

⑫

DEMANDE DE BREVET EUROPEEN

⑳ Numéro de dépôt: 87870191.1

⑤① Int. Cl.⁴: **E 21 B 43/247**
E 21 C 43/00

㉔ Date de dépôt: 21.12.87

③① Priorité: 22.12.86 BE 6048281

④③ Date de publication de la demande:
29.06.88 Bulletin 88/26

④④ Etats contractants désignés: DE FR GB NL

⑦① Demandeur: **Ledent, Pierre**
5, Parc de Sainval
B-4040 Tilff (BE)

⑦② Inventeur: **Ledent, Pierre**
5, Parc de Sainval
B-4040 Tilff (BE)

⑦④ Mandataire: **Dellicour, Paul**
Office de Brevets E. Dellicour rue Fabry 18/012
B-4000 Liège (BE)

⑤④ **Nouveau procédé de production de méthane par gazéification souterraine du charbon.**

⑤⑦ Les opérations de gazéification consistent dans l'injection de l'agent gazéifiant sous forme de mousse sous une pression supérieure à la pression minimale de fracturation du gisement, dans l'initialisation de la combustion des matières volatiles du charbon au voisinage des puits de production, dans la semi-carbonisation du charbon (500° C à 600° C) par déplacement du front de combustion des matières volatiles à contre-courant de l'agent gazéifiant entre les puits de production et les puits d'injection, et dans la gazéification du semi-coke par filtration à co-courant au moyen du même type d'agent gazéifiant à plus grand débit.

EP 0 273 024 A2

Description

Nouveau procédé de production de méthane par gazéification souterraine du charbon.

Par le brevet BE-A 901 053 on connaît un procédé de production de méthane et d'hydrocarbures par hydrogénation souterraine du charbon.

Dans ce procédé le gaz, à haute teneur en hydrogène, utilisé comme agent gazéifiant est injecté, sous une pression supérieure à la pression de fracturation du gisement, par un ou plusieurs sondages disposés dans l'axe du panneau à exploiter et les zones de réaction d'hydrogénation se développent à contre-courant du sens d'écoulement du gaz, sous une pression égale ou supérieure à 80 bar, à partir d'un certain nombre de sondages de production disposés à la périphérie du panneau à exploiter, la réaction étant amorcée par une opération préalable de combustion du charbon au fond de chacun des puits de production.

Le procédé qui fait l'objet de la présente invention a également pour but de produire du méthane mais il se différencie du procédé précité par deux caractéristiques essentielles :

1. L'agent gazéifiant utilisé est un mélange d'oxygène et d'eau additionnée d'une faible dose d'agent moussant et ce mélange est injecté dans le gisement, après avoir été conditionné sous forme de mousse suivant la technique décrite dans le brevet BE-A 904 055.

2. L'opération s'effectue en deux temps
- une semi-carbonisation réalisée à contre-courant du sens d'écoulement de l'agent gazéifiant, et
- une gazéification du semi-coke résiduaire, réalisée à co-courant.

Au cours de la première phase on procède à la semi-carbonisation du charbon jusqu'à une température de l'ordre de 600° C.

L'opération est réalisée en injectant l'agent gazéifiant à une pression supérieure à la pression minimale de fracturation du gisement et en provoquant l'inflammation du charbon à proximité des puits de production ou le long de galeries en veine reliées à ces puits.

Le débit injecté est limité, de manière à entraîner la formation d'un front de combustion partielle des matières volatiles du charbon, ce front se déplaçant à contre-courant du sens d'écoulement de l'agent gazéifiant, entre les puits de production et les puits d'injection.

La contrepression du gaz dans les puits de production est maintenue continuellement à un niveau égal ou supérieure à 80 bar.

Le rapport molaire entre l'eau et l'oxygène qui constituent l'agent gazéifiant est inférieur à 2, la présence d'eau ayant pour effet de limiter la température du front de combustion et d'éviter l'auto-inflammation du charbon au voisinage des puits d'injection.

Cette première opération a pour résultat de préchauffer le gisement et de transformer le charbon compris entre les puits de production et les puits d'injection en un semi-coke de plus grande perméabilité.

Compte tenu de la pression élevée et de la température de réaction relativement basse, le gaz produit au cours de cette première phase est essentiellement constitué de méthane, de dioxyde de carbone et de vapeur d'eau. Après condensation de la vapeur d'eau sa composition moyenne est la suivante :

CO₂ 55 % à 60 %, CH₄ 30 % à 35 %, H₂ 8 à 10 %, CO 2 % à 3 %.

Son pouvoir calorifique supérieur est de l'ordre de 14 000 kJ par mètre cube ramené aux conditions normales (0° C et 1 atm) et ce pouvoir calorifique peut être porté au-delà de 30 000 kJ par mètre cube normal, en éliminant le CO₂ par un traitement de lavage sous pression.

Au cours de la deuxième phase le même type d'agent gazéifiant est injecté, à plus grand débit et à plus faible pression, en profitant de l'augmentation de perméabilité obtenue au cours de la première phase.

L'opération de gazéification du semi-coke est réalisée par filtration en progressant à co-courant des puits d'injection vers les puits de production, la contre-pression du gaz dans les puits de production étant maintenue à un niveau égal ou supérieur à 80 bar.

Au cours de cette seconde phase le rapport molaire entre l'eau et l'oxygène utilisés pour constituer l'agent gazéifiant est augmenté progressivement jusqu'à une valeur de l'ordre de 4/1.

Les réactions se déroulent dans trois zones successives de températures décroissantes :

- une première zone oxydante, à température de l'ordre de 1 000° C à 1 200° C, dans laquelle l'oxygène réagit avec le carbone fixe pour produire du CO₂ et dans laquelle l'eau injectée passe à l'état de vapeur surchauffée ;

- une zone réductrice, dans laquelle la température décroît sous l'effet des réactions endothermiques :
CO₂ + C = 2CO, H₂O + C = CO + H₂, 2H₂O + C = CO₂ + 2H₂ et dans laquelle se développe une première phase de production de méthane ;

- une zone finale, dans laquelle la température décroît de 800° C à 500° C par suite des pertes de chaleur vers les massifs rocheux, qui délimitent le réacteur, ce qui a pour effet de favoriser les réactions exothermiques :

H₂O + CO = CO₂ + H₂ + 41,2 kJ/mole,

2H₂ + C = CH₄ = 87,5 kJ/mole,

3H₂ + CO = CH₄ + H₂O = 206,4 kJ/mole.

Globalement, les opérations de gazéification du carbone fixe peuvent être schématisées comme suit :

O₂ + C = CO₂ + 406 kJ

4(H₂O)_{liq} + C = CO₂ + 2H₂ + 2 (H₂O)_{vap} -253,5 kJ

2H₂ + C = CH₄ + 87,5 kJ

soit, au total :

O₂ + 4(H₂O)_{liq} + 3C = 2CO₂ + CH₄ + 2(H₂O)_{vap} + 240 kJ

(les quantités de matières intervenant dans ces

réactions étant exprimées en moles).

Ce gaz est enrichi par le dégagement des matières volatiles encore présentes dans le semi-coke. Il contient également une certaine proportion d'hydrogène et de monoxyde de carbone, limitée par les conditions d'équilibre des réactions de Boudouard, du méthane et du gaz à l'eau. Pour une pression de fonctionnement de 100 atm et pour une température d'équilibre de 550° C on peut prévoir pour composition finale :

CO₂ 60,6 %, CH₄ 30,3 %, H₂ 7,5 %, CO 1,6 %.

Après que le CO₂ ait été éliminé par lavage, cette composition devient :

CH₄ 77 %, H₂ 19 %, CO 4 %.

Ceci correspond à un pouvoir calorifique supérieur de 33 500 kJ par mètre cube normal, très proche du pouvoir calorifique du gaz naturel.

Si l'on se réfère aux procédés classiques de production d'un substitut de gaz naturel, par gazéification du charbon extrait, qui nécessitent :

- l'extraction du charbon ;
- sa préparation en triage lavoir ;
- sa gazéification au moyen d'un mélange oxygène + vapeur ;
- la conversion d'une partie du CO, par la réaction shift, pour ajuster le rapport H₂/CO du gaz de synthèse au voisinage de 3/1 ;
- la production de méthane en présence d'un catalyseur, par la réaction : $\text{CO} + 3\text{H}_2 = \text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O}$,

le procédé conforme à l'invention apparaît comme un raccourci extraordinaire, qui assure la production du méthane en une seule opération, en économisant les investissements et les frais de fonctionnement afférents :

- aux charbonnages,
- aux triages lavoirs,
- aux installations de préparation d'eau déminéralisée,
- aux chaudières,
- aux gazogènes,
- aux installations de conversion du CO,
- aux installations de méthanation.

Ce résultat découle de quatre données fondamentales :

1. La possibilité de développer, par une opération de pyrolyse in-situ, des réacteurs souterrains de très grands volumes, capables de résister à de très hautes pressions lorsqu'ils sont situés à très grande profondeur.

2. La possibilité d'éviter une détérioration rapide du toit de ces réacteurs, en les maintenant en permanence sous une pression gazeuse égale ou supérieure à 80 bar (ce qui équivaut à la présence d'un soutènement d'une force portante de 800 tonnes par mètre carré).

3. L'introduction de l'agent gazéifiant à température ambiante et à très haute pression, ce qui est rendu possible par le remplacement du mélange oxygène + vapeur par un mélange oxygène + eau, préparé sous forme de mousse.

4. Le développement des réactions de méthanation jusqu'à des températures relativement basses (500° C à 550° C), ce qui est

rendu possible par le grand volume des réacteurs, par la longue durée de séjour des agents gazéifiants et par l'effet catalytique des cendres de charbon.

Ces conditions de basse température et de haute pression ont pour effet de produire un gaz très riche en méthane, susceptible d'être utilisé comme substitut de gaz naturel, après que le CO₂ en ait été séparé par lavage.

Le procédé conforme à l'invention peut faire l'objet de différentes variantes.

A titre d'exemple, lorsque le panneau à exploiter est de grandes dimensions, il peut être avantageux de procéder à son exploitation en plusieurs étapes, en faisant alterner des périodes de semi-carbonisation à contre-courant et des périodes de gazéification à co-courant, le passage d'une période de semi-carbonisation à une période de gazéification étant obtenu par une augmentation du débit d'agent gazéifiant et par une modification du rapport molaire H₂O/O₂ entre ses deux composants.

On notera encore que la préparation des agents gazéifiants sous forme de mousse peut s'accommoder d'une eau de qualité très quelconque. Dès lors, il est permis d'envisager de la réaliser à partir des eaux phénolées recueillies dans l'installation de traitement du gaz, ce qui constitue un avantage important sur le plan de l'économie et sur le plan de la protection de l'environnement.

Revendications

1. Procédé de production de méthane par gazéification souterraine d'une veine de charbon située à plus de 800 mètres de profondeur, recoupée par un ou plusieurs puits de production, à l'intérieur desquels est maintenue une pression gazeuse égale ou supérieure à 80 bar, et par un ou plusieurs puits d'injection, à travers lesquels est injecté un agent gazéifiant préparé sous forme de mousse, caractérisé en ce que les opérations de gazéification comportent les étapes suivantes :

- l'injection de l'agent gazéifiant sous une pression supérieure à la pression minimale de fracturation du gisement ;
l'initialisation de la combustion des matières volatiles du charbon, au voisinage des puits de production ou le long de galeries en veine reliées à ces puits ;

- la semi-carbonisation du charbon, jusqu'à une température de 500° C à 600° C, par déplacement du front de combustion des matières volatiles, à contre-courant du sens d'écoulement de l'agent gazéifiant, dans la zone comprise entre les puits de production et les puits d'injection ;

- la gazéification du semi-coke, qui subsiste à l'intérieur de cette zone, par filtration à co-courant au moyen du même type d'agent gazéifiant utilisé à plus grand débit.

2. Procédé suivant revendication 1, caractérisé en ce que l'agent gazéifiant est préparé à

partir d'un mélange d'eau et d'oxygène, dont le rapport molaire eau/oxygène est inférieur à 2 pendant la phase de semi-carbonisation et est progressivement augmenté jusqu'à une valeur de l'ordre de 4 au cours de la phase de gazéification du semi-coke. 5

3. Procédé suivant revendications 1 et 2, caractérisé en ce que l'exploitation de la zone comprise entre les puits de production et les puits d'injection est réalisée en plusieurs étapes, en faisant alterner des périodes de semi-carbonisation à contre-courant et des périodes de gazéification à co-courant, le passage d'une période de semi-carbonisation à une période de gazéification étant obtenu par une augmentation du débit d'agent gazéifiant et par une modification du rapport molaire eau/oxygène. 10 15

4. Procédé suivant revendications 1 à 3, dans lequel le traitement du gaz produit comporte la condensation de la vapeur d'eau et l'élimination du dioxyde de carbone par lavage sous pression, caractérisé en ce que les eaux phénolées résiduelles sont réutilisées pour la préparation de l'agent gazéifiant. 20 25

30

35

40

45

50

55

60

65

4