11) Numéro de publication:

0 171 330 A1

(12)

DEMANDE DE BREVET EUROPEEN

(2) Numéro de dépôt: 85401559.1

(a) Int. Cl.4: C 10 G 11/18, B 01 J 8/26

22 Date de dépôt: 31.07.85

30 Priorité: 02.08.84 FR 8412388

① Demandeur: INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE, 4,
Avenue de Bois-Préau, F-92506 Rueil-Malmaison Cédex
(FR)

Date de publication de la demande: 12.02.86
 Bulletin 86/7

84 Etats contractants désignés: BE DE GB IT NL

Inventeur: Gaitier, Pierre, 15, rue de Charavel Aliee B, F-38200 Vienne-Estressin (FR) Inventeur: Busson, Christian, 11, Chemin du Cogny, F-69570 Dardilly (FR)

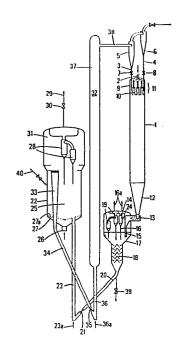
Marcia Procédé et appareil pour craquage catalytique en lit fluide.

(b) L'invention concerne un procédé de craquage en lit fluide de catalyseur d'une charge hydrocarbonée et de régénération du catalyseur.

Des particules chaudes sont mises en contact, en haut de la zone de réaction (1) de craquage, avec la charge liquide à traiter pulvérisée et provoquent ainsi

a) la vaporisation de la charge dans des conduites (10), et

b) un mélange intime charge-particules de catalyseur. Les particules catalytiques sont ensuite soutirées dans la partie inférieure du réacteur (1), séparées de l'effluent réactionnel, nettoyées dans le réacteur (17) (stripping) et soumises successivement à deux étapes de régénération dans respectivement les zones (22) et (37), la zone (37) étant un réacteur tubulaire où les particules catalytiques cheminent de bas en haut entraînées par un gaz vecteur.



1

L'invention se rapporte à un nouveau procédé (a) de craquage catalytique permettant plus spécialement le traitement d'huiles hydrocarbonées lourdes et (b) de régénération du catalyseur, ainsi qu'à l'appareillage permettant la mise en oeuvre de ce procédé.

5

L'évolution de la nature des approvisionnements en pétroles bruts, ainsi que la diminution de la demande en produits raffinés en fueloils en faveur de produits plus légers du type essence, ont conduit l'industrie pétrolière du raffinage à développer divers procédés permettant de valoriser des huiles lourdes naturelles ainsi que des huiles résiduelles telles que des résidus de distillation atmosphérique ou des résidus de distillation sous vide.

En ce qui concerne les procédés de craquage catalytique mettant en oeuvre de telles charges, il est apparu que les principales difficultés proviennent du fait que ces charges contiennent des entités organiques telles que des asphaltènes ainsi que des hydrocarbures aromatiques polycycliques condensés, qui sont difficiles à craquer en molécules plus légères susceptibles de fournir des rendements importants en fractions bouillant à des points d'ébullition moins élevés, mais qui ont tendance à s'associer pour donner lieu à des formations de coke importantes qui se déposent sur les catalyseurs utilisés, diminuant ainsi leur activité. De surcroit, la présence

dans ces huiles lourdes de quantités importantes de métaux lourds, tels que par exemple le nickel, le vanadium, le fer, etc... est considérée comme préjudiciable, car ces métaux ont tendance à empoisonner, ou tout au moins à désactiver, les catalyseurs de type zéolites généralement utilisés dans les procédés actuels de craquage catalytique en lit fluidisé, nommés plus loin F.C.C.

Un certain nombre de facteurs essentiels peuvent cependant permettre la conversion de produits lourds en fractions plus légères avec une bonne sélectivité, tout en maintenant une formation de coke la plus réduite possible.

Parmi Ces facteurs, l'un des plus importants consiste à assurer, au niveau du contact de la charge hydrocarbonée - qui est généralement

15 préchauffée et additionnée de vapeur d'eau - et du catalyseur chaud régénéré utilisé dans l'unité de craquage catalytique, un mélange tel que le transfert de chaleur entre charge et catalyseur soit effectué le plus rapidement possible et de la façon la plus régulière possible; il est également primordial que le renouvellement du cataly
20 seur régénéré au niveau de l'introduction de la charge dans la zone réactionnelle soit réalisé de façon permanente et efficace, en évitant en particulier les phénomènes de rétro-mélange qui accroissent les temps de contact et provoquent une diminution importante de la formation de coupes légères par augmentation du pourcentage pondéral du coke formé sur les grains de catalyseur.

Un autre phénomène important, également préjudiciable à la bonne marche d'une unité de F.C.C. plus spécialement destinée à traiter des charges lourdes, consiste en la difficulté d'obtenir une bonne homo30 généité radiale du catalyseur, tant au début de la zone réactionnelle que tout au long de cette zone.

Quant à la sélectivité des réactions de craquage d'une façon générale, il est connu qu'elle est d'autant meilleure que l'écoulement des fluides se rapproche d'un écoulement de type piston, qu'il est parti-

culièrement difficile d'obtenir dans des unités de F.C.C. conventionnelles.

La présente invention vise à obtenir simultanément les meilleures conditions pour accéder aux trois facteurs précédemment cités : absence de rétro-mélange, homogénéité radiale et écoulement de type piston. Cet objectif a pu être atteint en utilisant simultanément un nouveau type d'injection de la charge et de mélange avec le cataly-seur, et une zone réactionnelle parcourue par un co-courant de charge et de catalyseur dans le sens descendant, ainsi qu'un séparateur rapide.

10

15

20

25

30

Parmi les procédés de F.C.C. décrits dans l'art antérieur et utilisant un réacteur à co-courant descendant dans la zone réactionnelle, certains sont destinés à traiter des charges conventionnelles telles que des gazoles sous vide; le brevet US 2.420.558 décrit une telle méthode, mais utilise un système d'injection de la charge traditionnel et ne met en jeu qu'une seule zone de régénération de catalyseur; le brevet US 2.965.454 décrit un appareillage dont la zone réactionnelle est constituée par une pluralité de tubes verticaux parcourus par les co-courants descendants de charge et de catalyseur. Le brevet US. 3.835.029 se rapporte également à un procédé de F.C.C. à co-courant descendant, qui ne s'applique qu'à des charges légères - vaporisables entièrement entre 510 et 550 °C - dont l'introduction est faite en dessous de l'introduction du catalyseur dans la zone réactionnelle, lorsque la vitesse du catalyseur est comprise entre 9 et 30 m/s, et ne dispose pas d'un système de séparation gaz/solides rapide.

Ces méthodes ne conviennent pas à des charges hydrocarbonées plus lourdes, qui nécessitent un appareillage spécial de vaporisation et d'injection de ces charges, ainsi que, la plupart du temps, un procédé de régénération de catalyseur en deux étapes, pour permettre une régénération convenable du catalyseur.

Le brevet US 4.385.985 décrit un procédé de craquage catalytique à flot descendant amélioré permettant de traiter des charges lourdes,

de point final d'ébullition supérieur à 560 °C et ayant une teneur en carbone Conradson égale ou supérieure à 3 %; cependant, le système décrit au niveau du mélange du catalyseur régénéré et de la charge, qui consiste à introduire le catalyseur par une grille perforée, et à introduire la charge par un système conventionnel de pluralité d'injecteurs situés en dessous du point d'introduction du catalyseur régénéré, n'est pas susceptible d'assurer une vaporisation ultra-rapide de la charge ni un mélange homogène sur toute la section du réacteur. Il en est de même du brevet US 4.411.773, qui décrit un appareillage identique, tout au moins en ce qui concerne les parties essentielles, et en particulier, le système de mélange -injection.

5

10

15

De nombreuses techniques spécifiques ont déjà été décrites pour introduire une charge hydrocarbonée lourde dans la zone réactionnelle d'un réacteur de craquage catalytique ; on peut entre autres citer le brevet US 4.097.243 qui décrit un système de distribution de charge comprenant une pluralité de buses d'injection situées sur la section la plus large d'un tronc de cône, certaines de ces buses étant parallèles à l'axe du réacteur, d'autres étant inclinées par rapport à cet axe, l'arrivée du catalyseur régénéré se faisant obliquement par rapport à l'axe du réacteur, au dessus du système d'introduction de la charge. Dans le brevet US 4.427.537, on décrit une méthode de préparation et de dispersion de charges lourdes ; cette méthode consiste tout d'abord à former une émulsion de la charge dans de l'eau, et à préchauffer cette émulsion avant de l'atomiser sous forme de gouttelettes de 100 à 500 μ (100 à 500 x 10⁻⁶m), cette atomisation étant réalisée en dehors de la zone réactionnelle, grâce à un diluant gazeux ; l'injection dans la zone réactionnelle est effectuée par une pluralité de buses réparties sur un distributeur en forme de tronc de cône, dont la surface n'occupe que de 20 à 40 % de celle du "réacteur"; suivant ce procédé, l'arrivée du catalyseur régénéré se fait en dessous du système d'injection de charge, la charge étant introduite à une vitesse supérieure à 90 m/s. Les brevets US 3.152.065 et 3.246.960 enseignent une méthode d'injection de charge hydrocarbonée dans la partie inférieure d'un "réacteur" de façon à introduire un mélange de charge

et de vapeur d'eau, la charge étant soumise à un mouvement hélicoïdal avant d'être mélangée à la vapeur d'eau, puis à faire passer l'ensemble par un orifice de surface restreinte, l'arrivée de catalyseur régénéré s'effectuant en dessous du système d'injection, à la base du "réacteur".

5

10

15

20

25

30

Mais aucun des dispositifs mentionnés ne permet de réaliser une injection convenable de charge hydrocarbonée lourde dans une zone réactionnelle de craquage catalytique en assurant à la fois un mélange rapide inférieur de préférence à 500 millisecondes - du catalyseur et de la charge vaporisée, et une bonne homogénéité radiale de mélange sur toute la surface du réacteur; de surcroît, ces dispositifs sont prévus pour l'introduction de charges dans le cas de réacteurs de F.C.C, de type co-courants ascendants ne sont pas adaptés au cas des co-courants descendants de catalyseur et de charge.

L'invention se rapporte donc à un nouveau procédé de F.C.C. (Fluid catalytic cracking ou craquage catalytique en lit fluidisé), plus spécialement utilisable pour la transformation de charges hydrocarbonées lourdes; en effet, ces charges peuvent être soit des charges classiques, c'est à dire présentant par exemple des points d'ébullition finaux de l'ordre de 400 °C, tels que des gazoles sous vide, mais aussi des huiles hydrocarbonées plus lourdes, telles que des pétroles bruts et/ou désessenciés, et des résidus de distillation atmosphérique ou de distillation sous vide ; ces charges peuvent le cas échéant avoir reçu un traitement préalable tel que, par exemple, un hydrotraitement en présence par exemple de catalyseurs de type cobaltmolybdène ou nickel-molybdène. Les charges préférées de l'invention seront celles, contenant des fractions bouillant normalement jusqu'à 700 °C et plus, pouvant contenir des pourcentages élevés de produits asphaltèniques, et présenter une teneur en carbone Conradson allant jusqu'à 4 % et au delà. Ces charges peuvent être diluées ou non par des coupes plus légères conventionnelles, pouvant inclure des coupes d'hydrocarbures ayant déjà subi l'opération de craquage, qui sont recyclées, comme par exemple des huiles de recyclage légères ("light cycle oils", L.C.O.) ou des huiles lourdes de recyclage ("heavy cycle oils", H.C.O.). Suivant le mode préféré de l'invention, ces charges sont préchauffées dans un domaine de température compris entre 300 et 450° C avant leur traitement.

Plus spécifiquement, l'invention consiste à introduire la charge dans la partie supérieure d'une zone réactionnelle sensiblement verticale, grâce à un système d'injection et de dispersion de la charge, 10 généralement additionnée de vapeur d'eau, permettant sa pulvérisation en gouttelettes dont la taille moyenne de préférence n'excède pas 100 μ (100 x 10⁻⁶ m), et soit plus particulièrement de l'ordre de 50 μ (50 x 10⁻⁶m); la vitesse de la charge au niveau de son injection est de préférence comprise entre 10 et 100 m/s. Ce dispositif comprend une pluralité de buses d'injection, chacune de ces buses se trouve disposée dans la partie supérieure d'un tube de déversement du catalyseur chaud régénéré, coaxiallement par rapport à ce tube de façon à ce qu'il se produise, dans la partie supérieure du tube de déversement, un écoulement sensiblement parallèle des jets de charge partiellement vaporisée d'une part et du flot de grains de catalyseur chaud d'autre part, afin de favoriser dans cette partie les échanges de chaleur par radiation entre ces deux écoulements ; la vaporisation complète de la charge étant réalisée dans la partie inférieure desdits tubes de déversement de catalyseur . Suivant ce dispositif, le temps de contact entre charge et catalyseur n'excède généralement pas 500 millisecondes et est en général de l'ordre de 100 millisecondes. Le co-courant de charge (ainsi vaporisée) et de catalyseur parcourt alors dans le sens descendant la zone réactionnelle, où la température est généralement comprise entre 450 et 700° C, le temps de résidence étant compris entre 0,1 et 10 secondes, et préférentiellement de 0,2 à 4 secondes. A la partie inférieure du réacteur, le co-courant de catalyseur et d'effluent réactionnel ayant subi le traitement de craquage est accéléré, puis passe dans un système original de séparation rapide (voir plus loin l'explication de la figure 3) qui

réalise en un temps inférieur à 1 seconde une première séparation des vapeurs et des grains de catalyseur ; de 50 à 90 % des grains de catalyseur sont ainsi séparés de l'effluent réactionnel gazeux, le reste de la séparation étant réalisé grâce à un ou à des systèmes de 5 cyclones classiques. L'invention permet donc une séparation rapide et poussée entre catalyseur et effluent gazeux (permise par l'emploi de cyclone(s) dit(s) à rebours (avec retournement de la spirale obtenue par le mouvement de l'effluent;) mais également une séparation très rapide entre catalyseur et effluent puisque 50 à 90 % des grains de 10 catalyseur sont séparés de l'effluent gazeux par l'emploi préalable, avant la séparation poussée, d'au moins un cyclone à passage direct et à temps de séjour très court, avec écoulement hélicoïdal du flux de vapeur obtenu sans retournement de spirale. Les gaz effluents séparés, et 1e catalyseur alors dans une zone sont passe de strippage où il est traité pardes gaz tels que vapeur d'eau et/ou des gaz inertes tels que CO, CO2, des gaz de combustion ou des gaz de fuel-oil; les hydrocarbures et les gaz de strippage sont évacués, et le catalyseur ainsi strippé est alors transporté sous forme fluidisée dans une première zone de régénération, sensiblement verticale, où 20 la température est maintenue entre environ 500 et 750 °C. Dans cette première zone de régénération, on introduit une quantité d'oxygène ou d'un gaz contenant de l'oxygène moléculaire préférentiellement sous forme d'air, telle que la combustion de l'hydrogène des produits déposés sur le catalyseur soit pratiquement totale, ou, au moins, égale à 25 90 % en poids. Une partie seulement du carbone des produits déposés sur le catalyseur est également oxydée, de telle façon que de 10 à 60 % en poids du carbone initialement présent soit oxydé, essentiellement en CO; les gaz effluents de la première zone de régénération, séparés du catalyseur partiellement régénéré par des cyclones, sont donc, 30 compte-tenu de la quantité relativement faible d'oxygène utilisé et de la température à laquelle est effectuée l'opération, particulièrement riches en CO. Le catalyseur partiellement régénéré est alors conduit dans une deuxième zone de régénération, grâce à un apport de gaz anhydre contenant de l'oxygène, tel que, par exemple, de l'air sec.

Cette deuxième zone de régénération est constituée par un réacteur sensiblement vertical, ayant une longueur L très supérieure à son diamètre \emptyset , tels que le rapport $\frac{L}{\emptyset}$ soit compris entre 3 et 90, chemisé intérieurement de matériaux réfractaires. Le catalyseur partiellemment 5 régénéré est introduit à la base de cette seconde zone de régénération. La température à laquelle s'effectue cette seconde régénération est supérieure à celle de la première ; elle est d'ordinaire supérieure à 650 °C et peut atteindre 1000 °C. Cette seconde étape de régénération du catalyseur s'effectue en présence d'un fort excès d'oxygène, (de préférence de l'air 10 sec), et les gaz formés sont particulièrement riches en CO2. On obtient ainsi du catalyseur débarassé de la plupart du carbone qui s'était déposé à sa surface, puisque le pourcentage pondéral de coke par rapport au catalyseur est généralement inférieur à 0,04 %. Le catalyseur ainsi régénéré est séparé du courant gazeux par des cyclones extérieurs à la deuxième 15 zone de régénération ; il est alors à une température généralement comprise entre 600 °C (voire 700 °C) et 950 °C, et est ramené vers le contacteur-mélangeur par des jambes de descente munies de vannes de contrôle de débits.

20 - Le procédé de F.C.C. de la présente invention peut être utilisé avec tous les catalyseurs classiques employés généralement dans cette technique; on préfère cependant les catalyseurs à base de zéolites et, parmi ceux-ci, ceux qui présentent une bonne stabilité thermique, spécialement en présence de vapeur d'eau, quoique cette stabilité à haute température en présence d'humidité ne soit plus une condition prépondérante, grâce au système utilisé de double régénération de calyseur; en effet, la deuxième étape de régénération, réalisée à haute température, s'effectue dans des conditions pratiquement anhydres, du fait que la quasi totalité de l'hydrogène contenu dans les molécules d'hydrocarbures très lourds déposés sur le catalyseur pendant la réaction de craquage est transformée en vapeur d'eau au cours de la première étape de régénération, qui est conduite dans des conditions de température relativement douces. Généralement, le catalyseur, à la sortie de la première étape de régénération, présente un pourcentage

de carbone déposé, généralement compris entre 0,8 et 5,4 % en poids, et le pourcentage pondéral d'hydrogène restant à ce stade est souvent pratiquement nul.

5 - Suivant des agencements particuliers à la présente invention on peut, si on le désire, procéder à des injections de gaz oxydant sec - généra-lement de l'air anhydre - en plusieurs points situés le long de la zone de combustion qui est constituée par le deuxième régénérateur à haute température, de façon à se trouver toujours en large excès d'oxygène 10 par rapport au carbone restant à brûler.

L'utilisation simultanée de divers dispositifs constituant l'invention, à savoir : système d'injection et de dispersion de la charge au niveau de l'arrivée de catalyseur régénéré chaud, zone réactionnelle parcourue dans le sens descendant par le co-courant de catalyseur et de charge, séparation rapide du catalyseur et des produits, et régénération du catalyseur en deux étapes distinctes permet d'augmenter sensiblement le rendement en fractions légères, et spécialement de la coupe essence, qui présente un bon indice d'octane.

20

L'amélioration de la répartition radiale du catalyseur, l'absence de rétro-mélange, l'écoulement des fluides se rapprochant d'un régime piston, la séparation rapide du catalyseur et des produits, augmentent la sélectivité, réduisent la formation de coke et de gaz et permettent de diminuer le volume de la zone réactionnelle, ce qui diminue les frais d'investissement ainsi que l'inventaire du catalyseur.

La figure l'représente une illustration schématique de l'invention décrivant une réalisation possible de l'unité de F.C.C.

Ja figure 2 est une description plus détaillée d'une réalisation préférée du dispositif d'injection et de dispersion de la charge et la figure 3 est une description détaillée du dispositif de désengagement rapide et du réacteur de nettoyage (stripping) à la sortie des cyclones de séparation des mélanges gaz-particules catalytiques soutirées du réacteur de F.F.C.

L'invention concerne un procédé (a) de craquage catalytique en lit fluidisé d'une charge hydrocarbonée dans une zone (1) de réaction dans laquelle la charge et le catalyseur circulent à co-courant de haut en bas et (b) de régénération du catalyseur, dans deux zones de régénération (22) et (37), le procédé consistant à (voir figures 1 ou 2) 'injecter la charge liquide dans la partie supérieure de la zone de réaction (1) par au moins une conduite (2) se subdivisant en une pluralité de conduites (9) sensiblement verticales terminées chacune à leur partie inférieure par un moyen de pulvérisation ou d'atomisation ((114) sur figure 2) de la charge en gouttelettes dont la taille moyenne de préférence n'excède pas 100 x 10⁻⁶ m et plus particulièrement n'excède pas 50 x 10⁻⁶ m, la vitesse de la charge au niveau des points d'atomisation étant comprise de préférence entre environ 10 et 100 m/s,

- introduire dans une enceinte aménagée à la partie supérieure de la zone de réaction (1), des particules de catalyseur dont la température est comprise entre 600 et 950° C, provenant, comme indiqué plus loin, d'une zone de régénération (37), par au moins une conduite (3) ou (4) de façon à former dans ladite enceinte un lit fluide de catalyseur,

20

- faire circuler de bas en haut à travers le dit lit catalytique un gaz de façon à entrainer les particules catalytiques du lit de haut en bas à travers une pluralité de conduites de déversement sensiblement verticales (10), permettant ainsi aux particules cataly25 tiques de parvenir dans la zone de réaction proprement dite, chaque conduite verticale (9) d'injection de la charge ayant le même axe qu' une conduite de déversement de catalyseur (10), chaque moyen de pulvérisation ou d'atomisation de la charge liquide se situant au voisinage d'une extrémité supérieure d'une conduite de déversement, pour
30 obtenir, dans les dites conduites de déversement (10), un cheminement d'un courant de charge et un cheminement de particules catalytiques, de façon à vaporiser complètement la charge liquide et à mélanger intimement la charge et les particules de catalyseur, le temps de contact dans une conduite de déversement, entre la charge et les particules catalytiques étant de préférence inférieur à 500 millisecondes et

plus particulièrement inférieur à 100 millisecondes,

- laisser en contact dans la zone réactionnelle proprement dite, entre 450 et 700 °C, la charge et le catalyseur, avec un temps de séjour de 5 la charge comprise entre 0,1 et 10 secondes et de préférence entre 0,2 et 4 secondes,
- accélérer la vitesse du catalyseur et de l'effluent réactionnel dans la partie inférieure (12) de la zone de réaction, cette partie infé
 10 rieure de la zone de réaction étant constituée d'au moins un entonnoir en forme d'un tronc de cône ou d'un tronc de pyramide ou de toute autre forme équivalente, dont la pointe est tournée vers le bas et dont le demi angle au sommet est compris entre environ 5 et 30° et de préférence entre 7 et 15°,

15

- séparer 50 à 90 % des particules catalytiques de l'effluent réactionnel dans au moins une première zone de séparation (13) permettant un temps de séjour inférieur à une seconde, la vitesse de l'effluent gazeux à l'entrée de cette zone de séparation étant de 10 à 20 40 mètres par seconde de façon à produire un écoulement hélicoïdal du flux de vapeur, sans retournement de la spirale créée, la majorité du reste des particules catalytiques qui ont été entrainées avec l'effluent gazeux étant ensuite séparée de l'effluent réactionnel dans au moins une autre zone de séparation (14) de type à rebours,
 25 c'est-à-dire avec retournement de la spirale engendrée par l'injection du flux de l'effluent gazeux dans cette autre zone de séparation,
- débarrasser ensuite les particules catalytiques de la majorité des hydrocarbures de l'effluent qu'elles ont entrainés avec elles, à 30 l'aide d'un gaz (stripping),

- transporter de bas en haut, les particules catalytiques (qui à ce stade sont à une température d'au moins 450 °C) à l'aide d'un gaz, porté à une température de 150 à 300 °C, dans une conduite (23) conduisant les dites particules catalytiques dans une première zone de régénération (22),
- procéder à une première étape de régénération du catalyseur, cette étape étant effectuée en lit fluidisé (ou dense), à une température T₁ comprise entre environ 500 et 750 °C, en présence d'oxygène ou d'un gaz contenant de l'oxygène moléculaire, en vue de provoquer la combustion d'au moins 90 % de l'hydrogène et de préférence sensiblement la totalité de l'hydrogène des produits présents sur le catalyseur et d'oxyder, en majeure partie en CO, 10 à 60 % en poids du carbone présent, sous forme de composés carbonés, sur le catalyseur,

15

- éliminer la majeure partie des gaz présents dans la première zone de régénération du catalyseur
- soutirer le catalyseur partiellement régénéré dans la dite première zone de régénération, et l'envoyer de bas en haut à travers une conduite (36) au moyen d'un gaz vecteur à base d'oxygène ou d'un gaz contenant de l'oxygène moléculaire et sensiblement exempt de vapeur d'eau, vers la partie inférieure d'une deuxième zone de régénération, laquelle a la forme d'une zone tubulaire sensiblement verticale et allongée (37) dont le rapport 25 L (où L est la longueur du tube et Ø son diamètre) est compris entre 3 et 90, le catalyseur étant traité dans la deuxième zone de régénération au moyen d'un gaz de régénération renfermant de l'oxygène moléculaire, sensiblement exempt d'eau, à une température T₂ comprise entre 650 et 1000° C, T₂ étant supérieur à T₁, en vue d'obtenir un catalyseur régénéré ne renfermant pas plus de 0,04 % en poids de coke avec production de gaz riches en CO₂, le catalyseur ayant été entrainé, pendant la durée de cette deuxième régénération de bas en haut de la zone de régénération (37) au moyen du dit gaz vecteur,

- et soutirer de la deuxième zone de régénération (37) un mélange de gaz et de catalyseur, séparer les particules catalytiques des gaz et renvoyer les dites particules régénérées, dont la température est comprise à ce stade entre 600 et 950 °C, dans la zone (1) de réaction de craquage catalytique par au moins une conduite (3) ou (4).

L'invention concerne également un appareil pour le procédé de craquage catalytique et de régénération de catalyseur et comporte : (voir figures 1 et 2)

10 - un réacteur (1) allongé et sensiblement vertical

25

- au moins une conduite (2) d'admission d'une charge liquide dans la partie supérieure du réacteur, la dite conduite se subdivisant en une pluralité de conduites (9) sensiblement verticales dont chacune des extrémités inférieures est munie d'une buse d'atomisation de la dite charge ((114) sur la figure 2)
- au moins deux jambes (3) et (4) sensiblement verticales, généralement équipées de valves (7) et (8), pour l'introduction de particules catalytiques dans un réservoir ou une enceinte aménagée dans la partie 20 supérieure du réacteur (1) au-dessus de la paroi horizontale 113-a (figure 2),
 - au moins un distributeur ((113) sur la figure 2) d'un fluide gazeux aménagé au voisinage de la paroi horizontale (113-a sur la figure 2),

- une pluralité de tubes de déversement (10) des particules catalytiques depuis le dit réservoir jusque dans le réacteur proprement dit,
ces tubes de déversement étant agencés de façon à ce que chacune des
conduites (9) d'admission de la charge ait le même axe qu'un des tubes
30 de déversement (10) et de façon à ce que chaque buse d'injection de
la charge se trouve au voisinage de l'extrémité supérieure d'un tube
de déversement (10), l'ensemble des buses (9) et des tubes de déversement (10) formant ainsi une zone de contact et de mélange entre la
charge et le catalyseur,

- un fond de réacteur (1) comportant au moins un entonnoir en forme d'un tronc de cône ou d'un tronc de pyramide ou de toute autre forme équivalente, dont la pointe est tournée vers le bas et dont le demiangle au sommet est compris entre 5 et 30 ° et de préférence entre 7 et 15°,
- au moins une zone (13) de séparation primaire, au moyen d'un ou plu-, sieurs cyclones à passage direct sans retournement de la spirale ("uniflow cyclone"), des particules catalytiques de l'effluent réac
 tionnel, cette première zone étant par exemple extérieure au réacteur (1), les particules catalytiques étant soutirées de cette zone primaire par au moins une jambe (15) par exemple sensiblement verticale,
- au moins une zone (14) de séparation secondaire dans laquelle on sé15 pare de l'effluent réactionnel la majeure partie du reste des particules catalytiques que le dit effluent a entrainées avec lui, les particules catalytiques étant soutirées de cette zone secondaire par au
 moins une jambe (16) de préférence sensiblement verticale, l'effluent
 réactionnel étant soutiré par au moins une conduite (16-a),

20

- un réacteur ou zone (17) de nettoyage des particules catalytiques (stripping) au moyen d'un gaz introduit par au moins une conduite (221) (voir figure 3), la dite zone (17) étant alimentée en catalyseur par les jambes telles que (16) et (15)

25

- une jambe (20) d'évacuation des particules catalytiques hors de la zone (17), la dite jambe 20 étant généralement équipée d'une valve (21),
- une conduite (23) sensiblement verticale pour élever les particules catalytiques en provenance de la jambe (20), au moyen d'un gaz élévateur introduit par la conduite (23 a), et faire parvenir ainsi les particules catalytiques à l'intérieur d'un premier réacteur de régénération (22),

- un premier réacteur de régénération (22) comportant une grille ou tout moyen équivalent (27-a) pour supporter un lit catalytique (25), une conduite (26) d'alimentation en oxygène ou en gaz contenant de l'oxygène moléculaire, un dispositif (28) d'au moins un cyclone de séparation des gaz et des particules catalytiques,
 - une conduite (29) d'évacuation des gaz, généralement munie d'une valve (30), et un conduit (33) de soutirage du catalyseur hors de la zone (22),

10

- une jambe (34) de descente de catalyseur, communiquant avec ladite conduite (33) et généralement équipée d'une valve (35),
- un conduit vertical ascendant (36) de catalyseur, le conduit (36) 15 étant alimenté par un gaz de transport ou élévateur introduit par la conduite (36-a),
- un réacteur (37) tubulaire sensiblement vertical de régénération du catalyseur dont le rapport L/Ø (où L est la longueur du réacteur tubu-20 laire et Ø son diamètre) est compris entre 3 et 90, le réacteur étant équipé d'au moins une buse d'injection d'un gaz de régénération,
 - une conduite d'évacuation (38) d'un mélange de gaz et de catalyseur,
- 25 des moyens de séparation (5) et (6) du catalyseur des gaz, constitués d'au moins deux séparateurs de type cyclone, généralement placés extérieurement au réacteur de régénération (37) et au réacteur (1), le catalyseur soutiré de ces séparateurs étant envoyé dans les conduites (3) et (4) d'alimentation en catalyseur du réacteur (1).

30

Dans la figure 1, en tant qu'illustration d'une des réalisations possibles de la présente invention, une charge hydrocarbonée,par exemple

un gazole ou un hydrocarbure à point d'ébullition plus élevé est introduit à travers le conduit (2) au sommet du réacteur vertical descendant (1). Un catalyseur régénéré à haute température est aussi introduit au sommet du réacteur (1) par les jambes de descente (3) et 5 (4) des cyclones extérieurs (5) et (6), équipés de valves (7) et (8) pour contrôler le débit de l'écoulement. La charge hydrocarbure est atomisée et partiellement vaporisée dans un système d'injections multibuses (9) dont une réalisation possible est décrite plus en détail dans la figure 2 ci-après. Dans une réalisation préférée, la 10 charge est ensuite rapidement dispersée et mélangée au catalyseur chaud dans une pluralité de tubes de déversement (10), du contacteurmélangeur (11), descendant, multibuses, rapide, dont une réalisation possible est décrite de manière plus détaillée ci-après dans la figure 2. A la sortie du mélangeur-contacteur (11), réalisant des trans-15 ferts thermiques ultrarapides entre le catalyseur régénéré à haute température et la charge, celle-ci est complètement vaporisée, et les fractions lourdes qu'elle contient sont désintégrées thermiquement sous l'effet du choc thermique initial ainsi réalisé. Dans ce dispositif de mélange rapide approprié (11), le temps de contact 20 charge/catalyseur n'exède généralementpas 500 millisecondes, et reste préférentiellement inférieur à 100 millisecondes.

Après mélange, la température atteinte par la suspension vapeur d'hydrocarbures/catalyseur peut varier dans la gamme des températures

25 allant de 450 °C à 700 °C en fonction du degré de conversion désiré et de la composition de la charge. La suspension vapeur d'hydrocarbures/catalyseur s'écoule ensuite dans le sens vertical descendant à travers le réacteur (1) dont la section transversale peut varier progressivement pour assurer les conditions opératoires de température

30 et de temps de séjour requises. La suspension à température élevée, constituée des vapeurs d'hydrocarbures formées, des gaz de dilution et du catalyseur entrainé traverse le réacteur dans des conditions de vitesse assurant un écoulement proche de l'écoulement piston. L'écoulement descendant a en particulier pour avantage de diminuer nota-

blement le glissement relatif du catalyseur par rapport au gaz vecteur. Le temps de séjour de la charge hydrocarbonée dans la zone réactionnelle (1) est d'environ 0,1 seconde à environ 10 secondes, et préférentiellement d'environ 0,2 seconde à 4 secondes. Pour augmenter encore la rétention en catalyseur, et donc diminuer le volume réactionnel total, le réacteur (1) peut être garni intérieurement de chicanes ou garnissage (non représentés), tels que anneaux de Ras, selles de Berl, selles Intalox, etc...

- 10 La suspension vapeur d'hydrocarbures/catalyseur est ensuite accélérée dans un (ou plusieurs) convergent conique ou pyramidal ou de forme équivalente (12) de 1/2 angle au sommet compris entre 5 et 30° et préférentiellement entre 7 et 15°, pour entrer dans un séparateur (ou plusieurs en parallèle) (13) à faible temps de séjour, inférieur à
- 15 l seconde. Une réalisation possible et préférée de cette séparation rapide peut être obtenue dans un (ou plusieurs en parallèle) cyclone sans retournement de spirale, appelé de type "uniflow" à passage direct. La figure 3 détaille une de ces réalisations possible ou un cyclone de type "uniflow" est disposé horizontalement. Ce pre-
- mier étage réalise en un temps très court (<| seconde) une première séparation relativement grossière (mais avec des efficacités supérieures à 50 %). L'effluent traverse ce cyclone "uniflow" sans retournement de la spirale créée, et débouche dans un ou plusieurs étages en parallèle, ou/et en série, de séparation secondaire (14), par des cyclones dits
- 25 à rebours ("reverse flow cyclone") classiques, connus de l'homme de l'art, qui permettent une séparation très poussée du catalyseur, encore entrainé avec l'effluent à la sortie du premier étage de séparation rapide (13). L'effluent réactionnel est évacué par la ligne (16 bis). Le catalyseur est évacué par les jambes de descente du train de sépa-
- 30 ration primaire (15) et secondaire (16), à l'intérieur d'un réacteur (17) où est réalisé le strippage, généralement à la vapeur, des hydrocarbures entrainés avec ces solides pulvérulents. Cette configuration permet une disposition du réacteur (1) complètement externe, ce qui facilite les interventions d'entretien et de maintenance de la section 35 réactionnelle.

La section inférieure du réacteur (12) a généralement un diamètre plus petit que celui de la section supérieure, et contient une zone de stripping (18), à la base de laquelle un gaz de strippage adapté, tel que la vapeur d'eau, des gaz inertes (CO, CO, ...), des gaz de 5 combustion ou des fuel gaz, sont introduits. Un système de séparation conventionnel (19) primaire et secondaire, est utilisé dans la section supérieure du réacteur (17) pour séparer les produits hydrocarbonés strippés et le gaz de strippage des particules de catalyseur. Les gaz de strippage et les hydrocarbures strippés quittent le sépara-10 teur (19) par les tubulures de sortie non représentées. En variante possible, si la partie supérieure du réacteur de stripping (17) est trop petite pour contenir un système de séparation (19) supplémentaire, les effluents du strippage peuvent être traités, avec les effluents en provenance directe du réacteur, dans le seul train de séparation (14), 15 séquentiel ou parallèle, en supprimant éventuellement dans cette variante, la liaison directe (24) entre la séparation primaire (13) et ce train de séparation (14). Cette opération de strippage est une opération classique, bien connue de l'homme de l'art, et il n'est pas nécessaire de la décrire plus en détail.

20

Le catalyseur une fois strippé est recouvert d'un dépôt de coke. Il est soutiré du bas du réacteur de strippage (17), à une température d'au moins 450 °C, par une jambe d'écoulement (20) équipée d'une valve (21) qui sert à contrôler l'écoulement de solides. Cette jambe de des-25 cente (20), remplie de solides de manière dense, a une hauteur suffisante pour que le bouchon de solides ainsi réalisé fasse joint et assure l'équilibrage des pressions entre la section réactionnelle et les étapes de régénération qui suivent.

30 Le catalyseur une fois strippé, encore recouvert de dépôts de coke, est transféré de la jambe d'écoulement (20) au bas du premier étage de régénération (22), par l'introduction d'un gaz de transport, au

pied d'un élévateur sensiblement vertical (23). Une purge éventuelle peut être effectuée avec la valve 39. Ce gaz de transport (conduite 23 a) peut être de l'air préchauffé, de la vapeur surchauffée, des additions d'oxygène chaud, à des températures de 150 à 300° C, sous 5 environ 2 à 3 bars. La quantité de gaz de transport introduite dans cet élévateur est suffisante pour former avec le catalyseur une suspension solide/gaz, dont la densité est telle qu'elle est obligée de s'écouler en un mouvement vertical ascendant dans le conduit (23), jusqu'à se déverser dans la partie inférieure du premier étage de régénération (22).

Le premier étage de régénération du catalyseur est constitué d'un lit fluidisé (25) dense, suivant une technologie connue de l'homme de l'art, qu'il n'est pas nécessaire de détailler ici. Un gaz riche en oxygène nécessaire à la régénération du catalyseur est introduit dans la partie basse du lit fluidisé (25) par le conduit (23) et/ou par un conduit (26) connecté à un distributeur de gaz (paroi 27 a de type grille ou tubes perforés) (perforations 27).

20 Un système de séparation cyclonique, primaire et secondaire (28) est disposé dans la partie supérieure (31), évasée, du réacteur (22) pour séparer les entraînements de catalyseur des gaz de combustion riches en CO. Les gaz de régénération riches en CO sont extraits du réacteur (22) par un conduit (29) équipé d'une valve (30) de contrôle de la pression.

La première étape de régénération accomplie dans le réacteur (22) est effectuée dans des conditions de température relativement douces au dessous de 750 °C, et est effectuée avec des concentrations en oxygène réduites choisies pour obtenir la combustion d'au moins 50 % de 1'hydrogène (et de préférence sensiblement sa totalité) contenu dans le dépôt de coke déposé sur le catalyseur et brûler une partie du carbone (10 à 60 % en poids de carbone présent). Les conditions opératoires et la concentration en oxygène utilisées sont suffisantes pour maintenir la température du lit fluidisé dense (25) dans la gamme d'environ 500 à environ 750 °C. Ces conditions de régénération relativement

douces sont recherchées de manière à éviter que la présence de vapeur d'eau durant la combustion de l'hydrogène ne vienne substantiellement réduire l'activité du catalyseur. Aussi, le premier étage de régénération à une température considérée comme relativement basse génère des gaz de combustion particulièrement riches en CO. On évite particulièrement les phénomènes de post combustion du CO dans le lit fluidisé dense (25), dans la zone de désengagement, et dans le système de séparation cyclonique (28). Une chaudière à CO (non représentée) est disposée en aval du conduit d'évacuation (29) pour générer de la valupeur d'eau sous pression en transformant le CO en CO₂. Une unité de récupération d'énergie peut également être disposée avant cette étape de combustion du CO, suivant des techniques classiques connues de l'homme de l'art.

- 15 Ainsi, la première étape de régénération est effectuée à une température, une pression, une concentration réduite en 02, de manière à laisser une certaine proportion de coke, à faible taux d'hydrogène, sur le catalyseur, que l'on finira de brûler ensuite dans un deuxième étage de régénération à haute température (32). Il est recommancé de 20 réduire la combustion du carbone dans le premier étage de régénération à relativement basse température, inférieure à 750 °C, à la quantité juste nécessaire pour accompagner la combustion d'une partie importante de l'hydrogène.
- Le catalyseur partiellement régénéré, mais dont le coke résiduel ne con25 tient pratiquement plus d'hydrogène ou peu d'hydrogène est extrait du
 lit fluidisé dense (25) par un conduit de soutirage (33), communicant
 avec une jambe de descente extérieure, incurvée (34), équipée d'une
 valve de contrôle du débit de solides (35). Cette jambe de descente
 (34), dans laquelle est maintenu un écoulement dense de solides pulvé30 rulents débouche dans un conduit vertical ascendant (36), au pied duquel est introduit un gaz de transport en quantité suffisante pour que
 la différence de densité dans les conduits (36) et (34) provoque la
 remontée de ces solides dans le conduit (36). Ce gaz de transport est
 un gaz non combustible, contenant de l'oxygène, habituellement de
 35 l'air; il doit être de préférence totalement exempt de vapeur d'eau.

Le catalyseur, sous forme d'un lit entrainé par le gaz de transport contenant de l'oxygène, entre dans un réacteur séparé (37), de préférence chemisé intérieurement de réfractaires pour une deuxième étape indépendante de régénération à haute température, effectuée à une tem-5 pérature supérieure à 650°C, qui est accomplie sensiblement en l'absence de vapeur d'eau. La quantité d'oxygène est suffisante pour maintenir une opération de régénération à haute température par combustion du coke, combinée à la combustion pratiquement complète du CO en CO2. La régénération haute température par combustion de tout le carbone résiduel 10 n'est pas limitée en température, et peut atteindre 1000 °C. Ainsi, la température du deuxième étage de régénération est laissée libre de s'établir au niveau nécessaire pour enlever pratiquement tout le coke résiduel déposé sur les particules de catalyseur, de façon à atteindre des teneurs pondérales de coke au catalyseur inférieures à 15 0,04 %. Ce deuxième étage indépendant de régénération haute température est constitué par un réacteur tubulaire vertical ascendant (37). Le catalyseur usé est transporté à travers ce générateur rapide comme une suspension dans un gaz de régénération, comme l'air, à une vitesse superficielle d'environ 0,5 à 10 m/s, et préférablement de 1 à 5 m/s. 20 Le rapport hauteur/diamètre de ce régénérateur doit être dans la gamme de 3 à 90 et de préférence 10 à 25. Ce régénérateur rapide est équipé de buses d'injection pour l'injection de gaz de régénération à sa base (non représenté) et sur toute sa hauteur pour d'éventuelles injections secondaires (non représentées) des gaz de régénération, 25 habituellement de l'air sec.

La présente invention permet un gain appréciable au niveau du volume total et de l'encombrement du régénérateur, en supprimant les volumes ordinairement utilisés pour la boite à vent, les distributeurs, les zones de désengagement, les jambes de descente des cyclones. Il procure aussi un accroissement de l'efficacité de contact entre le gaz de régénération et le catalyseur du à la forte vitesse de passage et/ou au fort rapport hauteur/diamètre du réacteur (37), qui améliore la distribution et réduit le renardage et le rétromélange.

Plus encore, l'écoulement, qui se rapproche d'un écoulement piston, évite la ségrégation des grosses particules et la présence localement de particules non complètement régénérées. Le contrôle de la post-combustion dans le deuxième étage de régénération est facilité, et supprime la nécessité de dispositifs de refroidissement à la vapeur ou à l'eau qui dans lesschémas conventionnels provoquent des pertes importantes de catalyseur et de réduction de leur activité, ainsi que de nombreux dégats au niveau des réfractaires et des enceintes.

La suspension de catalyseur régénéré dans les gaz de combustion est déchargée lavéralement dans le conduit (38) à un niveau un peu inférieur au niveau du haut du réacteur vertical (37), de manière à minimiser les problèmes d'érosion dans cette zone de changement à 90° du sens d'écoulement. Dans le conduit (38), cette suspension est accélérée pour être séparée dans le premier étage de séparation (5), qui peut être constitué d'un ou plusieurs cyclones en parallèle, dans lesquels les gaz de régénération sont séparés du catalyseur précédemment régénéré à haute température. Les gaz de combustion passent ensuite dans un deuxième étage de séparation à haute efficacité (6) composé d'un ou plusieurs cyclones, en série et/ou en parallèle suivant des techniques classiques connues de l'houme de l'art.

Les séparateurs cycloniques (5) et (6) peuvent être situés à l'extérieur du réacteur (37) utilisé pour la deuxième 25 étape de régénération, de telle manière que les problèmes de métal-lurgie aux hautes températures sont éliminés. Des gaz de combustion riches en CO₂ sortent du train de séparation cyclonique (5) et (6), à travers des vannes maintenant la pression de l'unité, et peuvent être utilisés ensuite pour générer de la vapeur de process dans une chaudière (non représentée).

Les particules de catalyseur sortent du deuxième étage de régénération haute température avec des teneurs en carbone préférées, inférieures à 0,04 % en poids du catalyseur. Le catalyseur régénéré, dont la température est supérieure à la température pseudo-critique de la charge,

est conduit dans le mélangeur-contacteur (11) par les jambes de descente (3) et (4) du train de séparation (5) et (6). Ces jambes de descente (3) et (4), dans lesquelles est maintenu un écoulement dense des solides pulvérulents grâce aux vannes de contrôle du débit (7) et 5 (8), sont d'une hauteur suffisante pour assurer l'équilibrage de pressions de l'unité.

Dans le contacteur-mélangeur (11), le catalyseur régénéré chaud est maintenu à l'état fluidisé par des injections (non représentées sur la fig. l) de gaz d'aération, tels que des hydrocarbures inférieurs à 10 4 atomes de carbone, ou d'autres gaz adaptés comme les gaz inertes. Le catalyseur régénéré chaud, à une température supérieure à la température pseudo-critique de la charge est ensuite évacué par les tubes de débordement (10), où il est contacté intimement à la charge hydrocarbonée. Un conduit de soutirage (39) de catalyseur est ménagé 15 à la partie inférieure de la zone de strippage (18); l'appoint en

catalyseur frais est effectué au niveau du premier étage de régénération (25) par la ligne (40), suivant des dispositifs classiques.

La figure 2 représente plus en détail une réalisation préférée de l' 20 invention du dispositif d'injection et de dispersion de la charge hydrocarbonée, au sommet du réacteur vertical descendant (101). Comme cela a été décrit précédemment, le catalyseur régénéré à haute température, en provenance du deuxième étage de régénération (132) en ligne de transfert verticale ascendante, arrive au sommet du réacteur 25 (101) par les jambes de descente (103) et (104) d'un (ou plusieurs en parallèle) train(s) de séparation formé(s) par les cyclones extérieurs (105) et (106), munis de valves (107) et (108) de contrôle d'écoulement des solides. Le catalyseur chaud, régénéré, est reçu dans une enceinte (située au-dessus de la paroi horizontale 113 a) 30 sous forme d'un lit catalytique maintenu à l'état fluidisé dense par injection d'un gaz d'aération à travers au moins un distributeur (113). Ce distributeur (113) constitué par exemple d'une grille ou d'un ensemble de tubes perforés ("sparge tubes") est de conception classique connue de l'homme de l'art. Le gaz d'aération injec-35 té à travers ce distributeur (113), est constitué de gaz inertes ou

d'hydrocarbures légers ("fuel gas") en provenance par exemple du train aval de fractionnement des effluents de sortie de l'unité (non représenté), ainsi que de tout autre mélange ou agent gazeux de fluidisation adapté. Une éventuelle injection de vapeur à ce niveau pourra être effectuée, dans les limites permises par la stabilité hydrothermique du catalyseur régénéré à haute température conformément à l'invention. Le catalyseur chaud et les gaz de fluidisation sont dirigés, vers le bas, par débordement dans une pluralité de tubes de déversement (110).

10

La charge hydrocarbonée liquide, préchauffée en amont (par un système non représenté), à laquelle on peut ajouter une certaine quantité de vapeur de dispersion, est introduite par une rampe d'alimentation (102), qui se subdivise en une pluralité de conduits d'alimentation 15 (109), débouchant dans les tubes de déversement (110). Ces tubes d'alimentation (109) se terminent à leur extrémité par des buses de pulvérisation et d'atomisation (114) de conception classique connues de l'homme de l'art. La charge hydrocarbonée est atomisée aussi finement que possible dans le système d'injection multibuses (114) avec ajout 20 éventuel de vapeur de dispersion, jusqu'à des tailles de gouttelettes inférieures à la granulométrie moyenne du catalyseur régénéré, c'est à dire habituellement inférieures à $100 \,\mu$ (100×10^{-6} m), et préférentiellement inférieures à 90 μ et même à 50 μ (50 x 10⁻⁶ m). Les gouttelettes d'hydrocarbures sont éjectées des buses de pulvérisation (114) 25 à des vitesses comprises entre 10 et 100 m/s, et connaissent donc un début de vaporisation à ce niveau.

Dans la partie supérieure (zone A) de chacun des tubes de déversement (110), il se produit donc un jet central, conique, dispersif de gout30 telettes de charge entourées par un anneau de catalyseur régénéré à haute température qui s'écoule, transporté par le gaz de fluidisation, le long des parois de chacun des tubes de déversement (110). Dans cette partie supérieure (zone A) de chacun des tubes de déversement (110), il se produit donc un ensemble de deux écoulements sensiblement

parallèles du jet de gouttelettes de charge, et concentriquement de catalyseur régénéré à haute température. Le contact entre les deux écoulements est relativement réduit dans cette zone A, et les transferts de chaleur entre les particules de catalyseur et les gouttelettes 5 d'hydrocarbures se fait essentiellement, de manière radiative, mettant ainsi à profit la température élevée de régénération en deux étapes pour obtenir des transferts de chaleur très rapides dans cette zone A. Une vaporisation partielle, mais déjà importante est ainsi réalisée à la sortie immédiate des buses d'injection (114). Grâce au mode parti-10 culier de chauffage des jets de gouttelettes par des écoulements de solides (les particules catalytiques) à haute température, l'élévation de température de la charge est très rapide, ce qui favorise les réactions de craquage au détriment des réactions de cokage. Il est important que la taille des gouttelettes soit aussi petite que possible 15 afin que le processus d'échange de chaleur ne soit pas diminué par la diffusion thermique de l'extérieur vers l'intérieur des gouttelettes. Bien que l'échange de chaleur soit réalisé essentiellement par radiation dans cette zone A, il n'est nullement exclu que les autres formes d'échange, par conduction et/ou convection, participent partiellement 20 au processus de transfert thermique.

Toutefois, dans le dispositif d'injection décrit ici, l'échange de chaleur par radiation est prépondérant, tout au moins dans la zone A telle que définie ci-dessus. Ceci permet de diminuer au maximum la formation d'agglomérats produits par le contact direct entre les particules de catalyseur chaud, jouant le rôle de solides caloporteurs, et de gouttelettes de charge non vaporisée.

Dans la partie inférieure (zone B) de chacun des tubes de déversement 30 (110), les deux écoulements de charge et de catalyseur se trouvent intimement mélangés sous l'effet de la dispersion et de la vaporisation partielle, mais dëjà importante, réalisée préalablement dans la zone A, des gouttelettes de charge hydrocarbonées. Le contact et le mélange intime qui sont recherchés au niveau de la zone B entre le catalyseur

et la charge hydrocarbonée, sont d'autant plus effectifs qu'ils sont précédés par une vaporisation importante de gouttelettes de charge dans la zone A. Dans cette zone B, dans chacun des tubes de déversement (110), la vaporisation complète des gouttelettes est achevée par mé-5 lange et contact intime avec le catalyseur régénéré à haute température. Ce mélange et ce contact intime sont nécessaires à l'obtention de transferts de chaleur très rapides dans cette zone B. Par ailleurs, le caractère descendant des écoulements évite le rétromélange du catalyseur, favorise le renouvellement du catalyseur autour des buses 10 d'injection et évite la formation d'une suspension en phase dense au niveau des buses d'injection et dans leur voisinage immédiat, comme c'est le cas pour les systèmes d'alimentation des réacteurs ascendants traditionnellement utilisés en FCC. En minimisant par cette configuration et par le caractère descendant des écoulements, le rétromélange 15 au niveau des buses d'injection, on diminue notablement le coke formé sur le catalyseur, ainsi que les phénomènes d'agglomération et de croissance des dépôts carbonés ("carbon build up") qui sont nuisibles et inévitables dans tous les systèmes d'alimentation des réacteurs ascendants traditionnellement utilisés en FCC.

20

L'ensemble des zones A et B, réalise des transferts thermiques très rapides entre le catalyseur régénéré à haute température et les gouttelettes de charge finement divisée. La longueur des tubes de déversement (110) est ajustée pour que le temps de contact charge/cataly25 seur n'excède pas 500 millisecondes, et reste préférentiellement inférieur à 100 millisecondes. La mise en oeuvre, dans ce dispositif de mélange approprié, de transferts thermiques très rapides réalise, au niveau des gouttelettes de charge un véritable choc thermique initial, qui vaporise complètement les fractions légères de la charge, tout en désintégrant thermiquement les fractions lourdes et les structures asphalténiques qu'elle contient. La mise en oeuvre d'un tel choc thermique initial est nécessaire et favorise le traitement des charges contenant des quantités notables de fractions lourdes et/ou structures asphalténiques. On observe en outre que le craquage des fractions

légères est favorisé au détriment des réactions de cokage. Le type de mélangeur/contacteur descendant, multibuses, rapide, proposé dans la présente invention, non seulement permet le traitement de charges lourdes, en ce qu'il réalise le choc thermique initial, mais encore 5 diminue notablement les phénomènes de rétromélange.

A la sortie des tubes de descente (110), la suspension vapeur d'hydrocarbures/catalyseur s'écoule ensuite dans le sens vertical descendant à travers le réacteur (101), dont la section transversale peut varier 10 progressivement pour assurer les conditions opératoires de température et de séjour requises, ainsi que des conditions d'écoulement proches de l'écoulement piston.

La figure 3 représente une réalisation adéquate du dispositif de 15 séparation de l'effluent du réacteur descendant (101) et du catalyseur entrainé par cet effluent. La suspension vapeurs d'hydrocarbures/ catalyseur est accélérée dans un convergent (212) de demi-angle au sommet compris entre environ 5 et 30° et préférentiellement entre 7 et 15°, pour entrer dans le séparateur primaire (213). Dans la figure 3, le 20 dispositif de séparation primaire ne comporte qu'un seul cyclone à passage direct (213) de type "uniflow cyclone", et entrée tangentielle, disposé ici horizontalement. D'autres réalisations possibles de l'invention peuvent comporter une pluralité de ces cyclones, disposés en parallèle horizontalement ou verticalement. Dans ce type de cyclone "uniflow" à pas-, 25 sage direct, l'écoulement hélicoïdal du flux de vapeurs autour du noyau central plein, cyclindrique, coaxial (211), engendré par l'introduction tangentielle de cet effluent par la bouche (210), a pour particularité de se produire sans retournement de la spirale créée, à l'inverse du cas des cyclones classiques à rebours ("reverse flow cylones"). 30 La vitesse de l'effluent gazeux dans la lucarne d'entrée (210) doit être comprise entre 10 et 40 m/s pour engendrer un véritable écoulement hélicoïdal qui, sous l'effet des forces centrifuges ainsi va plaquer à la paroi extérieure les particules de catalyseur qui sont entrainées avec lui. L'effluent gazeux ainsi séparé des particules

35 solides est évacué par le conduit central coaxial (209) qui pénètre à

l'intérieur du corps extérieur (213). Les solides, eux, sont évacués par la jambe de descente (215) sensiblement verticale. Ce type de cyclone permet de réaliser avec un temps de séjour relativement court, inférieur à la seconde, une séparation primaire grossière, mais 5 néanmoins avec des efficacités supérieures à 50 %, pouvant atteindre 90 %. Pour améliorer l'efficacité de cette séparation primaire, il faut admettre avec l'écoulement des solides dans la jambe de descente (215), le passage d'une certaine quantité de l'effluent gazeux, pouvant atteindre 10 % du débit volumique total de cet effluent. L'écoulement 10 hélicoïdal sans retournement de la spirale dans ce type de cyclone à passage direct permet non seulement une séparation rapide avec des temps de séjour courts inférieurs à la seconde, mais encore minimise les phénomènes de rétromélange à ce niveau du fait de l'absence de retournement de la spirale. Cette séparation primaire rapide permet 15 donc de limiter les phénomènes de surcraquage dont on connait les effets néfastes au niveau de la sélectivité des réactions de craquage. Par ailleurs, ce cyclone de séparation primaire (213) peut pénétrer seulement partiellement à l'intérieur de la zone de strippage (217) ; cette configuration peut permettre une disposition complètement 20 externe du réacteur (201), ce qui a pour avantage de faciliter les d'entretien interventions et de maintenance de la section réactionnelle.

La sortie (209) pourrait déboucher à l'intérieur du réacteur ou zone de strippage (217), mais de préférence est reliée directement par le conduit (224) à la bouche d'entrée d'un système de séparation secondaire (214) comportant un ou plusieurs étages, en parallèle et/ou en série, constitués par des cyclones à rebours ("revers flow cyclones") classiques connus de l'homme de l'art, qui permettent ensuite une séparation très poussée du catalyseur encore entrainé dans l'effluent gazeux à la sortie (209) du premier étage de séparation rapide. Dans ce cas, (sortie (209) directement reliée par le conduit (224), de préférence sensiblement horizontal, à la lucarne d'entrée du

train de séparation secondaire (214)), le réacteur de strippage (217) est généralement alors équipé dans sa partie supérieure d'un ou plusieurs trains de séparation (219) des effluents de strippage, conventionnel, composés d'un ou plusieurs étages de séparation, en parallèle et/ou en série, constitués par des cyclones à rebours classiques suivant des dispositifs connus de l'homme de l'art.

Dans ce cas, la sortie (208) du train de séparation (214) n'évacue que les effluents en provenance de la section réactionnelle (201), tandis que la sortie (207) du train de séparation (219) n'évacue que les effluents en provenance de la zone de strippage (217). Sur ces sorties d'effluent gazeux (207) et (208), sont disposées des valves de réglage (237) et (238) qui permettent de contrôler l'équilibrage des pressions au niveau de l'ensemble du réacteur ou zone (217) de strippage.

15

Le réacteur de strippage (217) est généralement évasé à sa partie supérieure et garni de chicanes ou baffles (220) dans sa partie inférieure (218) pour améliorer l'efficacité de l'opération de strippage. A la base de la zone de strippage (218), on injecte par un distributeur adapté (221) (grille ou tubes perforés) un gaz de strippage tel que vapeur d'eau, gaz inertes (CO, CO₂, N₂,...), des gaz de combustion, ou des fuel gas.

Le catalyseur une fois strippé est évacué à contre-courant du réacteur 25 (217) par le conduit de soutirage inférieur (239).

REVENDICATIONS

1 - Procédé (a) de craquage catalytique en lit fluidisé d'une charge
hydrocarbonée dans une zone (1) de réaction dans laquelle la charge et
le catalyseur circulent à co-courant de haut en bas et (b) de régénération du catalyseur, dans deux zones de régénération (22) et (37), le
5 procédé consistant à (voir figures 1 et 2) injecter la charge liquide
dans la partie supérieure de la zone de réaction (1) par au moins une
conduite (2) se subdivisant en une pluralité de conduites (9) sensiblement verticales terminées chacune à leur partie inférieure par un
moyen de pulvérisation ou d'atomisation ((114) sur figure 2) de la
10 charge en gouttelettes,

- introduire dans une enceinte aménagée à la partie supérieure de la zone de réaction (1), des particules de catalyseur dont la température est comprise entre 600 et 950° C, provenant, comme indiqué plus loin, d'une zone de régénération (37), par au moins une conduite (3) ou (4) de façon à former dans ladite enceinte un lit fluide de catalyseur,

15

- faire circuler de bas en haut à travers le dit lit catalytique un gaz de façon à entrainer les particules catalytiques du lit

20 de haut en bas à travers une pluralité de conduites de déversement sensiblement verticales (10), permettant ainsi aux particules catalytiques de parvenir dans la zone de réaction proprement dite, chaque conduite verticale (9) d'injection de la charge ayant le même axe qu' une conduite de déversement de catalyseur (10), chaque moyen de pul
25 vérisation ou d'atomisation de la charge liquide se situant au voisinage d'une extrémité supérieure d'une conduite de déversement, pour obtenir, dans les dites conduites de déversement (10), un cheminement d'un courant de charge et un cheminement de particules catalytiques, de façon à vaporiser complètement la charge liquide et à mélanger intimement la charge et les particules de catalyseur.

- laisser en contact dans la zone réactionnelle proprement dite, entre 450 et 700 °C, la charge et le catalyseur, avec un temps de séjour de la charge comprise entre 0,1 et 10 secondes et de préférence entre 0,2 et 4 secondes,

5

- accélérer la vitesse du catalyseur et de l'effluent réactionnel dans la partie inférieure (12) de la zone de réaction, cette partie inférieure de la zone de réaction étant constituée d'au moins un entonnoir en forme d'un tronc de cône ou d'un tronc de pyramide ou de toute autre 10 forme équivalente, dont la pointe est tournée vers le bas et dont le demi angle au sommet est compris entre environ 5 et 30° et de préférence entre 7 et 15°,
- séparer 50 à 90 % des particules catalytiques de l'effluent réactionnel dans au moins une première zone de séparation (13) permettant un temps de séjour inférieur à une seconde, la vitesse de l'effluent gazeux à l'entrée de cette zone de séparation étant de 10 à 40 mètres par seconde de façon à produire un écoulement hélicoïdal du flux de vapeur, sans retournement de la spirale créée, la majorité du reste des particules catalytiques qui ont été entrainées avec l'effluent gazeux étant ensuite séparée de l'effluent réactionnel dans au moins une autre zone de séparation (14) de type à rebours, c'est-à-dire avec retournement de la spirale engendrée par l'injection du flux de l'effluent gazeux dans cette autre zone de séparation,

25

- débarrasser ensuite les particules catalytiques de la majorité des hydrocarbures de l'effluent qu'elles ont entrainés avec elles, à l'aide d'un gaz (stripping),
- 30 transporter de bas en haut, les particules catalytiques (qui à ce stade sont à une température d'au moins 450 °C) à l'aide d'un gaz, porté à une température de 150 à 300 °C, dans une conduite (23) conduisant les dites particules catalytiques dans une première zone de régénération (22),

- procéder à une première étape de régénération du catalyseur, cette étape étant effectuée en lit fluidisé , à une température T₁ comprise entre environ 500 et 750 °C, en présence d'oxygène ou d'un gaz contenant de l'oxygène moléculaire, en vue de provoquer la combustion d'au moins 90 % de l'hydrogène et de préférence sensiblement la totalité de l'hydrogène des produits présents sur le catalyseur et d'oxyder, en majeure partie en CO, 10 à 60 % en poids du carbone présent, sous forme de composés carbonés, sur le catalyseur,
- 10 éliminer la majeure partie des gaz présents dans la première zone de régénération du catalyseur
- soutirer le catalyseur partiellement régénéré dans la dite première zone de régénération, et l'envoyer de bas en haut à travers une conduite (36) au moyen d'un gaz vecteur à base d'oxygène ou d'un gaz contenant de l'oxygène moléculaire et sensiblement exempt de vapeur d'eau, vers la partie inférieure d'une deuxième zone de régénération, laquelle a la forme d'une zone tubulaire sensiblement verticale et allongée (37) dont le rapport loû (où L est la longueur du tube et Ø son diamètre) est compris entre 3 et 90, le catalyseur étant traité dans la deuxième zone de régénération au moyen d'un gaz de régénération renfermant de l'oxygène moléculaire, sensiblement exempt d'eau, à une température T₂ comprise entre 650 et 1000° C, T₂ étant supérieur à T₁, en vue d'obtenir un catalyseur régénéré ne renfermant pas plus de 0,04 % en poids de coke avec production de gaz
 riches en CO₂, le catalyseur ayant été entrainé, pendant la durée de cette deuxième régénération de bas en haut de la zone de régénération (37) au moyen du dit gaz vecteur,
- et soutirer de la deuxième zone de régénération (37) un mélange de 30 gaz et de catalyseur, séparer les particules catalytiques des gaz et renvoyer les dites particules régénérées, dont la température est comprise à ce stade entre 600 et 950 °C, dans la zone (1) de réaction de craquage catalytique par au moins une conduite (3) ou (4).

- 2 Procédé selon la revendication 1 dans lequel la charge, avant d'être introduite dans la zone de réaction (1), est soumise à un préchauffage à une température comprise entre 350 et 450 °C.
- 5 3 Procédé selon l'une des revendications 1 et 2 dans lequel le catalyseur est à base d'au moins une zéolite.
- 4 Procédé selon l'une des revendications l à 3 dans lequel le gaz de régénération utilisé dans la deuxième zone de régénération (37) 10 est de l'air sec.
 - 5 Appareil pour un procédé effectué selon la revendication 1 de craquage catalytique et de régénération de catalyseur comportant (voir figures 1 et 2)

15

- un réacteur (1) allongé et sensiblement vertical
- au moins une conduite (2) d'admission d'une charge liquide dans la partie supérieure du réacteur, la dite conduite se subdivisant en une pluralité de conduites (9) sensiblement verticales dont chacune des extrémités inférieures est munie d'une buse d'atomisation de la dite charge ((114) sur la figure 2),
- au moins deux jambes (3) et (4) sensiblement verticales, pour l'introduction de particules catalytiques dans un réservoir ou une
 25 enceinte aménagé dans la partie supérieure du réacteur (1) au-dessus de la paroi horizontale 113-a,
 - au moins un distributeur ((113) sur la figure 2) d'un fluide gazeux aménagé au voisinage de la paroi horizontale (113-a sur la figure 2),

une pluralité de tubes de déversement (10) des particules catalytiques depuis le dit réservoir jusque dans le réacteur proprement dit, ces tubes de déversement étant agencés de façon à ce que chacune des conduites (9) d'admission de la charge ait le même axe qu'un des tubes de déversement (10) et de façon à ce que chaque buse d'injection de la charge se trouve au voisinage de l'extrémité supérieure d'un tube de déversement (10), l'ensemble des buses (9) et des tubes de déversement (10) formant ainsi une zone de contact et de mélange entre la charge et le catalyseur,

10

15

20

25

- un fond de réacteur (1) comportant au moins un entonnoir en forme d'un tronc de cône ou d'un tronc de pyramide ou de toute autre forme équivalente, dont la pointe est tournée vers le bas et dont le demi-angle au sommet est compris entre environ 5 et 30° et de préférence entre 7 et 15°.

- au moins une zone (13) de séparation primaire, au moyen d'un ou plusieurs cyclones à passage direct où ne s'effectue aucun retournement de la spirale créée, des particules catalytiques de l'effluent réactionnel, les particules catalytiques étant soutirées de cette zone primaire par au moins une jambe (15),

- au moins une zone (14) de séparation secondaire dans laquelle on sépare de l'effluent réactionnel la majeure partie du reste des particules catalytiques que ledit effluent a entraînées avec lui, les particules catalytiques étant soutirées de cette zone secondaire par au moins une jambe (16), l'effluent réactionnel étant soutiré par au moins une conduite (16-a),

- un réacteur ou zone (17) de nettoyage des particules catalytiques (stripping) au moyen d'un gaz introduit par au moins une conduite ((221) voir figure 3), la dite zone (17) étant alimentée en catalyseur par les jambes telles que (16) et (15),
- une jambe (20) d'évacuation des particules catalytiques hors de la zone (17),

5

25

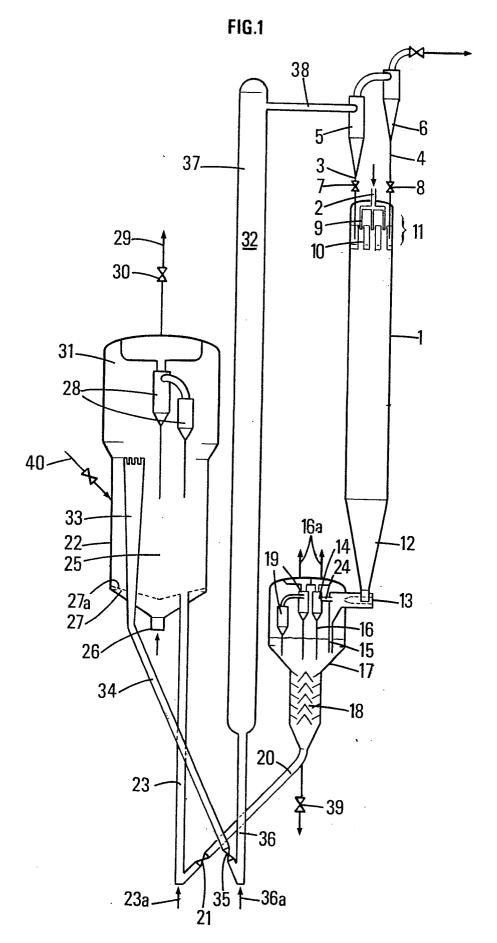
- une conduite (23) sensiblement verticale pour élever les particules 10 catalytiques en provenance de la jambe (20), au moyen d'un gaz élévateur introduit par la conduite (23-a), et faire parvenir ainsi les particules catalytiques à l'intérieur d'un premier réacteur de régénération (22),
- un premier réacteur de régénération (22) comportant une grille ou tout moyen équivalent (27-a) pour supporter un lit catalytique (25), une conduite (26) d'alimentation en oxygène ou en gaz contenant de l'oxygène moléculaire, un dispositif (28) d'au moins un cyclone de séparation des gaz et des particules catalytiques,
- 20 une conduite (29) d'évacuation des gaz et un conduit (33) de soutirage du catalyseur hors de la zone (22),
 - une jambe (34) de descente de catalyseur, communiquant avec la dite conduite (33),
 - un conduit vertical ascendant (36) de catalyseur, le conduit (36) étant alimenté par un gaz de transport ou élévateur introduit par la conduite (36-a),
- 30 un réacteur (37) tubulaire sensiblement vertical de régénération du catalyseur dont le rapport $\frac{L}{\emptyset}$ (où L est la longueur du réacteur tubulaire et \emptyset son diamètre) est compris entre 3 et 90, le réacteur étant équipé d'au moins une buse d'injection d'un gaz de régénération,
- 35 une conduite d'évacuation (38) d'un mélange de gaz et de catalyseur,

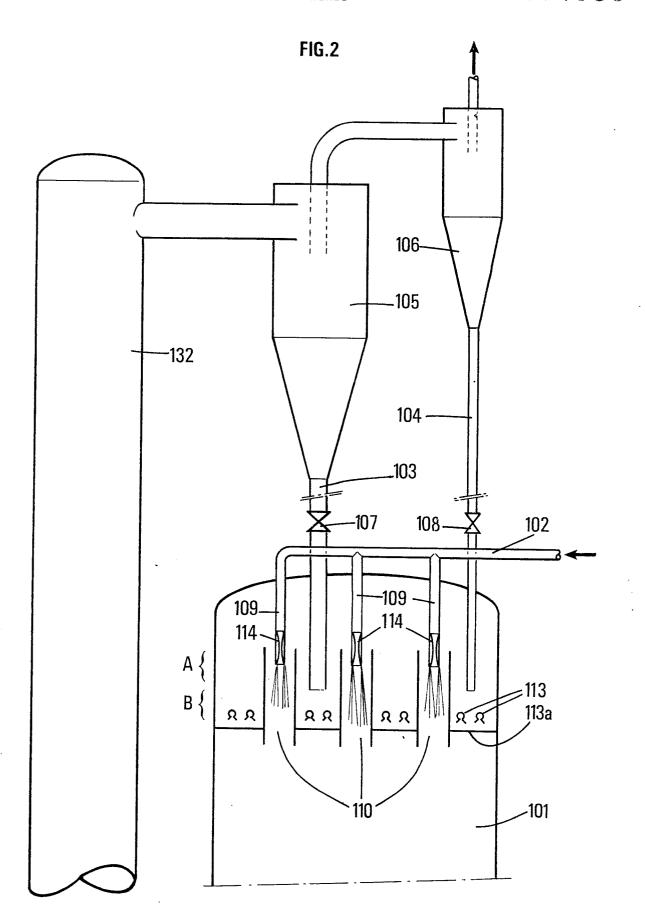
- des moyens de séparation (5) et (6) du catalyseur des gaz, constitués d'au moins deux séparateurs de type cyclone, le catalyseur soutiré de ces séparateurs étant envoyé dans les conduites (3) et (4) d'alimentation en catalyseur du réacteur (1).

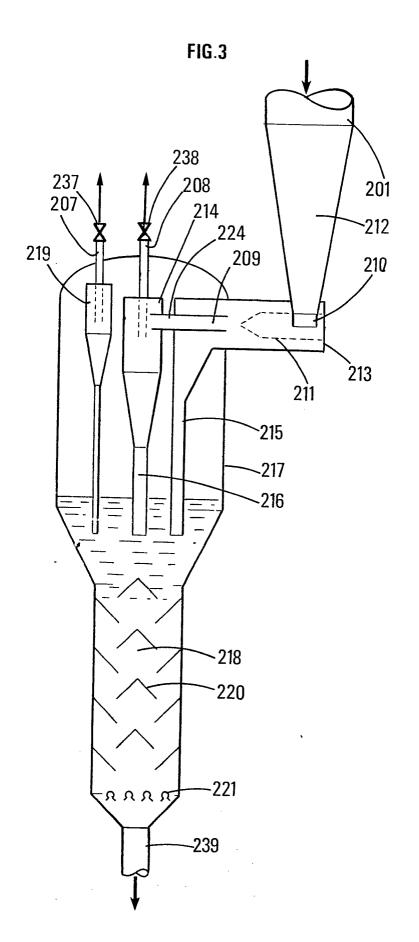
5

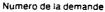
- 6 Appareil selon la revendication 5 dans lequel le long du réacteur (37) de régénération, plusieurs points d'injection d'un gaz de régénération sont repartis à différents niveaux.
- 10 7 Appareil selon l'une des revendications 5 et 6 dans lequel le distributeur ((113) figure 2) est constitué d'une grille ou d'un ensemble de tubes perforés.
- 8 Appareil selon l'une des revendications 5 à 7 dans lequel la zone
 15 (13) de séparation primaire des particules catalytiques comporte au
 moins un cyclone disposé horizontalement et la zone (14) de séparation
 secondaire comporte plusieurs étages de séparation disposés en parallèle ou en série constitués de cyclone dit à rebours.
- 20 9 Appareil selon la revendication 8 dans lequel en outre (voir figures 1 et 3), le réacteur (17) de la figure 1 (ou (217) de la figure 3) pour le nettoyage (stripping) des particules catalytiques à l'issue de leur séparation d'avec l'effluent réactionnel en provenance du réacteur (1) (ou (201) de la figure 3) est évasé dans sa partie inférieure re et contient dans sa partie supérieure la zone secondaire (14) (figure 1) de séparation des particules catalytiques, la zone (14) (figure 1) étant constituée d'un train d'au moins deux étages, le cyclone (213), disposé horizontalement, débouchant à l'intérieur du réacteur (217), la sortie (209) de ce cyclone étant reliée par un conduit (224) 30 à la bouche ou lucarne d'entrée du système de train de séparation (214) (14 sur la figure 1) dit secondaire, la sortie (208) du train de séparation (214) évacuant les effluents gazeux en provenance du réacteur

(201), le réacteur (217) comportant en outre à son extrémité supérieure un train de séparation (219) dont la sortie (207) évacue les effluents des gaz de nettoyage et les gaz éliminés des particules catalytiques, l'équilibrage des pressions au niveau de l'ensemble du 5 réacteur (217) étant assuré par les vannes de réglage (237) et (238).











RAPPORT DE RECHERCHE EUROPEENNE

EP 85 40 1559

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS				
Catégorie		ec indication, en cas de besoin, es pertinent es	Revendication concernee	CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int. Cl.4)
D,A		(GROSS) 2; revendications	1-9	C 10 G 11/18 B 01 J 8/26
D,A	US-A-3 152 065 * Figure 4 *	(SHARP et al.)	. 1-9	
D,A	US-A-4 097 243 * Figures 2-4 *	(BARTHOLIC)	1-9	
A	US-A-4 336 160 * Figure 1; rev	 (DEAN et al.) endications 1-5 *	1-9	
A	US-A-3 923 686 * Figure 1 *	(STINE et al.)	1-9	
				DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int. CI.4)
		·		C 10 G
	•			
ÿ				
Lei	présent rapport de recherche a été é	tabli pour toutes les revendications		
٠	LA HAYE Date d'achèvement de la rec LA HAYE Date d'achèvement de la rec LA HAYE		MICH:	IELS P.
Y:pai aut A:asr	CATEGORIE DES DOCUMENT rticulièrement pertinent à lui seu rticulièrement pertinent en comi tre document de la même catégo ière-plan technologique julgation non-écrite	E : docume ul date de binaison avec un D : cité dan	ou principe à la ba ent de brevet antér dépôt ou après ce is la demande ir d'autres raisons	ieur, mais publié à la tte date