



移动扫码阅读

秦玉金, 安丰华, 苏伟伟, 等. 基于 Fick 定律的柱状煤瓦斯扩散系数变化规律及模型构建[J]. 煤炭科学技术, 2023, 51(8): 140-149.

QIN Yujin, AN Fenghua, SU Weiwei, *et al.* Direct determination of the diffusion coefficient variation of coal based on Fick's law and model establishment[J]. Coal Science and Technology, 2023, 51(8): 140-149.

## 基于 Fick 定律的柱状煤瓦斯扩散系数变化规律及模型构建

秦玉金<sup>1</sup>, 安丰华<sup>1,2</sup>, 苏伟伟<sup>1</sup>, 贾宏福<sup>1,2,3</sup>, 陈向军<sup>2</sup>

(1. 中煤科工集团沈阳研究院有限公司 煤矿安全技术国家重点实验室, 辽宁 抚顺 113122; 2. 河南理工大学 煤炭安全生产与清洁高效利用省部共建协同创新中心, 河南 焦作 454000; 3. 河南理工大学 安全科学与工程学院, 河南 焦作 454000)

**摘要:** 瓦斯扩散能力直接影响瓦斯资源开采、突出危险性、瓦斯涌出及含量测定。为了研究煤中瓦斯扩散系数受应力、瓦斯压力、温度等因素的作用规律, 在稳定浓度差条件下对柱状煤进行了扩散系数测定, 避免了通过解吸曲线反推扩散系数带来的模型依赖性问题。研究表明: 无论是吸附性气体甲烷还是非吸附性气体氦气, 扩散系数与有效应力近似为负线性关系, 但相较于渗透率受影响较小; 甲烷扩散系数随进气压力(浓度梯度)增大呈幂函数衰减规律, 与温度关系满足阿伦尼乌斯公式。对比分析了稳态法实测扩散系数与经典模型和时变扩散系数模型所得扩散系数, 发现所得扩散系数的量级相同, 大小可相差数倍, 且扩散系数随甲烷压力增大变化趋势不同。基于扩散系数受压力(浓度梯度)和温度影响规律, 建立了变扩散系数扩散模型, 并利用柱状煤实测的扩散系数对粒煤在恒温 and 变温条件下解吸数据进行了预测。对预测结果进行解吸试验验证, 表明该模型无论是在恒温还是变温条件下都能很好反映煤基质中瓦斯扩散过程。

**关键词:** 瓦斯涌出; 扩散系数; 稳态法; 浓度梯度; 应力; 变扩散系数模型

中图分类号: TD712

文献标志码: A

文章编号: 0253-2336(2023)08-0140-10

### Direct determination of the diffusion coefficient variation of coal based on Fick's law and model establishment

QIN Yujin<sup>1</sup>, AN Fenghua<sup>1,2</sup>, SU Weiwei<sup>1</sup>, JIA Hongfu<sup>1,2,3</sup>, CHEN Xiangjun<sup>2</sup>

(1. State Key Laboratory of Coal Mine Safety Technology, China Coal Technology & Engineering Group Shenyang Research Institute, Fushun 113122, China; 2. State Collaborative Innovation Center of Coal Work Safety and Clean-efficiency Utilization, Henan Polytechnic University, Jiaozuo 454000, China; 3. School of Safety Science and Engineering, Henan Polytechnic University, Jiaozuo 454000, China)

**Abstract:** Gas diffusion ability directly affects gas exploitation, outburst risk, emission and content determination. In order to study the influence of stress, gas pressure and temperature on gas diffusion coefficient in coal, the gas diffusion coefficient in columnar coal sample was measured with stable concentration difference, which avoided the model dependence that caused by deducing diffusion coefficient through desorption curve. The experimental results shown that the diffusion coefficient was approximately negative linear related to the effective stress for both the adsorbed methane and the non-adsorbed helium, but it was less affected than the permeability. The methane diffusion coefficient decreased as a power function with increasing inlet pressure (concentration gradient), and the relationship with temperature satisfied the Arrhenius formula. The diffusion coefficient measured by the steady-state method was compared with those obtained by the classical model and the time-varying model. It was found that the obtained diffusion coefficients were of the same order of magnitude, the sizes can be several times different, and the variation trend of diffusion coefficient was different with increasing gas pressure. Based on the law of diffusion coefficient affected by pressure (concentration) and temperature, a variable diffusion coefficient model was estab-

收稿日期: 2022-08-24

责任编辑: 宫在芹

DOI: 10.13199/j.cnki.cst.2022-0966

基金项目: 辽宁省自然科学基金资助项目(重点科技创新基地联合开放基金项目)(2021-KF-23-09); 国家自然科学基金资助项目(52074105, 52174172)

作者简介: 秦玉金(1975—), 男, 内蒙古乌兰察布人, 研究员, 博士。Tel: 024-56613503, E-mail: qingyujin2561@sina.com

通讯作者: 安丰华(1984—), 男, 山东临沂人, 副教授, 博士。E-mail: fenghuazm009@126.com

lished. The gas desorption for granular coal at constant and variable temperature was predicted utilizing measured diffusion coefficient for columnar coal, and the prediction results were validated by desorption test. It indicated that the model can well reflect the gas diffusion process in the coal matrix under both constant and variable temperature condition.

**Key words:** gas outburst; diffusion coefficient; steady state method; concentration gradient; stress; variable diffusion coefficient model

## 0 引言

瓦斯扩散-渗流是决定瓦斯灾害、资源开采的主要物理过程。由于煤岩孔隙裂隙尺度差异大、非均质性强,如何准确描述瓦斯运移过程依然需要更多研究。在基质瓦斯扩散方面,为了减少瓦斯含量测定中损失量推算误差,对瓦斯解吸特性已经开展了较多研究。近年来也有研究表明,基质扩散会影响抽采后期渗透率变化趋势以及影响基质瓦斯压力变化<sup>[1]</sup>,且注气驱替促抽<sup>[2]</sup>、物理场促进基质瓦斯解吸<sup>[3-4]</sup>、CO<sub>2</sub>地质封存<sup>[5]</sup>等技术也需要对基质瓦斯扩散有更多认识。

影响煤的瓦斯扩散的因素较多,包括基质孔隙特征<sup>[6-8]</sup>、水分<sup>[9]</sup>、温度<sup>[10]</sup>、压力<sup>[11]</sup>、气体类型<sup>[12]</sup>等。煤中瓦斯解吸/扩散遵循 Fick 扩散定律,扩散系数及变化是描述扩散过程的关键。煤中瓦斯扩散系数差异很大,基本在  $10^{-7} \sim 10^{-15} \text{ m}^2/\text{s}$ <sup>[13]</sup>,通常利用解吸模型由粒煤瓦斯解吸曲线反算得到<sup>[14]</sup>。根据煤孔隙结构简化方式,可将解吸模型分为单孔隙扩散模型和双孔隙扩散模型。单孔隙模型简化后得到的解析解直接计算扩散系数是目前最常用的方法,包括 $\sqrt{t}$ 法<sup>[15]</sup>和对数法<sup>[16]</sup>。双孔隙模型拟合得到大孔、小孔扩散系数,尽管对解吸曲线拟合效果更好,但是应用较少。此外,解吸试验发现扩散系数随时间不断变化,可将扩散系数视为时间的函数<sup>[17]</sup>,时变扩散系数模型有更好拟合效果<sup>[10, 14]</sup>。但是扩散系数与时间关系尚未在物理机制上明晰,得到的初始扩散系数和衰减系数依然应用较少。从扩散机制出发,考虑多种扩散形式的扩散模型也在构建<sup>[18-20]</sup>,并通过数值解算对解吸过程进行模拟分析,但是用以表征煤的扩散系数过于复杂。因此,目前多利用单孔隙模型通过解吸曲线反推扩散系数,但是扩散系数大小和变化会受所选模型影响。

尽管扩散系数是表征瓦斯扩散能力的最关键参

数,但是其指标参数、大小、变化在不同解吸模型条件下有所差异。为了对煤中瓦斯扩散过程有更准确、深入的认识,笔者直接利用 Fick 扩散定律对柱状煤在稳定浓度差条件下进行扩散系数测定,避免了利用模型反算带来的依赖性影响。由此稳态直接测定方法得到应力、压力、温度变化对扩散系数影响规律,并与解吸数据推算的扩散系数结果进行了对比。在此基础上构建了变扩散系数模型,通过对粒煤解吸特性进行预测,以验证测试方法及模型可靠性。

## 1 煤样准备及试验

### 1.1 煤样制备及基本参数测定

在焦作赵固二矿二<sub>1</sub>煤层掘进工作面采集了块煤煤样。破碎、筛取部分煤样进行了工业分析、吸附常数、密度测定,结果见表 1,其中,吸附常数  $a$  为最大吸附量, mL/g; 吸附常数  $b$  为吸附量上升趋势表征参数, MPa<sup>-1</sup>。

### 1.2 煤孔隙结构

瓦斯在煤层中的赋存和流动都与煤孔隙结构密切相关,不同变质程度、构造类型煤样孔隙结构差异较大,将影响扩散系数的测定。因此,对试验煤样的孔隙结构进行了测试。气体物理吸附方法和压汞法是多孔介质最常用的分析方法,其中压汞法可分析孔径范围较广,适用于大孔和中孔孔隙的测定。采用 AUTO PORE 9505 型全自动压汞仪对煤样进行了压汞分析,得到孔容分布情况如图 1 所示。按照 B.B. 霍多特分类法,即微孔(<10 nm)、小孔(10 ~ 10<sup>2</sup> nm)、中孔(10<sup>2</sup> ~ 10<sup>3</sup> nm)、大孔(10<sup>3</sup> ~ 10<sup>5</sup> nm)和可见孔及裂隙(>10<sup>5</sup> nm),分类后可以看到可见孔和小微孔在煤中分布较多,中孔、大孔相对偏少。

低温(77 K)下 N<sub>2</sub> 吸附法适用于微孔和小孔的测定,笔者利用 ASAP-2020 比表面积分析仪对煤样进行了低温 N<sub>2</sub> 吸附试验,并采用 BJH 模型得到孔径分布结果如图 2 所示。由图 2 可以看到较小的微孔

表 1 煤样基本参数测定结果

Table 1 Results of basic parameters of the coal sample

水分 $M_{ad}/\%$	灰分 $A_{ad}/\%$	挥发分 $V_{daf}/\%$	真密度 $\rho/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$	视密度 $\rho/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$	孔隙率 $\varphi/\%$	吸附常数	
						$a/(\text{mL}\cdot\text{g}^{-1})$	$b/\text{MPa}^{-1}$
2.18	17.97	6.56	1.51	1.38	8.29	38.61	1.57

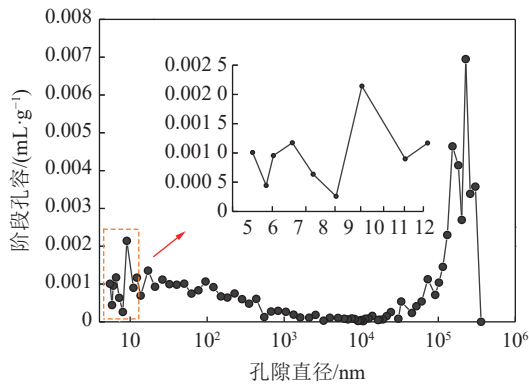


图1 压汞法孔径分布

Fig.1 Pore size distribution through mercury injection

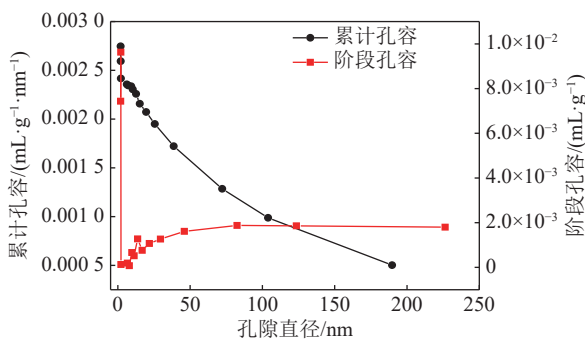


图2 低温液氮吸附法孔径分布

Fig.2 Pore size distribution through low temperature N<sub>2</sub> adsorption curves

占据孔容较多,是煤样吸附能力较高的原因。

### 1.3 煤的扩散系数直接测试方法

在采样地点采集了边长 > 20 cm 的块状煤样,切

割为多个长 15 mm、直径 25 mm 的柱煤试件,选取硬度较大、无可见裂隙试件进行稳态法测试扩散系数。

采用基于 Fick 扩散定律的浓度差测量法直接测定原煤扩散系数。尽管煤粒/基质瓦斯扩散有体积扩散、努森扩散、表面扩散等多种形式<sup>[21]</sup>,但其扩散行为均遵循 Fick 扩散定律,可表示为

$$J = D \frac{\partial c}{\partial l} \quad (1)$$

式中:  $J$  为扩散通量,  $g/(s \cdot m^2)$ ;  $D$  为扩散系数,  $m^2/s$ ;  $c$  为质量浓度,  $g/mL$ ;  $l$  为扩散距离,  $m$ 。

为在稳定浓度差条件下直接测得煤的扩散系数,搭建了浓度差稳态法实测扩散系数试验平台,如图 3 所示。试验装置包括充气系统、温度控制系统、应力加载系统、真空脱气系统和扩散通量测定系统 5 个部分。

将甲烷简化为理想气体,利用理想气体状态方程式(2),根据试验平台所测得的进出口气体压力和温度,可计算出试验煤样两端部瓦斯浓度:

$$c_f = \frac{pM}{RT} \quad (2)$$

式中:  $c_f$  为端面处质量浓度,  $g/mL$ ;  $p$  为气体压力,  $Pa$ ;  $M$  为气体摩尔质量,  $g/mol$ ;  $R$  为普适气体常数,  $8.314 J/(mol \cdot K)$ ;  $T$  为气体温度,  $K$ 。

利用流量计测试实验煤样出口端扩散通量,在扩散通量稳定后认为此时煤中气体浓度梯度达到稳

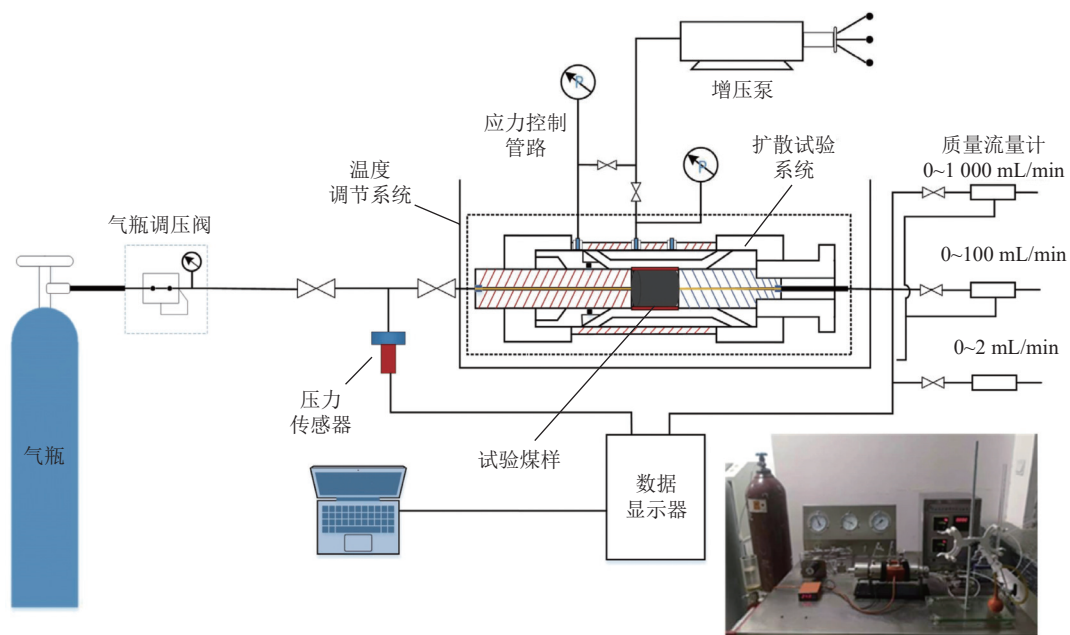


图3 试验平台原理

Fig.3 Schematic of experimental platform

定, 可利用 Fick 扩散公式(1)得到原煤综合扩散系数。

## 2 扩散系数变化规律

### 2.1 应力变化对扩散系数影响规律

煤中吸附相瓦斯会改变煤的力学性质<sup>[22]</sup>、引起煤的变形<sup>[23]</sup>。为对比吸附性气体和非吸附性气体在不同应力条件下煤的扩散系数变化, 分别利用 CH<sub>4</sub> 和 He 进行试验。首先在试验系统中通入 He, 对相同浓度差条件下的煤样施加不同应力。取孔隙压力为两端孔隙压力平均值, 则有效应力  $\sigma'$  为:

$$\sigma' = \sigma - (p_i + p_0)/2 \quad (3)$$

式中:  $\sigma'$  为有效应力, Pa;  $\sigma$  为荷载应力, Pa;  $p_i$  为进口端气体压力, Pa;  $p_0$  为进口端气体压力, Pa。试验中, 围压、轴压同步加载, 由有效轴压、有效围压之和得到有效体积应力。则相同气压不同有效体积应力条件下, 通入 He 的扩散系数如图 4 所示。

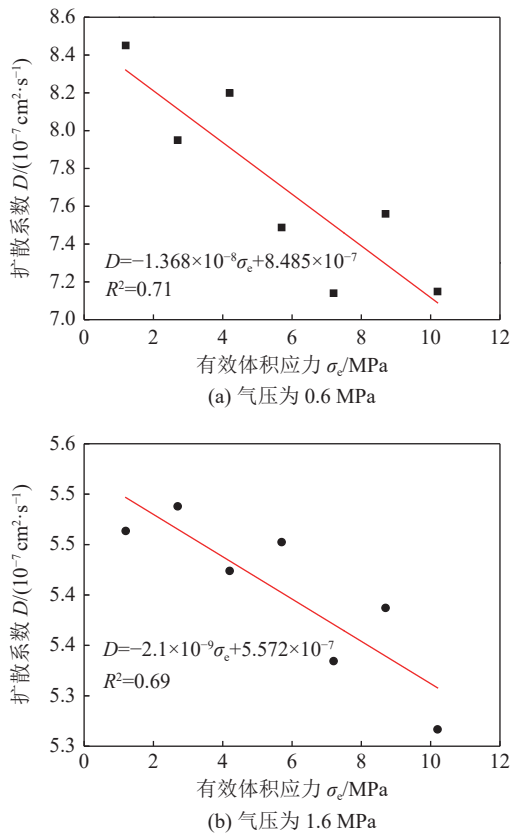


图 4 He 扩散系数随有效体积应力变化规律  
Fig.4 He diffusion coefficient changes with effective volume stress

可以看到, He 扩散系数随有效体积应力增大近似呈线性下降趋势。在气压为 0.6 MPa 时, 有效体积应力从 1.2 MPa 增加至 10.2 MPa 过程中 He 扩散系数从  $8.45 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}$  降低到  $7.15 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}$ , 扩散系数减小了 15.4%; 在气压为 1.6 MPa 时, 有效体积应

力从 1.2 MPa 增加至 10.2 MPa 过程中 He 扩散系数从  $5.51 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}$  降低到  $5.32 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}$ , 扩散系数仅减小了 3.6%。

CH<sub>4</sub> 扩散系数随应力荷载增加同样呈线性降低趋势, 如图 5 所示。气力为 0.6 MPa 时, 有效体积应力从 1.2 MPa 变为 28.2 MPa 时, CH<sub>4</sub> 扩散系数从  $5.28 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$  降低到  $3.83 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$ , 扩散系数减小了 27.4%; 在气压为 1.6 MPa 时, 有效体积应力从 1.2 MPa 变为 25.2 MPa 时, CH<sub>4</sub> 扩散系数从  $2.29 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$  降低到  $1.71 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$ , 扩散系数减小了 25%。

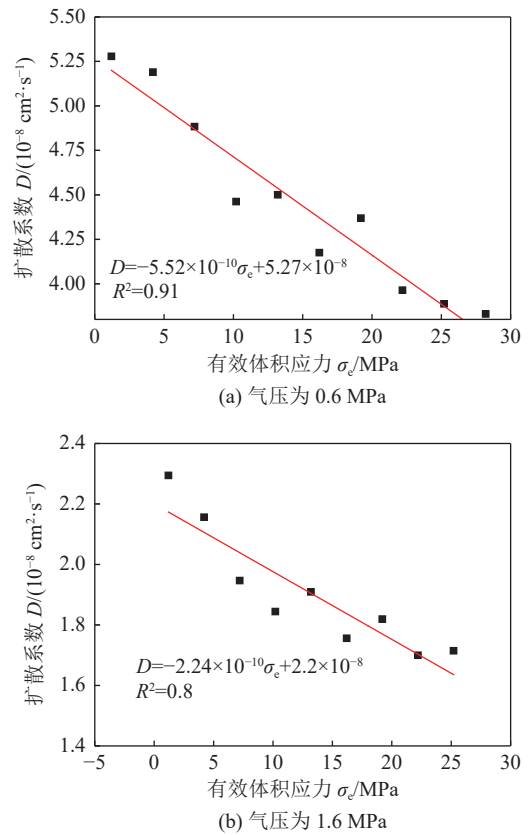


图 5 CH<sub>4</sub> 扩散系数随有效体积应力变化规律  
Fig.5 CH<sub>4</sub> diffusion coefficient changes with effective volume stress

已有研究表明, 煤岩渗透率与有效体积应力呈负指数关系<sup>[24]</sup>, 应力荷载对渗透率大小作用显著, 可达 1~2 个数量级。试验中, 无论是 He 还是 CH<sub>4</sub> 的扩散系数随有效体积应力增加变化不大, 说明试验中煤样进行的是扩散过程。煤基质中有效应力增大, 体积应变导致孔隙直径变小, 造成有效流动通道变少, 从而引起扩散通量和扩散系数减小, 但有效应力对于扩散系数的影响相对较小。

### 2.2 瓦斯浓度变化对扩散系数影响规律

目前对于瓦斯压力(浓度)对扩散系数的影响存



在明显分歧,扩散系数随吸附压力增加而增大<sup>[25-26]</sup>、降低<sup>[27-28]</sup>、不相关<sup>[29]</sup>或是与压力范围有关<sup>[11]</sup>的结论都存在。聂百胜等<sup>[25]</sup>、LIU等<sup>[26]</sup>分别对粒煤和柱状煤利用恒定边界压力的单孔隙模型计算扩散系数,发现扩散系数随瓦斯压力增大而增大;XU等<sup>[30]</sup>利用平行板状扩散模型,通过电测量技术测得通量变化,表明煤基质扩散系数随瓦斯压力增大而增大;LIU等<sup>[27]</sup>采用非恒定边界压力的单孔隙模型,计算得到扩散系数随瓦斯压力增大而减小;ZHANG等<sup>[28]</sup>将煤粒扩散划分为内扩散和外扩散,得到扩散系数随瓦斯压力增大而减小规律;杨鑫等<sup>[11]</sup>通过双孔隙模型计算扩散系数,发现大孔有效扩散系数随瓦斯压力增大呈先减小后增大的规律,而小孔有效扩散系数与瓦斯压力呈线性负相关。以上研究采用的扩散模型不同,推算的扩散系数与瓦斯压力的关系规律差异很大。所采用的浓度差稳态扩散法,利用 Fick 公式直接测得煤样扩散系数,可避免由于扩散模型不同导致的扩散系数推算差异,用以分析扩散系数变化规律。

当流量持续稳定后,得到 CH<sub>4</sub> 扩散系数变化规律如图 6 所示。可以看出,CH<sub>4</sub> 扩散系数随进气压力

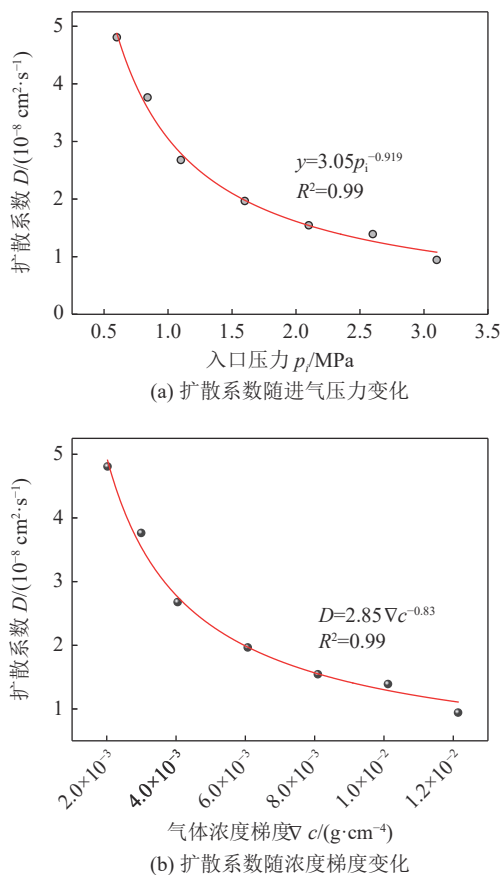


图 6 CH<sub>4</sub> 扩散系数随注气压力变化规律

Fig.6 Variation law of CH<sub>4</sub> diffusion coefficient with gas injection pressure

(浓度梯度)增大呈幂函数衰减规律。进气压力从 0.6 MPa 增至 3.1 MPa 时,浓度梯度从  $2 \times 10^{-3} \text{ g/cm}^4$  升至  $1.2 \times 10^{-2} \text{ g/cm}^4$ ,扩散系数从  $4.81 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$  降至  $9.43 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{s}$ ,降低了 80.4%。结合应力对扩散系数影响试验,可以看出,同等的气体压力值变化对扩散系数的影响要高于应力值变化的影响。

### 2.3 温度变化对扩散系数影响规律

随着矿井开采深度的增加,煤层内部温度也逐渐增高,温度逐渐成为煤层瓦斯流动的重要影响因素。此外,取样测含量、注热促抽等过程中媒体温度也是关键因素之一。目前,多通过粒煤解吸试验来研究温度对煤瓦斯扩散的影响。在粒煤解吸过程中,瓦斯压力也在发生变化。因此,在粒煤瞬态解吸法研究温度对扩散过程的影响试验中,实际上受气体压力和温度的共同影响。已有研究表明,煤中 CH<sub>4</sub> 扩散系数随温度的升高而增大,服从阿伦尼乌斯式<sup>[29]</sup>或对数关系<sup>[31]</sup>;也有试验表明温度与常扩散系数关系呈无规律波动性,可能是压力和温度共同作用导致的结果<sup>[10]</sup>。

笔者采用稳态扩散法研究了温度对扩散过程的影响,得到 CH<sub>4</sub> 扩散系数随温度的变化规律如图 7 所示。可以看出,扩散系数与温度呈正相关,温度从 298 K 升至 343 K 的过程中,扩散系数从  $1.43 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$  增至  $2.86 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$ ,增加了 1 倍。而煤岩裂隙渗透率受热膨胀影响随温度呈下降趋势<sup>[32-33]</sup>,与气体扩散的影响机制不同。

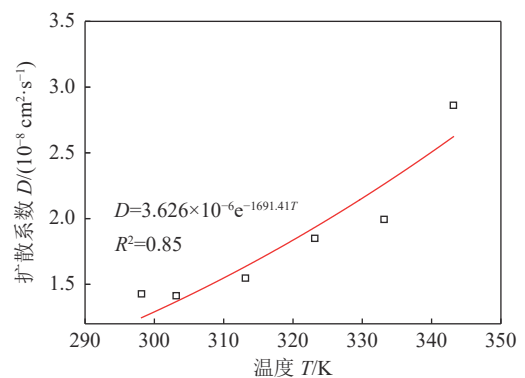


图 7 CH<sub>4</sub> 扩散系数随温度的变化规律

Fig.7 Diffusion coefficient variation of CH<sub>4</sub> with temperature

CH<sub>4</sub> 扩散是大量气体分子热运动引起的物质迁移现象。温度升高后气体分子平均自由程增加,均方根速度增大,使气体分子扩散更加容易。阿伦尼乌斯方程表示了反应速率常数随温度变化关系,类似地可用于扩散系数作为物质迁移表征系数受分子运动能力影响而对温度敏感,如式(4)所示:

$$D = D_{\infty} \exp(-E_a/RT) \quad (4)$$

式中： $D_{\infty}$ 为温度为无穷大时扩散系数， $\text{cm}^2/\text{s}$ ； $E_a$ 为扩散所需活化能， $\text{kJ}/\text{mol}$ 。对温度影响的试验结果进行拟合，结果如图 7 所示，得到  $\text{CH}_4$  扩散所需活化能为  $14.06 \text{ kJ}/(\text{mol}\cdot\text{K})$ 。

### 3 扩散系数间接测定方法及对比分析

#### 3.1 扩散系数间接测试方法

粒煤解吸是大部分学者用来研究煤瓦斯扩散特性的试验方法，扩散系数多以粒煤扩散试验所得解吸率为原始数据进行反算。这需要测定不同时间点煤粒解吸量，为与稳态法相区别，文中称为瞬态法测扩散系数。单孔隙常系数扩散模型是描述粒煤解吸的经典模型，由解析解简化而来的对数法和 $\sqrt{t}$ 法是最常见的扩散系数求解方法。之后，考虑瓦斯解吸过程中扩散系数是变化的，引入了时变扩散系数模型<sup>[10]</sup>。

1)经典模型常扩散系数计算。

球形颗粒单孔扩散模型经简化后得到解析式为

$$\frac{Q_t}{Q_{\infty}} = 1 - \frac{6}{\pi^2} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{1}{i^2} \exp\left(\frac{-Di^2\pi^2 t}{r_0^2}\right) \quad (5)$$

式中： $Q_t$ 为  $t$  时刻时煤粒的瓦斯扩散量， $\text{mL}/\text{g}$ ； $Q_{\infty}$ 为

$t \rightarrow \infty$ 时的瓦斯扩散量， $\text{mL}/\text{g}$ ； $r_0$ 为煤粒半径， $\text{m}$ ； $\frac{Q_t}{Q_{\infty}}$ 代表瓦斯解吸率。

利用拉普拉斯变换法简化可得解吸率与时间关系为

$$\ln\left(1 - \frac{Q_t}{Q_{\infty}}\right) = -\lambda t + \ln A \quad (6)$$

其中， $\lambda = \frac{\pi^2 D}{r_0^2}$ ； $A = \frac{6}{\pi^2}$ 。通过拟合试验数据  $\frac{Q_t}{Q_{\infty}}$  与  $t$  的关系，可计算出经典模型扩散系数。

2)时变扩散系数计算。

假定扩散系数随时间  $t$  增加呈指数衰减：

$$D(t) = D_0 \exp(-\beta t) \quad (7)$$

式中： $D_0$ 为初始扩散系数， $\text{m}^2/\text{s}$ ； $\beta$ 为扩散衰减系数， $\text{s}^{-1}$ 。引入粒煤扩散模型，求解可得到表示解吸率随时间变化的解析解<sup>[10]</sup>：

$$\frac{Q_t}{Q_{\infty}} = 1 - \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp\left\{-\frac{n^2 \pi^2 D_0}{r_0^2 \beta} [1 - \exp(-\beta t)]\right\} \quad (8)$$

通过对粒煤解吸数据拟合，可得出时变扩散系数模型参数  $D_0$  和  $\beta$ 。

笔者对平衡压力为 0.6、1.1、1.6、2.1、2.6、3.1 MPa 条件下粒煤解吸过程分别进行了测试。按照上述扩散系数计算方法得到不同模型扩散系数值见表 2。

表 2 扩散系数计算结果

Table 2 Diffusion coefficient calculation results

平衡压力/MPa	经典模型扩散系数 $D/(10^{-8} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1})$	时变扩散系数模型	
		初始扩散系数 $D_0/(10^{-8} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1})$	衰减系数 $\beta/(10^{-4} \text{ s}^{-1})$
0.6	4.16	3.89	1.1
1.1	3.57	4.00	1.4
1.6	3.57	3.93	1.4
2.1	4.16	3.89	1.1
2.6	4.76	5.78	1.7
3.1	4.76	6.71	1.7

#### 3.2 扩散系数测定结果对比分析

图 8 为  $\text{CH}_4$  稳态法实测扩散系数与时变扩散系数模型初始扩散系数和常系数扩散模型平均扩散系数对比。由图可知， $\text{CH}_4$  稳态法实测扩散系数随气体压力增加呈幂函数衰减，时变扩散系数模型计算初始扩散系数与气体压力呈先稳定不变后突然增大的规律，而经典模型计算的平均扩散系数与气体压力变化关系具有波动性。在数值上，三者数量级相同，为  $10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$ ，但是可相差数倍。

对于  $\text{CH}_4$  扩散过程，除游离瓦斯的扩散外，由于吸附瓦斯的的存在，扩散过程变得较为复杂。粒煤解

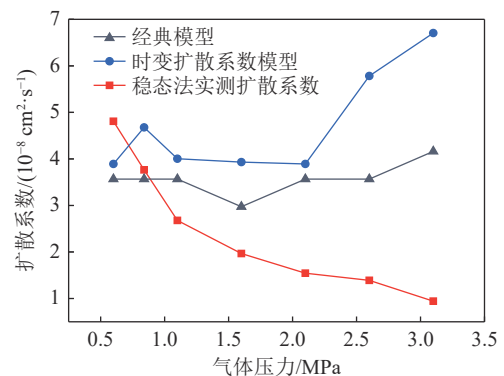


图 8 不同扩散模型计算  $\text{CH}_4$  扩散系数对比

Fig.8 Comparison of different models for  $\text{CH}_4$  diffusion coefficient calculation

吸过程中内部瓦斯浓度分布在不同时刻有所变化,煤中孔隙、扩散形式都有相应变化,且扩散模型的假设条件、简化程度不同,导致计算的扩散系数大小和变化趋势有差异。而稳态法是在稳定浓度分布条件下实测扩散系数,仅受原始煤样内部扩散路径曲折程度和孔径大小的影响,可更好表征扩散系数与气体压力之间的关系。

## 4 变扩散系数模型构建及预测

### 4.1 粒煤解吸模型及解算

稳态法测得煤中  $\text{CH}_4$  扩散系数随压力(浓度梯度)和温度变化而变化,其中扩散系数随压力(浓度梯度)增加呈幂函数衰减规律,单一因素影响下,可令扩散系数与浓度梯度的关系为

$$D = AD(\nabla c_0, T_0)(\nabla c)^{-n} \quad (9)$$

同时,扩散系数随温度升高呈幂指数增加规律,则单一因素影响下,令扩散系数与温度的关系为

$$D(T) = BD(\nabla c_0, T_0)\exp(-E_a/RT) \quad (10)$$

假设浓度梯度与温度对扩散系数影响相互独立,可将上述关系联立,联立后扩散系数与压力(浓度)和温度的关系为

$$D = ABD(\nabla c_0, T_0)(\nabla c)^{-n}\exp(-E_a/RT) \quad (11)$$

式中:  $A = m/D(\nabla c_0, T_0)$ ;  $B = D_\infty/D(\nabla c_0, T_0)$ ;  $m$ 、 $n$  为扩散系数与浓度的关系常数,对于试验煤样分别为  $2.85 \times 10^{-10}$ 、 $0.83$ ;  $D_\infty$  为扩散系数与温度的关系常数,试验煤样值为  $3.63 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$ ;  $D(\nabla c_0, T_0)$  为注气压力  $2.1 \text{ MPa}$ 、温度  $25 \text{ }^\circ\text{C}$  条件下参考态扩散系数,为  $1.49 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$ 。

利用 Fick 定律建立描述粒煤解吸过程的变扩散系数扩散模型,模型作如下假设:①煤粒为各向同性的球体;②煤基质中瓦斯赋存包括吸附瓦斯和游离瓦斯;③扩散系数与气体浓度梯度和温度的变化规律满足式(11):

$$\begin{cases} \frac{\partial \bar{c}}{\partial t} + \nabla(D\nabla c) = 0 \\ \bar{c} = \left( \frac{abp}{1+bp} + \frac{\phi p}{\rho p_0} \right) \frac{\rho M}{V_M} \\ D = ABD(\nabla c_0, T_0)(\nabla c)^{-n} e^{-E_a/RT} \end{cases} \quad (12)$$

式中:  $\bar{c}$  为基质单元瓦斯平均浓度,  $\text{g/mL}$ ;  $V_M$  为气体摩尔体积,  $22.4 \text{ L/mol}$ 。  $\phi$  为煤的孔隙率, %;  $p$  为气体压力,  $\text{MPa}$ 。

将实测所得  $\text{CH}_4$  扩散系数与压力(浓度)和温度变化规律的试验数据以及煤样基本参数作为建模条件及参数,可对模型求解。由于模型难以直接求解,

采用 COMSOL 解算软件进行数值求解。为精确模拟粒煤扩散过程,首先需要精确确定粒煤平均半径。笔者采用统计的方法,对粒煤进行平均直径测定。首先,筛选了  $1 \sim 3 \text{ mm}$  粒径的煤样,数出  $1000$  粒,随后称取其质量为  $2.6 \text{ g}$ ,假设煤粒为球形,由此计算得到粒煤平均半径为  $0.0766 \text{ cm}$ 。因此,建立的煤粒几何模型半径设为  $0.0766 \text{ cm}$ ,如图 9 所示。煤中  $\text{CH}_4$  初始压力为吸附平衡压力  $1.1 \text{ MPa}$ ,球面边界气体压力为大气压,模型参数为前文试验测得结果。利用 COMSOL 求解,可预测粒煤不同时刻解吸量和解吸率。

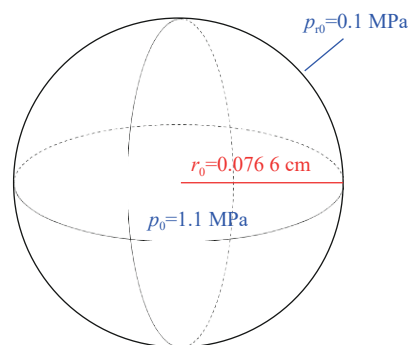


图 9 几何模型及边界条件

Fig.9 Geometric model and boundary conditions

### 4.2 模型预测及验证

为验证变扩散系数模型预测扩散过程的准确性,在平衡压力为  $1.1 \text{ MPa}$ 、温度为恒温  $25 \text{ }^\circ\text{C}$  和变温条件下进行了粒煤解吸试验,与模型预测结果进行了对比验证。利用直径  $25 \text{ mm}$  的柱状块煤数据对  $1 \sim 3 \text{ mm}$  煤粒实际扩散过程进行预测,结果表明预测值与试验值有很好的吻合度,如图 10 所示。即表明新模型可用于不同块度煤扩散行为的预测,对瓦斯抽采、涌出的准确模拟具有重要意义。但是模型参数随煤性质不同其变化规律还有待更深入研究,以便进一步推广。

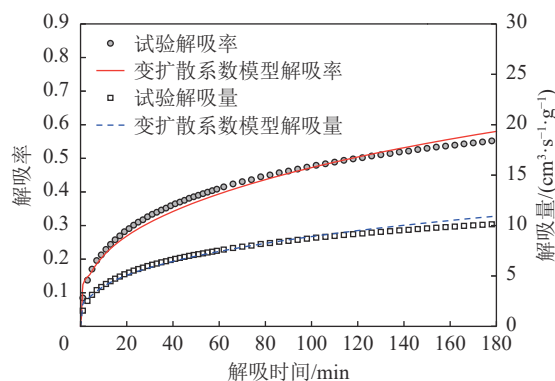


图 10 恒温条件下不同扩散模型解吸模拟结果

Fig.10 Simulation results of different diffusion models under constant temperature condition



近年来,取心管取心过程热效应、注热促抽、冷冻致裂等技术研究不断深入,变温条件下煤中瓦斯扩散行为逐渐成为重要研究点。为研究变扩散系数扩散模型在变温解吸过程中的准确性,进一步开展了粒煤变温解吸试验。与常温解吸不同,变温解吸是在加热条件下煤样温度发生改变过程中进行的解吸,在煤样罐内布置了温度传感器记录解吸过程中煤粒温度变化,如图 11 所示。为方便导入模型煤粒温度随时间的变化,采用了分段函数来描述煤粒温度与时间的关系,拟合度均在 0.95 以上。

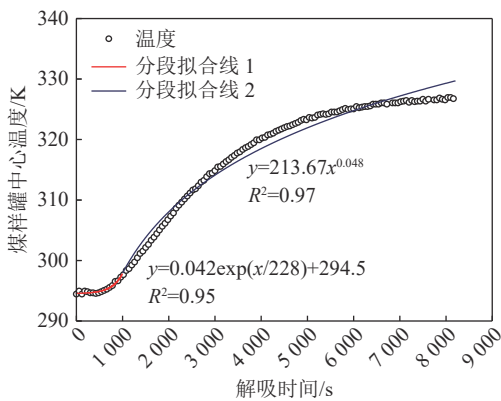


图 11 煤样罐中心温度随时间的变化

Fig.11 Change of temperature in the center of coal sample tank

根据柱状块煤数据,利用变扩散系数模型预测了平衡压力 1.0 MPa、变温条件下粒煤解吸量和解吸率,如图 12 所示。由图 12 可知,变温条件下变扩散系数模型在整体上仍能够很好地预测不同块度煤中瓦斯扩散过程,可用于地温梯度大、注热促抽、取心管取样测含量等煤体温度发生变化条件下瓦斯扩散行为预测、模拟。

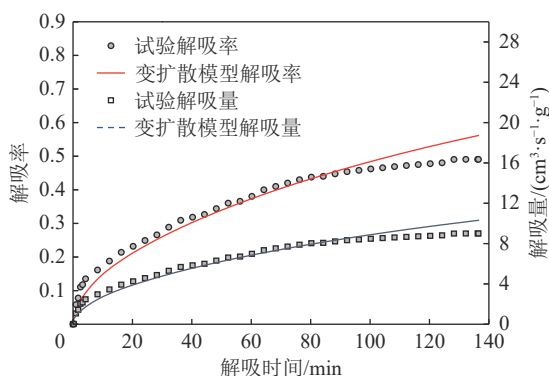


图 12 变温条件下不同扩散模型解吸率和解吸量模拟结果

Fig.12 Simulation results of different diffusion models under variable temperature condition

## 5 结 论

1)无论是吸附性气体甲烷还是非吸附性气体氮

气,扩散系数与有效体积应力呈近似线性的负相关。但是,相较于渗透率有效应力对于扩散系数的影响较小,有效体积应力从 1.2 MPa 变为 28.2 MPa 时扩散系数减小了 27.4%。

2)甲烷扩散系数随进气压力(浓度梯度)增大呈幂函数衰减规律,且瓦斯压力变化对扩散系数的影响要高于煤所受有效应力的影响。

3)不同于煤岩渗透率,甲烷扩散系数与温度呈正相关,且满足阿伦尼乌斯式,甲烷扩散所需活化能为 14.06 kJ/(mol·K)。

4)对比分析了稳态法实测扩散系数与经典模型和时变扩散系数模型所得扩散系数,所得扩散系数的量级相同,都为  $10^{-8}$  cm<sup>2</sup>/s,但是大小可相差数倍;三者扩散系数随气体压力增大变化趋势不同,稳态法实测扩散系数随气体压力增大呈幂函数衰减,而时变扩散系数模型所得初始扩散系数与气体压力呈先稳定不变后增大的规律,经典模型得到的平均扩散系数与气体平衡压力变化规律具有波动性。

5)建立了考虑扩散系数受压力(浓度)和温度影响的变扩散系数扩散模型,采用柱煤测试结果对恒温 and 变温条件下粒煤解吸特性进行了预测,并得到了解吸试验严重。新模型为恒温、变温条件下不同块度煤中瓦斯扩散过程预测提供了有效途径。

## 参考文献(References):

- [1] 林柏泉,刘 厅,杨 威.基于动态扩散的煤层多场耦合模型建立及应用[J].中国矿业大学学报,2018,47(1):32-39,112.  
LIN Baiquan, LIU Ting, YANG Wei. Solid-gas coupling model for coalseams based on dynamic diffusion and its application[J]. Journal of China University of Mining & Technology, 2018, 47(1): 32-39,112.
- [2] 杨宏民,冯朝阳,陈立伟.煤层注氮模拟实验中的置换-驱替效应及其转化机制分析[J].煤炭学报,2016,41(9):2246-2250.  
YANG Hongmin, FENG Zhaoyang, CHEN Liwei. Analysis of replacement-displacement effect and its change mechanism in simulation experiment of nitrogen injection into coal seam[J]. Journal of China Coal Society, 2016, 41(9): 2246-2250.
- [3] 胡国忠,朱怡然,李志强.可控源微波场促进煤体中甲烷解吸的试验研究[J].岩石力学与工程学报,2017,36(4):874-880.  
HU Guozhong, ZHU Yiran, LI Zhiqiang. Experimental study on desorption enhancing of methane in coal mass using a controlled microwave field[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2017, 36(4): 874-880.
- [4] 杨新乐,张永利.热采煤层气藏过程煤层气运移规律的数值模拟[J].中国矿业大学学报,2011,40(1):89-94.  
YANG Xinle, ZHANG Yongli. Numerical simulation on flow rules of coal-bed methane by thermal stimulation[J]. Journal of China University of Mining & Technology, 2011, 40(1): 89-94.



- [5] 梁卫国, 吴迪, 赵阳升. CO<sub>2</sub>驱替煤层CH<sub>4</sub>试验研究[J]. 岩石力学与工程学报, 2010, 29(4): 24–32.  
LIANG Weiguo, WU Di, ZHAO Yangsheng. Experimental study of coalbeds methane replacement by carbon dioxide[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2010, 29(4): 24–32.
- [6] 刘彦伟, 刘明举. 粒度对软硬煤粒瓦斯解吸扩散差异性的影响[J]. 煤炭学报, 2015, 40(3): 97–105.  
LIU Yanwei, LIU Mingju. Effect of particle size on difference of gas desorption and diffusion between soft coal and hard coal[J]. Journal of China Coal Society, 2015, 40(3): 97–105.
- [7] 安丰华, 贾宏福, 刘军. 基于煤孔隙构成的瓦斯扩散模型研究[J]. 岩石力学与工程学报, 2021, 40(5): 987–996.  
AN Fenghua, JIA Hongfu, LIU Jun. A gas diffusion model based on the pore structure in coal[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2021, 40(5): 987–996.
- [8] 李祥春, 李忠备, 张良, 等. 不同煤阶煤样孔隙结构表征及其对瓦斯解吸扩散的影响[J]. 煤炭学报, 2019, 44(S1): 142–156.  
LI Xiangchun, LI Zhongbei, ZHANG Liang, et al. Pore structure characterization of various rank coals and its effect on gas desorption and diffusion[J]. Journal of China Coal Society, 2019, 44(S1): 142–156.
- [9] 聂百胜, 柳先锋, 郭建华, 等. 水分对煤体瓦斯解吸扩散的影响[J]. 中国矿业大学学报, 2015, 44(5): 781–787.  
NIE Baisheng, LIU Xianfeng, GUO Jianhua, et al. Effect of moisture on gas desorption and diffusion in coal mass[J]. Journal of China University of Mining & Technology, 2015, 44(5): 781–787.
- [10] 李志强, 王登科, 宋党育. 新扩散模型下温度对煤粒瓦斯动态扩散系数的影响[J]. 煤炭学报, 2015, 40(5): 1055–1064.  
LI Zhiqiang, WANG Dengke, SONG Dangyu. Influence of temperature on dynamic diffusion coefficient of CH<sub>4</sub> into coal particles by new diffusion model[J]. Journal of China Coal Society, 2015, 40(5): 1055–1064.
- [11] 杨鑫, 张俊英, 王公达, 等. 瓦斯压力对瓦斯在煤中扩散影响的实验研究[J]. 中国矿业大学学报, 2019, 48(3): 503–510.  
YANG Xin, ZHANG Junying, WANG Gongda, et al. Experimental study of the influence of gas pressure in the gas diffusion in coal[J]. Journal of China University of Mining & Technology, 2019, 48(3): 503–510.
- [12] 张登峰, 崔永君, 李松庚, 等. 甲烷及二氧化碳在不同煤阶煤内部的吸附扩散行为[J]. 煤炭学报, 2011, 36(10): 1693–1698.  
ZHANG Dengfeng, CUI Yongjun, LI Songgeng, et al. Adsorption and diffusion behaviors of methane and carbon dioxide on various rank coals[J]. Journal of China Coal Society, 2011, 36(10): 1693–1698.
- [13] CHENG Y, PAN Z. Reservoir properties of Chinese tectonic coal: A review[J]. Fuel, 2020, 260: 116350.
- [14] ZHAO W, CHENG Y, PAN Z, et al. Gas diffusion in coal particles: A review of mathematical models and their applications[J]. Fuel, 2019, 252: 77–100.
- [15] 杨其奎, 王佑安. 煤屑瓦斯扩散理论及其应用[J]. 煤炭学报, 1986, 11(3): 87–94.  
YANG Qiluan, WANG Youan. Theory and application of gas diffusion in coal particles[J]. Journal of China Coal Society, 1986, 11(3): 87–94.
- [16] 聂百胜, 郭勇义, 吴世跃, 等. 煤粒瓦斯扩散的理论模型及其解析解[J]. 中国矿业大学学报, 2001, 30(1): 21–24.  
NIE Baisheng, GUO Yongyi, WU Shiyue, et al. Theoretical of methane diffusion from coal cuttings and its application[J]. Journal of China University of Mining & Technology, 2001, 30(1): 21–24.
- [17] 简星, 关平, 张巍. 煤中CO<sub>2</sub>的吸附和扩散: 实验与建模[J]. 中国科学: 地球科学, 2012, 42(4): 492–504.  
JIAN Xing, GUAN Ping, ZHANG Wei. Carbon dioxide sorption and diffusion in coals: Experimental investigation and modeling[J]. Science China Earth Science, 2012, 42(4): 492–504.
- [18] WANG K, WANG Y, GUO H, et al. Modelling of multiple gas transport mechanisms through coal particle considering thermal effects[J]. Fuel, 2021, 295: 120587.
- [19] SAMPATH K H S M, PERERA M S A, MATTHAI S K, et al. Modelling of fully-coupled CO<sub>2</sub> diffusion and adsorption-induced coal matrix swelling[J]. Fuel, 2020, 262: 116486.
- [20] LIU A, LIU S, HOU X, et al. Transient gas diffusivity evaluation and modeling for methane and helium in coal[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2020, 159: 120091.
- [21] SHI J, DURUCAN S. A bidisperse pore diffusion model for methane displacement desorption in coal by CO<sub>2</sub> injection[J]. Fuel, 2003, 82(10): 1219–1229.
- [22] 靳钟铭, 赵阳升, 贺军, 等. 含瓦斯煤层力学特性的实验研究[J]. 岩石力学与工程学报, 1991, 10(3): 271–280.  
JIN Zhongming, ZHAO Yangsheng, HE Jun, et al. An experimental study on mechanical properties of gas-bearing coal seams[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 1991, 10(3): 271–280.
- [23] 周军平, 鲜学福, 姜永东, 等. 基于热力学方法的煤岩吸附变形模型[J]. 煤炭学报, 2011, 36(3): 468–472.  
ZHOU Junping, XIAN Xuefu, JIANG Yongdong, et al. A model of adsorption induced coal deformation based on thermodynamics approach[J]. Journal of China Coal Society, 2011, 36(3): 468–472.
- [24] 李晓泉, 尹光志. 含瓦斯煤的有效体积应力与渗透率关系[J]. 重庆大学学报(自然科学版), 2011, 34(8): 103–108.  
LI Xiaoquan, YIN Guangzhi. Relationship between effective volumetric stress and permeability of gas-filled coal[J]. Journal of Chongqing University (Natural Science Edition), 2011, 34(8): 103–108.
- [25] 聂百胜, 杨涛, 李祥春, 等. 煤粒瓦斯解吸扩散规律实验[J]. 中国矿业大学学报, 2013, 42(6): 975–981.  
NIE Baisheng, YANG Tao, LI Xiangchun, et al. Research on diffusion of methane in coal particles[J]. Journal of China University of Mining & Technology, 2013, 42(6): 975–981.
- [26] LIU T, LIN B, FU X, et al. Experimental study on gas diffusion dynamics in fractured coal: A better understanding of gas migration in in-situ coal seam[J]. Energy, 2020, 195: 117005.
- [27] LIU A, LIU P, LIU S. Gas diffusion coefficient estimation of coal: A dimensionless numerical method and its experimental validation[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2020,

- 162; 120336.
- [ 28 ] ZHANG X, ZHU Z, WEN G, *et al.* Study on gas desorption and diffusion kinetic behavior in coal matrix using a modified shrinking core model[J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2021, 204: 108701.
- [ 29 ] TANG X, LI Z, RIPEPI N, *et al.* Temperature-dependent diffusion process of methane through dry crushed coal[J]. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 2015, 22: 609–617.
- [ 30 ] XU H, TANG D, ZHAO J, *et al.* A new laboratory method for accurate measurement of the methane diffusion coefficient and its influencing factors in the coal matrix[J]. *Fuel*, 2015, 158: 239–247.
- [ 31 ] MENG Y, LI Z. Experimental study on diffusion property of methane gas in coal and its influencing factors[J]. *Fuel*, 2016, 185: 219–228.
- [ 32 ] 滕 腾, 王 伟, 师 访, 等. 温度-压力耦合下原煤中CO<sub>2</sub>渗流行为试验研究[J]. *中国矿业大学学报*, 2019, 48(4): 760–767.  
TENG Teng, WANG Wei, SHI Fan, *et al.* Experimental study of the seepage behavior of CO<sub>2</sub> in raw coal under coupled pressures & temperature condition[J]. *Journal of China University of Mining & Technology*, 2019, 48(4): 760–767.
- [ 33 ] 荣腾龙, 周宏伟, 王路军, 等. 采掘扰动与温度耦合影响下工作面前方煤体渗透率模型研究[J]. *岩土力学*, 2019, 40(11): 4289–4298.  
RONG Tenglong, ZHOU Hongwei, WANG Lujun, *et al.* Study on coal permeability model in front of working face under the influence of mining disturbance and temperature coupling[J]. *Rock and Soil Mechanics*, 2019, 40(11): 4289–4298.