

⑫

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

⑫② Date de dépôt : 15.06.90.

⑫③ Priorité :

⑫④ Date de la mise à disposition du public de la
demande : 20.12.91 Bulletin 91/51.

⑫⑤ Liste des documents cités dans le rapport de
recherche : *Se reporter à la fin du présent fascicule.*

⑫⑥ Références à d'autres documents nationaux
apparentés :

⑦① Demandeur(s) : INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE
— FR.

⑦② Inventeur(s) : Poussin Bernard.

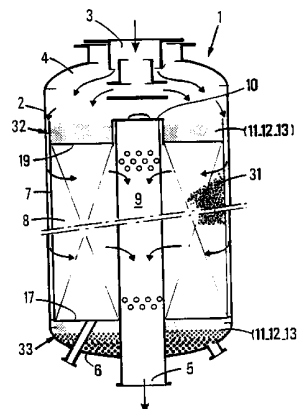
⑦③ Titulaire(s) :

⑦④ Mandataire :

⑤④ Réacteur avec une paroi intérieure et/ou une paroi supérieure comportant une couche de tissu réfractaire et son utilisation.

⑤⑦ L'invention concerne un réacteur pour effectuer des réactions chimiques en phase gazeuse, comportant au moins un compartiment (8) comprenant un garnissage catalytique (31) dans lequel circule radialement au moins un gaz. Il comporte, en guise de paroi supérieure (32), une couche (19) d'un tissu en matière réfractaire, inerte et étanche. Ce tissu coopère avec une première couche de billes (12) qui repose sur le tissu. Il est disposé sur le garnissage (31) de telle façon qu'il assure un recouvrement total de celui-ci.

Application au reformage des essences notamment.



La présente invention concerne un réacteur pour effectuer des réactions chimiques en phase gazeuse à une température et à une pression déterminée et son utilisation. Elle concerne aussi un réacteur pour effectuer un procédé de filtration de particules dans une phase liquide.

5 Ce réacteur opérant en phase gazeuse peut s'appliquer au reformage des coupes pétrolières, à l'aromatisation et à la synthèse du méthanol.

L'invention concerne plus particulièrement les réacteurs d'axe vertical comportant au moins un compartiment rempli d'un lit de particules traversé par un fluide monophasique et de préférence gazeux, pouvant opérer à une pression de 1 à 200 bar par
1 0 exemple.

Selon l'art antérieur, il est connu d'utiliser un réacteur de type radial, de forme cylindrique où le fluide est introduit par une couronne près de la virole dans l'épaisseur d'un garnissage particulaire à base de catalyseur, de forme annulaire. Ce fluide traverse le lit catalytique radialement et l'effluent est collecté dans une cheminée centrale perforée où
1 5 il est ensuite évacué.

La tête du compartiment de particules est généralement composé d'un chapeau coiffant la cheminée, qui plonge dans le lit catalytique et d'un ensemble comprenant un couvercle et une jupe constitués de secteurs boulonnés et démontables qui pénètrent dans le lit catalytique surmonté d'une couche de billes inertes de granulométrie appropriée.
2 0 Cette jupe pénètre dans le lit sur une longueur d'environ 0,5 fois l'épaisseur de celui-ci, cette pénétration représentant le minimum qui doit subsister après retassage supposé du lit catalytique après la mise en température et en pression, afin d'obliger le flux gazeux à parcourir au moins une fois l'épaisseur du lit.

La conception de cet ensemble impose des contraintes de montage et d'assemblage ; l'ajustage des différents éléments s'avère difficile : il faut en effet couper ou rallonger la jupe en fonction de la quantité de catalyseur à charger, de sa propre densité et de sa densité de remplissage, sans négliger les problèmes liés à la fragilisation de la boulonnerie après utilisation.
2 5

Par ailleurs, en tête de lit, la quantité de catalyseur emprisonnée à l'intérieur et à l'extérieur de la jupe travaille peu ou pas du tout, de sorte qu'un volume de catalyseur, généralement cher, pouvant représenter environ 8 à 15 % du volume total du compartiment est inutilisé, ce qui grève de ce fait l'économie du procédé réalisé.
3 0

En fond de lit, il en est de même : la hauteur de garde des moyens de collecte sur la base de la cheminée correspondant à la hauteur du lit parcourue par l'effluent gazeux de

façon à parcourir au moins une fois l'épaisseur du lit, crée une zone morte qui est préjudiciable à l'économie du procédé.

5 Un premier objet de l'invention est d'éviter les zones mortes en tête de lit dans le compartiment particulière. Un autre objet est d'éviter les zones mortes en fond de lit, ces deux objets permettant d'atteindre la capacité maximale de remplissage du compartiment et un optimum de son utilisation.

Un autre objet de l'invention est de pouvoir disposer d'une flexibilité de remplissage du compartiment en fonction de la demande souhaitée avec un minimum de contraintes et donc avec une rapidité accrue.

1 0 Un autre objet de l'invention est de pouvoir adapter la couverture du lit au volume du garnissage au cours de la marche du réacteur en température et en pression et de manière générale, quel que soit le type de charge liquide ou gazeuse, de suivre le tassement du lit grâce à une nouvelle couverture souple épousant la forme du lit selon un plan globalement radial.

1 5 L'invention propose donc une nouvelle couverture de compartiment comportant un garnissage, évitant notamment le passage du gaz selon un trajet globalement axial et favorisant la traversée de l'épaisseur du garnissage selon un plan sensiblement radial.

2 0 Plus précisément l'invention concerne un réacteur pour effectuer des réactions chimiques en phase gazeuse, à une température donnée ou pour filtrer au moins un fluide contenant des particules solides, comportant au moins un compartiment (8) comprenant au moins un garnissage (31) sous forme de particules, dans lequel circule radialement ou transversalement au moins un gaz ou un liquide, le compartiment comportant en outre une paroi supérieure (32), caractérisé en ce qu'il comporte, en guise de paroi supérieure, une couche d'un tissu (19) de forme approprié, en matière réfractaire, sensiblement inerte et
2 5 sensiblement imperméable ou ayant une texture et une porosité telles que le dit tissu crée une perte de charge supérieure à celle engendrée par le garnissage de particules, ledit tissu coopérant avec une première couche sensiblement inerte de billes (11, 12, 13) ou d'un matériau particulière de granulométrie et de poids appropriés qui repose sur ledit tissu (19) et étant disposé sur le garnissage (31) de telle façon qu'il assure un recouvrement
3 0 sensiblement total dudit garnissage.

Par tissu de forme appropriée, on entend un tissu épousant sensiblement la géométrie de la section du compartiment qui peut être de section carrée ou rectangulaire et avantageusement annulaire.

Ce tissu peut être constitué d'un seul morceau ou d'une pluralité de morceaux cousus et agencés de telle façon qu'ils constituent un seul morceau de tissu sensiblement étanche.

5 Le réacteur comprend généralement au moins un compartiment de catalyseur. Ce compartiment peut être de forme parallélépipédique à section sensiblement rectangulaire ou carrée. Il peut être de forme sensiblement cylindrique à section sensiblement annulaire avec une enveloppe de distribution d'un gaz ou d'un liquide tout autour du compartiment cylindrique et une cheminée centrale sensiblement cylindrique comportant des moyens de collecte d'un effluent. Dans ces cas de figure, la surface du tissu est en général au moins
10 égale à la surface du compartiment selon un plan radial ou transversal occupée par le garnissage traversé par les gaz ou le liquide. La cheminée peut être recouverte par un chapeau métallique ou par un chapeau en tissu réfractaire sensiblement étanche, le tissu constituant le toit du compartiment et le chapeau étant réalisés d'un seul morceau ou d'une pluralité de morceaux taillés et cousus de façon adéquate pour être sensiblement étanches.

15 Pour des raisons de commodité on considère le cas où le garnissage est un catalyseur traversé par un gaz ou un mélange de gaz.

Selon un autre mode de réalisation, le compartiment du réacteur peut comporter en outre une paroi inférieure (33) ou plancher comprenant une couche (17) dudit tissu de forme appropriée qui coopère avec une deuxième couche sensiblement inerte de billes
20 (11, 12, 13) ou d'un matériau particulaire de granulométrie appropriée et qui repose sur ladite deuxième couche inerte de façon à assurer un recouvrement sensiblement total de la deuxième couche.

L'étanchéité axiale ainsi réalisée due à la pression des gaz à l'entrée et au poids du matériau particulaire sur la couverture du lit et l'absence de zones mortes dans le lit
25 permettent d'améliorer l'efficacité des zones traversées par une meilleure utilisation du garnissage, en l'occurrence du catalyseur. Par ailleurs, la mise en oeuvre du dispositif est facile dans la mesure où cet équipement léger ne nécessite pas d'outillage particulier et son temps de mise en place est très court. En effet, il n'y a généralement pas d'ajustage ou de recoupage de la couverture à prévoir en fonction de la hauteur définitive de
30 catalyseur qui est fonction de la quantité souhaitée par le client, la densité propre du catalyseur et la densité du chargement (chargement dense ou chargement à la manche).

La solution proposée avec toit et plancher de compartiment catalytique en tissu coopérant avec les couches de billes est particulièrement bien adaptée pour les réacteurs

de petite dimension, par exemple pour les réacteurs cylindriques à cheminée centrale, de diamètre par exemple égal à 1.400 mm.

5 Ces modes particulièrement avantageux de couverture et de plancher de compartiment annulaire assurent le maintien de l'étanchéité dans la partie haute du réacteur lors du tassement du catalyseur et empêchent l'intrusion du catalyseur dans sa partie basse lors du chargement.

1 0 Le tissu utilisé selon l'invention est constitué de fibres généralement en matière céramique et ayant une bonne résistance à la traction même à haute température par exemple de 15.000 à 28.000 kg/cm² entre 370 et 540°C. Ce sont des tissus céramiques réfractaires comprenant en général 50 à 60 % d'oxyde de silicium et 10 à 50 % d'oxyde d'aluminium. Ils ont en général une porosité comprise entre 2 et 8 % et avantageusement entre 3 et 5 %.

1 5 - Ils sont souples et résistants aux déformations ;
 - Ils résistent à des températures supérieures à 1.200°C ;
 - Ils peuvent être combinés avec d'autres oxydes de métaux (alcalins, alcalino-terreux, fer, titane, bore, par exemple) augmentant leur résistance mécanique et/ou leur étanchéité. On utilise, par exemple, le textile ZETEX (marque déposée) dont la composition des fibres est avantageusement la suivante :

2 0	Oxyde de silicium	52-60 %
	Oxyde de calcium	16-25 %
	Oxyde d'aluminium	10-12 %
	Oxyde de bore	8-13 %
	Oxyde de calcium et de sodium	0-1 %
	Oxyde de Magnesium	0-6 %

2 5 et dont la résistance à la traction est par exemple d'environ 17.400 kg/cm² à 540°C.

Selon un autre mode d'utilisation, le tissu peut être rendu sensiblement étanche par dépôt d'une couche d'aluminium-mylar par exemple.

3 0 On peut aussi utiliser le tissu "KATISS" composé d'une nappe fibre céramique KERLANE 45, résistant jusqu'à plus de 1.260°C, renforcée sur ses deux faces d'un tissu de verre E (sillione) de porosité 2 à 5 % . Il a le plus souvent la composition suivante :

	Al ₂ O ₃	47 %
	SiO ₂	52 %
	Fe ₂ O ₃ + TiO ₂	≤ 0,20 %
	CaO + MgO	≤ 0,15 %
5	Na ₂ O + K ₂ O	≤ 0,25 %

Le tissu composé de fibres réfractaires CERAFIBER renforcées par des fils d'inconel résistant à 1.260°C en atmosphère oxydante normale peut aussi être utilisé. Il comprend:

1 0	Al ₂ O ₃	46,5 %
	SiO ₂	53 %
	Fe ₂ O ₃	0,1 %
	TiO ₂	0,05 %
	MgO	0,01 %
1 5	CaO	0,04 %
	Na ₂ + K ₂ O	0,2 %

Les billes ou matériau particulaire qui reposent en au moins une couche sur la couverture en tissu du lit catalytique ou sur lesquelles repose le plancher en tissu selon l'invention sont en général sensiblement inertes. Elles peuvent être constituées d'un support de catalyseur. Lorsque une ou plusieurs couches sont utilisées, la couche en contact avec le tissu selon l'invention est en général de faible granulométrie, par exemple 0,5 à 0,8 cm alors que la granulométrie de l'autre couche lorsqu'il y en a deux atteint par exemple 2 à 3 cm. Des billes en alumine sont généralement utilisées.

L'invention sera mieux comprise au vu des différentes figures illustrant de manière schématique des modes de réalisation du réacteur, parmi lesquelles :

- la figure 1 montre une coupe longitudinale d'un réacteur radial ;
- les figures 2 et 3 représentent une tête et un fond de lit catalytique avec respectivement un morceau de tissu et une pluralité de morceaux de tissu assemblés par une couture ;
- les figures 4, 5, 6 et 7 illustrent des variantes où l'étanchéité est maintenue le long de la cheminée ou le long du chapeau coiffant la cheminée du réacteur annulaire.

Selon la figure 1, un réacteur cylindrique (1) de type radial adapté à travailler en température et sous pression comprend une virole (2) métallique de forme cylindrique avec une entrée (3) d'une charge gazeuse au niveau du fond supérieur (4) et une sortie (5) d'un effluent au niveau du fond inférieur (6). Tout autour de la virole et calée à l'intérieur

du réacteur, une couronne annulaire (7) percée d'ouvertures distribue la charge de manière sensiblement radiale dans un compartiment (8) catalytique de forme annulaire. Le catalyseur est constitué d'un lit comprenant des billes, des pastilles ou plus généralement des bâtonnets de granulométrie égale à environ 1 à 2 mm de diamètre et 4 à 6 mm de long. L'effluent après avoir traversé radialement le lit catalytique, est récupéré par une cheminée (9) centrale de forme cylindrique qui est en général un tube perforé recouvert d'une grille (30) et est évacué par la sortie (5). Au-dessus de la cheminée, un chapeau métallique (10) entourant la partie supérieure de celle-ci, plonge dans le lit catalytique et assure l'étanchéité de la cheminée vis-à-vis de la charge.

1 0 Le fond inférieur (6) du réacteur (figure 2) est rempli d'une couche (50 cm) de billes (11) en céramique d'alumine ou alumine et oxyde de silice, par exemple de granulométrie environ égale à 1,9 cm, sur laquelle repose une autre couche (12) de 10 cm de billes de nature sensiblement identique, de granulométrie environ égale à 0,63 cm et enfin une troisième couche (13) de 5 cm de support de catalyseur inerte. Sur cette
1 5 troisième couche est disposée une couche de tissu (14) en fibres de matière céramique ZETEX (marque déposée), sensiblement étanche, constitué d'un seul morceau de forme sensiblement annulaire qui a été taillé à la forme de la surface du compartiment. De préférence, ce tissu a été découpé à une surface plus grande qu'il n'en faut pour recouvrir le compartiment de sorte qu'au moins une extrémité, de préférence côté cheminée, peut
2 0 être redressée contre la paroi de celle-ci. Le catalyseur repose sur ce tissu et son poids contribue à l'étanchéité axiale de la paroi inférieure du compartiment.

Le fond (4) supérieur du réacteur comprend au dessus du lit catalytique sur lequel elle s'appuie une couche de tissu (19) en matière céramique décrite ci-dessus. Une première couche de 10 cm de billes ou d'un matériau particulière de granulométrie par
2 5 exemple égale à 1,9 cm et une seconde couche de billes de 10 cm en contact avec la couche de tissu, de granulométrie par exemple égale à 0,63 cm reposent sur le tissu. Ces deux couches exercent sur le lit une charge uniformément répartie et contribuent avec la couche de tissu à une étanchéité axiale parfaite du lit.

La couche de tissu est constituée d'une pluralité de morceaux de tissu ayant chacun
3 0 une forme de secteur annulaire, mis bout à bout de façon à être cousus de manière connue par un fil indestructible à la chaleur. Une couronne (21) de tissu selon l'invention peut être disposée grâce à un collier de serrage (22) contre le chapeau (10) coiffant la cheminée et peut être cousue aux différents secteurs angulaires de sorte que la couronne et la couche de tissu recouvrant le lit catalytique forment un seul morceau de tissu.

La partie excédentaire du tissu relevée contre la cheminée matérialisée par cette couronne (21) ne comportant pas de collier (22) peut être recouverte, comme le montre la figure 4, par une autre couronne (21a) de tissu dont la partie supérieure adhère à la cheminée (9) ou au chapeau (10) grâce à un autre collier (22) et dont le reste recouvre l'extrémité correspondant à la partie excédentaire du tissu. Ainsi, une déformation de la surface du lit catalytique consécutive à un éventuel tassement du catalyseur peut être compensée par le coulissement du tissu appliqué contre le chapeau ou la cheminée sous la couronne.

La couronne de tissu (21a), libre de tout mouvement peut constituer aussi la partie cylindrique d'un chapeau (10) en tissu réfractaire selon l'invention, comme cela est montré dans la figure 5, qui coiffe la cheminée (9), la partie de tissu de la couronne (21) coulissant sous la couronne (21a) du chapeau.

Selon la figure 6, l'extrémité du tissu appliquée contre la cheminée ou le chapeau correspondant à la partie excédentaire par rapport à la surface du lit catalytique est ajustée de façon à avoir une longueur telle qu'elle constitue un soufflet de sécurité (25) permettant de remédier aux éventuels tassements du catalyseur.

Enfin selon la figure 7, la couverture (19) du lit catalytique, la couronne (21) et le chapeau (10) avec son soufflet de sécurité peuvent former un ensemble d'un seul morceau de tissu convenablement agencé et rendu étanche par des coutures connues de l'Homme de l'Art. Cette solution technique est avantageuse car cet ensemble peut être très facilement installé et retiré du réacteur.

Selon un mode de réalisation particulier, la couche de tissu et la couronne (21a) peuvent être reliées par un fil (24) non destructible par la chaleur pour être facilement remontés avec la cheminée ou son chapeau (figure 4).

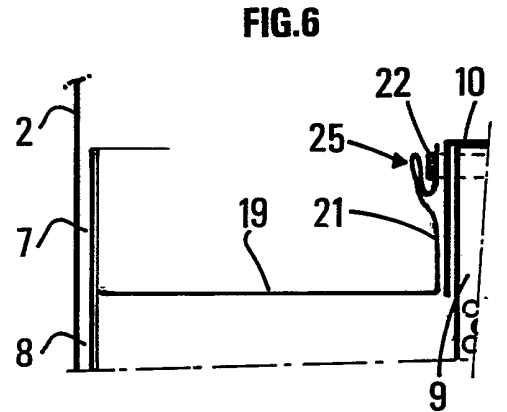
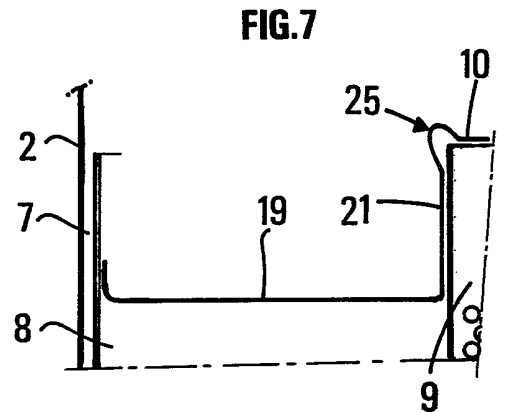
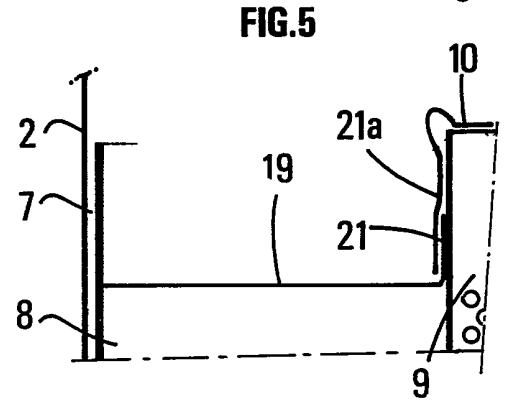
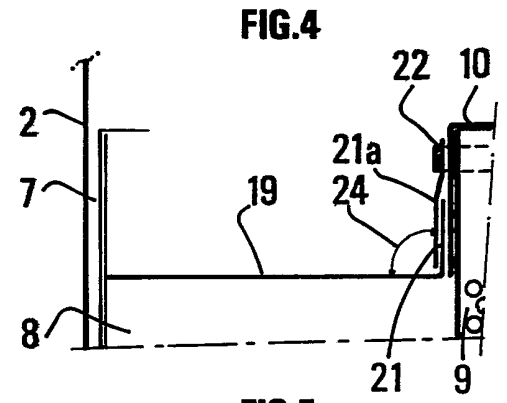
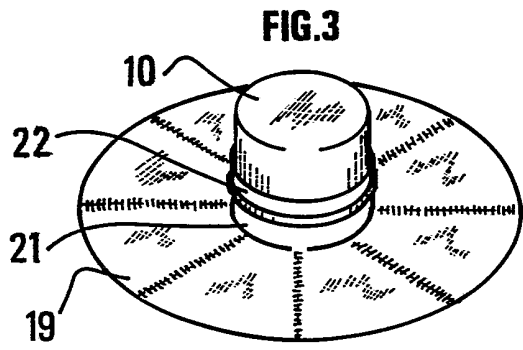
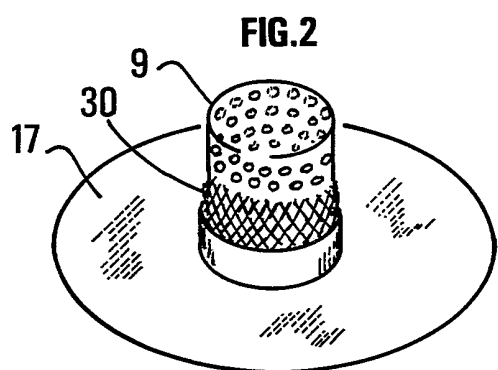
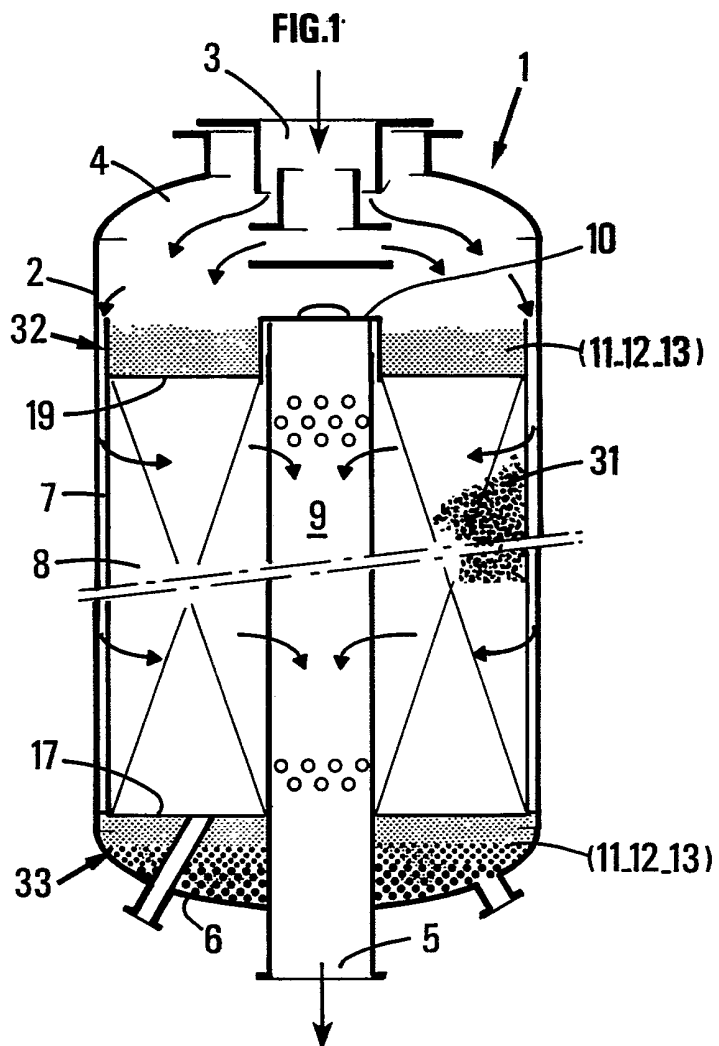
On a illustré le cas où la partie excédentaire de la couche de tissu était appliquée contre la cheminée ou le chapeau. Il est bien entendu qu'une partie excédentaire de la bande peut éventuellement être appliquée contre la couronne extérieure de distribution de la charge, de façon à servir de sécurité, comme illustré par la figure 7.

REVENDEICATIONS

- 1) Réacteur pour effectuer des réactions chimiques en phase gazeuse, à une température donnée ou pour filtrer au moins un fluide contenant des particules solides, comportant au moins un compartiment (8) comprenant au moins un garnissage (31) sous forme de particules, dans lequel circule radialement ou transversalement au moins un gaz ou un liquide, le compartiment comportant en outre une paroi supérieure (32), caractérisé en ce qu'il comporte, en guise de paroi supérieure, une couche d'un tissu (19) de forme appropriée, en matière réfractaire, sensiblement inerte et sensiblement imperméable ou ayant une texture et une porosité telles que ledit tissu crée une perte de charge supérieure à celle engendrée par le garnissage de particules, ledit tissu coopérant avec une première couche sensiblement inerte de billes (11, 12, 13) ou d'un matériau particulaire de granulométrie et de poids appropriés qui repose sur ledit tissu (19) et étant disposé sur le garnissage (31) de telle façon qu'il assure un recouvrement sensiblement total dudit garnissage.
- 2) Réacteur selon la revendication 1, caractérisé en ce que le compartiment comporte en outre une paroi inférieure (33) comprenant une couche (17) dudit tissu de forme appropriée qui coopère avec une deuxième couche sensiblement inerte de billes (11, 12, 13) ou d'un matériau particulaire de granulométrie appropriée et qui repose sur ladite deuxième couche inerte de façon à assurer un recouvrement sensiblement total de la deuxième couche.
- 3) Réacteur selon la revendication 1 ou 2 dans lequel le tissu est constitué d'un seul morceau de forme appropriée ou d'une pluralité de morceaux cousus de telle façon qu'ils constituent un seul morceau de tissu sensiblement étanche.
- 4) Réacteur selon l'une des revendications 1 à 3 dans lequel ledit tissu est à base de fibres en matière céramique.
- 5) Réacteur selon l'une des revendications 1 à 4 dans lequel ledit tissu est rendu sensiblement étanche par dépôt d'une couche d'alumine.
- 6) Réacteur selon l'une des revendications 1 à 5 dans lequel la surface du tissu est sensiblement égale ou supérieure à la surface selon un plan radial ou transversal du compartiment occupé par le garnissage.
- 7) Réacteur selon l'une des revendications 1 à 6 dans lequel le compartiment a une section de forme sensiblement annulaire avec une enveloppe de distribution du gaz ou du

liquide tout autour du compartiment et une cheminée centrale sensiblement cylindrique comportant des moyens de collecte d'un effluent.

- 5 8) Réacteur selon l'une des revendications 1 à 7 dans lequel la cheminée (9) est recouverte par un chapeau (10) métallique ou par un chapeau (10) en tissu réfractaire sensiblement étanche.
- 9) Réacteur selon l'une des revendications 1 à 8 dans lequel l'extrémité correspondant à la partie excédentaire (21) de tissu est relevée et est fixée à la cheminée ou au chapeau coiffant la cheminée.
- 1 0 10) Réacteur selon l'une des revendications 1 à 8 dans lequel l'extrémité correspondant à la partie excédentaire de tissu est relevée et recouverte par une couronne (21a) de tissu en matière réfractaire dont la partie inférieure recouvre ladite extrémité de telle façon que celle-ci coulisse sous la couronne.
- 1 5 11) Réacteur selon l'une des revendications 1 à 7, dans lequel l'extrémité correspondant à la partie excédentaire de tissu est agencée au moyen de coutures appropriées de façon à constituer un chapeau sensiblement étanche.
- 12) Réacteur selon l'une des revendications 1 à 11 dans lequel l'extrémité correspondant à la partie excédentaire de tissu présente une longueur telle qu'elle constitue un soufflet de sécurité (25).
- 2 0 13) Réacteur selon l'une des revendications 1 à 6, 10 et 12, dans lequel le compartiment a une section de forme sensiblement rectangulaire ou carrée.
- 14) Utilisation du réacteur selon l'une des revendications 1 à 13 dans un procédé de synthèse du méthanol, dans un procédé de réformage d'une coupe pétrolière, dans un procédé de filtration.



INSTITUT NATIONAL
de la
PROPRIETE INDUSTRIELLE

RAPPORT DE RECHERCHE
établi sur la base des dernières revendications
déposées avant le commencement de la recherche

N° d'enregistrement
national

FR 9007614
FA 443666

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS		Revendications concernées de la demande examinée
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	
X	US-A-2 961 304 (COLLINS) * Revendications 1,2; figures 1-3 *	1
A	---	2-14
A	US-A-4 374 095 (LEGG et al.) * Colonne 6, lignes 44-53; figure 1 * -----	1-14
		DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int. Cl.5)
		B 01 J B 01 D C 07 C C 10 G
Date d'achèvement de la recherche		Examineur
21-02-1991		MEERTENS J.
CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : pertinent à l'encontre d'au moins une revendication ou arrière-plan technologique général O : divulgation non-écrite P : document intercalaire		T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure. D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant

EPO FORM 1503 03.82 (1/0413)