

注二氧化碳促排煤层瓦斯机制转化过程实验研究

杨天鸿¹, 陈立伟^{1,2}, 杨宏民², 裴蓓²

(1. 东北大学 资源与土木工程学院, 辽宁 沈阳 110819; 2. 河南理工大学 安全科学与工程学院, 河南 焦作 454000)

摘 要: 为了厘清注 CO₂ 促排煤层瓦斯机制及主导作用, 采集了豫西莱巩煤田二煤层构造软煤煤样, 利用大尺度煤层注气促排瓦斯模拟实验平台, 进行了注 CO₂ 促排瓦斯实验. 实验结果表明: 注 CO₂ 促排煤层瓦斯是一个动态演化过程, 结合国内外专家对煤层注气驱替瓦斯机理的认识, 给出了置换效应和驱替效应定义. 以出气口 CH₄ 体积分数的变化规律, 将注气过程分为 3 个阶段对煤层注 CO₂ 驱替瓦斯机制转化过程进行了研究. 在 CO₂ 突破腔体以前, 主要表现为置换效应, 注入 CO₂ 的置换效应占主导地位; CO₂ 突破腔体之后, 注入的 CO₂ 一部分与 CH₄ 发生置换吸附, 另一部分与 CH₄ 流出腔体, 此时置换和驱替效应共存. 针对整个实验过程, CO₂ 置换效应表现得更为明显, 起主导作用.

关 键 词: CO₂-ECBM; 促排煤层瓦斯机制; 时效性; 驱替效应; 置换效应

中图分类号: TD 712.2 **文献标志码:** A **文章编号:** 1005-3026(2020)05-0623-06

Experimental Study on the Conversion Process of Promoting Gas Drainage Mechanism by CO₂ Injection

YANG Tian-hong¹, CHEN Li-wei^{1,2}, YANG Hong-min², PEI Bei²

(1. School of Resources & Civil Engineering, Northeastern University, Shenyang 110819, China; 2. School of Safety Science and Engineering, Henan Polytechnic University, Jiaozuo 454000, China. Corresponding author: CHEN Li-wei, E-mail: clwlf@163.com)

Abstract: In order to clarify the mechanism of driving out gas in the coal seam, the soft coal sample of the No.2 coal seam structure was collected in the Xingong coalfield of western Henan, and the large-scale tests on CO₂ injection was performed to drive out coal seam gas injection in laboratory. Results show that the CO₂ injection of driving out the gas in the coal seam is a dynamic process, combined with the knowledge of domestic and foreign experts on the gas injection mechanism of coal seam gas displacement, the definition of replacement effect and displacement effect is given. Based on the change of CH₄ concentration in the gas outlet, the gas injection process was divided into three stages to study the conversion process of CO₂ promoting CH₄ mechanism in coal seam. Before CO₂ breaks through the cavity, it mainly shows the replacement effect. The replacement effect of CO₂ injection is dominant. After CO₂ breaks through the cavity, part of the injected CO₂ is replaced with CH₄, and part of it and CH₄ flow out of the cavity, with a concurrent state of replacement and displacement effect. For the whole experimental process, the CO₂ replacement effect is more obvious and plays a leading role.

Key words: CO₂-ECBM; promote gas drainage mechanism; timeliness; displacement effect; replacement effect

受石油系统“气驱油”科技的启发,1995年,美国首先在圣胡安盆地进行了 CO₂-ECBM 现场试验^[1],煤层气产量增加了 1.5 倍,采收率高达 95%。此后,加拿大、欧盟、日本先后进行了 CO₂-

ECBM 试验^[2-6],从技术和经济上均证实了注 CO₂ 驱替煤层气的可行性.2004年,中国在山西沁水盆地进行了 CO₂-ECBM 试验,也取得良好的效果.对煤层注 CO₂ 促排瓦斯机理,前人做了

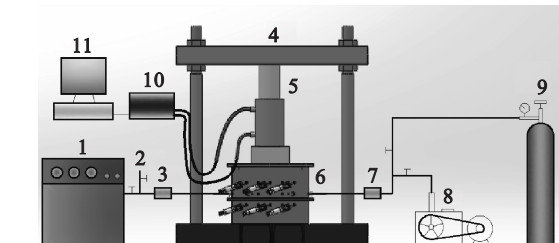
大量的工作,归纳如下:①“置换”作用机理. 根据 Langmuir 吸附理论,煤表面存在能够吸附气体分子或者原子的吸附位. 多元混合气体竞争吸附时,吸附能力强的气体势必优先吸附,置换吸附时,吸附能力强的气体能够把吸附能力弱的气体挤出吸附位. 当注入比 CH_4 吸附性强的气体,能将其从处于吸附状态的煤中置换出来,这就是注入气体的置换作用机理. ②“分压”作用机理. 当向煤层中注入具有吸附性的气体时,两种气体吸附解吸行为发生变化,这种情况下,煤对气体组分的吸附平衡可用扩展的 Langmuir 方程来描述^[7],只要向煤体中注入吸附性气体,就能降低 CH_4 的吸附量,从而达到促进 CH_4 解吸的目的. Katayama^[6]进行了不同条件下的注 CO_2 驱替实验,认为 CO_2 凭借较强吸附能力能够置换出煤中吸附的 CH_4 ,同时气体的注入也降低了 CH_4 的分压,促进了 CH_4 解吸. ③“增流”作用机理. 众所周知,煤层通常被视为孔隙-裂隙双重介质,而 CH_4 在煤中处于吸附和游离两种状态,孔隙为吸附状态的 CH_4 提供扩散空间,裂隙为游离状态的 CH_4 提供渗流通道. 在煤层未受采动影响之前, CH_4 处于吸附和游离动态平衡,只要煤层受到采动影响,这种平衡状态就被打破, CH_4 就会不断地涌出煤层^[8]. 根据陈立伟等^[8]注 CO_2 驱替渗流实验显示,注气提高了煤层空隙压力,导致 CH_4 扩散-渗流速度同步提高. 梁卫国等^[9]认为注气就是向煤层注入能量,增加了渗流速度,促使瓦斯解吸流出煤体. 李元星^[10]也认为注气驱替瓦斯的机理主要有三个:一是置换作用,二是增流作用,三是改变煤层孔隙结构提高渗透率.

综上所述,前人对煤层注入 CO_2 驱替煤层 CH_4 的机理进行了宏观研究. 但是,在注 CO_2 驱替瓦斯过程中,这些机理是否同时发挥作用? 是否存在转化的过程? 是否存在主次之分? 因此,本文拟结合前人对煤层注气促排瓦斯机理的认识,通过对注气过程的分解,揭示煤层注气驱替瓦斯机制.

1 实验装置与实验方法

1.1 实验装置

模拟实验系统由应力加载单元、真空单元、注气控制单元、注气流量监测单元、出口气体流量和体积分数监测单元、煤层内气体压力监测单元等组成,如图 1 所示.



1—气相色谱仪;2—气体收集口;3—出口低压流量计;4—反力架;5—油压千斤顶;6—模拟实验腔体;7—注气口高压流量计;8—真空泵;9—高压钢瓶;10—压力控制器;11—压力监控计算机.

图 1 煤层注气模拟装置系统图
Fig. 1 System diagram of coal seam gas injection simulation device

1.2 实验煤样

本实验煤样来自豫西荥巩煤田河南大峪沟煤业集团有限责任公司华泰煤矿二煤层,采用 0.17~0.25 mm 的颗粒煤进行实验. 实验室测得煤样的各项参数:水分 4.54%;灰分 14.66%;挥发分 8.43%;真密度 1.76 t/m^3 ;视密度 1.68 t/m^3 .

1.3 实验方法及步骤

根据煤层注气特征,综合考虑煤层注气过程中的各个环节,确定了“分层预压装载煤样→抽真空→充入 CH_4 吸附平衡→高压游离 CH_4 泄压预排→注气→注气结束后自然泄压排放”6 个关键步骤的实验方法. 实验总体流程框图如图 2 所示.

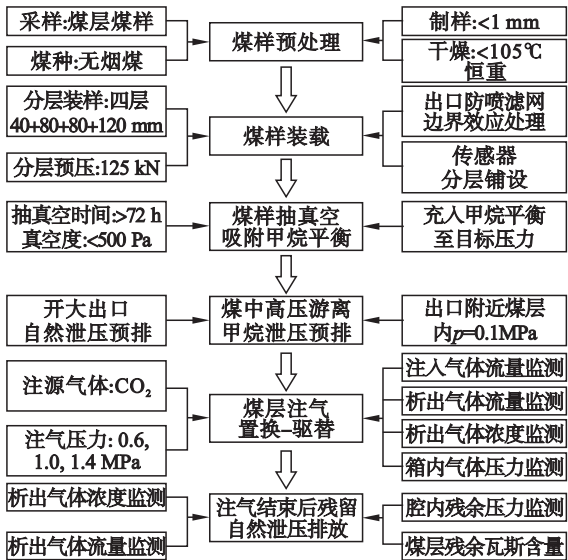


图 2 煤层注气模拟实验方法流程框图
Fig. 2 Block diagram of coal seam gas injection simulation experiment method

2 煤层注 CO₂ 驱替瓦斯实验

按照 1.3 节所述实验方法和步骤进行了煤层注 CO₂ 驱替瓦斯实验,其他条件及实验结果详见表 1.

表 1 煤层注 CO₂ 驱替瓦斯实验条件及结果

Table 1 Displacement CH₄ experimental conditions and results by injecting CO₂ into coal bed

序号	项目	注气压力/MPa		
		0.6	1.0	1.4
1	装样量/kg	39.85	39.85	39.85
2	吸附平衡压力/MPa	0.69	0.65	0.69
3	抽真空时间/h	72	67	67
4	最终真空度/Pa	410	510	440
5	吸附平衡时间/h	48	32	37
6	CH ₄ 吸附量/L	363.55	278.08	328.81
7	预排游离 CH ₄ 结束时压力/MPa	0.12	0.11	0.10
8	注入 CO ₂ 体积/L	897.10	1876.13	1407.07
9	驱出混合气体体积/L	473.50	1147.50	585.00
10	驱出 CH ₄ 体积/L	248.20	271.63	252.39
11	驱出 CO ₂ 体积/L	225.2	875.86	332.61
12	实验结束时 CH ₄ 体积分数/%	6.20	4.99	6.94
13	实验结束时 CO ₂ 体积分数/%	93.80	95.01	93.06

2.1 析出气体体积分数随时间变化规律

不同注气压力条件下,析出气体体积分数随时间变化规律如图 3 ~ 图 5 所示.

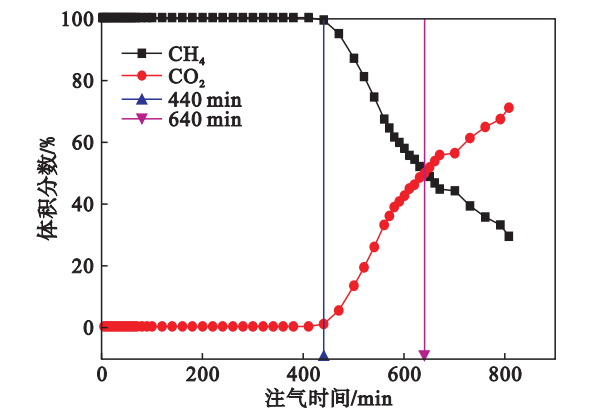


图 3 析出气体体积分数随注气时间的变化规律(0.6 MPa)
Fig. 3 Variation of discharge mixed gas concentration with time(0.6 MPa)

由图 3 ~ 图 5 可以得出:析出 CO₂ 气体表现出明显的滞后现象,析出混合气体中出现 CO₂ 后,CH₄ 体积分数急剧下降,CO₂ 体积分数急剧上升,二者此消彼长. 注气初期的一段较长时间内,析出混合气体中 CH₄ 体积分数为 100%,析出混合气体中无 CO₂ 析出,CO₂ 表现出明显的滞后现

象. 滞后时间随注气压力的不同而异,注气压力为 0.6,1.0 和 1.4 MPa 时,CO₂ 析出的滞后时间分别为 440,236 和 144 min,即 CO₂ 析出的滞后时间随注气压力的增加而减小. 注气压力为 0.6 MPa 时,CH₄ 体积分数从 100% 下降到 29.15% 用了 367 min;注气压力为 1.0 MPa 时 CH₄ 体积分数从 100% 下降到 6.57% 用了 520 min;注气压力为 1.4 MPa 时 CH₄ 体积分数从 100% 下降到 6.94% 用了 382 min.

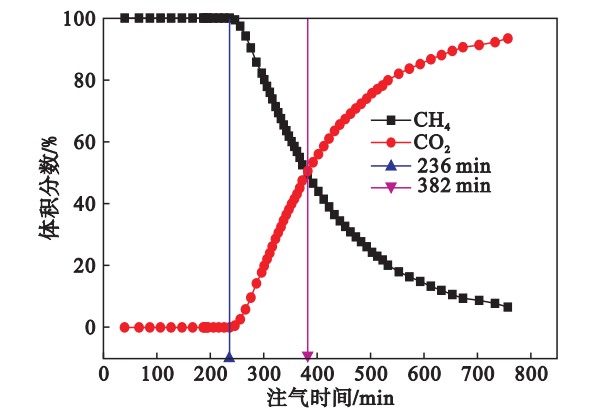


图 4 析出气体体积分数随注气时间的变化规律(1.0 MPa)
Fig. 4 Variation of discharge mixed gas concentration with time (1.0 MPa)

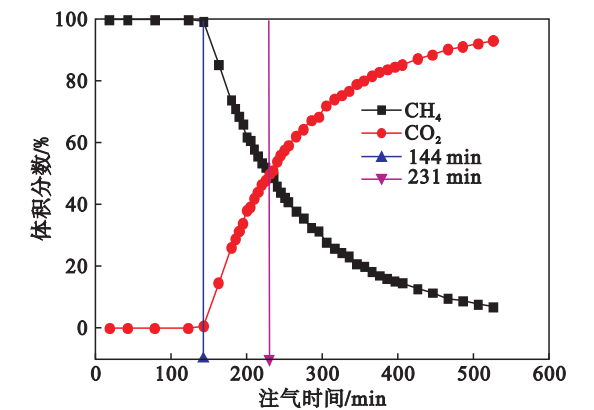


图 5 析出气体体积分数随注气时间的变化规律(1.4 MPa)
Fig. 5 Variation of discharge mixed gas concentration with time (1.4 MPa)

2.2 析出 CH₄ 体积随时间变化规律

煤层注 CO₂ 驱替瓦斯实验中析出 CH₄ 体积变化规律如图 6 所示.

由图 6 可以得出:随着注气时间的增加,CH₄ 持续析出,但析出流量初期小幅上升,直至 CO₂ 析出,开始缓慢下降. 析出 CH₄ 的速度和体积与注气压力呈正比关系,在相同的时间内,1.4MPa 析出 CH₄ 的的体积最多,0.6MPa 析出 CH₄ 的体积最少. 析出 CH₄ 的体积与注入 CO₂ 体积呈正比关系,但低压注气驱替瓦斯效益优于高压注气,即

析出相同体积的 CH₄,采用低压注气耗气量最少.

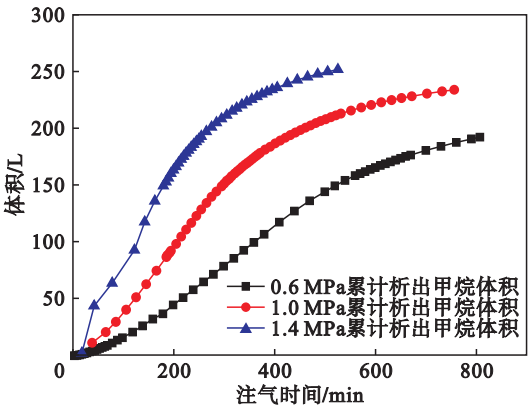


图 6 析出 CH₄ 体积随注气时间变化规律
Fig. 6 Variation of CH₄ volume with time

2.3 滞留煤中 CO₂ 体积随时间变化规律

煤层注 CO₂ 驱替瓦斯实验中滞留煤中 CO₂ 体积变化规律如图 7 所示.

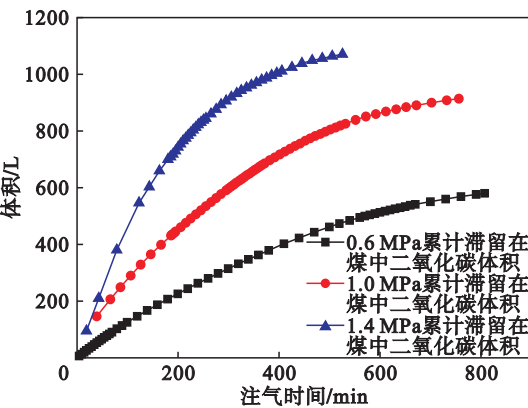


图 7 滞留在煤中 CO₂ 体积随时间变化规律
Fig. 7 Variation of CO₂ volume retained in coal with time

由图 7 可以得出:①在出口口检测到 CO₂ 前(本文称为 CO₂ 突破腔体时间),注入 CO₂ 全部滞留在煤中. 注气压力为 0.6 MPa 时,突破时间 440 min,滞留 CO₂ 体积 425.24 L;注气压力为 1.0 MPa 时,突破时间 236 min,滞留 CO₂ 体积 508.38 L;注气压力为 1.4 MPa 时,突破时间 144 min,滞留 CO₂ 体积 606.00 L. ②注气初始,滞留煤中体积总体上呈上升趋势,后期趋于稳定,且注气压力越大,滞留气体体积越大. 注气压力为 0.6 MPa 时,注气结束时滞留煤中 CO₂ 体积 671.83 L;注气压力为 1.0 MPa 时,注气结束时滞留煤中 CO₂ 体积 1 000.18 L;注气压力为 1.4 MPa 时,注气结束时滞留煤中 CO₂ 体积 1 074.76 L.

3 注 CO₂ 驱替煤层 CH₄ 机制转化过程及主导作用

3.1 置换效应和驱替效应定义

煤层注气驱替瓦斯是一个动态变化的过程,随着注入气源、注气压力、注气时间的不同,析出气体流量、体积分数、体积不断发生变化,从而也说明注气驱替煤层 CH₄ 是多种机理共同作用的结果. 因此,为了厘清煤层注气驱替瓦斯机理的动态演化过程,结合国内外专家对煤层注气驱替瓦斯机理的认识,给出如下两个定义.

1) 置换效应. 注源气体进入煤体后,凭借强吸附性与 CH₄ 发生置换吸附或因凭借高注气导致 CH₄ 分压减小,引起煤中吸附态 CH₄ 解吸出来的现象.

2) 驱替效应. 注源气体进入煤体后,凭借高压气流携带处于游离状态 CH₄ 流出煤体,打破原有的平衡状态,引起煤中吸附态 CH₄ 解吸出来的现象.

3.2 注气驱替煤层 CH₄ 定量化判定依据

根据置换和驱替效应的含义及判定依据,用置换比例或驱替比例来进行定量描述注 CO₂ 过程中置换作用和驱替作用的变化过程及地位. 置换比例和驱替比例如式(1)和式(2)所示.

$$R_d = \frac{V_r}{V_i} \times 100\% \quad (1)$$

式中: R_d 为置换比率,% ; V_r 为单位时间滞留在煤体中气体体积,m³ ; V_i 为单位时间注入煤体气体体积,m³.

$$R_r = \frac{V_d}{V_i} \times 100\% \quad (2)$$

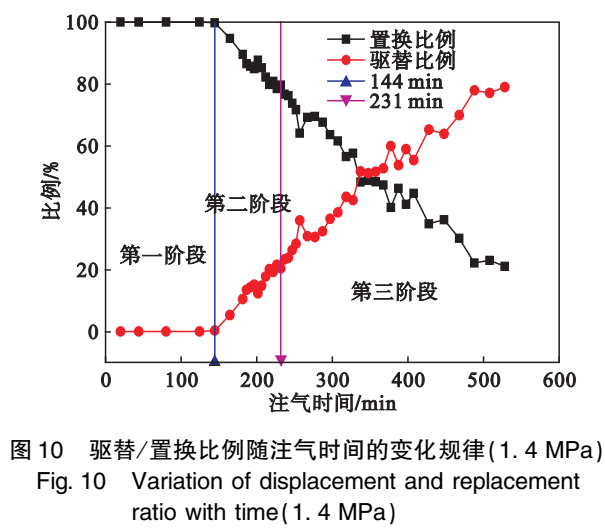
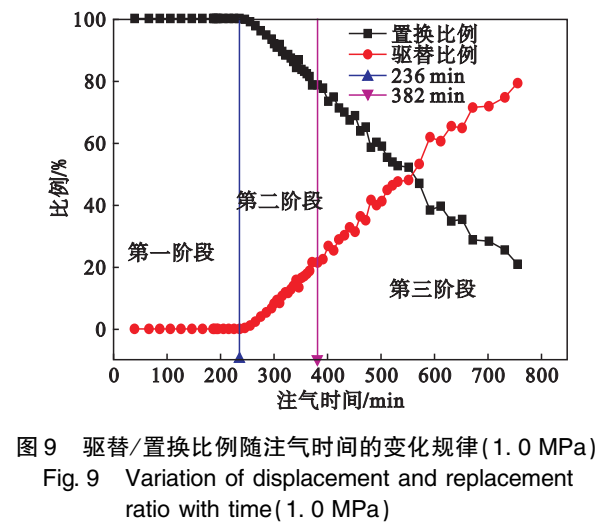
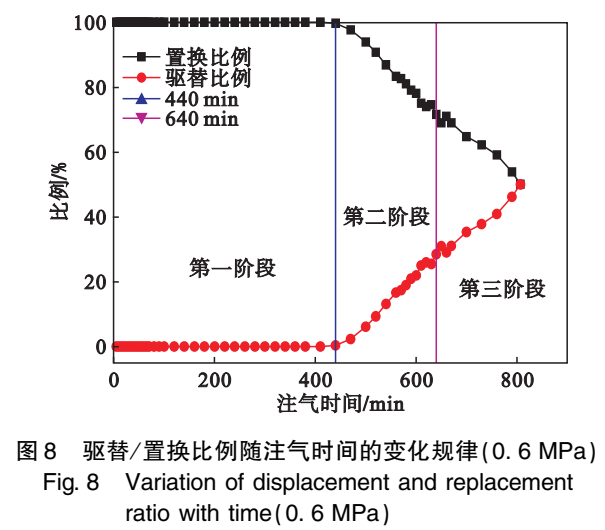
式中: R_r 为驱替比率,% ; V_d 为单位时间析出煤体气体体积,m³.

为了便于分析注气驱替瓦斯实验过程,以 CH₄ 体积分数的变化将注气过程分为 3 个阶段. 第一个阶段,注源气体突破腔体之前,即 CH₄ 体积分数为 100%,注源气体体积分数为 0. 第二个阶段,在出口可以检测到 CH₄ 和 CO₂ 气体,CH₄ 体积分数由 100% 下降到 50%,CO₂ 体积分数由 0 上升到 50%. 第三个阶段,在出口可以检测到 CH₄ 和 CO₂ 气体,CH₄ 体积分数由 50% 持续下降直到结束,CO₂ 体积分数由 50% 持续上升直到实验结束.

3.3 注 CO₂ 驱替煤层 CH₄ 机制转化过程分析

注 CO₂ 驱替煤层 CH₄ 实验条件下,不同注气

压力条件下,析出气体体积分数、驱替/置换比例随时间变化规律如图 8 ~ 图 10 所示。



第一个阶段,注入 CO_2 突破腔体之前 (注气压力为 0.6, 1.0, 1.4 MPa 对应时间段为 440,

236, 144 min), 即 CH_4 体积分数为 100%, CO_2 体积分数为 0. 此时被注入煤体的 CO_2 , 首先进入煤体的自由空间中, 而后一部分进入煤基质表面空余吸附位, 一部分与 CH_4 置换吸附引起 CH_4 不断解吸出来, 持续注入的 CO_2 使其吸附量上升, 同时自由空间的 CO_2 分压升高, 系统总压也呈升高趋势, 这时, 主要是 CO_2 通过分压促进煤层 CH_4 解吸, 另一方面, 从分子运动理论分析, 煤体中大量吸附 CO_2 , 也对 CH_4 的吸附产生一定的阻碍作用. 这期间主要是 CO_2 的置换效应起作用.

第二个阶段, 在出口可以检测到 CH_4 和 CO_2 气体, CH_4 体积分数由 100% 下降到 50%, CO_2 体积分数由 0 上升到 50%. CO_2 突破腔体后的一段时间内 (注气压力为 0.6, 1.0, 1.4 MPa 对应时间段为 440 ~ 640, 236 ~ 382, 144 ~ 231 min), 析出气体组分中 CO_2 体积分数迅速上升同时 CH_4 体积分数迅速下降, 且析出 CH_4 流量也呈逐渐下降趋势. 这段时间内腔体内的 CO_2 量不断上升, 无论是煤体吸附的 CO_2 量和游离 CO_2 的量都呈上升趋势, 同时一部分注入的 CO_2 将置换 - 解吸出来的 CH_4 携载出腔体外, 这个阶段, 注入 CO_2 的携载作用已经开始显现, 另一部分注入的 CO_2 开始发挥驱替效应. 随着注气的进行, 滞留在腔体内的 CO_2 量上升逐渐减缓, 这段时间, 各组分体积分数变化幅度减小并逐渐增强, 此时注入的 CO_2 , 大部分携载 CH_4 排出腔体, 只有少部分被煤体吸附或者进入腔体自由空间, 表现为 CO_2 在腔体内的累计滞留量缓慢增加, 这一阶段置换效应减弱和驱替效应增强的幅度较大.

第三个阶段, 在出口可以检测到 CH_4 和 CO_2 气体, CH_4 体积分数由 50% 持续下降直到结束, CO_2 体积分数由 50% 持续上升直到实验结束. 但两种气体体积分数变化的幅度越来越小. 随着注入 CO_2 体积不断增大, 煤对 CO_2 的吸附量趋于饱和, 即 CO_2 对 CH_4 的置换能力逐渐消失. 由于 CH_4 分压降低速度减慢且腔体内总压不变, 与之前相比这时 CO_2 的置换效应已经较弱, 持续的驱替效应使较弱的置换解吸得以维持下去, 这时注入的 CO_2 大部分都携载置换出的 CH_4 流出腔体外, 即, 这时大部分注入的 CO_2 起到了驱替效应, 实验中后期, CO_2 的驱替效应起主导作用.

3.4 注 CO_2 驱替煤层 CH_4 主导作用分析

注 CO_2 驱替煤层 CH_4 实验条件下, 累计置换比例、体积和驱替比例、体积随时间变化规律如表 2 所示.

表 2 不同注气压力整体实验参数
Table 2 Data of the whole experiment under different pressure of CO₂ injection

压力/MPa	时间/min	累计置换 CH ₄ 体积/L	累计驱替 CH ₄ 体积/L	累计置换比例/%	累计驱替比例/%
0.6	1 627	179.42	13.38	93.06	6.94
1.0	1 426	209.28	20.26	91.17	8.83
1.4	526	211.41	40.98	83.76	16.24

如表 2 所示,注气压力 0.6 MPa 时,注气时间 1 627 min,置换作用比例为 93.06%,累计排出 CH₄ 体积为 179.42 L,驱替作用比例为 6.94%,累计排出 CH₄ 体积为 13.38 L。注气压力 1.0 MPa 时,注气时间 1 426 min,置换作用比例为 91.17%,累计排出 CH₄ 体积为 209.28 L,驱替作用比例为 8.83%,累计排出 CH₄ 体积为 20.26 L。注气压力 1.4 MPa 时,注气时间 526 min,置换作用比例为 83.76%,累计排出 CH₄ 体积为 211.41 L,驱替作用比例为 16.24%,累计排出 CH₄ 体积为 40.98 L。综上所述,注 CO₂ 驱替 CH₄ 实验过程中,置换作用起主导作用。

4 结 论

- 1) 注 CO₂ 促排煤层 CH₄ 是一个动态变化的过程,随着注气压力、注气时间的不同,析出气体流量、体积分数、体积不断发生变化,从而也说明注 CO₂ 驱替煤层 CH₄ 是多种机理共同作用的结果。
- 2) 注 CO₂ 促排煤层 CH₄ 的机理主要表现为驱替效应和置换效应,在整个注气过程中由置换效应逐渐向驱替效应过渡。
- 3) 在 CO₂ 突破腔体以前,主要表现为置换效应,注入 CO₂ 的置换效应占主导地位,CO₂ 突破腔体之后,注入的 CO₂ 一部分与 CH₄ 发生置换吸附,一部分与 CH₄ 流出腔体,此时置换和驱替效应共存。针对整个实验过程,CO₂ 置换效应表现得更为明显,起主导作用。

参考文献:

[1] Reeves S R. The coal-seq project: key results from field, laboratory, and modeling studies[C]//Proceedings of the 7th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies. Oxford:Elsevier Ltd,2005:1399 – 1403.

[2] Gunter W D. CO₂ storage and enhanced methane production: field testing at Fenn big Valley, Alberta and Canada with

application [C]//Proceedings of 7th Conference on Greenhouse Gas Control Technologies. Oxford:Elsevier Ltd, 2005:413 – 421.

[3] Bergen F V, Pagnier H, Krzystolik P. Field experiment of CO₂-ECBM in the upper Silesian basin of Poland [C]// Proceedings of the 7th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies. Oxford:Elsevier Ltd, 2005:1391 – 1397.

[4] Yamaguchi S, Ohga K, Fujioka M, et al. Field experiment of Japan CO₂ geosequestration in coal seams project (JCOP) [C]//Proceedings of the 8th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies. Trondheim, 2006: 19 – 22.

[5] 王公达,任廷祥,齐庆新,等. 二氧化碳/氮气驱替煤层瓦斯过程的数学模型[J]. 岩石力学与工程学报,2016,35 (sup2):3930 – 3936.

(Wang Gong-da, Ren Ting-xiang, Qi Qing-xin, et al. Mathematical model of coal seam methane displacement by injecting CO₂/nitrogen [J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering,2016,35 (sup2):3930 – 3936.)

[6] Katayama Y. Study of coal bed methane in Japan [C]// Proceedings of United Nations International Conference on Coal Bed Methane Development and Utilization. Beijing: Coal Industry Press,1995:238 – 243.

[7] Clarkson C R, Bustin R M. Binary gas adsorption/desorption isotherms: effect of moisture and coal composition upon carbon dioxide selectivity over methane [J]. International Journal of Coal Geology,2000,42 (4):241 – 272.

[8] 陈立伟,杨天鸿,杨宏民,等. 煤层注 N₂ 促排瓦斯时效性实验研究[J]. 东北大学学报(自然科学版),2017,38 (7): 1026 – 1030.

(Chen Li-wei, Yang Tian-hong, Yang Hong-min, et al. Experimental research on timeliness of promoting gas drainage by N₂ injection in coal bed [J]. Journal of Northeastern University (Natural Science), 2017, 38 (7): 1026 – 1030.)

[9] 梁卫国,张倍宁,黎力,等. 注能(以 CO₂ 为例)改性驱替开采 CH₄ 理论与实验研究[J]. 煤炭学报,2018,43 (10): 2839 – 2847.

(Liang Wei-guo, Zhang Bei-ning, Li Li, et al. Theory and experimental study of CBM recovery driven by energy boosting[J]. Journal of China Coal Society,2018,43 (10): 2839 – 2847.)

[10] 李元星. 连续与间歇注空气驱替煤层气机理及实验研究 [D]. 太原:太原理工大学,2017.

(Li Yuan-xing. Mechanism and experimental research on coal bed methane displacement by continuous and intermittent air injection [D]. Taiyuan: Taiyuan University of Technology, 2017.)