

CO₂ 咸水层封存中岩心润湿性对渗流过程的影响

美合日阿依·穆太力普^{1,2}, 薛福生², 李 涛², 李延静², 刘 瑜³

(1. 西北能源碳中和教育部工程研究中心, 新疆 乌鲁木齐 830017; 2. 新疆大学 电气工程学院, 新疆 乌鲁木齐 830017; 3. 大连理工大学 能源与动力学院, 辽宁 大连 110014)

摘 要: 为了明确 CO₂ 咸水层封存过程中岩心润湿性对渗流过程的影响, 基于与核磁共振 (NMR) 技术相结合的孔隙级渗流模型的方法, 研究了咸水层润湿性变化对渗流过程的影响, 为揭示润湿性作用下的两相渗流规律提供了理论支撑。首先通过 NMR 技术测得了渗流过程中的饱和度参数, 定量分析得到了平均弛豫时间和咸水饱和度的二次函数耦合关系。之后, 在二维层面基于水平集法, 通过将润湿性设置为不同润湿水平及空间位置函数, 模拟 CO₂ 在多孔介质中驱替咸水中储层不同润湿性对渗流过程的影响。研究发现, 基于核磁共振纵向弛豫时间 (T_1) 及横向弛豫时间 (T_2) 与咸水饱和度 (S) 的函数耦合关系, 可以较好表征 CO₂ 驱替咸水过程中的岩心润湿性变化。基于孔隙级渗流模型表征孔隙尺度下的润湿性各向同性, 发现当岩心润湿性处于极端情况, 如强亲水 ($\theta=0^\circ$)、中性润湿 ($\theta=90^\circ$) 或者强疏水 ($\theta=180^\circ$) 状态时, 残余水饱和度较低, 驱替效果较好。对于润湿性各向异性, 驱替过程较为复杂, 其对相对渗透率和残余咸水饱和度的影响各异, 尤其入口端和出口端的不同润湿性表现会直接影响两相渗流过程, 入口端越亲水且出口端越疏水时, 咸水渗流速度越快; 这可能是由于润湿性各向异性会导致渗流行为的不均匀分布, 从而导致渗流速率和驱替效率在空间上和时间上的差异; 可见, 渗流通道的物性特征对渗流过程的影响较大。未来研究除了关注咸水层空间尺度下的相关变化外, 还需注重时间尺度下的不同影响。

关键词: CO₂ 咸水层封存; 核磁共振; 孔隙级渗流模型; 润湿性; 渗流过程

中图分类号: P618.13 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-9993(2025)02-1291-09

Effect of core wettability on seepage characteristics during CO₂ saline aquifer sequestration process

MEIHERIAYI Mutailipu^{1,2}, XUE Fusheng², LI Tao², LI Yanjing², LIU Yu³

(1. Engineering Research Center of Northwest Energy Carbon Neutrality, Ministry of Education, Xinjiang University, Urumqi 830017, China; 2. School of Electrical Engineering, Xinjiang University, Urumqi 830017, China; 3. School of Energy and Power, Dalian University of Technology, Dalian 110014, China)

Abstract: To clarify the influence of core wettability on the seepage process during the CO₂ saline aquifer storage, this paper studies the influence of wettability change in the saline aquifer on the seepage process based on the pore-level seepage model combined with nuclear magnetic resonance (NMR) technology, providing theoretical support for revealing the two-phase seepage law under the effect of wettability. Firstly, the saturation parameters during the seepage process are measured by NMR technology in this paper, and the quadratic function coupling relationship between wettability and brine sat-

收稿日期: 2024-08-10 策划编辑: 韩晋平 责任编辑: 李雅楠 DOI: 10.13225/j.cnki.jccs.2024.0956

基金项目: 国家自然科学基金项目 (52366010); “天山英才”计划-青年托举人才 (2023TSYCQNTJ0035); 新疆维吾尔自治区重点研发资助项目 (2022B01033-2)

作者简介: 美合日阿依·穆太力普 (1989—), 女, 新疆乌鲁木齐人, 副教授, 博导, 博士。E-mail: mhriay@xju.edu.cn

引用格式: 美合日阿依·穆太力普, 薛福生, 李涛, 等. CO₂ 咸水层封存中岩心润湿性对渗流过程的影响[J]. 煤炭学报, 2025, 50(2): 1291-1299.

MEIHERIAYI Mutailipu, XUE Fusheng, LI Tao, et al. Effect of core wettability on seepage characteristics during CO₂ saline aquifer sequestration process[J]. Journal of China Coal Society, 2025, 50(2): 1291-1299.



移动阅读

uration is quantitatively analyzed. Later, based on the level set method at the two-dimensional level, by setting wettability as different wetting levels and spatial position functions, the influence of different wettability of the reservoir in displacing brine in the porous medium by CO_2 on the seepage process is simulated. It was found that based on the functional coupling relationship between nuclear magnetic resonance longitudinal relaxation time (T_1) and transverse relaxation time (T_2) and saline water saturation (S), the core wettability changes during CO_2 displacement of saline water could be well characterized. Based on the pore-scale seepage model representing the isotropy of wettability at the pore scale, it was discovered that when the core wettability was in extreme conditions, such as strongly hydrophilic ($\theta = 0^\circ$), neutrally wetted ($\theta = 90^\circ$), or strongly hydrophobic ($\theta = 180^\circ$), the residual water saturation was lower and the displacement effect was better. For anisotropic wettability, the displacement process was more complex, and its influence on relative permeability and residual saline water saturation varied. Especially, different wettability manifestations at the inlet and outlet ends would directly affect the two-phase seepage process. When the inlet end was more hydrophilic and the outlet end was more hydrophobic, the saline water seepage velocity was faster; this might be due to the anisotropic wettability causing the uneven distribution of seepage behavior, thereby resulting in spatial and temporal differences in seepage rate and displacement efficiency; it can be seen that the physical characteristics of the seepage channel have a significant influence on the seepage process. Future research needs to focus on the different effects at time scales in addition to the associated changes at spatial scales in the saline aquifer.

Key words: CO_2 saline aquifer sequestration; nuclear magnetic resonance; pore-scale seepage model; wettability; seepage processes

0 引 言

全球变暖等生态环境问题日益突出,亟需采取有效措施来减少人类生产生活造成的 CO_2 大量排放^[1]。碳封存技术作为固碳的有效手段^[2],通过将 CO_2 注入深部储层,可以实现 CO_2 安全长久封存,已成为各个国家的研究热点^[3]。为了实现 CO_2 长期安全封存,就必须明确影响固碳机理诸多因素。 CO_2 和咸水储层间的润湿性变化是影响储层固碳容量和安全性的关键参数^[4]。润湿性作为固体物质的一种基本属性,对于多孔介质中的多相渗流过程具有深远影响^[5]。润湿性指液体受分子力的影响在固体表面的展开能力,固体表面的不同的化学成分以及表面势能变化都会导致其润湿性发生变化^[6]。对于深部咸水层,当固体表面具有较强的亲水性时,水分子更容易吸附在介质表面并形成水分子膜,进而增强了水分子的渗透能力,有利于多相流的传输和渗流过程。反之,当固体表面具有较强的疏水性时,水分子不容易吸附在介质表面,会形成较厚的水分子层,导致水分子的渗透能力减弱,不利于多相流的传输和渗流过程。因此,研究润湿性的变化过程对于深入理解 CO_2 驱替深部咸水层时的流体传输机制以及提高多孔介质的渗流效率具有重要意义。

目前,对于多孔介质润湿性的原位测量较难实现,一般通过测量固体表面两相间的接触角 (θ) 来表征其润湿性。部分学者在均质润湿各向同性条件下展开

研究。BELTRÁN 等^[7]利用自行设计和制作的多孔介质渗透仪计算相对渗透率,实验研究发现,当固体表面润湿性降低时,水的相对渗透率会增加,油的相对渗透率会减小。LANDRY 等^[8]采用 Shan-Chen 型多组分晶格 Boltzmann (LB) 模型计算得出:两种流体的相对渗透率随着接触角的减小而减小,并得到了实验的验证。

润湿性各向异性是指岩石表面润湿性能随方向改变的现象,这种特性与岩石的微观结构、表面能、化学组成等因素有关,会对流体输送、传热传质等过程产生重要的影响。关于润湿性各向异性的现有研究,主要关注润湿性各向异性的形成机制、测量方法等,对于润湿性各向异性对渗流过程的综合影响的研究仍然较少。PARK 等^[9]通过大规模分子动力学模拟研究发现,对于疏油表面,接触角的各向异性可以忽略不计;然而,对于亲油表面,各向异性变得更加明显,并随着亲油程度的增加而增加。高志勇等^[10]利用接触角测量方法研究发现,浸泡在不同浓度蒸馏水和酸钠溶液中的不同表面的各向异性润湿性可以分别用表面断裂键密度和活性钙离子密度的各向异性来解释。

多孔介质的表面对孔隙中流体的弛豫速率有很大贡献,并且核磁共振弛豫对表面流体膜的细节很敏感^[11]。因此,近年来逐渐有人开始采用核磁共振的方法来测定润湿性。ZHANG 等^[12]和 FREEDMAN 等^[13]采用纵向弛豫时间 T_1 谱观测了砂岩和白云石润湿性

的变化情况,但忽略了 T_1 测试时间的影响;HAMED^[14]和 FLAUM 等^[15]采用 T_2 谱研究了润湿性对 T_2 的影响情况,但是较长的弛豫时间导致了一些偏差。

针对上述问题,笔者基于与核磁共振技术相结合的孔隙级渗流模型的方法,展开了咸水层润湿性变化对渗流过程的影响研究。首先,笔者基于核磁对氢信号的捕捉能力,选用 T_1 谱和 T_2 谱共同研究驱替过程中润湿性与 T_1 、 T_2 的关系以抵消二者的不足,并定量分析得到润湿性和饱和度的函数耦合关系;之后,通过在润湿性各向同性情况下模拟渗流过程以验证模型的可靠性。最后,通过将空间坐标以及实验得到的

耦合关系作为数值模拟润湿性的边界条件,分别在空间尺度和时间尺度深入研究了润湿性各向异性对渗流过程的影响,为相关领域的应用提供理论支持。

1 实验材料与方法

1.1 实验材料与设备

1.1.1 实验材料

本次实验选用 BZ06(砂粒直径约 0.6 mm) 砂珠完成填砂,采用饱和流体法计算其孔隙体积为 4.76 ml,孔隙率为 0.193 9。咸水溶液选用浓度为 0.1 mol/kg 的 NaCl 溶液表征,其它材料见表 1。

表 1 实验材料性质与供应商

Table 1 Experimental material properties and suppliers

材料	纯度	CAS编号	厂家
CO ₂	x≥0.999 9	14 485-07-5	大连大特气体有限公司
去离子水	ρ _e ≥18MΩ·cm	7 732-18-5	中国上海麦克林生物化工有限责任公司
NaCl盐	w≥0.998(优纯级)	7 647-14-5	国药集团化学试剂有限公司

1.1.2 仪器设备

本文实验系统如图 1 所示, NMR 实验系统主要依托于由英国 Oxford 仪器公司生产的 GeoSpec 系列低场核磁共振 NMR 分析仪(图 1b), 采用 12 MHz 质子频率的永久磁体, 磁场强度为 0.9 T。用于 CO₂ 驱替咸水的低场核磁反应釜为双层夹套结构: 内管结构材料为聚酰亚胺, 最高耐受压力为 10 MPa, 两端密封堵头材料选用钛合金金属; 外管材料为聚醚醚酮, 不

耐高压, 用于存放对内管进行控温的循环冷却液。反应釜各配件之间由锥度螺纹连接, 并配套耐腐蚀橡胶圈密封, 以保证核磁管的耐压性与密封性。制冷液选取不含 ¹H 元素的全氟三丁胺 FC-40 氟化液, 该液体具有良好的导热性, 既能有效地控制反应釜的实验温度, 又可以降低对低场核磁共振 NMR 分析仪的射频信号的衰减, 搭配由德国 JULABO 公司生产的 F35 型循环制冷水浴, 控温精度为±0.02℃^[16]。

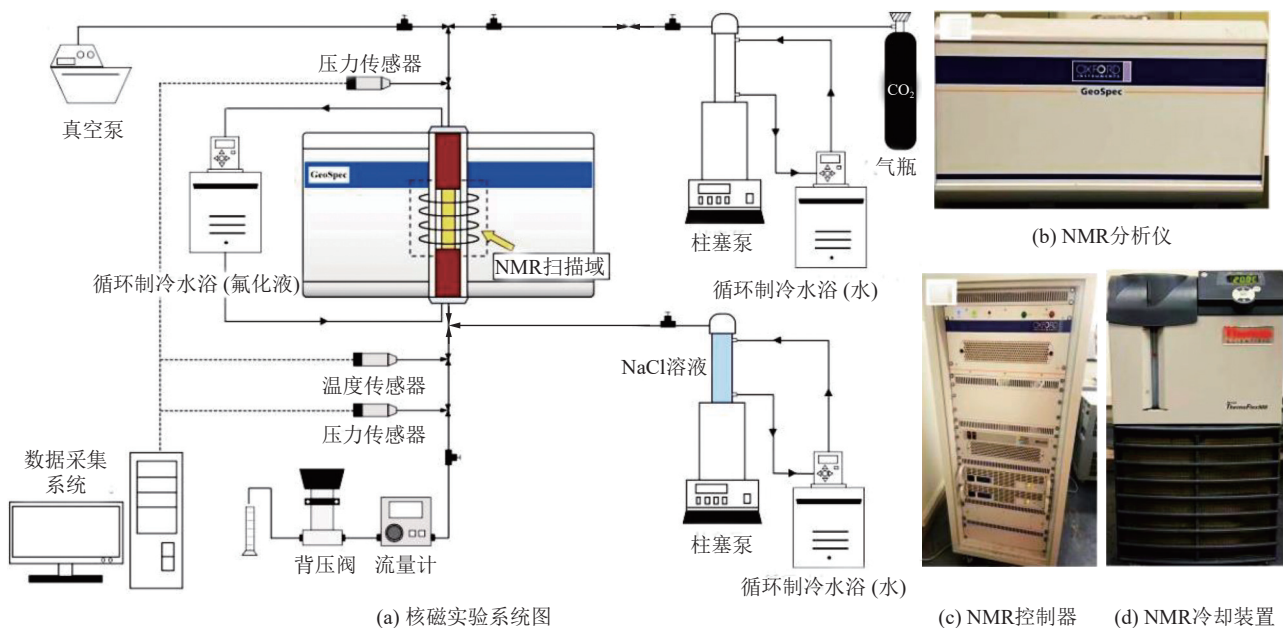


图 1 核磁实验系统与设备

Fig.1 Diagram of NMR experiment system and equipment

填砂岩心内部的孔隙压力由柱塞泵和背压阀同

时控制, 纯 CO₂ 气体通过柱塞泵以恒定的压力持续稳

定地注入填砂岩心内部,并由实验系统出口端的流量控制计控制出口流速。实验过程中的实时压力、温度数据通过压力与温度传感器记录并储存在数据采集的电脑中。

1.2 实验原理与过程

1.2.1 实验原理

随着核磁共振方法应用越来越广泛,其在双碳领域中的应用也越来越突出,并成为评价多孔介质润湿行为的有效工具^[17]。在多孔介质中,流体 T_2 弛豫时间由 3 种独立的弛豫机制控制:表面弛豫,体弛豫和扩散弛豫。在目前的核磁研究和应用中,由于多孔介质中流体的 T_2 弛豫时间主要由表面弛豫控制,体弛豫和扩散弛豫通常可以忽略^[18]。因此, T_2 可表示为孔的比表面(比表面积与总孔体积之比)的函数,含氢流体与孔喉表面的相互作用力越强,弛豫时间越短,反之亦然^[19]。多孔介质中分子间相互作用力(附着力)表现为两相或多相之间的润湿性,因此,可以通过弛豫时间判断多孔介质中的润湿性状态。

$$\frac{1}{T_2} = \rho_2 \left(\frac{S}{V} \right)_{pore} \quad (1)$$

式中: ρ_2 为弛豫率, $\mu\text{m}/\text{ms}$; S/V 为孔隙比表面。

根据测量的 T_2 表面弛豫时间用于确定盐水在多孔介质的不同孔隙中的分布以及流体变化^[20]。

$$r = c\rho_2 T_2 \quad (2)$$

式中: r 为孔隙半径, μm ; c 为形状因子。

笔者基于核磁对氢信号优秀的捕捉能力,搭配多场耦合仪器,模拟了地层真实高温高压环境下储层不同尺寸孔隙的气-水渗流过程。由于气-水信号在核磁 T_2 谱中对应的弛豫时间不同,核磁 T_2 谱会随岩心内部咸水相态的变化而发生变化,进而定量研究咸水层中 CO_2 驱替咸水的过程,测得不同参数。

1.2.2 实验过程

填砂完成后,用去离子水清洗岩心并将其烘干;然后将核磁管固定在核磁共振仪内,岩心入口端(即上端)定义为正向,出口端(即下端)定义为负向。连接好管路后对整体管路进行检漏,确定无泄漏后将扫描区域原点调整到核磁管的中间位置,开始实验。

首先打开真空泵对管路进行抽真空 48 h,之后将咸水溶液从下端注入直至充满岩心,压力至 10 MPa,温度加热器加热至 40 $^{\circ}\text{C}$,整个岩心饱和过程持续 24 h。打开数据采集系统,调整核磁共振岩心成像参数和弛豫谱采集参数,获取饱和咸水岩心的核磁共振图像和岩心 T_2 弛豫谱(第 1 次核磁共振测量),记录注入的咸水体积 V_w 。之后将 CO_2 在柱塞泵中压缩至

10 MPa 从上端注入,开始 CO_2 驱替咸水过程,分别观察咸水饱和度为 80%、60%、40%、20% 以及不再有咸水驱出时气-水两相流体在岩心中的分布变化特征,同时获取岩心的核磁共振图像和 T_2 弛豫谱(第 2~6 次核磁共振测量),并依次记录注入的 CO_2 体积 V_c 。

1.3 实验结果

1.3.1 饱和度分析

图 2 显示了填砂岩心中咸水溶液的饱和度变化。随着驱替的进行,核磁管的入口端(即上端)的咸水溶液优先被驱替,之后驱替至核磁管下端,直至咸水溶液被完全采出。这是因为 CO_2 的注入导致了上端孔隙空间被占据,从而使得咸水向下端渗透。驱替结束时,孔隙中几乎没有残余水分。这可能是由于所选择的填砂粒径较大,形成的孔隙也相对较大,导致毛细管力较小,孔隙对咸水的束缚力比较小,导致水相相对渗透率较高。此外,由于驱替压力较高,小孔隙无法将孔壁上的水膜束缚其中。

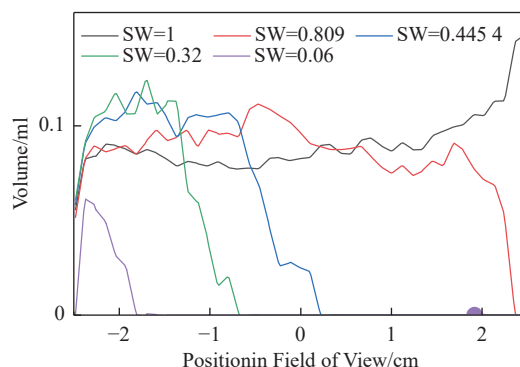


图 2 驱替过程水的体积变化

Fig.2 Volume change of water during expulsion

1.3.2 T_2 图谱分析

T_2 测量值通过式 (2) 确定孔径分布, T_2 曲线与横坐标的面积反映了岩心中的咸水体积,弛豫时间与孔隙半径尺寸成正相关,右峰所占比例越大则岩心大孔隙占比越大,根据 T_2 图中的双峰曲线简单划分该实验岩心中的大孔隙和中小孔隙区域,以此观察到咸水在岩石孔隙网络中的分布变化及润湿性变化。图 3 记录了驱替过程中 T_2 随时间的变化,在驱替过程中,右侧较高峰值不断下降,这表示 CO_2 优先从大孔隙中置换了咸水;同时,咸水对一些润湿孔的相互作用力增强,导致 T_2 弛豫时间变短,峰值向左移动(从较大孔向较小孔移动),与 CONNOLLY 等^[21]的研究结果一致。这说明随着 CO_2 不断置换大孔隙中的咸水,使得大孔隙中的分子作用力减弱,多孔介质中大孔隙的亲水性显著降低。相比之下,左侧峰值(较小孔)中的含水量几乎保持不变。这可能是由于较大的分子间作

用力等原因导致咸水被束缚于小孔隙中,其他非润湿相(CO₂)很难将其采出,润湿性变化较小。

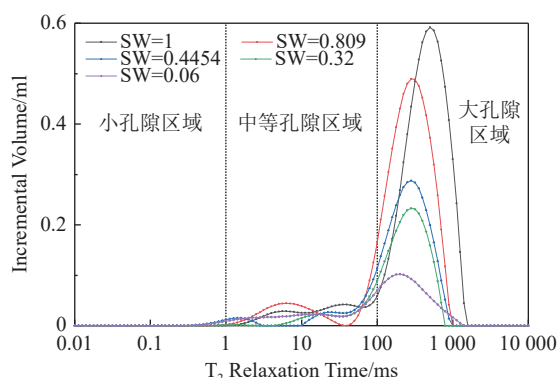


图3 咸水溶液 T₂ 图谱

Fig.3 T₂ profile of brackish water solution

1.3.3 润湿性分析

实验结果显示,随着驱替过程的不断进行,咸水饱和度不断下降,根据 1.3.2 的结论可知,CO₂ 置换咸水使得多孔介质的孔隙亲水性降低,因此当 CO₂ 置换出更多咸水时会导致岩心亲水性不断降低,即随着饱和度 S 与亲水性呈负相关,与 BABAN A 等^[4] 的研究结果一致。由图 4 可知,在驱替过程中,咸水饱和度逐渐减小,同时 T_1 、 T_2 的平均值也逐渐减小。经过拟合发现,二者之间呈现出二次函数关系。最后将二者取平均值后得到了平均弛豫时间 T 和咸水饱和度 S 的关系,见式 (1)。这是因为随着咸水饱和度 S 不断减小,大孔隙的咸水不断被驱替,咸水更多地分布在较小孔隙区域,该区域咸水与固体表面的分子间相互作用力增强,导致平均弛豫时间 T 缩短。由式 1 可知,平均弛豫时间 T 和咸水饱和度 S 呈二次函数关系,这也说明驱替前期润湿性随饱和度的变化较剧烈,而驱替后期润湿性随饱和度的变化较平缓,几乎维持不变。

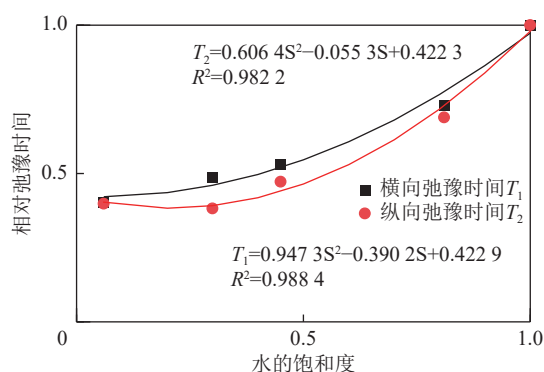


图4 T_1 、 T_2 均值和咸水饱和度的关系

Fig.4 Relationship between T_1 , T_2 mean values and brine saturation

综上所述,在 CO₂ 驱替咸水过程中,可以通过咸

水溶液的饱和度变化来表征驱替过程中的润湿性变化。不过,多孔介质的润湿特性受到介质组分、流体特性、温度压力等多方面的影响,但通过饱和度来表征岩心尺度的润湿特性简化了驱替过程中润湿特性的测量难度。由于实验过程只能宏观表征多孔介质的润湿性变化,而实际润湿性如何影响渗流过程很难观察。因此,本文采用物理模拟手段分别研究均匀润湿条件下不同润湿性对渗流过程的影响,以及非均匀润湿条件下的渗流变化。

$$T = 0.87525S^2 - 0.26715S + 0.3556 \quad (3)$$

2 数值模拟方法

2.1 模型介绍

笔者在 Comsol Multiphysics 6.0 软件中采用二维层流-水平集物理场,模拟 CO₂ 驱替咸水的过程。在水平集方法中,分割 2 个相态的流体界面的传递由下式给定:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \phi = \gamma \nabla \cdot \left(\epsilon_{ls} \nabla \phi - \phi(1-\phi) \frac{\nabla \phi}{|\nabla \phi|} \right) \quad (4)$$

式中: \mathbf{u} 为速度, m/s; t 为时间, s; ϕ 为气液两相界面轮廓线,无量纲,在水中为 1,在 CO₂ 中为 0; ϵ_{ls} 为 2 种流体间的界面厚度参数, m; γ 为决定重新初始化数量的参数, m³ · s/kg。

考虑了界面张力以及重力的影响,气液界面的迁移方程,即 N-S 方程为:

$$\rho(\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = \nabla \cdot \left[-p\mathbf{I} + \mu(\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T) \right] + \mathbf{F} + \rho \mathbf{g} \quad (5)$$

式中: p 为入口压力, Pa; ρ 为密度, kg/m³; \mathbf{F} 为界面张力, N/m; \mathbf{u} 为速度, m/s; \mathbf{I} 为单位矩阵; μ 为动力黏度, Pa · s。

渗流过程由达西定律控制,即:

$$Q = K \frac{A \Delta P}{\mu L} \quad (6)$$

式中: Q 为流量, cm³/s; A 为截面积, cm²; L 为长度, cm; μ 为动力黏度, mPa · s; P 为压力, MPa; K 为比例系数。

2.2 模型参数设置

边界条件的设置如图 5 所示,其中下侧直线边界设置为速度入口, $u=0.3$ m/s; 上侧直线边界设置为压力出口, $p_0=0$ pa; 驱替方向为由下往上,设置自下而上的重力加速度, $g=9.8$ m/s²。模型中左右侧直线边界设置为对称边界,其余所有边界均设置为无滑移润湿壁。模型初始条件为饱和咸水状态,咸水层温度为 313.15 K,压力为 10 MPa,接触角设置见 2.2.1^[22]。模拟所用

物性参数见表 2。

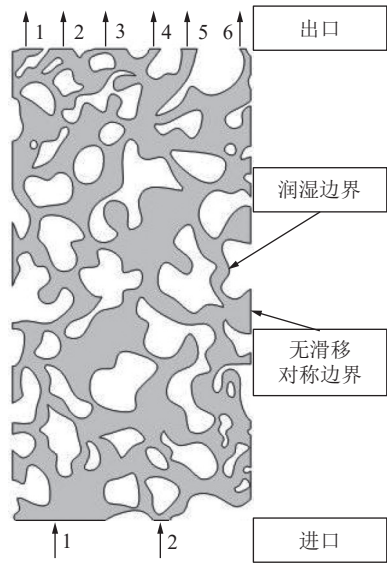


图 5 边界设置

Fig.5 Boundary settings

表 2 模拟物性输入参数

Table 2 Simulated physical property input parameters

参数/单位	$\rho_c/(\text{kg} \cdot \text{m}^{-3})$	μ_c/cP	$\rho_w/(\text{kg} \cdot \text{m}^{-3})$	μ_w/cP	$\gamma/(\text{mN} \cdot \text{m}^{-1})$
数值	628.61	0.047 825	996.38	0.644 8 9	22.88

注：1 cP=10⁻³ Pa · s

2.2.1 润湿性设置

(1) 不同润湿特性设置。不同的润湿条件对渗流过程有不同影响,但其对渗流规律的影响并不明确。为了更好得模拟咸水层润湿性变化,笔者选择了接触角从 0°至 180°来模拟咸水层自强亲水—中性亲水—强疏水的润湿性变化。

(2) 润湿性随空间位置变化。最近的研究表明,多孔介质润湿特性的空间分布可能是最重要的参数之一^[23],润湿的空间分布可能比总体平均润湿更重要^[24]。

为了模拟多孔介质润湿特性的不均匀分布特征,并且探究不同分布状态对渗流特性的影响,本文将润湿性设置为关于空间位置的函数,即接触角随着横坐标 X 或者纵坐标 Y 的值单调递增或者单调递减,详见表 3。

表 3 接触角和空间坐标的关系

Table 3 Relationship between contact angle and spatial coordinates

代号	坐标范围/ μm	接触角范围/rad	接触角函数表达式
X 单增	$x \in [0, 320]$	$\theta \in [0, \pi]$	$\theta = \frac{\pi}{320}x$
X 单减	$x \in [0, 320]$	$\theta \in [0, \pi]$	$\theta = \pi - \frac{\pi}{320}x$
Y 单增	$y \in [0, 640]$	$\theta \in [0, \pi]$	$\theta = \frac{\pi}{640}y$
Y 单减	$y \in [0, 640]$	$\theta \in [0, \pi]$	$\theta = \pi - \frac{\pi}{640}y$

2.3 模型验证

改变模型中的接触角参数值,进行 CO₂ 驱替咸水时的渗流模拟过程,渗流过程由式 6 控制,结果如图 6—图 7 所示。在图 6 中,白色区域为岩心骨架,红色流体为超临界 CO₂,蓝色流体为饱和咸水。随着驱替过程不断进行直至趋于稳定,接触角设置为 0°、90°、180°时,残余咸水饱和度分别为 0.092 46、0.122 34、0.049 14,大部分咸水都被 CO₂ 驱替。从图 6 可以看出,无论是哪种润湿情况,流动都优先发生在连通的大孔隙当中,这和实验观察到的过程一致(1.2.1 中图 3)。在强疏水条件下,驱替过程自下而上逐步完成,大部分残留的咸水存在于盲端或死角,分析原因可能是水气相的不可压缩特性导致气相无法侵入^[25]。然而,在强亲水条件下,CO₂ 会优先占据连通孔喉中心建立优势通道;甚至由于 CO₂ 和水两相的黏度差异引起黏度指进或气窜现象^[26],导致 CO₂ 率先溢出(出口 1),随后才会逐步驱替其他孔喉或者壁面上束缚的饱和咸水。

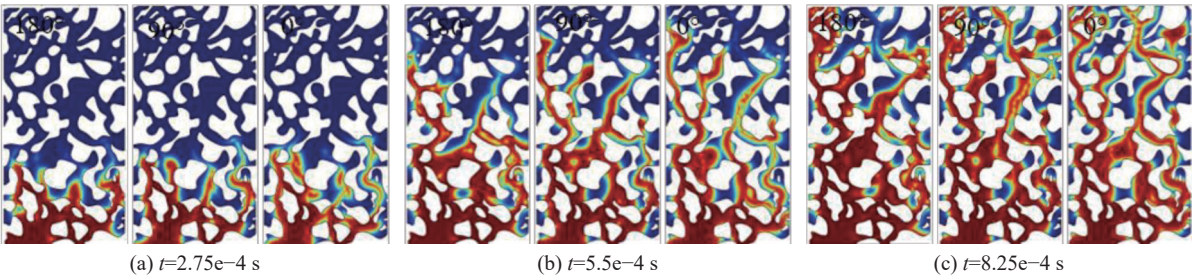


图 6 不同时刻岩心内 CO₂ 体积分布

Fig.6 Volume distribution of CO₂ in the core at different moments

由图 7 可知,岩石的润湿性对相对渗透率曲线的特征影响较大。岩石从强亲水到强疏水时,非润湿相(CO₂ 相)的相对渗透率依次降低;相反,润湿相(水

相)的相对渗透率依次升高,和之前的实验研究结果一致^[27]。这可能与 CO₂-水在岩石孔道中的分布有关。在亲水岩石中,水相分布在小孔隙和孔隙的边隅上,

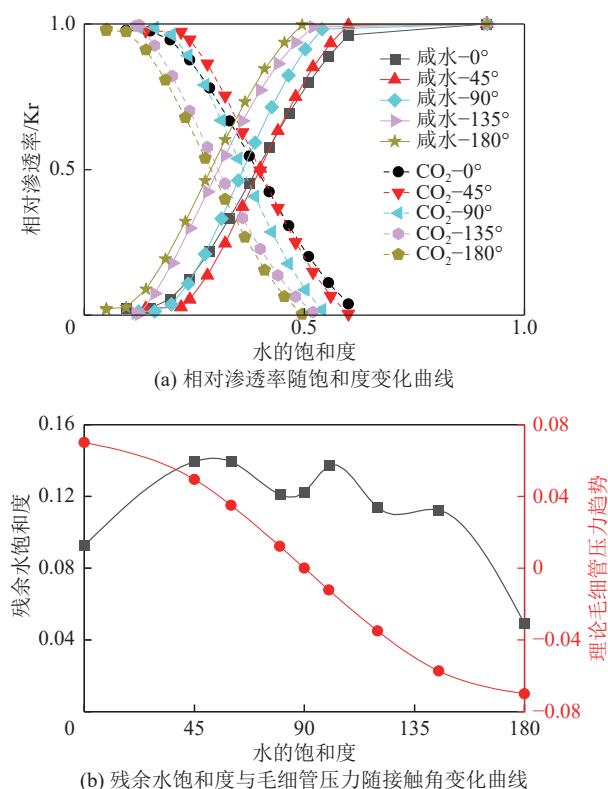


图7 各向同性不同接触角时相对渗透率和残余水饱和度曲线

Fig.7 Relative permeability and residual water saturation curves at different contact angles for isotropic

这种分布对 CO₂ 的渗透率影响很小;而强疏水岩石在同样的饱和度下,水以水滴或连续水流的形式分布在孔道中间,严重影响着 CO₂ 相的流动^[28]。通过验证发现,模拟结果和实验现象几乎一致。

3 结果与讨论

3.1 不同润湿性对渗流过程的影响

岩石润湿性对相对渗透率的影响在 2.3 已有讨论,其对残余水饱和度的影响却比较复杂。由于实验过程中采用的填砂岩心较大,渗流通道优越,驱替结束后的残余咸水饱和度为 0。在本次模拟过程中,研究了接触角对残余咸水饱和度的影响。研究发现,当接触角小于 70°时,接触角越大,残余咸水饱和度越大。这可能是因为岩心处于强亲水条件时,毛细管压力起主要作用^[29]。此时咸水是润湿相,而 CO₂ 是非润湿相,毛细管压力是推动力,方向由咸水指向 CO₂。接触角越大,毛细管压力越小,见图 7b。

当接触角大于 100°时,接触角越大,残余咸水饱和度越小。在这种环境中,孔隙介质表面对咸水具有很强的排斥性,CO₂ 对咸水的替代能力很强,水分子很难在孔隙介质表面附着,而 CO₂ 能够很容易地将水替代出来,因此 CO₂ 的驱替效率很高。

当接触角介于 70°和 100°之间时,残余咸水饱和度和接触角的曲线出现了凹陷:在接触角为 90°(即中性润湿时),残余咸水饱和度出现了局部最小值。在这种环境中,孔隙介质表面对咸水和 CO₂ 具有相似的亲和力和,咸水和 CO₂ 的驱替能力相对均衡,而 CO₂ 能够相对容易地将咸水替代出来,因此 CO₂ 的驱替效率较高。

综上所述,当岩心处于强亲水 ($\theta=0^\circ$)、中性润湿 ($\theta=90^\circ$) 或者强疏水 ($\theta=100^\circ$) 时,残余水饱和度较低,驱替效果较好;而在强疏水时效果最佳,这也和杨永飞等人的研究结果一致^[30]。不过,对于真实储层岩心,类似极端润湿状态很难出现;但当润湿状态越接近该极端润湿状态时,其残余咸水饱和度越低,也就越有利于驱替出更多咸水。

3.2 非均匀润湿性对渗流过程的影响

如图 8a 所示,在驱替过程中,由于润湿性在不同空间位置上的变化,流动状态也发生了变化。非均匀润湿的 4 种不同驱替过程中,在同一饱和度条件下,接触角沿 Y 轴方向单增时相对渗透率最快,其余三者基本相同。这可能是因为接触角随着 Y 轴方向单调递增,入口端接触角最小为强亲水状态,而出口端接触角最大为强疏水状态。在这种情况下,当咸水流经后半程时,基本没有强亲水造成的束缚力作为阻力,

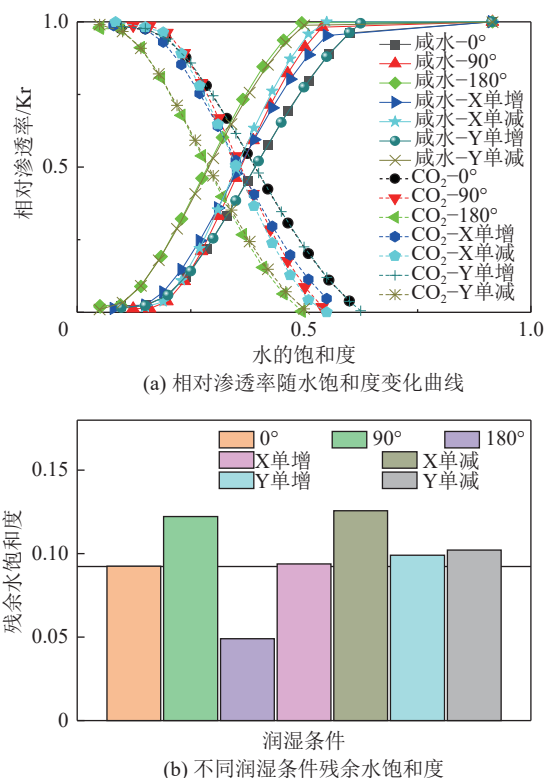


图8 各向异性不同润湿条件相对渗透率和残余水饱和度曲线

Fig.8 Relative permeability and residual water saturation curves for anisotropic different wetting conditions

从而使得流动更快。而其他 3 种情况则没有出现这种现象。

由图 8b 可知, 4 种驱替过程的残余水饱和度介于中性润湿和强亲水之间, 其中当接触角沿 X 轴方向单增时残余咸水饱和度最小, 沿 X 轴方向单减时残余水饱和度最大。当然, 出现这种情况的主要原因可能和渗流入口的分布有关, 当渗流优势通道主要分布在 X 轴左侧时, 左侧越亲水其残余咸水饱和度越小, 反之亦然。同时可见, 驱替速度快的工况并不一定能够达到较高采收率。

4 结 论

1) 基于核磁共振技术对 T_1 和 T_2 图谱进行研究可以定性分析 CO_2 驱替咸水过程中润湿性的变化, 研究发现随着咸水饱和度逐渐减小, 岩心润湿性也逐渐减弱(接触角增大); 从 T_2 图谱中分析可得, CO_2 驱替咸水过程中, 较大孔隙变得不再亲水, 而较小孔隙变得更加亲水; 根据平均弛豫时间 T 和咸水饱和度 S 的二次函数关系可知, 驱替前期润湿性随饱和度的变化较剧烈, 而驱替后期润湿性随饱和度的变化较平缓。

2) 针对不同润湿水平, 当岩心处于强亲水 ($\theta=0^\circ$)、中性润湿 ($\theta=90^\circ$) 或者强疏水 ($\theta=180^\circ$) 时, 残余水饱和度较低, 驱替效果较好; 但 3 种润湿性的作用机理不同。对于真实储层岩心, 类似极端润湿状态很难出现; 但当润湿状态越接近该极端润湿状态时, 其残余咸水饱和度越低, 也就越有利于驱替出更多咸水。

3) 针对某些存在的非均匀润湿, 本文模拟了随方向改变的润湿性变化。研究发现, 润湿性的各向异性会导致渗流行为的不均匀分布, 当渗流通道的出入口润湿性发生改变时, 其对渗流速度及残余咸水饱和度产生了影响; 尤其入口端和出口端的不同润湿性表现会直接影响两相渗流过程, 入口端越亲水且出口端越疏水时, 咸水渗流速度越快。可见, 渗流通道的物性特征对渗流过程的影响较大。

在 CCUS 领域, 探索和利用接触角与饱和度的关系对于驱替效率的提升具有重要意义。由于在驱替过程中润湿性会随着咸水饱和度而变化, 不能采用单一的接触角或者将其设置为空间坐标的简单函数进行表征, 需要考虑不同时刻的变化; 同时, 受岩石表面能和表面形貌差异的影响, 润湿性变化多样, 从而导致渗流规律各异。因此对于驱替过程中的润湿特性和条件的研究仍有待深入。

参考文献(References):

[1] 刘通, 王辰, 宋毅文, 等. 化学链燃烧减排二氧化碳技术展望[J]. 绿

色矿山, 2024, 2(2): 104–118.

LIU Tong, WANG Chen, SONG Yiwen, et al. Research on chemical looping combustion technology[J]. Journal of Green Mine, 2024, 2(2): 104–118.

[2] 王双明, 寇海波, 申艳军, 等. 含煤岩系 CO_2 突出对浅层 CO_2 地质封存的启示[J]. 绿色矿山, 2023(1): 33–47.

WANG Shuangming, KOU Haibo, SHEN Yanjun, et al. Implications of CO_2 outburst from coal-bearing rock series for the CO_2 geological sequestration under shallow layers[J]. Journal of Green Mine, 2023(1): 33–47.

[3] 刘世奇, 莫航, 桑树勋, 等. 宁夏回族自治区碳捕集、利用与封存源汇匹配与集群部署[J]. 煤炭学报, 2024, 49(3): 1583–1596.

LIU Shiqi, MO Hang, SANG Shuxun, et al. Source-sink matching and cluster deployment of carbon capture, utilization, and storage in Ningxia Hui Autonomous Region[J]. Journal of China Coal Society, 2024, 49(3): 1583–1596.

[4] BABAN A, AL-YASERI A, KESHAVARZ A, et al. CO_2 -brine-sandstone wettability evaluation at reservoir conditions via Nuclear Magnetic Resonance measurements[J]. International Journal of Greenhouse Gas Control, 2021, 111: 103435.

[5] 呼园平, 樊平天, 张峰, 等. 润湿性对两相渗流黏性耦合效应研究[J]. 当代化工, 2023, 52(1): 82–86.

HU Yuanping, FAN Pingtian, ZHANG Feng, et al. Study on the coupling effect of wettability on the viscosity of two-phase flow[J]. Contemporary Chemical Industry, 2023, 52(1): 82–86.

[6] 周波, 王为民, 郭和坤, 等. 孔隙介质润湿性的核磁共振刻度特征的测量[J]. 地球科学, 2004, 29(4): 495–499.

ZHOU Bo, WANG Weimin, GUO Hekun, et al. Measurement on scale of wettability of porous media with NMR methods[J]. Earth Science, 2004, 29(4): 495–499.

[7] BELTRÁN A, HERNÁNDEZ-DÍAZ D, CHÁVEZ O, et al. Experimental study of the effect of wettability on the relative permeability for air–water flow through porous media[J]. International Journal of Multiphase Flow, 2019, 120: 103091.

[8] LANDRY C J, KARPYN Z T, AYALA O. Relative permeability of homogenous-wet and mixed-wet porous media as determined by pore-scale lattice Boltzmann modeling[J]. Water Resources Research, 2014, 50(5): 3672–3689.

[9] PARK J H, SHIN B S, JABBARZADEH A. Anisotropic wettability on one-dimensional nanopatterned surfaces: The effects of intrinsic surface wettability and morphology[J]. Langmuir, 2021, 37(48): 14186–14194.

[10] GAO Zhiyong, SUN Wei, HU Yuehua, et al. Anisotropic surface broken bond properties and wettability of calcite and fluorite crystals[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2012, 22(5): 1203–1208.

[11] GUAN H, BROUGHAM D, SORBIE K S, et al. Wettability effects in a sandstone reservoir and outcrop cores from NMR relaxation time distributions[J]. Journal of Petroleum Science and Engineering, 2002, 34(1–4): 35–54.

[12] ZHANG G Q, HUANG C C, HIRASAKI G J. Interpretation of wettability in sandstones with NMR analysis[J]. Biochimica Et Biophysica Acta, 2000, 1445(1): 183–92.

- [13] FREEDMAN R, HEATON N, FLAUM M, et al. Wettability, saturation, and viscosity from NMR measurements[J]. *SPE Journal*, 2003, 8(4): 317–327.
- [14] HAMED A S. Laboratory and numerical investigation of NMR relaxation measurements to study reservoir wettability[D]. London, UK: Imperial College London, 2004.
- [15] FLAUM M, CHEN J, HIRASAKI G. NMR diffusion editing for D₂ T₂ maps: Application to recognition of wettability change[J]. *Petrophysics*, 2005, 46: 113–123.
- [16] 吕俊辰. 孔隙-岩心尺度水合物生长与润湿特性及其对气-水渗流影响研究[D]. 大连: 大连理工大学, 2022.
(LÜ/LV/LU/LYU) Junchen. Study on growth and wetting characteristics of pore-core scale hydrate and its influence on gas-water seepage[D]. Dalian: Dalian University of Technology, 2022.
- [17] HIRASAKI G J. Wettability: Fundamentals and surface forces[J]. *SPE Formation Evaluation*, 1991, 6(2): 217–226.
- [18] 龚国波, 孙伯勤, 刘买利, 等. 岩心孔隙介质中流体的核磁共振弛豫[J]. *波谱学杂志*, 2006, 23(3): 379–395.
GONG Guobo, SUN (Bai) Bo(Qin), LIU Maili, et al. NMR relaxation of the fluid in rock porous media[J]. *Chinese Journal of Magnetic Resonance*, 2006, 23(3): 379–395.
- [19] YAO L L, YANG Z M, LI H B, et al. Nuclear magnetic resonance study on wettability of shale oil reservoir[J]. *Frontiers in Earth Science*, 2024, 12: 1287221.
- [20] LI M, VOGT S J, MAY E F, et al. *In situ* CH₄-CO₂ dispersion measurements in rock cores[J]. *Transport in Porous Media*, 2019, 129(1): 75–92.
- [21] CONNOLLY P R J, VOGT S J, IGLAUER S, et al. Capillary trapping quantification in sandstones using NMR relaxometry[J]. *Water Resources Research*, 2017, 53(9): 7917–7932.
- [22] 李梦越, 刘颖, 王力, 等. CO₂ 非混相驱微观孔喉波及特征研究[J]. *当代化工*, 2020, 49(4): 509–513.
LI Mengyue, LIU Ying, WANG Li, et al. Study on microscopic pore throat sweep characteristics of CO₂ immiscible flooding[J]. *Contemporary Chemical Industry*, 2020, 49(4): 509–513.
- [23] FOROUGH S, BIJELJIC B, LIN Q Y, et al. Pore-by-pore modeling, analysis, and prediction of two-phase flow in mixed-wet rocks[J]. *Physical Review E*, 2020, 102(2): 023302.
- [24] ARMSTRONG R T, SUN C H, MOSTAGHIMI P, et al. Multiscale characterization of wettability in porous media[J]. *Transport in Porous Media*, 2021, 140(1): 215–240.
- [25] 蔡沛辰, 阙云. 基于水平集方法的原状土三维水气两相渗流特性数值研究[J]. *长江科学院院报*, 2022, 39(9): 90–95.
CAI Peichen, QUE Yun. Numerical study on 3D water-air two-phase seepage characteristics of undisturbed soil based on level set method[J]. *Journal of Yangtze River Scientific Research Institute*, 2022, 39(9): 90–95.
- [26] 赵越超. 多孔介质中 CO₂ 与油 (水) 两相渗流的 MRI 研究[D]. 大连: 大连理工大学, 2011.
ZHAO Yuechao. MRI study of CO₂ and oil (water) two-phase seepage in porous media[D]. Dalian: Dalian University of Technology, 2011.
- [27] 赵明月. 强边底水油藏高倍数水驱的数值模拟方法实现及应用[D]. 北京: 中国石油大学 (北京), 2016.
ZHAO Mingyue. Realization and application of numerical simulation method for high multiple water flooding in strong edge and bottom water reservoirs[D]. Beijing: China University of Petroleum (Beijing), 2016.
- [28] 何更生, 唐海. 油层物理[M]. 2 版. 北京: 石油工业出版社, 2011.
- [29] ARIF M, ABU-KHAMSIN S A, IGLAUER S. Wettability of rock/CO₂/brine and rock/oil/CO₂-enriched-brine systems: Critical parametric analysis and future outlook[J]. *Advances in Colloid and Interface Science*, 2019, 268: 91–113.
- [30] 杨永飞, 姚军, M. I. J. van Dijke. 油藏岩石润湿性对气驱剩余油微观分布的影响机制[J]. *石油学报*, 2010, 31(3): 467–470.
YANG Yongfei, YAO Jun, VAN DIJKE M I J. Effect of reservoir rock wettability on microcosmic distribution of residual oil after gas displacement[J]. *Acta Petrolei Sinica*, 2010, 31(3): 467–470.