
WO 2016/174317 A1

(51) Classification internationale des brevets :
C01B 23/00 (2006.01) *F25J 3/02* (2006.01)

(21) Numéro de la demande internationale :
PCT/FR2015/052633

(22) Date de dépôt international :
1 octobre 2015 (01.10.2015)

(25) Langue de dépôt : français

(26) Langue de publication : français

(30) Données relatives à la priorité :
1553906 30 avril 2015 (30.04.2015) FR

(71) Déposant : **L'AIR LIQUIDE, SOCIETE ANONYME POUR L'ETUDE ET L'EXPLOITATION DES PROCEDES GEORGES CLAUDE** [FR/FR]; 75, Quai d'Orsay, 75007 Paris (FR).

(72) Inventeurs : **DEMOLLIENS, Bertrand**; 79 Avenue Philippe Auguste, 75011 Paris (FR). **TSEVERY, Jean-Marc**; 134, rue des Grands Champs, 77127 Lieusaint (FR).

(74) Mandataire : **DE BEAUFORT, François-Xavier**; L'air Liquide S.A, Direction de la Propriété Intellectuelle, 75, Quai d'Orsay, 75321 Paris Cedex 07 (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, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, 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, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) États désignés *(sauf indication contraire, pour tout titre de protection régionale disponible)* : ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasien (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), européen (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Déclarations en vertu de la règle 4.17 :

— *relative à la qualité d'inventeur (règle 4.17.iv))*

Publiée :

— *avec rapport de recherche internationale (Art. 21(3))*

(54) **Title** : PRODUCTION OF HELIUM FROM A GAS STREAM CONTAINING HYDROGEN

(54) **Titre** : PRODUCTION D'HÉLIUM À PARTIR D'UN COURANT GAZEUX CONTENANT DE L'HYDROGÈNE

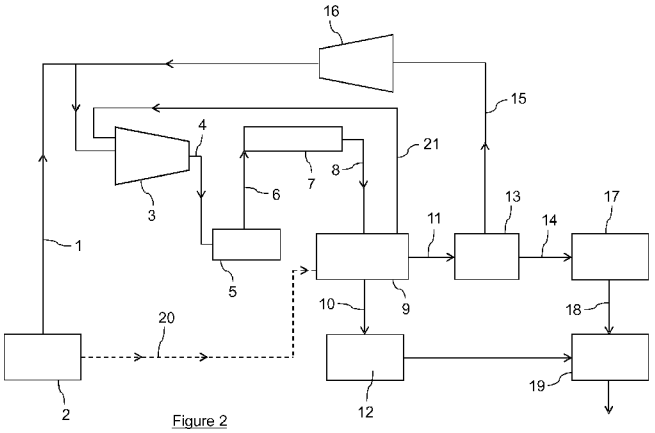


Figure 2

(57) **Abstract** : The invention relates to a method for producing helium from a source gas stream (1) including at least helium, methane, nitrogen and hydrogen, comprising at least the following consecutive steps: step a): injecting said source gas stream (1) into at least one compressor (3); step b): eliminating the hydrogen and the methane by reacting the stream (4) obtained from step a) with oxygen; step c): eliminating at least the impurities from step b) by temperature swing adsorption (TSA); step d): partially condensing the stream (8) obtained from step c) in order to produce a stream (10) of liquid nitrogen and a gas stream (11) comprising mostly helium; step e): purifying the gas stream (11) obtained from step d) in order to increase the helium content by pressure swing adsorption (PSA) by eliminating the nitrogen and the impurities contained in the gas stream (11) obtained from step d).

(57) **Abrégé** :

[Suite sur la page suivante]

WO 2016/174317 A1

Procédé de production d'hélium à partir d'un courant gazeux source (1) comprenant au moins de l'hélium, du méthane, de l'azote et de l'hydrogène, comprenant au moins les étapes successives suivantes: Etape a): introduction dudit courant gazeux source (1) dans au moins un compresseur(3); Etape b): élimination de l'hydrogène et du méthane par réaction du courant (4) issu de l'étape a) avec de l'oxygène; Etape c): élimination au moins des impuretés issues de l'étape b) par adsorption à température alternée (TSA); Etape d): condensation partielle du courant (8) issu de l'étape c) afin de produire un courant (10) d'azote liquide et un courant (11) gazeux comprenant majoritairement de l'hélium; Etape e): purification du courant gazeux (11) issu de l'étape d) afin d'augmenter la teneur en hélium par adsorption à pression alternée (PSA) en éliminant l'azote et les impuretés contenues dans le courant gazeux (11) issu de l'étape d).

Production d'hélium à partir d'un courant gazeux contenant de l'hydrogène

La présente invention concerne un procédé de production d'hélium à partir d'un courant gazeux source comprenant au moins de l'hélium, du méthane, de l'azote et de l'hydrogène.

L'hélium est obtenu commercialement pratiquement exclusivement à partir d'un mélange de composants volatils du gaz naturel, ce mélange comprenant, ainsi que de l'hélium, typiquement du méthane et de l'azote et des traces d'hydrogène, de l'argon et d'autres gaz nobles. Au cours de la production de l'huile minérale, l'hélium est mis à disposition en tant que composant du gaz qui accompagne l'huile minérale, ou dans le cadre de la production de gaz naturel. Il est théoriquement possible d'obtenir de l'hélium dans l'atmosphère, mais ce n'est pas économique en raison des faibles concentrations (concentration typique de l'hélium dans l'air de l'ordre de 5,2 ppmv).

Afin d'éviter la congélation indésirable lors d'un processus de liquéfaction de l'hélium, la concentration des impuretés dans le courant d'hélium à liquéfier ne doit pas dépasser une valeur de 1000 ppm en volume, de préférence de 10 ppmv.

Pour cette raison, le processus de liquéfaction de l'hélium est connecté en aval d'un procédé de purification d'hélium. Celui-ci se compose généralement d'une combinaison de procédés cryogéniques, généralement basée sur la condensation partielle, et des procédés d'adsorption, la régénération dans le cas de ce dernier étant possible grâce à la variation de température et ou de pression.

Dans de nombreux cas, il est avantageux de mettre en œuvre un procédé de purification de l'hélium de telle sorte que, en plus de l'hélium purifié, de l'azote de pureté requise - dans laquelle la somme des impuretés est inférieure à 1% en volume - peut être obtenu. En général, seule une portion, typiquement de 5% à 70%, de préférence de 10% à 50%, de l'azote présent dans le mélange à purifier est amenée à la pureté désirée.

L'azote restant est libéré dans l'atmosphère en même temps que le méthane sous forme de gaz basse pression, soit directement, soit après une étape d'oxydation, de préférence mis en œuvre dans une torche ou un incinérateur.

Un exemple connu de procédé de l'état de la technique pour l'obtention d'une fraction d'hélium pur à partir d'une fraction de départ comprenant au moins de l'hélium, du méthane et de l'azote est décrit dans la demande de brevet AU2013200075.

Ce procédé d'obtention d'une fraction d'hélium pur à partir d'une fraction de départ comprenant au moins de l'hélium, du méthane et de l'azote comprend les étapes successives suivantes :

a) la fraction de départ est soumise à une élimination de méthane et d'azote,

b) la fraction issue de a) qui se compose essentiellement d'hélium et d'azote est comprimée,

c) la fraction comprimée est soumise à une élimination d'azote, et

d) la fraction riche en hélium obtenu à l'étape c) est soumise à une purification par adsorption pour produire une fraction.

L'élimination précoce de la fraction de méthane contenue dans le courant gazeux initial à traiter impose la mise en œuvre de deux étapes cryogéniques indépendantes nécessaires, les coûts d'investissement et d'exploitation sont donc importants.

Par ailleurs, une partie de l'azote contenue dans le courant gazeux initial à traité est perdu avec l'éthane éliminé à la première étape. Or, le recyclage d'azote pour d'autres applications est un élément clé à l'échelle industrielle, car l'azote, en particulier l'azote liquide est très valorisable.

En outre, ce procédé ne permet pas de traiter les flux gazeux contenant une forte teneur en hydrogène, typiquement plus de 6% en volume d'hydrogène.

Un autre type de procédé de purification d'hélium connu de l'art antérieur est illustré par la figure 1.

Un flux gazeux 1' comprenant de l'azote, du méthane, de l'hélium et de l'hydrogène, par exemple provenant de la sortie d'une unité 15' de rejet d'azote (NRU en anglais, nitrogen rejection unit) suite au traitement d'un flux de gaz naturel pour éliminer l'azote de ce gaz naturel, est introduit dans un compresseur 2'. Une fois ce gaz comprimé, il est introduit dans un dispositif concentrateur d'hélium 3'.

En sortie de ce dispositif 3', l'hydrogène contenu dans le flux gazeux est éliminé au moyen d'un système 4' dans lequel réagissent hydrogène et de l'oxygène.

A l'issue de cette étape, le flux gazeux est alors purifié au moyen 5' d'un procédé d'adsorption à pression alternée (PSA en anglais). Un flux gazeux 6', provenant du PSA 6', contenant majoritairement de l'hélium est alors liquéfié dans un dispositif 7' de liquéfaction d'hélium. L'hélium liquéfié est envoyé dans un système de stockage d'hélium 8'. Ledit système de stockage 8' étant refroidi par de l'azote liquide 9' issu d'un dispositif de stockage d'azote liquide 10' alimenté par une unité de séparation d'air 11'.

Par ailleurs l'azote liquide stocké dans le dispositif 10' sert à alimenter le dispositif concentrateur d'hélium 3'.

Le flux gazeux 12' contenant une majorité d'azote et une faible quantité d'hélium est purifié au moyen d'un moyen de purification 13' éliminant les impuretés contenues dans le flux gazeux 12' afin de produire un flux gazeux 14' de recyclage envoyé au compresseur 2' après avoir été mélangé avec le mélange gazeux 1' initial à traiter.

Lorsque le taux d'hydrogène est élevé, typiquement plus de 4% en volume voire 6%, l'appoint d'air au niveau du système d'élimination d'hydrogène 4' dans lequel réagissent hydrogène et de l'oxygène est important. Une grande quantité d'azote et d'argon est alors introduite à ce niveau-là, ce qui dimensionne le système 5' PSA.

Une purge mise en œuvre au niveau du concentrateur d'hélium 3' contient du méthane. Il faut alors la traiter au moyen d'un dispositif d'oxydation du méthane pour satisfaire les exigences environnementales.

Il est nécessaire d'avoir une unité de séparation d'air 11' (en anglais ASU) qui produit l'azote liquide à la spécification compatible avec les stockages d'hélium 8' (de l'ordre du ppm de méthane).

Les inventeurs de la présente invention ont alors mis au pont une solution permettant de résoudre les problèmes soulevés ci-dessus.

La présente invention a pour objet un procédé de production d'hélium à partir d'un courant gazeux source comprenant au moins de l'hélium, du méthane, de l'azote et de l'hydrogène, comprenant au moins les étapes successives suivantes :

Etape a) : introduction dudit courant gazeux source dans au moins un compresseur;

Etape b) : élimination de l'hydrogène et du méthane par réaction du courant issu de l'étape a) avec de l'oxygène ;

Etape c) : élimination au moins des impuretés issues de l'étape b) par adsorption à température alternée (TSA) ;

Etape d) : condensation partielle du courant issu de l'étape c) afin de produire un courant d'azote liquide et un courant gazeux comprenant majoritairement de l'hélium ;

Etape e) : purification du courant gazeux issu de l'étape d) afin d'augmenter la teneur en hélium par adsorption à pression alternée (PSA) en éliminant l'azote et les impuretés contenues dans le courant gazeux issu de l'étape d).

Selon d'autres modes de réalisation, la présente invention a pour objet:

Un procédé tel que défini précédemment caractérisé en ce que le courant gazeux source comprend de 40% à 95% en volume d'azote, de 0,05% à 40% en volume d'hélium, de 50 ppmv à 5% en volume de méthane et de 1% à 10% en volume d'hydrogène, de préférence de 5% en volume à 10% en volume d'hydrogène.

Un procédé tel que défini précédemment caractérisé en ce que le courant gazeux source comprend de 40% à 60% en volume d'azote, de 30% à 50% en volume d'hélium, de 50 ppmv à 5% en volume de méthane et de 1% à 10% en volume d'hydrogène, de préférence de 5% en volume à 10% en volume d'hydrogène.

Un procédé tel que défini précédemment comprenant une étape préalablement à l'étape a) de production du courant gazeux source à traiter au moyen d'une unité d'extraction d'azote ou d'une unité de liquéfaction de gaz naturel, ladite unité produisant un courant d'azote liquide mis en œuvre à l'étape d) permettant la condensation partielle du courant issu de l'étape c) afin de produire un courant d'azote liquide et un courant gazeux comprenant majoritairement de l'hélium.

Un procédé tel que défini précédemment caractérisé en ce que la pression à l'issue de l'étape a) est comprise entre 15 Bara et 35 Bara, de préférence entre 20 Bara et 25 Bara.

Un procédé tel que défini précédemment caractérisé en ce que le courant gazeux issu de l'étape b) comprend moins de 1 ppm en volume d'hydrogène et moins de 1 ppm en volume de méthane.

Un procédé tel que défini précédemment caractérisé en ce que lesdites impuretés contenues dans le courant gazeux issu de l'étape b) comprennent majoritairement du dioxyde de carbone et de l'eau.

Un procédé tel que défini précédemment caractérisé en ce que le courant d'azote liquide issu de l'étape d) comprend plus de 98,5% en volume d'azote.

Un procédé tel que défini précédemment caractérisé en ce que ledit courant gazeux issu de l'étape d) comprend entre 80% en volume et 95% en volume d'hélium.

Un procédé tel que défini précédemment caractérisé en ce que ledit courant gazeux issu de l'étape e) comprend au moins 99,9% en volume d'hélium.

Un procédé tel que défini précédemment caractérisé en ce que l'étape b) consiste en la mise en contact du courant gazeux issu de l'étape a) avec de l'oxygène et un lit catalytique comportant des particules d'au moins un métal choisi parmi le cuivre, le platine, le palladium, l'osmium, l'iridium, le ruthénium et le rhodium, supporté par un support inerte chimiquement vis-à-vis du dioxyde de carbone et de l'eau de sorte à faire réagir le méthane et l'hydrogène avec l'oxygène.

Un procédé tel que défini précédemment caractérisé en ce qu'il comprend une étape supplémentaire f) de liquéfaction de l'hélium issu de l'étape e).

Un procédé tel que défini précédemment caractérisé en ce que l'azote liquide issu de l'étape d) refroidit l'hélium liquéfié à l'étape f).

Une Installation de production d'hélium à partir d'un mélange de gaz source comprenant du méthane, de l'hélium, de l'hydrogène et de l'azote comprenant au moins un compresseur recevant directement le mélange de gaz source, au moins un moyen d'élimination d'hydrogène et de méthane, au moins un dispositif d'élimination d'azote et de concentration d'hélium, et au moins un moyen de purification en hélium situé en aval du dispositif d'élimination d'azote et de concentration d'hélium, caractérisée en ce que le moyen d'élimination d'hydrogène et de méthane est situé en aval dudit au moins un compresseur et en amont du dispositif d'élimination d'azote et de concentration d'hélium.

Une Installation telle que définie précédemment caractérisée en ce qu'elle comprend en outre un dispositif de liquéfaction d'hélium en aval du moyen de purification en hélium.

L'invention sera décrite de manière plus détaillée en se référant à la figure 2 qui illustre un mode de mise en œuvre d'un procédé selon l'invention.

Un courant gazeux source 1 contenant au moins de l'hélium, de l'azote, de l'hydrogène et du méthane est traité par un procédé objet de la présente invention afin de produire un flux d'hélium pur, typiquement contenant plus de 99,999% en volume d'hélium. Le courant source 1 provient par exemple d'une unité 2 de d'extraction d'azote (en anglais, nitrogen rejection unit, NRU) située en aval d'une unité cryogénique de traitement du gaz naturel.

Le courant source 1 est introduit dans un compresseur 3 permettant de comprimer le courant gazeux 4 à une pression comprise entre 15 Bara (Bars absolu) et 35 Bara, de préférence entre 20 bara er 25 Bara. La température est la température ambiante où se situe l'installation.

Le courant gazeux 4 est introduit dans une unité 5 d'élimination d'hydrogène et de méthane. Cette unité 5 consiste par exemple en un à plusieurs réacteurs en série contenant un catalyseur entre des grilles.

Ce catalyseur est typiquement du Pd/Al_2O_3. Une oxydation catalytique entre l'oxygène et les comburants (hydrogène/ méthane) se crée.

L'hydrogène réagit avec l'oxygène pour former de l'eau. Cette réaction étant exothermique, la température s'élève.

Pour oxyder le méthane également, des températures plus élevées sont requises. Un fort taux d'hydrogène à l'entrée permet d'opérer à une température élevée et de co-oxyder le méthane (par exemple, avec 2% d'hydorgène, la température s'élève à 200°C environ ce qui ne suffit pas pour oxyder le méthane).

Ainsi l'hydrogène et le méthane contenus dans le courant source 1 initial à traiter sont oxydés par l'oxygène de l'unité 5.

Des impuretés telles que l'eau et le dioxyde de carbone sont donc produites dans le courant gazeux 6 en sortie de l'unité 5. Ce courant gazeux 6 comprend majoritairement de l'azote et de l'hélium.

On refroidit le gaz sortant (contre l'air ambiant ou eau de refroidissement) avant de l'envoyer dans l'unité d'adsorption 7. Une partie de l'eau se condense alors directement dans un récupérateur de condensats. Une partie de la chaleur produite peut être récupérée pour être utilisée dans un autre procédé

Le courant gazeux 6 est alors traité dans une unité d'adsorption 7, telle qu'une unité d'adsorption à température alternée (TSA en anglais), afin d'éliminer l'eau et le dioxyde de carbone du courant gazeux 6. Il en résulte un courant gazeux 8 comprenant essentiellement de l'azote et de l'hélium (c'est-à-dire comprenant moins de 5 ppm en volume de méthane, moins de 1 ppm en volume d'hydrogène, moins de 0,1 ppm en volume de dioxyde de carbone et moins de 0,1 ppm en volume d'eau). Le courant gazeux 8 est traité dans une unité 9 d'épuration d'azote et de concentration d'hélium.

Cette unité 9 comprend au moins un échangeur de chaleur dans lequel le courant gazeux est refroidi depuis la température ambiante (0°C – 40°C par exemple) jusqu'à une température comprise entre -180°C et -195°C. En sortie de cet échangeur de chaleur, le flux gazeux est par exemple introduit dans un pot séparateur de phase générant un flux liquide 10 et un courant gazeux 11.

Le flux liquide 10 contient 98,8% en volume d'azote. Ce flux liquide 10 est envoyé vers un dispositif de stockage 12 d'azote liquide. Il ne contient pas de méthane.

Le courant gazeux 11 contient de 80% en volume à 95% en volume d'hélium et de 5% en volume à 20% en volume d'azote. Le courant 11 est envoyé dans une unité 13 de purification en hélium.

Cette unité 13 de purification est par exemple une unité d'adsorption à pression alternée (en anglais PSA) et produit deux courants. L'un 14, contenant 99,9% en volume d'hélium et un autre 15 contenant le reste des éléments (essentiellement de l'azote). Le courant gazeux 15 est introduit dans un compresseur 16 puis mélangé au courant gazeux source 1 à traiter, il s'agit là d'une boucle de régénération de l'unité 13.

Le courant 14 riche en hélium peut être envoyé vers une unité 17 de liquéfaction d'hélium produisant un courant 18 d'hélium liquide dirigé vers un dispositif de stockage 19. L'azote liquide pur 10 stocké dans le dispositif de stockage d'azote 12 peut être utilisé pour maintenir la température du dispositif 19 de stockage d'hélium.

Selon un mode préféré de réalisation, un courant 20 d'azote liquide produit par l'unité 2 d'extraction d'azote est introduit dans l'unité 9 d'épuration d'azote et de concentration d'hélium. Cela permet d'obtenir la puissance frigorifique nécessaire et par là d'éviter l'investissement d'une unité de séparation d'air dédiée contrairement au procédé illustré sur la figure 1.

On peut également utiliser un autre fluide frigorigène présent sur le site (par exemple du LNG) ou utiliser un fluide haute pression que l'on détend (par détente joule Thomson ou turbines) pour créer le froid nécessaire.

Des avantages d'un procédé tel qu'illustré à la figure 2 objet de la présente invention par rapport au procédé illustré à la figure 1 sont décrits ci-après.

L'oxydation simultanée de l'hydrogène et du méthane a lieu avant la concentration en hélium. Le TSA 7 fonctionne alors sous pression ce qui garantit une meilleure efficacité (une réduction du volume d'adsorbants nécessaire ainsi qu'une réduction de la consommation de chaleur au niveau du réchauffeur de régénération).

La purge provenant de l'unité 9 cryogénique de concentration en hélium ne contient plus de méthane (qui a été oxydé au préalable).

De l'azote liquide 10 sans méthane peut donc être produit à partir de l'unité 9. Il suffit d'intégrer cette unité 9 avec l'unité 2 de concentration d'Hélium (NRU ou unité de liquéfaction du gaz naturel) pour obtenir la puissance frigorifique nécessaire. Cela permet d'éviter l'investissement d'une unité de séparation d'air (en anglais ASU) dédiée.

Selon un mode particulier de l'invention, un courant 21 préalablement détendu dans l'unité 9 contenant de l'azote et de l'hélium est extrait de ladite unité 9 puis envoyé vers un compresseur 3 et/ou 16. Ainsi de l'helium issu de la détente de l'azote liquide de l'unité 9 est recyclé afin d'augmenter le pourcentage d'hélium produit.

Par exemple le courant 21 comporte entre 40% et 50% en volume d'hélium et entre 50% et 60% en volume d'azote.

Le rendement de l'unité 13 PSA et sa taille sont également grandement améliorés. L'hélium 11 est préconcentré à environ 90% au PSA 13 (plutôt que 70% dans le procédé de la figure 1 et avec un fort taux d'hydrogène. Les impuretés argon et oxygène sont également en quantité bien plus faibles (puisque l'argon et l'oxygène se condensent en même temps que l'azote).

Il n'y a également plus de dioxyde de carbone ni d'eau à traiter dans le gaz entrant. La pression du gaz résiduaire (en anglais (offgas) du PSA 13 peut également être réduite par rapport à celle du procédé illustré à la figure 1 car ils peuvent revenir directement au compresseur 16 sans passer auparavant par une unité de séchage.

Tous ces points permettent d'améliorer le rendement du PSA 13 ce qui dimensionne la ligne de retour et le compresseur 3 du courant 1 à traiter (la consommation énergétique du compresseur est réduite.)

Le tableau ci-dessous récapitule les compositions des courants gazeux entrant dans l'unité de purification en hélium (élément numéroté 13 de la figure 2 et 5' de la figure 1).

Courant gazeux		**Figure 1**	**Figure 2**
Composition			
He	mol%	69,48%	89,9697%
N2	mol%	29,94%	9,9979%
CH4	ppm v	1	1
Ar	ppm v	2 658	181
H2	ppm v	<0.5	<0.5
Ne	ppm v	300	300
CO	ppm v	0	0
O2	ppm v	2 703	143
H2O		saturé	0
CO2	ppmv	355	<0.1
Total	mol%	100%	100%
Débit (sec)	Nm3/h	4806	3713
Pression	bars a	23,55	23,45
Température	°C	47	47

Tableau : Composition des gaz entrants dans le PSA

5

Revendications

1. Procédé de production d'hélium à partir d'un courant gazeux source (1) comprenant au moins de l'hélium, du méthane, de l'azote et de l'hydrogène, comprenant au moins les étapes successives suivantes :

Etape a) : introduction dudit courant gazeux source (1) dans au moins un compresseur (3);

Etape b) : élimination de l'hydrogène et du méthane par réaction du courant (4) issu de l'étape a) avec de l'oxygène ;

Etape c) : élimination au moins des impuretés issues de l'étape b) par adsorption à température alternée (TSA) ;

Etape d) : condensation partielle du courant (8) issu de l'étape c) afin de produire un courant (10) d'azote liquide et un courant (11) gazeux comprenant majoritairement de l'hélium ;

Etape e) : purification du courant gazeux (11) issu de l'étape d) afin d'augmenter la teneur en hélium par adsorption à pression alternée (PSA) en éliminant l'azote et les impuretés contenues dans le courant gazeux (11) issu de l'étape d).

2. Procédé selon la revendication précédente caractérisé en ce que le courant gazeux source (1) comprend de 40% à 95% en volume d'azote, de 0,05% à 40% en volume d'hélium, de 50 ppmv à 5% en volume de méthane et de 1% à 10% en volume d'hydrogène, de préférence de 5% en volume à 10% en volume d'hydrogène.

3. Procédé selon la revendication 2 caractérisé en ce que le courant gazeux source (1) comprend de 40% à 60% en volume d'azote, de 30% à 50% en volume d'hélium, de 50 ppmv à 5% en volume de méthane et de 1% à 10% en volume d'hydrogène, de préférence de 5% en volume à 10% en volume d'hydrogène.

4. Procédé selon l'une des revendications précédentes comprenant une étape préalablement à l'étape a) de production du courant gazeux source (1) à traiter au moyen d'une unité (2) d'extraction d'azote ou d'une unité de liquéfaction de gaz naturel, ladite unité (2) produisant un courant (20) d'azote liquide mis en œuvre à l'étape d) permettant la condensation partielle du courant (8) issu de l'étape c) afin de produire un courant d'azote liquide (10) et un courant gazeux (11) comprenant majoritairement de l'hélium.

5. Procédé selon la revendication précédente caractérisé en ce que la pression à l'issue de l'étape a) est comprise entre 15 Bara et 35 Bara, de préférence entre 20 Bara et 25 Bara.

6. Procédé selon la revendication précédente caractérisé en ce que le courant gazeux (6) issu de l'étape b) comprend moins de 1 ppm en volume d'hydrogène et moins de 1 ppm en volume de méthane.

7. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes caractérisé en ce que lesdites impuretés contenues dans le courant gazeux (6) issu de l'étape b) comprennent majoritairement du dioxyde de carbone et de l'eau.

8. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes caractérisé en ce que le courant d'azote liquide issu de l'étape d) comprend plus de 98,5% en volume d'azote.

9. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes caractérisé en ce que ledit courant gazeux issu de l'étape d) comprend entre 80% en volume et 95% en volume d'hélium.

10. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes caractérisé en ce que ledit courant gazeux issu de l'étape e) comprend au moins 99,9% en volume d'hélium.

11. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes caractérisé en ce que l'étape b) consiste en la mise en contact du courant gazeux issu de l'étape a) avec de l'oxygène et un lit catalytique comportant des particules d'au moins un métal choisi parmi le cuivre, le platine, le palladium, l'osmium, l'iridium, le ruthénium et le rhodium, supporté par un support inerte chimiquement vis-à-vis du dioxyde de carbone et de l'eau de sorte à faire réagir le méthane et l'hydrogène avec l'oxygène.

12. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes caractérisé en ce qu'il comprend une étape supplémentaire f) de liquéfaction de l'hélium issu de l'étape e).

13. Procédé selon la revendication précédente caractérisé en ce que l'azote liquide issu de l'étape d) refroidit l'hélium liquéfié à l'étape f).

14. Installation de production d'hélium à partir d'un mélange de gaz source (1) comprenant du méthane, de l'hélium, de l'hydrogène et de l'azote comprenant au moins un compresseur (3) recevant directement le mélange de gaz source (1), au moins un moyen (5) d'élimination d'hydrogène et de méthane, au moins un dispositif (9) d'élimination d'azote et de concentration d'hélium, et au moins un moyen de purification (13) en hélium situé en aval du dispositif (9) d'élimination d'azote et de concentration d'hélium, caractérisée en ce que le moyen (5) d'élimination d'hydrogène et de méthane est situé en aval dudit au moins un compresseur (3) et en amont du dispositif (9) d'élimination d'azote et de concentration d'hélium.

15. Installation selon la revendication précédente caractérisée en ce qu'elle comprend en outre un dispositif (17) de liquéfaction d'hélium en aval du moyen de purification (13) en hélium.

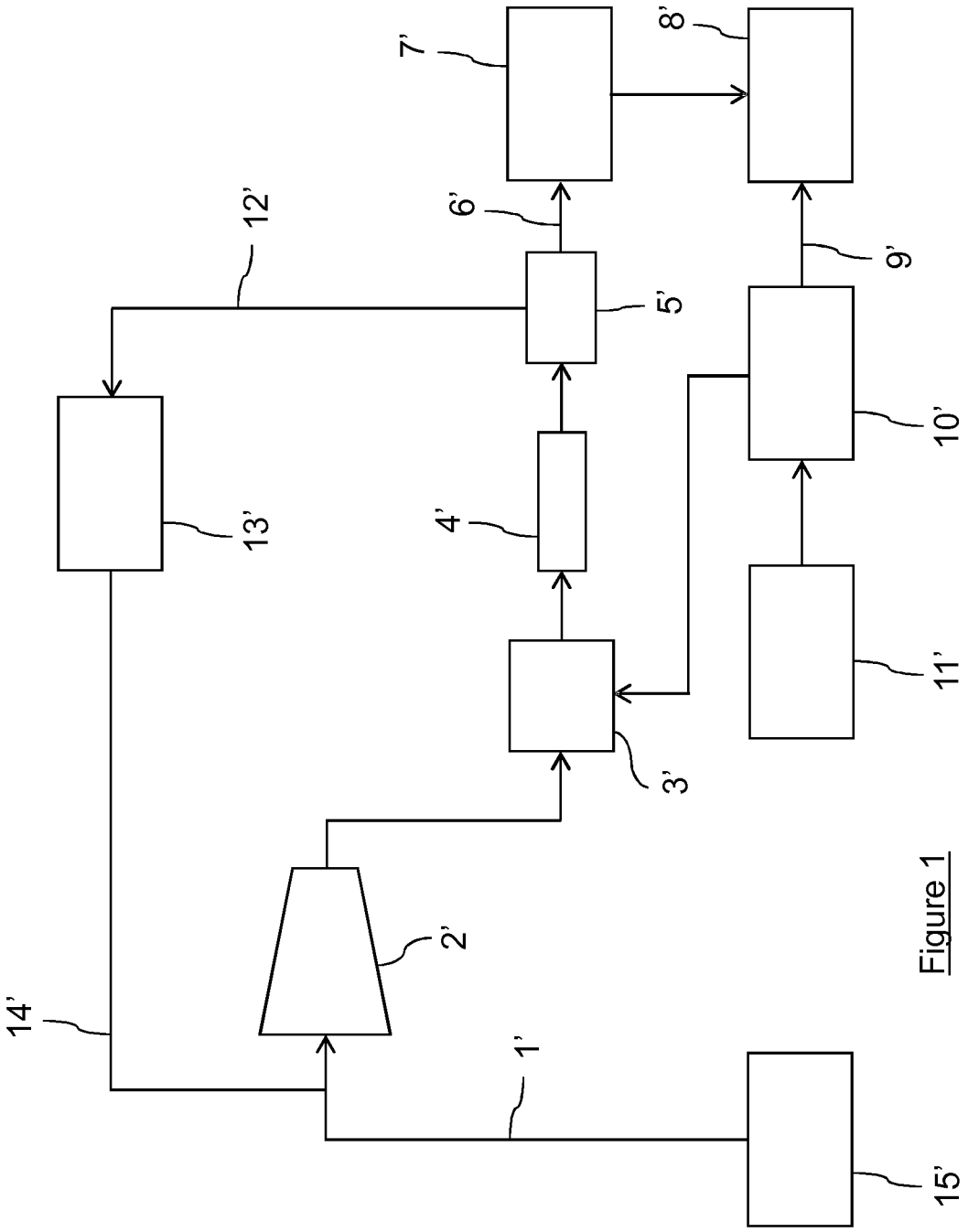


Figure 1

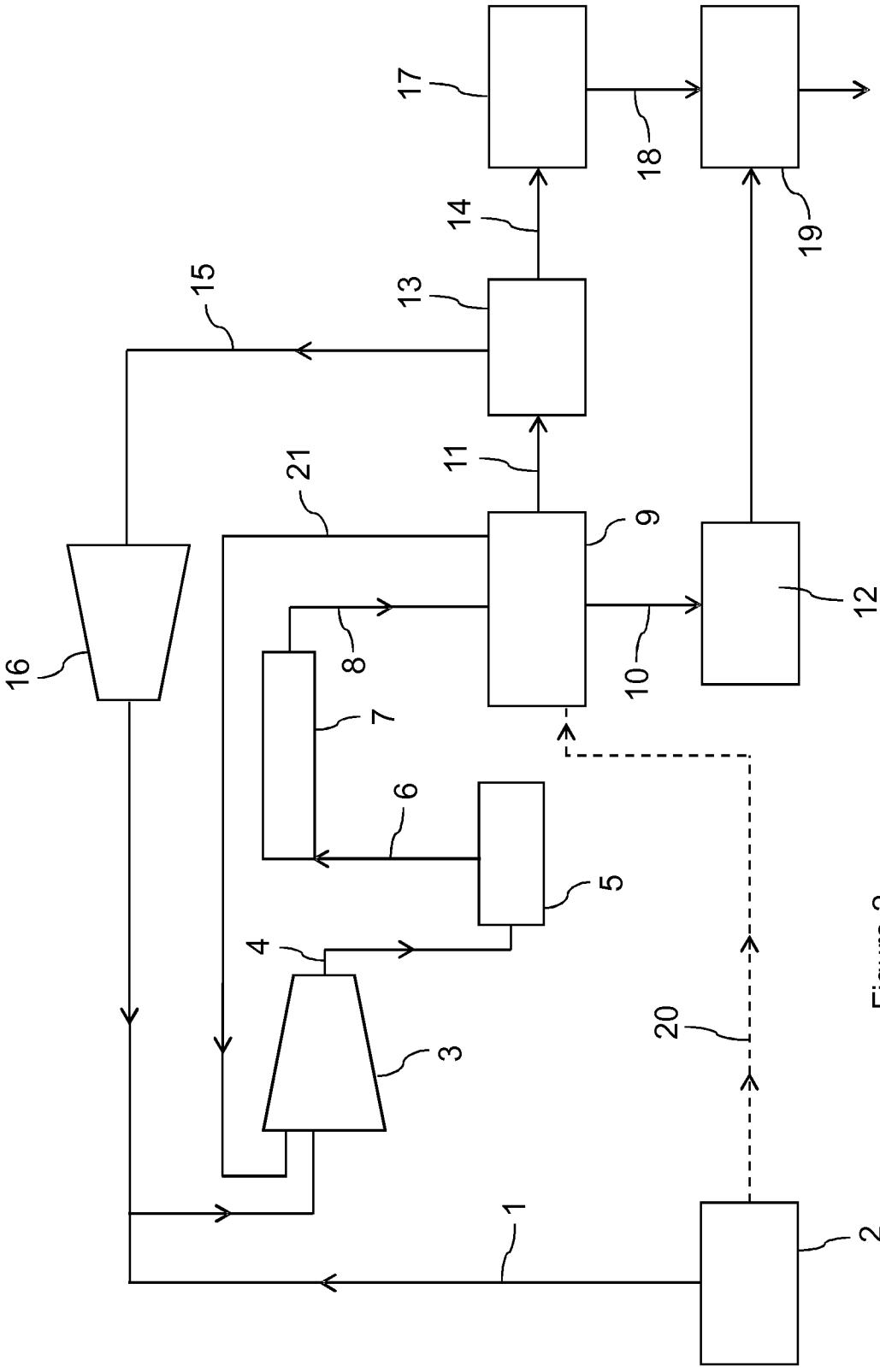


Figure 2

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/FR2015/052633

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. C01B23/00 F25J3/02
ADD.

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)
C01B F25J

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 practicable, search terms used)
EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2012 031049 A (SUMITOMO SEIKA CHEMICALS) 16 February 2012 (2012-02-16)	14,15
Y	claims 1-5 paragraphs [0013] - [0018] figure 1 traduction automatique de JP2012031049	1-13
Y	US 5 787 730 A (HEIM CARL JOSEPH [US] ET AL) 4 August 1998 (1998-08-04) claims 1,7,9-11,13 column 2, lines 55-65 figure 1	1-13
A	DE 10 2012 000147 A1 (LINDE AG [DE]) 11 July 2013 (2013-07-11) claims 1-6 figure 2	1-15

-/--

[X] Further documents are listed in the continuation of Box C.

[X] 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 application or patent 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
26 January 2016	05/02/2016

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Gerwann, Jochen

1

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2005)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/FR2015/052633

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2012 162444 A (SUMITOMO SEIKA CHEMICALS) 30 August 2012 (2012-08-30) claims 1-6 figure 1 traduction machinelle du JP2012162444 -----	1-15

1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/FR2015/052633

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 2012031049 A	16-02-2012	CN 102311102 A	11-01-2012
		JP 5748272 B2	15-07-2015
		JP 2012031049 A	16-02-2012
US 5787730 A	04-08-1998	NONE	
DE 102012000147 A1	11-07-2013	AU 2013200075 A1	18-07-2013
		DE 102012000147 A1	11-07-2013
		RU 2012157331 A	10-07-2014
JP 2012162444 A	30-08-2012	JP 5729765 B2	03-06-2015
		JP 2012162444 A	30-08-2012

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale n°
PCT/FR2015/052633

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE
INV. C01B23/00 F25J3/02
ADD.

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)
C01B F25J

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

C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie*	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
X	JP 2012 031049 A (SUMITOMO SEIKA CHEMICALS) 16 février 2012 (2012-02-16)	14,15
Y	revendications 1-5 alinéas [0013] - [0018] figure 1 traduction automatique de JP2012031049	1-13

Y	US 5 787 730 A (HEIM CARL JOSEPH [US] ET AL) 4 août 1998 (1998-08-04) revendications 1,7,9-11,13 colonne 2, lignes 55-65 figure 1	1-13

A	DE 10 2012 000147 A1 (LINDE AG [DE]) 11 juillet 2013 (2013-07-11) revendications 1-6 figure 2	1-15

	-/--	

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

[X] 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
26 janvier 2016	05/02/2016

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

1

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale n°
PCT/FR2015/052633

C(suite). DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie*	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	JP 2012 162444 A (SUMITOMO SEIKA CHEMICALS) 30 août 2012 (2012-08-30) revendications 1-6 figure 1 traduction machinelle du JP2012162444 -----	1-15

1

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Demande internationale n°
PCT/FR2015/052633

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
JP 2012031049 A	16-02-2012	CN 102311102 A	11-01-2012
		JP 5748272 B2	15-07-2015
		JP 2012031049 A	16-02-2012
US 5787730 A	04-08-1998	AUCUN	
DE 102012000147 A1	11-07-2013	AU 2013200075 A1	18-07-2013
		DE 102012000147 A1	11-07-2013
		RU 2012157331 A	10-07-2014
JP 2012162444 A	30-08-2012	JP 5729765 B2	03-06-2015
		JP 2012162444 A	30-08-2012