Office de la Propriété Intellectuelle du Canada

(21) **3 166 968** 

Canadian Intellectual Property Office

## (12) DEMANDE DE BREVET CANADIEN CANADIAN PATENT APPLICATION

(13) **A1** 

(86) Date de dépôt PCT/PCT Filing Date: 2022/03/25

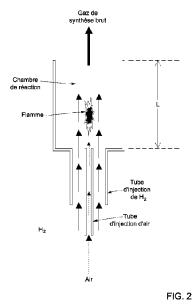
(87) Date publication PCT/PCT Publication Date: 2023/09/25

(85) Entrée phase nationale/National Entry: 2022/08/03

(86) N° demande PCT/PCT Application No.: CA 2022/050444

(30) Priorité/Priority: 2021/03/26 (CA3113341)

- (51) Cl.Int./Int.Cl. C01C 1/04 (2006.01), B01D 53/54 (2006.01)
- (71) **Demandeur/Applicant**: HYDRO-QUEBEC, CA
- (72) Inventeurs/Inventors: LABRECQUE, RAYNALD, CA; VIENNEAU, MICHEL, CA; LAROCQUE, GERMAIN, CA; SHEKARI, ALI, CA
- (74) Agent: ROBIC
- (54) Titre: PROCEDE ET SYSTEME POUR PRODUIRE UN GAZ COMPRENANT DE L'AZOTE (N2) ET DE L'HYDROGENE (H2) PAR COMBUSTION D'HYDROGENE EN PRESENCE D'AIR
- (54) Title: PROCESS AND SYSTEM FOR PRODUCING A GAS COMPRISING NITROGEN (N2) AND HYDROGEN (H2) THROUGH HYDROGEN COMBUSTION IN THE PRESENCE OF AIR



#### (57) Abrégé/Abstract:

La technologie concerne un procédé et un système pour produire un gaz comprenant de l'azote (N2) et de l'hydrogène (H2) dans une chambre de réaction de longueur L d'un réacteur. Le procédé comprend l'injection d'air et l'injection d'hydrogène dans le réacteur et la combustion d'une partie de l'hydrogène injecté avec l'oxygène de l'air dans la chambre de réaction, en présence d'un excès sur-stoechiométrique molaire d'hydrogène par rapport à l'oxygène de l'air. La combustion est soutenue par une flamme produite par un flux d'air ayant une vitesse v1 résultant de l'injection d'air, entouré d'un flux d'hydrogène ayant une vitesse v2 résultant de l'injection d'hydrogène, avec la vitesse v2 qui est supérieure à v1.





**Date de soumission :** 2022/08/03

No de la demande can.: 3166968

## Abrégé:

La technologie concerne un procédé et un système pour produire un gaz comprenant de l'azote (N2) et de l'hydrogène (H2) dans une chambre de réaction de longueur L d'un réacteur. Le procédé comprend l'injection d'air et l'injection d'hydrogène dans le réacteur et la combustion d'une partie de l'hydrogène injecté avec l'oxygène de l'air dans la chambre de réaction, en présence d'un excès sur-stœchiométrique molaire d'hydrogène par rapport à l'oxygène de l'air. La combustion est soutenue par une flamme produite par un flux d'air ayant une vitesse v1 résultant de l'injection d'air, entouré d'un flux d'hydrogène ayant une vitesse v2 résultant de l'injection d'hydrogène, avec la vitesse v2 qui est supérieure à v1.

# PROCÉDÉ ET SYSTÈME POUR PRODUIRE UN GAZ COMPRENANT DE L'AZOTE (N2) ET DE L'HYDROGÈNE (H2) PAR COMBUSTION D'HYDROGÈNE EN PRÉSENCE D'AIR

#### DOMAINE TECHNIQUE

5

15

20

25

La présente demande se rapporte à un procédé et un système pour produire un gaz comprenant de l'azote (N<sub>2</sub>) et de l'hydrogène (H<sub>2</sub>) par combustion d'hydrogène en présence d'air. Plus particulièrement, le procédé et le système peuvent permettre de produire un gaz de synthèse à base de N<sub>2</sub> et H<sub>2</sub> utilisable pour produire de l'ammoniac.

## 10 ÉTAT DE LA TECHNIQUE

L'ammoniac est un produit de base qui est au cœur de la production d'un large spectre de produits chimiques. De plus, son utilisation potentielle en tant que combustible - ou vecteur énergétique - est considérée à l'heure actuelle. L'ammoniac peut être produit par le procédé bien connu Haber-Bosch, lequel est basé sur la réaction suivante :

(1) 
$$N_2 + 3H_2 \rightarrow 2NH_3$$

Pour réaliser cette réaction, on a besoin d'azote et d'hydrogène selon un rapport molaire H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> égal à 3. Le mélange d'azote et d'hydrogène requis pour la réaction constitue ce que l'on appelle un gaz de synthèse.

L'hydrogène requis pour générer le gaz de synthèse peut être produit de différentes manières. Dans un contexte de développement durable, cet hydrogène peut être produit par le moyen de systèmes d'électrolyse de l'eau avec une alimentation électrique de source renouvelable (e.g., hydraulique, éolien, solaire).

D'un autre côté, l'azote requis pour constituer le gaz de synthèse provient de l'air qui contient environ 79% d'azote et environ 21 % d'oxygène. Différentes approches sont déjà utilisées pour la production d'azote à partir de l'air. Entre autres, l'azote peut être

produit par cryogénie, par séparation membranaire ou encore par adsorption physique (Pressure Swing Adsorption ou « PSA »).

Une approche alternative pour produire de l'azote consiste à faire réagir l'oxygène de l'air, en présence d'hydrogène, de manière à transformer cet oxygène en vapeur d'eau selon la réaction :

(2) 
$$1/2 O_2 + H_2 \rightarrow H_2O$$

De l'hydrogène en quantité suffisante peut être brûlé pour convertir complètement, en vapeur d'eau, l'oxygène présent dans l'air. Par la suite, cette vapeur d'eau peut être séparée, par exemple par condensation, pour ainsi récupérer l'azote.

- Pour produire un gaz de synthèse destiné à la production d'ammoniac, on peut utiliser un système d'électrolyse qui puisse à la fois produire l'hydrogène requis pour la synthèse de l'ammoniac et aussi la quantité d'hydrogène qui doit être brûlée pour transformer en vapeur d'eau l'oxygène contenu dans l'air utilisé pour produire l'azote requis pour la synthèse de l'ammoniac.
- 15 Cependant, la combustion de l'hydrogène en présence d'air engendre la formation d'oxydes d'azote (NOx) qui sont des molécules oxydantes qui peuvent interagir avec le catalyseur, généralement à base de fer, utilisé pour la synthèse de l'ammoniac. Le gaz de synthèse utilisé pour produire de l'ammoniac ne doit donc pas contenir une quantité significative de NOx.
- Un procédé pour la production d'un gaz à base d'hydrogène et d'azote, utile par exemple pour la synthèse d'ammoniac, par combustion d'hydrogène en présence d'air est particulièrement intéressant. Un procédé pour la production d'un gaz à base d'hydrogène et d'azote, par simple combustion d'hydrogène en présence d'air, pouvant être mise en place dans un réacteur de conception simple, tout en permettant de limiter la formation de NOx est attrayante. Un tel procédé va être décrit dans ce qui suit.

#### SOMMAIRE

5

10

20

25

Selon un premier aspect, la présente technologie concerne un procédé pour produire un gaz comprenant de l'azote (N<sub>2</sub>) et de l'hydrogène (H<sub>2</sub>) dans une chambre de réaction de longueur L d'un réacteur, comprenant l'injection d'air et l'injection d'hydrogène dans le réacteur et la combustion d'une partie de l'hydrogène injecté avec l'oxygène de l'air dans la chambre de réaction en présence d'un excès surstœchiométrique molaire d'hydrogène par rapport à l'oxygène de l'air, dans lequel :

la combustion est soutenue par une flamme produite par un flux d'air ayant une vitesse v<sub>1</sub> résultant de l'injection d'air, entouré d'un flux d'hydrogène ayant une vitesse v<sub>2</sub> résultant de l'injection d'hydrogène, avec la vitesse v<sub>2</sub> qui est supérieure à v<sub>1</sub>.

Selon un mode de réalisation, le procédé est tel que la vitesse v<sub>1</sub> est d'environ 1 m/s à environ 200 m/s. Selon un autre mode de réalisation, la vitesse v<sub>1</sub> peut être d'environ 5 m/s à environ 150 m/s. La vitesse v<sub>1</sub> peut aussi être d'environ 10 m/s à environ 100 m/s.

Selon un autre mode de réalisation, le procédé est tel que la vitesse v<sub>2</sub> est d'environ 2 m/s à environ 220 m/s. Selon un autre mode de réalisation, la vitesse v<sub>2</sub> peut être d'environ 10 m/s à environ 200 m/s. La vitesse v<sub>2</sub> peut aussi être d'environ 15 m/s à environ 175 m/s.

Selon un autre mode de réalisation, le procédé est tel que l'air est injecté avec un débit molaire F<sub>1</sub>, l'hydrogène est injecté avec un débit molaire F<sub>2</sub>, et le rapport F<sub>1</sub>/F<sub>2</sub> est compris entre environ 1,2 et environ 3,5. Selon un autre mode de réalisation, le rapport F<sub>2</sub>/F<sub>1</sub> peut être compris entre environ 2 et environ 3,5. Le rapport F<sub>2</sub>/F<sub>1</sub> peut aussi être compris entre environ 2,8 et 3,5.

Selon un autre mode de réalisation, le procédé est tel que la longueur L de la chambre de réaction est telle que le volume de la chambre de réaction permet un temps de séjour minimal de l'air et de l'hydrogène, à l'intérieur de la chambre de réaction. Selon un autre mode de réalisation, le temps de séjour peut être de 0,001 à 1 seconde. Le temps de séjour peut aussi être de 0,01 à 0,1 seconde.

Selon un autre mode de réalisation, le procédé est tel que la chambre de réaction est maintenue à une température moyenne T comprise entre environ 500 °C et environ 1500 °C pendant la combustion.

Selon un autre mode de réalisation, le procédé est tel que la chambre de réaction est maintenue à une température T<sub>1</sub> dans une première région où les flux d'air et d'hydrogène se mélangent dans la chambre de réaction, avec T<sub>1</sub> comprise entre environ 600 °C et environ 1500 °C.

Selon un autre mode de réalisation, le procédé est tel que la chambre de réaction est maintenue à une température T<sub>2</sub> dans une deuxième région proche d'une sortie de la chambre de réaction, avec T<sub>2</sub> comprise entre environ 500 °C et environ 1500 °C. La température T<sub>2</sub> peut aussi être comprise entre environ 500 °C et environ 1200 °C.

Selon un autre mode de réalisation, le procédé est tel que la température est maintenue dans la chambre de réaction au moins en partie par dissipation de la chaleur produite par la flamme vers l'extérieur la chambre de réaction.

Selon un autre mode de réalisation, le procédé est tel que la température est maintenue dans la chambre de réaction au moins en partie par récupération de la chaleur produite par la flamme, par un fluide caloporteur. Le fluide caloporteur peut être un liquide, une huile ou un gaz. Le fluide caloporteur peut aussi être de l'eau de qualité requise pour la génération de vapeur surchauffée. Selon un mode de réalisation, la vapeur générée peut être recyclée pour fournir au moins en partie la chaleur requise dans le procédé ou dans un autre procédé ou pour générer de l'électricité. Selon un mode de réalisation, la dissipation de chaleur peut se faire par convection, en présence d'air.

Selon un autre mode de réalisation, le procédé est tel que la pression dans la chambre de réaction est d'au moins 1 atm. Selon un autre mode de réalisation, la pression dans la chambre de réaction peut être de 1 atm à environ 10 atm.

5

10

15

20

Selon un autre mode de réalisation, le procédé est tel que l'hydrogène provient d'une réaction d'électrolyse de l'eau.

Selon un autre mode de réalisation, le procédé comprend en outre un séchage du gaz comprenant l'azote (N<sub>2</sub>) et l'hydrogène (H<sub>2</sub>) produit, et récupération d'eau. Selon un mode de réalisation, le séchage peut comprendre une condensation par refroidissement.

Selon un autre aspect, la présente technologie concerne l'utilisation d'un gaz comprenant de l'azote (N<sub>2</sub>) et l'hydrogène (H<sub>2</sub>) produit par le procédé tel que défini dans la présente description, pour la synthèse d'ammoniac.

Selon un autre aspect, la présente technologie concerne un système comprenant au moins un réacteur pour produire un gaz comprenant de l'azote (N<sub>2</sub>) et l'hydrogène (H<sub>2</sub>), dans lequel ledit réacteur comprend:

une chambre de réaction comprenant une paroi et une première extrémité et une deuxième extrémité séparées par une distance L, dans laquelle le gaz est produit par combustion d'une partie de l'hydrogène injecté avec l'oxygène de l'air en présence d'un excès sur-stœchiométrique molaire d'hydrogène par rapport à l'oxygène de l'air;

au moins un premier moyen pour alimenter la chambre de réaction avec un flux d'air à une vitesse v<sub>1</sub> au niveau de la première extrémité de la chambre;

au moins un second moyen pour alimenter la chambre de réaction avec un flux d'hydrogène à une vitesse  $v_2$  au niveau de la première extrémité de la chambre, la vitesse  $v_2$  étant supérieure à  $v_1$ ;

le premier moyen alimentant le flux d'air et le deuxième moyen alimentant le flux d'hydrogène sont agencés pour que le flux d'air soit entouré du flux d'hydrogène lors de la combustion.

Selon un mode de réalisation, le système est tel que la vitesse v<sub>1</sub> est d'environ 1 m/s à environ 200 m/s. Selon un autre mode de réalisation, la vitesse v<sub>1</sub> peut être d'environ 5 m/s à environ 150 m/s. La vitesse v<sub>1</sub> peut aussi être d'environ 20 m/s à environ 100 m/s.

5

15

Selon un autre mode de réalisation, le système est tel que la vitesse v<sub>2</sub> est d'environ 2 m/s à environ 220 m/s. Selon un autre mode de réalisation, la vitesse v<sub>2</sub> est d'environ 10 m/s à environ 200 m/s. La vitesse v<sub>2</sub> peut aussi être d'environ 30 m/s à environ 175 m/s.

- Selon un autre mode de réalisation, le système est tel que l'air est alimenté avec un débit molaire F<sub>1</sub>, l'hydrogène est alimenté avec un débit molaire F<sub>2</sub> et le rapport F<sub>2</sub>/F<sub>1</sub> est compris entre environ 1,2 et environ 3,5. Selon un autre mode de réalisation, le rapport F<sub>2</sub>/F<sub>1</sub> peut être compris entre environ 2 et environ 3,5. Le rapport F<sub>2</sub>/F<sub>1</sub> peut aussi être compris entre environ 2,8 et environ 3,5.
- Selon un autre mode de réalisation, le système est tel que longueur L de la chambre de réaction est telle que le volume de la chambre de réaction permet un temps de séjour minimal de l'air et de l'hydrogène, à l'intérieur de la chambre de réaction. Selon un autre mode de réalisation, le temps de séjour est de 0,001 à 1 seconde. Le temps de séjour peut aussi être de 0,01 à 0,1 seconde.
- Selon un autre mode de réalisation, le système est conçu pour maintenir la chambre de réaction à une température moyenne T comprise entre environ 500 °C et environ 1500 °C pendant la combustion.

Selon un autre mode de réalisation, le système est conçu pour maintenir une température T<sub>1</sub> comprise entre environ 600 °C et environ 1500 °C dans une première région de la chambre de réaction où les flux de gaz se mélangent.

Selon un autre mode de réalisation, le système est conçu pour maintenir une température T<sub>2</sub> comprise entre environ 500 °C et environ 1500 °C dans une deuxième région proche d'une sortie de la chambre de réaction. Selon un autre mode de réalisation, la température T<sub>2</sub> est comprise entre environ 500 °C et environ 1200 °C.

Selon un autre mode de réalisation, le système est tel que la paroi de la chambre de réaction comprend un matériau non isolant thermiquement pour permettre le maintien de la température dans la chambre de réaction au moins en partie par dissipation de

la chaleur produite par la combustion vers l'extérieur de la chambre de réaction. Selon un autre mode de réalisation, le matériau non isolant thermiquement est un matériau métallique.

Selon un autre mode de réalisation, le système comprend en outre un dispositif dans lequel circule un fluide caloporteur pour récupérer la chaleur dissipée. Selon un autre mode de réalisation, le fluide caloporteur est un liquide, une huile ou un gaz. Selon un autre mode de réalisation, le fluide caloporteur est de l'eau de qualité requise pour la génération de vapeur surchauffée. Selon un autre mode de réalisation, la vapeur générée est recyclée pour fournir au moins en partie la chaleur requise dans le procédé ou dans un autre procédé ou pour générer de l'électricité. Selon un autre mode de réalisation, la dissipation de chaleur se fait par convection, en présence d'air.

Selon un autre mode de réalisation, le système est tel que la pression dans la chambre de réaction est d'au moins 1 atm. Selon un autre mode de réalisation, la pression dans la chambre de réaction est de 1 atm à environ 10 atm.

Selon un autre mode de réalisation, le système est tel que le premier moyen pour alimenter le flux d'air comprend un tube ayant un diamètre externe et une paroi externe, l'air circulant à travers le tube d'un premier bout vers un second bout.

Selon un autre mode de réalisation, le système est tel que le second bout du tube par lequel le flux d'air entre dans la chambre de réaction est situé au niveau de la première extrémité de la chambre de réaction.

Selon un autre mode de réalisation, le système est tel que le second moyen pour alimenter le flux d'hydrogène comprend un espace délimité par le diamètre externe du tube d'alimentation du flux d'air et s'étendant perpendiculairement à partir de la paroi externe du tube jusqu'à la paroi interne de la chambre de réaction.

Selon un autre mode de réalisation, le système est tel que la chambre de réaction est de forme cylindrique et le second moyen pour alimenter le flux d'hydrogène comprend un espace annulaire délimité par le diamètre externe du tube d'alimentation du flux

5

10

d'air et s'étendant perpendiculairement à partir de la paroi externe du tube jusqu'à la paroi interne de la chambre de réaction.

Selon un autre mode de réalisation, le système est tel que :

le premier moyen pour alimenter le flux d'air comprend un premier tube ayant un diamètre externe et une paroi externe, l'air circulant à travers le premier tube d'un premier bout du premier tube vers un second bout du premier tube, et

le second moyen pour alimenter le flux d'hydrogène comprend un second tube ayant un diamètre interne et une paroi interne, l'hydrogène circulant à travers le second tube d'un premier bout du second tube vers un second bout du second tube.

Selon un autre mode de réalisation, le système est tel que le second bout du premier tube par lequel l'air entre dans la chambre de réaction et le second bout du second tube par lequel l'hydrogène entre dans la chambre de réaction, sont tous les deux situés au niveau de la première extrémité de la chambre de réaction.

Selon un autre mode de réalisation, le système est tel que le flux d'hydrogène est alimenté dans la chambre de réaction par un espace délimité par le diamètre externe du premier tube et s'étendant perpendiculairement à partir de la paroi externe du premier tube jusqu'à la paroi interne du second tube.

Selon un autre mode de réalisation, le système est tel que la chambre de réaction est de forme cylindrique et le flux d'hydrogène est alimenté dans la chambre de réaction par un espace annulaire délimité par le diamètre externe du premier tube et s'étendant perpendiculairement à partir de la paroi externe du premier tube jusqu'à la paroi interne du second tube.

Selon un autre mode de réalisation, le système est tel que l'hydrogène provient d'une réaction d'électrolyse de l'eau.

Selon un autre mode de réalisation, le système comprend en outre un dispositif de séchage du gaz comprenant l'azote (N<sub>2</sub>) et l'hydrogène (H<sub>2</sub>) produit et de récupération

5

15

d'eau. Selon un autre mode de réalisation, le dispositif de séchage et de récupération d'eau comprend un appareil de condensation par refroidissement.

### **BRÈVE DESCRIPTION DES FIGURES**

La Figure 1 représente une vue schématique en coupe selon la verticale d'un réacteur qui peut être utilisé pour réaliser le procédé selon un mode de réalisation.

La Figure 2 représente une vue schématique en coupe selon la verticale d'un réacteur qui peut être utilisé pour réaliser le procédé selon un autre mode de réalisation.

La Figure 3 représente une vue schématique en coupe selon la verticale d'un système comprenant plusieurs réacteurs selon la Figure 1 qui peuvent être utilisés pour réaliser le procédé selon un autre mode de réalisation.

La Figure 4 représente une vue schématique en coupe selon la verticale d'un système comprenant plusieurs réacteurs selon la Figure 2 qui peuvent être utilisés pour réaliser le procédé selon un autre mode de réalisation.

La Figure 5 représente une vue schématique en coupe selon la verticale d'un réacteur qui peut être utilisé pour réaliser le procédé selon encore un autre mode de réalisation.

## **DESCRIPTION DÉTAILLÉE**

Tous les termes et expressions techniques et scientifiques utilisés ici ont la même signification que celle généralement comprise par la personne versée dans l'art de la présente technologie. La définition de certains termes et expressions utilisés est néanmoins fournie ci-dessous.

Le terme « environ » tel qu'utilisé dans le présent document signifie approximativement, dans la région de, et autour de. Lorsque le terme « environ » est utilisé en lien avec une valeur numérique, il la modifie, par exemple, au-dessus et en dessous par une variation de 10% par rapport à la valeur nominale. Ce terme peut

5

10

15

aussi tenir compte, par exemple, de l'erreur expérimentale d'un appareil de mesure ou de l'arrondissement d'une valeur.

Lorsqu'un intervalle de valeurs est mentionné dans la présente demande, les bornes inférieures et supérieures de l'intervalle sont, à moins d'indications contraires, toujours incluses dans la définition. Ainsi, lorsqu'une gamme de valeurs est indiquée sous la forme « compris entre X et Y » ou « compris entre environ X et environ Y », les valeurs X et Y sont incluses dans la définition.

Dans la présente description, le terme « gaz de synthèse » est utilisé pour identifier un mélange gazeux comprenant au moins de l'hydrogène (H<sub>2</sub>) et de l'azote (N<sub>2</sub>). Dans certaines réalisations, le gaz de synthèse peut comprendre de la vapeur d'eau (H<sub>2</sub>O).

Le terme « flux » est utilisé pour décrire les différents flux gazeux qui sont mis en jeu pour effectuer la réaction de production du gaz de synthèse, à l'intérieur de la chambre de réaction. Comme cela va être décrit plus en détail ci-dessous, la réaction implique un flux contenant de l'hydrogène (H<sub>2</sub>) et un flux d'air contenant de l'oxygène (O<sub>2</sub>) et de l'azote (N<sub>2</sub>) qui vont réagir entre eux pour former un gaz de synthèse.

Le présent document présente donc un procédé et un système innovants pour la production d'un gaz comprenant de l'azote (N<sub>2</sub>) et de l'hydrogène (H<sub>2</sub>) dans une chambre de réaction d'un réacteur. Le procédé comprend l'injection d'air et l'injection d'hydrogène dans le réacteur et la combustion d'une partie de l'hydrogène injecté avec l'oxygène de l'air dans la chambre de réaction. La réaction s'effectue en présence d'un excès sur-stœchiométrique molaire d'hydrogène par rapport à l'oxygène de l'air. La combustion dans la chambre de réaction est soutenue par une flamme produite par un flux d'air ayant une vitesse v<sub>1</sub> résultant de l'injection d'air, entouré d'un flux d'hydrogène ayant une vitesse v<sub>2</sub> résultant de l'injection d'hydrogène, avec la vitesse v<sub>2</sub> qui est supérieure à la vitesse v<sub>1</sub>.

La réaction pour former le gaz est donc réalisée en présence d'un excès surstœchiométrique molaire d'hydrogène par rapport à l'oxygène de l'air. Par « excès surstœchiométrique molaire d'hydrogène », on comprendra que la quantité d'hydrogène

5

10

15

20

(H<sub>2</sub>) injecté dans le réacteur doit être suffisante pour d'une part permettre la réaction de combustion avec l'oxygène de l'air selon l'équation (2) en consommant tout l'oxygène injecté, et d'autre part pour permettre qu'une partie de l'hydrogène injecté ne soit pas brûlée et puisse se retrouver dans le gaz de synthèse produit. Ainsi, un excès sur-stœchiométrique molaire d'hydrogène par rapport à l'oxygène implique un rapport molaire H<sub>2</sub> sur O<sub>2</sub> nécessairement supérieur à 2, de préférence d'au moins 5,8. Selon certaines réalisations, le rapport molaire H<sub>2</sub> sur O<sub>2</sub> est d'au plus 16,7.

La combustion de l'hydrogène en présence de l'excès sur-stœchiométrique d'hydrogène est donc réalisée avec une flamme qui est produite par le flux d'air entouré du flux d'hydrogène, dans la chambre de réaction. La combustion peut être initiée à l'aide d'un dispositif d'allumage, comme par exemple un arc électrique, un fil incandescent, une bougie, ou toute autre source d'énergie connue. Dans la chambre de réaction, le flux d'air, et donc la flamme, se retrouve donc dans une sorte d'enveloppe formée du flux d'hydrogène. Cette enveloppe d'hydrogène autour du flux d'air peut être formée grâce à i) la différence de vitesse des flux d'air et d'hydrogène entrant dans la chambre de réaction, la vitesse v<sub>2</sub> du flux d'hydrogène étant supérieure à la vitesse v<sub>1</sub> du flux d'air, et ii) la géométrie de l'entrée des gaz, soit de l'air et de l'hydrogène, dans la chambre de réaction.

Une description plus détaillée de certaines réalisations particulières du procédé et du système dans lequel il peut être implémenté va être maintenant fournie en référant aux figures.

La Figure 1 présente le principe général de fonctionnement d'un réacteur qui peut être utilisé pour produire le gaz de synthèse à base d'hydrogène et d'azote selon certaines réalisations. Le réacteur peut comprendre au moins une chambre de réaction de longueur L munie d'une paroi, d'au moins un premier moyen d'alimentation d'air et au moins un second moyen d'alimentation d'hydrogène. Les premier et second moyens pour alimenter la chambre de réaction avec le flux d'air et le flux d'hydrogène se situent au niveau d'une première extrémité de la chambre, qui, sur la Figure 1, se situe au bas de la chambre de réaction. En outre, les moyens d'alimentation des flux d'hydrogène

5

10

15

20

et d'air sont agencés pour permettre que le flux d'air soit entouré du flux d'hydrogène lors de la combustion, c'est-à-dire pour que le flux d'hydrogène puisse former une enveloppe autour du flux d'air. Ainsi, l'agencement des moyens d'alimentation des flux d'air et d'hydrogène permet d'avoir un flux d'air central avec le flux d'hydrogène qui l'entoure dans la chambre de réaction.

Selon certaines réalisations, le premier moyen pour alimenter le flux d'air peut comprendre un tube ayant un diamètre externe et une paroi externe, l'air circulant à travers le tube d'un premier bout vers un second bout. Selon une réalisation, le second bout du tube par lequel le flux d'air entre dans la chambre de réaction peut être situé environ au niveau de la première extrémité de la chambre de réaction. Selon une autre réalisation, le second bout du tube par lequel le flux d'air entre dans la chambre de réaction peut être situé à l'intérieur du premier tiers de la hauteur de la chambre de réaction en partant de la première extrémité de la chambre. Le second moyen pour alimenter le flux d'hydrogène peut comprendre un espace délimité par le diamètre externe du tube d'alimentation du flux d'air et s'étendant perpendiculairement à partir de la paroi externe du tube jusqu'à la paroi interne de la chambre de réaction.

Selon un autre agencement possible, la chambre de réaction peut être de forme cylindrique et le second moyen pour alimenter le flux d'hydrogène peut comprendre un espace annulaire délimité par le diamètre externe du tube d'alimentation du flux d'air et s'étendant perpendiculairement à partir de la paroi externe du tube jusqu'à la paroi interne de la chambre de réaction.

Selon une réalisation, le réacteur lui-même peut être constitué de deux tubes concentriques formant un agencement tel que représenté plus particulièrement sur la Figure 1. Dans l'agencement de tubes représenté sur la Figure 1, le tube extérieur se trouve à la fois à former la paroi de la chambre de réaction et à délimiter l'espace annulaire par lequel le flux d'hydrogène est alimenté. Le tube intérieur est utilisé pour injecter l'air et l'espace s'étendant entre la paroi externe du tube intérieur jusqu'à la paroi interne du tube extérieur forme l'espace annulaire d'alimentation du flux d'hydrogène.

5

10

15

20

Selon une autre réalisation, le réacteur lui-même peut être constitué de trois tubes formant un agencement tel que représenté plus particulièrement sur la Figure 2. Selon cette réalisation, le réacteur peut comprendre un premier tube pour l'injection d'air, un second tube pour l'injection de H<sub>2</sub>, et enfin, un troisième tube définissant la paroi de la chambre de réaction. Dans l'agencement représenté sur la Figure 2, l'hydrogène est injecté dans l'espace annulaire défini par le diamètre externe du tube d'injection d'air et le diamètre interne du tube d'injection d'hydrogène. Comme montré sur la Figure 2, le tube d'injection d'hydrogène se termine, dans sa partie supérieure, au niveau de l'extrémité inférieure du tube définissant la paroi de la chambre de réaction. Comme le montre également la Figure 2, les extrémités supérieures des tubes d'injection d'air et d'injection d'hydrogène peuvent être substantiellement alignées, les flux d'air et d'hydrogène entrant ainsi au même niveau dans la chambre de réaction.

Selon une réalisation, le système pour produire le gaz de synthèse à base d'azote et d'hydrogène, selon la présente technologie, peut comprendre plusieurs réacteurs en parallèle comme représenté par exemple sur les Figures 3 et 4. Ainsi, le système peut comprendre une enceinte contenant une multitude de réacteurs où chaque réacteur, qui peut être du type de celui représenté la Figure 1 ou du type de celui représenté sur la Figure 2, reçoit un flux d'air et un flux d'hydrogène. L'air d'une part et l'hydrogène d'autre part peuvent être fournis au système au moyen d'une arrivée commune pour chaque gaz. Chacun des gaz est ensuite alimenté dans chaque réacteur. Le gaz de synthèse produit dans chacun des réacteurs peut ensuite être assemblé et évacué du système par une sortie commune.

Selon une autre réalisation, le système pour produire le gaz de synthèse à base d'azote et d'hydrogène, selon la présente technologie, peut comprendre un réacteur comme représenté sur la Figure 5 conçu pour produire plusieurs réactions de combustion de l'hydrogène par l'oxygène de l'air, en présence d'un excès sur-stœchiométrique, à l'intérieur d'une seule chambre de réaction. Ainsi, le réacteur peut être agencé pour recevoir un flux principal d'air et un flux principal d'hydrogène, chacun des flux principaux se séparant en plusieurs flux secondaires. Pour chaque

5

10

15

20

combinaison de flux secondaires d'air et d'hydrogène entrant dans la chambre de réaction, la vitesse v<sub>1</sub> du flux secondaire d'air est inférieure à la vitesse v<sub>2</sub> du flux secondaire d'hydrogène. Ainsi, dans la chambre de réaction, chaque flux secondaire d'air se retrouve dans une sorte d'enveloppe formée du flux secondaire d'hydrogène associé. La flamme produite par chaque combinaison de flux secondaires d'air et d'hydrogène se retrouve aussi enveloppée par le flux secondaire d'hydrogène afférent. Le gaz de synthèse produit pour chaque combinaison de flux secondaires d'air et d'hydrogène peut être récupéré dans un flux de gaz de synthèse global en sortie du réacteur.

Selon une réalisation, un réacteur pour produire le gaz de synthèse est conçu de manière à ce que la température dans la chambre de réaction du réacteur soit maintenue à un certain niveau afin de limiter la production de NOx. Ainsi, selon certaines réalisations, le système est conçu pour maintenir la chambre de réaction à une température moyenne T comprise entre environ 500 °C et environ 1500 °C pendant la combustion. La température moyenne T dans la chambre de réaction pendant la combustion, peut par exemple être maintenue à environ 500 °C, 600 °C, 700 °C, 800 °C, 900 °C, 1000 °C, 1100 °C, 1200 °C, 1300 °C, 1400 °C ou 1500 °C ou peut être n'importe quelle valeur comprise entre ces températures. De plus, il est possible dans certaines réalisations de contrôler la température dans les régions aux extrémités de la chambre de réaction pour y maintenir une certaine température. Par exemple, le système peut être conçu pour maintenir une température T1 dans une région proche de l'entrée de la chambre de réaction où les flux de gaz se mélangent, comprise entre environ 600 °C et environ 1500 °C. La température T<sub>1</sub> peut donc être maintenue à environ 600 °C, 700 °C, 800 °C, 900 °C, 1000 °C, 1100 °C, 1200 °C, 1300 °C, 1400 °C ou 1500 °C ou à n'importe quelle valeur comprise entre ces températures. Dans d'autres réalisations, le système peut être conçu pour maintenir une température T<sub>2</sub> dans une région proche de la sortie de la chambre de réaction comprise entre environ 500 °C et environ 1500 °C. Dans certains cas, la température T2 dans la région proche de la sortie de la chambre de réaction peut être contrôlée pour être comprise entre environ 500 °C et environ 1200 °C. La température T2 peut donc être maintenue

5

10

15

20

25

à environ 500 °C, 600 °C, 700 °C, 800 °C, 900 °C, 1000 °C, 1100 °C, 1200 °C, 1300 °C, 1400 °C ou 1500 °C ou à n'importe quelle valeur comprise entre ces températures. Le contrôle de la température peut être effectué de différentes manières et plus de détails à ce sujet vont être fournis ci-après. Il est aussi à noter que la température de la chambre de la réaction telle que mentionnée ci-dessus peut varier selon l'endroit exact où est prise la mesure de température. De plus, il est à noter que les valeurs de températures mentionnées ci-dessus peuvent être différentes de la température maximale de la réaction elle-même qui peut atteindre des températures au-dessus de 1500 °C. En effet, la température au niveau de la flamme hydrogène-oxygène peut même atteindre des valeurs de plus de 2000 °C.

Selon certaines réalisations, en plus de contrôler et maintenir une certaine température dans la chambre de réaction, il est possible de contrôler la pression pour faciliter la combustion. Selon des réalisations, la pression dans la chambre de réaction est contrôlée pour être d'au moins 1 atm. La pression dans la chambre de réaction peut par exemple varier entre environ 1 atm et 10 atm. Ainsi, la pression peut être de 1 atm, 2 atm, 3 atm, 4 atm, 5 atm, 6 atm, 7 atm, 8 atm, 9 atm, 10 atm ou n'importe quelle pression entre ces valeurs.

Comme mentionné précédemment, le flux d'air et le flux d'hydrogène doivent avoir des vitesses différentes dans la chambre de réaction, avec la vitesse du flux d'hydrogène étant plus grande que celle du flux d'air. Dans certaines réalisations, l'air est injecté dans le réacteur de manière à constituer un flux central à l'intérieur de la chambre de réaction à la vitesse v<sub>1</sub>. Cette vitesse v<sub>1</sub> est calculée à partir du débit volumique d'air alimenté corrigé à la température T<sub>1</sub> et pression dans la chambre de réaction, ce débit étant divisé par la surface perpendiculaire à l'écoulement de la tubulure d'injection d'air. Selon certaines réalisations, la vitesse v<sub>1</sub> peut être d'environ 1 m/s à environ 200 m/s. Par exemple, la vitesse v<sub>1</sub> peut être d'environ 5 m/s à environ 150 m/s ou encore d'environ 10 m/s à environ 100 m/s. Ainsi, la vitesse v<sub>1</sub> du flux d'air central peut être de 1 m/s, 5 m/s, 10 m/s, 20 m/s, 30 m/s, 40 m/s, 50 m/s, 60 m/s, 70 m/s, 80 m/s, 90

5

10

15

20

m/s, 100 m/s, 110 m/s, 120 m/s, 130 m/s, 140 m/s, 150 m/s, 160 m/s, 170 m/s, 180 m/s, 190 m/s, 200 m/s, ou n'importe quelle vitesse entre ces valeurs.

Selon certaines réalisations, la vitesse v<sub>2</sub> peut être d'environ 2 m/s à environ 220 m/s. Par exemple, la vitesse v<sub>2</sub> peut être d'environ 10 m/s à environ 200 m/s ou encore d'environ 15 m/s à environ 175 m/s. Ainsi, la vitesse v<sub>2</sub> du flux d'hydrogène peut être de 2 m/s, 5 m/s, 10 m/s, 20 m/s, 30 m/s, 40 m/s, 50 m/s, 60 m/s, 70 m/s, 80 m/s, 90 m/s, 100 m/s, 110 m/s, 120 m/s, 130 m/s, 140 m/s, 150 m/s, 160 m/s, 170 m/s, 180 m/s, 190 m/s, 200 m/s, 210 m/s, 220 m/s ou n'importe quelle vitesse entre ces valeurs tant qu'elle est supérieure à la vitesse v<sub>1</sub> du flux d'air.

Comme montré sur la Figure 1 et expliqué précédemment, selon une réalisation, l'hydrogène peut être alimenté dans le réacteur dans l'espace formé entre la paroi externe du tube d'alimentation d'air et la paroi interne du réacteur, cet espace étant par exemple annulaire lorsque la paroi du réacteur est cylindrique. Ainsi, l'hydrogène qui est injecté dans la chambre de réaction constitue un flux d'hydrogène dont la vitesse v2 doit être supérieure à celle du flux d'air (v1). La vitesse v2 du flux d'hydrogène entrant dans la chambre de réaction est calculée à partir du débit volumique d'hydrogène injecté corrigé à la température T1 et pression dans le réacteur, ce débit étant divisé par la surface perpendiculaire à l'écoulement de l'espace où circule l'hydrogène injecté, cet espace étant préférentiellement annulaire comme expliqué cidessus.

Comme montré sur la Figure 2 et expliqué précédemment, selon une autre réalisation, l'hydrogène est alimenté dans le réacteur par injection dans l'espace formé entre la paroi externe du tube d'alimentation d'air et la paroi interne du tube d'alimentation d'hydrogène, cet espace étant par exemple annulaire lorsque la paroi du tube d'injection d'hydrogène est de forme cylindrique. Ainsi, l'hydrogène qui est injecté dans la chambre de réaction constitue un flux d'hydrogène dont la vitesse v<sub>2</sub> doit être supérieure à celle du flux d'air (v<sub>1</sub>). La vitesse v<sub>2</sub> du flux d'hydrogène entrant dans la chambre de réaction est calculée à partir du débit volumique d'hydrogène injecté corrigé à la température T<sub>1</sub> et pression dans le réacteur, ce débit étant divisé par la

5

10

15

20

surface perpendiculaire à l'écoulement de l'espace où circule l'hydrogène injecté, cet espace étant préférentiellement annulaire comme expliqué ci-dessus.

L'air et l'hydrogène sont alimentés dans le réacteur avec certains débits molaires pour soutenir la réaction de combustion entre l'hydrogène et l'oxygène de l'air, tout en ayant un excès sur-stœchiométrique d'hydrogène. Selon certaines réalisations, l'air est alimenté dans le réacteur avec un débit molaire F<sub>1</sub> et l'hydrogène est alimenté avec un débit molaire F<sub>2</sub> et le rapport F<sub>2</sub>/F<sub>1</sub> est compris entre environ 1,2 et environ 3,5. Selon une autre réalisation, le rapport entre les débits molaires d'hydrogène et d'air F<sub>2</sub>/F<sub>1</sub> peut être compris entre environ 2 et environ 3 ou peut être compris entre environ 2,8 et environ 3,5. Le rapport F<sub>2</sub>/F<sub>1</sub> peut donc être d'environ 1,2 ou 1,5 ou 2 ou 2,5 ou 3 ou 3,5 ou n'importe quel rapport entre ces valeurs. Selon certaines réalisations, le rapport F<sub>2</sub>/F<sub>1</sub> peut être d'environ 3 et plus particulièrement d'environ 2,8 ce qui correspond au rapport molaire théorique pour produire un gaz de synthèse contenant les proportions de H<sub>2</sub> et N<sub>2</sub> requises pour fabriquer de l'ammoniac selon la réaction (2), tout en permettant la transformation complète, en H<sub>2</sub>O, de l'oxygène contenu dans l'air injecté.

Comme indiqué précédemment, la chambre de réaction du réacteur dans laquelle le gaz de synthèse est produit peut avoir une longueur L correspondant substantiellement à une distance entre une région où le flux d'hydrogène et le flux d'air se mélangent dans la chambre de réaction (e.g., à l'extrémité inférieure de la chambre) et une région proche de la sortie de la chambre de réaction à l'autre extrémité de la chambre de réaction (e.g., à l'extrémité supérieure de la chambre). La longueur L de la chambre de réaction peut être telle que le volume de la chambre de réaction permet un temps de séjour minimal de l'air et de l'hydrogène, à l'intérieur de la chambre de réaction.

Selon un mode de réalisation, la longueur L est telle que le temps de séjour t des gaz dans la chambre de réaction est de 0,001 à 1 seconde. Selon un autre mode de réalisation, le temps de séjour est de 0,01 à 0,1 seconde.

5

10

15

20

Le temps de séjour est défini comme suit :

(3) 
$$t = V/((Q_2+Q_1) * (T+273)/298/P) * K$$

où V est le volume de la chambre de réaction, Q<sub>2</sub> est le débit volumique standard (25 °C et 1 atm) du H<sub>2</sub> alimenté, Q<sub>1</sub> est le débit volumique standard (25 °C et 1 atm) de l'air alimenté, T est la température moyenne (°C) dans la chambre de réaction et enfin, P est la pression (atm) à l'intérieur du réacteur. Enfin, K est une constante d'unités. Pour chacun des flux d'air et d'hydrogène, le lien entre le débit molaire et le débit volumique standard est défini, respectivement pour l'air et l'hydrogène, par les équations suivantes :

5

15

20

25

et (5) 
$$Q_2=F_2*R*(T+273)/P$$

où R est la constante des gaz.

Ainsi, le temps de séjour t dans la chambre de réaction peut être de 0,001 à 1 seconde. Selon une autre réalisation, le temps de séjour t peut être de 0,01 à 0,1 seconde. Le temps de séjour t peut donc être de 0,001 ou 0,002 ou 0,005 ou 0,01 ou 0,015 ou 0,02 ou 0,03 ou 0,04 ou 0,05 ou 0,06 ou 0,07 ou 0,08 ou 0,09 ou 0,1 ou 0,2 ou 0,3 ou 0,4 ou 0,5 ou 0,6 ou 0,7 ou 0,8 ou 0,9 ou 1 seconde, ou n'importe quel temps compris entre ces valeurs.

Selon certaines réalisations, sans toutefois se limiter à ces valeurs, la longueur L de la chambre de réaction peut être comprise entre 0,10 m et 3 m environ. La longueur L peut être déterminée pour atteindre une capacité du système à maintenir une efficacité de conversion désirée.

Comme mentionné ci-dessus, la température dans la chambre de réaction peut être maintenue à une certaine valeur entre une température minimum et une température maximum pendant la combustion et la production du gaz de synthèse. En maintenant une certaine température dans la chambre de réaction, il est ainsi possible de limiter

la production de NOx. Une façon de contrôler la température pour qu'elle reste à une certaine valeur est de réaliser la combustion dans une chambre de réaction dont la paroi est faite d'un matériau non isolant thermiquement. Ainsi, la chaleur dégagée par la combustion de l'hydrogène par l'oxygène de l'air dans la chambre de réaction peut, au moins en partie, être dissipée à travers le matériau non isolant de la paroi vers l'extérieur de la chambre de réaction (voir la Figure 1). Un tel matériau non isolant thermiquement peut être par exemple un matériau métallique tel qu'un alliage de métaux. Le matériau est aussi de préférence résistant à la corrosion. Un métal de type Inconel® ou autre matériau équivalent peut par exemple être utilisé pour former la paroi de la chambre de réaction.

Selon certaines réalisations, la chaleur dégagée par la combustion à travers la paroi de la chambre de réaction peut être dissipée par convection, en présence d'air. Ainsi, il est possible de faire circuler de l'air autour du réacteur en continu pendant la combustion pour maintenir une certaine température dans la chambre de réaction. Selon d'autres réalisations, la chaleur qui est dissipée à travers la paroi de la chambre de réaction peut être récupérée par un dispositif dans lequel circule un fluide caloporteur. Un dispositif d'échange de chaleur dans lequel le fluide caloporteur est un liquide, une huile ou un gaz peut être utilisé. Un tel dispositif peut par exemple comprendre une jaquette entourant le réacteur, dans laquelle circule le fluide caloporteur. Dans une réalisation, la chaleur dissipée à travers la paroi de la chambre de réaction peut servir à chauffer de l'eau circulant dans un dispositif entourant la chambre de manière à générer de la vapeur d'eau. La récupération de la chaleur dégagée par le réacteur peut être particulièrement intéressante pour générer de la vapeur d'eau surchauffée avec l'eau de qualité appropriée circulant dans le dispositif d'échange de chaleur. En outre, dans certaines réalisations, la vapeur d'eau ainsi générée peut être recyclée pour fournir au moins en partie la chaleur requise dans le procédé, dans un autre procédé ou pour générer de l'électricité. Par exemple, la vapeur surchauffée produite peut servir à alimenter une turbine à vapeur servant à la production d'électricité.

5

10

15

20

Le gaz de synthèse produit par le système décrit précédemment et qui sort du réacteur comprend donc de l'azote (N<sub>2</sub>) et l'hydrogène (H<sub>2</sub>), et aussi une certaine teneur en vapeur d'eau. Le gaz en sortie de réacteur est donc un gaz brut humide que l'on peut ensuite sécher pour récupérer un gaz sec. Le gaz brut peut être séché par des moyens connus de séparation de vapeur d'eau. Dans certaines réalisations, le dispositif de séchage du gaz brut et de récupération d'eau peut comprendre un appareil de condensation par refroidissement. Il est aussi possible, au besoin, d'utiliser d'autres moyens de séparation de vapeur d'eau tel que par exemple un milieu asséchant par adsorption. L'eau qui est récupérée lors du séchage du gaz de synthèse brut peut ensuite être réutilisée dans le procédé, comme cela va être expliqué ci-dessous, par exemple pour produire l'hydrogène qui va être alimenté dans le réacteur.

Dans un contexte de développement durable, il est proposé que l'hydrogène utilisé pour la production du gaz de synthèse soit produit par un système d'électrolyse de l'eau avec une alimentation électrique de source renouvelable (hydraulique, éolien, ou solaire). Dans une réalisation particulière, le système d'électrolyse de l'eau peut utiliser de l'électricité produite, au moins en partie, à partir de la vapeur d'eau surchauffée obtenue par récupération de la chaleur dégagée par le réacteur comme mentionné cidessus. En outre, l'eau utilisée pour l'obtention d'hydrogène par électrolyse d'eau peut provenir, au moins en partie, de l'eau récupérée lors du séchage du gaz de synthèse en sortie du réacteur, comme détaillé plus haut. Alternativement, l'eau récupérée lors du séchage du gaz de synthèse peut être utilisée, au moins en partie, comme fluide caloporteur dans le dispositif de récupération de la chaleur dégagée par le réacteur comme expliqué auparavant.

Le gaz de synthèse obtenu par la présente technologie, qui comprend de l'azote et de l'hydrogène, peut être utilisé dans différents procédés industriels pour lesquels sont requis ces deux gaz. Même si un tel procédé industriel comprend préférentiellement la production d'ammoniac, d'autres procédés industriels utilisant des mélanges H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> avec des rapports molaires différents de celui requis pour la synthèse de l'ammoniac peuvent aussi utiliser le gaz de synthèse produit par la présente technologie.

5

10

15

20

Pour l'obtention d'un gaz de synthèse destiné à être utilisé dans la production d'ammoniac, le rapport entre le débit molaire d'hydrogène injecté et le débit molaire d'air injecté peut être de préférence entre 2,8 et 3,5, plus particulièrement autour de 3, plus particulièrement d'environ 2,8. En utilisant un rapport entre le débit molaire d'hydrogène injecté et le débit molaire d'air injecté de 2,8, on s'attend donc à obtenir

en utilisant la présente technologie, un gaz de synthèse avec la composition molaire

suivante à la sortie du réacteur :

• N<sub>2</sub>: 22,0%

• H<sub>2</sub>: 66,3 %

• H<sub>2</sub>O : 11,7%

10

15

20

25

NOx : trace.

Il est à noter que même s'il est préférable d'alimenter le réacteur en utilisant un rapport molaire H<sub>2</sub>/air pouvant se situer entre 2,8 et 3,5, pour produire un gaz de synthèse utilisable directement pour la fabrication d'ammoniac, il est aussi tout à fait possible d'utiliser un rapport H<sub>2</sub>/air qui soit inférieur à 2,8 tant que l'hydrogène est injecté en excès sur-stœchiométrique par rapport l'oxygène de l'air. Ainsi, on obtiendra un gaz de synthèse avec un rapport molaire H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> inférieur au rapport molaire H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> requis

pour une synthèse directe d'ammoniac, mais il suffira d'ajouter la quantité nécessaire

d'hydrogène (e.g., hydrogène électrolytique) pour ajuster le rapport H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>.

La technologie décrite dans le présent document présente plusieurs avantages. Elle offre un procédé simple à mettre en œuvre et relativement peu coûteux pour produire

des gaz de synthèse à base d'hydrogène et d'azote, notamment un gaz de synthèse

pouvant être utilisé pour synthétiser de l'ammoniac. La production de gaz de synthèse

selon la présente technologie est donc propice à un procédé de production

d'ammoniac « vert », c'est-à-dire une production d'ammoniac avec un cycle de vie

sans - ou pratiquement sans - émission de gaz à effet de serre (GES).

#### **EXEMPLE**

5

15

Un réacteur de petite taille a été fabriqué de manière à définir un agencement tel que montré par la Figure 2. Ce réacteur a été construit à partir de tubes en Inconel 600™. Pour chacun des tubes, on a les dimensions suivantes :

• Tube injection d'air: D.E. = 6,39 mm, D.I. = 4,12 mm

• Tube d'injection de H<sub>2</sub>: D.E. = 12,7 mm, D.I. = 8,75 mm

• Tube externe : D.E. = 19,05 mm, D.I. = 13,71 mm

avec D.I. = diamètre interne et D.E. = diamètre externe.

Le tube externe définit la paroi de la chambre de réaction du réacteur, avec une longueur L = 347 mm. En se basant sur le diamètre intérieur du tube externe et sur cette longueur L, cela donne un volume interne V égal à 51,29 cm<sup>3</sup>.

Un premier thermocouple, localisé à une distance verticale de 32,37 mm par rapport à la buse, permet de mesurer un niveau de température de proximité, soit T<sub>1</sub>. Un deuxième thermocouple, localisé près de la sortie du réacteur, soit à une distance verticale de près de 340 mm par rapport à la buse, permet de mesurer le niveau de température T<sub>2</sub>. La teneur en NO est mesurée directement et de façon continue, à l'aide d'un appareil d'analyse dédié à cette fin. La partie du gaz sortant du réacteur et qui se trouve à circuler à l'intérieur de l'analyseur se trouve à être à une température de près de 28 °C. Le NO est considéré comme représentatif des oxydes d'azote.

Une série d'essais a été réalisée en faisant varier les débits d'air et de H<sub>2</sub> (respectivement Q<sub>1</sub> et Q<sub>2</sub>). Le tableau ci-dessous présente les principaux résultats obtenus pour 9 essais. Pour ces essais, on fait varier les débits Q<sub>1</sub> et Q<sub>2</sub>, mais en maintenant un rapport Q<sub>2</sub>/Q<sub>1</sub> toujours égal à 3,50. Cela permet d'obtenir un gaz de synthèse à base de N<sub>2</sub> et H<sub>2</sub> pour le lequel le rapport molaire H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> est égal à 3,90.

La vitesse du flux d'air v<sub>1</sub> est calculée à partir de la surface perpendiculaire définie par le diamètre interne du tube d'injection d'air et à partir du débit volumique d'air corrigé

à une température  $T_1$  et à la pression dans la chambre de réaction. La vitesse du flux de  $H_2$  ( $v_2$ ) est calculée à partir de la surface de l'espace annulaire délimité par le diamètre interne du tube d'injection d'hydrogène et le diamètre externe du tube d'injection d'air, et à partir du débit volumique de  $H_2$  corrigé à une température  $T_1$  et à la pression dans la chambre de réaction.

Le temps de séjour t dans le réacteur est calculé à partir du volume de la chambre de réaction divisé par la somme des débits volumiques  $Q_1+Q_2$  (lesquels sont des débits standards à 25 °C (298 K) et 1 atm), en considérant une température moyenne ( $T_1+T_2$ ) / 2 et considérant le niveau de pression P dans le réacteur (1 atm), selon l'équation suivante :

 $t = V / ((Q_1+Q_2)*1000/60*((T_1+T_2)/2+273)/298/P$ 

$Q_2$	Q <sub>1</sub>	<b>T</b> 1	T <sub>2</sub>	T <sub>moy</sub>	NO	<b>V</b> 2	<b>V</b> 1	t
(sL/min)	(sL/min)	(°C)	(°C)	(°C)	(ppm)	(m/s)	(m/s)	(s)
10	2,86	875	85	480	10,79	22,9	13,8	0,0947
11	3,14	917	100	509	9,78	26,1	15,7	0,0830
12	3,42	956	117	537	9,96	29,4	17,6	0,0735
13	3,71	992	135	564	9,02	32,8	19,7	0,0656
14	4	1035	151	593	11,21	36,5	21,9	0,0588
15	4,29	1076	169	623	10,69	40,3	24,3	0,0531
16	4,57	1109	185	647	10,75	44,1	26,5	0,0485
17	4,86	1135	201	668	11,3	47,7	28,7	0,0446
18	5,14	1158	217	688	11,34	51,3	30,9	0,0413

Tel que montré par le tableau, la teneur en NO du gaz obtenu dans chacun des essais ne varie pas significativement. Une analyse statistique donne une valeur moyenne de 10,54 ppm avec un intervalle de confiance de +/- 0,61 ppm (basé sur le facteur de Student pour une probabilité de à 95 %). Le fait d'augmenter le débit des intrants (Q<sub>1</sub> et Q<sub>2</sub>) fait en sorte que le temps de séjour varie de 0,095 à 0,041 seconde, mais cela n'a pas d'effet significatif sur la teneur en NO du gaz sortant.

15

5

Bien que certaines réalisations de la technologie ont été décrites ci-dessus, la technologie n'est pas limitée à ces seules réalisations. Plusieurs modifications pourraient être effectuées à l'un ou l'autre des modes de réalisations décrits ci-dessus, et ce, sans sortir du cadre de la présente technologie.

#### **REVENDICATIONS**

1- Procédé pour produire un gaz comprenant de l'azote (N<sub>2</sub>) et de l'hydrogène (H<sub>2</sub>) dans une chambre de réaction de longueur L d'un réacteur, comprenant l'injection d'air et l'injection d'hydrogène dans le réacteur et la combustion d'une partie de l'hydrogène injecté avec l'oxygène de l'air dans la chambre de réaction en présence d'un excès sur-stœchiométrique molaire d'hydrogène par rapport à l'oxygène de l'air, dans lequel :

la combustion est soutenue par une flamme produite par un flux d'air ayant une vitesse v<sub>1</sub> résultant de l'injection d'air, entouré d'un flux d'hydrogène ayant une vitesse v<sub>2</sub> résultant de l'injection d'hydrogène, avec la vitesse v<sub>2</sub> qui est supérieure à v<sub>1</sub>.

- 2- Le procédé selon la revendication 1, dans lequel la vitesse v<sub>1</sub> est d'environ 1 m/s à environ 200 m/s.
- 3- Le procédé selon la revendication 1 ou 2, dans lequel la vitesse v<sub>1</sub> est d'environ 5 m/s à environ 150 m/s.
- 4- Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 3, dans lequel la vitesse v<sub>1</sub> est d'environ 10 m/s à environ 100 m/s.
  - 5- Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 4, dans lequel la vitesse v<sub>2</sub> est d'environ 2 m/s à environ 220 m/s.
- 6- Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, dans lequel la vitesse v<sub>2</sub> est d'environ 10 m/s à environ 200 m/s.
  - 7- Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 6, dans lequel la vitesse v<sub>2</sub> est d'environ 15 m/s à environ 175 m/s.
  - 8- Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 7, dans lequel l'air est injecté avec un débit molaire F<sub>1</sub>, l'hydrogène est injecté avec un débit molaire F<sub>2</sub>, et le rapport F<sub>1</sub>/F<sub>2</sub> est compris entre environ 1,2 et environ 3,5.

25

- 9- Le procédé selon la revendication 8, dans lequel le rapport F<sub>2</sub>/F<sub>1</sub> est compris entre environ 2 et environ 3,5.
- 10- Le procédé selon la revendication 8, dans lequel le rapport F<sub>2</sub>/F<sub>1</sub> est compris entre environ 2,8 et 3,5.
- 11- Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 10, dans lequel la longueur L de la chambre de réaction est telle que le volume de la chambre de réaction permet un temps de séjour minimal de l'air et de l'hydrogène, à l'intérieur de la chambre de réaction.
- 12- Le procédé selon la revendication 11, dans lequel le temps de séjour est de 0,001
  à 1 seconde.
  - 13- Le procédé selon les revendications 11 ou 12, dans lequel le temps de séjour est de 0,01 à 0,1 seconde.
  - 14- Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 13, dans lequel la chambre de réaction est maintenue à une température moyenne T comprise entre environ 500 °C et environ 1500 °C pendant la combustion.
  - 15- Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 14, dans lequel la chambre de réaction est maintenue à une température T<sub>1</sub> dans une première région où les flux d'air et d'hydrogène se mélangent dans la chambre de réaction, avec T<sub>1</sub> comprise entre environ 600 °C et environ 1500 °C.
- 20 16- Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 15, dans lequel la chambre de réaction est maintenue à une température T<sub>2</sub> dans une deuxième région proche d'une sortie de la chambre de réaction, avec T<sub>2</sub> comprise entre environ 500 °C et environ 1500 °C.
- 17- Le procédé selon la revendication 16, dans lequel la température T<sub>2</sub> est comprise 25 entre environ 500 °C et environ 1200 °C.

- 18- Le procédé selon l'une quelconque des revendications 14 à 17, dans lequel la température est maintenue dans la chambre de réaction au moins en partie par dissipation de la chaleur produite par la flamme vers l'extérieur la chambre de réaction.
- 19- Le procédé selon l'une quelconque des revendications 14 à 18, dans lequel la
   température est maintenue dans la chambre de réaction au moins en partie par récupération de la chaleur produite par la flamme, par un fluide caloporteur.
  - 20- Le procédé selon la revendication 19, dans lequel le fluide caloporteur est un liquide, une huile ou un gaz.
- 21- Le procédé selon la revendication 19, dans lequel le fluide caloporteur est de
  l'eau de qualité requise pour la génération de vapeur surchauffée.
  - 22- Le procédé selon la revendication 21, dans lequel la vapeur générée est recyclée pour fournir au moins en partie la chaleur requise dans le procédé ou dans un autre procédé ou pour générer de l'électricité.
- 23- Le procédé selon la revendication 18, dans lequel la dissipation de chaleur se fait
  par convection, en présence d'air.
  - 24- Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 23, dans lequel la pression dans la chambre de réaction est d'au moins 1 atm.
  - 25- Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 24, dans lequel la pression dans la chambre de réaction est de 1 atm à environ 10 atm.
- 26 Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 25, dans lequel l'hydrogène provient d'une réaction d'électrolyse de l'eau.
  - 27- Le procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 26, comprenant en outre un séchage du gaz comprenant l'azote (N<sub>2</sub>) et l'hydrogène (H<sub>2</sub>) produit, et récupération d'eau.

- 28- Le procédé selon la revendication 27, dans lequel le séchage comprend une condensation par refroidissement.
- 29- Utilisation d'un gaz comprenant de l'azote (N<sub>2</sub>) et l'hydrogène (H<sub>2</sub>) produit par le procédé tel que défini selon l'une quelconque des revendications 1 à 28, pour la synthèse d'ammoniac.
- 30- Un système comprenant au moins un réacteur pour produire un gaz comprenant de l'azote (N<sub>2</sub>) et l'hydrogène (H<sub>2</sub>), dans lequel ledit réacteur comprend:

une chambre de réaction comprenant une paroi et une première extrémité et une deuxième extrémité séparées par une distance L, dans laquelle le gaz est produit par combustion d'une partie de l'hydrogène injecté avec l'oxygène de l'air en présence d'un excès sur-stœchiométrique molaire d'hydrogène par rapport à l'oxygène de l'air;

au moins un premier moyen pour alimenter la chambre de réaction avec un flux d'air à une vitesse v<sub>1</sub> au niveau de la première extrémité de la chambre;

au moins un second moyen pour alimenter la chambre de réaction avec un flux d'hydrogène à une vitesse  $v_2$  au niveau de la première extrémité de la chambre, la vitesse  $v_2$  étant supérieure à  $v_1$ ;

le premier moyen alimentant le flux d'air et le deuxième moyen alimentant le flux d'hydrogène sont agencés pour que le flux d'air soit entouré du flux d'hydrogène lors de la combustion.

- 20 31- Le système selon la revendication 30, dans lequel la vitesse v<sub>1</sub> est d'environ 1 m/s à environ 200 m/s.
  - 32- Le système selon la revendication 30 ou 31, dans lequel la vitesse v<sub>1</sub> est d'environ 5 m/s à environ 150 m/s.
- 33- Le système selon l'une quelconque des revendications 30 à 32, dans lequel la vitesse v<sub>1</sub> est d'environ 20 m/s à environ 100 m/s.
  - 34- Le système selon l'une quelconque des revendications 30 à 33, dans lequel la vitesse  $v_2$  est d'environ 2 m/s à environ 220 m/s.

5

10

- 35- Le système selon l'une quelconque des revendications 30 à 34, dans lequel la vitesse v<sub>2</sub> est d'environ 10 m/s à environ 200 m/s.
- 36- Le système selon l'une quelconque des revendications 30 à 35, dans lequel la vitesse v<sub>2</sub> est d'environ 30 m/s à environ 175 m/s.
- 5 37- Le système selon l'une quelconque des revendications 30 à 36, dans lequel l'air est alimenté avec un débit molaire F<sub>1</sub>, l'hydrogène est alimenté avec un débit molaire F<sub>2</sub> et le rapport F<sub>2</sub>/F<sub>1</sub> est compris entre environ 1,2 et environ 3,5.
  - 38- Le système selon la revendication 37, dans lequel le rapport F<sub>2</sub>/F<sub>1</sub> est compris entre environ 2 et environ 3,5.
- 39- Le système selon la revendication 37 ou 38, dans lequel le rapport F<sub>2</sub>/F<sub>1</sub> est compris entre environ 2,8 et environ 3,5.
  - 40- Le système selon l'une quelconque des revendications 30 à 39, dans lequel la longueur L de la chambre de réaction est telle que le volume de la chambre de réaction permet un temps de séjour minimal de l'air et de l'hydrogène, à l'intérieur de la chambre de réaction.
  - 41- Le système selon la revendication 40, dans lequel le temps de séjour est de 0,001 à 1 seconde.
  - 42- Le système selon la revendication 40 ou 41, dans lequel le temps de séjour est de 0,01 à 0,1 seconde.
- 43- Le système selon l'une quelconque des revendications 30 à 42, dans lequel le système est conçu pour maintenir la chambre de réaction à une température moyenne T comprise entre environ 500 °C et environ 1500 °C pendant la combustion.
  - 44- Le système selon l'une quelconque des revendications 30 à 43, dans lequel le système est conçu pour maintenir une température T<sub>1</sub> comprise entre environ 600 °C

et environ 1500 °C dans une première région de la chambre de réaction où les flux de gaz se mélangent.

- 45- Le système selon l'une quelconque des revendications 30 à 44, dans lequel le système est conçu pour maintenir une température T<sub>2</sub> comprise entre environ 500 °C et environ 1500 °C dans une deuxième région proche d'une sortie de la chambre de réaction.
- 46- Le système selon la revendication 45, dans lequel la température T<sub>2</sub> est comprise entre environ 500 °C et environ 1200 °C.
- 47- Le système selon l'une quelconque des revendications 43 à 46, dans lequel la paroi de la chambre de réaction comprend un matériau non isolant thermiquement pour permettre le maintien de la température dans la chambre de réaction au moins en partie par dissipation de la chaleur produite par la combustion vers l'extérieur de la chambre de réaction.
- 48- Le système selon la revendication 47, dans lequel le matériau non isolant thermiquement est un matériau métallique.
  - 49- Le système selon la revendication 47 ou 48, comprenant en outre un dispositif dans lequel circule un fluide caloporteur pour récupérer la chaleur dissipée.
  - 50- Le système selon la revendication 49, dans lequel le fluide caloporteur est un liquide, une huile ou un gaz.
- 51- Le système selon la revendication 49, dans lequel le fluide caloporteur est de l'eau de qualité requise pour la génération de vapeur surchauffée.
  - 52- Le système selon la revendication 51, dans lequel la vapeur générée est recyclée pour fournir au moins en partie la chaleur requise dans le procédé ou dans un autre procédé ou pour générer de l'électricité.

- 53- Le système selon la revendication 47, dans lequel la dissipation de chaleur se fait par convection, en présence d'air.
- 54- Le système selon l'une quelconque des revendications 30 à 53, dans lequel la pression dans la chambre de réaction est d'au moins 1 atm.
- 5 55- Le système selon l'une quelconque des revendications 30 à 54, dans lequel la pression dans la chambre de réaction est de 1 atm à environ 10 atm.
  - 56- Le système selon l'une quelconque des revendications 30 à 55, dans lequel le premier moyen pour alimenter le flux d'air comprend un tube ayant un diamètre externe et une paroi externe, l'air circulant à travers le tube d'un premier bout vers un second bout.
- 57- Le système selon la revendication 56, dans lequel le second bout du tube par lequel le flux d'air entre dans la chambre de réaction est situé au niveau de la première extrémité de la chambre de réaction.
  - 58- Le système selon la revendication 56 ou 57, dans lequel le second moyen pour alimenter le flux d'hydrogène comprend un espace délimité par le diamètre externe du tube d'alimentation du flux d'air et s'étendant perpendiculairement à partir de la paroi externe du tube jusqu'à la paroi interne de la chambre de réaction.
  - 59- Le système selon la revendication 56 ou 57, dans lequel la chambre de réaction est de forme cylindrique et le second moyen pour alimenter le flux d'hydrogène comprend un espace annulaire délimité par le diamètre externe du tube d'alimentation du flux d'air et s'étendant perpendiculairement à partir de la paroi externe du tube jusqu'à la paroi interne de la chambre de réaction.
  - 60- Le système selon l'une quelconque des revendications 30 à 55, dans lequel :

le premier moyen pour alimenter le flux d'air comprend un premier tube ayant un diamètre externe et une paroi externe, l'air circulant à travers le premier tube d'un premier bout du premier tube vers un second bout du premier tube, et

15

20

le second moyen pour alimenter le flux d'hydrogène comprend un second tube ayant un diamètre interne et une paroi interne, l'hydrogène circulant à travers le second tube d'un premier bout du second tube vers un second bout du second tube.

- 61- Le système selon la revendication 60, dans lequel le second bout du premier tube par lequel l'air entre dans la chambre de réaction et le second bout du second tube par lequel l'hydrogène entre dans la chambre de réaction, sont tous les deux situés au niveau de la première extrémité de la chambre de réaction.
- 62- Le système selon la revendication 60 ou 61, dans lequel le flux d'hydrogène est alimenté dans la chambre de réaction par un espace délimité par le diamètre externe du premier tube et s'étendant perpendiculairement à partir de la paroi externe du premier tube jusqu'à la paroi interne du second tube.
- 63- Le système selon la revendication 60 ou 61, dans lequel la chambre de réaction est de forme cylindrique et le flux d'hydrogène est alimenté dans la chambre de réaction par un espace annulaire délimité par le diamètre externe du premier tube et s'étendant perpendiculairement à partir de la paroi externe du premier tube jusqu'à la paroi interne du second tube.
- 64- Le système selon l'une quelconque des revendications 30 à 63, dans lequel l'hydrogène provient d'une réaction d'électrolyse de l'eau.
- 65- Le système selon l'une quelconque des revendications 30 à 64, comprenant en outre un dispositif de séchage du gaz comprenant l'azote (N<sub>2</sub>) et l'hydrogène (H<sub>2</sub>) produit et de récupération d'eau.
  - 66- Le système selon la revendication 65, dans lequel le dispositif de séchage et de récupération d'eau comprend un appareil de condensation par refroidissement.

5

10

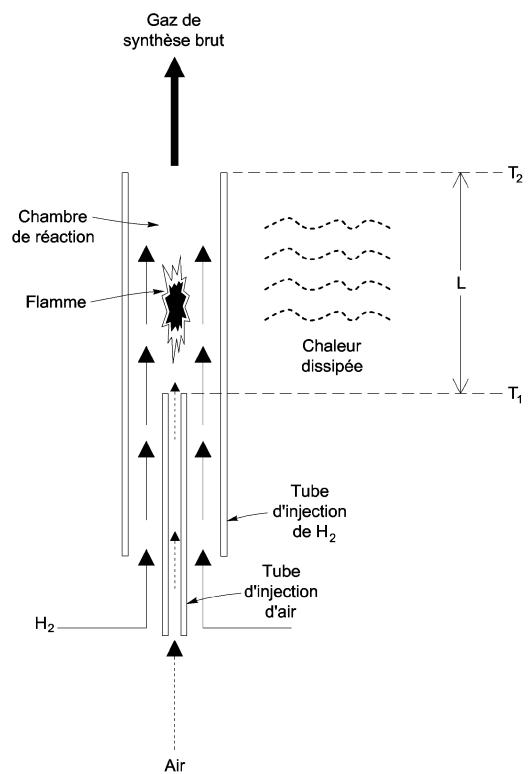


FIG. 1

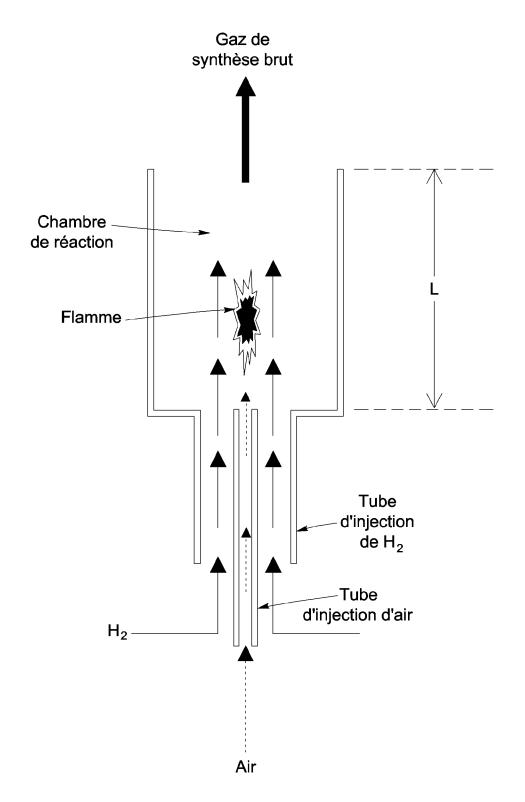


FIG. 2

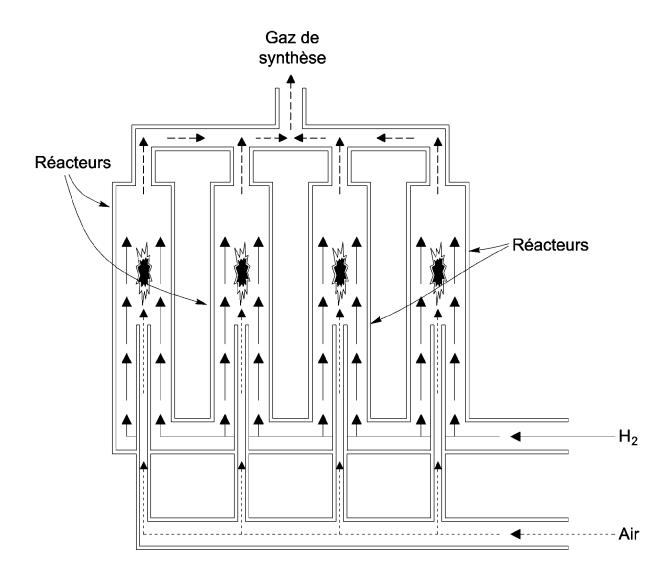


FIG. 3

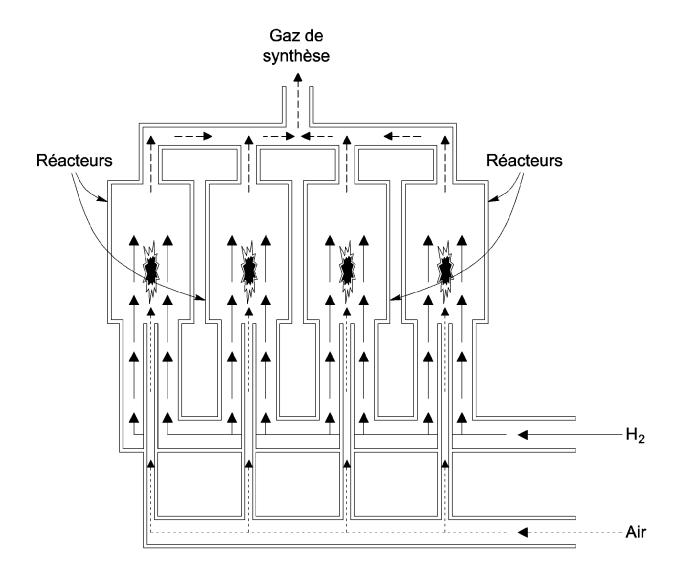


FIG. 4

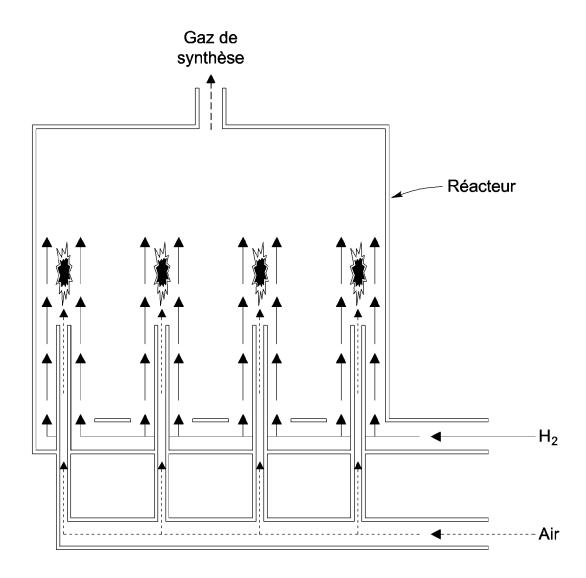


FIG. 5

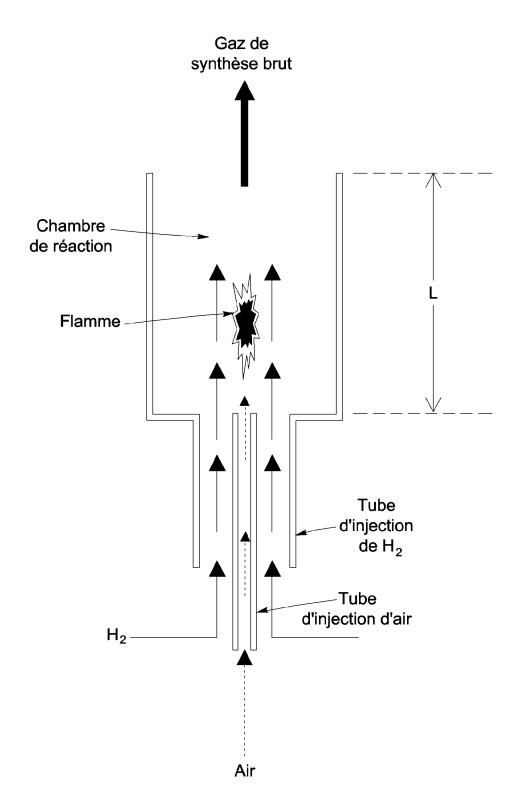


FIG. 2