

郝耐, 毛灵涛, 魏峰, 等. 煤岩吸附二氧化碳气体的 CT 实验研究[J]. CT 理论与应用研究, 2014, 23(3): 425-433.
Hao N, Mao LT, Wei F, et al. Experimental study on coal associated with carbon dioxide sorption by CT[J]. CT Theory and Applications, 2014, 23(3): 425-433.

煤岩吸附二氧化碳气体的 CT 实验研究

郝耐^{1✉}, 毛灵涛^{1, 2}, 魏峰³, 马甲年⁴

1. 中国矿业大学(北京)力学与建筑工程学院, 北京 100083
2. 煤炭资源与安全开采国家重点实验室, 北京 100083
3. 煤炭科学研究总院, 北京 100013
4. 中国煤炭科工集团北京华宇工程有限公司, 北京 100120

摘要: 利用工业 CT 技术及应变测量研究不同气压下煤岩的二氧化碳气体吸附性质。研究发现: 煤样的应变随吸附时间和气体压力的增加而增加, 且在不同方向是不同的, 吸附气体导致煤样孔隙率增加; 煤样 CT 图像的灰度均值和灰度标准差随吸附时间和气体压力的增长都表现出增加的趋势。结果表明: 吸附二氧化碳导致煤样总体发生膨胀变形, 这为吸附提供更多的孔隙表面积而使吸附气体量增加, 含气煤样的密度也因此而增大; 气体吸附导致的煤样密度均值增加的效应大于体积膨胀导致的煤样密度均值减小的效应; 吸附使煤样内部物质分布不均匀程度增加。

关键词: 煤岩; CT 扫描; 二氧化碳; 吸附; 应变; 孔隙率

文章编号: 1004-4140 (2014) 03-0425-09 **中图分类号:** TP 391.41 **文献标志码:** A

二氧化碳在未采煤层中的封存及二氧化碳驱替煤层甲烷技术近年来备受关注^[1, 2]。Kelemen 等^[3]研究了自然煤样和干燥煤样对二氧化碳、甲烷、氮气的吸附特性, 结果表明煤样应变和气体吸附量之间存在非线性相关关系。Day 等^[4]研究了煤样对超临界二氧化碳气体的吸附作用, 结果表明气体吸附作用导致煤样发生弹性变形, 在一定气压范围内煤样应变随气体吸附量增加而线性增加。Majewska 等^[5]研究了轴向载荷对于二氧化碳吸附引起的煤样应变及其内部结构变化的影响, 结果表明轴向载荷减小了气体吸附引起的煤样应变和累积声发射能量。Larsen^[6]和 Goodman 等^[7]研究了二氧化碳吸附对于煤岩结构和特性的影响, 结果表明二氧化碳能够渗透至煤岩中并对煤岩起到塑化剂的作用。

Radliński 等^[8]利用小角度 X 射线散射 (SAXS) 成像研究了煤对二氧化碳的吸附特性, 结果表明二氧化碳吸附优先发生在微孔中, 二氧化碳吸附相的密度与孔隙大小有关。Karacan^[9]应用医用 CT (水平分辨率 0.25 mm) 技术研究了围压限制下煤岩吸附二氧化碳的动力学过程和煤岩内部变形。

虽然国内外学者对于煤岩吸附二氧化碳进行了大量的研究, 但是目前二氧化碳在煤岩中的吸附机理及煤岩变形特性等问题尚需要进一步研究。

本文采用高分辨率工业 CT 扫描的图像, 结合应变测量分析了二氧化碳吸附过程中煤样

收稿日期: 2013-12-27。

基金项目: 国家重点基础研究发展计划 (973) (2010CB732002); 国家自然科学基金 (51374211); 中央高校基本科研业务费专项资金 (2010YL02)。

内部的变化。

1 CT 实验

1.1 实验设备及实验样品

实验采用中国矿业大学(北京)煤炭资源与安全开采国家重点实验室的 X 射线工业 CT 检测实验系统 (ACTIS300-320/225), 如图 1 所示。

煤样取自山西阳泉新景矿, 为贫煤。试件尺寸为 $\Phi 25\text{ mm} \times 50\text{ mm}$, 分别在试件下端三分之一处沿轴向和环向粘贴应变片。CT 扫描的电压 190 kV, 电流 $500\text{ }\mu\text{A}$, 图像大小 1024×1024 (Pixel), 视场大小 28 mm, 水平分辨率 0.027 mm, 扫描厚度 0.1 mm。扫描区间距离煤样底端 30~44 mm, 每次扫描 14 mm。得到 141 幅 CT 图像, 图像编号分别为 S001、S002、 \dots , S141, 选取其中编号为 S001、S021、S041、S061、S081、S101、S121、S135 的 8 层作分析, 煤样及其扫描位置如图 2 所示。



图 1 实验设备

Fig.1 Experimental device



图 2 实验煤样及扫描位置示意图 (毫米)

Fig.2 Coal sample and schematics of scan position (mm)

1.2 实验步骤

实验的主要目的是测定煤岩吸附二氧化碳过程中的应变变化, 以及煤样内部的变化。具体实验步骤如下:

(1) 将贴好应变片的煤样放入充气腔体中, 抽真空, 为将试件中气体充分抽出, 抽真空持续时间为 12 h 以上, 抽完真空后对试件进行 1 次 CT 扫描。

(2) 充入二氧化碳, 使气体压力达到 0.55 MPa 后关阀门, 每隔一段时间记录气压及应变读数。

(3) 充气结束 100 min 时间内, 应变仪读数急剧变化, 故此时进行 1 次 CT 扫描。经历 1500 min 后, 煤样应变趋于稳定, 认为该气压下吸附达到平衡, 此时再进行 1 次 CT 扫描。

(4) 将气压分别增至 1.20 MPa, 1.49 MPa, 2.20 MPa, 重复步骤 (2) ~ (3)。

2 CT 实验结果分析

2.1 煤样应变分析

实验测得的煤样应变及二氧化碳气体压力变化如图 3 所示。在气压分别达到 0.55 MPa、1.20 MPa、1.49 MPa 和 2.20 MPa 的充气过程中,受气体围压作用导致煤样应变出现短暂减小,之后煤样应变迅速增加,随着吸附时间的增加应变增加的速率减小,经过 1500 min 后基本保持不变且环向应变大于轴向应变。气压越大,吸附平衡时的应变也越大。

2.2 煤样 CT 图像灰度分析

2.2.1 灰度图像

图 4 ((a) ~ (h)) 为初始状态(抽真空)所选各层 CT 图像,根据 X 射线 CT 扫描的原

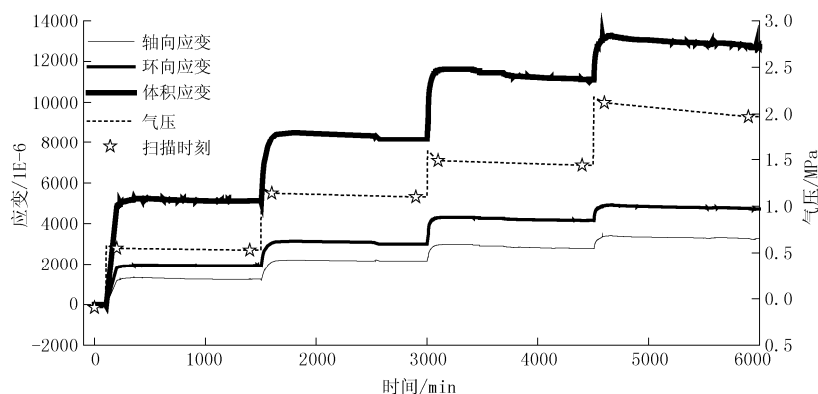


图 3 二氧化碳吸附过程中煤样的应变及气体压力变化

Fig.3 Change of coal strain and gas pressure during CO₂ sorption

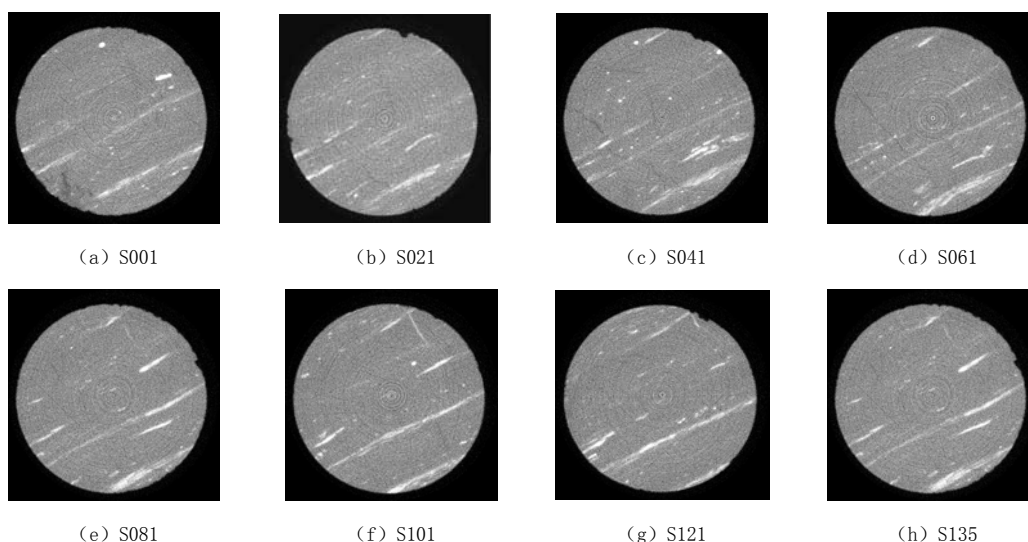


图 4 真空状态时不同位置的 CT 图像

Fig.4 CT images of different location under vacuum state

理, 浅色代表高密度物质, 深色代表低密度物质, 可知各层煤样其内部物质组成是极其不均匀的。

2.2.2 灰度图像伪彩显示

对 CT 图像进行伪彩色增强, 能够显著提高视觉分辨率^[10-11]。以 S041 层为例来说明吸附过程中煤样内部的变化情况, 其 CT 图像灰度伪彩显示如图 5 ((a) ~ (i)) 所示。色标图由蓝至红代表灰度增加, 反映为密度的增加。图 5 (a) 代表煤样 S041 层抽真空后的灰度伪彩图像, 图 5 (b) 和图 5 (c) 分别代表充气 0.55 MPa 气压水平下吸附 100 min 和吸附 1500 min 平衡 (此时气压降至 0.53 MPa) 时扫描所得的 CT 图像, 图 5 (c) 相比图 5 (b), 图像的颜色由蓝色向红色逐渐加深, 反映了吸附导致灰度均值的增加。观察其他 3 组 (图 5 (e) 与图 5 (d), 图 5 (g) 与图 5 (f), 图 5 (i) 与图 5 (h)) 气压水平吸附前后的图像可以得到类似的结论, 即吸附会导致煤样内部灰度均值的增加。

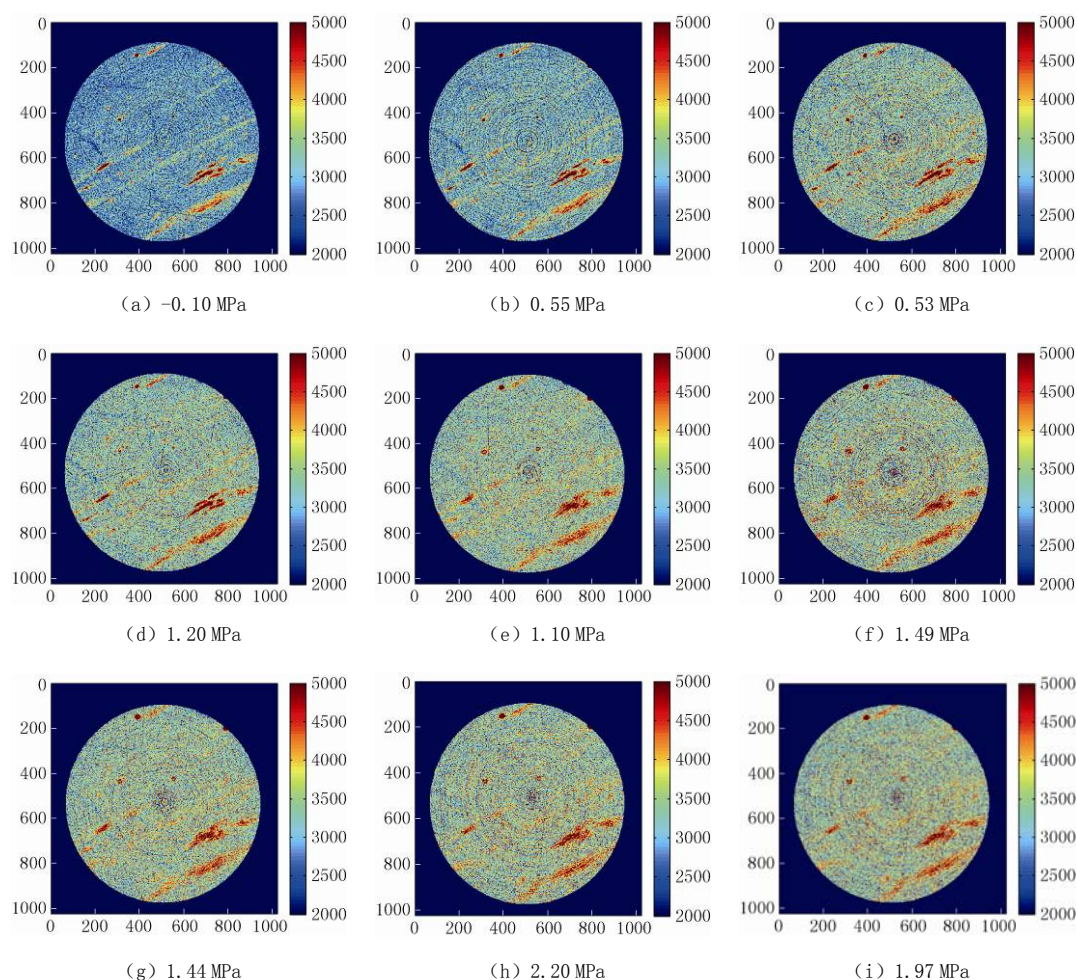


图 5 煤样 S041 层切片不同气压下 CT 图像的伪彩显示

Fig.5 Pseudo color CT image of slice S041 coal under different gas pressure

2.2.3 灰度均值分析

图 6 ((a)、(b)) 表示不同层号图像灰度均值及气体压力变化。在 ab、cd、ef 和 gh 这四个充气阶段, 气体产生的围压作用使得煤样压缩, 在气体压力梯度影响下, 煤样裂隙和较大孔隙中填充了气体, 导致平均密度的增加, 反映在各层煤样 CT 图像灰度均值都有不同程度的增加。

在 bc、de、fg 和 hi 四个不同气压水平下的吸附过程中, 各层煤样灰度均值整体增加, 这是由于煤岩是多孔介质, 气体逐渐扩散至小孔和微孔中, 并不断被吸附至孔隙表面而导致煤样平均密度的增加。这四个阶段, 灰度增加的幅度逐渐减小, 主要是由于吸附逐渐趋于饱和, 平均密度趋于不变。

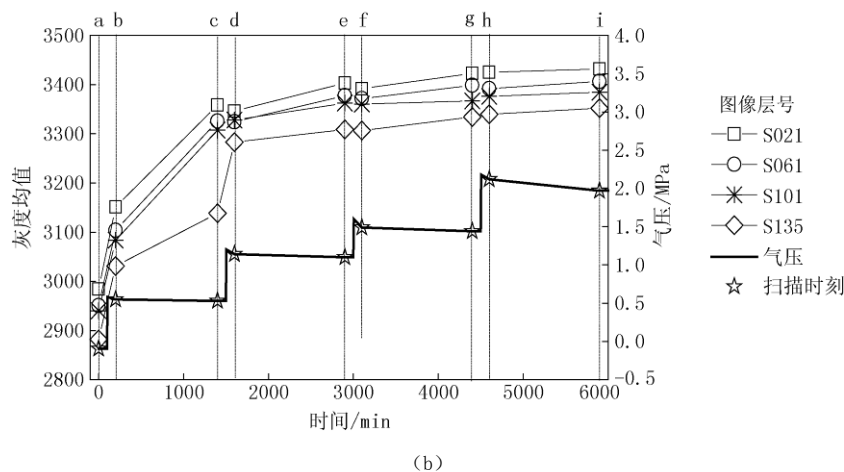
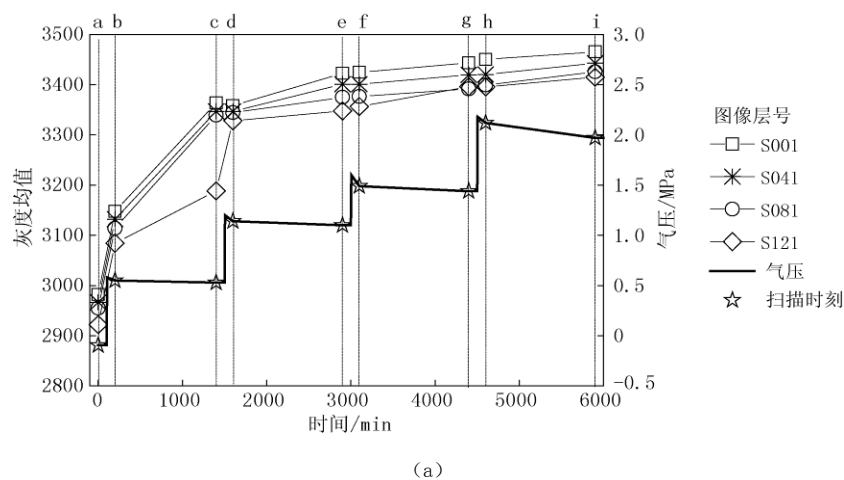


图 6 不同气压下不同层号图像灰度均值

Fig.6 Average gray value of different slice image under different gas pressure

2.2.4 灰度标准差分析

图 7 ((a)、(b)) 表示不同层号图像灰度标准差及气体压力变化, 灰度标准差反映了煤样内部物质分布的不均匀程度。分析可知, ab 阶段由真空状态充入气体达到 0.55 MPa 气压

后, 煤样由收缩状态被气体逐渐填充, 其内部结构变得不均匀, 因此灰度标准差增加; 在 bc、de、fg 和 hi 四个不同气压水平下的吸附过程中, 灰度标准差不断增加, 由图 4 可知, 各层煤样其物质组成是不均匀的, 不同组分对于气体的吸附能力是不同的, 随着气体的扩散和吸附, 吸附平衡时对于不同组分造成的改变也是不同的, 因此内部物质分布更加不均匀。

而在 cd、ef 和 gh 这三个充气阶段, 灰度标准差突然减小, 这是由于气压的突然增加导致煤样被暂时压缩, 煤样内部的部分孔隙被基质填充, 煤样内部物质分布暂时变得均匀。

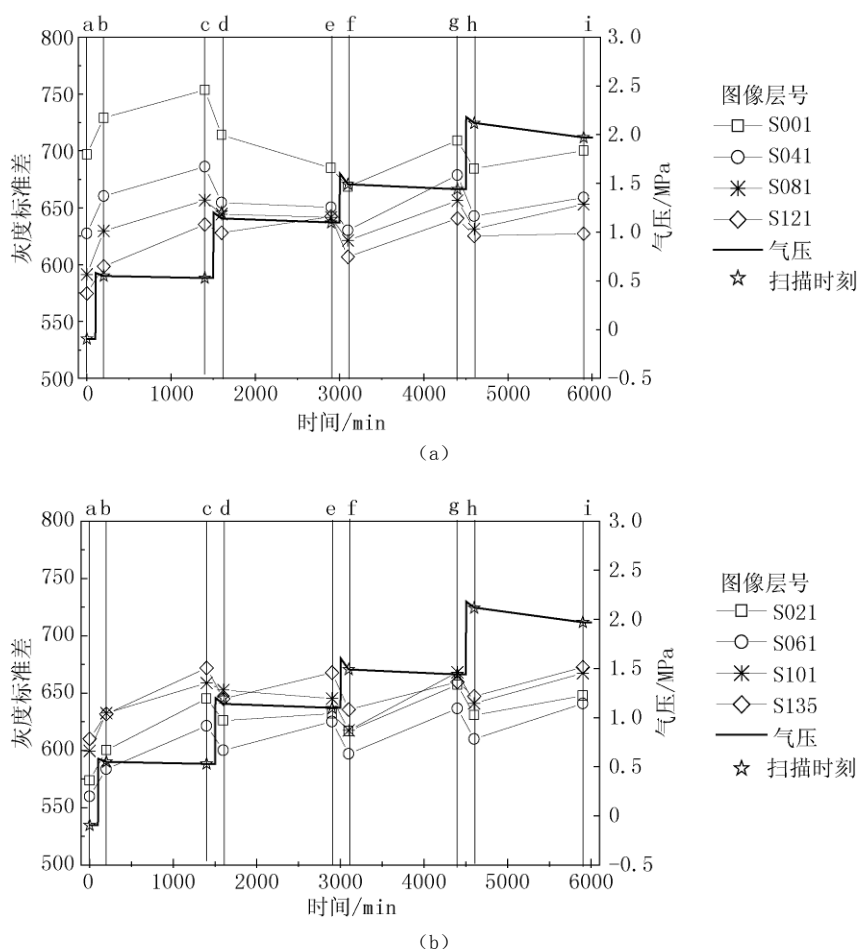


图 7 不同气压下不同层号图像灰度标准差

Fig. 7 Gray standard deviation of different slice image under different gas pressure

2.3 煤样孔隙率分析

确定孔隙率, 通常的方法是对图像进行二值化分割, 阈值的选取会在一定程度上影响计算结果。如果把 CT 图像每点的灰度值看成是地形高度值, 那么每幅灰度图可以看作是不同的数字地形模型 (Digital Terrain Model, DTM)^[12-13], 应用 DTM 方法可得孔隙分布函数 $\phi(l)$, 由式 (1) 计算, 函数 $\phi(l)$ 的极小值即为此幅图像的孔隙率^[14]。

$$\phi(l) = \frac{\sum_{i=0}^l (l-r_i)H(r_i)}{l \sum_{i=0}^l H(r_i)} \quad (1)$$

式中, r_i 是各像素点的灰度值, $H(r_i)$ 是 $[r_{\min}, r_{\max}]$ 范围内的灰度直方图 (其中 r_{\min} 为最小灰度值, r_{\max} 为最大灰度值), l 为灰度值, 其取值范围为 $[r_{\min}, r_{\max}]$ 。

不同层号 CT 图像孔隙率及气体压力变化如图 8 ((a) 和 (b)) 所示。分析可知, ab 阶段由真空状态充入气体达到 0.55 MPa 气压后, 煤样部分孔隙由收缩状态被气体所逐渐填充, 内部孔隙体积略有增加, 由于气体扩散和吸附的缓慢, 大部分孔隙 (尤其是微孔) 尚没有填充气体, 因此孔隙率增加幅度较小; bc、de、fg 和 hi 阶段各个气压水平下, 随着吸附的进行气体逐渐扩散且被其内部的大量孔隙所吸附, 煤样内部孔隙气体压力和其外部的的气体压力趋于相同, 煤样内部产生膨胀, 从而其孔隙率总体表现出增加的趋势, 这与前面煤样整体发生膨胀变形的结论相符。

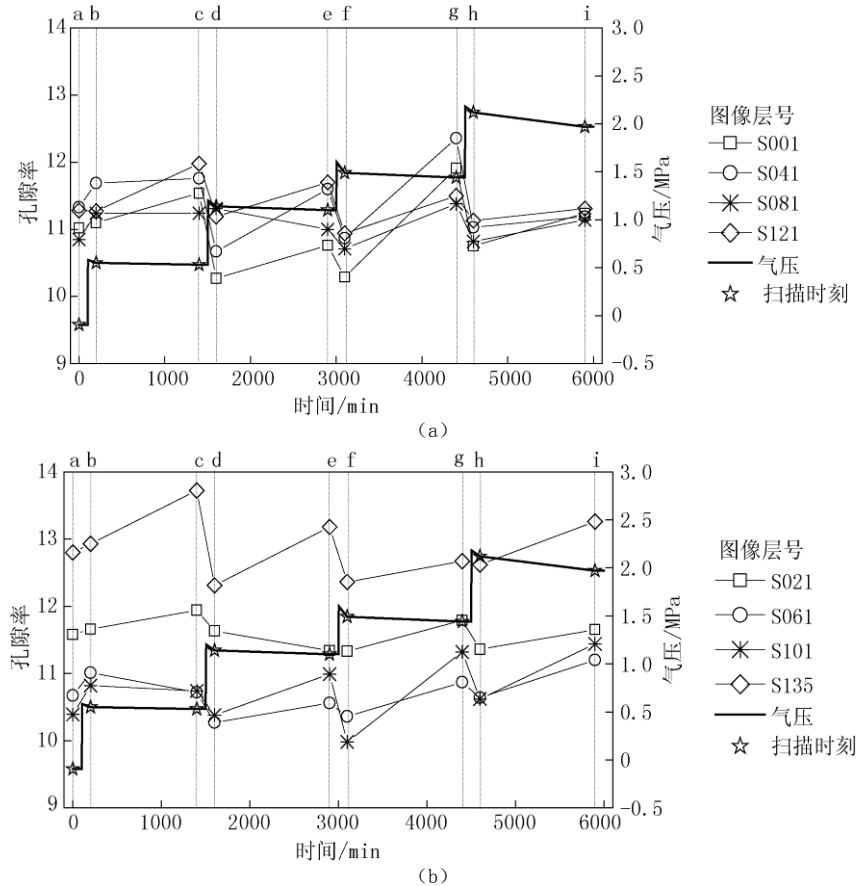


图 8 不同气压下不同层号图像的孔隙率

Fig.8 Porosity of different coal slice under different gas pressure

在气压增加阶段 (cd、ef 和 gh 阶段), 孔隙率暂时减小, 这是由于围压的突然增加,

煤基质被压缩使得煤样内部孔隙体积减小。

3 结论

本文利用应变测量和工业 CT 技术研究了不同二氧化碳气体压力下煤岩的吸附性质,从宏观和 CT 尺度下的细观进行了分析,得到以下结论:

(1) 二氧化碳气体吸附导致煤样的体应变增加,气体压力越大、吸附时间越长,则煤样体应变随之变大。煤样的环向应变大于轴向应变,表现出应变变化的非均匀性。吸附过程中,煤样孔隙率总体呈现增加的趋势,表明煤样内部发生了膨胀变形,孔隙率的增加为气体吸附提供更多的孔隙表面积而使气体吸附量增加。

(2) 煤样的灰度图像及伪彩图像可以直观反映其内部物质分布的不均匀性,及气体吸附过程中内部结构的变化。同一气压水平下,煤样灰度均值随吸附时间的增加而增加;气压越高,煤样吸附气体量增加,含气煤样的密度增大,导致吸附过程中灰度均值增大,也表明吸附气体导致煤样密度均值增加的效应,大于体积膨胀导致的煤样密度均值减小的效应。灰度标准差随气压与吸附时间的增长亦呈现出增加的趋势,表明气体吸附导致煤样内部物质分布不均匀程度增加。

参考文献

- [1] White CM, Smith DH, Jones KL, et al. Sequestration of carbon dioxide in coal with enhanced coalbed methane recovery: A review[J]. *Energy and Fuels*, 2005, 19(3): 659-472. DOI:10.1021/ef040047w.
- [2] Holloway S. Underground sequestration of carbon dioxide—a viable greenhouse gas mitigation option[J]. *Energy*, 2005, 30(11/12): 2318-2333.
- [3] Kelemen SR, Kwiatek LM. Physical properties of selected block argonne premium bituminous coal related to CO₂, CH₄, and N₂ adsorption[J]. *International Journal of Coal Geology*, 2009, 77(1/2): 2-9.
- [4] Day S, Fry R, Sakurovs R, et al. Swelling of coals by supercritical gases and its relationship to sorption[J]. *Energy Fuels*, 2010, 24(4): 2777-2783.
- [5] Majewska Z, Majewski S, Ziętek J. Swelling and acoustic emission behaviour of unconfined and confined coal during sorption of CO₂[J]. *International Journal of Coal Geology*, 2013, (116/117): 17-25.
- [6] Larsen JW. The effects of dissolved CO₂ on coal structure and properties[J]. *International Journal of Coal Geology*, 2004, 57(1): 63-70.
- [7] Goodman AL, Favors RN, Hill MM, et al. Structural changes in Pittsburgh No. 8 coal caused by sorption of CO₂ gas[J]. *Energy and Fuels*, 2005, 19(4): 1759-1760. DOI: 10.1021/ef050051n.
- [8] Radliński AP, Busbridge TL, Gray EMA, et al. Small angle X-ray scattering mapping and kinetics study of sub-critical CO₂ sorption by two Australian coals[J]. *International Journal of Coal Geology*, 2009, 77(1/2): 80-89.
- [9] Karacan CÖ. Heterogeneous sorption and swelling in a confined and stressed coal during CO₂ injection[J]. *Energy and Fuels*, 2003, 17(6): 1595-1608. DOI: 10.1021/ef0301349.
- [10] 范留明, 李宁, 丁卫华. 数值图像伪彩色增强方法在岩土 CT 图像分析中的应用[J]. *岩石力学与工程学报*, 2004, 23(13): 2257-2261.
Fan LM, Li N, Ding WH. Application of pseudo color enhancement method to geotechnical CT image analysis[J]. *Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering*, 2004, 23(13): 2257-2261.
- [11] 毛灵涛, 赵丹, 袁则循, 等. 软土单轴固结 CT 实验研究[J]. *CT 理论与应用研究*, 2013, 22(1):

- 33-40.
- Mao LT, Zhao D, Yuan ZX, et al. Soft soil uniaxial consolidation experiment with CT[J]. CT Theory and Applications[J]. 2013, 22(1): 33-40.
- [12] Tauda H, Martinez-Angeles TR, Parrotb JF. Porosity estimation method by X-ray computed tomography[J]. Journal of Petroleum Science and Engineering, 2005, 47(3/4): 209-217.
- [13] 袁则循, 毛灵涛, 赵丹. 基于 SEM 图像土微结构三维孔隙度的计算方法[J]. 辽宁工程技术大学学报: 自然科学版, 2011, 30(5): 734-737.
- Yuan ZX, Mao LT, Zhao D. 3D porosity computation method of soil microstructure based on SEM image[J]. Journal of Liaoning Technical University: Natural Science, 2011, 30(5): 734-737.
- [14] 毛灵涛, 石鹏, 涂辉, 等. 基于 CT 图像单轴受载煤样损伤计算[J]. 辽宁工程技术大学学报: 自然科学版, 2011, 32(1): 59-63.
- Mao LT, Shi P, Tu H, et al. Coal damage calculation under uniaxial loading based on CT images[J]. Journal of Liaoning Technical University: Natural Science, 2011, 32(1): 59-63.

Experimental Study on Coal Associated with Carbon Dioxide Sorption by CT

HAO Nai¹✉, MAO Ling-tao^{1,2}, WEI Feng³, MA Jia-nian⁴

1.School of Mechanics & Civil Engineering, China University of Mining & Technology, Beijing 100083, China

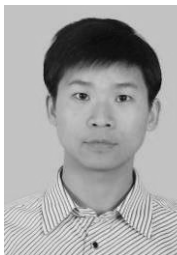
2.State Key Laboratory of Coal Resources and Safe Mining, Beijing 100083, China

3.China Coal Research Institute, Beijing 100013, China

4.Beijing Huayu Engineering Co., Ltd., China Coal Technology Engineering Group, Beijing 100120, China

Abstract: The sorption properties of coal associated with carbon dioxide under different gas pressures were studied by X-ray CT technology and strain measurement. It is found that coal strain increases as time goes and gas pressure increases, with different values along different directions, and gas sorption leads to increase in coal porosity; Both the average value and standard deviation of gray of coal CT image manifest an increasing tendency as time goes and gas pressure increases. The results show that coal swelling deformation occurs after it adsorbs CO₂, which provides more surface area for adsorbing more gas and induces increament in density of coal-gas mixture; the effect of average density increase caused by matrix adsorbing gas is larger than the effect of average density decrease caused by matrix volume expansion; and gas sorption results in the aggravation of heterogeneity of substance distribution inside the coal.

Key words: coal; CT scanning; carbon dioxide; sorption; strain; porosity



作者简介: 郝耐[✉] (1986—), 男, 中国矿业大学(北京)流体力学专业在读博士生, 主要从事实验力学方面的研究, Tel: 010-82386706, E-mail: haonai1986@163.com。