

煤层瓦斯微纳米串联多尺度动态扩散渗透率 实验-模型-机理及意义

李志强^{1,2,3,4}, 陈金生^{1,2,4}, 李林^{1,2}, 彭建松^{1,2}

(1. 河南理工大学 煤矿灾害预防与抢险救灾教育部工程研究中心, 河南 焦作 454000; 2. 河南理工大学 煤矿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 中原经济区煤层/页岩气河南省协同创新中心, 河南 焦作 454000; 4. 河南理工大学 河南省瓦斯地质与瓦斯治理重点实验室-省部共建国家重点实验室培育基地, 河南 焦作 454000)

摘要:多尺度科学问题作为当前世界科学前沿的热点问题之一,已拓展到自然科学与工程技术的众多领域,作为多尺度科学的一个分支,煤岩渗流力学亦存在自身的多尺度科学问题。煤体中存在从毫米到微纳米的多尺度孔裂隙,孔径量级可达百万倍之巨,这使得煤体渗透率也呈现出百万量级的空间与时间多尺度特征。因而,煤体多尺度渗透率研究既是煤岩渗流力学的学科内涵问题,亦是瓦斯抽采亟需的工程外延问题。采用柱状原煤煤心开展了无应力和三轴应力下CH₄/He的非稳态扩散-渗流实验和三轴应力下稳态渗流实验。实验结果表明:柱状煤心的表观扩散系数随时间延长而动态衰减,并呈现出2类时间多尺度特征,一种为连续光滑的动态衰减特征,一种为两阶段阶跃式动态衰减特征。导出了动态表观扩散数学模型,该模型能较准确描述柱状煤心中气体(CH₄/He)非稳态流动全过程。提出了多管串联多尺度孔隙结构物理模型和数学模型,采用压汞孔径数据验证了串联多尺度孔径模型,并据此给出了串联多尺度渗透率的数学证明。以努森数(Kn)为标准,划分了连续流-滑移流-过渡流-自由分子流等流域,以串联多尺度孔径为关联纽带,建立了考虑有效应力和流态的多尺度渗透率模型。研究结果揭示了煤层瓦斯串联多尺度渗流机理,即煤体微纳米孔径及其串联级数是影响多尺度渗透率的决定性因素,可测孔径范围内多尺度效应影响程度可达数万量级。流动初期,气体首先从外层大孔裂隙中流出,流动后期,逐渐从微小孔隙中流出,直至深达纳米级孔隙。随着时间延长,串联孔隙级数逐渐增长,等效孔径逐渐减小,其量级接近于最小孔径,进而使得等效渗透率随时间延长而急速衰减,渗透率的时间多尺度动态衰减特征是空间多尺度的外在反映。气体流动后期,努森数增大,滑移-过渡流态效应超过有效应力效应,并占据主导作用。瓦斯串联多尺度渗透率的实验发现和模型构建,解决了当前多尺度渗流缺乏实验的问题,弥补了单管理论的缺陷,表观意义上实现了扩散与渗流的统一,实现了多尺度渗透率的微观区分与宏观联合。

关键词:多尺度;动态;渗透率;扩散;微纳米孔

中图分类号:TD713.2;P618.11

文献标志码:A

文章编号:0253-9993(2023)04-1551-16

收稿日期:2022-01-29 修回日期:2022-10-01 责任编辑:王晓珍 DOI:10.13225/j.cnki.jccs.2022.0150

基金项目:国家自然科学基金资助项目(52174173);河南理工大学博士基金资助项目(B2018b258,B2021b27)

作者简介:李志强(1975—),男,山西阳泉人,副教授,博士。E-mail: lizhiqiang@hpu.edu.cn

通讯作者:陈金生(1982—),男,河南漯河人,讲师,博士。E-mail: wfcjs@hpu.edu.cn

引用格式:李志强,陈金生,李林,等.煤层瓦斯微纳米串联多尺度动态扩散渗透率实验-模型-机理及意义[J].煤炭学报,2023,48(4):1551-1566.

LI Zhiqiang, CHEN Jinsheng, LI Lin, et al. Experiment, modelling, mechanism and significance of multiscale and dynamic diffusion-permeability of gas through micro-nano series pores in coal[J]. Journal of China Coal Society, 2023, 48(4): 1551-1566.



移动阅读

Experiment, modelling, mechanism and significance of multiscale and dynamic diffusion-permeability of gas through micro-nano series pores in coal

LI Zhiqiang^{1,2,3,4}, CHEN Jinsheng^{1,2,4}, LI Lin^{1,2}, PENG Jiansong^{1,2}

(1. MOE Engineering Center of Mine Disaster Prevention and Rescue, Henan Polytechnic University, Jiaozuo 454000, China; 2. Collaborative Innovation Center of Coal Work Safety and Clean High Efficiency Utilization, Henan Polytechnic University, Jiaozuo 454000, China; 3. Collaborative Innovation Center of Coalbed Methane and Shale Gas for Central Plains Economic Region (Henan Province), Henan Polytechnic University, Jiaozuo 454000, China; 4. Henan Provincial Key Lab of Gas Geology and Control-Cultivation Base of Provincial and Ministry Joint State Key, Henan Polytechnic University, Jiaozuo 454000, China)

Abstract: As one of the hot issues at the frontiers of science in the world, the multi-scale scientific question has occurred in the fields of natural science and engineering. The seepage in coal-rock, a branch of the multi-scale science, shows its multi-scale scientific question. Coal is a porous medium that contains multi-scale pores with the aperture from millimeter to nanometer. The pore size differential can reach one million orders of magnitude, which causes the multi-scale characteristics in space and time for coal permeability. Therefore, the research on the multi-scale permeability of coal is a critical scientific issue of the coal gas flow as well as an engineering extension of methane drainage. The unsteady diffusion-seepage experiment is conducted for CH₄/He with and without stress using a cylindrical coal sample, accompanied by steady state seepage experiment. The experimental results show that the apparent diffusion coefficient of a cylindrical coal sample attenuates with time. This apparent diffusion coefficient shows two different multi-scale characteristics in time, the smooth and dynamic attenuation and the dynamic attenuation in a two-stage step. A dynamic model for the apparent diffusion coefficient is proposed, and it can accurately describe the complete unsteady flow process of gas in a cylindrical coal sample. The physical and mathematical models of the multi-scale pores in series are put forward. Then, the multi-scale structure of pore in series is validated by the mercury injection experiment. After that, the multi-scale permeability model is mathematically proved. Based on the Knudsen number (Kn), the continuous flow, slip flow, transition flow and free molecular flow are identified and introduced with the multi-scale pore size to build a multi-scale permeability model that reflects the effect of the effective stress and gas flow regime. The mechanism of the multi-scale seepage is revealed in this study. The size and the number of pores in series connection are the critical factors to influence the multi-scale permeability. The multi-scale effect can reach tens of thousands orders of magnitude within measurable range. The gas outflow firstly starts from the outside fractures, and then the inside small pores and finally the nano pores. With time goes on, the gradual increase in the number of pores in series connection leads to the gradual decrease in the equivalent pore size, which causes the equivalent pore aperture to get close to the minimum pore aperture. Therefore, the equivalent permeability quickly decreases with time, which is a reflection of the multi-scale space in coal. During the later stage of gas flow, the effect of slip and transition flow regime is larger than that of effective stress with Kn increasing and dominates the permeability. The new experimental observation and modelling of the multi-scale permeability provides an experimental solution for the research of the multi-scale seepage and overcomes the shortcoming of single tube theory. The diffusion and seepage are apparently unified, and the micro-level distinguishment and macro-level union of the multi-scale permeability are realized.

Key words: multiscale; dynamic; permeability; diffusion; micro-nano pore

多尺度现象在自然界普遍存在, 涉及的空间与时间尺度可达 $10^{43} \sim 10^{63}$ 量级^[1-2]。因多尺度科学问题的广泛性与前沿性, 引起了国际科学界的高度重视, 目前已拓展到数学、物理、化学、天文、地质、生物、力学等基础学科及其衍生的众多学科分支领域^[3], 并逐渐汇合为一门跨领域的科学——多尺度科学。第 23 届世界力学家大会^[4]报道了能源、安全、环境等领域

多尺度科学问题遍布众多学科分支, 从更高的维度抽象来看, 柴立和^[3]将多尺度科学研究内容总结为 3 个主要方面: 多尺度现象的描述、多尺度机理的解释和多尺度关联的表达, 简言之, 尺度的区分、关联与综合是多尺度科学研究的基本哲学命题。对称性和层次性是多尺度科学的 2 个基本属性, 诺贝尔物理学奖得主、凝聚态物理学家 ANDERSON P W^[5]将各尺度下结构呈现的新物理规律称为对称性破缺。赵阳升院

士^[6]将规律的外推性作为尺度对称性的判据。

作为多尺度科学的一个分支领域,煤岩渗流力学亦有自身的多尺度科学问题。煤是一种富含多重孔裂隙的多孔介质,其中存在从毫米到微纳米的多尺度孔裂隙,孔径量级可达百万倍。受孔裂隙的多尺度特征影响,煤体渗透率在空间与时间上也展现出巨大的多尺度性,这对低渗煤层的瓦斯抽采将产生极大影响,并已在工程中表现出抽采后期瓦斯流量和浓度迅速衰竭的现象。因而,研究煤体渗透性的多尺度特征对于探明瓦斯抽采衰竭机理,进而寻求有效的瓦斯增透注采措施具有重要意义。

作为多尺度孔裂隙的雏形,早期的研究将煤体视为双重孔裂隙介质^[7]。煤层大孔裂隙中的瓦斯流动被认为是压力驱动下的渗流,服从达西定律,实验常采用标准柱状煤心在三轴应力下测定其稳态渗透率,并称之为孔裂隙渗透率。基质微孔隙中的瓦斯流动被认为是浓度驱动下的扩散^[8],服从菲克定律,实验常采用解吸法测定无应力下的松散颗粒煤的扩散系数。由于假定颗粒煤为基质,故也有研究者将扩散系数换算为渗透率,并称之为基质渗透率,或称颗粒渗透率。基于孔隙-裂隙假设,研究者们建立了裂隙+基质渗透率模型来描述煤中渗透性。此类模型以 SEIDLE J P 的火柴棍模型最为著名^[9],LIU Jishan 等^[10]在火柴棍模型中引入岩桥概念,以分析吸附膨胀对渗透率的影响。进一步细分,研究者们将基质孔隙分为宏观孔隙与微孔隙,建立了著名的双孔隙扩散模型,此类模型以 RUCKENSTEIN E^[11]、CLAKSON C R^[12]、SHI J Q^[13]和 PAN Zhejun^[8]等工作最具代表性。以上 2 类模型并称为双孔双渗模型,被广泛用于煤层气渗透能力及产能分析。

随着多尺度科学的兴起,人们逐渐认识到煤是一种多尺度孔隙介质,双孔介质理论在描述煤体多尺度孔渗特性时面临诸多难点。首要难点是裂隙和基质的渗透率在实验上难以区分测定,这一难点的根源在于基质的尺度无法界定。煤基质是一个相对概念,由于无法确定多大尺寸的煤体可称为基质,使得难以用稳态法分别测定裂隙渗透率和基质渗透率。同样的,由于无法区分基质中的宏观与微孔隙尺度界限,导致无法测得大孔与微孔扩散系数。进一步地,由于基质尺寸不确定,所谓基质中的扩散也难以与裂隙中的渗流进行区分。第 2 个难点是,瓦斯渗流与扩散在理论上难以联合表达。瓦斯在煤中的流动是一个解吸-扩散-渗流的连续流动过程,渗流与扩散 2 类流态是一个此中有彼且不断转化的过程。然而,目前的渗透率与扩散系数测定的理论原理、实验方法、量纲完全不

同,由于 2 类实验参数的分离,理论模型中采用 2 类独立实验参数进行联合表达渗流扩散时,其中的渗透率值或有重叠或有缺失,无法统一于一个连续流动过程。

煤层瓦斯多尺度的研究始于煤体孔裂隙的图像认识,影像学方法是探索煤体多尺度孔隙的最初方法。显微 CT 可观察到煤中 1 μm 以上的孔裂隙形貌^[14],扫描电镜 (SEM 和 FE-SEM) 可观察到几百纳米至数十微米的孔隙形态^[15-16],原子力显微镜 (AFM) 可观察到 30~350 nm 的孔隙形貌^[17]。低温液氮和压汞法可测得 2 nm~350 μm 的孔径分布,加上肉眼可见的毫米级微裂隙,孔径范围可达百万量级。影像学方法作为一种分析渗透性的辅助手段,能直观观察到孔裂隙形貌,定性分析煤的渗透性,但由于孔隙分布的随机性,难以用数学方法定量描述煤体多尺度渗透率。煤中瓦斯多尺度流动现象首先在颗粒煤的扩散流动中被观察到^[18-20],李志强等^[21]将其推广到柱状煤心瓦斯的动态扩散-渗流中,但关于多尺度渗流流态的划分、关联及综合模型尚待提出。

微纳米多尺度流动理论发端于微机电领域。1946 年, BROWN^[22]在哈根-泊肃叶方程中引入 Maxwell 气体反射因子,建立了微管中气体滑移流动方程,这一工作与 1941 年 KLINKENBERG^[23]的工作类似,二者的理论中均是考虑了孔壁上气体的反射扩散,即著名的 Klinkenberg 滑移效应。1999—2003 年, BE-SKOK^[24]、ROY Subrata^[25]等将微纳米管中的气体流态分为连续流、滑移流、过渡流和自由分子流,建立了微管中气体流动的统一模型。2007 年, FLORENCE^[26]证明统一模型简化后可退化为经典的 Klinkenberg 渗透率方程。

借鉴微机电领域的理论成果,页岩气领域形成了 2 类多尺度渗透率理论模型。一类是以 JAVADPOUR^[27-28]为代表的流态叠加模型,此类模型将考虑滑移效应的达西流与努森扩散流相加,建立了体现多流态的表观渗透率方程。基于叠加原理,研究者们^[29-32]考虑表面扩散、吸附层厚度及非达西效应,建立了多种综合模型。然而,滑移效应本身体现的即是孔壁边界上的气体扩散,因而,此类模型存在扩散效应重复计算的问题。另一类是以 CIVAN F 为代表的连续多流态渗透率模型。CIVAN F^[33-34]将努森扩散层视为边界条件,提出了变努森数 (Kn) 的扩散-渗透率统一模型。目前,页岩气领域的微纳米多尺度渗透率模型大多以这 2 类模型为基础发展而来,主要研究单管在不同孔径、气压下的各类流态所占比例和主导作用,大多采用分子模拟数据进行验证,缺乏多管联合理论模型和宏观渗流实验检验是此类研究的主要缺陷。

(2) 三轴应力下扩散-渗流实验。打开阀门 V1、V2、V4~V6, 关闭其他阀门, 略加轴围压使之高于设定气压 2.0 MPa, 打开气瓶对煤样充气, 平衡 4 d 后达到设定气压, 关闭阀门 V5、V6, 设定轴压 12.0 MPa, 围压 6.0 MPa。随后, 打开阀门 V7 放出管内高压气体, 5 s 后接通流量计 F1 和气体自动计量仪, 计算机每隔 2~10 min 自动采集累积气量共 180 min。从高到低, 依次设定气压 3.0、2.5、2.0、1.5、1.0、0.5 MPa 完成 He 气扩散-渗流实验。之后, 抽真空, 用同样方法完成 CH₄ 扩散-渗流实验。

(3) 无应力下扩散-渗流实验。打开阀门 V1、V2、V4、V5、V9, 关闭其他阀门, 打开气瓶, 对无应力煤样充气, 平衡 4 d 后达设定气压, 关闭阀门 V5、V9, 打开阀门 V8 放出充气室及管内高压气体, 5 s 后接通气体自动计量仪, 测量方法同 (2)。从高到低, 依次设定气压 3.0、2.5、2.0、1.5、1.0、0.5 MPa 完成 He/CH₄ 扩散-渗流实验, 方法同上。

由于使用的是同一个煤心, 因而实验顺序按 (1)、(2)、(3) 进行, (1)、(2) 实验完成后, 取出该煤心, 胶封其下端, 侧面仍保持胶套包裹状态, 进行实验 (3)。

1.2.3 数据处理

(2)、(3) 实验完成后, 得到表观扩散比率与时间曲线 ($Q_t/Q_\infty \sim t$), 数据处理及 Q_∞ 计算方法同文献 [18, 21]。

$$Q_\infty = \left(\frac{abp}{1+bp} - \frac{abp_a}{1+bp_a} \right) (1 - A_{ad}) + \frac{10 \times 273 \times (p - p_a) \phi}{\rho (273 + \theta_w)} \quad (1)$$

其中, Q_t 为累积扩散量, Q_∞ 为吸附平衡时的含气量, cm³/g; p 、 p_a 为相应的初始平衡气压和大气压, MPa; 其他参数见表 1。因 He 为非吸附性气体, 故在计算 He 的 Q_∞ 时, 仅取式 (1) 中等号右边的第 2 项, 即将 He 视为完全的游离气体。

1.3 动态表观扩散系数的实验发现

瓦斯在煤中的流动是一个解吸—扩散—渗流的连续流动过程, 其中, 解吸可在瞬间完成, 而 (2)、(3) 类实验时间为数小时, 因而解吸时间可忽略, 瓦斯实验可视为扩散-渗流过程, He 为非吸附性气体, 其流动过程仅包含扩散-渗流过程。又因 CH₄/He 流动过程中扩散与渗流同时存在, 且无法区分, 因而仅从数学意义和实验表象意义上定义方程, 故称为表观扩散方程。(2)、(3) 类实验中, 在有侧边约束下的气体流动为一维非稳态流动, 可用一维非稳态表观扩散方程进行描述, 相应的传输系数称为表观扩散系数, 如式 (2) 所示。式 (2) 为数学物理方程中的经典形式, 故本文称之为经典表观扩散模型^[35]。

$$\begin{cases} \frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \\ \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{x=0} = 0 \quad (x=0, t \geq 0) \\ C|_{x=L} = C_a \quad (x=L, t \geq 0) \\ C|_{t=0} = C_0 \quad (t=0, 0 \leq x \leq L) \end{cases} \quad (2)$$

式中, C 为柱状煤心中气体质量浓度, 为时间 t 与距离 x 的函数, 即 $C=C(x, t)$, g/cm³; D 为表观扩散系数, cm²/s; L 为柱状煤心的高度, $L=10$ cm; C_a 为出口端气体质量浓度, g/cm³, 为边界条件; C_0 为气体初始质量浓度, g/cm³, 为初始条件。

解式 (2) 可得到

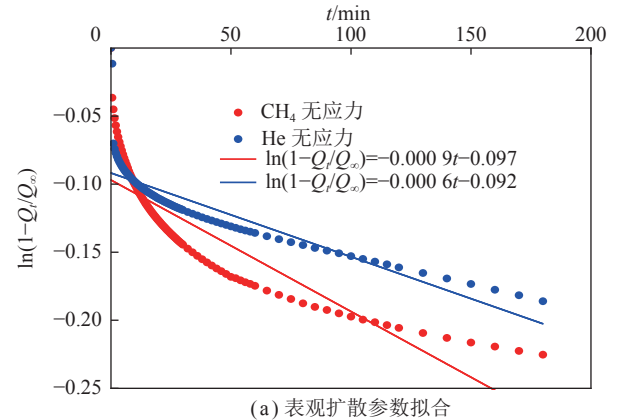
$$\frac{Q_t}{Q_\infty} = 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{1}{(2m+1)^2} \exp \left(-\frac{(2m+1)^2 \pi^2 D}{4L^2} t \right) \quad (3)$$

式中, m 为自然数, $m=0, 1, 2, \dots, \infty$ 。

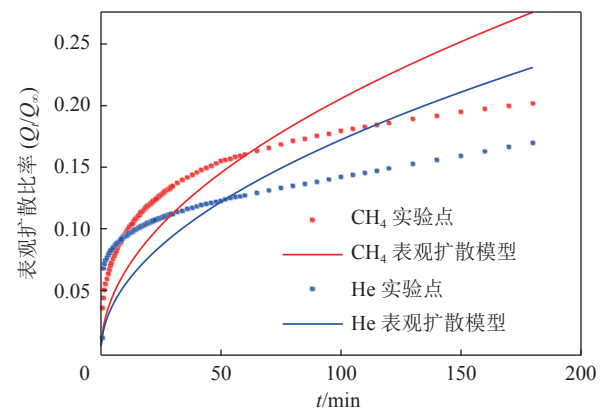
取式 (3) 第 1 项, 等号两边取自然对数得

$$\ln \left(1 - \frac{Q_t}{Q_\infty} \right) = -\frac{\pi^2 D}{4L^2} t + \ln \left(\frac{8}{\pi^2} \right) \quad (4)$$

分别采用式 (4) 和式 (3) 处理数据, 限于篇幅, 这里仅取实验中 1.5 MPa 气压的典型实验数据进行分析, 如图 2、3 所示。其中图 2 为无应力下光滑形动态表观



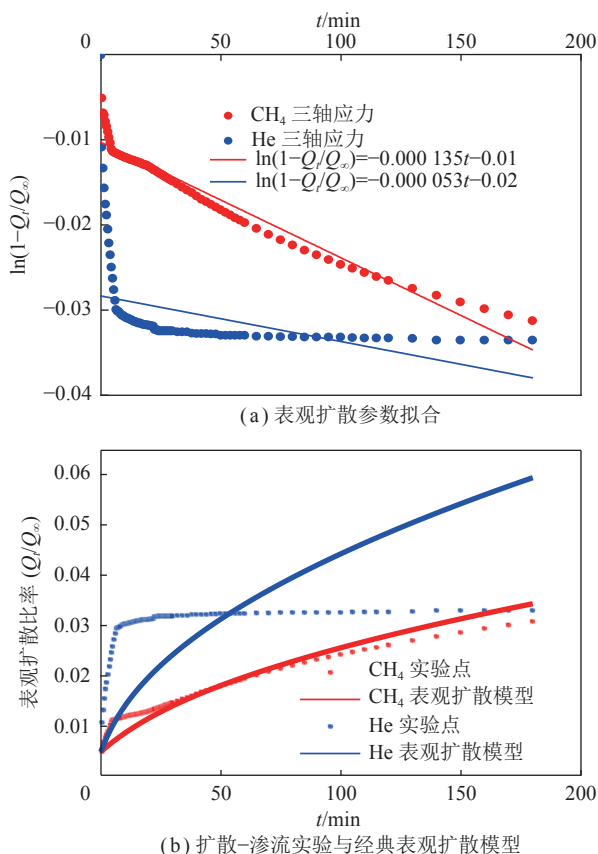
(a) 表观扩散参数拟合



(b) 扩散-渗流实验与经典表观扩散模型

图 2 无应力下 CH₄/He 光滑形动态表观扩散

Fig.2 Dynamic apparent diffusion in smooth shape for CH₄/He without stress loading

图3 三轴应力下 CH_4/He 两阶段形动态表观扩散Fig.3 Dynamic apparent diffusion in two-stage shape for CH_4/He under triaxial stress

观扩散,图3为三轴应力下两阶段形动态表观扩散。

图2(a)、3(a)中按式(4)处理数据,其中点线为实验点,直线为相应的式(4)拟合趋势线。图2(a)、3(a)显示,无应力和三轴应力下, CH_4/He 实验点的 $\ln(1-Q_t/Q_\infty) \sim t$ 曲线明显为随时间衰减的曲线,其切线斜率随着时间增长而动态衰减。式(4)的经典表观扩散模型假定了表观扩散系数 D 为常数,使得经典模型计算的趋势线(图2(a)、3(a)中的直线)与实验曲线偏离较大。比较图2(a)、3(a)中实验点与式(4)可以发现, CH_4/He 的表观扩散系数并非为常数,而是一个随时间延长而动态衰减的变数,这是2者的共同特征。有区别的是,无应力下 CH_4/He 的表观扩散系数为光滑形的动态衰减(图2(a)),而三轴应力下的表观扩散系数为明显的两阶段阶跃形动态衰减(图3(a)),这是一种新的现象。

图2(b)、3(b)中按式(3)处理数据,其中点线为实验点,实线为相应的式(3)模型拟合线。图2(b)、3(b)显示,某时刻前, CH_4/He 的 (Q_t/Q_∞) 理论值小于实验值,此时刻后,理论值大于实验值,经典表观扩散模型不能准确描述 CH_4/He 的流动全过程。图2(b)中无应

力下 CH_4/He 的实验曲线呈光滑形态,图3(b)中三轴应力下 CH_4/He 的实验曲线以5 min时间为界呈明显的两阶段阶跃形态,非吸附性气体 He 的两阶段形态更为明显,这种新的形态不同于无应力下的光滑形态,三轴应力下 Q_t/Q_∞ 实验值比无应力下降低了1个数量级。

2 动态表观扩散-渗流模型

2.1 动态表观扩散-渗流数学模型

为准确描述 CH_4/He 流动全过程,首先引入动态表观扩散系数的概念以反映此系数的衰减特征,动态表观扩散系数依然包含了扩散-渗流2类流态。根据煤体孔隙结构的分形幂律特征,假定动态表观扩散系数 $D(t)$ 与时间也具有幂律关系,即

$$\frac{\ln(D(t)/D_0)}{\ln t} = -\alpha \quad (5)$$

式中, $D(t)$ 为动态表观扩散系数, cm^2/s ; D_0 为初始表观扩散系数 cm^2/s ; α 为表观扩散系数的衰减系数。

对式(5)变换,可得到

$$D(t) = D_0 t^{-\alpha} \quad (6)$$

以式(6)的 $D(t)$ 代换式(2)中 D ,可得到动态表观扩散-渗流模型,即

$$\begin{cases} \frac{\partial C}{\partial t} = D(t) \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} = D_0 t^{-\alpha} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \\ \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{x=0} = 0 \quad (x=0, t \geq 0) \\ C|_{x=L} = C_a \quad (x=L, t \geq 0) \\ C|_{t=0} = C_0 \quad (t=0, 0 \leq x \leq L) \end{cases} \quad (7)$$

采用分离变量法求解式(7),可得 t 时刻累积表观扩散量与极限表观扩散量的比率,即

$$\frac{Q_t}{Q_\infty} = 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{1}{(2m+1)^2} \exp\left(-\frac{(2m+1)^2 \pi^2 D_0 t^{1-\alpha}}{4L^2(1-\alpha)}\right) \quad (8)$$

图2(b)与图3(b)中 CH_4/He 的实验曲线形态有较大差别,考虑模型的适应性,提出负指数形动态表观扩散系数,如式(9)所示。式(6)、(9)中的 α 、 β 均为衰减系数,虽形式不同,但描述的物理机制是相同的,均反映了煤体内部微纳米孔隙的结构和关联特征。

$$\begin{cases} \beta = -\frac{dD(t)}{D(t)dt} \\ \frac{dD(t)}{dt} + \beta D(t) = 0 \\ D(t) = D_0 \exp(-\beta t) \end{cases} \quad (9)$$

式中, β 为动态表观扩散系数的衰减系数, s^{-1} , 物理意义为某时刻动态表观扩散系数对时间的微分与当时

的表观扩散系数之比为—常数。

第1式的形式与体积压缩系数或热膨胀系数类似,并可转化为第2、3式,这使得式(9)具有严格的导出关系和明确的物理意义。

将式(9)中的第3式 $D(t)$ 代换式(2)中 D ,采用同样的导出方法,得到

$$\frac{Q_t}{Q_\infty} = 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{1}{(2m+1)^2} \times \exp\left(-\frac{(2m+1)^2 \pi^2 D_0 (1 - e^{-\beta t})}{4L^2 \beta}\right) \quad (10)$$

比较式(3)与式(8)、(10)可以看出,表观扩散系数 D 与动态表观扩散系数 $D(t)$ 有如下关系:

$$\begin{cases} Dt = \int_0^t D(t) dt = \int_0^t D_0 \exp(-\beta t) dt = \frac{D_0}{\beta} (1 - \exp(-\beta t)) \\ Dt = \int_0^t D(t) dt = \int_0^t D_0 t^{-\alpha} dt = \frac{D_0 t^{1-\alpha}}{1-\alpha} \end{cases} \quad (11)$$

2.2 动态表观扩散-渗流模型检验

计算表明,式(8)能精确描述无应力下 CH_4/He 的流动全过程,如图4所示。式(10)能较准确描述三轴应力下 CH_4/He 的流动全过程,如图5所示。

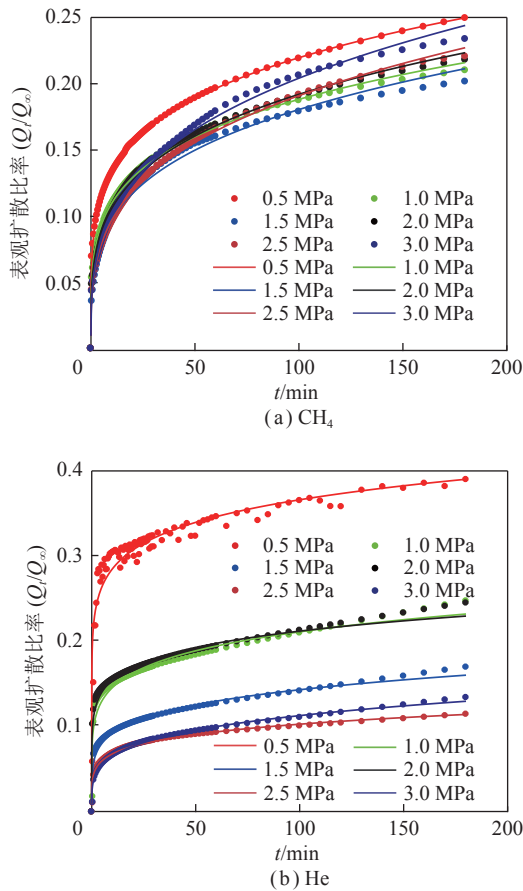


图4 动态表观扩散-渗流模型与 CH_4/He 实验对比(无应力)

Fig.4 Comparison between experiments and model of dynamic apparent diffusion-seepage for CH_4/He without stress loading

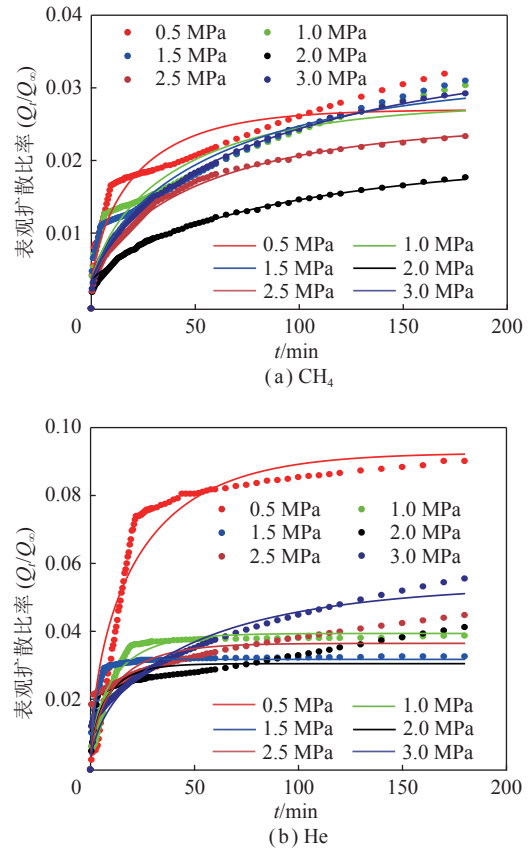


图5 动态表观扩散-渗流模型与 CH_4/He 实验对比(三轴应力)

Fig.5 Comparison between experiments and dynamic apparent diffusion-seepage model for CH_4/He with stress loading

图4和图5中,点线为各压力下的实验点,实线为相应压力下的模型拟合曲线。无应力下, CH_4 (图4(a))、 He (图4(b))实验曲线均为光滑形态。三轴应力下, CH_4 在的低气压下(0.5~1.5 MPa)呈现两阶段阶跃形态,在高气压(2.0~3.0 MPa)下依然为光滑形态,而 He 均呈现两阶段阶跃形态。这种两阶段的阶跃形态与一些矿井的瓦斯抽采工程极为类似,一些低压低渗煤层数天后瓦斯浓度和流量衰减至极低,导致后期抽采极为困难。动态表观扩散系数的形式并不局限于式(6)与式(9)两种,即此类形式并不唯一,在同等精度下,这2种形式却是最为简单的,符合数学美的要求,无论形式如何,反映的物理机理却是一样的。

3 多尺度动态表观扩散渗流机理

3.1 串联多尺度孔隙结构物理模型

气体从煤体中流出时,可视为扩散-渗流的连续过程,动态表观扩散系数 $D(t)$ 则从时间表象上反映了这2类渗透性的连续动态衰减特征,而这种特征本质上又是由煤体孔裂隙的多尺度空间特征决定的。因

而,当动态表观扩散系数 $D(t)$ 随时间动态衰减时,表明气体穿越大小不同的孔隙时,流动路径上的孔径在不断变小。已有研究表明^[14-17],煤体中存在微纳米孔隙,且这些孔隙具有多尺度自相似特征。依据前述表观扩散系数动态衰减的实验结果,再根据前人关于孔隙的分形自相似结构^[16,21],构造出煤体孔隙的多尺度结构物理模型,如图 6 所示。

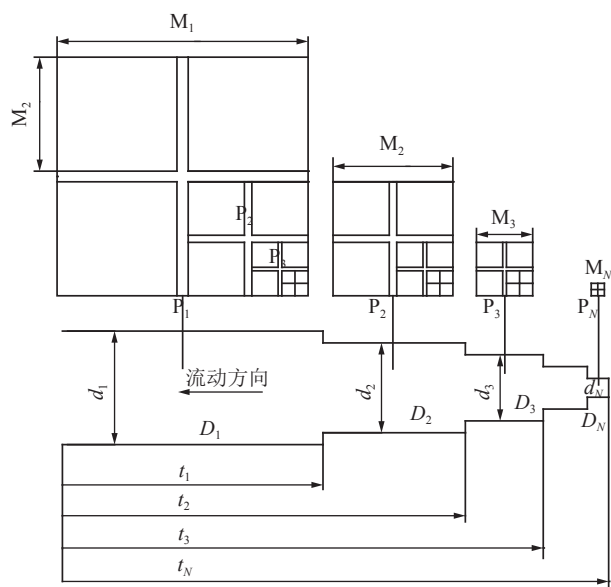


图 6 多尺度孔裂隙动态扩散-渗流物理模型示意

Fig.6 Diagram of multiscale aperture model for dynamic diffusion-seepage

图 6 中, M_1 为任意大小的煤块体, M_2 为其内的 2 级煤基质, 从 M_3 依次类推直至 N 级煤基质 M_N 。 P_1 为煤基质 M_2 间的 1 级孔裂隙, P_2 为煤基质 M_3 间的 2 级孔隙, 从 P_3 依次类推直至 N 级孔隙 P_N , 每级煤基质和其内的孔隙具有自相似结构。气体流经各级孔隙时的路径是弯曲连续的, 为便于分析, 将 P_1 、 P_2 、 P_3 、 \dots 、 P_N 各级孔隙抽象为串联多尺度连续孔隙结构。相应的, d_1 、 d_2 、 d_3 、 \dots 、 d_N 为每级孔隙对应的孔径。 D_1 、 D_2 、 D_3 、 \dots 、 D_N 为各级孔隙对应的表观扩散系数。气体流动方向如箭头所示, t_1 为气体从 P_1 孔裂隙流动到出口的时间, 依次类推 t_2 、 t_3 、 \dots 、 t_N 为气体从 P_2 、 P_3 及各级孔隙流动到出口的累计总时间。这里 N 为不为 0 的自然数, 代表各项参量序号, 下同。依据图 6 的串联多尺度孔隙结构模型, 可进行动态表观扩散-渗流机理分析。

3.2 串联多尺度孔隙中气体表观流动机理

本文的动态表观扩散系数 $D(t)$ 是一个表观意义上的传输系数, 其中包含渗流与扩散 2 部分, 宏观上区分 2 者是极为困难的, 这里仅从表观意义上阐释其流动机理。如图 6 所示, CH_4/He 从多级串联孔裂隙流

出时, 展现了 3 类多尺度表观流动机理。

表观流动机理 (I): 仅就单级孔隙的表观扩散系数而言, 从煤体表面开始由表向里, 孔裂隙直径由大变小 ($d_1 > d_2 > d_3 > \dots > d_N$), 渗透能力则由大变小, 使得表观扩散系数也由大变小 ($D_1 > D_2 > D_3 > \dots > D_N$)。流动初期的 t_1 时间内, 气体首先从外部最大的 1 级孔裂隙 P_1 流出, 因孔径 d_1 大, 阻力小, 故表观扩散系数 D_1 最大, 为快速流动过程。随后, 在较长的 t_2 时间内, 气体从内部较小的 2 级孔隙 P_2 流出, 因孔径 d_2 变小, 阻力变大, 故表观扩散系数 D_2 变小。流动后期, 依次类推, 直至最终的 t_N 时间, 孔径 d_N 中的表观扩散系数 D_N 达到最小。随时间延长, 气体流经的各级孔隙的孔径逐级递减, 导致表观扩散系数逐级递减, 直至深达煤体纳米级孔隙。

表观流动机理 (II): 就多级串联孔隙的表观扩散系数而言, 实验中所测的表观扩散系数实际为各级孔隙串联后的等效表观扩散系数。随时间延长, 气体流动路径加长, 串联的孔隙增多, 串联的孔径逐渐减小, 导致串联后的等效孔径和等效表观扩散系数逐渐减小。总之, 动态表观扩散系数的时间衰减特征是煤体多尺度孔隙空间结构特征的表观反映。以上 (I)、(II) 类表观流动机理为 CH_4/He 在无应力及三轴应力下的共同特征。

表观流动机理 (III): 就具体性而言, 气体性质和应力条件对表观流动机理又有不同的影响。 CH_4 为吸附性气体, 初始吸附时的内膨胀效应使得内部微纳米孔径减小, 故 CH_4 流动更为缓慢 (图 4(a)、5(a)), 而 He 为非吸附性气体, 无吸附内膨胀效应, 故 He 气流动迅速, 衰减快 (图 4(b)、5(b))。无应力时 (图 4), 煤体各级孔裂隙通道较为开阔, 孔径过渡平缓, 因而, 气体流动曲线较为光滑。三轴应力下 CH_4 低气压时 (0.5~1.5 MPa), 有效应力稍大, 各级孔隙易被压缩, 尤以外层大孔裂隙更易被压缩, 故在气体流出初期, 低气压煤体更快进入低渗状态, 使气体流动呈现出特殊的两阶段形态, 反之, 高压能抵抗外部应力, 维持较宽的孔隙通道, 使气体平滑释放, 故呈光滑形曲线。 He 全部为游离气体, 气体流出迅速, 因而几乎全部气压为两阶段阶段跃形态。

4 煤体微纳米串联多尺度渗透率模型

4.1 串联多尺度表观渗透率的数学证明

BARRER^[36] 指出, Fick 扩散定律中, 气体扩散系数与渗透率在数值上是等价的, 2 者只是量纲不同, 且这种等价定义更加实用。 CUI X 等^[37] 提出了表观扩散系数 (也称表观传输系数) 的概念, 得到了与渗透率

的换算关系,随后该方法被广泛用于煤/页岩渗透率测定^[34,37-38]。式(7)的表观扩散方程包含了渗流-扩散2种流动过程,其中的动态表观扩散系数 $D(t)$ 是渗透率和扩散系数的综合表达。根据上述原理,在数学意义和实验表象意义上,表观扩散系数可与表观渗透率等效转换,即

$$k = \frac{D\mu}{p_a} \Rightarrow k(t) = \frac{D(t)\mu}{p_a} \quad (12)$$

式中, p_a 为参考压力,取大气压; k 为表观渗透率; $k(t)$ 为动态表观渗透率; μ 为气体动力黏性系数。

按照达西定律和 Hagen-Poiseuille 方程,单根直孔隙中单位时间内的质量流量为

$$J = -\rho_g S \frac{k}{\mu} \frac{dp}{dx} = -\rho_g \frac{\pi d^4}{128\mu} \frac{dp}{dx} \quad (13)$$

式中, J 为质量流量; ρ_g 为气体密度; S 为孔隙截面积; d 为孔径。

从式(13)进一步得到

$$\begin{cases} J = -\frac{pM}{RT} S \frac{k}{\mu} \frac{dp}{dx} = -S \frac{kM}{2\mu RT} \frac{dp^2}{dx} \\ k = \frac{d^2}{32} \end{cases} \quad (14)$$

式中, M 为气体分子量; R 为通用气体常数; T 为 Kelvin 温度。

根据式(14)的换算关系,可将图6的表观扩散系数结构关系转换为图7的表观渗透率结构关系。图7中, $p_0, p_1, p_2, p_3, \dots, p_N$ 为各级孔隙两端的气压, $d_1, d_2, d_3, \dots, d_N$ 为各级孔径, $k_1, k_2, k_3, \dots, k_N$ 为各级孔隙表观渗透率, $x_1, x_2, x_3, \dots, x_N$ 为各级孔隙长度。与图6的气体流动方式一致,在压差及浓度差的驱动下,气体首先依次从1、2、3级孔隙流出,随时间延长逐渐波及到深部的 N 级孔隙。

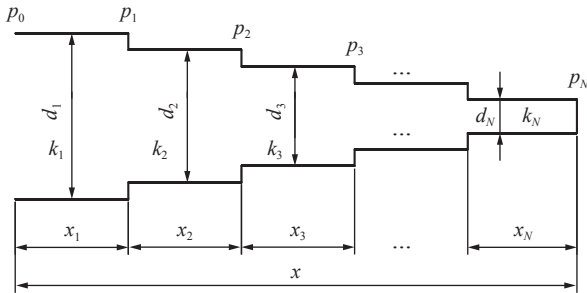


图7 串联多尺度表观渗透率示意

Fig.7 Diagram of multiscale apparent permeability in series

依据式(14)的通用表达式,同时依据图7的气体在多尺度孔隙中的流动方式,可计算各级孔隙单位时

间内的质量流量,则有

$$\begin{cases} J_1 = -S_1 \frac{k_1 M}{2\mu RT} \frac{p_0^2 - p_1^2}{x_1} \\ J_2 = -S_2 \frac{k_2 M}{2\mu RT} \frac{p_1^2 - p_2^2}{x_2} \\ \vdots \\ J_N = -S_N \frac{k_N M}{2\mu RT} \frac{p_{N-1}^2 - p_N^2}{x_N} \end{cases} \quad (15)$$

式中, $J_1, J_2, \dots, J_N, S_1, S_2, \dots, S_N$ 分别为1、2、 \dots 、 N 级孔隙的气体质量流量和孔隙截面积。

将1、2、 \dots 、 N 级孔隙串联后,得到串联后的等效孔隙质量流量,即

$$J_{\text{avg}} = -S_{\text{avg}} \frac{k_{\text{avg}} M}{2\mu RT} \frac{p_0^2 - p_N^2}{x_1 + x_2 + \dots + x_N} \quad (16)$$

式中, $J_{\text{avg}}, S_{\text{avg}}, k_{\text{avg}}$ 为1、2、 \dots 、 N 级孔隙串联后的等效质量流量、等效孔隙截面积和等效表观渗透率。

当气体从图7中的多尺度孔隙流出时,各级孔隙中的气体是连续的,则各级孔隙的质量流量相等,因各级孔隙的长度未知,为简单计,假设各级孔隙内气体流动距离相等,则有

$$J_1 = J_2 = \dots = J_N = J_{\text{avg}} = J \quad (17)$$

$$x_1 = x_2 = \dots = x_N \quad (18)$$

将式(15)、(16)变形为

$$\begin{cases} p_0^2 - p_1^2 = -\frac{2\mu RT J_1 x_1}{M S_1 k_1} \\ p_1^2 - p_2^2 = -\frac{2\mu RT J_2 x_2}{M S_2 k_2} \\ \vdots \\ p_{N-1}^2 - p_N^2 = -\frac{2\mu RT J_N x_N}{M S_N k_N} \end{cases} \quad (19)$$

$$p_0^2 - p_N^2 = -\frac{2\mu RT J_{\text{avg}} (x_1 + x_2 + \dots + x_N)}{M S_{\text{avg}} k_{\text{avg}}} \quad (20)$$

将式(19)的各式相加,并考虑式(17)可得

$$p_0^2 - p_N^2 = -\frac{2\mu RT J}{M} \left(\frac{x_1}{S_1 k_1} + \frac{x_2}{S_2 k_2} + \dots + \frac{x_N}{S_N k_N} \right) \quad (21)$$

比较式(20)、(21)可得

$$\frac{x_1 + x_2 + \dots + x_N}{S_{\text{avg}} k_{\text{avg}}} = \frac{x_1}{S_1 k_1} + \frac{x_2}{S_2 k_2} + \dots + \frac{x_N}{S_N k_N} \quad (22)$$

进一步考虑式(18),可得

$$\frac{N}{S_{\text{avg}} k_{\text{avg}}} = \frac{1}{S_1 k_1} + \frac{1}{S_2 k_2} + \dots + \frac{1}{S_N k_N} \quad (23)$$

因 $S = \pi d^2/4$, 并考虑式 (14) 中 $k = d^2/32$ 可得

$$\frac{N}{d_{\text{Navg}}^4} = \frac{1}{d_1^4} + \frac{1}{d_2^4} + \cdots + \frac{1}{d_N^4} \quad (24)$$

式中, d_{Navg} 为串联 N 级孔隙的等效孔径。

整理式 (24) 可得

$$d_{\text{Navg}} = \sqrt[4]{N / \sum_{i=1}^N \frac{1}{d_i^4}} \quad (25)$$

同理, 可得 $N-1$ 级孔隙串联后的等效孔径为

$$d_{N-1\text{avg}} = \sqrt[4]{(N-1) / \sum_{i=1}^{N-1} \frac{1}{d_i^4}} \quad (26)$$

据式 (24)~(26) 可得

$$\frac{N}{d_{\text{Navg}}^4} = \frac{N-1}{d_{N-1\text{avg}}^4} + \frac{1}{d_N^4} \quad (27)$$

求解式 (27), 可得到每一级单级孔隙的孔径为

$$d_N = \frac{d_{\text{Navg}} d_{N-1\text{avg}}}{\left[(1-N) d_{\text{Navg}}^4 + N d_{N-1\text{avg}}^4 \right]^{\frac{1}{4}}} \quad (28)$$

为检验式 (28), 开展了实验煤样的压汞孔径测试, 获得了从 $356.706 \mu\text{m}$ 到 5.5 nm 的 71 级单级孔径, 分析发现, 各级孔隙的孔径比平均值为 0.855, 将初始值 $d_1=356.706 \mu\text{m}$ 和孔径比 0.855 代入式 (25) 可得

$$d_{\text{Navg}} = \frac{356.706 N^{\frac{1}{4}}}{\sqrt[4]{\sum_{i=1}^N \frac{1}{0.855^{4(i-1)}}}} \quad (29)$$

将式 (29) 代入式 (28), 可计算出各级孔隙的单级孔径 d_N , 如图 8 所示。

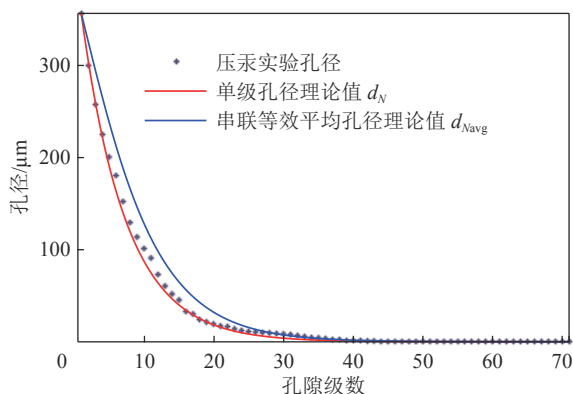


图 8 单级孔径/多尺度串联孔径模型与压汞实验对比

Fig.8 Comparison between a model of single pore diameter and multi-scale pore diameter in series and data of mercury intrusion experiment

图 8 显示, 单级孔径的理论计算值 (红色实线) 与压汞实验的单级孔径 (蓝色圆点) 吻合很好, 多尺度串联孔隙模型 (式 (28)) 能准确描述 1~71 级各级微纳米孔隙的孔径, 随着孔隙级数的增加, 孔径迅速衰减。图 8 还显示, 各级孔隙逐级串联后的等效平均孔径 (蓝色实线 d_{Navg}) 略大于单级孔隙的孔径 (红色实线 d_N), 并接近于最后一级单级孔径, 这表明, 流体在串联多尺度孔隙中的渗流能力受控于最小孔隙的孔径。

式 (14) 中第 2 式是渗透率与单级孔径的一个理想化关系, 因煤中孔隙庞杂, 其数量未知, 因而, 进一步假定式 (14) 的孔径为某一横截面上平行并联孔的等效平均值, 采用式 (14) 和式 (29) 计算, 可得到串联后等效渗透率 (k_{Navg}) 与第 1 级孔隙渗透率 (k_1) 的比值, 如图 9 所示。图 9 表明, 随着串联孔隙级数的增加, 等效渗透率 (k_{Navg}) 逐渐衰减, 结合图 6、7 可知, 气体从各级微纳米孔隙流出时, 随着时间的延长, 由于流经的孔径逐渐减小, 使得串联后的等效表观渗透率也随着时间的延长而衰减。

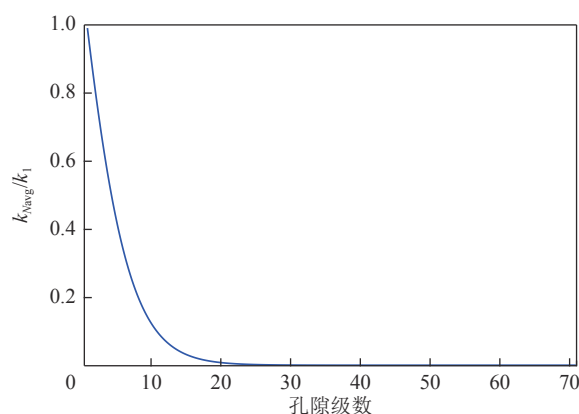


图 9 多尺度串联渗透率与初始渗透率之比

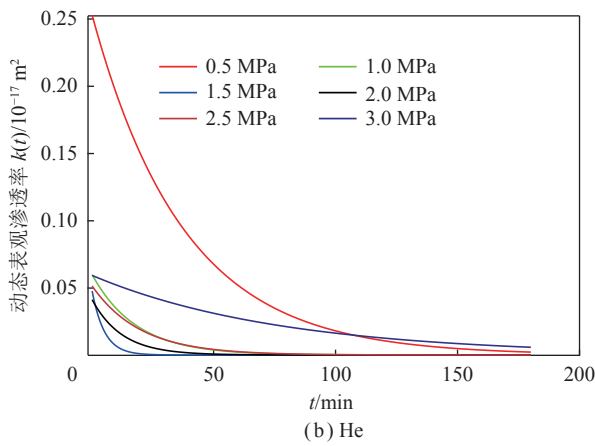
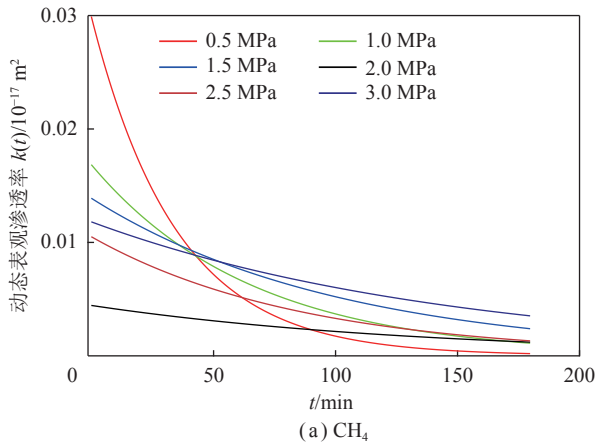
Fig.9 Ratio of multi-scale permeability in series to initial permeability

根据图 5 的实验数据, 采用式 (10) 和式 (12) 计算, 分别得到三轴应力及 $0.5 \sim 3.0 \text{ MPa}$ 气压下 CH_4/He 的动态表观渗透率, 如图 10 所示。

图 10 显示, 动态表观渗透率随着时间延长而衰减, 这在机理上与图 9 一致。需要特别说明的是, 每级孔隙内的流动距离和流动时间无法对应确知, 尚不能直接证明图 9 与图 10 的关系。至此, 本节从数学上间接证明了多尺度表观渗透率动态衰减现象, 实现了多尺度孔隙与渗透率的关联。

4.2 多流态机制的串联多尺度渗透率模型

4.1 节的压汞实验表明, 实验煤体中存在直径 $356.706 \mu\text{m} \sim 5.500 \text{ nm}$ 的微纳米孔隙, 孔径跨越 10 万量级, 这使得各级孔隙中气体流态和渗流机理完全不

图10 三轴应力下 CH₄/He 多尺度动态表观渗透率Fig.10 Multi-scale dynamic apparent permeability for CH₄/He with stress loading

同,这也是多尺度渗流研究的重要意义所在。按照前述多尺度科学的基本科学命题,多尺度渗流问题的首要任务是根据流动机理对尺度进行划分,而流态 (flow regime) 是区分流动机理的主要依据,努森数 (Kn) 是划分流态的公认判据。对气体流态的划分,最早起源于我国科学家钱学森 (Tsien H S) 在稀薄气体动力学中的开创性工作^[39]。1946年,钱学森按努森数 (Kn) 将气体流态划分为4个流域^[40],即连续流区 ($Kn < 0.01$)、滑移区 ($0.01 < Kn < 0.1$)、过渡流区 ($0.1 < Kn < 10$) 和自由分子流区 ($Kn > 10$),这是国际上公认的较为权威的分类方法。此后微机电、微流体、页岩气等领域广泛将连续流与滑移流的分界修正为 ($Kn = 0.001$)^[24-34],笔者沿用这一分类。图11中,按努森数 (Kn) 划分,气体在从左向右多尺度孔隙中的流态分为, $Kn < 0.001$ 为连续流,孔壁边界的滑移效应可忽略,可按达西定律描述; $0.001 < Kn < 0.1$, 为滑移流,需在达西定律基础上考虑气体与孔壁边界的反射扩散效应,即滑移效应; $0.1 < Kn < 10$, 为过渡流,此时滑移流和连续流同等重要; $Kn > 10$, 为努森扩散流,又称自由分子流。

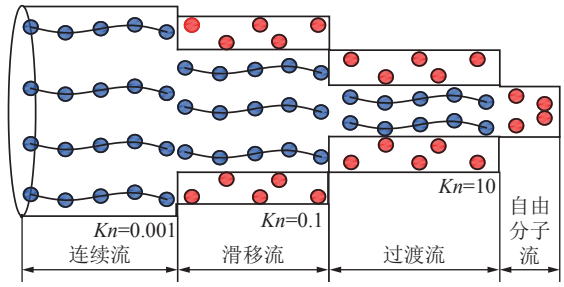


图11 串联多尺度孔隙中气体流态划分示意

Fig.11 Diagram of gas flow regimes in multiscale series connection pores

图11中,蓝色圆点代表连续流气体分子,红色圆点代表孔壁附近的滑移流气体分子,滑移流指气体分子与孔壁的碰撞而产生壁面处气体切向速度不为0的现象,又称克林伯格效应 (Klinkenberg effect)。从1941年 Klinkenberg 原文的导出过程来看^[23],笔者在 Hagen-Poiseuille 方程的基础上考虑了气体与孔壁的反射碰撞效应,碰撞层厚度正比于分子平均自由程。因而,克氏效应本质上是一种孔壁边界处气体的努森扩散结果,故滑移层又称努森层。图11中,从左向右,随着孔径的减小,努森层占比增大,滑移效应逐渐增强,并不断过渡,当孔径小于气体分子平均自由程时 ($Kn > 10$), 气体流态变为自由分子流,又称为努森扩散流。由上可知,广义上的气体渗流是一个达西连续流与努森扩散流共存的混合流动,不仅在单管中存在,而且存在于串联多管中,仅是因管径不同而占比不同。实验中的渗流是一种表观意义上的流动行为,同时包含了上述所有流态。努森数 (Kn) 定义为气体分子平均自由程与特征尺度的比值,即

$$Kn = \frac{\lambda}{d} \quad (30)$$

式中, λ 为分子平均自由程; d 为孔隙特征长度,这里取孔 (直) 径。

$$\lambda = \frac{K_B T}{\sqrt{2} \pi \bar{\sigma}^2 p} \quad (31)$$

式中, K_B 为 Boltzmann 常数; T 为 Kelvin 温度; $\bar{\sigma}$ 为分子碰撞直径。

考虑流态的第 N 级孔隙单管表观渗透率可表示为

$$\begin{cases} k_N = k_{N-\infty} \left[1 + \zeta(Kn) Kn \right] \left(1 + \frac{4Kn}{1+Kn} \right) \\ \zeta(Kn) = \frac{128}{15\pi^2} \arctan(4Kn^{0.4}) \\ k_{N-\infty} = \frac{d_N^2}{32} = \frac{1}{32} \frac{d_{N\text{avg}}^2 d_{N-1\text{avg}}^2}{\left[(1-N) d_{N\text{avg}}^4 + N d_{N-1\text{avg}}^4 \right]^{\frac{1}{2}}} \end{cases} \quad (32)$$

式中, k_N 为第 N 级孔隙的单管表观渗透率; $k_{N-\infty}$ 为相应的单管本征渗透率 (或称固有渗透率, 即达西渗透率); $\zeta(Kn)$ 为无量纲稀薄效应系数。

实验中, 单级孔径的表观渗透率无法直接测到, 实验所测定的渗透率, 实际是多尺度孔隙串联后的等效表观渗透率。从图 8 中看出, 单级孔径与串联后的等效孔径较为接近, 基于这一原理, 可将式 (32) 中的单管孔径 d_N 替换为串联后的等效孔径 d_{Navg} , 则得到考虑流态的串联多尺度表观渗透率。

$$\begin{cases} k_{\text{Navg}} = k_{\text{Navg}-\infty} \left[1 + \zeta(Kn)Kn \right] \left(1 + \frac{4Kn}{1+Kn} \right) \\ k_{\text{Navg}-\infty} = \frac{d_{\text{Navg}}^2}{32} = \frac{1}{32} \sqrt{N \sum_{i=1}^N \frac{1}{d_i^4}} \end{cases} \quad (33)$$

4.3 流态与有效应力作用下的多尺度渗透率

从微观向宏观的表观渗透率转换时, 需引入孔隙率 ϕ 与迂曲度 τ , 流态、应力和气压作用下的表观渗透率^[41] 综合表达如下:

$$k_{\text{Navg}} = k_{\text{Navg}-\infty} \left[1 + \zeta(Kn)Kn \right] \left(1 + \frac{4Kn}{1+Kn} \right) \times \frac{\phi}{\tau} \exp(-3c_t[(\bar{\sigma} - \bar{\sigma}_0) - (p - p_c)]) \quad (34)$$

式中, τ 为迂曲度; c_t 为压缩系数, 由实验测定; $\bar{\sigma}$ 为平均应力; $\bar{\sigma}_0$ 为初始平均应力, 实验中应力保持不变, 故 $\bar{\sigma} - \bar{\sigma}_0 = 0$; p_c 为实验基准气压。

式 (34) 中流态和有效应力共同影响串联多尺度表观渗透率 (k_{Navg}), 其中, 气压和应力决定有效应力, 气压和多尺度孔径决定流态, 并通过努森数 (Kn) 体现。因而, 可通过变气压下的扩散-渗流实验体现多尺度表观渗透率。不同气压下的 CH_4/He 渗透率实验结果分别如图 12 所示。

图 12(a) 为稳态渗流实验 (1) 的渗透率 k , 图 12(b) 为无应力下扩散-渗流实验 (3) 的初始表观渗透率 k_0 , 图 12(c) 为三轴应力下扩散-渗流实验 (2) 的初始表观渗透率 k_0 , 图 12(b)、(c) 分别根据图 4、图 5 的实验按式 (8)、(10) 和 (12) 计算获得。

图 12(a) 的稳态渗流实验中, He 为非吸附性气体, CH_4 未进行吸附平衡, 2 者均排除了吸附膨胀效应。因而, 稳态渗透率与气压的关系, 体现了有效应力和流态的作用。图 12(b)、(c) 中 CH_4 进行了较长时间的吸附平衡, 由于有吸附内膨胀的影响, CH_4 所测初始表观渗透率均小于 He 一个数量级, 三轴应力下 CH_4/He 的初始表观渗透率均比无应力下小 2 个数量级。

图 12 的共同特征是, CH_4/He 稳态与非稳态所测

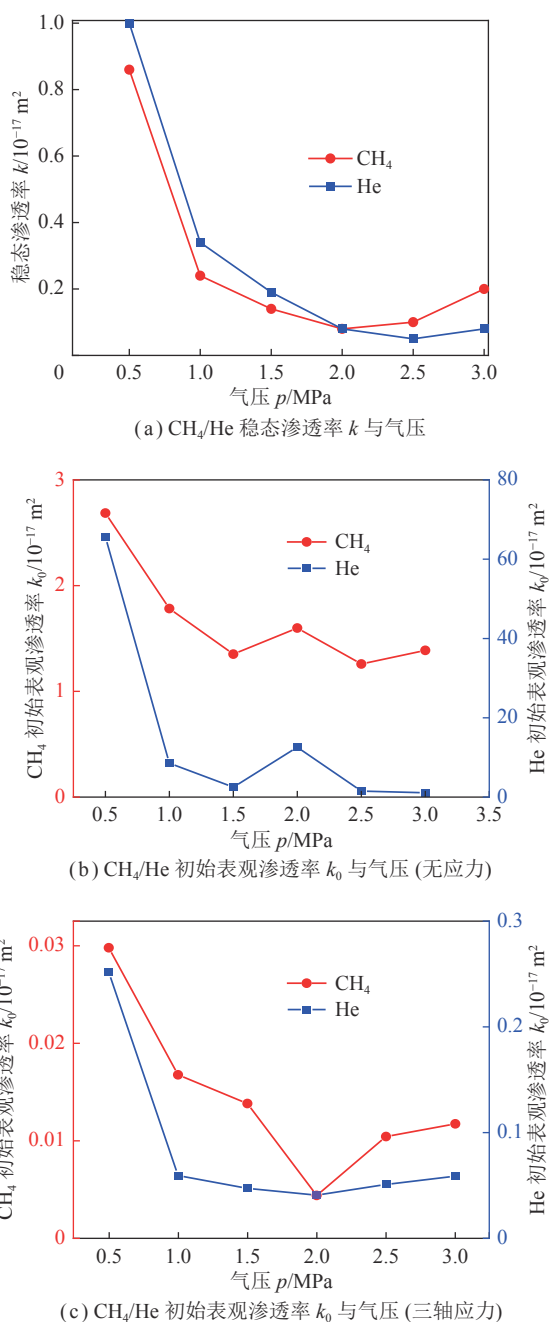


图 12 不同气压下的 CH_4/He 渗透率实验结果

Fig. 12 CH_4/He permeability test results under different air pressures

渗透率, 均随着气压降低呈先减小后增大的“U”形规律。以图 12(c) 为例, 以 2.0 MPa 为分界点, 曲线右半支 ($p > 2.0 \text{ MPa}$), k_0 随着气压的降低而减小, 曲线左半支 ($p < 2.0 \text{ MPa}$), k_0 随着气压的降低而增大, 图 12(b) 的 k_0 、图 12(a) 的 k 也呈现类似规律。

对照式 (34) 可以发现, CH_4/He 气压降低过程中, 渗透率同时受有效应力和流态的影响, 随气压变化的“U”形规律, 取决于 2 者的对比关系。三轴应力下, 图 12(c) 中 CH_4/He 的 k_0 曲线的右半支气压较高时

($p > 2.0$ MPa), 努森数 (Kn) 较小, 气体的滑移 (流态) 效应不显著, 有效应力效应占主导作用, 当气压降低时, 有效应力增大, 使得初始表观渗透率 k_0 降低; k_0 曲线的左半支气压较低时 ($p < 2.0$ MPa), 孔隙狭窄, 气压较低, 努森数 (Kn) 较大, 滑移 (流态) 效应占主导, 当气压降低时, 滑移效应增大, 使得表观渗透率升高。图 12(a) 中三轴应力下的稳态渗透率同样受有效应力和流态控制, 呈现与图 12(c) 类似的特征。

图 12(b) 中 CH_4/He 的 k_0 曲线的变化机理与图 12(a)、(c) 稍有不同, 当进行无应力下气体流动实验时, 首先要放出罐内自由空间的高压气体, 此时煤中气体与外界大气压将形成压差。以 1.5 MPa 气压为分界点, 曲线的右半支中当气压较高时 ($p > 1.5$ MPa), 煤体在较高的气压压差作用下存在不同程度的拉伸损伤, 因而, 在气压降低过程中, 渗透率整体降低, 又由于气压降低存在反复的拉伸作用, 因而, 渗透率会有波动。 k_0 曲线的左半支中, 当气压较低时 ($p < 1.5$ MPa), 内外压差不足以再拉裂煤体, 此时气体的滑移 (流态) 效应占主导作用, 故气压降低, k_0 增大。

为从理论证明上述实验规律, 采用式 (34) 进行计算。仍以三轴应力下的扩散-渗流实验 (2) 为例, 图 12(c) 中 k_0 反映的是初级孔隙中的不同压力下的表观渗透率, 故以气压为变量, 计算有效应力与流态的对比关系。计算时, 先以 0.5 MPa 下的实验值 k_0 作为基准点, 确定出等效初始孔径, 然后代入式 (34) 中, 计算其他压力的表观渗透率理论 k_0 , 计算所用数据见表 2, 其中, 迂曲度 τ 由压汞实验测得, 压缩系数 c_t 由不用气压下的应变测得。计算结果如图 13 所示。

表 2 初始表观渗透率计算参数
Table 2 Calculation parameters for initial apparent permeability

参数	数值
τ	6.62
$K_B/(\text{J} \cdot \text{K}^{-1})$	1.38×10^{-23}
$\bar{\sigma}(\text{CH}_4)/\text{nm}$	0.42
$\bar{\sigma}(\text{He})/\text{nm}$	0.26
c_t/MPa^{-1}	0.135
T/K	300
ϕ	0.05

图 13 中理论计算的初始表观渗透率 k_0 随气压的降低呈现与实验类似的“U”形规律。需要指出的是, 由于实验误差及其他未知原因, 图 13 和图 12(c) 中的 k_0 在具体量值上未能一一对应。尽管如此, 理论计算

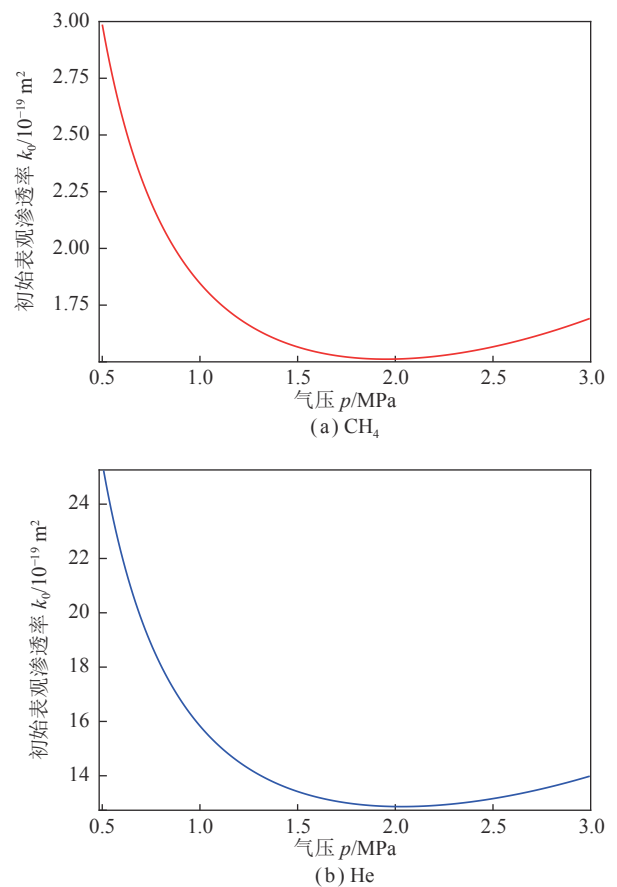


图 13 三轴应力下 CH_4/He 初始表观渗透率 k_0 理论值

Fig. 13 Theoretical value of initial apparent permeability k_0 for CH_4/He with stress loading

的 k_0 在数量级和整体趋势上和实验 k_0 呈现良好的一致性。依据压汞实验的孔径计算表明, 无应力下各级孔径的 Kn 在 $2.9 \times 10^{-5} \sim 5.14(\text{CH}_4)$, $8 \times 10^{-5} \sim 13(\text{He})$, 4 类流态均存在。

为进一步展现串联多尺度孔隙中渗透率的变化, 以图 12(c) 中各压力下的初始表观渗透率实验值 k_0 为基准, 将式 (33) 第 2 式的串联等效孔径代入式 (34) 计算, 得到随孔隙级数变化时的串联多尺度表观渗透率, 为显示清晰, 这里只示出前 40 级的串联多尺度表观渗透率, 如图 14 所示。

图 14 显示, 随着串联孔隙级数的增加, 表观渗透率逐渐衰减, 这与图 10 的表观渗透率随时间延长而衰减的规律一致。所不同的是, 图 10 的实验中各压力下的衰减系数不同, 而图 14 的理论中各压力下的孔隙比例系数未知, 计算时假定了统一的孔径比, 使得图 10 与图 14 的形态稍有不同。图 14 的理论计算表明, 各压力下初级孔隙的初始表观渗透率是第 71 级孔隙的 24 071~28 669 倍。式 (34) 中不考虑流态影响而仅考虑有效应力影响时, 由于外部加载应力不变, 有效应力变化仅由气压变化引起, 在 3.0~0.5 MPa

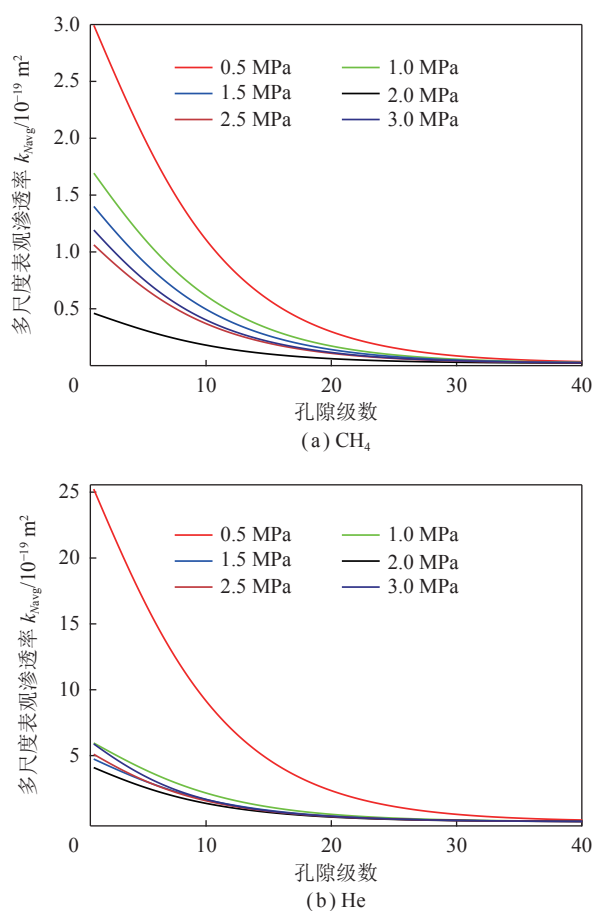


图 14 三轴应力下 CH₄/He 多尺度表观渗透率理论值

Fig.14 Theoretical value of multi-scale apparent permeability in series for CH₄/He with stress loading

的气压降低过程中, 渗透率仅降低了 71%, 与孔径影响程度相比, 多尺度孔径对渗透率的影响远大于有效应力的影响。宾州州立大学的 PONE 等的实验表明^[42], 一段时间后等效渗透率均大幅降低, 6.9 MPa 围压下, 30 d 内煤中 CO₂ 的等效渗透率前后差距 43 600 倍, 这与本文的量级相当, 23 d 内 CH₄ 的等效渗透率前后差距 39.3 万倍。无应力下, 25 d 内块煤的 CO₂ 等效渗透率前后差距 138.6 万倍, 6 d 内颗粒煤的 CO₂ 等效渗透率前后差距 210 万倍。这份证据表明, 多尺度孔径与多尺度动态渗透率量级有直接的对应关系, 均达到了数万至百万量级。

5 多尺度动态渗透率的科学与工程价值

多尺度渗透率的科学价值首先体现在孔裂隙的多尺度空间对各种流体的流态及流动机理的影响。煤中气体的吸附/解吸-扩散-渗流规律、机理均涉及多尺度渗流科学问题, 例如, 气体在微纳米孔隙中流动时, 因多尺度孔径的制约, 将产生 4 种不同流态的流动, 相应的渗透率也呈现不同的变化机理。即使如

水及携带各种溶质的水基流体在煤体中流动时, 也因煤体的多尺度渗透率影响, 发生达西流、毛细管渗吸等多机制流动。高温蒸汽在煤体中流动时, 因多尺度渗透率的巨大影响, 将发生毛细凝聚、相变、温度边界跳跃等多机理流动, 微纳尺度传热已成为热科学中的前沿问题。多相流 (气-液-汽) 在多尺度孔隙中将发生气泡流、弹状流、块状流、环状流等多种流型的流动。其次, 多尺度渗透率还体现在时间尺度上, 随着时间的延长, 渗透率产生多时度动态变化, 流态和流动机理也在随时间而不断演变。多尺度动态渗透率还对多物理场渗流产生重要影响, 如温度、压力、应力作用下的渗透率也因多尺度的影响, 产生非单调的变化特征。当孔隙小至纳米尺度时, 界面效应、表面效应、微纳尺度效应将占据主导作用, 多尺度渗透率的理论与实验方法, 为探查煤体超低渗透性的内部机制提供了手段。

多尺度动态渗透率的发现具有重要的工程价值。近年来已然发现, 低渗煤层的瓦斯抽采常出现短期内迅速衰竭的现象, 一些矿井的瓦斯抽采浓度和流量在 3~7 d 即衰竭至极低, 导致后期抽采极为困难, 这与至少抽采 6 个月的工程目标相差甚远。类似的现象出现在地面煤层气排采过程中, 排采初期, 在数月内煤层气产量即告衰竭, 这与稳产数年的工程目标相去甚远。一些低渗煤层采取了增透措施后, 一定程度上延长了抽采时间, 但 1~3 个月仍然存在抽采流量和浓度衰竭的问题。采用流动方法测定的各类指标, 也涉及多尺度渗透率的问题, 如远距离瓦斯含量、K₁ 值测定, 均需通过后期流动数据来推算初期的参数, 如仍按常数计算, 将导致推算数据的失准。多尺度孔渗特征是煤体的天然属性, 煤中各类流体的注采工程措施, 如注水及水基溶液、注气、注蒸汽、煤中 CO₂ 存储等工程也涉及多尺度渗流问题, 尤其在工程后期, 将涉及到超低渗多尺度渗流问题。

6 结 论

(1) 开展了无应力与三轴应力下柱状煤心 CH₄/He 的非稳态扩散-渗流实验, 实验发现, 瓦斯累积流动量呈现 2 类动态衰减特征, 一类为连续光滑形的动态衰减, 一类为两阶段阶跃形的动态衰减, 这种新现象与抽采工程中瓦斯流量短期内急速衰减相似。进一步发现, 表观渗透率 (等价于表观扩散系数) 并非一个常数, 而是一个随时间延长而动态衰减的变量, 根据 2 类动态衰减特征, 导出了 2 类动态表观扩散-渗流数学模型, 经实验验证, 2 类模型能分别较准确描述 CH₄/He 的全时流动过程。

(2) 提出了煤体多尺度孔裂隙物理模型,阐释了气体在串联多尺度孔裂隙中的流动机理。流动初期,气体首先从外部大孔裂隙中流出,此时的表观渗透率(扩散系数)较大,随着流动时间延长,流动逐渐波及到煤纳米级孔隙,流动全过程中,瓦斯依次流经了从大到小的串联多尺度微纳米孔隙,这种流动的空间多尺度特征决定了表观渗透率(扩散系数)动态衰减的时间多尺度特征,可解释现场瓦斯抽采急速衰减的原因。

(3) 根据表观意义的等价性,将动态表观扩散系数等效换算为动态表观渗透率,导出了串联多尺度孔隙和渗透率数学模型。计算表明,随串联孔隙级数增加,等效孔径及其渗透率迅速衰减,数学上证明了串联多尺度表观渗透率的动态衰减机理。采用压汞实验数据验证模型表明,串联后的等效孔径与最后一级单级孔径较为接近,表明串联等效渗透率大小由最小的单级渗透率决定。

(4) 建立了考虑流态和有效应力的串联多尺度渗透率模型,理论上实现了多尺度渗透率的区分、关联和综合表达。实验和理论计算对照表明,CH₄/He流出过程中,随着时间延长,串联等效孔径和气压逐渐减小,二者共同使得努森数(Kn)逐渐增大,气体的滑移流-过渡流-自由分子流(努森扩散)等流态对渗透率的影响逐渐增强,并占据主导作用,在低压低渗时超过了有效应力影响,导致表观渗透率随气压降低呈现“U”形规律。弥补了当前多尺度渗流理论中仅单管的缺陷,解决了当前多尺度渗流理论缺乏实验支持的问题。

参考文献(References):

- [1] 康红普. 煤炭开采与岩层控制的空间尺度分析[J]. 采矿与岩层控制工程学报, 2020, 2(2): 1-26.
KANG Hongpu. Spatial scale analysis on coal mining and strata control technologies[J]. Journal of Mining and Strata Control Engineering, 2020, 2(2): 1-26.
- [2] 孙其诚, 金峰. 颗粒物质的多尺度结构及其研究框架[J]. 物理, 2009, 38(4): 225-232.
SUN Qicheng, JIN Feng. The multiscale structure of granular matter and its mechanics[J]. Physics, 2009, 38(4): 225-232.
- [3] 柴立和. 多尺度科学的研究进展[J]. 化学进展, 2005, 17(2): 186-191.
CHAI Lihe. Recent progress of multiscale science[J]. Progress in Chemistry, 2005, 17(2): 186-191.
- [4] 陈伟球, 季葆华, 陶建军, 等. 第23届世界力学家大会简介[EB/OL]. (2012-08-19)[2022-04-29]. <https://max.book118.com/html/2017/1016/137236476.shtml>. 2012.8:1-53.
- [5] ANDERSON P W. More is different[J]. Science, 1972, 177: 393-396.
- [6] 赵阳升. 岩石力学发展的一些回顾与若干未解之百年问题[J]. 岩石力学与工程学报, 2021, 40(7): 1297-1336.
- [7] ZHAO Yangsheng. Retrospection on the development of rock mass mechanics and the summary of some unsolved centennial problems[J]. Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering, 2021, 40(7): 1297-1336.
- [7] TAN Yuling, PAN Zhejun, LIU Jishan, et al. Experimental study of impact of anisotropy and heterogeneity on gas flow in coal. Part I: Diffusion and adsorption[J]. Fuel, 2018, 232(15): 444-453.
- [8] PAN Zhejun, CONNELL Luke D, CAMILLERI Michael, et al. Effects of matrix moisture on gas diffusion and flow in coal[J]. Fuel, 2010, 89(11): 3207-3217.
- [9] SEIDLE J P, JEANSONNE M W, ERICKSON D J, et al. Application of matchstick geometry to stress dependent permeability in coals [C]//SPE Rocky Mountain Regional Meeting. Casper, Wyoming, SPE. 1992, 5: 433-444.
- [10] LIU Jishan, CHEN Zhongwei, ELSWORTH Derek, et al. Evaluation of stress-controlled coal swelling processes[J]. International Journal of Coal Geology, 2010, 83(4): 446-455.
- [11] RUCKENSTEIN E, VAIDYANATHAN A S, YOUNGQUIST G R. Sorption by solids with bidisperse pore structures[J]. Chemical Engineering Science, 1971, 26(9): 1305-1318.
- [12] CLARKSON C R, BUSTIN R M. The effect of pore structure and gas pressure upon the transport properties of coal: A laboratory and modeling study. 2. Adsorption rate modeling[J]. Fuel, 1999, 78(11): 1345-1362.
- [13] SHI J Q, DURUCAN S. A bidisperse pore diffusion model for methane displacement desorption in coal by CO₂ injection[J]. Fuel, 2003, 82(10): 1219-1229.
- [14] 李伟, 要惠芳, 刘鸿福, 等. 基于显微CT的不同煤体结构煤三维孔隙精细表征[J]. 煤炭学报, 2014, 39(6): 1127-1132.
LI Wei, YAO Huifang, LIU Hongfu, et al. Advanced characterization of three-dimensional pores in coals with different coal-body structure by Micro-CT[J]. Journal of China Coal Society, 2014, 39(6): 1127-1132.
- [15] 周动, 冯增朝, 王辰, 等. 煤吸附甲烷结构变形的多尺度特征[J]. 煤炭学报, 2019, 44(7): 2159-2166.
ZHOU Dong, FENG Zengchao, WANG Chen, et al. Multi-scale characteristics of coal structure deformation during methane adsorption[J]. Journal of China Coal Society, 2019, 44(7): 2159-2166.
- [16] 赵迪斐, 郭英海, 毛潇潇, 等. 基于压汞、氮气吸附与FE-SEM的无烟煤微纳米孔特征[J]. 煤炭学报, 2017, 42(6): 1517-1526.
ZHAO Difei, GUO Yinghai, MAO Xiaoxiao, et al. Characteristics of macro-nanopores in anthracite coal based on mercury injection, nitrogen adsorption and FE-SEM[J]. Journal of China Coal Society, 2017, 42(6): 1517-1526.
- [17] 姚素平, 焦堃, 张科, 等. 煤纳米孔隙结构的原子力显微镜研究[J]. 科学通报, 2011, 56(22): 1820-1827.
YAO Suping, JIAO Kun, ZHANG Ke, et al. An atomic force microscopy study of coal nanopore structure[J]. Chinese Sci Bull, 2011, 56(22): 1820-1827.
- [18] 李志强, 刘勇, 许彦鹏, 等. 煤粒多尺度孔隙中瓦斯扩散机理及动扩散系数新模型[J]. 煤炭学报, 2016, 41(3): 633-643.
LI Zhiqiang, LIU Yong, XU Yanpeng, et al. Gas diffusion mechanism in multi-scale pores of coal particles and new diffusion model of dynamic diffusion coefficient[J]. Journal of China Coal Society,

- 2016, 41(3): 633–643.
- [19] 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): 1045–1054.
LI Zhiqiang, WANG Dengke, SONG Dangyu. Influence of temperature on dynamic diffusion coefficient of CH_4 into coal particles by new diffusion model[J]. Journal of China Coal Society, 2015, 40(5): 1045–1054.
- [20] ZHAO Wei, CHENG Yuanping, PAN Zhejun, et al. Gas diffusion in coal particles: A review of mathematical models and their applications[J]. *Fuel*, 2019, 252: 77–100.
- [21] LI Zhiqiang, PENG Jiansong, LI Lin, et al. Novel dynamic multiscale model of apparent diffusion permeability of methane through low permeability coal seams[J]. *Energy Fuels*, 2021, 35: 7844–7857.
- [22] BROWN Gordon P, DINARDO Albert, CHENG George K, et al. The flow of gases in pipes at low pressures[J]. *Journal of Applied Physics*, 1946, 17(10): 802–813.
- [23] KLINKENBERG L J. The permeability of porous media to liquids and gases[J]. *Drilling and Production Practice, American Petroleum Inst.*, 1941, 41(1): 200–213.
- [24] BESKOK Ali, KARNIADAKIS George E. A model for flow in channels pipes, and ducts at micro and nano scales [R]. Texas US Thermophysical Engineering, 1999: 43–77.
- [25] ROY Subtata RAJU Reni. Modeling gas flow through microchannels and nanopores[J]. *Journal of Applied Physics*, 2003, 93(8): 4870–4879.
- [26] FLORENCE F A, RUSHING J A, NEWSHAM K E, et al. Improved permeability prediction relations for low permeability sands [C]// SPE Rocky Mountain Oil Gas Technology Symposium. Denver, Colorado, USA. 2007: 1–18.
- [27] JAVADPOUR F. Nanopores and apparent permeability of gas flow in mudrocks (shales and siltstone)[J]. *Journal of Canadian Petroleum Technology*, 2009, 48(8): 16–21.
- [28] DARABI Hamed, ETTEHAD A, JAVADPOUR F. et, al. Gas flow in ultra-tight shale strata[J]. *Journal of Fluid Mechanics*, 2012, 710: 641–658.
- [29] WU Keliu, CHEN Zhangxing, LI Xiangfang, et al. A model for multiple transport mechanisms through nanopores of shale gas reservoirs with real gas effect-adsorption-mechanic coupling[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2016, 93: 408–426.
- [30] 吴克柳, 李相方, 陈掌星. 页岩纳米孔吸附气表面扩散机理和数学模型[J]. 中国科学:技术科学, 2015, 45(5): 525–540.
WU Keliu, LI Xiangfang, CHEN Zhangxing. The mechanism and mathematical model for the adsorbed gas surface diffusion in nanopores of shale gas reservoirs[J]. *Science China Technological Sciences*, 2015, 45(5): 525–540.
- [31] 吴克柳, 李相方, 陈掌星, 等. 页岩气复杂孔裂隙真实气体传输机理和数学模型[J]. 中国科学: 技术科学, 2016, 46(8): 851–863.
WU Keliu, LI Xiangfang, CHEN Zhangxing, et al. Real gas transport mechanism and mathematical model through complex nanopores and microfractures in shale gas reservoirs[J]. *Science China Technological Sciences*, 2016, 46(8): 851–863.
- [32] 朱维耀, 亓倩. 页岩气多尺度复杂流动机理与模型研究[J]. 中国科学:技术科学, 2016, 46(2): 111–119.
ZHU Weiyao, QI Qian. Study on the multi-scale nonlinear flow mechanism and model of shale gas[J]. *Science China Technological Sciences*, 2016, 46(2): 111–119.
- [33] CIVAN Faruk. Effective correlation of apparent gas permeability in tight porous media[J]. *Transport in Porous Media*, 2010, 82: 375–384.
- [34] CIVAN Faruk, RAI Chandra S, SONDERGELD Carl H. Shale-gas permeability and diffusivity inferred by improved formulation of relevant retention and transport mechanisms[J]. *Transport in Porous Media*, 2011, 86: 925–944.
- [35] CRANK J. The mathematics of diffusion (Second Edition) [M]. London: Oxford University Press, 1975.
- [36] BARRER Richard M. Diffusion in and through solids [M]. London: Cambridge University Press, 1951.
- [37] CUI X, BUSTIN A M, BUSTIN R M. Measurements of gas permeability and diffusivity of tight reservoir rocks: Different approaches and their applications[J]. *Geofluids*, 2009, 9: 208–203.
- [38] CAO Peng, LIU Jishan, LEONG Yee-Kwong. A multiscale-multiphase simulation model for the evaluation of shale gas recovery coupled the effect of water flowback[J]. *Fuel*, 2017, 199: 191–205.
- [39] 樊蓓. 稀薄气体动力学: 进展与应用[J]. 力学进展, 2013, 43(2): 185–201.
FAN Jing. Rarefied gas dynamics: advances and applications[J]. *Advances in Mechanics*, 2013, 43(2): 185–201.
- [40] 樊蓓, 沈青. 微尺度气体流动[J]. 力学进展, 2002, 32(3): 321–336.
FAN Jing, SHEN Ching. Micro-scale gas flows[J]. *Advances in Mechanics*, 2002, 32(3): 321–336.
- [41] CAO Peng, LIU Jishan, LEONG Yee-Kewong. A fully coupled multiscale shale deformation-gas transport model for the evaluation of shale gas extraction[J]. *Fuel*, 2016, 178: 103–117.
- [42] PONE N Denis J, HALLECK P M, MATHEWS Jonathan P. Sorption capacity and sorption kinetic measurements of CO_2 and CH_4 in confined and confined bituminous coal[J]. *Energy Fuels*, 2009, 23: 4688–4695.