

# Istraživanje sadržaja adsorbiranih plinova u ugljenim slojevima u Bosni i Hercegovini

KUI – 18/2008  
Prispjelo 7. prosinca 2006.  
Prihvaćeno 17. travnja 2008.

S. Mičević<sup>a</sup> i J. Sadadinović<sup>b</sup>

<sup>a</sup> Univerzitet u Tuzli, Prirodno-matematički fakultet,  
Univerzitetska 4, 75000 Tuzla, BiH

<sup>b</sup> Univerzitet u Tuzli, Tehnološki fakultet,  
Univerzitetska 8, 75000 Tuzla, BiH

*Istraživanje plinonosi u ugljenim slojevima sustavno se istražuje u Bosni i Hercegovini od 1980. godine do danas. Plin se u ugljenom sloju nalazi u slobodnom i adsorbiranom obliku, te kao otopljen u vodi. Metode istraživanja temelje se na neposrednoj metodi, prema kojoj se sadržaj plina određuje u nenarušenom ugljenom sloju.*

*Količina adsorbiranog i slobodnog plina u ugljenom sloju direktno je proporcionalna tlaku plina. Zavisnost je hiperbolična. Količina slobodnog plina u jamskim uvjetima utvrđuje se mjerenjem indeksa desorpcije ( $\Delta p_2$ ). Vrijednost indeksa desorpcije za Srednjobosanski ugljeni bazen kreće se do 1471 Pa, a tlak slobodnog plina u tom bazenu iznosi do 3,75 MPa. Za ugljene Banovičkog i Krekanskog bazena indeks desorpcije ima negativnu vrijednost, što znači da ugljeni sloj sadrži neznatnu količinu slobodnog plina, dok je izdvajanje adsorbiranih plinova difuzno. Tlak slobodnog plina u tim bazenima je ispod 0,1 MPa.*

*Adsorbirani plinovi na ugljenu vezani su fizičkom adsorpcijom po Langmuirskoj izotermi adsorpcije. Langmuirove veličine za jamske uvjete iznose:  $a_m$  od 0,826 do 9,52 m<sup>3</sup> t<sup>-1</sup> (čiste ugljene supstancije) i  $b$  od  $6,65 \cdot 10^{-3}$  do 0,247 MPa<sup>-1</sup>. Adsorbirani plin kod ugljena miocenske starosti sadrži metan i ugljikov dioksid. Kod ugljena pliocenske starosti u nemetanskim slojevima dominantan je sadržaj ugljikovog dioksida.*

*Ključne riječi: Metan, adsorpcija, metanonosnost, ugljen, degazacija*

## Uvod

Sadržaj plina u jamskom zraku u izravnoj je zavisnosti o prirodnoj plinonosi ugljenog sloja; određivati se može posrednim ili neposrednim metodama. Posrednim metodama dobivaju se približni rezultati, ali se, zbog jednostavnosti, metoda široko primjenjuje i koristi za češća mjerenja i brzu operativnu prognozu plinske ugroženosti. Neposredna metoda omogućava veću točnost rezultata, koji se primjenjuju za klasifikaciju ugljenih slojeva po stupnju opasnosti od metana, ali i za kontrolu opasnosti od plinova u dotičnom ugljenom sloju, odnosno jami. Istraživanje plinonosi ugljenih slojeva u BiH provelo se neposrednom metodom, koja se temelji na mjerenju sadržaja adsorbiranih plinova u nenarušenom ugljenom sloju.

Istraživanjem sadržaja adsorbiranih plinova utvrđeno je da se u ugljenima miocenske starosti nalazi najveća količina adsorbiranog metana, dok je kod lignitnih ugljena dominantan sadržaj ugljikovog dioksida.

## Eksperimentalni dio

### Radna okolina

Istraživanje sadržaja adsorbiranih plinova u ugljenim slojevima u BiH provedeno je na ugljenima pliocenske (ligniti) i miocenske (smeđi ugljeni) starosti.

Pliocenski ugljeni slojevi u BiH iskorištavaju se u krekanskom ugljenom bazenu. Razvijena su ukupno četiri ugljena sloja. Istraživanjem su obuhvaćeni svi slojevi. Istraživanja su provedena u: II. krovnom sloju na lokalitetu Mramor i Lipnica, I. krovnom sloju, na lokalitetu Bukinje i Lipnica i glavnom ugljenom sloju, na lokalitetu Bukinje i Lipnica.

Miocenski ugljeni slojevi iskorištavaju se u bazenu Banović–Đurđevik–Seona, a istraživanja su provedena u jami Omazići–Banovići i srednjobosanskom ugljenom bazenu, u glavnom ugljenom sloju u: jami Raspočje–Zenica, Stara jama–Kakanj i jami Sretno–Breza.

Sva ispitivanja su, sukladno metodologiji, provedena na najdubljem, aktivnom dijelu u jami, na radilištima koja su izvodila pripreme radove za nova otkopna polja.

### Metodologija istraživanja

Pri istraživanjima se primjenjivala neposredna metoda<sup>1</sup> kojom se određuje količina desorbiranog, adsorbiranog i slobodnog plina u sloju. Za to se uzimaju uzorci ugljena iz ugljenog sloja spremljeni u hermetički zatvorene spremnike i desorpcijske posude s dubine koja prekoračuje zonu spontane degazacije. Ukupan sadržaj plina u sloju jednak je sumi količine plina koja je vakuumom izvučena iz ugljena (adsorbirani plin), plina koji se izgubio za vrijeme uzimanja uzoraka i količine slobodnog plina u ugljenom sloju, koja se utvrđuje mjerenjem indeksa desorpcije.

### Uzimanje uzoraka ugljena

Uzorci ugljena uzimaju se iz bušotina promjera  $d = 42$  mm, počevši od dubine 2 m, pa redom sa dubina od 2,5–3 m, 3,5–4 m i 4,5–5 m. Uzorci se uzimaju u obliku strugotina, koje se sakupljaju ispod svrdla, na sustav sita od  $d = 0,5$ ; 1,0 i 2,0 mm. Nakon prosijavanja ugljena, u spremnik se puni oko  $100 \text{ cm}^3$  ugljene strugotine, promjera zrna od 1–2 mm. Količina ugljena odmjerava se metalnom menzурom. Nakon uzorkovanja ugljena kontejneri se hermetički zatvaraju.

### Određivanje gubitka plina za vrijeme uzorkovanja

Količina plina koja se izdvaja iz uzorka ugljena degazacijom, povećava se s vremenom prema specifičnoj nelinearnoj ovisnosti. Mjerenjem količine desorbiranog plina na U-manometru priključenom na spremnik, u poznatom vremenskom intervalu određuje se količina plina koji se izdvojio u početnoj fazi degazacije. Između količine desorbiranog plina, koja se izdvaja u jamsku atmosferu u početnoj fazi, tzv. nekontroliranoj degazaciji koja traje od  $t = 0 - 2$  minute i desorbiranog plina, koji se izdvaja u spremniku u kontroliranom vremenu od  $t = 2 - 4$  minute, utvrđena je linearna ovisnost dana u analitičkom obliku:

$$a_G = 3,07 a_{\text{CH}_4}; a_G = 3,67 a_{\text{CO}_2}, \quad (1)$$

gdje su:

- $a_G$  – količina metana, odnosno ugljikovog dioksida, koja se gubi pri uzorkovanju,  $\text{m}^3 \text{ t}^{-1}$
- amount of methane and carbon(IV) oxide losed by sampling respectively,  $\text{m}^3 \text{ t}^{-1}$
- $a_{\text{CH}_4}$  i  $a_{\text{CO}_2}$  – količina adsorbiranog metana, odnosno ugljikovog dioksida,  $\text{m}^3 \text{ t}^{-1}$
- amount of adsorbed methane and carbon(IV) oxide respectively,  $\text{m}^3 \text{ t}^{-1}$

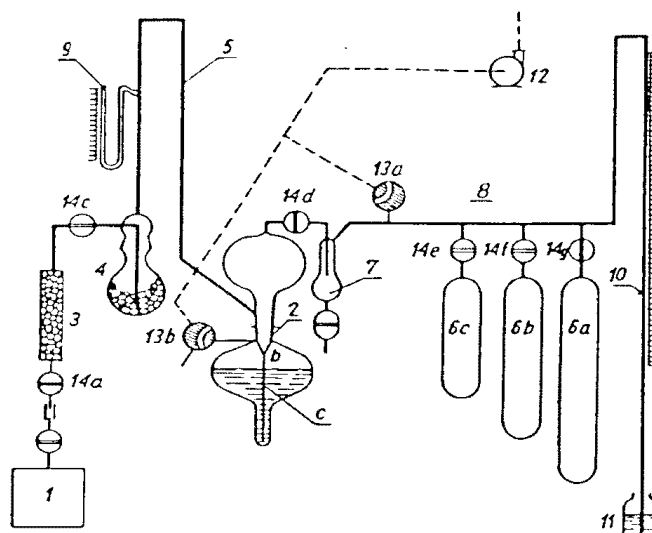
### Degazacija uzoraka i određivanje sadržaja plina

Uzorci ugljena melju se postavljanjem hermetički zatvorenih spremnika na specijalne vibratore, čije vibracije izazivaju kretanje kugli u spremniku s uzorkom ugljena i mljevenje istog. Trajanje mljevenja je oko  $t = 2 - 2,5$  h, što ovisi o vrsti ugljena. Mljevenjem se ugljen usitnjava na promjer čestica od  $d < 63 \mu\text{m}$ .

Nakon mljevenja ugljena spremnik se priključuje na aparaturu AOP-1 (slika 1) u kojoj se isisavanjem zraka vakuumskom pumpom postiže tlak od  $p \sim 10$  kPa.

Degazacija ugljena obavlja se u dvije faze: a) spontana degazacija, koja se odvija dok se ne izjednače tlakovi u spremniku i aparaturi i b) prisilna degazacija, koja se odvija pomoću živine usisno-potisne pumpe. Cijeli proces traje dok se ne ustali tlak na centralnom manometru koji pokazuje tlak desorbiranog plina u aparaturi AOP-1. Uz ova mjerenja bilježe se vrijednosti temperature zraka u laboratorij i atmosferskog tlaka na početku i kraju procesa degazacije.

Ukupna količina adsorbiranog plina u ugljenu izračunava se prema jednadžbi:



Slika 1 – Shematski prikaz aparature za degazaciju ugljena AOP-1

Fig. 1 – Schematics of apparatus for coal degasification AOP-1

$$a_{(\text{CH}_4, \text{CO}_2)} = a_{\text{AOP}} + a_G + a_S \quad (1)$$

gdje je:

- $a_{\text{AOP}}$  – količina (desorbiranog) plina u AOP-u iz ugljenog uzorka,  $\text{m}^3 \text{ t}^{-1}$
- amount of (desorbed) gas in AOP from coal sample,  $\text{m}^3 \text{ t}^{-1}$
- $a_G$  – količina plina koja se gubi pri uzorkovanju,  $\text{m}^3 \text{ t}^{-1}$
- amount of gas losed by sampling,  $\text{m}^3 \text{ t}^{-1}$
- $a_S$  – količina slobodnog plina utvrđena na osnovi indeksa desorpcije,  $\Delta p_2$ ,  $\text{m}^3 \text{ t}^{-1}$
- amount of free gas deduced on basis of desorption,  $\Delta p_2$ ,  $\text{m}^3 \text{ t}^{-1}$

### Određivanje kemijskog sastava plina

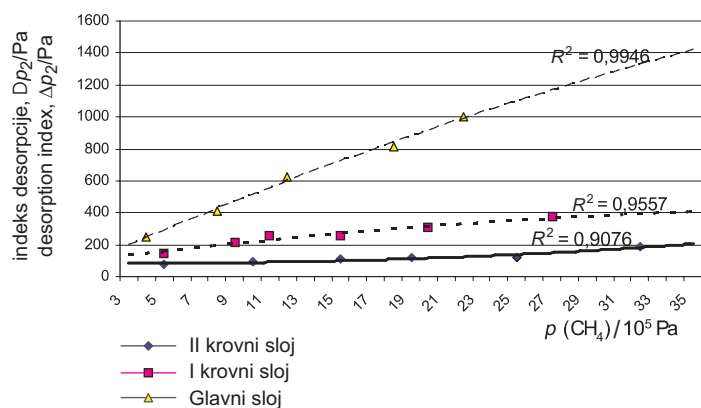
Uzimanje uzorka plina iz aparature AOP-1 temelji se na razlici tlaka plina u aparaturi i pipetama za uzorkovanje plina. Plin se pretače do izjednačavanja tlaka u aparaturi AOP-1 i pipetama za plin, a kemijska analiza desorbiranog plina se odvija na infracrvenim plinskim analizatorima tipa UNOR-6N, klase 0,5 za  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{CH}_4$  i paramagnetnom analizatoru OXOR-6 za  $\text{O}_2$ .

### Imedijatna analiza ugljena

Imedijatna analiza ugljena provodi se nakon završenog procesa degazacije, prema standardima BAS<sup>2</sup>, s ciljem utvrđivanja udjela vlage (W), pepela (A) i čiste ugljene supstancije (čus). Osim te analize određuje se gustoća i masa ugljena. Podaci su potrebni radi preračunavanja količine plina i indeksa desorpcije na masu čiste ugljene supstancije.

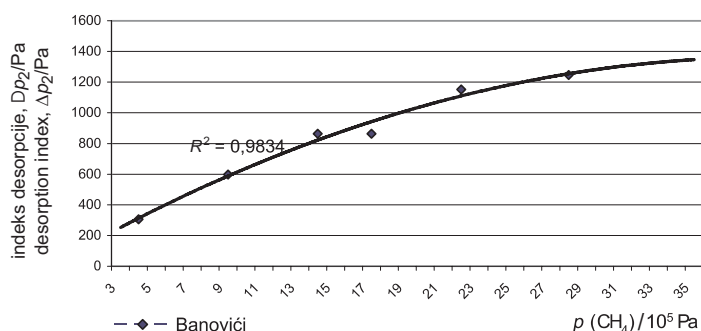
### Određivanje slobodnog plina u ugljenom sloju

Metoda određivanja količine slobodnog plina<sup>3</sup> u ugljenom sloju naziva se "desorbometrijska metoda". Koeficijent desorpcije  $\Delta p_2$ , koji se dobiva mjerenjem na manometarskom desorbometru DMC-2, određen je kao prirast tlaka



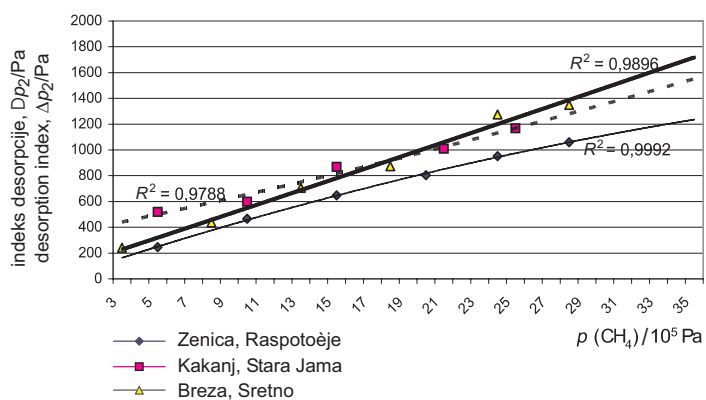
Slika 2 – Desorpcijska krivulja ugljena pliocenske starosti – krekaški bazen

Fig. 2 – Desorption curve of Pliocene coals – “Kreka” coal basin



Slika 3 – Desorpcijska krivulja ugljena miocenske starosti – banovički bazen

Fig. 3 – Desorption curve of Miocene coal – “Banovići” coal basin



Slika 4 – Desorpcijska krivulja ugljena miocenske starosti – srednjobosanski bazen

Fig. 4 – Desorption curve of Miocene coals – Srednjobosanski coal basin

desorbiranog plina iz probe ugljena u vremenskom intervalu od dvije minute.<sup>4</sup>

Koeficijent desorpcije mjeri se u jamskim uvjetima na strugotinama ugljena s istih dubina, s kojih se spremao ugljen u spremnike za ispitivanje. Uzorci strugotina ugljena u laboratorijskim uvjetima u specijalnim posudama s manometri-

ma podvrgavaju se različitim tlakovima zasićenja čistim metanom, radi adsorpcije metana na površini ugljena. Uvjeti odvijanja adsorpcije su izotermni. Adsorpcija traje 48 sati, nakon čega se mjeri indeks desorpcije  $\Delta p_2$ . Na osnovi rezultata mjerenja u laboratoriju konstruira se desorpcijska krivulja korigirana na temperaturu sloja i desorpcijski tlak preračunat na  $\Delta p_2 m^{-1}_{\text{čus}}$  ( $m = 3$ ). Uspoređivanjem indeksa desorpcije izmjenjenog u jamskim uvjetima s indeksom desorpcije izmjenjenim u laboratoriju kod poznatog tlaka zasićenosti određuje se tlak slobodnog plina u ugljenom sloju. Iz izoterme sorpcijskog kapaciteta pojedine vrste ugljena očita se udjel plina koji odgovara tlaku određenom na opisan način.

## Rezultati

Rezultati provedenih istraživanja u ovom radu prikazani su u tablicama 1 i 2.<sup>5</sup>

### Utvrđivanje sadržaja slobodnog plina u jamskim uvjetima

Maksimalne vrijednosti količine slobodnog plina u ispitivanim ugljenim slojevima utvrđene na temelju mjerenja koeficijenta desorpcije ( $\Delta p_2$ ) u jamskim uvjetima dane su u tablici 3. Tlakovi slobodnog plina u ugljenim slojevima i njima odgovarajuća količina plina utvrđeni su iz desorpcijskih krivulja ispitivanih ugljena (slika 2, 3 i 4).

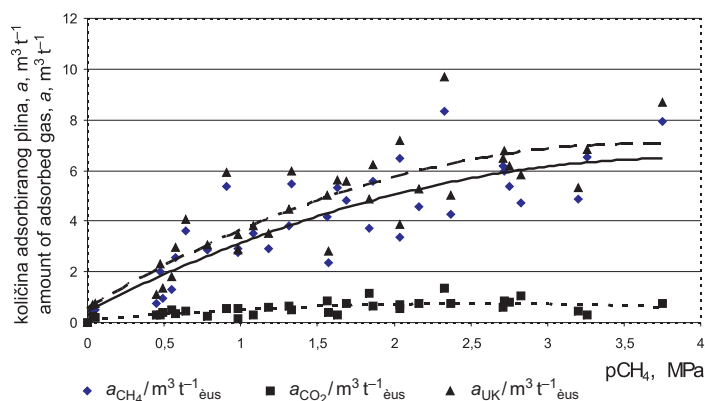
### Utvrđivanje sadržaja adsorbiranog plina

Između količine adsorbiranog plina i tlaka plina u ugljenom sloju utvrđena je hiperbolička ovisnost prema Langmuir-ovoj adsorpcijskoj izotermi:

$$a = a_m \frac{bp}{1+bp} \quad (3)$$

Količina adsorbiranog plina u ugljenim slojevima, kao i odnos adsorbiranih plinova na ugljenoj tvari dana je u tablici 4.<sup>6</sup> Na osnovi dobivenih rezultata količine adsorbiranog plina u ugljenim slojevima načinjene su adsorpcijske izoterme iz kojih su utvrđene vrijednosti veličine  $a_m$  i  $b$  iz jednadžbe (3), tablica 7.

Adsorpcijska izoterma za Srednjobosanski ugljeni bazen prikazana je na slici 5.



Slika 5 – Adsorpcijska izoterma za srednjobosanski ugljeni bazen

Fig. 5 – Adsorption isothermal curve for Srednjobosanski coal basin

## Rasprava

Rezultati provedenih istraživanja u ovom radu pokazuju da se uglavnom radi o mlađim ugljenim formacijama u Srednjobosanskom, Banovičkom i Krekanskom ugljenom bazenu, čija kvaliteta u potpunosti odgovara stupnju metamorfizma ugljena. Razlike između miocenskih i pliocenskih ugljena u pogledu kvaliteta kvalitete očituju se u osnovnim sastojcima i to:

- Srednjobosanski i banovički bazen (miocenski ugljen): vlaga ~ 10 %, pepeo ~ 20 % i volatili ~ 43 % (tablica 1),
- Krekanski bazen (pliocenski ugljen): vlaga ~ 43 %, pepeo ~ 12 % i volatili ~ 55 % (tablica 1).

Mineraloško-petrografskom analizom utvrđeno je da indeks refleksije ugljena odgovara klasifikaciji ugljena po stupnju metamorfoze (tablica 2). Prema *Kötleru* i *Stachu*<sup>7</sup> utvrđenim indeksima refleksije ( $R_e$ ) odgovara udjel volatila, odnosno starost ugljena:

Tablica 1 – Imedijatna analiza ugljena

Table 1 – Immediate analysis of coal

Rudnik Mine	Imedijatna analiza uglja ugljena* w/% m/m Immediate analysis kJ kg <sup>-1</sup>												
	GW	HW	UW	A	IM	KO	C <sub>fix</sub>	SM	S <sub>u</sub>	S <sub>v</sub>	S <sub>s</sub>	h <sub>g</sub>	h <sub>d</sub>
Pliocenski ugljeni slojevi – Krekanski ugljeni bazen Pliocene coal beds – "Kreka" coal basin													
Mramor	-	-	43,29	10,95	25,85	30,86	19,91	45,76	0,48	0,31	0,17	12520	10862
Bukinje	-	-	37,75	15,98	28,69	36,32	18,74	46,27	0,42	0,33	0,09	12565	11180
Lipnica	35,10	6,10	41,20	14,12	25,41	33,39	19,27	44,68	0,74	0,38	0,36	12132	10540
Miocenski ugljeni slojevi Miocene coal beds													
Srednjobosanski ugljeni bazen "Srednjobosanski" coal basin													
Zenica	10,00	4,73	14,73	19,21	42,29	42,98	23,77	66,06	3,49	1,07	2,42	20882	17787
Kakanj	4,50	5,74	10,24	41,70	25,56	64,19	22,50	48,06	2,08	0,45	1,84	14061	12638
Breza	4,00	4,50	8,50	21,27	33,40	58,11	36,83	70,23	2,32	0,48	1,84	23061	21012
Banovički ugljeni bazen "Banovići" Coal basin													
Banovići	10,41	11,74	22,15	11,12	32,81	44,81	33,92	66,73	1,87	0,93	0,94	19554	18213

\* GW – gruba vlaga – coarse moisture; HW – higro-vlaga – higro moisture; UW – ukupna vlaga – total moisture; A – pepeo – ash; IM – isparljive tvari – volatile matters; KO – koksni ostatak – coke residue; C<sub>fix</sub> – fiksni ugljik – fixed carbon; SM – izgorive tvari – combustible matters; S<sub>u</sub> – sumpor ukupni – total sulfur; S<sub>v</sub> – sumpor vezani – bounded sulfur; S<sub>s</sub> – izgorivi sumpor – combustible sulfur; h<sub>g</sub> – gornja toplinska vrijednost – gross calorific value; h<sub>d</sub> – donja toplinska vrijednost – net calorific value

Tablica 2 – Mineralno-petrografska analiza ispitivanih ugljena<sup>6</sup>

Table 2 – Mineral-petrographic analysis of investigated coals

Ugljeni sloj Coal bed	Indeks refleksije Reflection index, R <sub>e</sub>	Maceralni sastav, w/% Macerals content			glinene tvari clay matters, w/%	pirit pyrite, w/%	Napomena Remark
		huminit	liptinit	intertinit			
Srednja Bosna	0,462	73	5*	9**	3	10	subbituminozan sub-bituminous
Banovići	0,635	81	4*	9	4	2	bituminozan bituminous
Kreka	0,353	65	3	13	15	4	lignit lignite

\* uglavnom spore  
mainly spores;

\*\* uglavnom fuzinit i makrini  
mainly fusinite and macrinite

- Banovići ( $\varphi_{\text{daf}} = 44\%$ )  $\Rightarrow Re = 0,635\%$   $\Rightarrow \varphi_{\text{daf}} = 43\%$  – bituminozan – koksni ugljen
- Srednja Bosna ( $\varphi_{\text{daf}} = 46\%$ )  $\Rightarrow Re = 0,462\%$   $\Rightarrow \varphi_{\text{daf}} = 48\%$  – subbituminozan – polukoksnog ugljen
- Kreka ( $\varphi_{\text{daf}} = 54\%$ )  $\Rightarrow Re = 0,353\%$   $\Rightarrow \varphi_{\text{daf}} = 54\%$  – lignit

U svim ispitivanjima ugljenima utvrđen je dominantni udjel huminita, koji je kod smeđih ugljena veći, nego kod lignita. Osim huminita u ugljenima su utvrđeni i različiti postotci liptinita i intertinita. Prema *J. L. Ettinger*<sup>8</sup> najveći adsorpcijski obujam pripisuje se fuzinitu, dok *H. Wildschut*<sup>9</sup> u svojim ispitivanjima istovrsnih mineralno-petrografskih preparata utvrđuje da je adsorpcijski obujam vitrinita veći za oko 60 % od adsorpcijskog obujama durita.

Istraživanja u jamskim uvjetima pokazuju da postoji hiperbolična ovisnost između udjela slobodnog plina u sloju, ukupnog plina u sloju, tlaka plina u sloju i indeksa desorpcije. Na temelju mjerenja u jamskim uvjetima utvrđeni su grafički (dijagrami 1, 2 i 3) i empirijski oblici jednadžbi za izračunavanje količine slobodnog plina u ugljenom sloju, s visokim koeficijentom korelacije. Jednadžbe koje definiraju te ovisnosti dane su za Srednjobosanski ugljeni bazen i Glavni sloj ugljenog bazena Kreka (tablica 6). Za ostale slojeve nije bilo moguće utvrditi ove ovisnosti zbog negativnog indeksa desorpcije, izmjerenog u jamskim uvjetima.

Jednadžbe omogućavaju brzo operativno izračunavanje količine slobodnog plina u ugljenom sloju na temelju jednostavnog mjerenja indeksa desorpcije.

Indeksi desorpcije u jamskim uvjetima pokazuju znatne razlike u ponašanju sve tri vrste ugljena. Indeks desorpcije mjereno u svim jamama Srednjobosanskog ugljenog baze-

na imao je pozitivne vrijednosti, što ukazuje na dinamičko kretanje plina u ugljenom sloju. Te visoke vrijednosti također govore da se plin u ugljenom sloju nalazi pod tlakom do  $p = 3,75$  MPa. Ukoliko vrijednost indeksa desorpcije izmjerena na desorbometru, prekorači  $\Delta p = 1177$  Pa, postoji mogućnost izboja plina, što se već događalo u ovom bazenu. Količine slobodnog plina kreću se, na temelju ovih mjerenja, od 15 do 26 % u odnosu na ukupno adsorbirani plin u ugljenu.

Indeks desorpcije za Banovički ugljeni bazen tijekom svih mjerenja imao je negativne vrijednosti, što posredno ukazuje na neznatnu količinu slobodnog plina (do ~5 %), čije je kretanje u sloju difuzno. Tlak slobodnog plina u sloju u pravilu je ispod  $p = 0,1$  MPa.

Istovrsno ponašanje indeksa desorpcije utvrđeno je za Krekanski ugljen. Iznimno negativne vrijednosti indeksa desorpcije tih ugljena (–1060 Pa – tablica 3) upućuju na to da se radi o ugljenima sa snažnim adsorpcijskim karakteristikama, jer pri mjerenju ne samo da ne izdvajaju plin, nego snažno upijaju zrak iz manometarske cjevčice desorbometra. Tlak slobodnog plina u sloju je standardno ispod  $p = 0,1$  MPa (maksimalna vrijednost koja je izmjerena iznosi  $p = 0,056$  MPa), udjel slobodnog plina je do  $\varphi = 6\%$  u odnosu na ukupno adsorbirani plin, a transport plina kroz ugljeni sloj obavlja se isključivo difuzijom.

Jednadžbe za izračunavanje ukupne adsorbirane količine plina u ugljenu na temelju mjerenja koeficijenta desorpcije ( $\Delta p_2$ ) i tlaka plina ( $p$ ) u ugljenom sloju dane u tablici 7, omogućavaju brzo operativno izračunavanje ukupne količine adsorbiranog plina u pojedinom ugljenom bazenu.

Na osnovi količina adsorbiranog plina na ugljenima različite starosti, dobivenih na aparaturi AOP, izrađene su adsorp-

Tablica 3 – Maksimalne vrijednosti količina slobodnog plina u ugljenom sloju

Table 3 – Maximum values of free gas amounts in coal bed

Ugljeni sloj Coal bed	Indeks desorpcije u jamskim uvjetima, <i>In situ</i> desorption index $\Delta p_2/\text{Pa}$	Tlak plina u sloju, Gas pressure in coal bed, $p/10^5\text{Pa}$	Količina slobodnog plina Free gas quantity, $\text{m}^3 \text{t}^{-1} \text{CH}_4$	Metanonosnost sloja Methane content, $\text{m}^3 \text{t}^{-1} \text{CH}_4$	Udjel slobodnog plina Free gas, $\varphi/\%$
Pliocenski ugljeni slojevi Pliocene coal beds					
II. krovni sloj Mramor	–451	0,19	0,010	0,171	5,85
I. krovni sloj Lipnica	–1060	0,1	0,005	0,244	2,05
Glavni sloj Bukinje	–59	0,56	0,030	0,567	5,29
Miocenski ugljeni slojevi Miocene coal beds					
Banovički ugljeni sloj "Banovići" Coal bed					
Banovići – Omazići	–157	0,44	0,025	0,470	5,30
Srednjobosanski ugljeni bazen "Srednjobosanski" coal basin					
Zenica – Raspotočje	1471	37,5	2,03	7,94	25,57
Kakanj – Stara Jama	942	23,3	1,23	8,34	14,75
Breza – Sretno	726	11,8	0,61	2,90	21,03

T a b l i c a 4 – Skraćena tehnička analiza ugljena, količina adsorbiranog plina i tlak plina u ugljenom sloju

T a b l e 4 – Shortened thermal analysis of coal, quantity of absorbed gas and gas pressure in the coal bed

Rudnik (jama) Mine (Pit)	Skraćena tehnička analiza ugljena Condensed engineering analysis of coal, %/m/m			Adsorbirani plin Adsorbed gas, $\text{m}^3 \text{t}^{-1}$		Udjel $\text{CH}_4$ i $\text{CO}_2$ u adsorbiranom plinu Fraction of $\text{CH}_4$ i $\text{CO}_2$ in adsorbed gas		Tlak plina u sloju Gas pressure in coal, $\text{p}/10^5 \text{Pa}$
	uk. vlaga total moisture	pepeo ash	čus*	$\text{CH}_4$	$\text{CO}_2$	$\text{CH}_4$	$\text{CO}_2$	
Miocenski ugljen Miocene coal								
Srednjobosanski ugljeni bazen "Srednjobosanski" coal basin								
Zenica	5,15–10,74	12,50–19,28	69,98–82,35	2,57–7,94	0,31–0,87	82,69–95,63	4,37–17,31	5,7–37,5
Kakanj	1,65–9,26	12,11–55,36	40,69–81,78	2,85–8,34	0,23–1,36	85,23–94,75	5,25–14,77	7,78–23,3
Breza	8,87–10,39	4,13–33,28	57,39–87,00	0,46–2,90	0,22–0,60	65,95–85,37	13,52–34,05	0,34–15,7
Banovički ugljeni bazen Banovići coal basin								
Banovići	10,24–11,70	6,87–56,09	32,64–81,43	0,35–1,49	0,04–0,15	79,41–90,74	9,26–20,59	0,33–2,16
Pliocenski ugljen Pliocene coal								
Krekanski ugljeni bazen** Kreka coal basin								
I. KS (B)	32,03–35,03	3,46–17,39	50,58–61,51	0,15–0,24	0,19–0,23	42,37–51,47	48,53–57,63	0,098
I. KS (L)	40,84–45,07	2,03–11,72	47,44–54,08	0,0–0,78	0,04–1,20	0,0–83,29	16,71–100	0,05–0,9
II. KS (L)	36,53–45,42	4,02–25,06	38,41–54,64	0,22–1,14	0,50–0,66	25,31–69,48	30,52–74,69	0,26–0,91
II. KS (M)	16,90–45,98	1,66–9,58	47,04–73,52	0,17–1,22	0,07–0,55	57,73–93,07	6,93–42,27	0,02–0,98
Gl. sloj(B)	28,87–33,28	9,45–26,19	44,94–57,27	0,27–0,57	0,04–0,14	66,33–92,79	7,21–33,67	0,30–0,56
Gl. Ssloj(L)	35,53–36,27	4,91–7,17	57,30–58,82	$6 \cdot 10^{-4}$	0,18	0,31–0,34	99,66–99,69	0,21–0,22

\* čista ugljena supstancija  
pure coal substance;

\*\* (B)-Bukinje; (L)-Lipnica; (M)-Mramor

T a b l i c a 5 – Jednadžbe za izračunavanje količine slobodnog plina ( $a_{sl}$ ) u ugljenuT a b l e 5 – Equations for calculation of free gas ( $a_{sl}$ ) quantity in coal bed

Ugljeni bazen Coal basin	Jednadžba Equation	$R^2$
Srednja Bosna	$a_{sl} = 0,0914 \Delta p_2^{1,1265}$	0,7956
Kreka – glavni sloj	$a_{sl} = 0,0316 e^{0,2185 \Delta p_2}$	0,9909

cijske izoterme za sve ispitivane bazene. Utvrđeno je da su plinovi u ugljenom sloju adsorbirani po Langmuirskoj adsorpcijskoj izotermi.

Prema istraživanjima<sup>10,11,12,13,14,15</sup> vrijednosti Langmuirskih veličina za kamene ugljene kreću se:  $a_m$  do  $30 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1}$ ;  $b$  od  $0,007$  do  $0,037 \text{ MPa}^{-1}$ .

Vrijednosti Langmuirskih konstanti dobivene u ovom radu za ispitivane ugljene slojeve u jamskim uvjetima dane su u tablici 7. Na temelju dobivenih rezultata količina adsorbiranog plina u ugljenim slojevima izrađene su adsorpcijske izoterme odnosno utvrđene su vrijednosti veličina  $a_m$  i  $b$  iz jednadžbe (1).

Za ugljene miocenske starosti utvrđene vrijednosti veličina su:

– srednjobosanski ugljeni bazen  $a_m = 9,52 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1}$ ;  $b = 0,00665 \text{ MPa}^{-1}$ ,

– banovički ugljeni bazen  $a_m = 1,40 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1}$ ;  $b = 0,107 \text{ MPa}^{-1}$ .

Za ugljene pliocenske starosti utvrđene vrijednosti veličina su sljedeće:

– krekaški ugljeni bazen  $a_m = 0,826 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1}$  a  $b = 0,247 \text{ MPa}^{-1}$ .

Količina adsorbiranog plina u ispitivanim ugljenima u usporedbi s kamenim ugljenima znatno je niža, što se čini lo-

T a b l i c a 6 – Jednadžbe za izračunavanje količine adsorbiranog plina ( $a_s$ ) u ugljenuT a b l e 6 – Equations for calculation of adsorbed gas ( $a_s$ ) in coal bed

Jednadžba ovisnosti ukupnog sadržaja plina o desorpcijskom tlaku $a = f(\Delta p_2 / \text{m}^{-1}_{\text{uglj}})$ Equation of dependence of total gas content from pressure desorption $a = f(\Delta p_2 / \text{m}^{-1}_{\text{coal}})$		
Srednja Bosna	$a = 0,6494 \Delta p_2^{1,0136}$	0,9307
Banovići	$a = -0,0131 \Delta p_2^2 + 0,8048 \Delta p_2 - 0,0787$ $a = f(p)$	0,9996
Srednja Bosna	$a = -0,4647 p^2 + 3,4836 p + 0,3607$	0,6501
Banovići	$a = 4,0409 p^{0,6387}$	0,9143

T a b l i c a 7 – Langmuirove veličine

T a b l e 7 – Langmuir quantities

Srednja Bosna		Banovići		Kreka	
$a_m$ $\text{m}^3 \text{t}^{-1}$	$b$ $\text{MPa}^{-1}$	$a_m$ $\text{m}^3 \text{t}^{-1}$	$b$ $\text{MPa}^{-1}$	$a_m$ $\text{m}^3 \text{t}^{-1}$	$b$ $\text{MPa}^{-1}$
9,52	0,00665	1,40	0,107	0,826	0,247

gičnim s obzirom da se radi o mlađim ugljenim formacijama.

Maksimalnu adsorbiranu količinu plina ima srednjobosanski smeđi ugljen i ona iznosi  $a_m = 8,34 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1} \text{ CH}_4$  i  $1,36 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1} \text{ CO}_2$ , a izmjerena je u jami "Stara jama" Rudnika Kakanj (tablica 4).

Banovički ugljeni bazen ima znatno manje adsorbiranog metana i  $\text{CO}_2$ . Maksimalno utvrđeni sadržaj adsorbiranog metana u tom sloju iznosio je  $a_m = 1,49 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1} \text{ CH}_4$  i  $0,15 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1} \text{ CO}_2$ .

U pogledu količine adsorbiranog metana pliocenski ugljeni ga imaju vrlo malo, od  $a_m = 0-1,22 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1} \text{ CH}_4$ , a  $\text{CO}_2$  do  $1,20 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1} \text{ CO}_2$ .

Istraživanja plinonosti ugljenih slojeva u BiH provedena u ovom radu pokazuju da ugljeni slojevi od eksplozivnih plinova primarno sadrže metan, dok se ostali ugljikovodici, kao etan, eten, etin, propan, propen te butan sporadično javljaju u udjelima ispod  $\varphi = 10^{-6}$ . Također je utvrđeno postojanje ugljikovog dioksida i dušika. Omjer adsorbiranog metana i ugljikovog dioksida u ukupno adsorbiranom plinu srednjobosanskog i banovičkog bazena je  $\psi_{\text{CH}_4/\text{CO}_2} = 6 : 1$ . Za lignite je taj omjer prilično neujednačen i za glavni ugljeni sloj i I. krovni sloj (KS) on iznosi  $\psi_{\text{CH}_4/\text{CO}_2} = 1 : 2$ , a za II. KS  $\psi_{\text{CH}_4/\text{CO}_2} = 2 : 1$ . Razlog takvom omjeru leži u geo-

loškoj formaciji i položaju II. KS u sinklinoriji. On se nalazi iznad glavnog i I. krovnog sloja i u pravilu je metanonosan. Metan s veličinom molekule od  $d = 333 \text{ pm}$  ima sposobnost difuzije i migracije kroz pore u ugljenu, ali ostaje u II. KS, čije su krovinske naslage izgrađene od nepropusnih glinovitih lapora.

## Zaključak

Istraživanjem udjela adsorbiranih plinova u ugljenim slojevima u Bosni i Hercegovini provedenim u ovom radu došlo se do sljedećih zaključaka:

1. Ispitivani ugljeni u netaknutom ugljenom sloju, ali i u sloju koji je u eksploataciji, sadrže adsorbirane i slobodne plinove čije je porijeklo vezano za metamorfozu biljne mase u ugljen. Adsorbirani plinovi na ugljenu su vezani fizičkom adsorpcijom po Langmuirovoj izotermi adsorpcije. Slobodan plin se nalazi u mikropukotinama i naprsinama ugljena. Količina adsorbiranog i slobodnog plina u ugljenom sloju direktno je proporcionalna tlaku plina. Ovisnost je hiperbolična.

2. Otvaranjem ugljenog sloja oslobađa se nevezani – slobodni plin i počinje proces desorpcije adsorbiranog plina u ugljena. Količina tog plina u jamskim uvjetima utvrđuje se mjerenjem indeksa desorpcije ( $\Delta p_2$ ).

3. Vrijednost indeksa desorpcije za srednjobosanski ugljeni bazen kreće se do  $\Delta p_2 = 1471 \text{ Pa}$ . Tlak slobodnog plina u tom bazenu iznosi do  $p = 3,75 \text{ MPa}$ . Za ugljene banovičkog i krekanskog bazena indeks desorpcije ima negativnu vrijednost, što znači da ugljeni sloj sadrži neznatnu količinu slobodnog plina, dok je izdvajanje adsorbiranih plinova difuzno. Tlak slobodnog plina u tim bazenima je ispod  $p = 0,1 \text{ MPa}$ .

4. Istraživanjem količine adsorbiranih plinova na ugljenu različite starosti utvrđeno je da miocenski ugljeni srednjobosanskog ugljenog bazena sadrže maksimalno do  $a_m = 8,34 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1} \text{ CH}_4$  i  $1,36 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1} \text{ CO}_2$ ; miocenski ugljen banovičkog ugljenog bazena sadrži do  $a_m = 1,49 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1} \text{ CH}_4$  i  $0,15 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1} \text{ CO}_2$  i pliocenski ugljeni krekanskog bazena sadrže do  $a_m = 1,22 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1} \text{ CH}_4$  i  $1,20 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1} \text{ CO}_2$ .

5. Adsorbirani plin kod ugljena miocenske starosti sadrži metan i ugljikov dioksid u odnosu  $\psi_{\text{CH}_4/\text{CO}_2} = 6 : 1$ . Kod ugljena pliocenske starosti u nemetanskim slojevima dominantan je sadržaj ugljikovog dioksida.

6. Langmuirove veličine za jamske uvjete iznose:  $a_m$  od  $0,826$  do  $9,52 \text{ m}^3 \text{ t}^{-1}$  i  $b$  od  $6,65 \cdot 10^{-3}$  do  $0,247 \text{ MPa}^{-1}$ .

7. Na temelju rezultata provedenih istraživanja dobiveni su jednostavni matematički oblici za brzo izračunavanje količine slobodnog plina mjerenjem indeksa desorpcije u jamskim uvjetima te količine ukupno adsorbiranog plina u novootvorenim revirima i ugljenim slojevima. To znači da je moguće brzim operativnim postupkom utvrditi neposrednu opasnost od izbijanja plina i preventivno djelovati pri eksploataciji novih i još neistraženih rudarskih slojeva.

**Literatura****References**

1. *Borowsky, J.*, Badanie gazonosności pokładów węglowych z zastosowaniem nowej metod, Komunikat 645, GIG, Katowice (1975).
2. *BAS ISO STANDARDI ZA UGLJENE*: BAS/ISO 331/83; ISO 1171/99; ISO 562/99; ISO 351/99; ISO 157/99; ISO 1928/99; ISO 1953/99; ISO 5069-2/99; ISO 7404-1/94; ISO 7404-2/85; ISO 7404-3/94; ISO 7404-4/88; ISO 7404-5/94
3. Instrukcija desorbometrijske metode MDM-2: Pomiarow gazonosności pokladow wegla, Dokumentacija badan adaptacyjnych metody do warunkow Dolnoslaskiego ZPW nNo 01.4..02.01.97/2/79R, GIG, Katowicw, 1980.
4. *A. Gogolewska, K. Mnich, P., Piotrowski*, Badan wskaźnika początkowej desorpcji dla wegla Zagłębia Dolnoslaskiego, Przegląd Gorniczy **9** (1991) 78.
5. Dokumentacija Rudarsko-geološkog fakulteta Tuzla, Radni materijali ispitivanja gazonosnosti ugljenih slojeva u periodu od 1980–1999.
6. *S. Mičević*, *Doktorska disertacija, Univerzitet u Tuzli, Tehnološki fakultet Tuzla, Tuzla 2001.*
7. *E. Stach*: Coal Petrology, Interscience Publik., New York, 1982, pp. 84, 432.
8. *J. Ettinger*, Fiziczeskaja chimia gazonosnowo ugolnowo plasta, Nauka, Moskwa, 1981.
9. *H. Wildschut*, Etude concernant le gisement, le degagement du grison et les moyens de le combattre effectuée dans les mines des Pays-Bas. Commission des Communantes Européenes, Bruxelles **26** (1970) 67.
10. *M. Bivalec-Dworok*, Analiza porównawcza metoda pomiaru zawarości metanu w pokladow wegla, PRZ.GOR **7-8** (1996) 25.
11. *Z. Kobiela, B. Wrona*, Wlasności sorpcyjne wegla kamiennich z pokladow silnie gazonosnych okreslone metoda wagowa, Przegląd Gorniczy **7-8** (1986) 259.
12. *R. Vandeloise*, Adsorption und Desorption von Methan Anwendung aus die Überwachung der Ausgasung in Utertagebannen, Europäische Gemeinschaft für Kohle und Stahl, Kommission, Luxemburg, 1970, pp. 123–138.
13. *J. Günther*, Etude de la liaison gaz carbon, Revue de l'Industrie Minerale **2** (1976) 25.
14. *H. D. Schilling, H. Jüngten, W. Peteres*, Glückauf, **5** (1966) 145.
15. *W. Kozłowski*, Prognozowanie zagrożenia metanowego w kopalniach wegla kamiennego, Wydawnictwo Slask, Katowice, 1972, pp. 25.

**Popis simbola****List of symbols**

- |                       |                                                                                                                        |
|-----------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| <i>a</i>              | – količina plina, m <sup>3</sup> t <sup>-1</sup><br>– amount of gas, m <sup>3</sup> t <sup>-1</sup>                    |
| <i>a<sub>m</sub></i>  | – maksimalna količina plina, m <sup>3</sup> t <sup>-1</sup><br>– maximum amount of gas, m <sup>3</sup> t <sup>-1</sup> |
| <i>b</i>              | – koeficijent u jed. (3), MPa <sup>-1</sup><br>– coefficient in eq. (3), MPa <sup>-1</sup>                             |
| <i>d</i>              | – promjer, mm<br>– diameter, mm                                                                                        |
| <i>h</i>              | – dubina, m<br>– depth, m                                                                                              |
| <i>h</i>              | – toplinska vrijednost, kJ kg <sup>-1</sup><br>– calorific value, kJ kg <sup>-1</sup>                                  |
| <i>m</i>              | – masa, g, kg, t<br>– mass, g, kg, t                                                                                   |
| <i>p</i>              | – tlak, MPa<br>– pressure, MPa                                                                                         |
| <i>Δp<sub>2</sub></i> | – indeks desorpcije, Pa<br>– desorption index, Pa                                                                      |
| <i>R<sup>2</sup></i>  | – koeficijent korelacije<br>– correlation coefficient                                                                  |
| <i>V</i>              | – obujam, L<br>– volume, L                                                                                             |
| <i>w</i>              | – maseni udjel, %<br>– mass fraction, %                                                                                |
| <i>φ</i>              | – obujmni udjel, %<br>– volume fraction, %                                                                             |
| <i>ψ</i>              | – obujmni omjer faza, V <sub>A</sub> /V <sub>B</sub><br>– phase volume ratio, V <sub>A</sub> /V <sub>B</sub>           |



## SUMMARY

## Investigation of Adsorbed Gases Content in Coal Beds in Bosnia and Herzegovina

S. Mičević<sup>a</sup> and J. Sadadinović<sup>b</sup>

Investigation of the gas fraction in coal beds in Bosnia & Herzegovina has been performed systematically since 1988. Gas in coal beds can be present in free or adsorbed form, and dissolved in water. Methods of investigation are based on the direct approach, according to which the gas fraction is determined in the undisturbed coal bed.

The quantity of the adsorbed and free gas in the coal bed is directly proportional to the gas pressure. Dependence is hyperbolic. The quantity of the free gas in mining conditions is being determined by measurement of the desorption index ( $\Delta p_2$ ). The desorption index for the Srednjobosanski coal basin ranges to 1571 Pa, and the free gas pressure in this coal basin amounts up to 3.75 MPa. The desorption index for coal beds in "Kreka" and "Banoviće" coal basins has negative values, which means that the free gas fraction within the coal beds is negligible, while separation of adsorbed gases is diffuse. The free gas pressure in the mentioned coal basins is below 0.1 MPa.

Adsorbed gases within the coal are connected by physical adsorption according to Langmuir's isothermal adsorption curve. Langmuir's quantities, for coal bed conditions, ranges as follows:  $a_m$  from 0.826 to 9.52 m<sup>3</sup> t<sup>-1</sup><sub>pcs</sub>, and  $b$  from 6.65 · 10<sup>-3</sup> to 0.247 MPa<sup>-1</sup>.

Adsorbed gas within Miocene coal beds contains methane in amounts of 1.49 m<sup>3</sup> t<sup>-1</sup><sub>cus</sub> CH<sub>4</sub> and carbon(IV)oxide in amounts of 0.15 m<sup>3</sup> t<sup>-1</sup><sub>cus</sub> CO<sub>2</sub>. Adsorbed gas within Pliocene coal beds, without methane, dominant is content of carbon(IV)oxide.

The investigation of the gas content in coal beds of BiH conducted in this article reveal that the coal beds primarily contain methane, while others hydrocarbons such as ethane, ethene, propane, propene and butane are present sporadically in fraction below  $\varphi/10^{-6}$ .

Based on the investigation results conducted in this article, simple mathematical forms were obtained for quick calculation of the free gas quantity by measurement of the desorption index in mining, as well as calculation of the totally adsorbed gas in newly opened mining district and coal beds. This means that it is possible by a quick operative procedure to determine the immediate danger from gas outburst, and apply preventive measures in coal mining of still unexplored coal beds.

<sup>a</sup> University of Tuzla,  
Faculty of Science, Univerzitetska 4,  
75 000 Tuzla, BiH

<sup>b</sup> University of Tuzla,  
Faculty of Technology, Univerzitetska 8,  
75 000 Tuzla, BiH

Received December 7, 2006  
Accepted April 17, 2008