(19) Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets

(11) Veröffentlichungsnummer: **0 061 111**
A2

(12) EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(21) Anmeldenummer: **82102053.4**

(22) Anmeldetag: **13.03.82**

(51) Int. Cl.³: **E 21 B 43/24**
E 21 B 43/40, C 10 J 5/00

(30) Priorität: **21.03.81 DE 3111137**

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:
29.09.82 Patentblatt 82/39

(84) Benannte Vertragsstaaten:
BE FR GB LU NL

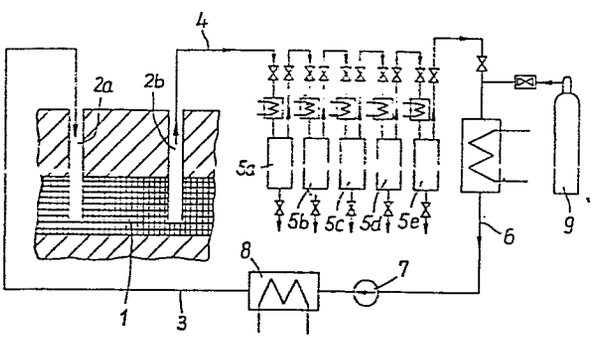
(71) Anmelder: **Fried. Krupp Gesellschaft mit beschränkter Haftung**
Altendorfer Strasse 103
D-4300 Essen 1(DE)

(72) Erfinder: **Coenen, Hubert, Dr.**
Wortbergrode 13
D-4300 Essen 1(DE)

(72) Erfinder: **Kriegel, Ernst, Dr.**
Juistweg 51
D-4300 Essen 1(DE)

(54) Verfahren zur Untertagevergasung fester Brennstoffe.

(57) Verfahren zur Untertagevergasung fester Brennstoffe, bei dem das unterirdische Brennstofflager (1) zunächst aufgeschlossen und dann mit einem Vergasungsmittel in einen gasförmigen Brennstoff umgewandelt wird. Der Aufschluß des Brennstofflagers (1) erfolgt durch Behandlung mit einem im überkritischen Zustand befindlichen Gas (3), vorzugsweise mit Kohlendioxid oder niederen Kohlenwasserstoffen, das, die flüchtigen organischen Bestandteile des Brennstoffs und das im Brennstoff enthaltene Wasser aufnimmt, wodurch die Gasdurchlässigkeit des Brennstofflagers (1) erhöht wird. Aus der beladenen überkritischen Gasphase (4) werden die gelösten organischen Verbindungen sowie das Wasser durch Druckerniedrigung und/oder Temperaturänderung über Tag in mehreren Fraktionen abgeschieden. Das Gas wird in den überkritischen Zustand überführt und erneut zum Aufschluß des Brennstofflagers (1) verwendet.



EP 0 061 111 A2

FRIED. KRUPP GESELLSCHAFT MIT BESCHRÄNKTER HAFTUNG
in Essen

Verfahren zur Untertagevergasung fester Brennstoffe

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Untertagevergasung fester Brennstoffe, bei dem der unter der Erdoberfläche lagernde Brennstoff zunächst aufgeschlossen und dann durch eine chemische Reaktion mit einem Vergasungsmittel in einen gasförmigen Brennstoff umgewandelt wird.

Es ist bekannt, daß feste Brennstoffe, insbesondere Kohle, am Ort ihres Vorkommens vergast werden können, wodurch die mechanische Brennstofförderung überflüssig wird und auch weniger abbauwürdige Brennstoffvorkommen genutzt werden können. Bei den bekannten Untertagevergasungsverfahren werden von der Erdoberfläche Bohrlöcher bis in die Lagerstätte des Brennstoffs niedergebracht. Über diese Bohrlöcher wird das Brennstofflager durch einen geeigneten Prozeß aufgeschlossen, wobei eine Erhöhung der bereits mehr oder weniger vorhandenen Gasdurchlässigkeit des Brennstoffs eintritt. Anschließend wird in das aufgeschlossene Brennstofflager über eines oder mehrere Bohrlöcher das Vergasungsmittel eingeführt und die Vergasungsreaktion durch Zündung gestartet. Als Vergasungsmittel werden Luft, mit Sauerstoff angereicherte Luft oder mit Wasserdampf vermischte Luft verwendet. Bei der Untertagevergasung laufen die nachfolgend aufgeführten bekannten Vergasungsreaktionen

ab:

C	+ O_2	= CO_2	+ 97,0 kcal
C	+ 1/2 O_2	= CO	+ 29,3 kcal
C	+ CO_2	= 2CO	- 38,4 kcal
CO	+ 1/2 O_2	= CO_2	+ 68,2 kcal
C	+ H_2O	= CO	+ H_2-28,3 kcal
CO	+ H_2O	= CO_2	+ H_2+10,11 kcal

Das bei der Untertagevergasung entstehende Gas hat bei Verwendung von 60% Sauerstoff und 40% Wasserdampf als Vergasungsmittel einen Heizwert von ca. 1350 kcal/Nm^3. Dieses Gas wird über die Bohrlöcher aus dem Brennstofflager gefördert und kann als Heizgas oder - nach entsprechender Vorbehandlung - als Synthesegas verwendet werden.

Der Aufschluß des Brennstofflagers vor der eigentlichen Untertagevergasung ist erforderlich, um das Brennstofflager für das Vergasungsmittel und das entstehende Gas genügend durchlässig zu machen. Für den Aufschluß des Brennstofflagers können folgende bekannte Aufschlußprozesse verwendet werden:

1. Widerstandsverfahren: Hierbei werden in die Bohrlöcher Elektroden eingebracht, und an die Elektroden wird ein Strom angelegt, der das Brennstofflager erhitzt und im Brennstoff verkokte Zonen schafft, die für Gase durchlässig sind.

2. Kanalbrennverfahren: Bei diesem Verfahren werden in das Brennstofflager Kanäle eingebrannt.

3. Hydraulische Bohrlochbehandlung: Hierbei werden im Brennstofflager durch eingepreßte Flüssigkeiten Risse erzeugt.

4. Direktes Bohren: Bei diesem Verfahren werden von den senkrechten Bohrlöchern abgelenkte Bohrlöcher in das Brennstofflager bis zum nächsten senkrechten Bohrloch vorgetrieben. Im Anschluß daran kann das abgelenkte Bohrloch noch durch Ausbrennen erweitert werden.

Die bekannten Aufschlußprozesse haben den Nachteil, daß insbesondere die in den festen Brennstoffen vorhandenen flüchtigen organischen Bestandteile nicht entfernt werden. Dies führt dazu, daß bei der eigentlichen Untertagevergasung die flüchtigen Bestandteile aus dem vergasten Lagerabschnitt ausgetrieben werden und die im benachbarten Lagerabschnitt vorhandenen gasdurchlässigen Poren und Risse verkleben. Außerdem wird das im festen Brennstoff vorhandene Wasser durch die bekannten Aufschlußprozesse nicht entfernt, was dazu führt, daß der Heizwert des durch Untertagevergasung erzeugten Gases entsprechend herabgesetzt wird.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zur Untertagevergasung fester Brennstoffe zu schaffen, bei dem die im festen Brennstoff enthaltenen flüchtigen Bestandteile gewonnen werden können und das ein Gas mit hohem Heizwert liefert. Außerdem soll die Lenkbarkeit und Wirtschaftlichkeit der Untertagevergasung mit der Erfindung verbessert werden.

Die der Erfindung zugrunde liegende Aufgabe wird dadurch gelöst, daß der Brennstoff durch Behandlung mit einem im überkritischen Zustand befindlichen Gas unter Tag aufgeschlossen wird, wobei sich die im Brennstoff enthaltenen flüchtigen organischen Verbindungen sowie Wasser im überkritischen Gas lösen, und daß aus der beladenen überkritischen Gasphase die in ihr gelösten organischen Verbindungen sowie das gelöste Wasser durch Druckerniedrigung und/oder Temperaturänderung über Tag in wenigstens zwei Fraktionen abgeschieden werden. Aus der DE-AS 1 493 190 ist zwar ein Verfahren zur Trennung organischer Stoffgemische durch Behandlung der Gemische mit einem überkritischen Gas und anschließender Abscheidung der in der überkritischen Gasphase gelösten Stoffe durch Druckerniedrigung und/oder Temperaturerhöhung bekannt; für den Fachmann ist es aber nicht naheliegend, überkritische Gase bei der Untertagevergasung fester Brennstoffe als Aufschlußmittel einzusetzen, da nicht erwartet werden konnte, daß insbesondere die flüchtigen organischen Verbindungen aus dem festen Brennstoff in vorteilhafter Weise unter Tag extrahiert und über Tag zurückgewonnen werden können. Durch die Extraktion der flüchtigen Bestandteile wird verhindert, daß sie die gasdurchlässigen Poren des Brennstoffs beim Vergasungsprozeß verkleben und so die Gasdurchlässigkeit des Brennstoffs nachteilig beeinflussen. Außerdem ist es vorteilhaft, daß das im Brennstoff vorhandene Wasser durch das überkritische Gas weitgehend aufgenommen wird, wodurch sich der Heizwert des bei der Untertagevergasung erzeugten Gases entsprechend erhöht. Durch die nach der Erfindung vorgesehene frak-

tionsweise Abscheidung der aus dem Brennstoff extrahierten gasförmigen und flüssigen organischen Verbindungen sowie des Wassers können in vorteilhafter Weise Rohstoffe, insbesondere aromatische Kohlenwasserstoffe, gewonnen werden. Die Abscheidung der gelösten Stoffe kann nach der Erfindung allein durch Druckerniedrigung oder allein durch Temperaturänderung (Temperaturerhöhung oder Temperatursenkung) oder durch gleichzeitige Druckerniedrigung und Temperaturänderung (Temperaturerhöhung oder Temperatursenkung) erfolgen.

Nach der Erfindung ist es besonders vorteilhaft, wenn das im überkritischen Zustand befindliche Gas bei seinem Eintritt in das Brennstofflager eine Temperatur von 10 bis 100°C über seiner kritischen Temperatur und einen Druck von 2 bis 300 bar über seinem kritischen Druck hat. Durch diese Zustandsbedingungen wird sichergestellt, daß das Gas einerseits auch im Brennstofflager seinen überkritischen Zustand beibehält und andererseits mit einem wirtschaftlich vertretbaren Energieaufwand in das Brennstofflager eingebracht wird. Ferner ist nach der Erfindung vorgesehen, daß die Temperatur des überkritischen Gases auf seinem Extraktionsweg unter Tag so abnimmt, daß es bei seinem Austritt aus dem Brennstofflager eine Temperatur aufweist, die 5 bis 15°C über seiner kritischen Temperatur liegt. Durch diese Maßnahme wird erreicht, daß sich das überkritische Gas auf seinem Extraktionsweg laufend mit einer größeren Menge an extrahierten Verbindungen belädt, da das Lösungsvermögen überkritischer Gase in einem Temperaturbereich, der wenig oberhalb der

kritischen Temperatur liegt, in der Regel ein Optimum aufweist und mit steigender Temperatur abnimmt. Durch den nach der Erfindung unter Tag vorgesehenen Temperaturgradienten des überkritischen Gases wird also vermieden, daß extrahierte Stoffe vor dem Austritt der überkritischen Gasphase aus dem Brennstofflager ausfallen und die gasdurchlässigen Poren des Brennstoffs verkleben. Die Erfindung schlägt auch vor, daß die Eintrittstemperatur des überkritischen Gases in das Brennstofflager während des Aufschlusses um 2 bis 50°C gesenkt wird. Dadurch wird das Extraktionsvermögen des überkritischen Gases während des Aufschlusses des Brennstofflagers laufend gesteigert, und die Verringerung der Extraktionsgeschwindigkeit, die von der Abnahme der zu extrahierenden Stoffmenge während des Aufschlusses verursacht wird, kann durch die Steigerung des Lösungsvermögens des überkritischen Gases ausgeglichen werden. Dadurch, daß die Eintrittstemperatur des überkritischen Gases in das Brennstofflager während des Aufschlusses gesenkt wird und die Austrittstemperatur des überkritischen Gases aus dem Brennstofflager nur wenig oberhalb der kritischen Temperatur des Gases liegt, wandert die Zone, innerhalb der das überkritische Gas eine maximale Extraktionswirkung hat, in vorteilhafter Weise entgegengesetzt zur Strömungsrichtung des überkritischen Gases. Das erfindungsgemäße Verfahren kann mit besonders gutem Erfolg durchgeführt werden, wenn zum Aufschluß des Brennstoffs CO_2 verwendet wird, da überkritisches CO_2 sowohl für Wasser als auch für die im festen Brennstoff enthaltenen organischen Verbindungen ein hinreichend gutes Lösungsvermögen besitzt und ohne aufwendige Sicherheitsvorkehrungen eingesetzt werden kann. Außerdem

hat CO_2 einen kritischen Druck von p_{krit} = 73,9 bar und eine kritische Temperatur von T_{krit} = 31°C, die seinen Einsatz zum Aufschluß unterirdischer Kohlevorkommen für die Untertagevergasung wirtschaftlich sinnvoll erscheinen lassen, zumal in vielen Brennstofflagern eine Temperatur herrscht, die oberhalb der kritischen Temperatur des CO_2 liegt. Nach der Erfindung ist ferner vorgesehen, daß zum Aufschluß des Brennstoffs Äthan, Äthen, Propan oder Mischungen dieser Gase verwendet werden. Bei der Anwendung dieser erfindungsgemäßen Verfahrensmaßnahme ist allerdings darauf zu achten, daß Sicherheitsrisiken vermieden werden.

Der Gegenstand der Erfindung wird nachfolgend anhand der Zeichnung näher erläutert. Für die Untertagevergasung sind insbesondere Kohlevorkommen geeignet, für die ein bergmännischer Abbau nicht lohnend erscheint und die insbesondere keine wasserführenden Schichten enthalten. Das Verfahren kann aber auch bei Ölschiefer- und Ölsand-Lagerstätten angewendet werden, wenn die geologischen Verhältnisse dies zulassen. Voraussetzung für die Anwendbarkeit des erfindungsgemäßen Verfahrens ist nämlich eine dichte Lagerstätte, aus der die beladene überkritische Gasphase nahezu vollständig zurückgewonnen werden kann.

In ein derartiges Kohlevorkommen 1 werden zwei senkrechte Bohrlöcher 2a, 2b niedergebracht. Über das Bohrloch 2a wird das zum Auschluß verwendete überkritische CO_2 in das Kohlevorkommen 1 gefördert. Anstelle des überkritischen CO_2 können auch überkritische Propan, Äthan, Äthen oder Mischungen dieser gasförmigen Kohlenwasserstoffe verwendet werden, wobei allerdings gewähr-

leistet sein muß, daß durch die Verwendung dieser Gase keine Sicherheitsrisiken entstehen. Das überkritische CO_2 hat bei seinem Eintritt in das Brennstofflager eine Temperatur von ca. 60° und einen Druck von ca. 300 bar. Das überkritische CO_2 diffundiert durch das Kohlelager und belädt sich dabei mit flüchtigen organischen Verbindungen sowie mit Wasser. Der Wassergehalt der Kohle liegt im Durchschnitt bei ca. 1 Gew.-%, und dieses Wasser wird in der Regel von der überkritischen Gasphase aufgenommen, da sie sich bis zur Sättigung mit Wasser belädt. Das Wasser aus stark wasserhaltigen oder wasserführenden Brennstoffschichten wird nur zum Teil von der überkritischen Gasphase extrahiert. Je weiter der Aufschluß des Kohlevorkommens fortschreitet, desto mehr Diffusionskanäle werden geschaffen, so daß eine hohe Permeabilität des Kohlevorkommens für Gase erreicht wird. Die beladene überkritische Gasphase 4 tritt am Bohrloch 2b aus und wird in ihre Bestandteile aufgetrennt. Das Verhältnis von überkritischer Gasmenge zu aufgeschlossener Kohlemenge liegt zwischen 1 : 3 und 1 : 10.

Zur Trennung der beladenen überkritischen Gasphase gelangt diese nacheinander in 5 Fraktioniereinrichtungen 5a, 5b, 5c, 5d, 5e. In diesen Fraktioniereinrichtungen werden aus dem überkritischen CO_2 die gelösten organischen Verbindungen entsprechend ihrem Molekulargewicht sowie das gelöste Wasser durch Druckerniedrigung und/oder Temperaturänderung in bekannter Weise abgeschieden. Das regenerierte Aufschlußmittel 6 wird in der Pumpe 7 auf den zum Aufschluß des Brenn-

stoffs erforderlichen überkritischen Druck komprimiert und im Wärmetauscher 8 auf die erforderliche überkritische Temperatur erwärmt. Es gelangt anschließend im überkritischen Zustand in das Bohrloch 2a. Da während des Aufschlusses eine bestimmte Aufschlußmittelmenge verloren geht, wird aus dem Vorratstank 9 ständig neues Gas - im vorliegenden Fall CO_2 - in den Kreislauf gefördert.

Bei Laboruntersuchungen wurde festgestellt, daß eine überkritische Gasphase, die aus Kohlenwasserstoffen besteht, bis zu 50 Gew.-% der extrahierten Kohle aufnimmt. Der aus der überkritischen Gasphase zurückgewonnene Extrakt besteht aus leicht-, mittel- und schwerflüchtigen organischen Verbindungen und aus geringen Wassermengen. Eine Hydrierung des Extraktes liefert folgende Produkte:

Paraffine	15%
Cycloparaffine	34%
Alkylbenzole	34%
höhere aromatische Kohlenwasserstoffe	10%
Rest	7%

Ansprüche:

1. Verfahren zur Untertagevergasung fester Brennstoffe, bei dem der unter der Erdoberfläche lagernde Brennstoff zunächst aufgeschlossen und dann durch eine chemische Reaktion mit einem Vergasungsmittel in einen gasförmigen Brennstoff umgewandelt wird, dadurch gekennzeichnet, daß der Brennstoff durch Behandlung mit einem im überkritischen Zustand befindlichen Gas unter Tag aufgeschlossen wird, wobei sich die im Brennstoff enthaltenen flüchtigen organischen Verbindungen sowie Wasser im überkritischen Gas lösen, und daß aus der beladenen überkritischen Gasphase die in ihr gelösten organischen Verbindungen sowie das gelöste Wasser durch Druckerniedrigung und/oder Temperaturänderung über Tag in wenigstens zwei Fraktionen abgeschieden werden.

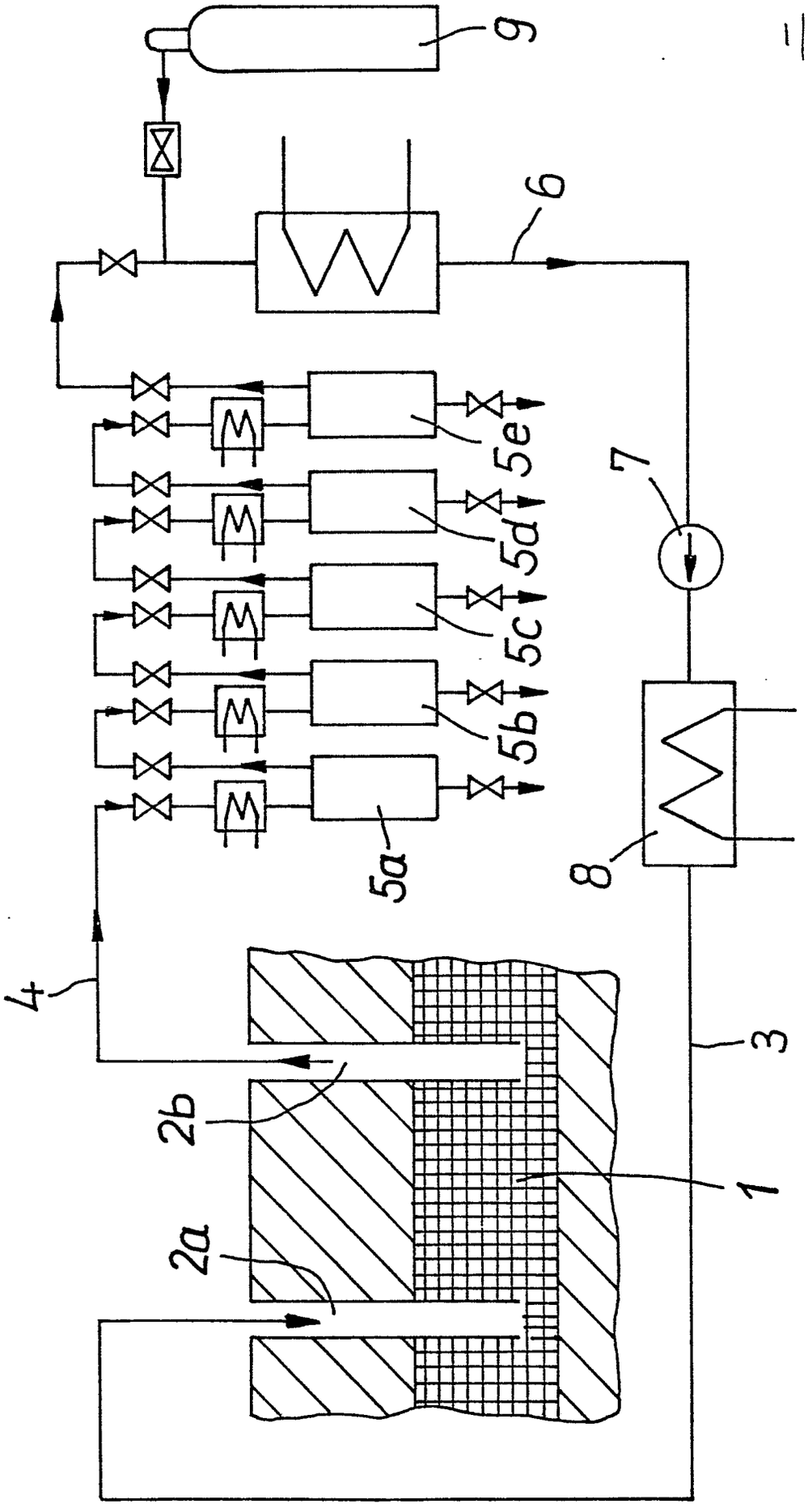
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das im überkritischen Zustand befindliche Gas bei seinem Eintritt in das Brennstofflager eine Temperatur von 10 bis 100°C über seiner kritischen Temperatur und einen Druck von 2 bis 300 bar über seinem kritischen Druck hat.

3. Verfahren nach den Ansprüchen 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Temperatur des überkritischen Gases auf seinem Extraktionsweg unter Tag so abnimmt, daß es bei seinem Austritt aus dem Brennstofflager eine Temperatur aufweist, die 5 bis 15°C über seiner kritischen Temperatur liegt.

4. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Eintrittstemperatur des überkritischen Gases in das Brennstofflager während des Aufschlusses um 2 bis 50°C gesenkt wird.

5. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß zum Aufschluß des Brennstoffs CO_2 verwendet wird.

6. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß zum Aufschluß des Brennstoffs Äthan, Ähten, Propan oder Mischungen dieser Gase verwendet werden.


9
6
5e
5d
5c
5b
5a
7
8
4
3
2b
1
2a