

整合压汞、 N_2 和 CO_2 吸附的中-高阶煤多重分形特征

张 苗^{1,2}, 刘钦节², 王兴阵¹, 董志勇³

(1. 安徽理工大学 地球与环境学院, 安徽 淮南 232001; 2. 合肥综合性国家科学中心能源研究院 (安徽省能源实验室), 安徽 合肥 230031; 3. 山西焦煤集团有限责任公司, 山西 太原 030000)

摘 要: 煤储层孔隙结构多重分形特征控制着煤层气的运移和可持续产出, 直接决定了煤层气的开采效率, 对煤层气开采具有重要意义。为了研究中-高阶煤孔隙结构多重分形特征及其在煤化作用过程中的演化趋势, 针对取自沁水煤田生产矿井的中-高阶煤样, 整合高压压汞、低温氮气吸附实验和二氧化碳吸附实验, 结合多重分形理论, 表征并探究了中-高阶煤储层宏孔 ($> 50\text{ nm}$)、介孔 ($2\sim 50\text{ nm}$) 和微孔 ($< 2\text{ nm}$) 的多重分形特征在煤化作用过程中的演化趋势及其影响因素。结果表明, 中-高阶煤宏孔、介孔和微孔的广义维数谱 (D_q-q) 和多重分形奇异谱 ($f(\alpha)-\alpha$) 均满足多重分形特征, 这意味着中-高阶煤宏孔、介孔和微孔均表现出多重分形行为。相对于宏孔和介孔, 微孔表现出更大的奇异性指数 α_0 和谱宽 (ΔD) 与较小的赫斯特指数 (Hurst, H), 即微孔具有更强的非均质性和更差的孔隙连通性。煤化作用促进了煤中大分子的聚合, 使煤储层由宏孔优势型和宏孔-微孔并存型储层转变为更为致密的微孔优势型储层, 煤中不同尺度孔隙孔径分布趋于均质化, 导致中-高阶煤储层孔隙结构均质性的增强和孔隙连通性的改善。宏孔和微孔体积分数对其相应孔径范围内孔隙结构非均质性分别存在积极和消极的影响, 而介孔体积分数并不是介孔孔隙孔径分布非均质性的有效约束。镜质组和惰质组对孔隙孔径分布非均质性表现出相反的影响, 镜质比 (V/I) 与 H 之间存在正相关性, 与 α_0 之间呈负相关性, 富镜质组煤发育更多的微孔从而表现出更强的孔隙结构均质性和较好的孔隙连通性。

关键词: 中-高阶煤; 煤化作用; 多尺度孔隙; 多重分形; 沁水煤田

中图分类号: P618.11 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-9993(2024)05-2394-11

Multiple fractal characterization of medium-high rank coal integrating mercury intrusion porosimetry, N_2 and CO_2 adsorption experiments

ZHANG Miao^{1,2}, LIU Qinjie², WANG Xingzhen¹, DONG Zhiyong³

(1. School of Earth and Environment, Anhui University of Science and Technology, Huainan 232001, China; 2. Institute of Energy, Hefei Comprehensive National Science Center, Hefei 230031, China; 3. Shanxi Coking Coal Group Co., Ltd., Taiyuan 030000, China)

Abstract: Multifractal features of the pore structures of coal reservoirs control the transport and sustainable production of coalbed methane (CBM), which directly determines the efficiency of CBM extraction and is of great importance for CBM extraction. In order to investigate the multifractal characteristics of the pore structures of medium-high rank coals and their evolutionary trends during coalification, the medium-high rank coal samples from production mines in the Qinshui coal

收稿日期: 2023-04-04 修回日期: 2023-08-08 责任编辑: 王晓珍 DOI: 10.13225/j.cnki.jccs.2023.0433

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (42302198, U23A20601); 合肥综合性国家科学中心能源研究院重大培育资助项目 (21KZS215)

作者简介: 张 苗 (1992—), 男, 安徽淮北人, 副教授, 博士。E-mail: 1534871800@qq.com

通讯作者: 刘钦节 (1980—), 男, 山东临沂人, 教授, 博士。E-mail: qjliu@aust.edu.cn

引用格式: 张苗, 刘钦节, 王兴阵, 等. 整合压汞、 N_2 和 CO_2 吸附的中-高阶煤多重分形特征[J]. 煤炭学报, 2024, 49(5): 2394-2404.

ZHANG Miao, LIU Qinjie, WANG Xingzhen, et al. Multiple fractal characterization of medium-high rank coal integrating mercury intrusion porosimetry, N_2 and CO_2 adsorption experiments[J]. Journal of China Coal Society, 2024, 49(5): 2394-2404.



移动阅读

field were collected to investigate the evolution of the multiple fractal characteristics of medium-high rank coals macropores (> 50 nm), mesopores (2–50 nm) and micropores (< 2 nm) during coalification and their influencing factors by using multifractal theories and integrating the mercury intrusion porosimetry, low temperature nitrogen gas adsorption and low temperature carbon dioxide adsorption experiments, respectively. The results show that the generalized dimensional spectrum (D_q-q) and the multifractal singular spectrum ($f(\alpha)-\alpha$) of macro-, meso- and micropores of medium-high rank coals both satisfy the multifractal characteristics, which implies that the macro-, meso- and micropores of medium-high rank coals all exhibit multifractal behavior. Compared with macropores and mesopores, micropores have stronger non-homogeneity and lower pore connectivity exhibiting larger α_0 and ΔD values and smaller H values. Coalification promotes the aggregation of macromolecules in coal, which changes the coal reservoir type from macropores dominant reservoir and macropores-micropores coexisting reservoir to micropores dominant reservoir, and the pore size distribution of different scales in coal tends to be homogenized, leading to the improvement of pore structure homogeneity and pore connectivity in medium-high rank coal reservoirs. Macropore and micropore volume fractions have positive and negative effects on pore structure heterogeneity in their respective pore size ranges, while mesopore volume fraction is not an effective constraint on mesopore pore size distribution heterogeneity. The vitrinite and inertinite groups show opposite effects on the heterogeneity of pore size distribution, with a positive correlation between V/I and H values and a negative correlation with α_0 . Vitrinite-rich coals develop more micropores and thus showing stronger pore structure homogeneity and better pore connectivity.

Key words: medium-high rank coal; coalification; multi-scale pores; multiple fractal; Qinshui coal field

由于复杂的 3D 特征,煤储层孔隙结构表现出很强的非均质性,这是传统几何学原理无法准确描述的^[1]。分形理论的引入为描述多孔介质孔隙结构非均质性提供了有力工具^[2-3]。近年来,图像分析法(扫描电镜等)^[4]、流体注入法(高压压汞、低温 N₂ 和 CO₂ 吸附)^[5]和非流体注入法(低场核磁共振(Low Field Nuclear Magnetic Resonance, LF-NMR)、计算机断层扫描(Computed Tomography, CT)和中子/小角散射等)^[6-7]等技术及相应的分形模型(Menger 海绵模型、Brunauer-Emmett-Teller(BET)模型、Frenkel-Halsey-Hill (FHH)模型和 Langmuir 模型等)被广泛用于孔隙结构分形特征的研究^[8-11]。然而,分形几何只能描述有限区间内孔隙的不规则性,对孔隙结构进行整体、平均的表征,不能描述物体的异质性和局部尺度属性,无法准确反映不同区域、不同层次、不同局域条件下随机波动的多尺度孔隙的非均质性^[12-13]。多孔介质孔径分布是随机的,孔径区间可能表现出各种类型的自相似性,不同部位间或部位与整体结构间的异质性强度存在明显差异,需要多个分形维度来描述统计尺度行为^[14-15]。作为分形的扩展或单分形性质的叠加,多重分形理论被广泛应用于煤岩孔隙结构非均质性特征^[16-18]、煤岩力学-声学-电学性质演化^[19-20]和矿井瓦斯地质规律预测^[21]等方面。多重分形能够在反映多孔介质孔径分布整体特征的基础上,表征多孔介质不同孔径间隔内的分形特征,通过将传统单分形方法的单一分形维数扩展为连续谱函数,对多孔介质孔隙

结构非均质性特征开展更全面准确的描述。煤储层孔隙孔径范围从几纳米到几千微米,跨越几个数量级,呈现多尺度性,随多孔介质孔隙结构表征向多技术综合方向发展,整合多种技术结合多重分形理论探究煤储层不同尺度孔隙结构及其非均质性的必要性被提出^[12]。

不同类型构造煤孔隙结构多重分形特征的研究已见诸报道^[12, 14, 17]。然而,整合各类测试技术的表征优势,利用多重分形理论研究不同煤阶煤多尺度孔隙结构非均质性特征在煤化作用过程中的演化趋势尚待深入。针对采集自沁水煤田不同生产矿井主采煤层的中-高阶煤样品,整合压汞、N₂ 和 CO₂ 吸附实验分别表征中-高阶煤的宏孔(> 50 nm)、介孔(2~50 nm)和微孔(< 2 nm)结构特征实现煤储层多尺度孔隙结构的定量表征,并利用多重分形理论基于盒计数法获取中-高阶煤宏孔、介孔和微孔的多重分形奇异谱($f(\alpha)-\alpha$)和广义维数谱(D_q-q)及相关参数,分析中-高阶煤不同尺度孔隙结构的多重分形特征,表征不同尺度孔隙结构非均质性和孔隙连通性,探究煤化作用过程中煤储层不同尺度孔隙结构非均质性及孔隙连通性的演化规律,揭示煤化作用对煤储层不同尺度孔隙结构差异演化的影响。研究结果对进一步揭示煤储层不同尺度孔隙结构非均质性和孔隙连通性差异演化特征具有重要意义,有助于深入研究煤层气的渗流和运移过程,可以为深入认识煤层气的保存和富集机理、促进煤层气的勘探开发提供依据。

1 实验方法与多重分形理论

1.1 采样背景与实验方法

沁水煤田是我国 2 个地质储量千亿级的煤层气产业基地之一,是中国煤层气开发最集中、生产最活跃的地区,日产气 600 万 m³,累计产气突破 100 亿 m³,是促进能源结构转型、实现“双碳”目标的煤层气开发示范工程^[22]。柿庄南区块位于沁水煤田东南缘西北倾斜坡带上,区块面积约 763.2 km²,含气面积 187.80 km²,是我国最具规模化开采和发展煤层气产业潜力的高产区之一,目前已进入大规模开发阶段,形成了 10 亿 m³ 的产能建设^[23];榆社—武乡区块位于沁水煤田中东部,榆社—武乡断裂背斜构造带,面积 1 219.72 km²,预测煤层气资源量高达 2 414 亿 m³,单井日产气量高达 6 000 m³,具有极大的勘探开发潜力^[24]。19 个实验煤样分别采集自沁水煤田柿庄南区块周边的伯方、长平、野川、高良和赵庄煤矿,榆社—武乡区块周边的马堡、新村、槐安、三元福达、东庄、

温庄、新庄、石板沟和下良煤矿及沁水煤田西南缘古县的老母坡煤业和中强福山煤业等 16 个生产矿井的主采煤层。

根据国家标准对实验煤样开展了工业分析和镜质体最大反射率 $R_{o,max}$ 的测定(表 1),对煤样开展了压汞、N₂ 和 CO₂ 吸附实验。压汞实验在 AutoPore IV 9500 压汞仪上进行,孔隙结构参数利用 Pore Master 软件根据 Washburn 方程计算。实验样品中没有低阶煤,避免了压汞数据的压缩校正。N₂ 和 CO₂ 吸附实验在 autosorb IQ-MP 全自动微孔分析仪上进行,实验温度分别为 77 K 和 273.15 K,相对压力分别设置为 0.001~0.998 和 0.000 1~0.030 0。通过测定不同相对压力下的气体吸附量,得到吸附等温线,然后采用 Barrett-Joyner-Halenda (BJH) 模型利用 N₂ 吸附分支分析介孔段孔径分布特征,采用 Density functional theory (DFT) 模型分析 CO₂ 吸附数据获取微孔段孔径分布特征,然后整理压汞、N₂ 和 CO₂ 吸附实验数据多尺度表征中—高阶煤的孔隙结构特征(表 1)。

表 1 中—高阶煤样基础物性参数

Table 1 Basic physical parameters of middle-high rank coals

生产矿井	$R_{o,max}/\%$	镜质组含量/%	惰质组含量/%	$V_{daf}/\%$	宏孔体积分数/%	介孔体积分数/%	微孔体积分数/%
马堡	1.52	43.35	56.65	19.51	51.18	0.27	48.55
新村	1.54	75.77	24.23	18.00	50.88	0.21	48.91
槐安	1.54	50.84	49.16	22.93	40.06	1.58	58.36
三元福达	1.59	86.59	13.41	16.08	59.70	0.45	39.85
东庄	1.63	68.88	31.12	28.29	61.66	1.05	37.29
温庄	1.73	68.31	31.69	16.00	45.76	0.41	53.83
新庄	1.88	82.30	17.70	29.80	62.86	0.54	36.60
石板沟	1.97	87.75	12.25	17.10	53.15	0.74	46.11
下良	2.04	57.05	42.95	16.77	25.59	0.56	73.85
老母坡	2.21	77.67	22.33	21.73	10.73	0.33	88.93
赵庄	2.48	79.35	18.22	11.50	13.50	0.29	86.21
长平-1	2.51	77.88	19.47	8.84	19.64	0.44	79.92
伯方-1	2.52	80.51	12.29	9.76	27.84	0.45	71.71
伯方-2	2.59	78.09	17.62	9.35	18.13	0.36	81.51
长平-2	2.59	69.74	15.35	11.90	41.44	4.55	54.01
高良	2.72	88.75	5.42	9.29	20.76	0.39	78.84
野川	2.75	83.04	12.61	8.16	12.13	0.31	87.55
伯方-3	2.78	85.53	8.77	9.59	14.76	0.42	84.82
中强福山	3.09	78.60	21.40	7.23	18.42	0.78	80.80

1.2 多重分形理论

在执行多重分形分析时,将压汞、N₂ 和 CO₂ 吸附实验的压力或相对压力区间作为总区间,利用二分法将其划分为 N 个尺度为 ε 的区间间隔^[12, 16]。将第 i 个区间的质量概率函数 $p_i(\varepsilon)$ 定义为尺度 ε 的指数函数:

$$p_i(\varepsilon) \sim \varepsilon^{\alpha_i}$$

式中, α_i 为奇异性指数,可反映局部的奇异强度,其值越高代表数据的平滑或规则性或整齐性越高;相反则代表数据变化程度越大或非均质性越强^[25]。

对于具有多重分形行为的盒子,随尺度 ε 的增加盒子数目 $N(\varepsilon)$ 呈指数增加:

$$N_a(\varepsilon) \sim \varepsilon^{-f(a)}$$

其中, $N_\alpha(\varepsilon)$ 为在 α 至 $\alpha+d\alpha$ 之间质量函数具有奇异强度的盒子数量; $f(\alpha)$ 代表多重分形奇异谱, 是具有相同奇异性指数的子集的分形维数。可以根据 CHH-ABRA 和 JENSEN^[26] 提出的方程计算 α 和 $f(\alpha)$:

$$\alpha \propto \left[\sum_{i=1}^{N(\varepsilon)} \mu_i(q, \varepsilon) \ln p_i(\varepsilon) \right] / \ln \varepsilon$$

$$f(\alpha) \propto \left[\sum_{i=1}^{N(\varepsilon)} \mu_i(q, \varepsilon) \ln \mu_i(q, \varepsilon) \right] / \ln \varepsilon$$

其中, $\mu_i(q, \varepsilon)$ 为概率测度族

$$\mu_i(q, \varepsilon) = \frac{p_i^q(\varepsilon)}{\sum_{i=1}^{N(\varepsilon)} p_i^q(\varepsilon)}$$

定义配分函数 $\chi(q, \varepsilon)$ 为

$$\chi(q, \varepsilon) = \sum_{i=1}^{N(\varepsilon)} p_i^q(\varepsilon)$$

其中, q 为统计矩阶 ($-\infty < q < +\infty$), 本文 q 取值范围为 $[-10, 10]$ 。当 $q \gg 1$ 时, 高概率区域 (稠密区/高值区) 的信息被放大; 当 $q \ll -1$ 时, 小概率区域 (稀疏区/低值区) 的信息被放大^[27]。

对于给定的 q , $\chi(q, \varepsilon)$ 与 ε 之间满足幂律关系:

$$\chi(q, \varepsilon) \propto \varepsilon^{-\tau(q)}$$

式中, $\tau(q)$ 为质量指数, 是分形行为的特征函数, 通过 $\chi(q, \varepsilon)$ 与 ε 的双对数曲线斜率计算。

$D_q - q$ 是与 $f(\alpha) - \alpha$ 等价的数学描述。 D_q 与 $\tau(q)$ 存在以下关系^[28]:

$$\tau(q) = (q - 1) D_q$$

其中, $q \neq 1$, $q < 0$ 反映低孔隙度区域孔隙分布特征; $q > 0$ 则强调了高孔隙度区域孔隙分布特征。

为保证奇异谱和广义维数谱的连续性, $q=1$ 时采用洛必达法则获得广义分形维数:

$$D_1 = \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \frac{1}{\lg \varepsilon} \sum_{i=1}^{N(\varepsilon)} p_i(1, \varepsilon) \lg [p_i(1, \varepsilon)]$$

通过获得质量概率、配分函数、质量指数和广义分形维数可以绘制广义维数谱 $D_q - q$ 和多重分形奇异谱 $f(\alpha) - \alpha$, 获得相关的多重分形参数, 其中 D_0 、 D_1 和 D_2 分别是容量维数、信息维数和关联维数, D_2 可用赫斯特指数 (Hurst, H) 表示:

$$D_2 = 2H - 1$$

H 又称长程相关指数, 为 0.5~1.0, 可用于描述不同孔径段内局部孔隙度分布的相关程度^[17, 26]。

多重分形参数中, H 和 α_0 被用于孔隙结构非均质性和孔隙连通性的定量表征。 α_0 可以指示孔隙体积分布的集中程度, 其值越大, 孔隙空间变异性越强, 孔隙体积局部分布波动性也大, 分布区间越窄, 孔径分布差异程度越大, 孔隙结构越复杂。较大的 H 值表明不同孔径段之间孔隙团的关联性越强, 均匀程度越高, 孔隙连通性越好^[17-18]。

2 实验结果

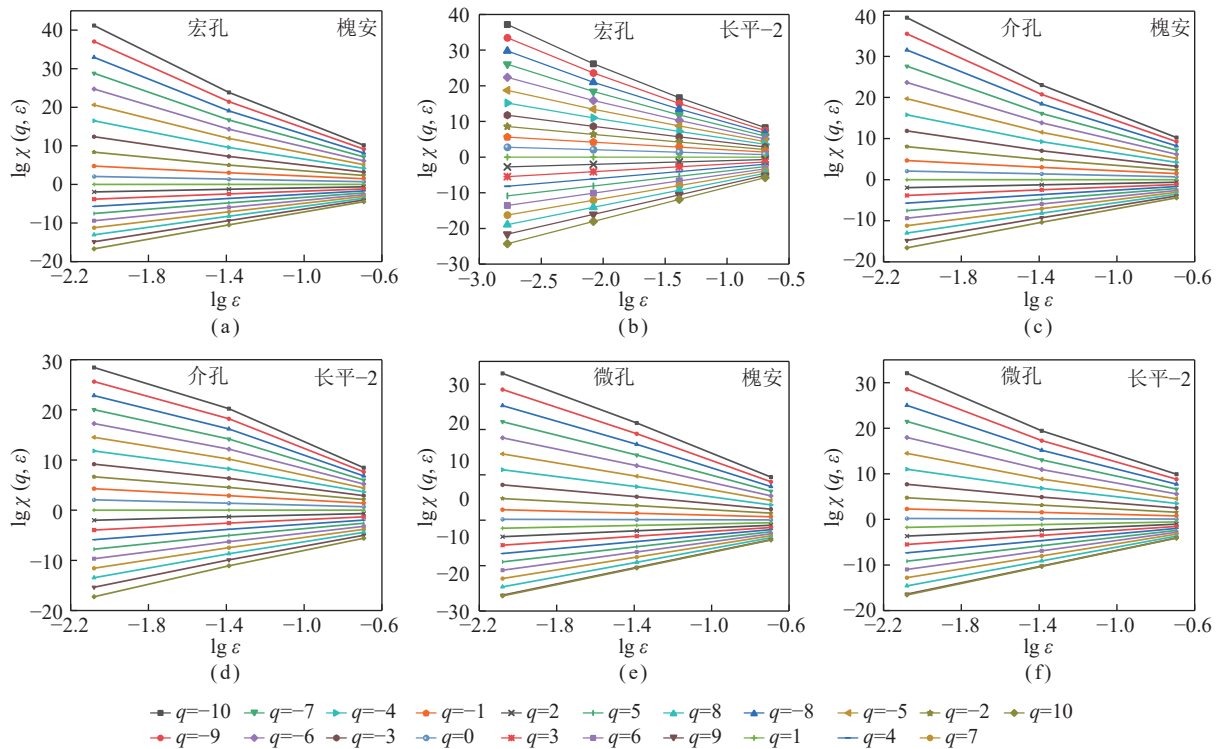
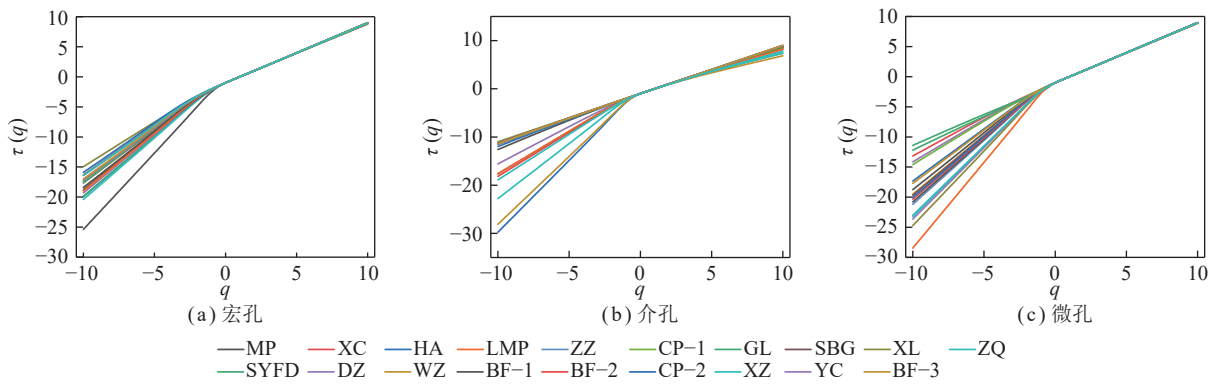
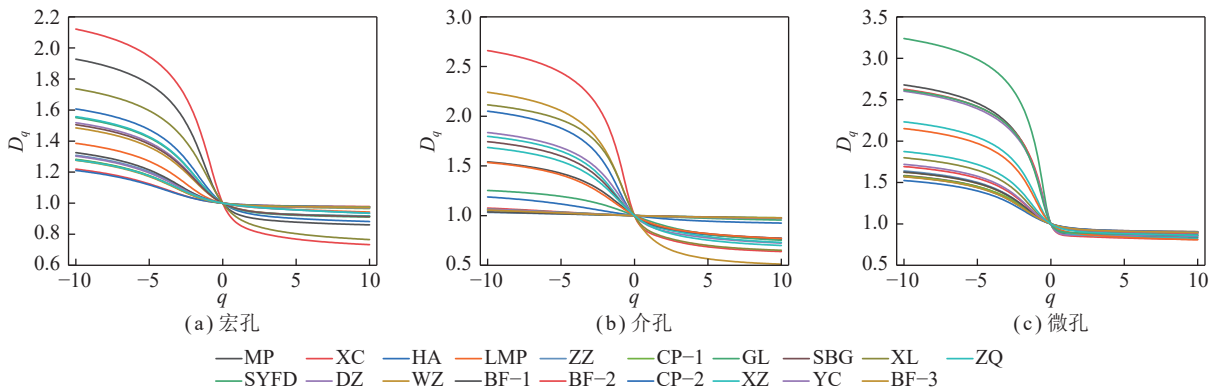
2.1 中-高阶煤多尺度孔隙的广义分形特征

以压汞、N₂ 和 CO₂ 吸附实验数据分别表征中-高阶煤宏孔、介孔和微孔的多重分形行为。以 $q=1$ 为区间间隔, 在 $q=-10$ 到 $q=10$ 的连续间隔内, 中-高阶煤宏孔、介孔和微孔的配分函数 $\lg \chi(q, \varepsilon)$ 与尺度 ε 之间的拟合曲线表现出强线性关系 (图 1), 满足标度不变性^[29], 这意味着中-高阶煤的宏孔、介孔和微孔均具有多重分形特征。当 $q \leq 0$, 配分函数拟合曲线具有负斜率; 当 $q > 0$, 配分函数拟合曲线显示出明显线性行为的正斜率并趋于稠密, 表明宏孔、介孔和微孔集中在表征孔径段的小尺度孔径范围内。相对于宏-介孔, 微孔双对数曲线更为稀疏, 意味着所对应尺度范围内的微孔孔径分布差异相对较强。

中-高阶煤宏孔、介孔和微孔的 $\tau(q)$ 随 q 增加严格递增, 呈上凸的非线性变化, 且 $\tau_{q+} > \tau_q$ (图 2)。宏孔、介孔和微孔的 $D_q - q$ 曲线呈单调递减的反 S 形, 当 $q < 0$ 时, 低概率测域 D_q 随 q 增大而迅速减小; 当 $q > 0$ 时, 高概率测域 D_q 随 q 增大而缓慢减小。随 q 增加, $D_q - q$ 曲线斜率绝对值逐渐减小 (图 3)。中-高阶煤宏孔、介孔和微孔的 $\tau(q) - q$ 和广义维数谱 $D_q - q$ 曲线形态均满足多重分形特征。

中-高阶煤宏孔、介孔和微孔的 $\tau(q) - q$ 和 $D_q - q$ 曲线存在差异明显的代表稀疏区 (孔隙体积低值区) 的宽分支 ($q < 0$) 和代表密集区 (孔隙体积高值区) 的窄分支 ($q > 0$), $\tau(q) - q$ 和 $D_q - q$ 曲线左宽右窄的形态意味着中-高阶煤宏孔、介孔和微孔孔径分布不均匀, 存在多尺度性, 左分支的剧烈变化意味着表征孔径段范围内较小孔隙孔径分布非均质性更显著, 右侧曲线变化幅度较小, 呈直线趋势, 意味着表征孔径段范围内较大孔隙孔径分布较为均一。

宏孔、介孔和微孔 D_q 曲线交汇于点 (0, 1), 这意味着宏孔、介孔和微孔的容量维数 D_0 为 1, 每个孔隙子区间均包含孔隙体积数据, 对应一维分布的欧式维数, D_0 、 D_1 和 D_2 之间均满足 $D_0 > D_1 > D_2$, 表明煤储层不同尺度孔隙结构非均质性应利用多重分形模型来表征而不是单分形模型, 这与 $\lg \chi(q, \varepsilon) - \lg \varepsilon$ 双对数

图1 中-高阶煤宏孔、介孔和微孔的配分函数 $\lg \chi(q, \varepsilon) - \lg \varepsilon$ 曲线Fig.1 $\lg \chi(q, \varepsilon) - \lg \varepsilon$ plots of the partition function for macro-, meso- and micropores in middle-high rank coals图2 中-高阶煤宏孔、介孔和微孔的 $\tau_q - q$ 曲线Fig.2 $\tau_q - q$ curves for macro-, meso- and micropores in middle-high rank coals图3 中-高阶煤宏孔、介孔和微孔的广义维数谱 $D_q - q$ 曲线Fig.3 $D_q - q$ curves for macro-, meso- and micropores in middle-high rank coals

曲线判断结果一致。

2.2 中-高阶煤多尺度孔隙的多重分形奇异谱 $f(\alpha)-\alpha$ 特征

奇异谱 $f(\alpha)-\alpha$ 和广义维数谱 (D_q-q) 可以同等量化研究对象的异质性强度, 稀疏区、密集区以及不同密度区之间的异质性差异^[16-17]。中-高阶煤宏孔、介孔和微孔的 $f(\alpha)-\alpha$ 曲线均呈一定对称性的连续上凸抛物线形态 (图 4)。当 $q < 0$ 时, $f(\alpha)$ 随奇异性指数 α 增加而增加; 当 $q > 0$ 时, $f(\alpha)$ 随 α 增加而减小, 具有负斜率的曲线部分比具有正斜率的曲线部分更宽且延伸更长, 这是中-高阶煤宏孔、介孔和微孔分布表现出多重分形特征的另一证据。 Δf 表示相关物理参数子集中元素数量在最大和最小处的比例^[17]。中-高阶

煤宏孔、介孔和微孔的 Δf 均小于 0, $f(\alpha)-\alpha$ 谱呈左钩状, 意味着中-高阶煤宏孔、介孔和微孔中稀疏区占主导地位。 $f(\alpha)-\alpha$ 谱的对称性差异表明中-高阶煤宏孔、介孔和微孔孔径分布具有多重分形特征, 不同样品奇异谱左右分支的形态差异也很好地反映了中-高阶煤宏孔、介孔和微孔不同密度区孔隙孔径分布的复杂性。奇异谱的对称性可以表示为 R_d , 向左倾斜 ($R_d > 0$) 表明测量值受密集区的影响, 而向右倾斜 ($R_d < 0$) 表示测量值依赖于稀疏区。除三元福达煤样介孔 R_d 为正值外, 中-高阶煤储层宏孔、介孔和微孔的 R_d 值均为负值 (表 2), 随煤化作用增加, 宏孔、介孔和微孔的 R_d 呈增大趋势 (图 5), 即中-高阶煤宏孔、介孔和微孔孔径分布主要由稀疏区主导, 煤化作用程度越小, 煤多

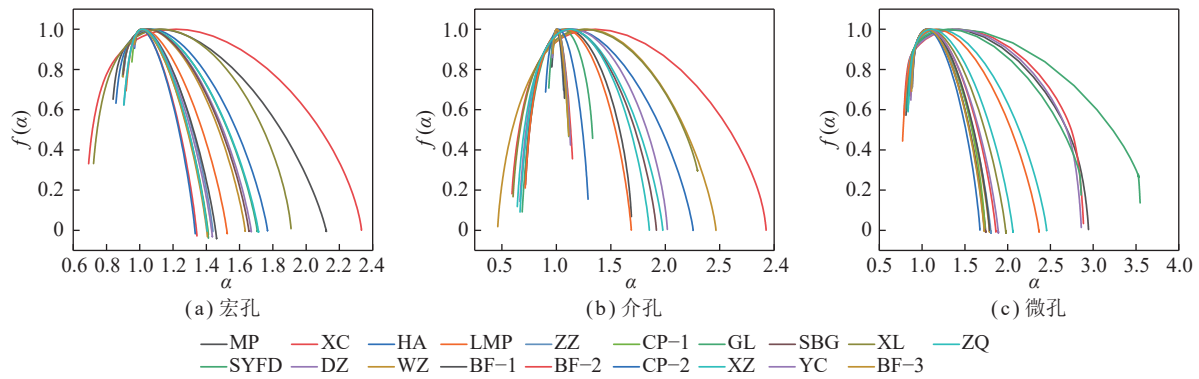


图 4 中-高阶煤宏孔、介孔和微孔的 $f(\alpha)-\alpha$ 曲线

Fig.4 $f(\alpha)-\alpha$ curves for macro-, meso- and micropores in middle-high rank coals

表 2 中-高阶煤宏孔、介孔和微孔的多重分形参数

Table 2 Multifractal parameters of macro, meso and micropores in middle and high rank coals

样品	宏孔			介孔			微孔		
	H	α_0	R_d	H	α_0	R_d	H	α_0	R_d
马堡	0.952	1.118	-0.724	0.939	1.095	-0.213	0.937	1.355	-1.046
新村	0.912	1.218	-0.589	0.887	1.357	-0.804	0.924	1.424	-0.825
槐安	0.965	1.067	-0.490	0.934	1.149	-0.685	0.966	1.065	-0.489
三元福达	0.971	1.055	-0.493	0.950	1.056	0.093	0.942	1.429	-1.518
东庄	0.973	1.050	-0.475	0.923	1.152	-0.381	0.932	1.395	-0.916
温庄	0.974	1.047	-0.440	0.844	1.282	-0.363	0.966	1.068	-0.547
新庄	0.972	1.054	-0.512	0.934	1.117	-0.409	0.935	1.199	-0.863
石板沟	0.973	1.049	-0.458	0.939	1.113	-0.409	0.969	1.060	-0.508
下良	0.931	1.130	-0.372	0.893	1.257	-0.384	0.963	1.089	-0.671
老母坡	0.987	1.023	-0.398	0.943	1.082	-0.237	0.940	1.162	-0.814
赵庄	0.985	1.019	-0.307	0.997	1.003	-0.020	0.968	1.066	-0.555
长平-1	0.992	1.014	-0.337	0.996	1.004	-0.076	0.959	1.078	-0.439
伯方-1	0.992	1.016	-0.402	0.997	1.003	-0.026	0.960	1.075	-0.486
伯方-2	0.994	1.009	-0.299	0.995	1.006	-0.098	0.962	1.080	-0.564
长平-2	0.994	1.009	-0.283	0.984	1.019	-0.153	0.970	1.054	-0.448
高良	0.993	1.013	-0.359	0.994	1.006	-0.039	0.945	1.302	-1.094
野川	0.991	1.015	-0.371	0.996	1.005	-0.081	0.971	1.076	-0.607
伯方-3	0.992	1.013	-0.350	0.996	1.004	-0.073	0.967	1.063	-0.476
中强福山	0.988	1.017	-0.275	0.920	1.123	-0.250	0.954	1.111	-0.675

重分形奇异谱的左钩状越明显。

2.3 不同级别孔隙多重分形行为差异

中-高阶煤不同尺度孔隙孔径分布非均质性存在明显差异。微孔具有更高的 $\alpha_0(1.17)$ 和谱宽 $\Delta D(1.12)$ 与较低的 $H(0.954)$, 宏-介孔表现出较低的 $\alpha_0(1.05$ 和 $1.096)$ 和 $\Delta D(0.55$ 和 $0.71)$ 值与更大的 $H(0.975$ 和 0.951 ; 表 2), 表明微孔团聚现象明显, 分布不均匀且孔隙连通性较差, 而宏-介孔孔径分布均匀程度更高, 孔隙连通性更好, 这与 $\tau(q)-q$ 和 D_q-q 曲线左宽右窄的形态一致, 也得到对称性参数 R_d 的验证。简单的孔隙结构可以有效改善孔隙连通性^[12], 无论是微孔还是

宏-介孔, 孔隙连通性都随非均质性的降低而增加。较大的孔隙往往具有更高的配位数, 与更多的喉道相连, 随孔隙孔径的减小, 喉道损坏, 孔隙塌陷和化学键的断裂造成更高的非均质性孔隙网络和更短的介质长度, 导致小孔隙连通性的丧失和非均质性的增强^[30-31]。

3 中-高阶煤多尺度孔隙多重分形特征影响因素

3.1 孔隙结构的影响

孔隙结构对孔径分布非均质性具有复杂的影响。中-高阶煤宏孔体积分数与 H 之间呈负相关, 与 α_0 之间呈正相关 (图 6(a))。

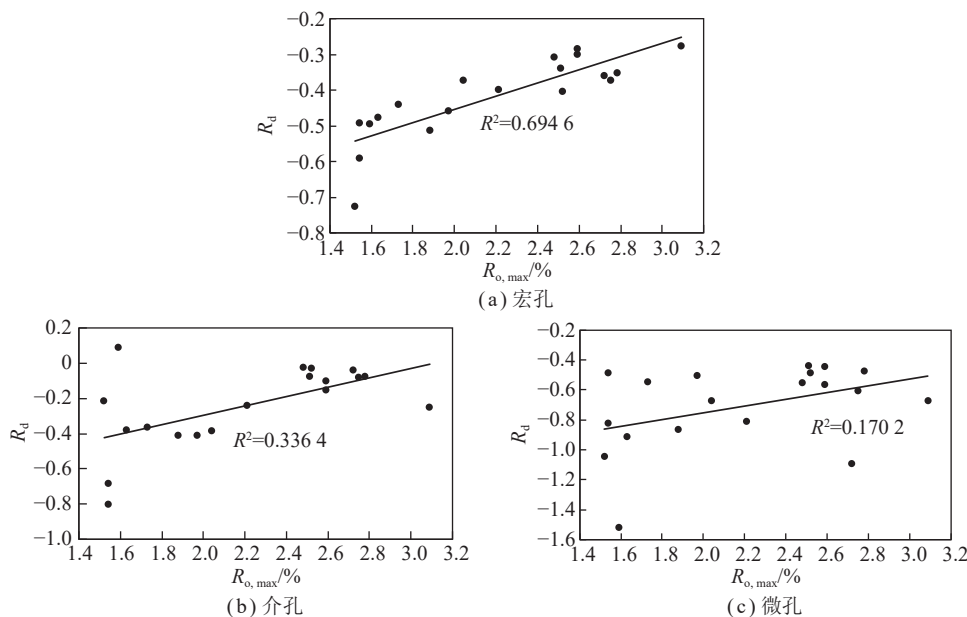


图 5 中-高阶煤宏孔、介孔和微孔 R_d 与 $R_{o,max}$ 之间的关系

Fig.5 Relationships between R_d of macro-, meso- and micropore with $R_{o,max}$ for middle-high rank coals

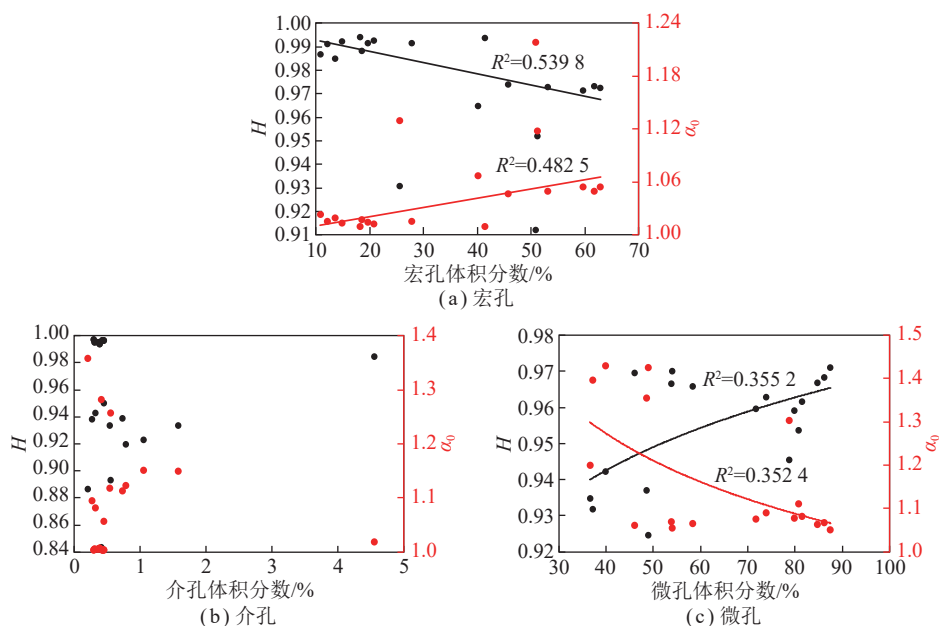


图 6 宏孔、介孔和微孔 H 和 α_0 与其孔隙体积分数之间的关系

Fig.6 Relationships between pore volume fractions of macro-, meso- and micropores with H and α_0

随宏孔体积分数的增加, 宏孔非均质性增强, 孔隙连通性降低; 而微孔体积分数与 H 之间呈正相关关系, 与 α_0 之间呈负相关关系 (图 6(c)), 随微孔体积分数的增加, 微孔孔径分布的非均质性减弱, 孔隙连通性增强, 而介孔体积不是孔隙非均质性的有效约束, 介孔体积分数与多重分形参数间的相关性较低 (图 6(b))。

3.2 煤化作用的影响

$R_{o,max}$ 和 V_{daf} 是反映煤化作用程度的有效指标, V_{daf} 对孔隙结构非均质性的影响与 $R_{o,max}$ 相反 (图 7)。随 $R_{o,max}$ 增加, 中-高阶煤宏孔、介孔和微孔的 H 呈增大趋势, 而 α_0 呈减小趋势 (图 8)。中-高阶煤 ($R_{o,max}$ 为 1.52%~3.09%) 经历了第 2 次和第 3 次煤化跃变, 芳构化和环缩合作用增强, 促进了煤中大分子的聚合, 形成的烃类和非烃类化合物嵌入或吸附在煤大分子结构缺陷中, 减少了大分子结构单元层间和内部空间的晶格缺陷^[32-33], 导致宏孔和介孔比例减小, 微孔比例增大 (图 7), 煤基质变得更加紧密, 煤储层由宏孔优势型 (宏孔比例大于 60%) 和宏孔-微孔并存型 (微孔和宏孔为 40%~60%, 近于同等发育) 储层转变

为更为致密的微孔优势型储层 (微孔比例大于 60%, 图 9), 孔隙结构均质性增强^[34-35]。煤化作用过程中, 上覆地层的岩石静压可以打开不同封闭和半封闭孔隙之间的介质屏障, 更多的封闭孔隙被打开和连通; 其次, 随有机小分子的溶解和热成因甲烷的排出, 烟煤阶段被有机小分子阻塞的封闭孔被打开, 形成新的连通孔隙, 导致整个孔隙的连通域增加, 改善了孔隙的连通性^[36-38]。

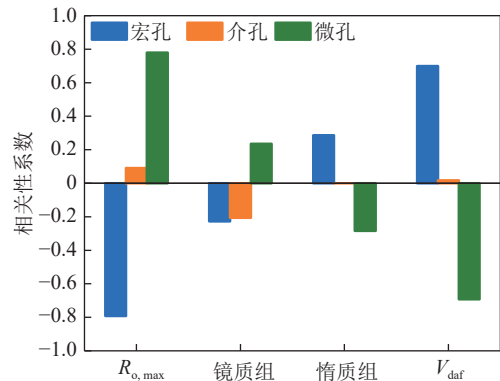


图 7 孔隙结构影响因素

Fig.7 Pore structure influencing factors

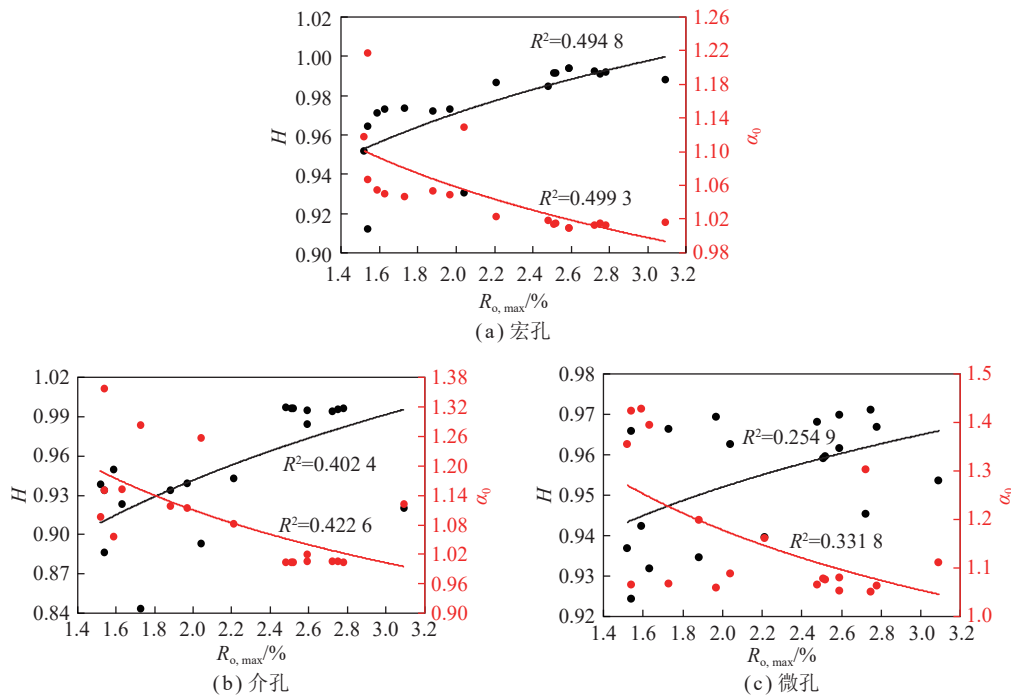


图 8 中-高阶煤多尺度孔隙的 H 和 α_0 与 $R_{o,max}$ 之间的关系

Fig.8 Relationship between H 、 α_0 and $R_{o,max}$ of multi-scale pores in middle-high rank coals

3.3 显微组分的影响

镜质组和惰质组对孔隙结构非均质性的影响相反。镜质比 (V/I) 与宏孔、介孔和微孔的 H 值之间存在正相关性, 与 α_0 呈负相关性, 即随煤样镜质比的增加, 中-高阶煤宏孔、介孔和微孔孔径分布非均质性降低, 孔隙连通性有一定程度的改善 (图 10)。镜质组具

有较强的热塑性和产甲烷能力, 更易于发育气孔和致密组织孔^[39-40], 镜质组含量与宏-介孔体积分数之间呈负相关, 而与微孔体积分数之间呈正相关; 惰质组具有相对较大的细胞腔, 不利于微孔发育^[41], 随惰质组含量增加, 煤储层宏-介孔体积分数增加, 而微孔体积分数降低 (图 7)。因此, 相对于富惰质组煤, 富镜质

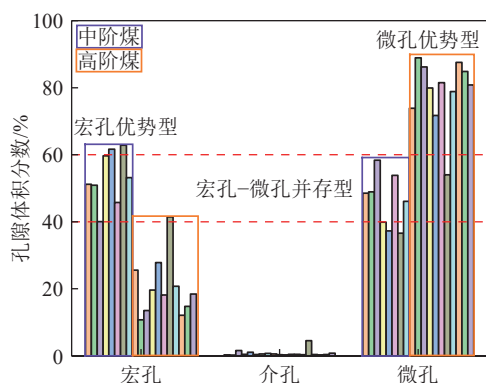
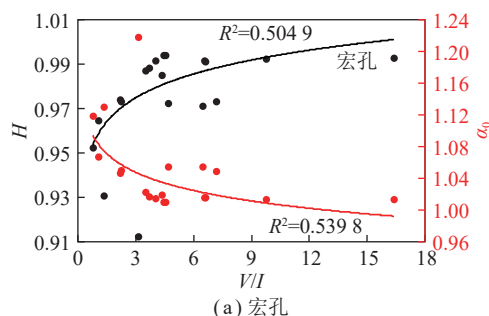


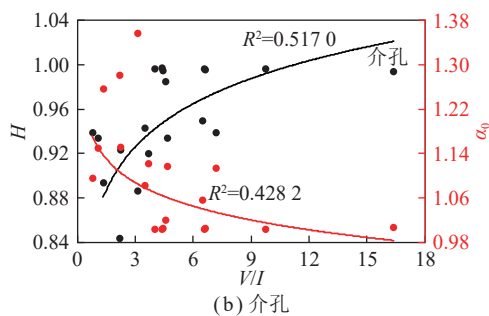
图9 中-高阶煤孔隙体积分布特征

Fig.9 Pore volume distribution of coal samples in middle-high rank coals

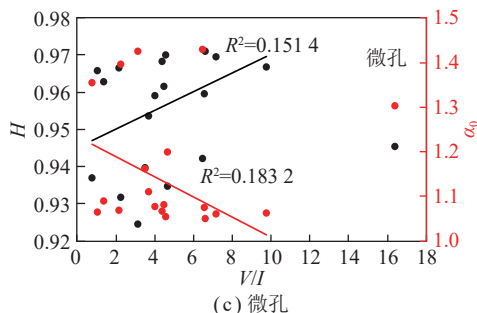
组煤发育更多比例的微孔,从而表现出较弱的非均质性和更好的孔隙连通性。



(a) 宏孔



(b) 介孔



(c) 微孔

图10 中-高阶煤镜惰比 (V/I) 与 H 和 α_0 之间的关系Fig.10 Relationships between vitrinite inertinite ratio (V/I) and H 、 α_0 in middle-high rank coals

4 结 论

(1) 中-高阶煤宏孔、介孔和微孔孔径分布均表现

出多重分形特征,孔隙稀疏区域对孔径分布的影响比孔隙集中区域更明显。相对于宏-介孔,微孔表现出更强的非均质性和更弱的孔隙连通性。孔隙连通性随非均质程度的降低而增加,均质孔隙表现出更好的孔隙连通性。

(2) 宏孔和微孔体积分数对其相应孔径范围内孔隙结构非均质性分别存在积极和消极的影响,而介孔与其非均质性之间并未观察到明显的相关性。

(3) 煤化作用过程中,中-高阶煤宏孔、介孔和微孔孔隙结构趋于均质化。相对于富惰质组煤,富镜质组煤发育更多比例的微孔而表现出更均质的孔隙结构和更好的孔隙连通性。

参考文献(References):

- [1] 李祥春,高佳星,张爽,等.基于扫描电镜、孔隙-裂隙分析系统和气体吸附的煤孔隙结构联合表征[J].地球科学,2022,47(5):1876-1889.
LI Xiangchun, GAO Jiaxing, ZHANG Shuang, et al. Combined characterization of scanning electron microscopy, pore and crack analysis system, and gas adsorption on pore structure of coal with different volatilization[J]. Earth Science, 2022, 47(5): 1876-1889.
- [2] MANDELBROT B B. Stochastic models for the Earth's relief, the shape and the fractal dimension of the coastlines, and the number-area rule for islands[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 1975, 72(10): 3825-3828.
- [3] 傅雪海,秦勇,张万红,等.基于煤层气运移的煤孔隙分形分类及自然分类研究[J].科学通报,2005,50(S1):51-55.
FU Xuehai, QIN Yong, ZHANG Wanhong, et al. Study on fractal classification and natural classification of coal pores based on coal-bed methane migration[J]. Chinese Science Bulletin, 2005, 50(S1): 51-55.
- [4] 鲍园,安超.基于FE-SEM的微生物降解煤岩孔隙演化特征[J].煤炭学报,2022,47(11):4105-4112.
BAO Yuan, AN Chao. Evolution characteristics of coal pore structure by biodegradation based on FE-SEM[J]. Journal of China Coal Society, 2022, 47(11): 4105-4112.
- [5] 李腾,王海超.不同脱气温度下低阶煤孔隙结构特征:以新疆吐哈盆地西山窑组褐煤为例[J].煤炭学报,2021,46(S1):414-422.
LI Teng, WANG Haichao. Pore structure characteristics of low-rank coal under various degassing temperatures: A case study of lignite from Xishanyao Formation, Turpan-Hami Basin, Xinjiang[J]. Journal of China Coal Society, 2021, 46(S1): 414-422.
- [6] 徐吉钊,翟成,桑树勋,等.基于低场核磁共振技术的液态 CO_2 循环致裂煤体孔隙特征演化规律[J].煤炭学报,2021,46(11):3578-3589.
XU Jizhao, ZHAI Cheng, SANG Shuxun, et al. Pore evolution of coals affected by cyclical liquid CO_2 fracturing based on the low-field nuclear magnetic resonances[J]. Journal of China Coal Society, 2021, 46(11): 3578-3589.
- [7] 周宏伟,刘泽霖,孙晓彤,等.深部煤体注水过程中渗流通道演化特

- 征[J]. 煤炭学报, 2021, 46(3): 867–875.
- ZHOU Hongwei, LIU Zelin, SUN Xiaotong, et al. Evolution characteristics of seepage channel during water infusion in deep coal samples[J]. *Journal of China Coal Society*, 2021, 46(3): 867–875.
- [8] 孙魁, 苗彦平, 陈小绳, 等. 鄂尔多斯盆地北部直罗组赋存特征及富水性[J]. 煤炭学报, 2022, 47(10): 3572–3598.
- SUN Kui, MIAO Yanping, CHEN Xiaosheng, et al. Occurrence characteristics and water abundance of Zhiluo Formation in northern Ordos Basin[J]. *Journal of China Coal Society*, 2022, 47(10): 3572–3598.
- [9] 李树刚, 周雨璇, 胡彪, 等. 低阶煤吸附孔结构特征及其对甲烷吸附性能影响[J]. 煤田地质与勘探, 2023, 51(2): 127–136.
- LI Shugang, ZHOU Yuxuan, HU Biao, et al. Structural characteristics of adsorption pores in low-rank coals and their effects on methane adsorption performance[J]. *Coal Geology & Exploration*, 2023, 51(2): 127–136.
- [10] 陈富瑜, 周勇, 杨栋吉, 等. 基于分形理论的致密砂岩储层孔隙结构研究: 以鄂尔多斯盆地庆城地区延长组长 7 段为例[J]. 中国矿业大学学报, 2022, 51(5): 941–955.
- CHEN Fuyu, ZHOU Yong, YANG Dongji, et al. Study of pore structure of tight sandstone reservoir based on fractal theory: A case study from Chang 7 tight sandstone of Yanchang Formation in Qingcheng Area, Ordos Basin[J]. *Journal of China University of Mining & Technology*, 2022, 51(5): 941–955.
- [11] 杨明, 柳磊, 刘佳佳, 等. 中阶煤孔隙结构的氮吸附-压汞-核磁共振联合表征研究[J]. 煤炭科学技术, 2021, 49(5): 67–74.
- YANG Ming, LIU Lei, LIU Jiajia, et al. Study on joint characterization of pore structure of middle-rank coal by nitrogen adsorption-mercury intrusion-NMR[J]. *Coal Science and Technology*, 2021, 49(5): 67–74.
- [12] 郝晋伟, 李阳. 构造煤孔隙结构多尺度分形表征及影响因素研究[J]. 煤炭科学技术, 2020, 48(8): 164–174.
- HAO Jinwei, LI Yang. Research on multi-scale fractal characteristics of pore structure in tectonic coal and analysis of its influence factors[J]. *Coal Science and Technology*, 2020, 48(8): 164–174.
- [13] SAN JOSÉ MARTÍNEZ F, MARTÍN M A, CANIEGO F J, et al. Multifractal analysis of discretized X-ray CT images for the characterization of soil macropore structures[J]. *Geoderma*, 2010, 156(1/2): 32–42.
- [14] 郭德勇, 郭晓洁, 李德全. 构造变形对烟煤级构造煤微孔-中孔的作用[J]. 煤炭学报, 2019, 44(10): 3135–3144.
- GUO Deyong, GUO Xiaojie, LI Dequan. Effects of tectonic deformation on micropore-mesopore of bituminous deformed coal[J]. *Journal of China Coal Society*, 2019, 44(10): 3135–3144.
- [15] 马海军, 李文华. 基于低温氮吸附的煤孔隙分布多重分形表征[J]. 煤矿安全, 2020, 51(11): 14–18.
- MA Haijun, LI Wenhua. Multifractal characterization of low-temperature nitrogen adsorption for pore distribution of coal[J]. *Safety in Coal Mines*, 2020, 51(11): 14–18.
- [16] PAZ FERREIRO J, VIDAL VÁZQUEZ E. Multifractal analysis of Hg pore size distributions in soils with contrasting structural stability[J]. *Geoderma*, 2010, 160(1): 64–73.
- [17] CHENG G, JIANG B, LI M, et al. Quantitative characterization of fracture structure in coal based on image processing and multifractal theory[J]. *International Journal of Coal Geology*, 2020, 228: 103566.
- [18] LIU K, OSTADHASSAN M, KONG L. Multifractal characteristics of Longmaxi Shale pore structures by N₂ adsorption: A model comparison[J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2018, 168: 330–341.
- [19] 姚精明, 董文山, 闫永业, 等. 受载煤岩体电磁辐射动态多重分形特征[J]. 煤炭学报, 2016, 41(6): 1429–1433.
- YAO Jingming, DONG Wenshan, YAN Yongye, et al. Multi-fractal characteristics of electromagnetic radiation with loaded coal[J]. *Journal of China Coal Society*, 2016, 41(6): 1429–1433.
- [20] 刘杰, 王恩元, 李忠辉, 等. 煤样破裂表面电位多重分形特征[J]. 煤炭学报, 2013, 38(9): 1616–1620.
- LIU Jie, WANG Enyuan, LI Zhonghui, et al. Multi-fractal characteristics of surface potential of coal during the fracture[J]. *Journal of China Coal Society*, 2013, 38(9): 1616–1620.
- [21] 李云波, 张腾飞, 宋党育, 等. 基于多重分形奇异性理论的瓦斯地质规律预测方法: 以淮南矿区潘一矿为例[J]. 煤炭学报, 2018, 43(12): 3436–3446.
- LI Yunbo, ZHANG Tengfei, SONG Dangyu, et al. Prediction method of methane geological law based on the multifractal singularity theory: An example from the Panyi Coalmine, Huainan Coalfield, China[J]. *Journal of China Coal Society*, 2018, 43(12): 3436–3446.
- [22] 桑树勋, 韩思杰, 刘世奇, 等. 高煤阶煤层气富集机理的深化研究[J]. 煤炭学报, 2022, 47(1): 388–403.
- SANG Shuxun, HAN Sijie, LIU Shiqi, et al. Comprehensive study on the enrichment mechanism of coalbed methane in high rank coal reservoirs[J]. *Journal of China Coal Society*, 2022, 47(1): 388–403.
- [23] 韩文龙, 王延斌, 倪小明, 等. 正断层发育特征对煤层气直井开发的影响: 以沁水盆地南部柿庄南区块为例[J]. 煤炭学报, 2020, 45(10): 3522–3532.
- HAN Wenlong, WANG Yanbin, NI Xiaoming, et al. Influence of normal development faults characteristics on the exploitation of vertical coal-bed methane wells: A case study of the Shizhuang Block in the south of Qinshui Basin[J]. *Journal of China Coal Society*, 2020, 45(10): 3522–3532.
- [24] 宋慧波, 安红亮, 刘顺喜, 等. 沁水盆地武乡南煤层气赋存主控地质因素及富集区预测[J]. 煤炭学报, 2021, 46(12): 3974–3987.
- SONG Huibo, AN Hongliang, LIU Shunxi, et al. Controlling geological factors and coalbed methane enrichment areas in Southern Wuxiang Block, Qinshui Basin[J]. *Journal of China Coal Society*, 2021, 46(12): 3974–3987.
- [25] HALSEY T C, JENSEN M H, KADANOFF L P, et al. Fractal measures and their singularities: The characterization of strange sets[J]. *Physical Review A, General Physics*, 1986, 33(2): 1141–1151.
- [26] CHHABRA A, JENSEN R V. Direct determination of the $f(\alpha)$ singularity spectrum[J]. *Physical Review Letters*, 1989, 62(12): 1327–1330.
- [27] LI W, LIU H, SONG X. Multifractal analysis of Hg pore size distributions of tectonically deformed coals[J]. *International Journal of Coal Geology*, 2015, 144: 138–152.

- [28] 杨仁树, 付晓强, 杨立云, 等. 冻结立井爆破冻结壁成形控制与井壁减振研究[J]. 煤炭学报, 2016, 41(12): 2975–2985.
YANG Renshu, FU Xiaoqiang, YANG Liyun, et al. Research on the shaping control of frozen wall and blasting vibration mitigation of shaft wall effect in mine vertical shaft[J]. Journal of China Coal Society, 2016, 41(12): 2975–2985.
- [29] HOLMES R, RUPP E C, VISHAL V, et al. Selection of shale preparation protocol and outgas procedures for applications in low-pressure analysis[J]. Energy & Fuels, 2017, 31(9): 9043–9051.
- [30] PAN J, WANG K, HOU Q, et al. Micro-pores and fractures of coals analysed by field emission scanning electron microscopy and fractal theory[J]. Fuel, 2016, 164: 277–285.
- [31] DUAN R, XU Z, DONG Y, et al. Characterization and classification of pore structures in deeply buried carbonate rocks based on mono- and multifractal methods[J]. Journal of Petroleum Science and Engineering, 2021, 203: 108606.
- [32] HOU H, SHAO L, LI Y, et al. The pore structure and fractal characteristics of shales with low thermal maturity from the Yuqia Coalfield, northern Qaidam Basin, northwestern China[J]. Frontiers of Earth Science, 2018, 12(1): 148–159.
- [33] LIU J, MA J, JIANG X, et al. The multi-scale pore structure of superfine pulverized coal. Part 1. Macropore morphology[J]. Fuel, 2021, 304: 120728.
- [34] LI Z, LIU D, CAI Y, et al. Adsorption pore structure and its fractal characteristics of coals by N_2 adsorption/desorption and FESEM image analyses[J]. Fuel, 2019, 257: 116031.
- [35] LEE G J, PYUN S I, RHEE C K. Characterisation of geometric and structural properties of pore surfaces of reactivated microporous carbons based upon image analysis and gas adsorption[J]. Microporous and Mesoporous Materials, 2006, 93(1/2/3): 217–225.
- [36] JI H, MAO Y, SU H. Effects of organic micromolecules in bituminous coal on its microscopic pore characteristics[J]. Fuel, 2020, 262: 116529.
- [37] PAN J, NIU Q, WANG K, et al. The closed pores of tectonically deformed coal studied by small-angle X-ray scattering and liquid nitrogen adsorption[J]. Microporous and Mesoporous Materials, 2016, 224: 245–252.
- [38] ZHOU S, LIU D, KARPYN Z T, et al. Effect of coalification jumps on petrophysical properties of various metamorphic coals from different coalfields in China[J]. Journal of Natural Gas Science and Engineering, 2018, 60: 63–76.
- [39] YIN T, LIU D, CAI Y, et al. Methane adsorption constrained by pore structure in high-rank coals using FESEM, CO_2 adsorption, and NMRC techniques[J]. Energy Science & Engineering, 2019, 7(1): 255–271.
- [40] ZHAO J, XU H, TANG D, et al. Coal seam porosity and fracture heterogeneity of macrolithotypes in the Hancheng Block, eastern margin, Ordos Basin, China[J]. International Journal of Coal Geology, 2016, 159: 18–29.
- [41] UNSWORTH JOHN F, FOWLER COLIN S, JONES LESLIE F. Moisture in coal: 2. Maceral effects on pore structure[J]. Fuel, 1989, 68(1): 18–26.