

磁共振成像在 CO₂ 驱油实验中应用

赵越超, 宋永臣*, 郝敏, 刘瑜, 蒋兰兰

(大连理工大学 海洋能源利用与节能教育部重点实验室, 辽宁 大连 116024)

摘要: 将磁共振成像技术应用于高压条件下多孔介质内渗流特性的可视化研究中. 为 40 mm 内径微成像探头设计了专用的填砂式岩心夹持器, 并将该夹持器应用于 CO₂ 非混相驱和混相驱实验中. 动态连续二维成像分辨率为 0.21 mm×0.21 mm, 基本接近于实验所用玻璃砂尺寸, 从而实现对 CO₂ 非混相驱过程中气体窜流通道的形成过程、CO₂ 混相驱过程中塞状驱替前缘的推进过程及多孔介质内油相赋存状态的连续可视化观测. 发现在气态 CO₂ 非混相驱油实验中, 由于气油两相黏度差和密度差的影响, 指进和窜流现象较明显, 波及范围较小, 残余油饱和度为 54%; 在超临界 CO₂ 混相驱油实验中, 塞状驱替前缘基本保持匀速推进, 可以有效地抑制指进和窜流现象的发生, 波及范围较大, 最终残余油饱和度为 20%. 可见, 超临界 CO₂ 混相驱油技术可显著提高采收率.

关键词: 核磁共振成像; 岩心夹持器; 多孔介质; CO₂ 非混相驱; CO₂ 混相驱; 残余油饱和度

中图分类号: TE35714 **文献标志码:** A

0 引言

将 CO₂ 注入油藏不仅可以提高原油采收率, 产生巨大的经济效益, 而且可以实现 CO₂ 地质埋存, 解决 CO₂ 排放的环境问题, 因此, 该方法应该是解决人类发展和环境改善这一矛盾的有效途径. 通过 CO₂ 驱技术可以在常规技术的基础上进一步提高石油采收率的 10%~15%, 因此进一步深入研究利用 CO₂ 提高原油采收率技术相关问题十分必要^[1]. 然而采用常规实验方法, 将实际地层模型看成一个“黑匣子”, 只能通过监测注入、采出的流量和压力来分析驱油的状况, 这种实验方法不能准确掌握流体在多孔介质内的运动和赋存状态, 显然存在一定的局限性^[2]. 磁共振成像 (MRI) 技术可以对 CO₂ 在含油多孔介质中的流动规律进行准确的把握.

磁共振成像技术具有快速、无损、直观显示的特点, 可以对核自旋密度、弛豫时间 (纵向及横向)、流体流动速度、自扩散系数, 以及基于化学位

移或弛豫时间选择性成像, 是研究多孔介质骨架结构及其内部流体流动的最有利工具之一^[3~5]. 自 20 世纪 80 年代 MRI 技术被引入驱油物理模拟可视化检测实验中以来, 磁共振成像技术已经被广泛应用在水驱、聚合物驱、化学驱等驱替实验研究中, 但对高温高压条件下驱替实验研究却相对较少, 这主要是受到岩心夹持器所限. 传统的岩心夹持器主要有填砂式 (俗称填砂管) 和环压式两种类型, 为了保证高温高压实验条件, 材料一般为不锈钢或金属合金. 而磁共振成像专用岩心夹持器除了要保证与传统的夹持器具有相同功能外, 所用材料必须是耐高温高压, 且对核磁信号无干扰的非磁性材料, 另外, 设计尺寸要能保证插入核磁探头内部. 早期的研究者, 例如 Hazlett 等^[6] 为了对 CO₂ 混相驱油过程进行可视化研究, 不得不先在常规夹持器中进行驱替实验, 然后将岩心取出在常压下对其进行磁共振成像分析, 不能实现驱替过程中的实时监测.

近年来低场核磁共振仪在石油工业中的迅速

收稿日期: 2010-05-09; 修回日期: 2011-09-10.

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (重点项目 50736001); “九七三”国家重点基础研究发展计划资助项目 (2006CB705804); “八六三”国家高技术研究发展计划资助项目 (2008AA062303).

作者简介: 赵越超 (1978-), 男, 博士, E-mail: zhaoyc@dlut.edu.cn; 宋永臣* (1963-), 男, 博士, 教授, 博士生导师, E-mail: powere@dlut.edu.cn.

发展,高场核磁共振仪的应用相对减少了许多,因而针对高场磁共振成像仪中岩心夹持器的应用就更少,仅有 Graue 教授课题组为 Varian Unity INOVA 85.7 MHz MRI Systems(探头内径为 133 cm)配备了 Temco 公司生产的 Hassler 型无磁岩心夹持器,分别对高温高压条件下天然岩心中超临界 CO₂ 驱油、低温高压条件下天然气及 CO₂ 水合物的生成与分解进行了实验研究^[7~10]. 另外, Hirai 教授课题组为 Varian Unity INOVA 300 MHz MRI Systems(探头内径为 57 cm)研制了外径 50 mm,最高工作压力 40 MPa 的岩心夹持器,对高温高压条件下超临界 CO₂ 注入含水多孔介质进行了一系列可视化研究^[11~13].

国内的应用报道更少,仅有王为民等利用 Temco 公司的耐压 20 MPa、耐温 100 °C 的岩心夹持器,用低场磁共振岩心分析仪对天然气核磁共振特性进行了实验研究^[14]. 另外,唐巨鹏针对 Bruker47/40 型磁共振成像仪,利用聚碳酸酯等非磁性材料设计了外径为 11 cm 的夹持器,对煤试样中 N₂ 驱水、水驱 N₂ 过程进行了实验研究^[15].

本文针对 CO₂ 驱油实验室物理模拟研究中对高压、高温条件的要求,为 Varian NMR 400 MHz Systems 的 40 mm 内径微成像探头设计专用的填砂式夹持器,并利用其对高压条件下 CO₂ 驱油进行初步可视化实验研究.

1 实验装置

本实验室于 2007 年引进 Varian NMR 400

MHz Systems,配有内径 40 mm 微成像探头,最高磁场梯度为 50×10^{-4} T/cm. 由于探头内径太小, Temco 公司的现有商业产品不能满足要求,自行设计了外径为 38 mm 的填砂式岩心夹持器,如图 1 所示. 材料选用对核磁信号没有影响的聚酰亚胺 (PI)和钛,设计压力为 15 MPa,设计温度为 70 °C,内腔直径为 15 mm,可以根据要求填充各种石英砂或油砂,填砂模拟岩心温控通过采用温控液循环器向夹套中供给循环热流体来实现,循环液为美国 3M 公司的电子氟化液 FC-40,该液体不含氢元素,因此不会干扰 MRI 成像. 图 2 为实验装置系统图.

2 成像脉冲序列选择与图像处理方法

在多孔介质成像研究中,常规自旋回波脉冲序列虽然成像效果较好,但却需要较长的成像时间. 由于本实验中 CO₂ 窜流速度较快,为了保证成像质量的同时尽量缩短成像时间,从而实现 CO₂ 窜流过程的连续动态可视化观测,采用多回波自旋回波序列的改良方式——多层面快速自旋回波脉冲序列 (FSEMS). FSEMS 主要采取改变数据充填 K -空间的方法,即将一个重复时间间期取得的多个回波的数据,同时放入一个 K -空间,这样就大大缩短了扫描时间,所得图像质量也接近常规自旋回波序列所得的. FSEMS 扫描时间可表示为 $T = T_r N_y \cdot N / m$,其中 T_r 为重复时间, N_y 为相位编码行数, N 为采集次数, m 为回波链长. FSEMS 的主要优点是扫描速度比常规自旋回波成倍提高(主要取决于回波链长的选取),且

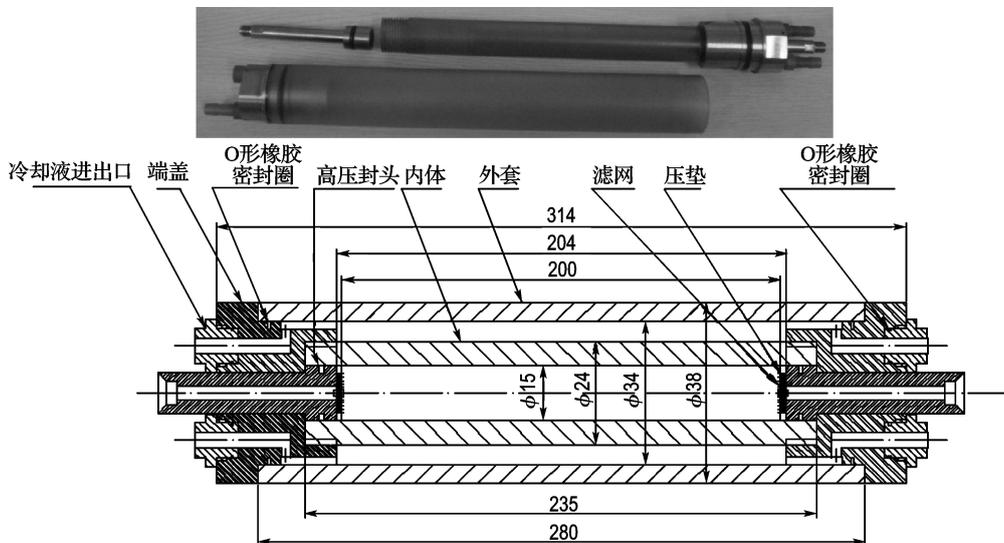


图 1 高压填砂式岩心夹持器

Fig. 1 The high-pressure glass-packed core holder

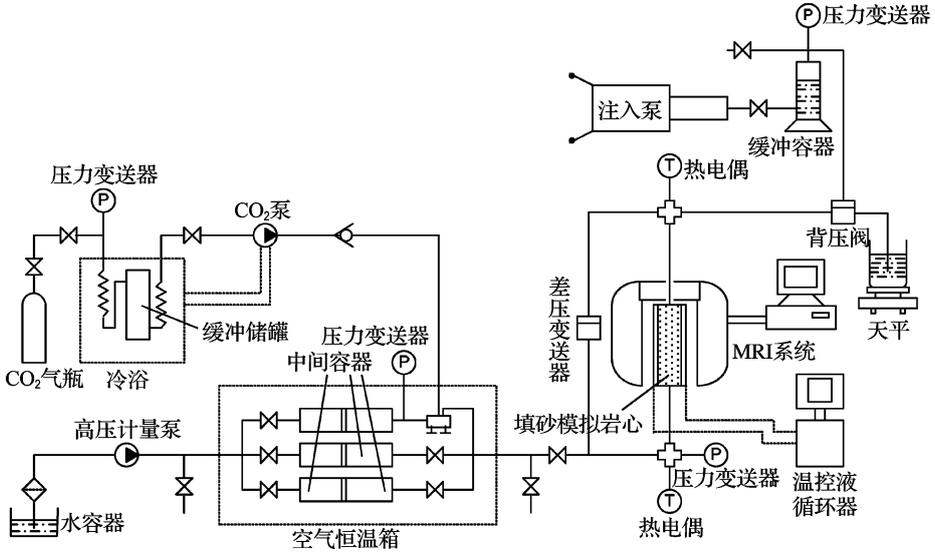


图2 简化实验装置系统图

Fig. 2 Simplified schematic of the experimental set-up

图像质量高,非常酷似常规自旋回波图像,运动性和磁化性伪影均较少.本实验中采用的具体二维成像参数为重复时间 1 s、有效回波时间 2.66 ms、回波链长 8、成像视野 40 mm×40 mm、像素矩阵 192×192、空间分辨率 0.21 mm×0.21 mm×1 mm、成像时间 24 s,采用动态连续扫描方式.

利用磁共振成像技术可以得到饱和油的质子密度图像,理论证明多孔介质中的含油量与核磁信号强度成正比,因而油的质子密度图像可以直观体现多孔介质内含油饱和度分布.与常规实验相比,利用磁共振成像技术可以方便地获取多孔介质内两相渗流过程中任意时刻各相的分布状况,可以以图像的最小体元为单位来高精度确定多孔介质内液体饱和度^[2,13].本文的处理方法为在饱和油状态下,获取一幅图像 I_{00} ,在驱替过程中获得另一幅图像 I_{oi} ,那么任意一个小体元中含油饱和度为

$$S_{oi}(x, y, z) = I_{oi}(x, y, z) / I_{00}(x, y, z)$$

式中: $S_{oi}(x, y, z)$ 为空间中任一体元的含油饱和度, $I_{oi}(x, y, z)$ 为驱替过程中任一体元的信号强度大小, $I_{00}(x, y, z)$ 为初始饱和油时任一小题元的信号强度大小.

3 实验过程与结果分析

(1) 实验材料

实验中采用填砂来模拟地下多孔介质,所用日本玻璃砂平均粒径 0.214 mm,具有较强的亲油性,重力法测孔隙度为 35.2%,水测渗透率为 13.3 μm^2 .实验流体介质油相采用正癸烷,气相

采用纯度为 99% 的 CO₂. 分别在压力为 5.4 MPa、温度为 40 °C 和压力为 8.2 MPa、温度为 38 °C 条件下进行了实验研究,不同条件下流体的物性如表 1 所示.

(2) 实验步骤

实验步骤为先将玻璃砂填入模型管中压实,然后将岩心管置于 NMR 超导磁体中,连接好管路,抽真空,直接饱和癸烷,未建立束缚水,仔细调谐、匀场、设置好脉冲参数,最后以 0.1 mL/min 的驱替速度从填砂式夹持器底部注入 CO₂ 驱油,在实验不同阶段,连续采集得到一系列纵向剖面图像,分析驱替特性及油的饱和度分布变化.

表1 实验所用流体物性

Tab. 1 Fluid physical properties for experiment

	p/MPa	$t/^\circ\text{C}$	$\rho/(\text{g} \cdot \text{cm}^{-3})$	$\mu/(\text{mPa} \cdot \text{s})$
CO ₂	5.4	40	0.127	0.017
	8.2	38	0.342	0.025
正癸烷	5.4	40	0.720	0.740
	8.2	38	0.720	0.760

3.1 实验 1[#]

图 3 为 CO₂ 非混相驱油过程中填砂模拟岩心内油的分布变化图,共连续采集 100 幅图像,图中所列为其中的 8 幅.图像高 40 mm,其底部和顶部分别对应 CO₂ 的进出口,亮的地方表示含油饱和度较高,暗的地方表示含油饱和度较低.其中 0 min 时刻图为 CO₂ 未注入前填砂模拟岩心内油的饱和度分布,可见,由于玻璃砂本身粒径的均匀

度及填砂过程操作的影响,多孔介质内的孔隙及孔道分布并不均匀.由驱替过程系列图可见,气态 CO_2 注入后,由于气油两相黏度差和密度差的影响,指进和窜流现象较明显, CO_2 沿多孔介质内渗透性较高孔隙通道向上突进,形成许多细小的窜流通道,将该部分的油驱替出来,一些油会残留在渗透性较差的孔隙及管壁和玻璃砂表面.

3.2 实验 2[#]

图 4 为 CO_2 混相驱油过程中填砂模拟岩心内油的分布变化图,共连续采集 35 幅,图中所列为其中的前 8 幅,每幅图像间隔时间为 72 s.其中 0 s 时刻图为 CO_2 未注入前填砂模拟岩心内油的饱和度分布.由驱替过程系列图可见,超临界 CO_2 首先与底部入口处油形成混相,使图像变暗,形成一个明显的塞状驱替前缘(如图 4(c)所示),没有指进或窜流现象发生;随着后续 CO_2 的不断注

入,驱替前缘逐渐向上推进,直到从观察段顶部突破,这个过程是边混相边驱替的过程,此时观察段图像与驱替前的饱和油图像相比整体变暗,表明一部分孔隙或喉道内的油已经被驱替出,整个观察段内油残余饱和度降低.之后,残余油也会不断被后续 CO_2 混相驱出,因而检测图像随时间变化不断变暗.

图 5 为填砂模拟岩心内油的饱和度随 CO_2 注入体积变化图,可见,在实验 1[#] 中,开始时随着 CO_2 注入含油饱和度基本呈线性趋势下降,且下降速率较快,当 CO_2 驱替前缘突破后,含油饱和度下降趋势减缓,当 CO_2 注入 2.24 mL 时,残余油饱和度为 54%,之后注入的 1.72 mL CO_2 对残余油饱和度基本没有影响.在实验 2[#] 中,同样,开始时随着 CO_2 注入含油饱和度基本呈线性趋势下降,且下降速率较快,因此可以推断 CO_2 塞状

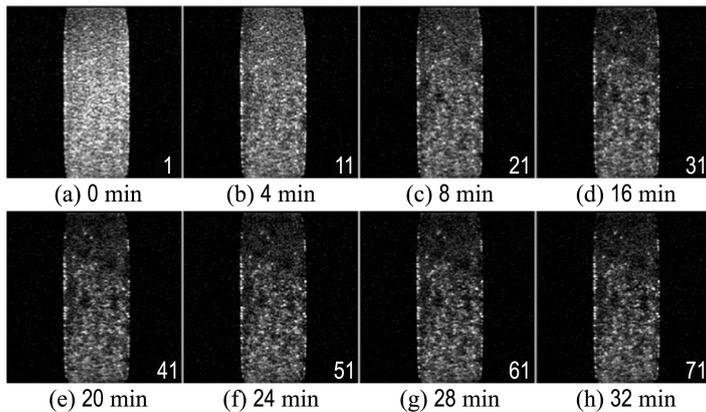


图 3 CO_2 非混相驱油过程中填砂模拟岩心内油的分布变化图(5.4 MPa, 40 °C, CO_2 注入速率 0.1 mL/min)

Fig. 3 Distribution of oil in glass-packed core during CO_2 immiscible displacement at 5.4 MPa, 40 °C with CO_2 injection rate of 0.1 mL/min

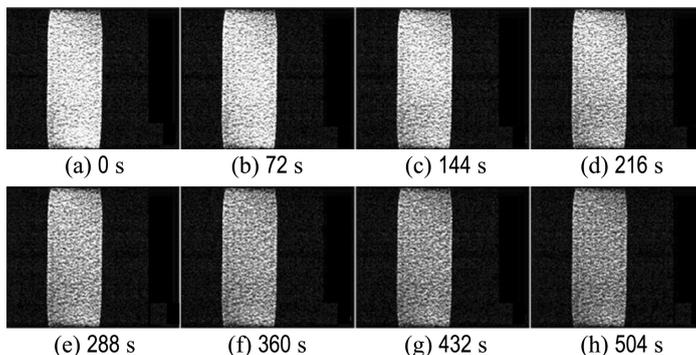


图 4 CO_2 混相驱油过程中填砂模拟岩心内油的分布变化图(8.2 MPa, 38 °C, CO_2 注入速率 0.1 mL/min)

Fig. 4 Distribution of oil in glass-packed core during CO_2 miscible displacement at 8.2 MPa, 38 °C with CO_2 injection rate of 0.1 mL/min

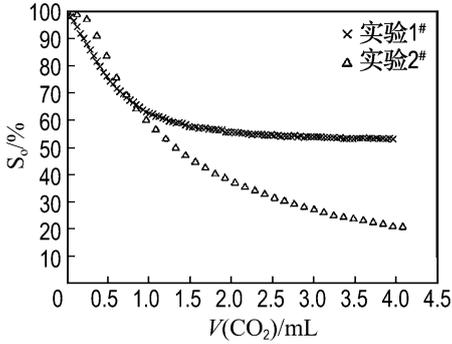


图5 填砂模拟岩心内油的饱和度随 CO₂ 注入体积变化图

Fig. 5 Oil saturation versus volume of CO₂ injected in glass-packed core

驱替前缘基本保持匀速推进,当驱替前缘突破后,含油饱和度下降趋势减缓,最终残余油饱和度为初始时刻的 20% 左右.可见,超临界 CO₂ 混相驱油技术可以有效地抑制指进和窜流现象的发生,显著提高采收率.

需要说明的是高场磁共振成像仪由于其信噪比较高,成像效果要比低场仪器好,低场仪器需要多次累加才能提高信噪比,成像时间较长,因而不利于本研究中的动态成像观测.虽然高场磁共振成像仪用于孔隙介质成像研究中,由于磁化率的不均匀性会对成像效果具有一定的不利影响,但快速自旋回波的 180°重聚脉冲可以很大程度上消除磁化率不均匀性的影响.另外,本次实验中所用玻璃砂规则度较高,粒径分布较均匀,完全饱和油后填砂试样的一维谱半高宽约为 340 Hz,远远小于天然岩心通常几千赫兹的一维谱半高宽.另外,驱替过程中,由于多孔介质孔隙内的含油量减少以及 CO₂ 溶于油所引起的密度减小,最终会导致横向弛豫时间 T_2 减小,会对图像的信号强度产生一定影响,因而采用上述方法来确定含油饱和度会存在一定的误差,实验开始前,利用 CPMG 法测得完全饱和油后试样的整体横向弛豫时间为 62 ms,实验 1# 结束后, T_2 为 35 ms,实验 2# 结束后, T_2 为 14 ms,远大于实验所用有效回波时间,且 T_2 谱分布范围较小,所以实验所得图像可以认为是自旋密度像,可以进行定量分析.

4 结 论

(1)为 400 Hz 高场磁共振成像仪设计了专用的填砂式岩心夹持器.主要有以下几个特点:38 mm 的外径能保证其顺利垂直插入微成像探头,

15 mm 的内腔直径可以为测试样品提供相对足够的空间;采用耐高温高压、耐腐蚀,且对核磁信号无干扰的非磁性材料,为 MRI 提供了基本保证;最高设计压力和温度分别为 15 MPa、70 °C,可以满足 CO₂ 驱油实验室物理模拟研究中的温度压力条件要求.利用该填砂式岩心夹持器实现了对 CO₂ 非混相驱过程中气体指进和窜流过程、CO₂ 混相驱过程中塞状驱替前缘的推进过程及多孔介质内油相赋存状态的连续可视化观测.

(2)将磁共振成像技术应用于高压条件下 CO₂ 驱油实验室物理模拟研究,得到了驱替过程中不同时刻的自旋密度像,其动态连续二维成像分辨率为 0.21 mm×0.21 mm,基本接近于实验所用玻璃砂粒径,因而能更清晰地观察多孔介质内油的赋存状态,对进一步量化分析驱替过程中多孔介质内局部位置的流体分布具有更直观的效果.

(3)在气态 CO₂ 非混相驱油实验中,由于气油两相黏度差和密度差的影响,指进和窜流现象较明显,开始时随着 CO₂ 注入含油饱和度基本呈线性趋势下降,且下降速率较快,当 CO₂ 驱替前缘突破后,含油饱和度下降趋势减缓,当 CO₂ 注入 2.24 mL 时,图像中残余油饱和度为 54%,之后注入的 1.72 mL CO₂ 对残余油饱和度基本没有影响,波及范围较小;在超临界 CO₂ 混相驱油实验中,开始时随着 CO₂ 注入含油饱和度基本呈线性趋势下降,且下降速率较快,因此可以推断 CO₂ 塞状驱替前缘基本保持匀速推进,可以有效地抑制指进和窜流现象的发生,当驱替前缘突破后,含油饱和度下降趋势减缓,最终残余油饱和度为初始时刻的 20% 左右.可见,超临界 CO₂ 混相驱油技术显著提高采收率.利用 MRI 可视化技术可以更直观地揭示非混相驱和混相驱流动机理的不同,这对进一步研究如何充分利用 CO₂ 驱的优点及避免其缺点,最终实现提高采收率具有重要意义.

致谢: Varian 公司 Hideto Kuribayashi 和张盛春两位工程师、中国石油大学(北京)肖立志教授、中国科学院渗流流体力学研究所郭和坤高工、日本德岛大学 Suekane Tetsuya 教授等馈赠了资料及在 MRI 应用技术方面给予了热情指导.

参考文献:

- [1] 沈平平,廖新维. 二氧化碳地质埋存与提高石油采收率技术[M]. 北京:石油工业出版社, 2009:32-38
- [2] 王为民,郭和坤,孙佃庆,等. 用核磁共振成像技术研

- 究聚合物驱油过程[J]. 石油学报, 1997, **18**(4):54-61
- [3] 肖立志. 核磁共振成像在 EOR 研究中的应用[J]. 石油学报, 1995, **16**(3):106-110
- [4] 肖立志. 核磁共振成像测井与岩石核磁共振及其应用[M]. 北京:科学出版社, 1998
- [5] 陈 权. 岩石核磁共振及其在渗流力学和油田开发中的应用研究[D]. 武汉:中国科学院武汉物理与数学研究所, 2001
- [6] HAZLETT R D, GLEESON J W, LAALI H, *et al.* NMR imaging application to carbon dioxide miscible flooding in west Texas carbonates[C] // **SCA 9311 in Annual Technical Conference Proceedings**. Houston: Society of Core Analysts, 1993
- [7] BRAUTASET A, ERSLAND G, GRAUE A, *et al.* Using MRI to study in situ oil recovery during CO₂ injection in carbonates [C] // **SCA2008-41 in the International Symposium of the Society of Core Analysts**. Abu Dhabi:Society of Core Analysts, 2008
- [8] BRAUTASET A. In situ fluid dynamics and CO₂ injection in porous rocks [D]. Bergen:University of Bergen, 2009
- [9] BIRKEDAL K A. Hydrate formation and CH₄ production from natural gas hydrates-emphasis on boundary conditions and production methods [D]. Bergen:University of Bergen, 2009
- [10] ERSLANDA G, HUSEBØA J, GRAUEA A, *et al.* Measuring gas hydrate formation and exchange with CO₂ in Bentheim sandstone using MRI tomography [J]. **Chemical Engineering Journal**, 2010, **158**(1):25-31
- [11] SUEKANE T, SOKAWA S, IWATANI S, *et al.* Behavior of supercritical CO₂ injected into porous media containing water[J]. **Energy**, 2005, **30**(11): 2370-2382
- [12] SUEKANE T, ISHII T, TSUSHIMA S, *et al.* Migration of CO₂ in porous media filled with water [J]. **Journal of Thermal Science and Technology**, 2006, **1**(1):1-11
- [13] SUEKANE T, FURUKAWA N, TSUSHIMA S, *et al.* Application of MRI in the measurement of two-phase flow of supercritical CO₂ and water in porous rocks [J]. **Journal of Porous Media**, 2009, **12**(2):143-151
- [14] 王为民,郭和坤,叶朝辉. 低磁场条件下天然气核磁共振特性的实验研究[J]. 波谱学杂志, 2001, **18**(3):223-227
- [15] 唐巨鹏. 煤层气赋存运移的核磁共振成像理论和实验研究[D]. 阜新:辽宁工程技术大学, 2006

Application of MRI to CO₂ displacement oil experiments

ZHAO Yue-chao, SONG Yong-chen*, HAO Min, LIU Yu, JIANG Lan-lan

(Key Laboratory of Ocean Energy Utilization and Energy Conservation of Ministry of Education, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China)

Abstract: For the visualization of flow in porous media in high pressure conditions using magnetic resonance imaging (MRI) technique, a new glass-packed core holder is designed for the MRI system with a 40 mm inner diameter micro-imaging probe. This apparatus is demonstrated through observation of CO₂ immiscible and miscible displacement, and the dynamic spatial resolution of 2D images is 0.21 mm × 0.21 mm, close to the experimental glass bead size, so the fundamental characteristics of the two-phase flow process, such as onset of CO₂ channeling in immiscible displacement, the advance of piston-like frontal of CO₂ in miscible displacement and the distribution of oil in porous media can be accurately detected. It is found that for CO₂ immiscible displacement, due to the difference of fluids viscosity and density, the phenomenon of CO₂ channeling or fingering is obvious, so the sweep efficiency is small and the final residual oil saturation is 54%; for supercritical CO₂ miscible displacement, the velocity of CO₂ frontal is uniform, the phenomenon of CO₂ channeling or fingering is restrained effectively, and the sweep efficiency is high and the final residual oil saturation is 20%. So supercritical CO₂ miscible displacement can enhance oil recovery evidently than CO₂ immiscible displacement.

Key words: NMR imaging; core holder; porous media; CO₂ immiscible displacement; CO₂ miscible displacement; residual oil saturation