

## Разработка методики проведения исследований по изучению влияния воздействия жидкого азота на углепородный материал

*Л. А. Рыбалкин<sup>1</sup>\*, И. М. Сердюк<sup>1</sup>*

<sup>1</sup> Институт горного дела им. Н. А. Чинакала СО РАН, г. Новосибирск, Российская Федерация  
\* e-mail: leonid.rybalkin@gmail.com

**Аннотация.** В последнее время набирает популярность изучение влияния криогенных веществ на структуру угля. Воздействие жидким азотом на уголь приводит к микро и макроструктурным нарушениям в сплошности угля за счет резкого охлаждения влаги, находящейся в микротрещинах и поровом пространстве, с дальнейшим увеличением объема микрокристаллов льда. В отличие от традиционных методов увеличения фильтрационной поверхности в угле, данный подход позволяет проводить обработку без дополнительной закачки жидких агентов в пласт для создания давления дезинтеграции сплошности массива. Исследовательские работы в данном ключе направлены на изучение кратности увеличения пористости и трещиноватости угля в процессе одиарного или многократного воздействия порциями жидкого азота. Отличительной особенностью проводимых исследований является оценка результатов криообработки образцов неразрушающими методами измерения порового пространства. Так вывод о изменении проницаемости делается без непосредственных замеров скоростей фильтрации газа в образцах. Изменения, показанные сканами компьютерной томографии, показывают приращение общего числа открытых пор и каналов, однако не иллюстрирует прирост газопроницаемости в целом. В рамках данной работы нами были проведены ряд исследований по осевой фильтрации газа в образцах плотных углей в условиях контролируемого всестороннего нагружения. Проведены подготовительные работы по сушке образцов и дальнейшему их насыщению влагой до значений идентичных во всей партии. Предложена схема проведения экспериментов по исследованию влияния криообработки на внутреннюю структуру угля с использованием методов стационарной осевой фильтрации газа и ЯМР релаксометрии. Разработка данной методики способствует получению достоверных данных о приращении газопроницаемости образцов угля и может быть полезна при проектировании методов и подходов по увеличению степени дегазации за счет обработки дегазационных скважин на угледобывающих предприятиях.

**Ключевые слова:** дегазация, метан угольных пластов, сейсмическое воздействие, гидроразрыв пласта

## Development of a methodology to research the influence of liquid nitrogen exposure on carbon material

*L. A. Rybalkin<sup>1</sup>\*, I. M. Serdyuk<sup>1</sup>*

<sup>1</sup>Chinakal Institute of Mining, Siberian Branch, Russian Academy of Sciences, Novosibirsk, Russian Federation  
\* e-mail: leonid.rybalkin@gmail.com

**Abstract.** Recently, studies, which are dedicated to the effect of cryogenic substances on the structure of coal, are gaining popularity. The impact of liquid nitrogen on coal leads to micro- and macrostructural disturbances in the continuity of coal due to drastic cooling of the moisture in the microcracks and pore space of the coal, while the volume of ice microcrystals increases. This approach provides the opportunity to treat the massif without additional injection of liquid agents into seams to create

pressure to disintegrate it, unlike traditional methods of increasing the filtration surface in coal. Research work, which are presented in this field, are aimed at studying the multiplicity of increase in porosity and fracturing of coal in the process of single or multiple exposure to portions of liquid nitrogen. A distinctive feature of the ongoing research is the evaluation of the results of cryotreatment of samples by non-destructive methods of measuring the pore space. Thus, the conclusion about the change in permeability is made without direct measurements of the gas filtration rates in the samples. Changes shown by CT scans show an increase in the total number of open pores and channels, however they do not illustrate the increase in gas permeability in general. As a part of this work, we carried out a number of studies on axial gas filtration in dense coal samples, which were under controlled all-round loading. Preparatory work was carried out to dry the samples and further saturate them with moisture to identical values in the entire batch. A scheme for conducting experiments to study the effect of cryotreatment on the internal structure of coal using the methods of stationary axial gas filtration and NMR relaxometry is proposed. The development of this technique contributes to obtaining reliable data on the increase in the gas permeability of coal samples. The data can be useful in designing methods and approaches to increase the degree of degassing by treating degassing wells at coal mining enterprises.

**Keywords:** degassing, coal seams methane, seismic vibration, hydraulic fracturing

### *Введение*

Одними из популярных технологии интенсификации газоотдачи угольного пласта являются импульсное пневмогидродинамическое воздействие на угольный пласт с кавернообразованием и гидроразрыв с применение различных рабочих жидкостей. Данные методы имеют ряд недостатков: чрезмерный расход дорогостоящих жидкостей разрыва, тампонирующее фильтрование системы пласта и загрязнение возвратной жидкости. Альтернативой данным методам является проведение «сухого» разрыва угленосной массы за счет нагнетания жидкого азота. Лабораторные исследования в данной области направлены на изучение изменения структуры угля, его механических свойств и развитию каналов фильтрации в следствии обработки жидким азотом влагонасыщенных кернов угля.

В работе [1] уголь, используемый в экспериментах, содержал 75,78% связанного углерода и 16,27% летучих компонентов, минеральный состав был определен с помощью XRD, проведена микрокомпьютерная томография. Образцы высушивались в сушильном шкафу, до содержания воды 0,2%. После чего делали микрокомпьютерную томографию, затем образцы помещали в LN<sub>2</sub> на 1 час, после доставали и оставляли на 30 минут для оттаивания до комнатной температуры. Согласно результатам, пористость увеличилась с первоначальных 0,54% до 1,53%. Для сравнения морфологии было проведено 1300 сканирований. На рисунке 1 показано изменение порового пространства угля после обработки жидким азотом.

В работе [2] было установлено, что в результате циклической обработке жидким азотом расширения микротрещин ведет к уменьшению волновых скоростей на 10,4%, происходит снижение механических свойств (по результатам тестов на одноосное сжатие) у замороженных образцов по сравнению с исходными.

В работе [3] образцы подвергались вакуумной сушке при температуре 60С и давлении -0,1МПа, до постоянного веса. Затем керн насыщали водой с помощью вакуума в течении 12 часов. После образцы подвергались циклу заморозки-разморозки. После излишки влаги удалялись в центрифуге. Использовалось две группы образцов, первую замораживали по времени, вторую по циклам. При многократном использовании цикла воздействия жидким азотом возрастает скорость развития фильтрационных пор по сравнению с одинарным воздействием. Авторы утверждают, что при увеличении времени воздействия и числа циклов пропорционально возрастает количество трещин. Для развития открытых пор оптимально время в 30 минут и 6 циклов, для развития адсорбционных пор требуется 35 минут и 7 циклов, для создания фильтрационных пор и 10 циклов. То есть при контроле циклов заморозки-разморозки можно добиться наибольшего эффекта.

В работе [4] эксперименты проводились на различных крепких породах и плотных углях, подход заключался в том, что в прогретый образец (температура варьировалась от комнатной до 460С) подавалась под давлением до 25 МПа струя LN2. Как показали эксперименты чем выше температурная разница, тем лучше происходит разрыв (граниты при  $t=460\text{C}$  раскалывались на несколько частей). Авторы отмечают, что наиболее эффективный способ подачи в уголь и остальные породы – струя под высоким давлением.

Отличительной особенностью проводимых исследований является оценка результатов криообработки образцов неразрушающими методами измерения порового пространства. Так вывод о изменении проницаемости делается без непосредственных замеров скоростей фильтрации газа в образцах. Изменения, показанные сканами компьютерной томографии, показывают приращение общего числа открытых пор и каналов, однако не иллюстрирует прирост газопроницаемости в целом.

В рамках данной работы нами были проведены ряд исследований по осевой фильтрации газа в образцах плотных углей в условиях контролируемого всестороннего нагружения. Проведены подготовительные работы по сушке образцов и дальнейшему их насыщению влагой до значений идентичных во всей партии. Предложена схема проведения экспериментов по исследованию влияния криообработки на внутреннюю структуру угля с использованием методов стационарной осевой фильтрации газа и ЯМР релаксометрии. Разработка данной методики способствует получению достоверных данных о приращении газопроницаемости образцов угля и может быть полезна при проектировании методов и подходов по увеличению степени дегазации за счет обработки дегазационных скважин на угледобывающих предприятиях.

### ***Подготовка образцов и методика проведения экспериментов***

Для проведенных экспериментов использовался сухой уголь марки «D» из Пермьяковского разреза Караканского угольного месторождения (Кузнецкий бассейн), подготовленные керны были 30мм в диаметре и 60 мм длиной. В указанных работах [1 – 4] использовали подобный плотный уголь с разбуhrиванием крупных кусков на керны диаметром 25 мм и длиной 50мм.

Дополнительные исследования полированных сечений с помощью электронного микроскопа показали, что испытуемый уголь имеет структуру, типичную для угля. Фильтрация газа в таком угле идет по существующим трещинам [5], и проницаемость уменьшается экспоненциально с увеличением сжатия.

Перед исследованием все керны были подвергнуты вакуумной сушке в течение 2 суток, далее замерялась их масса и каждый керн оборачивали в плотную пленку для предотвращения набора влаги из атмосферы.

Во время экспериментальной серии по измерению газопроницаемости осевое и радиальное давления, оказываемые на керн, изменялись поэтапно от 1 до 5 МПа, а затем уменьшались с шагом 1 МПа. Перепад давления газа составлял 0,1, 0,15, 0,2, 0,25 МПа на каждом этапе измерения.

Коэффициент проницаемости рассчитывали по известной формуле линейного расхода газа и стационарного характера фильтрации [6]:

$$k = \frac{2 \cdot 10^4 V \mu_a P_3}{t S} L \frac{1}{P_1^2 - P_3^2}$$

где  $k$  – коэффициент проницаемости, мД;  $P_1 = P_3 + \Delta P$  – давление на входе в испытательную камеру, бар ( $10^{-1}$  МПа);  $P_3$  – давление на выходе испытательной камеры, бар;  $V$  – объем газа при давлении  $P_3$ , прошедшего через образец, см<sup>3</sup>;  $\mu_a$  – вязкость азота, мПа (сПа);  $S$  – площадь поперечного сечения образцов, см<sup>2</sup>;  $L$  – длина образца, см;  $t$  – время фильтрации газа через пробу, с.

### Обсуждение результатов

Всего в экспериментах участвовало 4 керна угля. Первые три имели плотное строение без видимых нарушений сплошности и участков метаморфизации, керн №4 был сильнотрещиноватым и на треть состоял из пропластка с явно выраженной кубической отдельностью.

На рисунке 1 представлен результат исследования газопроницаемости керна №1 в зависимости от всестороннего сжатия и перепада давления газа.

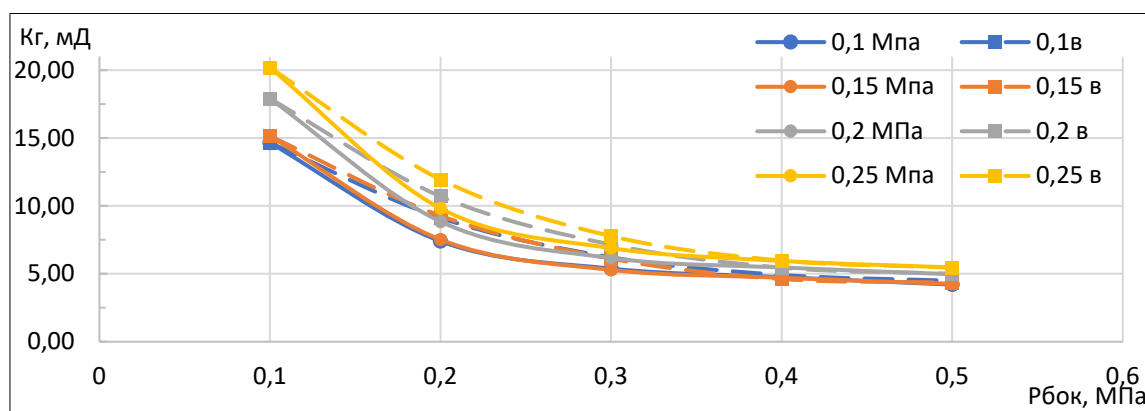


Рис. 1. Газопроницаемость керна №1. Сплошная линия – ветвь графика при снижении давления сжатия, пунктир – при повышении

Как видно из графиков керн имеет типичное для углей распределение значений газопроницаемости при изменении внешнего сжатия. Расхождение в крайних точках гистерезиса при сжатии в 5 МПа составляет не более 0,3 – 1,2%, что свидетельствует о стабильности результатов при изменении внешних условий. Если бы разница значений в данном эксперименте превышала 13%, то измерения проницаемости продолжали бы циклично до тех пор, пока в крайних точках ветвей разница значений не укладывалась до 10 – 12 %.

Дополнительно была проведена серия экспериментов с целью выявления оптимального времени выдержки керна при давлении 5 МПа перед проведением замеров газопроницаемости. На рисунке 2 представлены два графика экспериментов с керном №2: при выдержке в 1 час и при выдержке 24 часа.

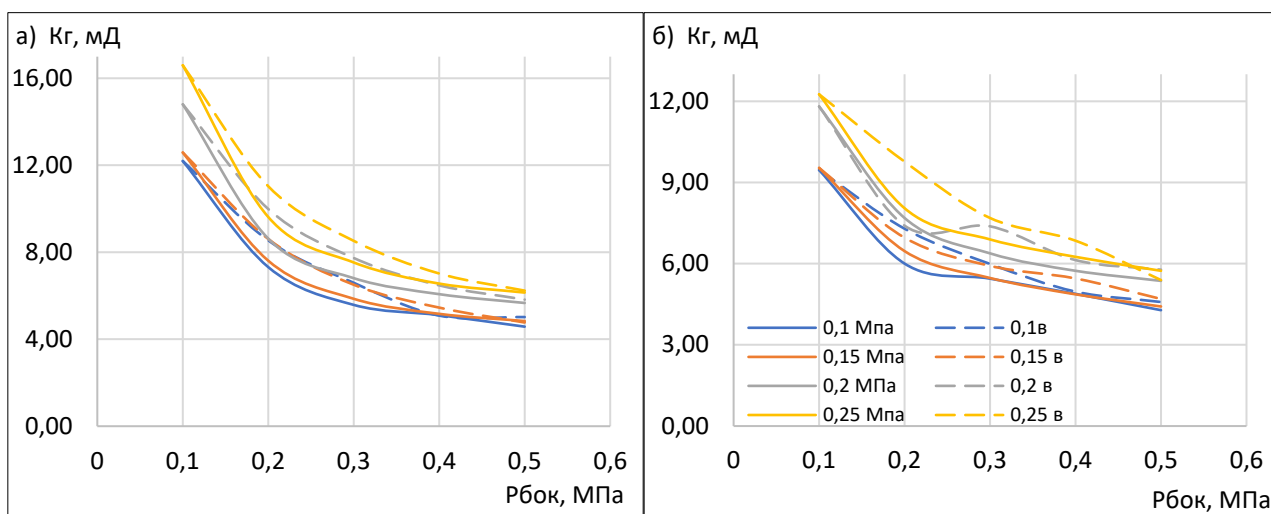


Рис. 2. Газопроницаемость керна №2 при различном времени выдержки на 5 МПа обжатия 1 час (а), 24 часа (б)

Наблюдается незначительная разница в значениях проницаемости при переходе от одной ветви к другой при разных режимах выдержки керна. Значения проницаемости при обжатии от 3 МПа до 5 МПа практически одинаковые в двух сериях. Разница между крайними точками двух ветвей при обжатии в 5 МПа составляет не более 3% для выдержки в час и 7% для выдержки в 24 часа. Таким образом длительным выдерживанием керна при определенной нагрузке можно пренебречь и начинать исследования через час после нагружения.

Исходя из опыта отечественных и иностранных ученых была предложена следующая схема обработки угольных кернов жидким азотом с контролем изменения фильтрационных свойств за счет проведения исследований газопроницаемости и ЯМР релаксометрии.

После того как керны были просушены и измерена их начальная газопроницаемость проводится этап ЯМР, где сначала керны исследовались в «сухом» состоянии, после чего их насыщали водой в течение трех суток и повторяли изме-

рения. На данном этапе получают представление о неизменном поровом пространстве и трещиноватости образцов.

Далее идет этап обработки жидким азотом. В специальный сосуд размещают угольные керны и заливали их порцией жидкого азота, так чтобы сохранялась толщина от поверхности кипения до кернов не менее 5 см (рисунок 3). При необходимости азот подливают в емкость. Один цикл обработки состоит из заморозки в течении 30 минут после прекращения фазы активного кипения и последующего оттаивания при комнатной температуре в течении 6 часов. Проводят 3 цикла обработки.



Рис. 3. Обработка партии угольных кернов порцией жидкого азота

Следующим этапом идет подготовка кернов вакуумной сушкой и повторное измерение газопроницаемости. Помимо общего изменения режима фильтрации газа отмечают изменения в ключевых точках на каждом значении всестороннего сжатия.

Заключительным этапом является повторные измерения кернов на ЯМР релаксометре с фиксацией приращения порового пространства, развитием трещиноватости керна, а также изменение в распределении типов флюида в керне после его насыщения водой.

### ***Выводы***

Проведены исследования газопроницаемости кернов плотного угля при контролируемых всестороннем сжатии и перепаде давления. Показано, что при циклическом проведении измерений с уменьшением давления сжатия и его последующем увеличении с равным шагом, выдержка кернов на максимальном значении может производиться в течении часа для достижения стабильных результатов измерений.

Предложена методика проведения комплексных исследований влияния обработки жидким азотом кернов угля на их внутреннюю структуру с целью увеличения фильтрационной способности.

Область применения полученных в работе результатов связана с повышением эффективности дегазации пластов и безопасности подземной добычи угля.

#### БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Hong Yan, Li-peng Tian, Rui-min Feng et al. Fracture evolution in coalbed methane reservoirs subjected to liquid nitrogen thermal shocking // Journal of Central South University. 2020 – Т. 27. – С.1846–1860.
2. Chengzheng Cai, Feng Gao, Gensheng Li, Zhongwei Huang, Peng Hou Evaluation of coal damage and cracking characteristics due to liquid nitrogen cooling on the basis of the energy evolution laws // Journal of Natural Gas Science and Engineering. – 2016. – Т. 29. – С. 30–36.
3. Lei Qin, Shiliang Wu, Jizhao Xu Pore Structure in Coal: Pore Evolution after Cryogenic Freezing with Cyclic Liquid Nitrogen Injection and Its Implication on Coalbed Methane Extraction // Energy Fuels. – 2016. – Т. 30. – № 7. – С. 6009–6020.
4. Zhongwei Huang, Shikun Zhang, Ruiyue Yang, Xiaoguang Wu, Ran Li, Hongyuan Zhang, Pengpeng Hung // Fuel. – 2020. – Т. 266. – С. 117040.
5. Shilova T, Rybalkin L Estimation of propped fracture compressibility in coal seam // International Multidisciplinary Scientific GeoConference Surveying Geology and Mining Ecology Management, SGEM 19. – 2019. – Т. 1.3. –С 285–291.
6. ГОСТ 26450.2–85. Методы определения коэффициента абсолютной газопроницаемости при стационарной и нестационарной фильтрации. — М.: Изд-во стандартов, 1985. — 17 с.

© Л. А. Рыбалкин, И. М. Сердюк, 2022