

# Zmiany strukturalne węgla a wartość efektywnego współczynnika dyfuzji – wstępne pomiary stereologiczne

MARTA SKIBA

## Streszczenie

Zmiany strukturalne węgla stanowią istotny czynnik określający skłonność węgla do wyrzutów. Obecność spękań w pokładzie przejawiać się może wzrostem efektywnego współczynnika dyfuzji. Celem badań było określenie procentowego udziału ziarn spękanych oraz wyznaczenie gęstości spękań analizowanych próbek. Przebadano zwiercinowe próbki węgla z jednej z kopalń znajdujących się w południowej części Górnośląskiego Zagłębia Węglowego. Pomiary stereologiczne przeprowadzono na dwóch klasach ziarnowych: 0.20-0.25 mm oraz 0.50-1.00 mm.

Wstępne badania wykazały możliwość zastosowania zaproponowanych metod analizy stereologicznej do określenia wpływu szczelinowatości węgla na wartość efektywnego współczynnika dyfuzji oraz dokładniejszego szacowania stanu zagrożenia wyrzutami metanu i skał. Wyniki pokazują ponadto, że analizy mikroskopowe oraz sorpcyjne należy wykonywać na tych samych klasach ziarnowych, celem uzyskania wiarygodnych i powtarzalnych wyników.

**Słowa kluczowe:** badania stereologiczne, struktura węgla, zagrożenie wyrzutami metanu i skał

## 1. Wstęp

Obecność spękań oraz szczelin w górotworze znacząco wpływa na bezpieczeństwo pracy w kopalniach. Ich występowanie umożliwia migrację gazów, co może powodować odgazowanie górotworu oraz zmianę stanu zagrożenia pożarami endogenicznymi (Rakowski i in., 1977).

Występowanie szczelin w węglu wymieniane jest jako istotny czynnik określający skłonność węgla do wyrzutów. Bieżąca prognoza stanu zagrożenia wyrzutami metanu i skał opiera się na wynikach pomiarów metanonośności, wskaźnika intensywności desorpcji metanu, zwięzłości węgla oraz wychodu zwiercin z małośrednicowych otworów badawczych. Oprócz określenia wartości tych parametrów istotne znaczenie w ocenie zagrożenia odgrywa także analiza zmian struktury węgla. Autorzy prac z dziedziny zagrożeń wyrzutami metanu i skał wskazują, że właściwie przeprowadzone badania mikroszczelinowatości węgla mogą przyczynić się do prawidłowego rozróżnienia zagrożenia wyrzutami w poszczególnych pokładach (Bodziony i in., 1990).

Węgiel odmieniony strukturalnie posiada bardzo liczną sieć spękań wewnętrznych, co zmniejsza jego wytrzymałość mechaniczną oraz skutkuje zwiększoną porowatością (Wierzbicki i Młynarczuk, 2006). Tak zdeformowane węgle cechują się wysoką zawartością gazu wolnego w przestrzeniach porowych (Cao i in., 2001).

Zaburzenia geologiczne odpowiedzialne za zmiany w strukturze węgla to przede wszystkim deformacje nieciągłe (uskoki, przesunięcia, spęknięcia) oraz, w mniejszym stopniu, ciągłe (struktury fałdowe) (Dadlez i Jaroszewski, 1994). Oddziaływanie zjawisk tektonicznych na pokład węgla może skutkować pojawieniem się spękań, rozdrobnieniem, czy zmieleniem materiału. Skrajnym przypadkiem jest całkowicie zatarta pierwotna struktura węgla (Jakubów i in., 2006; Cao i in., 2000; Shepherd i in., 1980). Przykład struktury spękanej i kataklastycznej pokazano na rysunku 1.

Miejscami, w których występuje większa ilość gazu w stosunku do pozostałej części pokładu są tzw. „pułapki gazowe”. Materiał węglowy pobrany z takich rejonów niejednokrotnie wyraźnie różni się właściwościami fizykochemicznymi od reszty pokładu. Zniszczenie pierwotnej struktury węgla wpływa również na zmianę warunków adsorpcji gazu oraz jego desorpcji z węgla (Suchodolski, 1977).



Rys. 1. Fragment węgla kataklastycznego (zdjęcie mikroskopowe – powiększenie optyczne 200×, światło odbite)

Parametrem układu węgiel-gaz informującym o kinetycznych właściwościach akumulacji i uwalniania metanu z próbki węgla jest efektywny współczynnik dyfuzji  $D_e$ . Im jego wartość jest wyższa, tym proces desorpcji metanu przebiega szybciej. Przyjmuje się, że wartość współczynnika dyfuzji  $D_e > 1.5 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{s}$  świadczyć może o zmianie struktury wewnętrznej węgla, a tym samym o wzroście zagrożenia wyrzutowego. W takim wypadku badania sorpcyjne węgla powinny być uzupełnione o mikroskopowe badania struktury, które pomogą ustalić, w jakim stopniu wartość  $D_e$  wpływa na zagrożenie wyrzutowe.

Wartość efektywnego współczynnika dyfuzji może być również wykorzystana do oszacowania liczby makroszczelin w odniesieniu do jednostki długości jako parametr skłonności węgla do wyrzutów i analizy stanu zagrożenia wyrzutowego (Wierziński, 2011).

## 2. Przygotowanie zglądów oraz metodyka pomiarowa

Do badań przygotowano zwiercinowe próbki węgla z jednej z kopalń znajdujących się w południowej części Górnośląskiego Zagłębia Węglowego. Zwierciny pobrano podczas wiercenia otworu metodą „na sucho” za pomocą wiertnicy WD-0. Próbki pobrano na głębokościach 9.0 m, 9.5 m, 10.5 m oraz 12.0 m i oznaczono odpowiednio B-1, B-2, B-3 i B-4. Dalsze wiercenie okazało się niemożliwe z uwagi na obsypywanie węgla do otworu i kleszczenie przewodu wiertniczego.

Po dostarczeniu próbek do laboratorium IMG PAN, metodą przesiewania na sucho, wydzielono klasy ziarnowe 0.20-0.25 mm oraz 0.50-1.00 mm, przeznaczone do analizy strukturalnej oraz badań sorpcyjnych (klasa ziarnowa 0.20-0.25 mm). Próbki do badań mikroskopowych odpompowano w próżni, a następnie zalano żywicą epoksydową. Tak przygotowane preparaty poddano procesom szlifowania i polerowania otrzymując zglądy, stanowiące podstawę przeprowadzonych analiz. Cykl pomiarowy zaplanowano zgodnie z wytycznymi zamieszczonymi w normie PN-ISO 7404-3.

Do analiz wykorzystano mikroskop polaryzacyjny AXIOPLAN firmy ZEISS oraz sterowany komputerowo stolik mechaniczny XYZ. Obraz uzyskany pod mikroskopem przekazywany był za pomocą kamery CCD na monitor. Stosowano powiększenie 200×.

Stanowisko mikroskopowe w Pracowni Mikromerytyki IMG PAN pokazano na rys. 2.

W obrębie danej klasy ziarnowej wykonano dwa rodzaje analiz szczelinowości węgla. Pierwszy z nich, oparty na pracy Gabzdyla (1987), polegał na określeniu udziału ziarn spękanych na przekroju w stosunku do wszystkich ziarn widocznych na zglądzie. Wystąpienie choćby jednej szczeliny było wystarczające do klasyfikacji ziarna do kategorii „spękane”. Pomiarów wykonywano z krokiem 0.125 mm dla próbek klasy ziarnowej 0.20-0.25 mm oraz z krokiem 0.5 mm dla analiz węgla klasy 0.50-1.00 mm, zgodnie z sugestią Gabzdyla (1987).



Rys. 2. Laboratorium badań stereologicznych IMG PAN

Analizę wykonano na 1000 punktów pomiarowych oznaczając następujące objekty:

- klej,
- węgiel „spękany”
- węgiel „niespękany”.

Drugi rodzaj analizy polegał na określeniu liczby szczelin przypadającej na 1 cm długości, co stanowić może kryterium do zaliczenia pokładów węgla do odpowiednich klas naruszenia węgla (Cybulski i Piskorska-Kalisz, 1959) – patrz tabela 1. Przyjmuje się, że pokłady zaliczone do III÷V klasy naruszenia węgla są skłonne do wyrzutów (Piskorska-Kalisz, 1978).

Tab. 1. Klasy naruszenia węgla

Lp.	Klasa	Liczba makroszczelin na 1cm długości
1	I	< 6,25
2	II	6,25÷20
3	III	20÷71,4
4	IV	71,4÷200
5	V	> 200

W celu określenia liczby spękań wykorzystano analizę ilościową polegającą na zaznaczaniu współrzędnych punktów wejścia i wyjścia z poszczególnych ziarn węgla oraz zliczaniu liczby szczelin na przekrojach ziarn. Informacje te pozwoliły na obliczenie ilości szczelin przypadających na długość linii na węglu. Dla każdego zglądu zmierzono 20 linii pomiarowych o długości 10 000 mikrometrów. Zliczenia wykonywano na liniach równoległych do siebie i oddalonych o 500 mikrometrów.

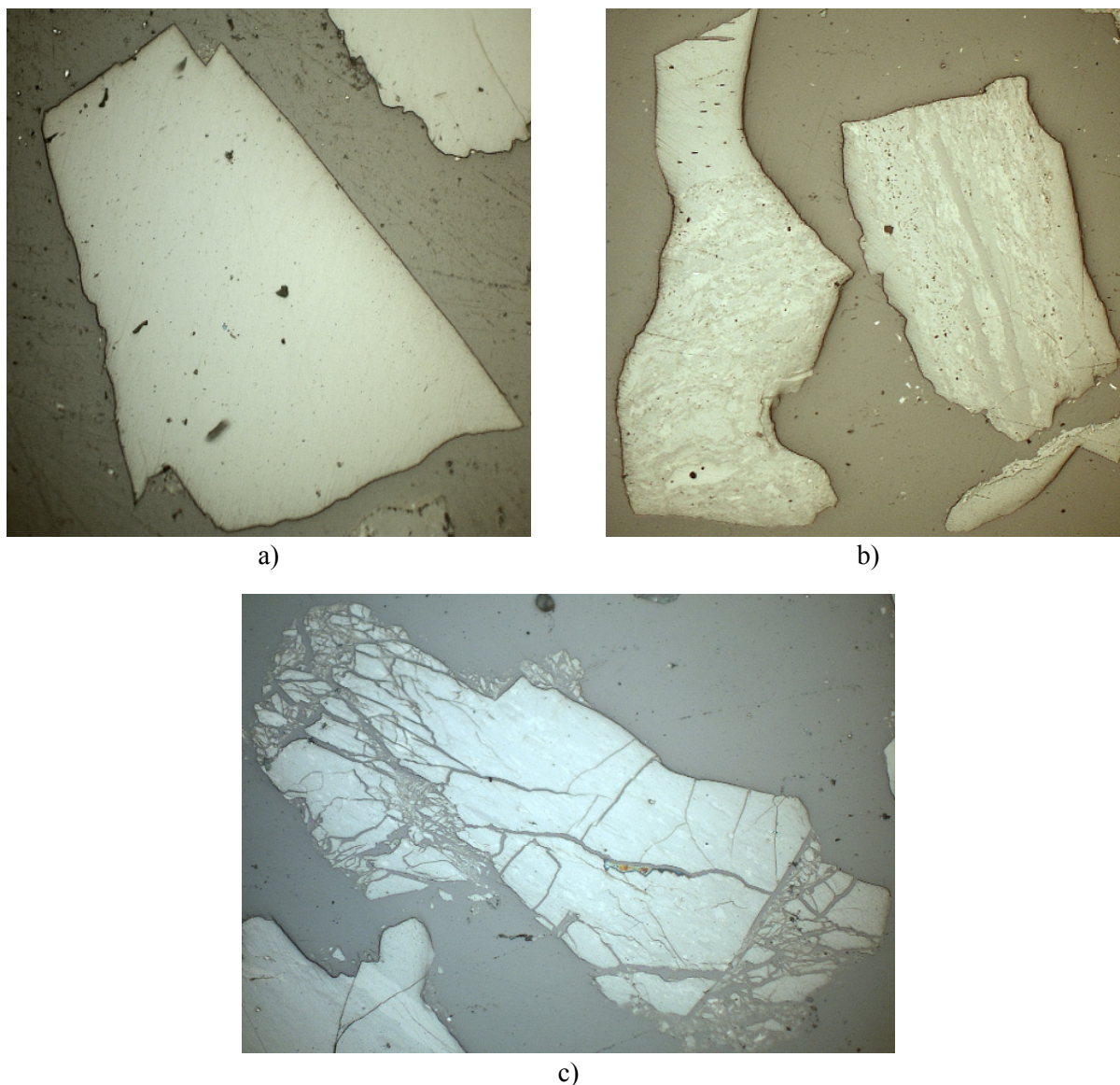
Przykłady analizowanych struktur pokazano na rys. 3.

Otrzymane wyniki zestawiono z oznaczonymi wartościami efektywnego współczynnika dyfuzji. Pomiary dyfuzyjności węgla prowadzono metodą grawimetryczną opisaną w pracach Wierzbickiego (2011, 2013) na klasie ziarnowej 0.20-0.25 mm. Przed pomiarem próbki zostały poddane odgazowaniu przez 24 h przy ciśnieniu rzędu  $10^{-8}$  mbar. Efektywny współczynnik dyfuzji obliczano na podstawie uniporowego modelu dyfuzji z rozwiązaniem Cranka (1975) oraz równania Timofiejewa (1967):

$$D_e = \frac{0.308 \cdot R^2}{\pi^2 \cdot t_{1/2}} \quad (1)$$

W badanych próbkach oznaczono również zawartość popiołu, co pozwoliło na przeliczenie oznaczonej podczas pomiaru pojemności sorpcyjnej przy ciśnieniu barycznym na czystą substancję węglową.





Rys. 3. Przykłady analizowanych struktur węgla: a), b) węgiel „niespękany” c) węgiel „spękany”, światło odbite, powiększenie 200×

### 3. Wyniki przeprowadzonych pomiarów

Pierwszym etapem badań było określenie zależności pomiędzy wartością efektywnego współczynnika dyfuzji a gęstością spękań dla ziarn klasy 0.50-1.00 mm. W wyniku analiz otrzymano porównywalną liczbę szczelin przypadającą na 1cm długości zglądu dla próbek B-1 i B-3 oraz próbek B-2 i B-4 – patrz tabela 2. Badania sorpcyjne metodą grawimetryczną pokazały, że próbki B-1 i B-2 mają znacznie podwyższone wartości współczynnika dyfuzji w stosunku do próbek B-3 i B-4 (tabela 3).

Całościowe wyniki analizy zglądów według klasyfikacji Gabzdyla (kolumna III) oraz analizy ilościowej spękań (kolumna IV) dla ziarn klasy ziarnowej 0.50-1.00 mm prezentuje tabela 2. Przy wyznaczaniu gęstości spękań nie uwzględniano ziarn minerałów.

Tab. 2. Zestawienie wyników analiz dla próbek klasy ziarnowej 0.50-1.00 mm

Lp.	Próbka	Udział ziaren spękanych [%]	Gęstość spękań [cm <sup>-1</sup> ]
I	II	III	IV
1	B-1	23,33	24
2	B-2	17,78	33
3	B-3	23,60	26
4	B-4	29,99	34

Obliczone wartości efektywnego współczynnika dyfuzji dla próbek klasy ziarnowej 0.20-0.25 mm przedstawiono w tabeli 3. W zestawieniu umieszczono także wartości pojemności sorpcyjnej otrzymane podczas pomiarów metodą grawimetryczną w temperaturze 40°C.

Tab. 3. Zestawienie wyników pomiarów sorpcyjnych próbek klasy ziarnowej 0.2-0.25 mm

Lp.	Próbka	Efektywny współczynnik dyfuzji $D_e$ [ $\text{cm}^2/\text{s}$ ]	Pojemność sorpcyjna $a_{1\text{bar}}$ [ $\text{cm}^3/\text{g}_{\text{csw}}$ ]
1	B-1	$8,99 \cdot 10^{-9}$	1,85
2	B-2	$7,13 \cdot 10^{-9}$	1,80
3	B-3	$1,76 \cdot 10^{-9}$	1,81
4	B-4	$1,84 \cdot 10^{-9}$	1,69

Pomiary stereologiczne wykonano ponownie dla próbek klasy 0.20-0.25 mm. Analiza zgładów wykazała znacząco wyższy udział ziarn spękanych w odniesieniu do tych jakie wystąpiły na ziarnach klasy 0.50-1.00 mm. Znacząco wzrosła również gęstość spękań na badanych próbkach. W przypadku próbki B-1 wzrost ten był ponad pięciokrotny – tab. 4.

Tab. 4. Zestawienie wyników analiz dla próbek klasy ziarnowej 0.20-0.25 mm

Lp.	Próbka	Udział ziaren spękanych [%]	Gęstość spękań [ $\text{cm}^{-1}$ ]
I	II	III	IV
1	B-1	48,06	124
2	B-2	58,06	119
3	B-3	31,77	73
4	B-4	30,56	48

Zaobserwowano zależność pomiędzy kinetyką adsorpcji oraz wyznaczoną szczelinowatością zgładów. Dla próbek węgla o większej gęstości szczelin (próbki B-1 oraz B-2) otrzymano wyższą wartość efektywnego współczynnika dyfuzji.

Zbliżone wartości pojemności sorpcyjnej dla wszystkich próbek świadczyć mogą o nieznacznym wpływie ilości spękań na wartość tego parametru – tab. 3.

W tabeli 5. zestawiono wartości efektywnego współczynnika dyfuzji oraz gęstości spękań dla próbek węgla klasy ziarnowej 0.20-0.25.

Tab. 5. Zestawienie wyników obliczeń dla próbek klasy ziarnowej 0.2-0.25 mm

Lp.	Próbka	Efektywny współczynnik dyfuzji $D_e$ [ $\text{cm}^2/\text{s}$ ]	Gęstość spękań [ $\text{cm}^{-1}$ ]
1	B-1	$8,99 \cdot 10^{-9}$	124
2	B-2	$7,13 \cdot 10^{-9}$	119
3	B-3	$1,76 \cdot 10^{-9}$	73
4	B-4	$1,84 \cdot 10^{-9}$	48

Według przedstawionej klasyfikacji naruszenia węgla (tabela 1.) próbki: B-1, B-2 oraz B-3 należy zaliczyć do IV, natomiast próbkę B-4 do III klasy naruszenia, czyli do węgla skłonnych do wyrzutów.

#### 4. Podsumowanie i wnioski

Przedstawione wyniki są wstępnymi wynikami wskazującymi na możliwość zastosowania klasyfikacji Gabzdyla oraz ilościowej analizy spękań do celów określenia wpływu szczelinowatości węgla na wartość efektywnego współczynnika dyfuzji. Wyniki pokazują, że pomiary mikroskopowe oraz sorpcyjne należy prowadzić na tych samych klasach ziarnowych. Zastosowanie wyższej klasy ziarnowej spowodować może inne lokowanie ziarn w klasyfikacji Gabzdyla oraz znaczące zaniżenie gęstości spękań. Prowadzenie dalszych badań w tym zakresie może przyczynić się do oceny, jakie są relacje pomiędzy przedstawionymi klasyfikacjami stereologicznymi a współczynnikiem dyfuzji.

#### Podziękowania

Dziękuję dr hab. Mariuszowi Młynarczukowi za pomoc merytoryczną w realizacji przedstawionej pracy oraz dr inż. Norbertowi Skoczylasowi za wykonanie pomiarów na urządzeniu IGA.

Praca została wykonana w roku 2013 w ramach prac statutowych realizowanych w IMG PAN w Krakowie, finansowanych przez Ministerstwo Nauki i Szkolnictwa Wyższego.

## Literatura

- Bodziony J., Kraj W., Ratajczak T., 1990: *Zastosowanie stereologii w badaniach struktury węgla dolnośląskich*, (w:) *Górotwór jako ośrodek wielofazowy – wyrzuty skalno-gazowe*, red. J. Litwiniszyn, Wyd. AGH Kraków.
- Cao Y., He D., Glick C. D., 2001: *Coal and gas outbursts in footwalls of reverse faults*. International Journal of Coal Geology, 48, 47-63.
- Crank J., 1975: *The Mathematics of diffusion*, 2nd ed. Oxford Univ. Press, London. 414.
- Cybulski W., Piskorska-Kalisz Z., 1959: *Określenie mikroszczelinowości węgla w pokładach zagrożonych wyrzutami gazów i skal metodą optyczną oraz badanie wpływu strzelania na naturalną szczelinowość węgla z pokładów*. Komunikat GIG, nr 456.
- Dadlez R., Jaroszewski W., 1994: *Tektonika*. Wydawnictwo PWN.
- Gabzdyl W., 1987: *Petrografia węgla*. Dział Wydawnictw Politechniki Śląskiej, Gliwice.
- Jakubów A., Tor A., Wierzbicki M., 2006: *Własności strukturalne węgla w rejonie wyrzutu węgla i gazu w chodniku transportowym D-6 pokład 409/4 KWK „Zofiówka”* Tapania.
- Piskorska-Kalisz Z., 1978: *Laboratoryjne metody oznaczania własności fizykomechanicznych próbek węgla pobranych z pokładów zagrożonych wyrzutami metanu i skal*. Opracowanie dla ITEZ.
- PN-ISO 7404-3, 2001: *Metody analizy petrograficznej węgla kamiennego (bitumicznego) i antracytu. Metoda oznaczania składu grup macerałów*.
- Rakowski Z., Kraussova J., Benes K., 1977: *Studium změny textury a struktury uhlí ve slojích náchýlných k průřzím uhlí a plynů v dolech Paskov a Staříč v OKR*. Sborník vědeckých prací Vysoké školy báňské v Ostravě, řada hornicko-geologická, roč. 23, č. 1, s. 1-29.
- Shepherd J., Rixon L.K., Creasey J.W., 1980: *Analysis and prediction of geological structures associated with outbursts at Collinsville, Queensland*. The Occurrence, Prediction and Control of Outbursts in Coal Mines Symposium, Australian Institute of Mining and Metallurgy, Parkville, Victoria, Australia, 159-171.
- Suchodolski Z., 1977: *Zagadnienie wyrzutów gazów i skal w kopalniach podziemnych*, Wyd. Politechniki Wrocławskiej.
- Timofiejew D.P., 1967: *Adsorption kinetic*. Leipzig, 335 p.
- Wierzbicki M., Młynarczuk M., 2006: *Microscopic analysis of structure of coal samples collected after an gas and coal outbursts in the gallery D-6, coal seam 409/4 in the “Zofiówka” coal mine (upper silesian coal basin)*. Arch. Min. Sci., Vol. 51, No 4, p. 577-588.
- Wierzbicki M., 2013: *Changes in the sorption/diffusion kinetics of the coal-methane system caused by different temperatures and pressures*. Mineral Resources Management, Vol. 29, Issue 4, p. 155-168.
- Wierzbicki M., 2011: *Effect of selected simplifications of the unipore model upon the result of the study of the diffusion coefficient in coal*. Archives of Mining Sciences, Vol. 56, No 4, p. 761-776.
- Wierziński K., 2011: *Przebieg kinetyki adsorpcji metanu jako wskaźnik zmian strukturalnych pokładu w rejonie stref uskokowych*. Przegląd Górniczy, T. 67, nr 6, 70-75.

## Correlation between structural changes of coal and effective diffusion coefficient – preliminary stereological measurements

### Abstract

Structural changes of coal make an important contribution in determining of the proneness of coal to outburst. The presence of cracks and fractures in a coal bed can manifest itself in an increase in effective diffusion coefficient. The aim of the study was to determine the percentage of fractured grains of the analyzed samples and determination of its fracture density. Coal samples were obtained from one of the mines from the Southern part of the Upper Silesian Coal Basin. Stereological measurements were performed for two different grain fractions: 0.20-0.25 mm and 0.50-1.00 mm.

Preliminary studies have shown the applicability of the proposed methods of stereological analysis for determination of the effect of fracturing on value of the effective diffusion coefficient and hence for more accurate estimation of outbursts risk. Furthermore, the obtained results demonstrated that the microscopic analysis and sorption measurements should be performed using the same grain fraction, in order to obtain reliable and repeatable results.

**Keywords:** stereological studies, coal structure, outburst risk