

DOI: 10.16285/j.rsm.2022.1007

基于核磁共振和磁共振成像的低渗透岩芯 CO₂-H₂O 两相驱替特征研究

赵 艳^{1,2}, 杨 柳^{1,2}, 奚茹茹^{1,2}, 耿振坤^{1,2}, 张 谦³, 马雄德^{1,2}

(1. 长安大学 水利与环境学院, 陕西 西安 710054; 2. 长安大学 旱区地下水文与生态效应教育部重点实验室, 陕西 西安 710054;
3. 中国石油长庆油田分公司规划计划部, 陕西 西安 710018)

摘 要: 致密岩石的孔隙结构特征对 CO₂ 和水之间的驱替行为以及 CO₂ 相的流动特征具有重要影响, 且残余水饱和度最终将影响碳封存的效率 and 安全性, 因此, 深入探究致密岩芯 CO₂-H₂O 两相驱替特征具有重要意义。利用取自鄂尔多斯盆地深部储层的天然低渗透岩芯, 利用核磁共振 (NMR) 及磁共振成像 (MRI) 技术对其内部的气液两相驱替特征及其影响因素进行了可视化研究。在将岩芯孔隙结构进行定性和定量化表征后, 可知不同的驱替模式与岩芯孔隙结构密切相关: 具有较强非均质性和各向异性的岩芯更有利于指进现象的发生, 具有较大孔隙度和较高渗透率的岩芯则呈现活塞式驱替模式。指进现象有助于气相的运移, 会造成气相的提前突破, 导致较高的残余水饱和度及较低的驱替效率。

关 键 词: CO₂地质封存; 驱替效率; 孔隙结构特征; 相对渗透率; 核磁共振

中图分类号: TU457

文献标识码: A

文章编号: 1000-7598 (2023) 06-1636-09

CO₂-H₂O two-phase displacement characteristics of low permeability core using nuclear magnetic resonance and magnetic resonance imaging techniques

ZHAO Yan^{1,2}, YANG Liu^{1,2}, XI Ru-ru^{1,2}, GENG Zhen-kun^{1,2}, ZHANG Qian³, MA Xiong-de^{1,2}

(1. School of Water and Environment, Chang'an University, Xi'an, Shaanxi 710054, China; 2. Key Laboratory of Subsurface Hydrology and Ecological Effects in Arid Region of Ministry of Education, Chang'an University, Xi'an, Shaanxi 710054, China;
3. Petro China Changqing Oilfield Company Planning Department, Xi'an, Shaanxi 710018, China)

Abstract: The pore structure characteristics of tight rocks have an important impact on the displacement behavior between CO₂ and water, as well as the flow characteristics of CO₂. The residual water saturation will ultimately affect the efficiency and safety of CO₂ geological storage. Therefore, it is of great significance to further explore the CO₂-H₂O two-phase displacement characteristics of tight cores. In this study, the two-phase displacement characteristics and its influencing factors of natural low-permeability cores from deep reservoirs in Ordos Basin were visualized using nuclear magnetic resonance (NMR) and magnetic resonance imaging (MRI) techniques. After qualitative and quantitative characterization of core pore structure, it is found that displacement patterns are closely related to core pore structure. Cores with strong heterogeneity and anisotropy are more conducive to the formation of fingering phenomena, while cores with large porosity and high permeability show piston-like displacement pattern. Fingering phenomena contributes to the migration of gas phase and can lead to the premature breakthrough of CO₂, resulting in high residual water saturation and low displacement efficiency.

Keywords: CO₂ geological storage; displacement efficiency; pore structure characteristics; relative permeability; nuclear magnetic resonance

1 引 言

在全球变暖的威胁下, 人类面临着二氧化碳减

排的巨大压力和挑战^[1-3], CO₂地质封存 (GCS) 被广泛认为是缓解温室气体排放的有效技术^[4]。GCS 的封存效率和安全性与岩层中 CO₂ 的迁移、气液两

收稿日期: 2022-06-30

录用日期: 2022-09-18

基金项目: 国家自然科学基金 (No.42007174); 中国博士后科学基金 (No.2021M692736); 长安大学中央高校基本科研业务费专项资金 (No.300102293206)。

This work was supported by the National Natural Science Foundation of China (42007174), the China Postdoctoral Science Foundation (2021M692736) and the Fundamental Research Funds for the Central Universities, CHD (300102293206).

第一作者简介: 赵艳, 女, 1989 年生, 博士, 高级工程师, 主要从事 CO₂地质封存方面的研究工作。E-mail: yanzhao@chd.edu.cn

相的驱替特征以及残余水饱和度等密切相关^[2]。许多研究已经证实由于 CO₂ 相对于地层盐水的黏度较低, 指进现象的发生会直接导致 CO₂ 封存效率下降^[5], 同时还会增加 CO₂ 通过盖层泄漏的可能性^[6]。因此, 需要开展 GCS 条件下 CO₂-H₂O 间驱替特征的系统研究, 查明影响驱替模式及残余水饱和度的关键因素, 进而确保高效安全的 CO₂ 地质封存^[7]。

针对 CO₂ 地质封存中两相驱替行为的研究, 前人已经进行了大量的实验室及数值模拟工作, 证实了驱替特征与气液界面张力、润湿性及孔隙结构密切相关。Li 等^[8]研究了人造岩芯中盐水浓度对残余水的影响, 试验结果表明残余水饱和度随着盐水浓度的增大而增大, 且盐水种类对残余水饱和度也有显著影响^[9-10]。Zheng 等^[11]对微流控芯片开展了 CO₂ 排驱盐水试验, 证实了 CO₂ 注入速率和 CO₂-H₂O 间的界面张力会影响 CO₂ 的饱和度分布。Chang 等^[5]在非均质微模型中开展的超临界 CO₂ 驱替咸水试验, 结果表明微模型的润湿性和孔隙结构的非均质性是影响驱替效率的重要因素。吕鹏飞^[12]针对填砂模型开展的研究表明, 非均质性对 CO₂ 分布的影响随着注入速度的增大而增强; 在相同注入流速下, 多孔介质润湿性越强, 越容易发生 CO₂ 对咸水的局部不稳定驱替。此外, 深部地层中两相流动行为还受毛细压力 P_c 、饱和度 S 和相对渗透率 K_r 之间的关系控制^[13]。Das 等^[14]研究表明在不同性质(孔径分布、渗透性等)土壤上进行的两相流试验会产生不同的 P_c - S - K_r 曲线。Zuo^[15]、Krevor^[16]等通过对含水层岩石相对渗透率的研究, 来揭示 CO₂ 咸水层的封存机制。因此, 深入探究岩层中两相驱替机制及其控制因素对于实现高效的 CO₂ 地质封存至关重要。

基于以上研究可知, 岩层中 CO₂-H₂O 系统中两相流体的驱替稳定性对残余水饱和度的形成以及驱替效率的影响机制仍缺乏深入研究。本研究基于核磁共振(NMR)及磁共振成像(MRI)技术, 对取自鄂尔多斯盆地深部储层的低渗透砂岩开展了 CO₂-H₂O 的两相驱替试验的可视化研究。通过阐明两相驱替特征对 CO₂ 地质封存效率及安全性的影响, 以期为 CO₂ 地质封存工程中目标储层的优选、封存效率及安全性的评价等提供理论依据和技术支持。

2 试验样品、装置及方法

2.1 试验样品

本研究所用试验样品为取自鄂尔多斯盆地深

部储层的低渗透砂岩。2 块砂岩岩芯分别来自侏罗系的延长组和二叠系的石盒子组(见图 1)。选取的岩芯被制备成直径相同、长度相近的圆柱体, 且两端被磨平。岩芯编号依次为 1[#]和 2[#], 岩芯钻取深度及长度、直径等参数列于表 1。表中岩芯的孔隙度和渗透率采取气测法, 选用的气体为氦气, 具体的测试方法可参考文献^[17]。

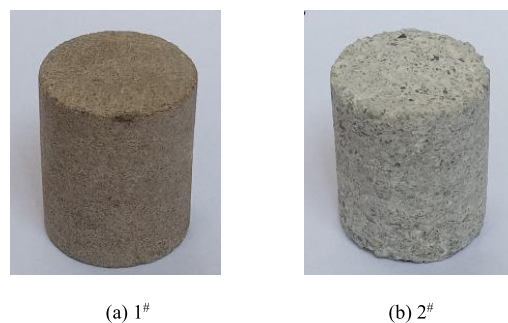


图 1 岩芯照片

Fig.1 Photos of rock core

表 1 岩芯基本参数

Table 1 Basic properties of core samples

岩芯编号	直径/mm	长度/mm	孔隙度	渗透率/ 10^{-9} m^2
1 [#]	25	29.8	13.99	7.86
2 [#]	25	30.2	11.86	0.27

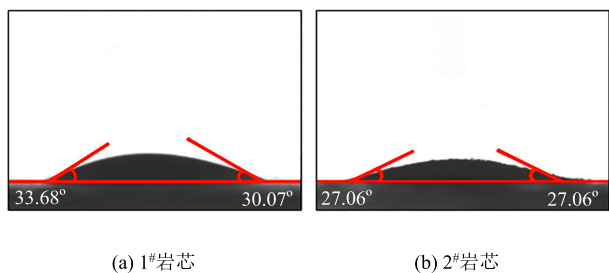
不同的矿物组成会导致岩石脆性、孔隙结构及润湿性等的差异, 从而影响岩石中气液两相的驱替特征。本研究采用 X 射线衍射法(XRD)测定各岩芯的矿物组成。X 射线衍射方法能够对致密岩石的细粒样品进行定量矿物成分分析, 测试由北京北大燕园微构分析测试中心完成, 样品制备和测试过程严格按照《沉积岩中黏土矿物和常见非黏土矿物 X 射线衍射分析方法》(SY/T 5163—2018)^[18]进行。表 2 列出了各岩芯所含的主要矿物成分, 分析结果表明所有岩芯中石英均占据最高的比例, 且两块岩芯均含有一定比例的黏土矿物, 此外 1[#]岩芯含有近 21%的斜长石。对两岩芯表面进行了水润湿性测试, 测得的接触角如图 2 所示, 表明两块岩芯均具有较强的亲水性。

表 2 岩芯主要矿物含量表

Table 2 Minerals contents for two samples

岩芯 编号	矿物含量/%						
	石英	斜长石	钾长石	方解石	菱铁矿	赤铁矿	黏土矿物
1 [#]	38.6	20.9	6.5	—	4.0	—	30.0
2 [#]	83.1	—	—	5.2	—	0.6	11.1

注: “—”表明列出的矿物成分未检出或含量可以忽略不计。



(a) 1#岩芯

(b) 2#岩芯

图2 岩芯表面水润湿性测试的接触角

Fig.2 Measured contact angles on the sample surface

2.2 试验装置

本研究使用的试验装置为核磁共振微观结构及流体分析及成像系统 (MacroMR12-150H-I, 纽迈), 该装置主要包括岩芯夹持系统、气/液体注入系统、回环压系统和数据计量系统, 如图3所示。

(1) 岩芯夹持系统: 岩芯被热缩套管包裹并水平放置在岩芯夹持器中, 周围加载的磁场强度为 0.3 ± 0.05 T (永磁体), 共振频率为 12 MHz。

(2) 气/液体注入系统: 可控制在恒定的压力(流量)条件下将气体或液体注入岩芯夹持器中。

(3) 回环压系统: 回压通过回压阀控制, 只有当注入岩芯的流体压力超过回压阀所设定的阈值时才可从岩芯夹持器出口端流出; 围压是通过注射泵环绕岩芯加载的压力。

(4) 数据计量系统: 为了监测上游和下游的压力值, 在岩芯夹持器的入口端和出口端分别设有压力传感器; 气体流量计用于测定流出岩芯的气体的瞬时流量; 以上的实时压力及流量值会通过电脑系统记录。

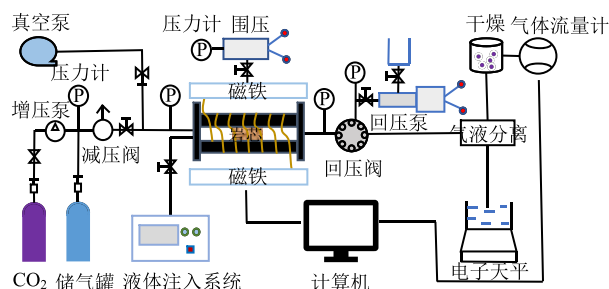


图3 装置示意图

Fig.3 Schematic diagram of the experimental device

2.3 试验方法

2.3.1 微观孔隙结构特征分析试验

前人研究表明, 通过对饱水岩芯的核磁共振测试得到的横向弛豫时间 T_2 分布, 经过适当地转换可等效为岩芯的孔径分布^[19]。该横向弛豫时间定义为

式(1), 等式右边的3项分别为岩石颗粒的表面弛豫、流体的体积弛豫和分子的扩散弛豫。

$$\frac{1}{T_2} = \rho_2 \left(\frac{S}{V} \right) + \frac{1}{T_{2B}} + \frac{D(\gamma G T_E)^2}{12} \quad (1)$$

式中: ρ_2 为孔隙表面的表面弛豫率 ($\mu\text{m}/\text{ms}$); S/V 为孔隙比表面积 (μm^{-1}); T_{2B} 为本体流体的横向弛豫时间 (ms); D 为流体的扩散系数 ($\mu\text{m}^2/\text{ms}$); γ 为旋磁比 ($\text{s}^{-1} \cdot \text{T}^{-1}$); G 为磁场梯度 (mT/m); T_E 为回波时间 (ms)。

T_2 值通常利用 Carr-Purcell-Meiboom-Gill (CPMG) 序列进行测量。当孔隙仅被单相流体饱和时, 体积弛豫比表面弛豫慢得多 ($T_{2B} \gg T_2$), 式(1)中的体积弛豫可被忽略。另一方面, 当磁场均匀 (G 非常小) 且回波间隔足够短 (式(1)中的 T_E 非常小) 时, 扩散弛豫的贡献同样小到可以忽略。因此, 表面弛豫被认为是岩石的主要弛豫机制, 可用于估算孔隙大小的分布特征^[20]。 T_2 值与孔径大小间关系可近似表示为

$$\frac{1}{T_2} = \rho_2 \left(\frac{S}{V} \right) = F_s \left(\frac{\rho_2}{r} \right) \quad (2)$$

式中: F_s 为形状因子, 随孔隙形状的变化而变化; r 为孔隙半径 (μm)。

将新鲜样品用甲醇和甲苯清洗, 将残留油去除到最低水平。然后将样品在 105°C 的高温烘箱中干燥 4 h, 此时样品称重记为 m_0 。将样品在烘箱中进一步干燥 1 h 后称重记为 m_i , 重复上述步骤, 直到 $(m_i - m_0)/m_0 \leq 0.03$, 样品的最终重量记为干重 m 。随后, 将干燥的样品用热缩套管包裹并放置在岩芯夹持器中, 使用核磁共振分析仪对样品进行 CPMG 序列测试, 由此测出的信号值作为后续测试的背景值^[21]。核磁共振 CPMG 序列测量的关键参数设置如下: 极化或等待时间 $T_W = 5000$ ms, 回波时间 $T_E = 0.1$ ms, 回波数 $N_E = 15000$, 扫描次数为 32。接着, 对岩芯夹持器进行抽真空处理以达到理想的真空条件 (< -0.1 MPa), 通过液体注入系统将去离子水引入岩芯夹持器内, 并通过注入氦气将压力逐渐增加到 20 MPa 并保持 12 h 以上, 以确保岩芯完全饱水。之后, 使用上述相同参数重复核磁共振 CPMG 序列测试, 得到岩芯饱水后的核磁共振信号值。

2.3.2 CO_2 - H_2O 两相驱替试验

对饱水岩芯样品进行 CO_2 驱替试验, 试验过程中同步对样品进行 CPMG 序列和 SE (自旋回波) 序列测试, 其中 SE 序列通常用于获取岩芯的磁共

振成像 (MRI)。由于采集到的核磁共振信号几乎都来自氢质子, 因此, CO₂ 的信号强度接近于 0, 该特征利于有效区分孔隙中的 CO₂ 和水的分布特征及饱和度计算。为了比较分析驱替过程和初始饱水条件下获得的 T_2 谱, CPMG 测试参数与上述试验相同。此外, 基于 SE 序列测试获得的 MRI 图像, 可将驱替过程中 CO₂ 流动特征及流体饱和度分布特征进行可视化分析。SE 序列测量的关键参数设置如下: 重复时间 $T_R = 500$ ms, 回波间隔 $T_E = 5.89$ ms, 256×192 的图像数据矩阵, 视野 (FOV) 为 $100 \text{ mm} \times 100 \text{ mm}$, 厚度为 10 mm 。

在驱替试验开始前, 对饱水岩芯进行 SE 序列测试, 得到岩芯饱水状态下的 MRI 图像。本研究中的驱替试验是通过在岩芯入口端施加稳定的高压 CO₂ (22 MPa) 来进行的, 并在岩芯出口端施加 20 MPa 的回压来模拟岩芯钻取深度 (1 500~2 300 m) 处的地层压力条件。考虑到 MacroMR12-150H-I 系统只能承受 23~27 °C 的工作温度范围, 试验温度设定为 25 °C。为了防止 CO₂ 通过岩芯和套管间隙泄露, 围压始终保持比入口端气体压力高 5 MPa。此外, 通过计算机实时记录岩芯夹持器两端的压力值。

在上述整个驱替过程中, 每间隔一定时间进行一次 CPMG 序列和 SE 序列测试, 由此可获得一系列经过不同驱替时长后岩芯的 T_2 分布及对应的 MRI 图像。随着驱替的进行, 水分的减少使得氢质子的信号强度逐渐减弱, 当信号强度接近背景值时同步观察 MRI 图像, 当图像中不同流体的分布界限难以区分, 即成像困难时可视为岩芯孔隙内水分已被驱替至残余饱和度, 此时结束驱替试验。

3 试验结果及讨论

3.1 孔径分布特征

由式 (2) 可知, 随着孔径的减小, 表面弛豫逐渐变快, 导致较大的孔隙对应较大的 T_2 值, 较小的孔隙则对应较小的 T_2 值^[21]。一旦确定 F_s 和 ρ_2 的取值后, 根据核磁共振得到的 T_2 谱可以直接转换为岩芯的孔径分布。但对于实测的岩芯, 确定 F_s 和 ρ_2 的困难较大^[22], 但同一个岩芯的 F_s 和 ρ_2 均可近似看作常数, 令系数 $C = \frac{1}{F_s \rho_2}$, 则式 (2) 可转换为

$$T_2 = Cr \quad (3)$$

因此, 求得 C 值后即可将核磁共振 T_2 谱换算为孔隙半径分布图。本研究在完成了高压压汞 (mercury injection capillary pressure, MICP) 试验

的基础上, 应用插值算法找到 T_2 谱与压汞孔径分布数据的对应关系, 应用最大相似性原理和最小二乘法, 计算压汞试验孔径累积曲线与不同 C 值转换的核磁共振孔径累积曲线之间的误差^[23]:

$$\delta = \frac{\sqrt{\sum_{i=1}^n \omega(x_i) (x_i - wx_i)^2}}{\sqrt{\sum_{i=1}^n \omega(x_i)}} \quad (4)$$

式中: δ 为误差 (μm); x_i 为压汞孔隙半径 (μm); $\omega(x_i)$ 为权重; wx_i 为 T_2 谱在一定 C 值下换算得到的孔隙半径 (μm); n 为压汞法孔隙半径分布点数。

图 4 为 2 个样品取不同 C 值时误差 δ 的变化规律 (括号内为曲线凹点处的坐标值), 根据李海波等^[23] 的研究可知, 当误差 δ 最小时 (即曲线凹点处), 对应的 C 值就是所求的最佳换算系数 C 值, 由此办法求得两个岩芯的最佳换算系数分别为 20.09、18.33 $\mu\text{m}/\text{ms}$ 。结合 NMR 测试得到的 T_2 谱, 便可转换为每个岩芯的孔径分布特征图 (见图 5), 可以看出两种曲线分布在形态和幅值上都有较好的一致性, 说明利用上述方法将 T_2 谱转换得到的孔径分布是合理可信的。此外根据目前被普遍采用的国际理论与应用化学联合会 (IUPAC) 的分类标准^[24], 孔径 < 2 nm 的被定义为微孔, 孔径在 2~50 nm 之间的被定义为介孔, 孔径 > 50 nm 的被定义为宏孔。由图可知, 1#岩芯所含宏孔比例为 84.4%, 2#岩芯宏孔比例为 63.5%, 且两块岩芯介孔和宏孔所占比例均高达 99% 以上。两个岩芯的孔径分布虽然都具有双峰结构, 但 1#岩芯的峰值较宽, 孔隙分布频率的变化幅度较小, 而 2#岩芯峰值较窄且孔隙分布频率变化幅度大, 对比而言, 2#岩芯的非均质性和各向异性更明显。

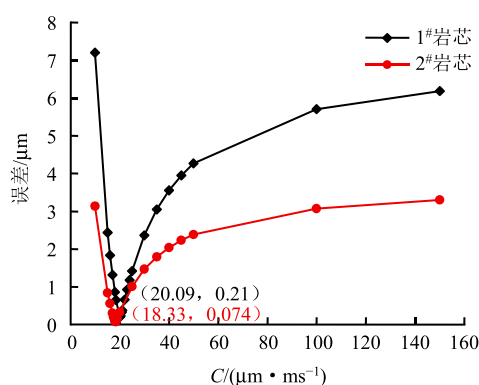


图 4 误差 δ 与换算系数 C 之间的关系
Fig.4 Relationship between error δ and conversion coefficient C

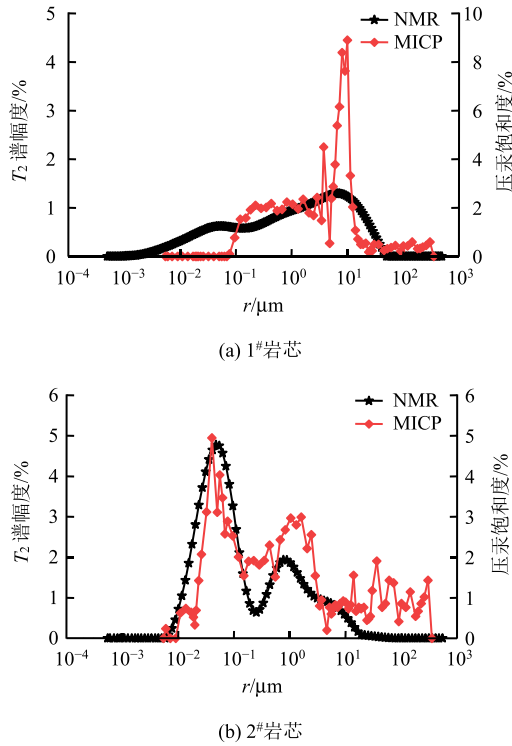


图5 核磁共振 T_2 谱分布和压汞孔径分布对比
Fig.5 Comparison of T_2 spectrum distribution of NMR and pore size distribution of mercury intrusion

根据驱替过程中采集的核磁共振信号的变化,可绘制出驱替不同时间点的岩石孔径分布特征图(见图6)。从图中可以看出,部分赋存于2#岩芯宏孔和介孔中的水分率先被完全驱替,且孔径分布的

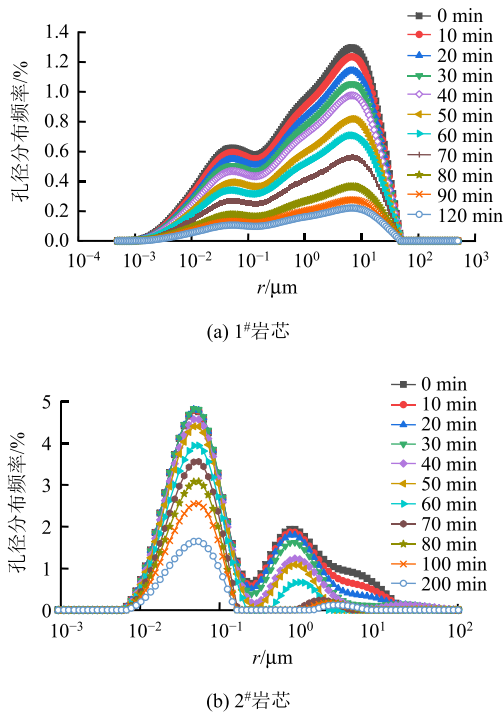


图6 两相驱替过程中岩芯的孔径分布变化图
Fig.6 Variation of core pore size distribution during two-phase displacement

峰值点在下降过程中出现波动,表明该岩芯驱替的不稳定性以及不同大小的孔隙内水分驱替效率不一致。相反,1#岩芯所有孔隙的分布频率下降规律呈现相对稳定且一致的变化特点。导致这一差别的主要原因是两岩芯的孔隙结构以及渗透率大小不同,1#岩芯较大的渗透率(见表1)以及较好的孔隙连通性,使得该岩芯所有连通孔隙通道内的水分被驱替的效率非常接近,故NMR信号量在全孔径范围内均有下降。对于2#岩芯而言,其较低的渗透率及较差的连通性则导致部分赋存于介孔及宏孔中的水分被率先完全驱替,且孔径分布的峰值点在下降过程中有明显波动,说明该岩芯强烈的非均质性和各向异性导致了大小不同的孔隙内水分驱替效率的不一致。

3.2 相对渗透率

气液两相的驱替行为是一个非常复杂的过程,主要受毛细压力 P_c 、含水饱和度 S_w 以及相对渗透率 K_r 等参数以及它们间相互关系的影响^[13]。

多孔介质内毛细压力大小可以通过 Laplace 方程确定:

$$P_c = \frac{2\gamma \cos \theta}{R} \quad (5)$$

式中: P_c 为毛细压力 (MPa); γ 为 CO_2 - H_2O 系统间界面张力 ($\text{N} \cdot \text{m}^{-1}$); θ 为接触角 ($^\circ$); R 为岩石孔隙的等效半径 (μm)。其中界面张力的计算式^[25]为

$$\gamma = \left[\frac{1.58(\rho_w - \rho_g) + 1.76}{T_r^{0.3125}} \right]^4 \times 10^{-3} \quad (6)$$

式中: ρ_w 和 ρ_g 分别为蒸馏水与 CO_2 气体的密度 (g/cm^3); T_r 为气体的对比温度,无量纲。

根据 Laplace 方程可知,无论岩芯内饱和何种流体,孔隙的等效半径是一致的^[26]。因此可将试验得到的汞-空气毛管压力曲线转换为 CO_2 - H_2O 的毛管压力曲线,转换公式为

$$P_{\text{cwg}} = P_{\text{cHg}} \frac{\gamma_{\text{wg}} \cos \theta_{\text{wg}}}{\gamma_{\text{Hg}} \cos \theta_{\text{Hg}}} \quad (7)$$

式中: P_{cwg} 、 P_{cHg} 分别为 CO_2 /水、汞/空气的毛细压力 (MPa); γ_{wg} 、 γ_{Hg} 分别为 CO_2 /水、汞/空气间的界面张力 ($\text{N} \cdot \text{m}^{-1}$); θ_{wg} 、 θ_{Hg} 分别为 CO_2 /水、汞/空气的接触角 ($^\circ$)。压汞试验中 $\theta_{\text{Hg}} = 140^\circ$, $\gamma_{\text{Hg}} = 480 \text{ mN}/\text{m}$, 结合式(6)计算所得 $\gamma_{\text{wg}} = 14.52 \text{ mN}/\text{m}$, 两岩芯的 θ_{wg} 分别取 30.07° 和 27.06° (见图2)。图7为根据压汞试验转换所得的 CO_2 - H_2O 水毛细压力

曲线。

随着驱替的进行, 岩芯含水率逐渐下降, 不同驱替时长下岩芯的含水率 S_w 计算式为

$$S_w = \frac{I_i S_0}{I_0} \quad (8)$$

式中: I_0 为驱替开始前采集的核磁共振信号强度; I_i 为时间 i 时采集的信号强度; S_0 为驱替开始前岩芯的饱水含水率, 其值为 1。

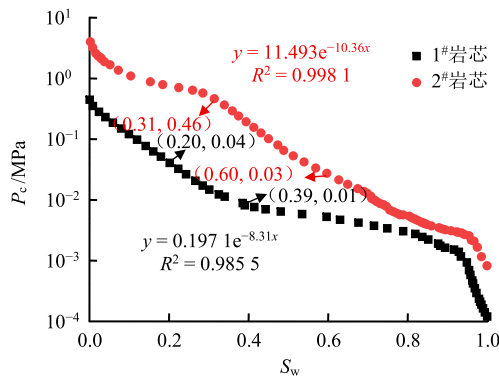


图7 CO₂-H₂O 的毛细压力曲线
Fig.7 CO₂-H₂O capillary pressure curves

两岩芯从饱水状态被驱替至残余水饱和度过程中, 均进行了 9 次 CPMG 序列和 SE 序列测试, 对应的 9 组 S_w 及 P_c 值可首先从图 7 中对应查找, 结果表明, 1#岩芯缺少 $S_w = 0.43$ 、0.28、0.21 时的数据, 2#岩芯缺少 $S_w = 0.57$ 、0.46、0.39、0.33 时的数据。Zhao^[17]、Zhang^[27]等开展的致密岩芯两相驱替试验表明, 毛细突破压力与岩芯含水率间呈指数关系, 故本研究通过对 P_c - S_w 曲线进行指数拟合来求取缺乏的数据。为了保证拟合结果的准确性, 1#岩芯拟合曲线选取的 S_w 区间为 0.20~0.39, 2#岩芯为 0.31~0.60 (图 7 中两箭头所指示的区间)。如图 7 所示, 曲线拟合度较高, 相关性系数 R^2 均大于 0.98。得到驱替试验过程中岩芯所有的含水率 S_w 及对应的毛细压力 P_c 后, 便可通过 Brooks-Corey 经验公式^[28]求得毛细压力与相对渗透率间的关系:

$$S_{ew} = \frac{S_w - S_{rw}}{1 - S_{rw}} \quad (9)$$

$$S_{ew} = \left(\frac{P_{cb}}{P_c} \right)^\lambda \quad (10)$$

式中: S_{ew} 为润湿相的有效饱和度; S_{rw} 为润湿相的残余饱和度; P_{cb} 为排驱压力 (MPa); λ 为孔径分布指数。如果将式 (10) 中等式两边分别取对数,

该公式可表示为

$$\lg P_c = -\frac{1}{\lambda} \lg S_{ew} + \lg P_{cb} \quad (11)$$

根据驱替试验前后采集的 NMR 信号强度, 可求得 1#和 2#岩芯的残余水饱和度分别为 17.03%和 21.13%。将已知的 S_{rw} 代入式 (9) 可得到不同含水率条件下的 S_{ew} 值, 将 P_c 和 S_{ew} 值取对数并进行线性拟合, 如图 8 所示, 拟合方程斜率的负倒数即为 λ 值, 且当 $S_{ew} = 1$ 时的截距即为 $\lg P_{cb}$, 计算结果均列于表 3。结合表 1 和表 3 分析, 可知排驱压力与岩芯的孔隙度及绝对渗透率间呈负相关关系, 孔隙度及绝对渗透率越大, 气驱水所需克服的毛细压力越小。前人研究表明, λ 值越小代表岩芯孔隙结构的非均质性越强^[29], 因此具有较小 λ 值的 2#岩芯强烈的非均质性和各向异性特征得到了定量化表征, 与图 5 的定性化分析结果一致。

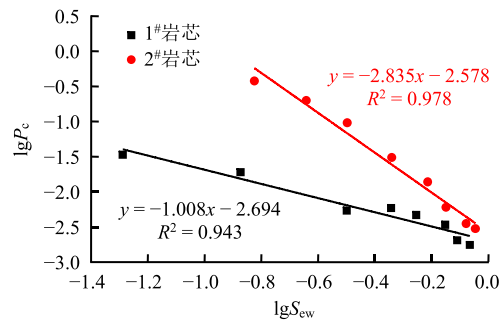


图8 有效饱和度和毛细压力的对数关系曲线
Fig.8 Effective saturation S_{ew} versus capillary pressure P_c on a lg-lg scale

表3 气液两相相对渗透率的计算参数

Table 3 Parameters required for relative permeability calculation

岩芯编号	S_{rw}	P_{cb}/kPa	λ
1#	0.170	2.02	0.99
2#	0.211	2.64	0.35

驱替过程中润湿相 K_{rw} 和非润湿相 K_{rnw} 的相对渗透率可采用 Brooks-Corey-Burdine 等^[28, 30]提出的理论公式进行计算:

$$K_{rw} = (S_{ew})^{(2+\lambda)/\lambda} \quad (12)$$

$$K_{rnw} = (1 - S_{ew})^2 \left[1 - S_{ew}^{(2+\lambda)/\lambda} \right] \quad (13)$$

图 9 为依据 Brooks-Corey-Burdine 理论计算的岩芯驱替过程中气液两相的相对渗透率特征曲线。由图可知, 两岩芯的等渗点均大于 0.5, 表明岩芯均为亲水性, 与岩芯接触角 (见图 2) 的测定结果一

致。1#岩芯的等渗点高于 2#岩芯,这是由于 2#岩芯较低的绝对渗透率导致其表现出较低的等渗点^[31]。此外,1#岩芯较大的孔隙度及较高的渗透率使得该岩芯中水的相对渗透率远大于 2#岩芯,而 CO₂ 的相对渗透率则略低于 2#岩芯。表明 2#岩芯的指进现象有助于气相的运移,但降低了水分的驱替效率,极有可能造成该岩芯中气相出现提前突破,并最终导致较高的残余水饱和度。

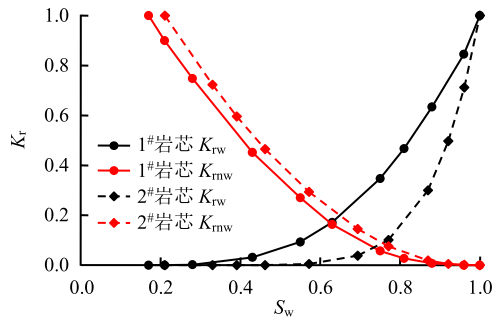
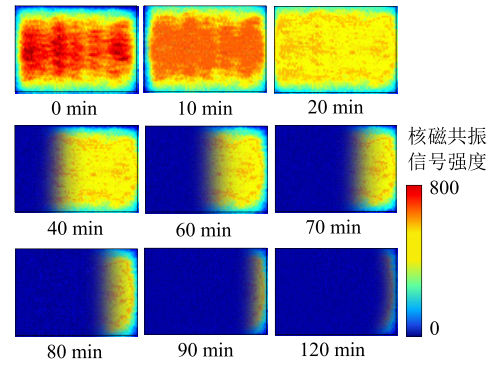


图 9 驱替试验中气水两相的相对渗透率
Fig.9 Relative permeability of gas-water phases in displacement experiments

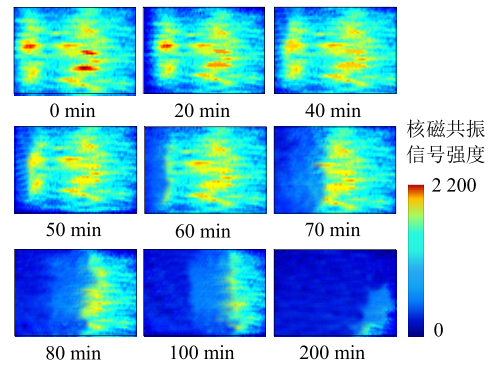
3.3 驱替特征及驱替效率

根据驱替过程中岩芯孔径分布变化规律可推测,1#岩芯中气液两相驱替模式为活塞式驱替,2#岩芯则为非活塞式驱替。驱替过程中采集的 MRI 图像如图 10 所示,图中高亮区域(黄色至红色)表示岩芯中的高含水饱和度区域,暗色区域(蓝色)表示岩芯中低含水饱和度区域;右侧柱状图为不同颜色对应的核磁共振信号强度,底部为每幅 MRI 图像对应的驱替时长。由图可知,在 1#岩芯驱替的前 20 min,CO₂ 首先驱替大孔隙内的水分,20 min 后气液间呈现明显的分界线,驱替前缘像活塞一样稳定向前移动,所有孔隙内的驱替速率是一致的。2#岩芯在驱替前 40 min,驱替行为主要发生在岩芯中部一些连通的高渗透通道及其相邻孔隙,表现为明显的毛细指进^[32]。40 min 后,驱替行为不再局限于少数高渗透通道,CO₂ 开始侵入更多小孔隙内,黏度较小的 CO₂ 驱替黏度较大的水而导致不稳定的气液界面,驱替前缘呈现明显的黏性指进特征^[5]。与活塞式驱替相比,指进现象中不同大小的孔隙内的驱替速率不同,驱替前缘已经到达岩芯出口端时仍能观察到明显的残余水,验证了该岩芯中 CO₂ 提前突破现象的发生,同时该现象导致其较低的驱替效率。

根据已知的残余水饱和度,通过下式可估算 CO₂ 的驱替效率^[33]:



(a) 1#岩芯



(b) 2#岩芯

图 10 驱替试验中不同时间点采集的 MRI 图像
Fig.10 MRI images of two samples at different time points during displacement experiments

$$E = \left(1 - \frac{S_{rw}}{S_0} \right) \times 100\% \quad (14)$$

式中: E 为驱替效率。由此求得的两岩芯的驱替效率分别为 82.97%和 78.87%。

不同的驱替模式与岩芯孔隙结构密切相关,2#岩芯较强的非均质性和各向异性明显有助于指进现象的发生,这与前人的研究成果是一致的^[7];而 1#岩芯较大的孔隙度和较高的渗透率则更有利于活塞式驱替模式的形成,且活塞式驱替的驱替效率要明显高于有指进现象发生的非稳定驱替。

4 结论及建议

本研究针对 2 种孔隙结构特征不同的岩芯开展了 CO₂-H₂O 的驱替试验,并利用核磁共振技术进行了可视化研究,探究致密岩芯气液两相的驱替特征及其影响因素。所得结论如下:

(1) 根据 NMR 测试及孔径分布指数 λ 对岩芯孔隙结构特征进行了定性化和定量化分析,分析结果一致, λ 值越小代表岩芯孔隙结构的非均质性和各向异性越强。

(2) 根据气水两相相对渗透率特征曲线可知, 指进现象有助于气相的运移, 使得气相发生提前突破行为; 且会降低水分的驱替效率, 导致较高的残余水饱和度。

(3) 不同的驱替模式与岩芯孔隙结构密切相关, 具有较大孔隙度和较高渗透率的岩芯呈现活塞式驱替模式, 驱替过程中气液间呈现明显的分界线, 所有孔隙内的驱替速率一致。而具有较强的非均质性和各向异性的岩芯会出现指进现象, 指进现象中不同大小的孔隙内的驱替速率不同, 且随着驱替的进行表现为从毛细指进向黏性指进发展的趋势。

(4) 相同的试验条件下, 活塞式驱替模式的驱替效率明显高于非稳定驱替模式, 后续应当开展有关如何抑制指进现象发生的系统性研究, 为提高 CO₂ 地质封存效率提供理论依据和技术支持。

参 考 文 献

- [1] 李琦, 石晖, 杨多兴. 碳封存项目井喷 CO₂ 扩散危险水平分级方法研究[J]. 岩土力学, 2016, 37(7): 2070-2078, 2084.
LI Qi, SHI Hui, YANG Duo-xing. Classification of hazard levels of carbon dioxide dispersion under a well blowout in a CCS project[J]. **Rock and Soil Mechanics**, 2016, 37(7): 2070-2078, 2084.
- [2] 赵世宇, 李铤, 明亮, 等. 温压条件对非饱和低渗透砂岩中 CH₄ 突破压力影响的实验研究[J]. 地质科技通报, 2021, 40(3): 132-139.
ZHAO Shi-yu, LI Yi, MING Liang, et al. Experimental study on the effect of temperature and pressure on CH₄ breakthrough pressure in unsaturated low-permeability sandstone[J]. **Bulletin of Geological Science and Technology**, 2021, 40(3): 132-139.
- [3] 薛卉, 舒彪, 陈君洁, 等. 高温高压下超临界二氧化碳作用对花岗岩力学性质影响的试验研究[J]. 岩土力学, 2022, 43(2): 377-384.
XUE Hui, SHU Biao, CHEN Jun-jie, et al. Mechanical properties of granite after reaction with ScCO₂ at high temperature and high pressure[J]. **Rock and Soil Mechanics**, 2022, 43(2): 377-384.
- [4] 李小春, 魏宁, 方志明, 等. 碳捕集与封存技术有助于提升我国的履约能力[J]. 中国科学院院刊, 2010, 25(2): 170-171.
LI Xiao-chun, WEI Ning, FANG Zhi-ming, et al. Carbon capture and storage technologies help to improve our performance capabilities[J]. **Bulletin of Chinese Academy of Sciences**, 2010, 25(2): 170-171.
- [5] CHANG C, KNEAFSEY T J, ZHOU Q, et al. Scaling the impacts of pore-scale characteristics on unstable supercritical CO₂-water drainage using a complete capillary number[J]. **International Journal of Greenhouse Gas Control**, 2019, 86: 11-21.
- [6] TSANG C F, BIRKHOLZER J, RUTQVIST J. A comparative review of hydrologic issues involved in geologic storage of CO₂ and injection disposal of liquid waste[J]. **Environmental Geology**, 2008, 54: 1723-1737.
- [7] CHANG C, KNEAFSEY T J, TOKUNAGA T K, et al. Impacts of pore network-scale wettability heterogeneity on immiscible fluid displacement: a micromodel study[J]. **Water Resources Research**, 2021, 57: e2021WR030302.
- [8] LI Y, HU L, SHEN Z, et al. The effects of brine concentration on the formation of residual water[J]. **Procedia Earth and Planetary Science**, 2013, 7: 496-499.
- [9] LI Y, YU Q. The effects of brine species on the formation of residual water in a CO₂-brine system[J]. **Transport in Porous Media**, 2014, 104(3): 553-564.
- [10] 李铤, 李旭峰, 沈照理, 等. CO₂ 地质封存室内实验中盐水种类对残余水形成的影响[J]. 地学前缘, 2015, 22(4): 312-319.
LI Yi, LI Xu-feng, SHEN Zhao-li, et al. The effects of brine species on the formation of residual water in laboratory experiments of CO₂ geological storage[J]. **Earth Science Frontiers**, 2015, 22(4): 312-319.
- [11] ZHENG X L, MAHABADI N, YUN T S, et al. Effect of capillary and viscous force on CO₂ saturation and invasion pattern in the microfluidic chip[J]. **Journal of Geophysical Research: Solid Earth**, 2017, 122(3): 1634-1647.
- [12] 吕鹏飞. CO₂ 咸水层封存润湿性与非均质性孔隙-岩心尺度影响机理研究[D]. 大连: 大连理工大学, 2019.
LÜ Peng-fei. Pore to core scale influence mechanism of wettability and heterogeneity on CO₂ sequestration in saline aquifers[D]. Dalian: Dalian University of Technology, 2019.
- [13] HELMIG R. Multiphase flow and transport processes in the subsurface[M]. Berlin: Springer, 1997.
- [14] DAS D B, MIRZAEI M, WIDDOWS N. Non-uniqueness in capillary pressure-saturation-relative permeability relationships for two-phase flow in porous media: interplay between distribution and intensity of micro-heterogeneity[J]. **Chemical Engineering Science**, 2006, 61(20): 6786-6803.
- [15] ZUO L, KREVOR S, FALTA R W, et al. An experimental study of CO₂ exsolution and relative permeability

- measurements during CO₂ saturated water depressurization[J]. **Transport in Porous Media**, 2012, 91(2): 459-478.
- [16] KREVOR S C M, PINI R, ZUO L, et al. Relative permeability and trapping of CO₂ and water in sandstone rocks at reservoir conditions[J]. **Water Resources Research**, 2012, 48(2): W02532.1-W02532.16.
- [17] ZHAO Y, YU Q. CO₂ breakthrough pressure and permeability for unsaturated low-permeability sandstone of the Ordos Basin[J]. **Journal of Hydrology**, 2017, 550: 331-342.
- [18] 中国石油天然气集团有限公司. SY/T 5163—2018 沉积岩中黏土矿物和常见非黏土矿物 X 射线衍射分析方法[S]. 北京: 石油工业出版社, 2019.
- China National Petroleum Company. SY/T 5163—2018 Analysis method for clay minerals and ordinary non-clay minerals in sedimentary rocks by the X-ray diffraction[S]. Beijing: Petroleum Industry Press, 2019.
- [19] COATES G R, XIAO Z, PRAMMER M G. NMR logging principles and applications[M]. Houston: Gulf Professional Publishing, 1999.
- [20] YAN W, SUN J, GOLSANAMI N, et al. Evaluation of wettabilities and pores in tight oil reservoirs by a new experimental design[J]. **Fuel**, 2019, 252: 272-280.
- [21] PRATHER C A, BRAY J M, SEYMOUR J D, et al. NMR study comparing capillary trapping in Berea sandstone of air, carbon dioxide, and supercritical carbon dioxide after imbibition of water[J]. **Water Resources Research**, 2016, 52: 713-724.
- [22] 刘堂宴, 王绍民, 傅容珊, 等. 核磁共振谱的岩石孔喉结构分析[J]. 石油地球物理勘探, 2003, 38(3): 328-333.
- LIU Tang-yan, WANG Shao-min, FU Rong-shan, et al. Analysis of rock pore throat structure with NMR spectra[J]. **Oil Geophysical Prospecting**, 2003, 38(3): 328-333.
- [23] 李海波, 朱巨义, 郭和坤. 核磁共振 T_2 谱换算孔隙半径分布方法研究[J]. 波谱学杂志, 2008, 25(2): 273-280.
- LI Hai-bo, ZHU Ju-yi, GUO He-kun. Methods for calculating pore radius distribution in rock from NMR T_2 spectra[J]. **Chinese Journal of Magnetic Resonance**, 2008, 25(2): 273-280.
- [24] ROUQUEROL J, AVNIR D, FAIRBRIDGE C W, et al. Recommendations for the characterization of porous solids[J]. **Pure and Applied Chemistry**, 1994, 66(8): 1739-1758.
- [25] SUTTON R P. An improved model for water-hydrocarbon surface tension at reservoir conditions[C]//SPE Annual Technical Conference and Exhibition, New Orleans: Society of Petroleum Engineers, 2009, 124968.
- [26] 常春. 水和超临界二氧化碳两相渗流驱替的岩心及微观模型实验研究[D]. 北京: 中国地质大学(北京), 2016.
- CHANG Chun. Experimental study on water-supercritical CO₂ two-phase flow and displacement using sandstone cores and micromodel[D]. Beijing: China University of Geosciences (Beijing), 2016.
- [27] ZHANG C, YU Q. The effect of water saturation on methane breakthrough pressure: an experimental study on the carboniferous shales from the eastern Qaidam Basin, China[J]. **Journal of Hydrology**, 2016, 543: 832-848.
- [28] BROOKS R H, COREY A T. Hydraulic properties of porous media[M]. Fort Collins: Colorado State University, 1964: 71-109.
- [29] IZGEC O, DEMIRAL B, BERTIN H, et al. CO₂ injection into saline carbonate aquifer formations I: laboratory investigation[J]. **Transport in Porous Media**, 2008, 72(1): 1-24.
- [30] BURDINE N T. Relative permeability calculations from pore size distribution data[J]. **Journal of Petroleum Technology**, 1953, 5(3): 71-78.
- [31] TENG Y, JIANG L, LIU Y, et al. MRI study on CO₂ capillary trap and drainage behavior in sandstone cores under geological storage temperature and pressure[J]. **International Journal of Heat and Mass Transfer**, 2018, 119: 678-687.
- [32] ZHANG C, OOSTROM M, WIETSMA T W, et al. Influence of viscous and capillary forces on immiscible fluid displacement: pore-scale experimental study in a water-wet micromodel demonstrating viscous and capillary fingering[J]. **Energy Fuel**, 2011, 25(8): 3493-3505.
- [33] SONG Y C, JIANG L L, LIU Y, et al. An experimental study on CO₂/water displacement in porous media using high-resolution magnetic resonance imaging[J]. **International Journal of Greenhouse Gas Control**, 2012, 10: 501-509.