



移动扫码阅读

姜延航, 白刚, 周西华, 等. 煤吸附 CH_4 体积测试与分析[J]. 煤炭科学技术, 2022, 50(12): 144–152.

JIANG Yanhang, BAI Gang, ZHOU Xihua, *et al.* Test and analysis of coal adsorption volume of CH_4 [J]. Coal Science and Technology, 2022, 50(12): 144–152.

煤吸附 CH_4 体积测试与分析

姜延航^{1,3}, 白刚^{1,2,3}, 周西华^{1,3}, 王玉玺¹, 付天予¹, 胡坤¹

(1. 辽宁工程技术大学 安全科学与工程学院, 辽宁 葫芦岛 125105; 2. 华阳新材料科技集团有限公司, 山西 阳泉 045000;

3. 辽宁工程技术大学 矿山热动力灾害与防治教育部重点实验室, 辽宁 葫芦岛 125105)

摘要:煤层中 CH_4 主要以游离态和吸附态赋存, 煤吸附 CH_4 性能往往受煤阶、温度、压力、粒径和含水率等多种因素共同影响, 为研究多因素耦合对煤吸附 CH_4 的 Langmuir 体积影响规律, 选取山西长治地区常村和赵庄煤矿煤样, 利用 HCA-1 高压吸附装置测定不同环境温度、煤样粒径、含水率的煤样吸附 CH_4 体积, 然后以赵庄矿煤样试验结果为基础, 通过 Design Expert 软件设计 Box Behnken 试验, 构建煤吸附 CH_4 体积 2 次回归响应曲面模型, 分析温度、粒径、含水率 3 种因素耦合作用时对煤吸附 CH_4 体积影响程度, 并对不同条件下煤吸附 CH_4 体积进行预测与验证, 并探讨了试验结果的工程应用启示。结果表明: CH_4 吸附量随温度、粒径增加及含水率升高而降低; 环境温度由 $15\text{ }^\circ\text{C}$ 增加至 $40\text{ }^\circ\text{C}$ 时, 常村及赵庄煤 CH_4 吸附量分别降低 37.09%, 37.5%; 煤样粒径由 0.15 mm 增加至 0.3 mm 时, CH_4 吸附量分别降低 14.87%、15.52%; 常村煤样含水率由 0.08% 增至 4.21%, CH_4 吸附量降低 10.61%, 赵庄煤样含水率由 0.04% 增至 3.62%, CH_4 吸附量降低 16.31%; 温度、粒径、含水率单因素作用均对 CH_4 吸附量表现为极显著影响 ($P < 0.000\ 1$), 3 个因素对 CH_4 吸附量的影响程度为: 温度 ($F=2\ 307.95$) > 煤样粒径 ($F=346.64$) > 含水率 ($F=133.32$); 各交互项对 CH_4 吸附量影响程度为: 粒径和含水率 ($F=21.31$) > 温度和粒径 ($F=6.33$) > 温度和含水率 ($F=3.65$), 粒径与含水率交互作用极显著 ($P=0.002\ 4$), 温度和煤样粒径交互作用显著 ($P=0.040\ 1$), 温度和含水率交互作用不显著 ($P=0.097\ 8$); 编码区间外试验值与模型预测值的偏差最大为 3.98%, 最小为 2.01%, 平均误差率为 3.315%; 井下回采过程中, 温度、含水率、煤样粒径等多因素变化时, 首先实时监测温度变化, 防止温度骤变引发瓦斯大量解吸, 导致瓦斯超限甚至发生煤与瓦斯突出事故。

关键词:煤; CH_4 吸附量; 温度; 含水率; 粒径; 响应面法

中图分类号: TD712

文献标志码: A

文章编号: 0253-2336(2022)12-0144-09

Test and analysis of coal adsorption volume of CH_4

JIANG Yanhang^{1,3}, BAI Gang^{1,2,3}, ZHOU Xihua^{1,3}, WANG Yuxi¹, FU Tianyu¹, HU Kun¹

(1. College of Safety Science and Engineering, Liaoning Technical University, Huludao 125105, China; 2. Huayang New Material Technology Group Co., Ltd., Yangquan 045000, China; 3. Key Laboratory of Mine Thermodynamic Disasters and Control of Ministry of Education, Liaoning Technical University, Huludao 125105, China)

Abstract: CH_4 in coal seams mainly occurs in free state and adsorbed state. The performance of coal adsorption of CH_4 is often affected by various factors such as coal rank, temperature, pressure, particle size and moisture content. In order to study the influence of multi-factor coupling on the Langmuir volume of coal adsorbing CH_4 . According to the law, coal samples from changcun and zhaozhuang Coal mines in Changzhi area of Shanxi are selected, and the HCA-1 high-pressure adsorption device is used to determine the volume of CH_4 adsorbed by coal samples with different ambient temperature, coal sample size and water content, and then the test results of Zhaozhuang Coal mine Based on the design of the Box Behnken test using Design Expert software, a quadratic regression response surface model of coal adsorption CH_4 volume was constructed to analyze the influence of temperature, particle size, and moisture content on the volume of coal adsorp-

收稿日期: 2022-01-12 责任编辑: 常琛 DOI: 10.13199/j.cnki.cst.2021-0617

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(52274204, 52104195)

作者简介: 姜延航(1996—), 男, 辽宁凤城人, 硕士研究生。E-mail: 1205068586@qq.com

通讯作者: 白刚(1991—), 男, 安徽灵璧人, 副教授。E-mail: 1272661640@qq.com

tion CH₄ when the three factors are coupled. The volume of coal adsorbed CH₄ was predicted and verified, and the engineering application enlightenment of the test results was discussed. The results show that the amount of CH₄ adsorption decreases with the increase of temperature, particle size and moisture content; when the ambient temperature increases from 15 °C to 40 °C, the amount of CH₄ adsorption of Changcun and Zhaozhuang Coals decreases by 37.09% and 37.5%, respectively; coal samples When the particle size increases from 0.15 mm to 0.3 mm, the CH₄ adsorption capacity decreases by 14.87% and 15.52%, respectively; the water content of the Changcun coal sample increases from 0.08% to 4.21%, the CH₄ adsorption capacity decreases by 10.61%, and the water content of the Zhaozhuang coal sample decreases from Increased from 0.04% to 3.62%, the amount of CH₄ adsorption decreased by 16.31%; the single factors of temperature, particle size, and water content all had a very significant impact on the amount of CH₄ adsorption ($P < 0.000 1$), and the degree of influence of the three factors on the amount of CH₄ adsorption It is: temperature ($F=2 307.95$)> coal sample particle size ($F=346.64$)> water content ($F=133.32$); the degree of influence of each interaction item on the amount of CH₄ adsorption is: particle size and water content ($F=21.31$)> temperature And particle size ($F=6.33$)>temperature and water content ($F=3.65$), the interaction between particle size and water content is extremely significant ($P=0.002 4$), and the interaction between temperature and coal sample particle size is significant ($P=0.040 1$). The interaction with water cut is not significant ($P=0.097 8$); the maximum deviation between the test value and the model prediction value outside the coding interval is 3.98%, the minimum is 2.01%, and the average error rate is 3.315%; during downhole recovery, temperature and water cut when the coal sample particle size and other factors change, firstly monitor the temperature change in real time to prevent the sudden change in temperature from causing a large amount of gas desorption, leading to excessive gas limit and even coal and gas outburst accidents.

Key words: coal; CH₄ adsorption capacity; temperature; moisture content; particle size; response surface method

0 引 言

随着矿井开采向深层的逐步转移,我国煤层气储层的低渗透性和低透气性导致的煤层气产量低的问题日益严重^[1-3]。煤中 CH₄ 主要以吸附态赋存,所占比例可达到 95%^[4-5],煤对瓦斯的吸附特性是研究煤与瓦斯突出规律以及煤层气勘探、开采利用的重要依据^[6-7],其吸附过程中受多种因素共同影响,国内外学者开展了大量关于对于煤吸附 CH₄ 特征及其影响因素的研究。煤对气体能力因吸附气体不同而异,研究发现煤对 CO₂ 气体吸附能力大于 CH₄ 和 N₂^[8-10],说明 CO₂ 相对于其他 2 种气体具有更强的吸附性能。卢守青等^[11] 发现导致不同变质程度的煤对气体吸附能力不同的主要原因是比表面积。陈向军等^[12] 研究发现当煤孔径<100 nm 时,吸附常数 a 会随煤的变质程度增加而增大。林海飞等^[13]、梁冰等^[14] 研究了不同尺寸煤样对吸附性能的影响,发现煤样粒径越大,吸附 CH₄ 能力越弱。李树刚等^[15] 进行不同温度下煤样瓦斯等温吸附试验,得出吸附温度越高,瓦斯吸附量及吸附饱和平衡时间越小。蔺亚兵等^[16] 发现煤吸附 CH₄ 的饱和吸附量和吸附速率随着吸附温度的增高而明显降低。田伟兵等^[17]、周西华等^[18]、王凤林等^[19] 研究发现煤对甲烷气体的吸附能力随煤样含水率的升高而减小。

以上多着重于研究吸附质种类,变质程度,温度,粒度,水分等单因素对煤吸附 CH₄ 特性(吸附量、吸附常数、吸附能力等)的影响,实际上,影响煤吸附 CH₄ 体积的因素有很多,学者们对煤吸附 CH₄ 体积

的研究也多限于探究其与单因素的变化关系,各因素之间是否存在交互作用,多因素耦合作用下对煤吸附 CH₄ 体积影响规律及其显著性方面鲜有报道,煤吸附 CH₄ 体积是影响煤层气含量及产能关键参数之一,因此,研究各因素单独及耦合作用下对煤吸附 CH₄ 体积影响的敏感程度更为科学、合理,具有现实意义。鉴于此,笔者以山西常村与赵庄煤矿煤样为试验样品,以环境温度 T ,煤样粒径 D ,含水率 W 为试验因素,煤吸附 CH₄ 体积 V_L 为试验指标,采用 HCA 高压容量法测定不同条件下煤对 CH₄ 吸附量,以赵庄矿煤样单因素试验数据为基础,然后分别构建 CH₄ 吸附量在三因素、三水平条件下的 2 次回归响应曲面模型,研究各因素对 CH₄ 吸附量影响程度,明确各因素间交互作用与影响,克服了单因素试验及正交试验无法解释各因素间的交互作用以及不能给出因素和响应值之间明确的回归模型的缺陷,得出各因素(环境温度 T ,煤样粒径 D ,含水率 W)作用下煤吸附 CH₄ 体积的变化特性,为进一步研究煤体吸附 CH₄ 特性提供理论基础,同时为井下开采过程中实施煤与瓦斯突出事故措施提供了理论指导。

1 试 验

1.1 试验样品与装置

试验煤样选自常村矿 2302 辅助运输巷壁面与赵庄矿 13102 底抽巷壁面,常村煤样为贫煤,赵庄煤样为无烟煤,采集新露头的煤块,取样后作防氧化、粉碎和筛取处理。煤样工业分析指标见表 1。

该试验装置主要由恒温、抽真空、气路和吸附等

表1 工业分析结果

Table 1 Industrial analysis results

煤样	$M_{ad}/\%$	$A_{ad}/\%$	$V_{daf}/\%$	$FC_d/\%$
常村矿	1.18	9.06	13.17	76.59
赵庄矿	1.45	15.25	11.21	72.09

系统组成,如图1所示。

1.2 煤样制备

为研究煤样的 T 、 D 、 W 对煤吸附 CH_4 体积的影响,将吸附罐放置在恒温水槽中,以保证罐体温度恒定,筛选不同 D , 配制不同 W 的试验煤样进行吸附试验,先将试验煤样加湿后,再装入罐体中,如图2所示。

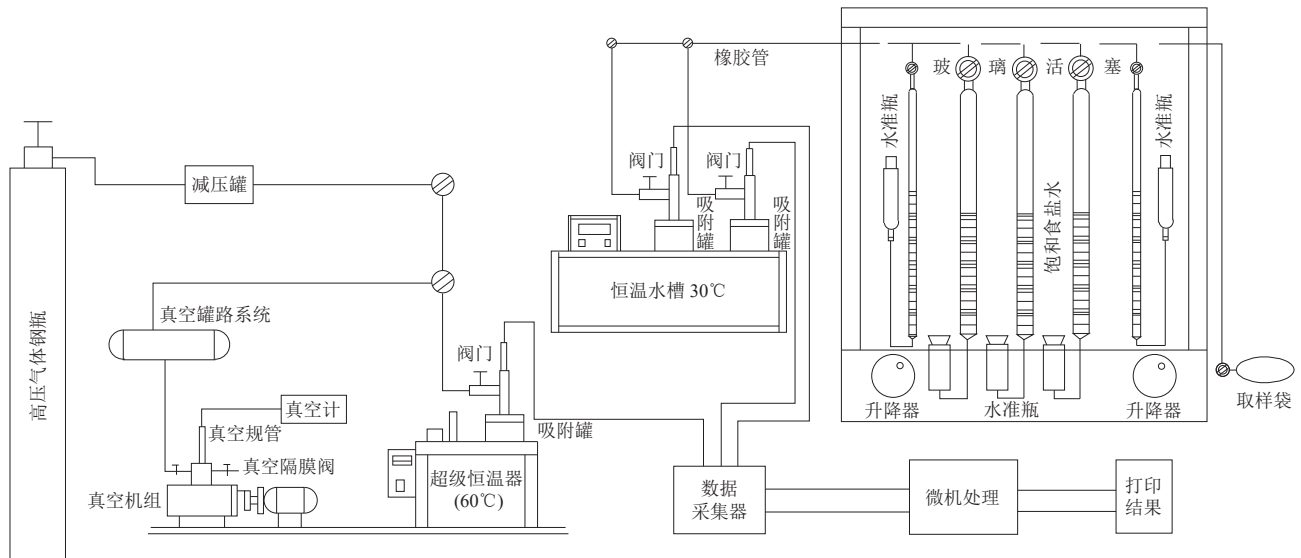


图1 试验装置

Fig.1 Test equipment

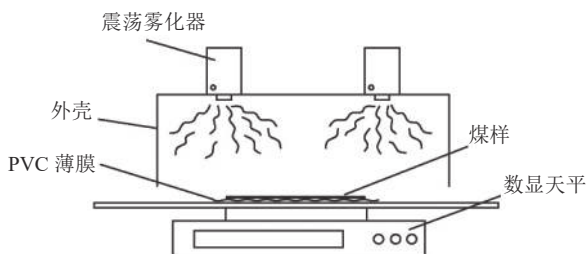


图2 煤样加湿系统

Fig.2 Humidifying system for coal sample

取煤样 50 g 恒温干燥 (80 °C) 4 h, 以喷雾的形式将水喷洒至煤粉表面, 取出适量煤样测定含水率, 将加湿后煤样装入吸附罐, 同时采用脱脂棉将其覆盖。通过控制吸附罐脱真空时间, 进而控制 W , 符合试验要求。

1.3 试验步骤

HCA 型高压瓦斯吸附装置试验步骤如下: ①采用惰性气体 He 测定出样品室和参考室体积; ②称取目标规格 (0.15 ~ 0.20、0.20 ~ 0.25、0.25 ~ 0.30 mm) 煤样 50 g 放置在玻璃器皿中, 用真空干燥箱恒温 105 °C (不小于 4 h), 通过喷雾装置将水均匀喷洒至煤样表面, 并搅拌均匀, 搁置一段时间使其充分沁润, 用煤炭水分测定仪测定含水率, 记录数据; ③气密性检验结束后, 将煤样罐放入 60 °C 的恒温水浴在压

力 4 Pa 以下脱气 4 h, 然后再将煤样罐放入恒温水浴槽中进行等温吸附试验; ④连接低压吸附管路, 待吸附平衡后, 读取大气压力、室内温度并录入系统, 平衡时间不小于 8 h; ⑤低压吸附结束后, 向煤样罐内注入高压气体, 待第 1 个点吸附平衡后, 打开煤样罐与吸附管路测出解吸气体量, 同时记录大气压力、室温, 重复操作, 共测定 6 个压力平衡点, 且最后一个平衡时间均不小于 8 h; ⑥最后根据低压吸附与高压吸附试验获取该煤样在相应条件下的等温吸附曲线; ⑦改变试验条件, 重复试验。

1.4 试验条件设定

试验过程选取影响煤吸附 CH_4 的 3 个影响因素 (T 、 D 、 W), 先进行单因素试验, 设定 T 为 15, 20, 25, 30, 35 和 40 °C, D 为 0.15 ~ 0.20, 0.20 ~ 0.25 和 0.25 ~ 0.30 mm, 常村煤矿 W 范围为 0.08%~4.21%, 共 7 个测试点, 赵庄煤矿 W 范围为 0.04%~3.62%, 共 8 个测试点, 然后进行响应面试验设计, 构建试验 V_L 模型, 分析 3 种影响因素 (T 、 D 、 W) 3 个水平的响应面。

2 试验结果与分析

2.1 温度对吸附量的影响

为使吸附量更接近真实吸附值, 测试常村煤矿

采样地点壁面温度为 22 °C, 赵庄煤矿采样地点壁面温度为 15 °C, 为此, 选取试验温度为 15、20、25、30、35、40 °C 进行吸附试验, D 为 0.2 ~ 0.25 mm, 在 105 °C 条件下, 将煤样烘干 6 h 之后, 每间隔 1 h 取出煤样进行称重, 相邻时间间隔测试质量差值小于 0.01 g, 即可认为烘干煤样含水率趋于一致, 逐次测试各温度点平衡后的吸附量 V_L , V_L 随温度 T 影响变化特性如图 3 所示。

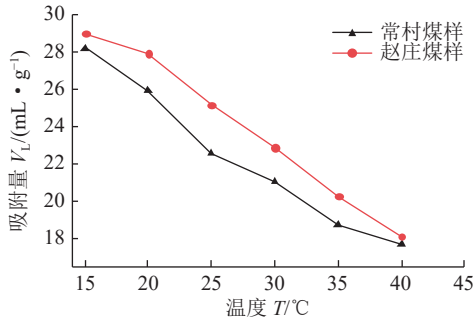


图 3 吸附量随煤温变化规律

Fig.3 The change of adsorption capacity with coal temperature

由图 3 可知: 随着温度的升高, 吸附量逐渐下降, 即常村与赵庄煤样对 CH₄ 吸附能力表现为随 T 升高而下降, 2 者变化特性呈现一致性, T 由 15 °C 升至 40 °C 时, 常村煤样的 V_L 由 28.234 2 mL/g 下降到 17.729 1 mL/g, 降低了 37.09%, 赵庄煤样的 V_L 由 29.012 7 mL/g 下降到 18.132 3 mL/g, 降低了 37.5%。随着环境温度的升高, 位于煤体孔隙中的气体分子势能增加, 分子热运动加快, 使其容易摆脱孔隙表面分子吸引力, 滞留在煤基质表面的气体量减少, 导致 CH₄ 吸附量降低。相同温度下, 常村煤样 CH₄ 吸附量均小于赵庄煤样 CH₄ 吸附量, 主要是由于常村煤样属于贫煤, 赵庄煤样属于无烟煤, 进一步证实煤对气体吸附能力随煤化程度的增大而增加。

2.2 粒径对吸附量的影响

烘干煤样, T 为 30 °C, 选取试验粒径为 0.15 ~ 0.20, 0.20 ~ 0.25, 0.25 ~ 0.3 mm, 为了便于数据处理, 取等步距 0.175 (0.15 ~ 0.20)、0.225 (0.20 ~ 0.25)、0.275 (0.25 ~ 0.3) mm 代表各范围内粒径 D , 逐次测试各不同煤样粒径的吸附量 V_L , V_L 与粒径 D 变化关系见表 2。

由表 2 可知: 煤样吸附量随煤样 D 增大而减小, 即煤样粒径越小, CH₄ 吸附量越大, 表明煤吸附 CH₄ 能力越强, D 由 0.175 到 0.275 mm, 常村煤样的 V_L 由 22.595 2 mL/g 下降至 19.236 1 mL/g, 降低了 14.87%, 赵庄煤样的 V_L 由 23.863 2 mL/g 下降至 20.159 3 mL/g,

表 2 煤样 D 与 V_L 关系

Table 2 The relationship between coal sample D and V_L

试验煤样	D / mm	V_L / (mL·g ⁻¹)
常村矿	0.275	19.236 1
	0.225	21.044 1
	0.175	22.595 2
赵庄矿	0.275	20.159 3
	0.225	22.900 2
	0.175	23.863 2

降低了 15.52%, 一方面由于煤样在破碎过程中, 煤孔隙结构的损伤程度增强, 孔隙复杂程度降低, 瓦斯更易进入煤体内部。另一方面可能是由于煤样粒径减小, 煤体孔隙结构被破坏, 部分闭孔被打开, 且由于闭孔的打开煤孔隙吸附点位增多, 从而导致瓦斯吸附空间增大。此外, 煤吸附 CH₄ 能力主要受比表面积的影响, 文献 [14,20] 认为, 粒径越小比表面积越大, 吸附的瓦斯量也越多。

2.3 含水率对吸附量的影响

加湿煤样, T 为 30 °C, 煤样粒径为 0.20 ~ 0.25 mm, 进行等温吸附试验, 逐次测试各不同煤样含水率的吸附量 V_L , V_L 随含水率 W 影响变化特性如图 4 所示。

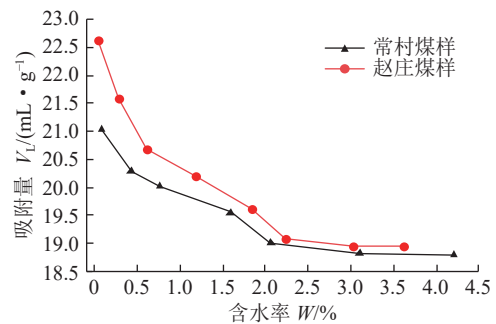


图 4 吸附量随含水率变化规律

Fig.4 The adsorption capacity varies with the moisture content

由图 4 可知: CH₄ 吸附量随 W 增大而减小, 当 W 趋于饱和时, CH₄ 吸附量逐渐趋于稳定。常村煤样 W 为 4.21%, V_L 由 21.029 5 mL/g 下降到 18.799 mL/g; 降低了 10.61%, 赵庄煤样的 W 为 3.62%, V_L 由 22.637 2 mL/g 下降到 18.945 8 mL/g, 降低了 16.31%。分析原因为: ①由于煤对 H₂O 的吸附能力大于 CH₄, 存在少数的 H₂O 分子和 CH₄ 分子展开竞争吸附, 致使 CH₄ 吸附量减少。②水的存在一定程度上堵塞了孔隙及孔喉, 阻止了 CH₄ 气体进入孔隙, 导致吸附量减小。③水的存在使得煤中黏土膨胀, 有效微孔体积收缩, 导致 CH₄ 吸附量减小。

3 响应面试验设计与预测

响应曲面法 (RSM) 是在合理的试验设计和试验基础上, 采用多元 2 次回归方程拟合因素与响应值之间的函数关系, 通过对回归方程的分析来寻求最优工艺参数, 从而解决多变量问题的一种统计方法, 并且能够评价各因素间的交互作用, 在多个领域得到广泛应用, 具有试验次数少, 精密度高和预测性好等优点^[21], 通过专业分析试验数据即可得到可视化模型, 满足本试验的设计需求。

3.1 试验设计及结果

以赵庄矿煤样单因素煤吸附 CH₄ 试验为基础, 温度 T , 煤样粒径 D , 含水率 W 为本次试验设计的 3 个影响因素, 煤对 CH₄ 吸附量 V_L 为响应值, 试验设计过程对 T 、 D 、 W 分别取 -1、0、1 进行编码, 3 个影响因素代号分别为 A 、 B 、 C , 取 $T=30\text{ }^\circ\text{C}$ 、 $D=0.225\text{ mm}$ 、 $W=1.83\%$ 为固定值。改变其中 1 种因素, 其他 2 种因素不变, 选取 3 个影响因素的范围分别为: 温度 A 为 $20\sim 40\text{ }^\circ\text{C}$ 、煤样粒径 B 为 $0.175\sim 0.275\text{ mm}$ 、含水率 C 为 $0.04\%\sim 3.62\%$, 影响因素水平及编码见表 3, 模型的试验设计及结果见表 4。

表 3 影响因素水平及编码
Table 3 Levels and codes of influencing factors

影响因素	代号	编码及水平			间距
		-1	0	+1	
温度/ $^\circ\text{C}$	A	20	30	40	10
粒径/mm	B	0.175	0.225	0.275	0.05
含水率/%	C	0.04	1.83	3.62	1.79

3.2 模型的显著性检验

对表 4 中吸附量 V_L 的试验数据进行多元回归, 得到煤对 CH₄ 吸附量 V_L 对温度 A 、煤样粒径 B 、含水率 C 的 2 次多项式回归方程为

$$V_L = 18.37 - 3.10A - 1.20B - 0.66C - 0.23AB - 0.14AC + 0.35BC + 1.06A^2 + 0.27B^2 + 0.17C^2 \quad (1)$$

式中, $20 \leq A \leq 40$, $0.175 \leq B \leq 0.275$, $0.04 \leq C \leq 3.62$ 。

方差分析结果见表 5, 显著性检验结果见表 6, 其中 F 表示检验所得值, 反映的是各因素对 V_L 的影响, 其值越大, 表示影响程度越大, 相反, 影响程度越小。 P 为置信度, 表示出现不可能事件的概率, 其值越小, 越能反映模型的显著性。 F 值越大, P 值越小, 表明分析结果越可靠, 显著性越强。 $0.01 < P < 0.05$ 表示显著, $P < 0.01$ 表示极显著, $P > 0.05$ 表示不显著。

由表 5 可知, 试验 V_L 所选模型是极显著的

表 4 试验设计及结果

Table 4 Experimental design and results

编号	$A/^\circ\text{C}$	B/mm	$C/\%$	$V_L/(\text{mL} \cdot \text{g}^{-1})$
1	30	0.175	0.04	21.071 1
2	30	0.275	3.62	17.320 1
3	40	0.275	1.83	15.065 1
4	30	0.225	1.83	18.459 1
5	20	0.275	1.83	21.893 1
6	20	0.175	1.83	23.688 1
7	40	0.225	0.04	17.403 6
8	30	0.275	0.04	17.901 1
9	40	0.175	1.83	17.763 1
10	20	0.225	3.62	22.069 1
11	30	0.225	1.83	18.478 1
12	20	0.225	0.04	23.188 1
13	30	0.175	3.62	18.833 1
14	30	0.225	1.83	18.268 1
15	30	0.225	1.83	17.945 1
16	30	0.225	1.83	18.207 1
17	40	0.225	3.62	15.599 1

表 5 吸附量 V_L 回归模型方差分析

Table 5 Variance analysis of adsorption capacity V_L regression model

项目	平方和	自由度	均方	F	P
模型	99.40	9	11.04	342.82	<0.000 1
残差	0.23	7	0.032	—	—
失拟项	0.037	3	0.012	0.26	0.850 5
纯误差	0.19	4	0.047	—	—
总和	99.62	16	—	—	—

决定系数 $R^2 = 0.997 7$ 校正系数 $R_{\text{Adj}}^2 = 0.994 8$
 预测系数 $R_{\text{Pred}}^2 = 0.991 1$ 变异系数 $V_C = 0.94\%$
 精密度 $P_{\text{Adj}} = 62.079$

($P < 0.000 1$, $F = 342.82$); 模型失拟度不显著 ($P = 0.850 5$, $F = 0.26$), 说明试验中没有异常数据点, 不需要引入更高次数的项。该回归方程决定系数 $R^2 = 0.997 7$, 说明模型相关性较好; 校正系数 R_{Adj}^2 为 0.994 8, 说明仅有不到 0.1% 总变异不能由该模型解释; 预测系数 R_{Pred}^2 为 0.991 1, 与 R_{Adj}^2 差值为 0.003 7 (< 0.2), 变异系数 $V_C = 0.94\%$ ($< 10\%$), 精密度为 62.079 (大于 4 视为合理), 说明该模型的可信度和精密度较高。

由表 6 显著性检验可知: 模型的一次项温度 A 、煤样粒径 B 、含水率 C 均达到极显著水平 ($P < 0.000 1$),

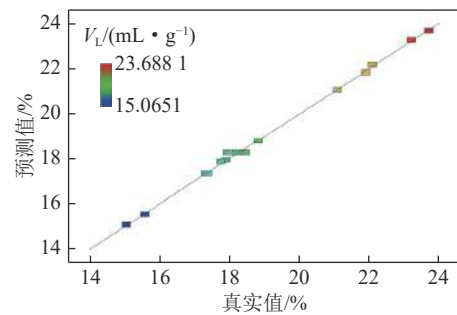
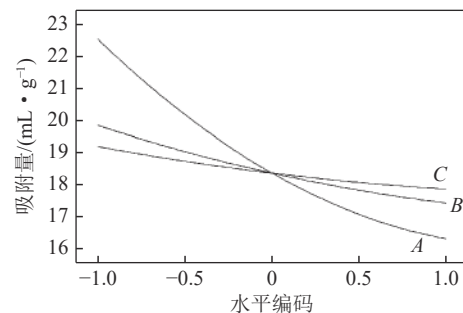
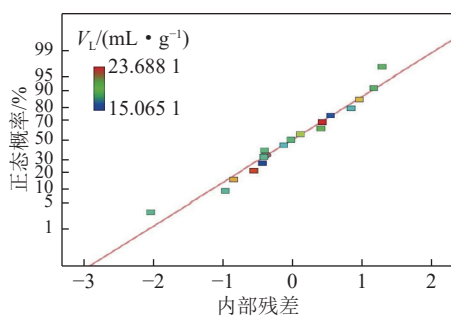
表 6 吸附量 V_L 回归方程系数显著性检验Table 6 Significance test of the coefficient of adsorption capacity V_L regression equation

因素	回归系数	平方和	自由度	均方	标准误差	95%置信下限	95%置信上限	F	P
截距	18.37	—	1		0.080	18.18	18.56	—	—
A	-3.10	74.35	1	74.35	0.065	-3.26	-2.95	2 307.95	<0.000 1
B	-1.20	11.17	1	11.17	0.065	-1.36	-1.05	346.64	<0.000 1
C	-0.66	4.29	1	4.29	0.057	-0.79	-0.52	133.32	<0.000 1
AB	-0.23	0.20	1	0.20	0.090	-0.44	-0.014	6.33	0.040 1
AC	-0.14	0.12	1	0.12	0.076	-0.32	0.034	3.65	0.097 8
BC	0.35	0.69	1	0.69	0.076	0.17	0.53	21.31	0.002 4
A^2	1.06	4.71	1	4.71	0.087	0.85	1.26	146.09	<0.000 1
B^2	0.27	0.32	1	0.32	0.087	0.067	0.48	9.78	0.016 7
C^2	0.17	0.23	1	0.23	0.062	0.021	0.32	7.29	0.030 6

对吸附量 V_L 的线性效应极显著, 3 个因素对 V_L 的影响程度为: 温度 $A(F=2\ 307.95)$ >煤样粒径 $B(F=346.64)$ >含水率 $C(F=133.32)$, 表明温度对 V_L 的影响最大, 其次为煤样粒径和含水率。交互项 AB 交互效应显著 ($P=0.040\ 1$), 交互项 BC 极显著 ($P=0.002\ 4$), 交互项 AC 不显著, 对 V_L 的影响程度为: $BC(F=21.31)$ > $AB(F=6.33)$ > $AC(F=3.65)$, 表明各因素对吸附量 V_L 的影响不是简单的线性关系。

绘制特征图具体如图 5—图 7 所示。由图 5 可知, 除存在极少数离散点以外, 绝大多数点沿直线均匀分布, 表明模型残差服从正态分布。由图 6 可知, 吸附量 V_L 的预测值与试验值切合状态良好。图 7 显示出吸附量 V_L 对独立变量温度 A 、煤样粒径 B 及含水率 C 的敏感程度, 3 条曲线的斜率表现为 $A>B>C$, 进一步表明温度对吸附量 V_L 的影响最为显著, 图 6 还可以反映温度 A 、煤样粒径 B 及含水率 C 在设计空间中心点对响应值 V_L 的影响程度, 3 者对吸附量 V_L 均有显著的负向影响。所谓负向影响表示响应值 V_L 随着影响因数水平 A 、 B 、 C 的增加而减小, 即随着温度、煤样粒径及含水率的增加, CH₄ 吸

附量 V_L 逐渐减小, 综上所述, 所选模型是合适的, 可用于分析和预测煤对 CH₄ 吸附量 V_L 。

图 6 吸附量 V_L 预测值与真实值Fig.6 Predicted and true values of adsorption capacity V_L 图 7 吸附量 V_L 扰动特征Fig.7 Perturbation of adsorption amount V_L 图 5 吸附量 V_L 残差正态分布Fig.5 The normal distribution of the residual V_L of adsorption capacity

3.3 响应曲面分析

吸附量 V_L 模型的响应曲面图和等高线图如图 8 所示, 响应面曲线反映了吸附量 V_L 随影响因数变化的变化趋势, 由图 8 可以看出: 单因素及 2 个影响因素对 V_L 影响特性呈现单调性, 均在最小时为响应极大值, 即吸附量 V_L 随温度、煤样粒径、含水率的增大而减小, 当单因素及 2 个影响因素在区间范围内处于较低水平时, 可以获得较高的吸附量 V_L 。

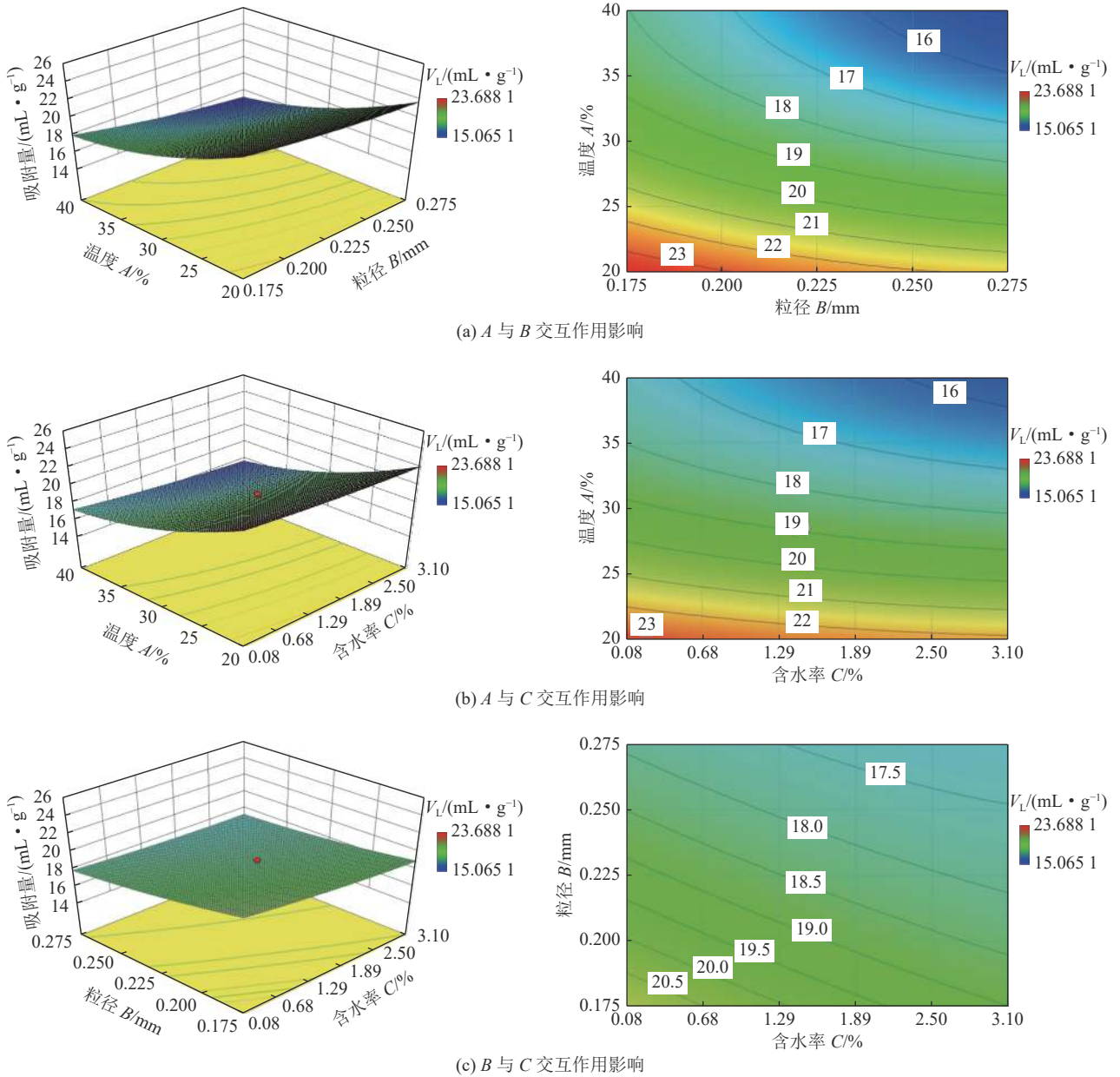


图8 交互影响 V_L 的响应面图及等高线图

Fig.8 Response surface plot and contour plot of the interactive effect on V_L

3.4 模型验证

由于AC项不显著,舍去该项优化模型:

$$V_L = 18.37 - 3.10A - 1.20B - 0.66C - 0.23AB + 0.35BC + 1.06A^2 + 0.27B^2 + 0.17C^2 \quad (2)$$

式中, $20 \leq A \leq 40$; $0.175 \leq B \leq 0.275$; $0.04 \leq C \leq 3.62$ 。

去掉AC项后方程中 $R^2_{Adj} = 0.993$, 表明调整前后模型对 V_L 变异的描述准确程度相当; 而 $R^2 = 0.996$, 表明调整前后模型在实测值和预测值拟合度基本一致。利用优化后的模型考察建立模型的适用性, 当煤样达到饱和含水率后, 对煤吸附 CH_4 影响受限, 本次编码区间外试验值 W 均小于煤样饱和含水率, 将其与模型预测值进行对比, 已知各因素的确定条件

为 $20 \leq A \leq 40$; $0.175 \leq B \leq 0.275$; $0.04 \leq C \leq 3.62$, 结果对比具体见表7。

由表7可以得出, 每组吸附量 V_L 实际试验值均接近于预测值, 二者误差率在 2.01%~3.98%, 平均误差

表7 试验与模型预测结果对比

Table 7 Comparison of test and model prediction results

序号	$T/^\circ C$	D/mm	$W/\%$	吸附量 $V_L/(mL \cdot g^{-1})$		误差率/%
				试验值	预测值	
1	15	0.225	3.89	25.335 6	24.826	2.01
2	45	0.275	3.89	16.044 7	15.448 2	3.72
3	15	0.175	4.25	26.253 5	25.322 5	3.55
4	45	0.275	4.25	15.382 5	14.770 8	3.98

差率为3.315%,各误差均在可以考虑范围内,结果表明:采用响应曲面法优化得到的参数准确可靠,吸附量 V_L 模型适用性满足要求。

3.5 工程应用启示

煤吸附CH₄能力往往受温度、压力、粒径和含水量等多种因素共同影响,井下采煤过程中,各因素时常会发生较大变化,对CH₄吸附量 V_L 影响程度排序为温度>粒径>含水量,即井下煤层温度起主要控制作用,温度稍有升高,煤吸附CH₄体积极可能大幅度减小,因此,井下采煤过程中,温度、含水量、煤粒径等多因素变化时,首要实时监测温度的变化,以防止温度骤变诱发大量瓦斯解吸,导致瓦斯超限甚至发生煤与瓦斯突出事故。此外,如果现场能够测得煤层温度、含水量及粒径具体数值,由所建吸附量 V_L 模型就可以计算出CH₄吸附量,而吸附常数 a 和 b 可通过试验室测得,根据Langmuir方程(式(3))可知煤层原始CH₄气体压力,而煤层瓦斯原始压力是预测判断煤与瓦斯突出事故发生的一个重要指标,通过响应面试验设计所建模型及各影响因素显著性分析对现场初步预测煤与瓦斯突出及防灾减灾提供了一定的参考依据。

$$V = \frac{abp}{1+bp} \quad (3)$$

式中, V 为甲烷吸附量, m^3/t ; a , b 统称吸附常数, a 为极限吸附量, m^3/t ; b 为Langmuir吸附系数, MPa^{-1} ; p 为甲烷气体压力, MPa 。

4 结 论

1)煤吸附CH₄的Langmuir体积随环境温度升高、煤粒尺寸增加及含水量升高而减小。温度由15℃升至40℃时,常村及赵庄煤CH₄吸附体积减小幅度分别为37.09%、37.5%;煤样粒径由0.15 mm增至0.3 mm时,常村及赵庄煤CH₄吸附体积减小幅度分别为14.87%、15.52%;常村煤含水量从0.08%增加到4.21%时,CH₄吸附体积减小幅度为10.61%,赵庄煤含水量从0.04%增加到3.62%时,CH₄吸附体积减小幅度为16.31%。

2)单一因素温度、煤样粒径及含水量是吸附量 V_L 显著项,对吸附量 V_L 影响程度大小依次为温度、粒径、含水量。多因素对吸附量 V_L 影响效果为:煤样粒径与含水量交互作用极显著,温度和煤样粒径交互作用显著,温度和含水量交互作用不显著,对 V_L 的影响程度大小依次为:粒径和含水量、温度和粒径、温度和含水量。

3)基于曲面响应法设计的吸附量 V_L 模型准确可靠,编码区间外试验值与模型预测值的误差率最大为3.98%,最小为2.01%,平均误差率为3.315%。可用于分析预测温度,煤样粒径及含水量对煤吸附CH₄体积的影响特性,对井下工作面回采过程中预防煤与瓦斯突出一定的参考依据。

参考文献(References):

- [1] 林海飞, 蔚文斌, 李树刚, 等. 煤体吸附CH₄及CO₂热力学特性试验研究[J]. 中国安全科学学报, 2018, 28(6): 129-134.
LIN Haifei, WEI Wenbin, LI Shugang, et al. Experimental study on thermodynamics characteristics of CH₄ and CO₂ adsorption on coal[J]. China Safety Science Journal, 2018, 28(6): 129-134.
- [2] 叶建平, 陆小霞. 我国煤层气产业发展现状和技术进展[J]. 煤炭科学技术, 2016, 44(1): 24-28.
YE Jianping, LU Xiaoxia. Development status and technical progress of China coalbed methane industry[J]. Coal Science and Technology, 2016, 44(1): 24-28.
- [3] 周西华, 韩明旭, 白刚, 等. CO₂注气压力对瓦斯扩散系数影响规律实验研究[J]. 煤田地质与勘探, 2021, 49(1): 81-86, 99.
ZHOU Xihua, HAN Mingxu, BAI Gang, et al. Experimental study on the influence of CO₂ injection pressure on gas diffusion coefficient[J]. Coal Geology & Exploration, 2021, 49(1): 81-86, 99.
- [4] GANG Bai, YANHANG Jiang, XUEMING Li, et al. Quantitative experimental investigation of CO₂ enhancement of the desorption rate of adsorbed CH₄ in coal[J]. Energy Reports, 2020, 6: 2336-2344.
- [5] 李站伟, 汤达祯, 唐淑玲, 等. 准噶尔盆地南缘富CO₂低阶煤层气藏的形成机理研究[J]. 煤炭科学技术, 2021, 49(3): 175-180.
LI Zhanwei, TANG Dazhen, TANG Shuling, et al. Study on formation mechanism of CO₂-enriched CBM reservoirs in low-rank coal seams from southern Zhunggar Basin[J]. Coal Science and Technology, 2021, 49(3): 175-180.
- [6] 王志军, 宋文婷, 马小童, 等. 温度对煤体瓦斯吸附特性影响实验分析[J]. 河南理工大学学报:自然科学版, 2014, 33(5): 553-557.
WANG Zhijun, SONG Wenting, MA Xiaotong, et al. Analysis of experiments for the effect of temperature on adsorbing capability of coal[J]. Journal of Henan Polytechnic University: Natural Science, 2014, 33(5): 553-557.
- [7] 许江, 蔡果良, 彭守建, 等. 温度对二次炭化型煤吸附特性及孔结构影响的研究[J]. 煤炭科学技术, 2021, 49(11): 21-29.
XU Jiang, CAI Guoliang, PENG Shoujian, et al. Effect of carbonization temperature on adsorption characteristics and pore structure of secondary carbonized coal briquette specimens[J]. Coal Science and Technology, 2021, 49(11): 21-29.
- [8] 陈向军, 赵伞, 司朝霞, 等. 不同变质程度煤孔隙结构分形特征对瓦斯吸附性影响[J]. 煤炭科学技术, 2020, 48(2): 118-124.
CHEN Xiangjun, ZHAO San, SI Zhaoxia, et al. Fractal characteristics of pore structure of coal with different metamorphic degrees and its effect on gas adsorption characteristics[J]. Coal Science and Technology, 2020, 48(2): 118-124.

- [9] HUANG J, XU G, HU G, *et al.* A coupled electromagnetic irradiation, heat and mass transfer model for microwave heating and its numerical simulation on coal[J]. *Fuel Processing Technology*, 2018, 177: 237–245.
- [10] 武司苑, 邓存宝, 戴凤威, 等. 煤吸附CO₂、O₂和N₂的能力与竞争性差异[J]. 环境工程学报, 2017, 11(7): 4229–4235.
WU Siyuan, DENG Cunbao, DAI Fengwei, *et al.* Differences of ability and competitiveness on coal adsorbing CO₂, O₂ and N₂[J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2017, 11(7): 4229–4235.
- [11] 卢守青, 王亮, 秦立明. 不同变质程度煤的吸附能力与吸附热力学特征分析[J]. 煤炭科学技术, 2014, 42(6): 130–135.
LU Shouqing, WANG Liang, QIN Liming. Analysis on adsorption capacity and adsorption thermodynamic characteristics of different metamorphic degree coals[J]. *Coal Science and Technology*, 2014, 42(6): 130–135.
- [12] 陈向军, 刘军, 王林, 等. 不同变质程度煤的孔径分布及其对吸附常数的影响[J]. 煤炭学报, 2013, 38(2): 294–300.
CHEN Xiangjun, LIU Jun, WANG Lin, *et al.* Influence of pore size distribution of different metamorphic grade of coal on adsorption constant[J]. *Journal of China Coal Society*, 2013, 38(2): 294–300.
- [13] 林海飞, 蔚文斌, 李树刚, 等. 多因素对煤样吸附瓦斯影响试验研究[J]. 中国安全科学学报, 2015, 25(9): 121–126.
LIN Haifei, WEI Wenbin, LI Shugang, *et al.* Experiment study on effects of factors on gas adsorption of coal sample[J]. *China Safety Science Journal*, 2015, 25(9): 121–126.
- [14] 梁冰, 贾立锋, 孙维吉, 等. 粒状煤和块状煤等温吸附CH₄试验研究[J]. 中国安全生产科学技术, 2017, 13(3): 53–57.
LIANG Bing, JIA Lifeng, SUN Weiji, *et al.* Experimental study on isothermal adsorption of methane by granular coal and lump coal[J]. *Journal of Safety Science and Technology*, 2017, 13(3): 53–57.
- [15] 李树刚, 白杨, 林海飞, 等. 温度对煤吸附瓦斯的动力学特性影响实验研究[J]. 西安科技大学学报, 2018, 38(2): 181–186.
LI Shugang, BAI Yang, LIN Haifei, *et al.* Experimental study on the effect of temperature on the kinetics characteristics of gas adsorption on coal[J]. *Journal of Xi'an University of Science and Technology*, 2018, 38(2): 181–186.
- [16] 蒯亚兵, 马东民, 刘钰辉, 等. 温度对煤吸附甲烷的影响实验[J]. 煤田地质与勘探, 2012, 40(6): 24–28.
LIN Yabing, MA Dongmin, LIU Yuhui, *et al.* Experiment of the influence of temperature on coal bed methane adsorption[J]. *Coal Geology and Exploration*, 2012, 40(6): 24–28.
- [17] 田伟兵, 李爱芬, 韩文成. 水分对煤层气吸附解吸的影响[J]. 煤炭学报, 2017, 42(12): 3196–3202.
TIAN Weibing, LI Aifen, HAN Wencheng. Effect of water content on adsorption/desorption of coalbed methane[J]. *Journal of China Coal Society*, 2017, 42(12): 3196–3202.
- [18] 周西华, 常利强, 白刚, 等. 水分对不同煤种吸附甲烷特性影响及机理分析[J]. 辽宁工程技术大学学报(自然科学版), 2019, 38(5): 402–408.
ZHOU Xihua, CHANG Liqiang, BAI Gang, *et al.* The influence of water on methane adsorption characteristics of different coal types and the mechanism analysis[J]. *Journal of Liaoning Technical University(Natural Science)*, 2019, 38(5): 402–408.
- [19] 王凤林, 袁玉, 张遂安, 等. 不同含水及负压条件下煤层气等温吸附解吸规律[J]. 煤炭科学技术, 2019, 47(6): 158–163.
WANG Fenglin, YUAN Yu, ZHANG Suian, *et al.* Isothermal adsorption and desorption of coalbed methane under different water saturation and negative pressure[J]. *Coal Science and Technology*, 2019, 47(6): 158–163.
- [20] FENG Yanyan, YANG Wen, CHU Wei. Coalbed methane adsorption and desorption characteristics related to coal particle size[J]. *Chinese Physics B*, 2016, 25(6): 068102.
- [21] 刘丹丹, 刘衡, 李德文, 等. 基于响应曲面法煤矿粉尘浓度测量装置优化研究[J]. 煤炭科学技术, 2020, 48(4): 224–229.
LIU Dandan, LIU Heng, LI Dewen, *et al.* Optimization of coal dust concentration measurement device based on response surface methodology[J]. *Coal Science and Technology*, 2020, 48(4): 224–229.