

PACS numbers: 47.56.+r, 61.43.Gt, 68.43.Nr, 81.05.Rm, 83.80.Nb, 89.30.ag, 91.60.-x

## **Особливості процесів дегазації викопного вугілля після насичення газами при високому тиску**

А. М. Погорілий, В. В. Невдача, В. О. Куц, І. В. Лежненко,  
В. Г. Гурін, О. М. Молчанов\*, Т. В. Пічка\*

*Інститут магнетизму НАН України та МОН України,  
бульв. Академіка Вернадського, 36-б,  
03680, МСП, Київ-142, Україна*  
*\*Інститут фізики гірничих процесів НАН України,  
вул. Сімферопольська, 2-а,  
49600 Дніпропетровськ, Україна*

Проведено вивчення процесів насичення газами та дегазації зразків викопного вугілля Донецького басейну різних ступенів вуглефікації. Насичення зразків викопного вугілля проводилося на універсальній установці високого газового тиску, яка уможлиблювала одночасно проводити насичення газом у чотирьох камерах. В якості модельних газів у роботі було використано аргон, азот та діоксид вуглецю. Розміри частинок вугілля були 2–5 мм. Насичення зразків вугілля газом проводилося за кімнатної температури протягом 3–14 діб при тиску у 2000 атм. Показано, що вихід газу із зразків вугілля може бути описаний двома механізмами — фільтраційним і дифузійним. Характерний час виходу газу для дифузійного механізму відрізняється у кілька разів порівняно з фільтраційним.

Investigation of the process of gas saturation and degassing of the Donets Basin coals' samples of various degrees of coalification is performed. Saturation of fossil coal samples is carried out on a universal installation of high gas pressure that allows carrying out the gas saturation in four chambers. Argon, nitrogen, and carbon dioxide are used as the model gases. The particle size of coal are of 2–5 mm. Saturation of the gases of coal samples is carried out at room temperature for 3–14 days at a pressure of 2.000 bar. As shown, the gas output of coal samples can be described by two mechanisms, namely, filtration and diffusion. A typical time of the diffusion mechanism of gas output is different by several times compared to the filtration.

Проведено изучение процессов насыщения–дегазации газами образцов ископаемых углей Донецкого бассейна разной степени углефикации.

Насыщение образцов ископаемого угля проводилось на универсальной установке высокого газового давления, которая позволяла одновременно проводить насыщение газом в четырёх камерах. В качестве модельных газов в работе были использованы аргон, азот и диоксид углерода. Размеры частиц угля были 2–5 мм. Насыщение образцов угля газом проводилось при комнатной температуре в течение 3–14 суток при давлении 2000 атм. Показано, что выход газа из образцов угля может быть описан двумя механизмами — фильтрационным и диффузным. Характерное время выхода газа для диффузионного механизма отличается в несколько раз по сравнению с фильтрационным.

**Ключові слова:** вугілля, десорбція, фільтрація, дифузія, газовий тиск, пориста структура.

**Key words:** coal, adsorption, filtration, diffusion, gas pressure, porous structure.

**Ключевые слова:** уголь, десорбция, фильтрация, диффузия, газовое давление, пористая структура.

*(Отримано 2 грудня 2015 р.)*

## 1. ВСТУП

Вугільний пласт, як і всі осадові породи, є тріщинувато-пористим тілом. Газ, що міститься в пласті (в основному це метан та суміш інших газів), знаходиться в порах і мікротріщинах вугілля. Їх розмір (діаметр) має першорядне значення, тому що обумовлює як загальний вміст метану у вугіллі, так і ступінь його зв'язку з вугільною речовиною, що визначає можливу кількість метану і його гомологів у вугільному пласті. У вугільних пластах метан знаходиться у вільному, адсорбованому, абсорбованому і хемосорбованому вигляді [1]. У тріщинах, макро- і мезопорах міститься вільний метан і метан, адсорбований на поверхні пор. Велика частина метану знаходиться в міжмолекулярному просторі вугілля (твердий розчин). Різні стани метану знаходяться в динамічній рівновазі, яка може порушуватися при видобутку вугілля, приводячи до різних газодинамічних явищ (ГДЯ).

Фізичні та хімічні властивості вугілля значною мірою визначаються його надмолекулярною організацією (НМО) [2]. Для НМО вугілля низького ступеня вуглефікації характерна наявність незамкнених деформованих кристалоподібних шарів-пачок. З ростом вмісту вуглецю до 85% надмолекулярні структурні перетворення протікають тільки за рахунок аліфатичної маси вугілля і виявляються у конформаційних перетвореннях шарів-

пачок при переході від молодого вугілля марок Д, Г до антрациту в ряду метаморфізму.

Велика різноманітність структурних елементів гірського масиву, макропори, мезопори, мікропори з розмірами менше 2 нм та різні системи тріщин в сукупності утворюють загальну систему пористого середовища (рис. 1 [3]).

Макропори (первинна пористість) переважають у вугіллі низького ступеня вуглефікації. В результаті метаморфізму зі збільшенням вуглефікації геофізичні фактори зменшують пористість. У вугіллі з низьким вмістом летких речовин починають формуватися мезо- та мікропори (вторинна пористість) внаслідок зміни молекулярної структури [4].

Розрізняють пористість: абсолютну (повну) — враховуються всі пори; відкриту — розглядаються пори, які сполучені між собою і заповнені ззовні газом без зміни їх фазового стану; закрити пористість.

Погляд, що сформувався до теперішнього часу, на пористу структуру вугілля не дозволяє дати відповіді на ряд питань. До них відноситься в першу чергу питання про максимальну величину тиску газу у вугіллі. Причина полягає в тому, що до цих пір дослідники не враховували закриті пори, питомий об'єм яких у вугіллі перевищує питомий об'єм всіх інших порожнеч. Це обумовлено несущільною структурою вугільної речовини.

Пори вугілля, як і інших твердих речовин, підрозділяються на відкриті — порожнини або канали, зв'язані із зовнішньою поверхнею твердого тіла, та закриті — порожнини і канали, незв'язані із зовнішньою поверхнею. Таким чином, відкриті пори з'єднуються системою тріщин із зовнішньою поверхнею, що дозволяє газам і рідинам швидко проникати у вугільну речовину і так же швидко покидати її. Проникнення флюїдів в закрити по-

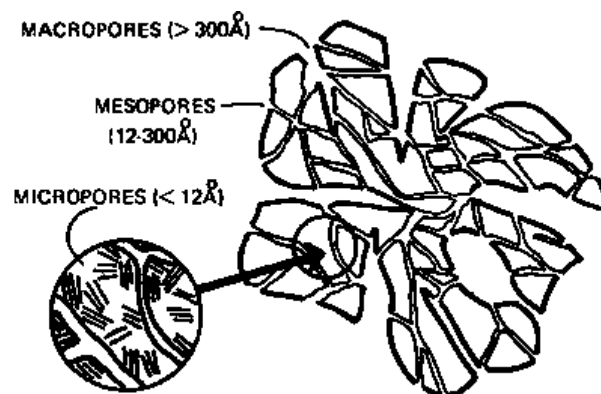
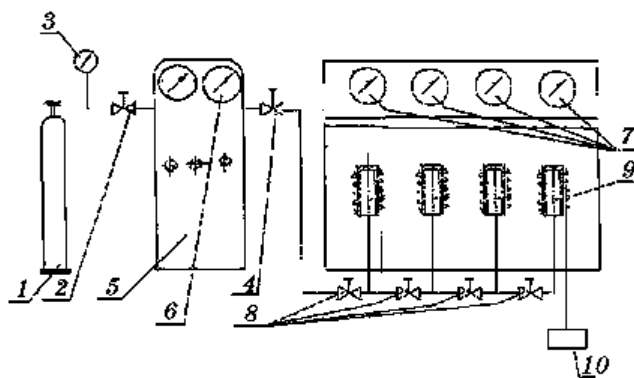


Рис. 1. Різні типи пор у вугіллі [3].<sup>1</sup>

ристість, незв'язану із зовнішньою поверхнею, може здійснюватися виключно шляхом твердотільної дифузії, що обумовлює істотну тривалість процесу. Такий підхід уможливив пояснити значення пористості до  $0,3 \text{ см}^3/\text{г}$ , одержувані сорбцією газів під тиском, тоді як практично всі останні методи дають значення пористості до  $0,1 \text{ см}^3/\text{г}$ . Закриті пори грають роль акумуляторів і довготривалих сховищ газу. Згідно з отриманими результатами, закриті пори можуть складати понад 60% порового об'єму [5].

Істотний вплив в прояві тиску газу дає газова проникність. Із зменшенням проникності погіршуються умови фільтрації газу з вугільного пласта. Вугілля характеризується до 28% закритою і 6% відкритою пористістю, що відрізняє його від більшості інших колекторів газу [1]. Внаслідок такої високої пористості частина газу знаходиться у вугіллі в адсорбованому стані. Зміна прояву гірського тиску поблизу очисного вибою викликає не тільки рух вільного газу у бік вибою лави, але і десорбцію газу у всій області градієнту тиску. Рух газу відбувається двома потоками: по субмакро- і макропорах, тріщинах, що розділяють блоки, та по мікроканалах блоків, що з'єднуються один з одним. Основна маса газу знаходиться в сорбованому стані. Фільтраційний закон встановлює зв'язок між швидкістю фільтрації і зміною тиску газу в околиці тріщинувато-пористого середовища, що викликає фільтраційний рух. Ця зміна визначається градієнтом тиску газу.

Газоносність вугленосних товщ значною мірою сформувалася шляхом просторового перерозподілу вуглеметаморфогенних газів. Природна газоносність відкладень представлена газами вугленосних товщ і фільтраційними газами, привнесеними у відкладення



**Рис. 2.** Принципова схема універсальної лабораторної установки: 1 — газовий балон; 2 — вентиль низького тиску; 3 — манометр низького тиску; 4, 8 — вентилі високого тиску; 5 — газовий компресор до 2000 атм; 6, 7 — манометр високого тиску; 9 — реактор; 10 — електронний блок керування нагрівом.<sup>2</sup>

з глибших зон. Це змінює уявлення про роль природних газів вугленосних формацій. Їм відводиться активна роль у формуванні теплових потоків, контролюючих процеси метаморфізму і газогенерації. Основними чинниками, що визначають метаномісткість вугілля і порід, є температура (знижує сорбційні властивості), тиск (підвищує сорбцію), ступінь і тип метаморфізму, вологість, ступінь відновленості і петрографічний склад вугілля.

В процесі метаморфізму вугільна речовина зазнає зміни під дією зовнішніх сил і структурних перетворень органічної маси. В результаті цих процесів відбувається формування і зміна пористої структури вугільної речовини, розміру і об'єму пор. Сорбційні властивості вугілля визначаються, перш за все, вільним простором, який є у вугільній речовині. Об'єм пор і тріщин та їх розподіл по розмірах в умовах зміни ступеня вуглефікації визначають величину загального вмісту газу у вугіллі. Метан і двоокис вуглецю — найбільш поширені складові газові компоненти флюїдів, що заповнюють пори і тріщини.

Сорбційна місткість вугілля визначається тріщинувато-пористою структурою вугілля і складним комплексом фізико-хімічних взаємодій в системі «вугілля–газ–рідина». Метан в різних станах у вугіллі знаходиться в динамічній рівновазі, яка при

ТАБЛИЦЯ 1. Зразки кам'яного вугілля, досліджені в роботі.<sup>3</sup>

№	Марка	Шахта, пласт	$V^{\text{daf}}$ , %
1	А	ДП «Торезантрацит», ш. ім. Л. І. Лутугіна, пласт $h_8$	2
2	А	ДП «Торезантрацит», ш. ім. К. І. Кисельова, пласт $h_4^B$	2
3	А	ДП «Торезантрацит», ш. «Яблунева», пласт $h_{11}$	2
4	Т	ДП «Макіїввугілля», ш. Холодна балка, пласт $h_{10}^B$	9,1
5	Т	ДП «Макіїввугілля», ш. ім. Кірова, пласт $h_{10}^B$	9,9
6	Т	ДП «Макіїввугілля», ш. ім. Кірова, пласт $l_1$	10,4
7	ОС	ДП «Макіїввугілля», ш. Ясинівська глибока, пласт $l_2$	15,5
8	ОС	ДП «Макіїввугілля», ш. Ясинівська глибока, пласт $l_4$	17,9
9	ОС	ДП «Макіїввугілля», ш. Ясинівська глибока, пласт $m_3$	18,6
10	ОС	ДП «Макіїввугілля», ш. ім. В. І. Леніна, $k_6^H$	20
11	ОС	ДП «Дзержинськвугілля», ш. Південна, пласт $h_{10}$ — «Бабаківський»	22,5
12	К	ДП «Макіїввугілля», ш. Північна, пласт $m_3$	19
13	Ж	ДП «Макіїввугілля», ш. Чайкіно, пласт $m_3$	30
14	Г	ДП «ДВЕК» ш. ім. Є. Т. Абакумова, пласт $m_3$	35,6
15	Д	ДП «ДВЕК» ш. Трудівська, пласт $m_3$	42,8

певних умовах може порушуватися, приводячи до викиду.

Процеси кінетики утворення, виділення і викиду метану з вугільного пласта залишаються не до кінця вивченими. То ж, процеси фізико-хімічної газової кінетики у вугіллі різного ступеня вуглефікації потребують подальшого дослідження.

В роботі проведено вивчення процесів дегазації зразків викопного вугілля Донецького басейну різних ступенів вуглефікації після насичення газами при високому тиску.

## 2. МЕТОДИКА ЕКСПЕРИМЕНТУ ТА ЗРАЗКИ

Для вивчення процесів насичення–дегазації зразків викопного вугілля була використана переобладнана універсальна установка високого газового тиску, яка дозволяє одночасно проводити насичення газом в чотирьох камерах і керувати параметрами (тиском, температурою і часом витримки) на будь якому з них.

На рисунку 2 показано принципову схему універсальної лабораторної установки високого газового тиску з зовнішнім нагрівом і вертикальним розміщенням камери високого тиску.

В якості модельних газів для вивчення насичення–дегазації викопного вугілля Донецького басейну різних ступенів вуглефікації (табл. 1) було використано аргон, азот і діоксид вуглецю. Розміри часток вугілля були 2–5 мм. Насичення зразків вугілля газами проводилось при кімнатній температурі протягом 3–14 діб при тиску 2000 атм.

Після завершення насичення проводилося зменшення тиску до атмосферного протягом 1–2 хвилин. При скиданні тиску в деяких випадках спостерігались розтріскування та руйнація часток вугілля.

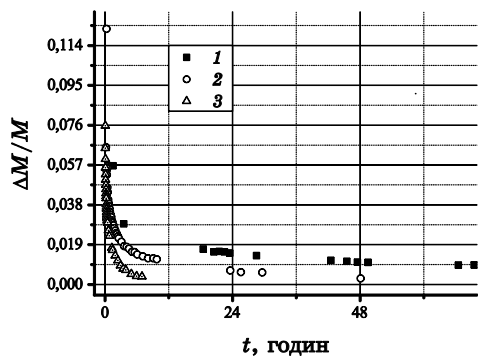


Рис. 3. Залежність виходу газу аргону з антрацитів від часу.<sup>4</sup>

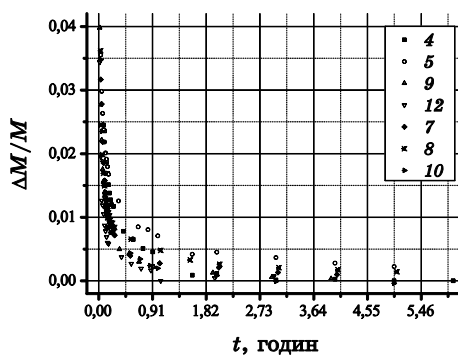


Рис. 4. Залежність виходу газу аргону з вугілля марок Т, К, ОС від часу.<sup>5</sup>

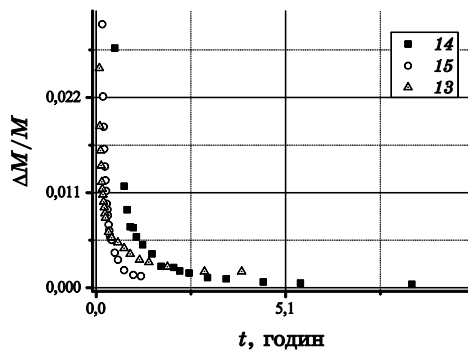


Рис. 5. Залежність виходу газу аргоноу з вугілля марок Д, Г, Ж від азоту зі зразків 3–5 від часу.<sup>6</sup>

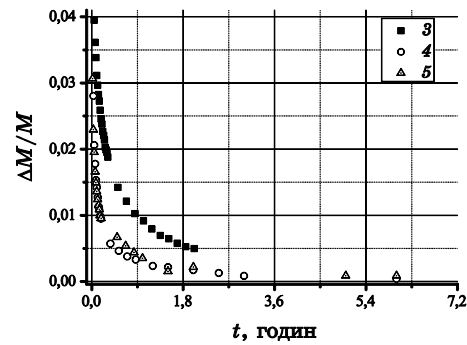


Рис. 6. Залежність виходу газу азоту зі зразків 3–5 від часу.<sup>7</sup>

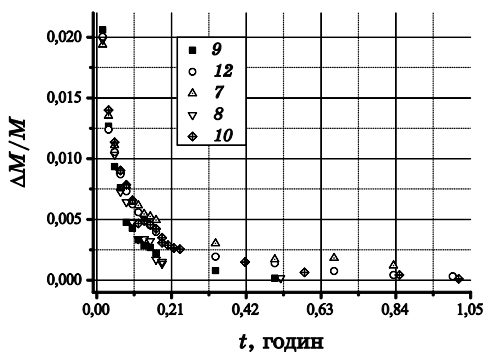


Рис. 7. Залежність виходу газу азоту зі зразків 7–10, 12 від часу.<sup>8</sup>

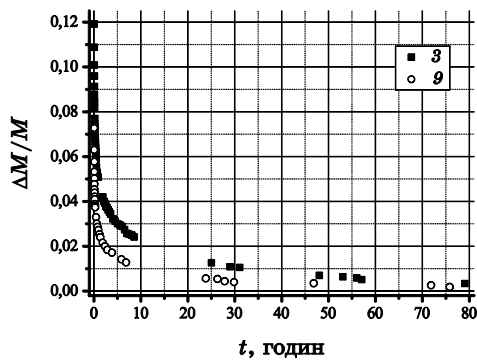


Рис. 8. Залежність виходу вуглекислого газу зі зразків 3, 9 від часу.<sup>9</sup>

### 3. РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

Дегазация вугілля різного ступеня вуглефікації проводилася після насичення аргоном, азотом і діоксидом вуглецю в умовах високого газостатичного тиску. На рисунках 3–9 наведено залежності від часу виходу газів із зразків вугілля при кімнатній температурі.

Для порівняння відмінностей десорбції різних газів на рис. 9 наведено десорбційні криві трьох використаних нами в експериментах газів для двох марок вугілля.

Дослідження [6–10] показали, що всі особливості кінетики десорбції метану з кам'яного вугілля можна пояснити наявністю суперпозиції двох механізмів: газ дифундує із закритих пор, на-

дходить в частково вже вільні відкриті пори і тріщини, в яких він рухається далі до поверхні вугілля шляхом фільтрації. Оскільки при в'язкій течії коефіцієнт фільтрації зменшується в ході десорбції, то існує момент часу, коли встановлюється баланс дифузійного і фільтраційного потоків. Таким чином, весь процес десорбції можна умовно розділити на дві основні фази: перша — це фаза процесів, передуюча встановленню балансу потоків; друга — завершальна фаза, коли виділення вугіллям газу зумовлено його дифузією. Очевидно, що кінетика виходу газу в цих фазах повинна бути різною.

При обробці кривих десорбції аргону та азоту меншу середньо-

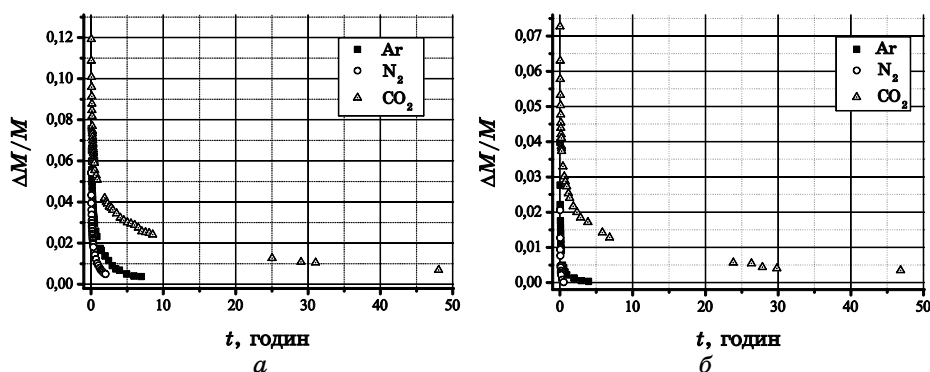


Рис. 9. Залежності виходу газів з вугілля марок ОС (а) (марка ОС (зразок №11)) та Г (б) (марка Г (зразок №14)) від часу.<sup>10</sup>

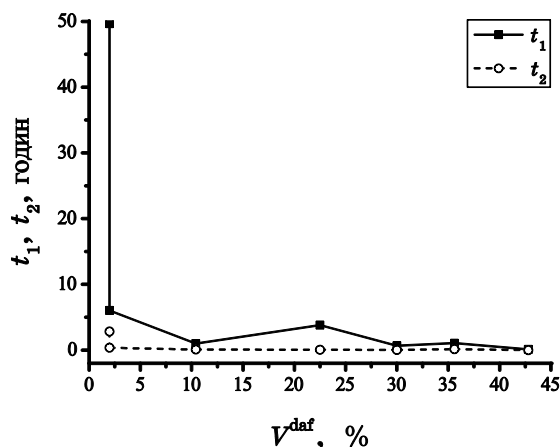


Рис. 10. Характерні часи десорбції аргону для зразків 1, 2, 6, 11, 13, 14 та 15 для дифузійного ( $t_1$ ) та фільтраційного ( $t_2$ ) механізмів в залежності від кількості летких речовин.<sup>11</sup>



квадратичну похибку (при виборі виду апроксимації) забезпечує наближення у вигляді суми двох експонент:

$$N(t) = A_1 \exp(-x/t_1) + A_2 \exp(-x/t_2) + y_0,$$

де  $t_1$  і  $t_2$  — характерні часи десорбції для двох механізмів; параметри  $A_1$  і  $A_2$  пов'язані з кількістю молекул газу у вугіллі, що десорбується.

Характерні часи десорбції газів з вугілля змінюються при змі-

**ТАБЛИЦЯ 2.** Характерні часи десорбції газів з вугілля.<sup>12</sup>

Зразок №	Характерні часи десорбції (години)		$V^{\text{daf}}$ , %
	$t_1$	$t_2$	
Аргон			
1	49,68787	2,83656	2
2	6,0612	0,38929	2
3	1,34517	0,086759	2
4	0,803701	0,08034633	9,1
5	0,050520067	0,0276505	9,9
6	1,0186	0,09513	10,4
7	0,49077	0,06055	15,5
8	0,71401	0,03435	17,9
9	0,3219467	0,03115867	18,6
10	0,42348	0,03352	20
11	3,83253	0,08667	22,5
12	0,206605	0,01693	19
13	0,69788	0,04455	30
14	1,08411	0,17434	35,6
15	0,13976	0,0177	42,8
Азот			
3	0,4535815	0,042242	2
4	0,42087	0,035775	9,1
5	0,71619	0,040288	9,9
7	0,114635	0,009966	15,5
8	0,0803488	0,0231255	17,9
9	0,07252367	0,01559	18,6
10	0,12192	0,015638	20
12	0,23248883	0,029139	19
Вуглекислий газ			
3	6,685239	0,155275	2
9	4,58365	0,101175	18,6

ні ступеня метаморфізму, з яким пов'язані зміни наноструктури вугільної речовини та тріщинувато-пористої структури, притаманної конкретній марці вугілля. Як приклад, на рис. 10 показано, як змінюються характерні часи десорбції аргону для фільтраційного та дифузійного механізмів для декількох зразків вугілля в залежності від кількості летких речовин.

Всі результати обробки експериментальних залежностей виходу газів з вугілля наведено в табл. 2. Номери зразків — ті ж, що і в табл. 1.

У випадку діоксиду вуглецю кращий результат, порівняно з даними, наведеними в табл. 2, дає апроксимація кривих десорбції газу сумою трьох експонент, що, можливо, обумовлено наявністю додаткових механізмів виходу газу  $\text{CO}_2$  з вугільної маси.

## ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА

1. А. Д. Алексеев, *Физика угля и горных процессов* (Київ: Наукова думка: 2010).
2. В. І. Саранчук, М. О. Ільяшов, В. В. Ошовський, В. С. Білецький, *Основи хімії і фізики горючих копалин* (Донецьк: Східний видавничий дім: 2008).
3. D. G. Levine, R. H. Schlosberg, and B. G. Silbernagel, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.*, **79**, No. 10: 3365 (1982).
4. C. F. Rodrigues and M. J. Lemos de Sousa, *Int. J. Coal Geol.*, **48**, Nos. 3–4: 311 (2002).
5. А. Д. Алексеев, *Геотехническая механика*, **87**: 10 (2010).
6. W. P. Diamond and S.J. Schatzel, *Int. J. Coal Geol.*, **35**, Nos. 1–4: 311 (1998).
7. А. Д. Алексеев, В. А. Васильковский, Н. А. Калугина, *Физико-технические проблемы горного производства*, **8**: 59 (2005).
8. А. Д. Алексеев, В. А. Васильковский, Н. А. Калугина, *Геотехническая механика*, **67**: 32 (2006).
9. В. А. Васильковский, *Физико-технические проблемы горного производства*, **12**: 4 (2009).
10. В. В. Завражин, *Горноспасательное дело*, **48**: 53 (2011).

## REFERENCES

1. A. D. Alexeev, *Fizika Uglya i Gornyykh Protsessov* (Kiev: Naukova Dumka: 2010) (in Russian).
2. V. I. Saranchuk, M. O. Il'yashov, V. V. Oshovs'kyj, and V. S. Bilets'kyi, *Osnovy Khimii i Fizyky Goryuchykh Kopalyn* (Donets'k: Skhidnyi Vydavnychiy Dim: 2008) (in Ukrainian).
3. D. G. Levine, R. H. Schlosberg, and B. G. Silbernagel, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.*, **79**, No. 10: 3365. (1982).
4. C. F. Rodrigues and M. J. Lemos de Sousa, *Int. J. Coal Geol.*, **48**, Nos. 3–4: 311 (2002).
5. A. D. Alexeev, *Geo-Technical Mechanics*, **87**: 10 (2010) (in Russian).

6. W. P. Diamond and S. J. Schatzel, *Int. J. Coal Geol.*, **35**, Nos. 1–4: 311 (1998).
7. A. D. Alexeev, V. A. Vasil'kovskiy, and N. A. Kalugina, *Fiziko-Tekhnicheskie Problemy Gornogo Proizvodstva*, **8**: 59 (2005) (in Russian).
8. A. D. Alexeev, V. A. Vasil'kovskiy, and N. A. Kalugina, *Geo-Technical Mechanics*, **67**: 32 (2006) (in Russian).
9. V. A. Vasil'kovskiy, *Fiziko-Tekhnicheskie Problemy Gornogo Proizvodstva*, **12**: 4 (2009) (in Russian).
10. V. V. Zavrazhin, *Gornospasatel'noe Delo*, **48**: 53 (2011) (in Russian).

---

*Institute of Magnetism, N.A.S. and M.E.S. of Ukraine,  
36-b Acad. Vernadsky Blvd.,  
03142 Kyiv, Ukraine*

*Institute for Physics of Mining Processes, N.A.S. of Ukraine,  
Simferopolska Str., 2<sup>a</sup>,  
49600 Dnipropetrovsk, Ukraine*

<sup>1</sup> Fig. 1. Various types of pores in coal [3].

<sup>2</sup> Fig. 2. Schematic circuit of universal laboratory facility: 1—gas-cylinder; 2—low-pressure valve; 3—low-pressure manometer; 4, 8—high-pressure valves; 5—gas compressor up to 2000 bar; 6, 7—high-pressure manometer; 9—reactor; 10—heating electronic control module.

<sup>3</sup> TABLE 1. Coal samples used in research.

<sup>4</sup> Fig. 3. Time dependence of argon yielding from anthracite.

<sup>5</sup> Fig. 4. Time dependence of argon yielding from coal (ranks T, K, OC).

<sup>6</sup> Fig. 5. Time dependence of argon yielding from coal (ranks Д, Г, Ж).

<sup>7</sup> Fig. 6. Time dependence of nitrogen yielding from coal (samples 3–5).

<sup>8</sup> Fig. 7. Time dependence of nitrogen yielding from coal (samples 7–10, 12).

<sup>9</sup> Fig. 8. Time dependence of carbon dioxide yielding from coal (samples 3, 9).

<sup>10</sup> Fig. 9. Time dependence of gas yielding from coal (rank OC (a) and rank Г (b)).

<sup>11</sup> Fig. 10. Characteristic time of argon desorption for samples 1, 2, 6, 11, 13, 14 and 15 for diffusion mechanism ( $t_1$ ) and filtration mechanism ( $t_2$ ) depending on volatile matter amount.

<sup>12</sup> TABLE 2. Characteristic times of gas desorption from coal.