

文章编号: 1000-0747(2018)06-1053-06 DOI: 10.11698/PED.2018.06.13

低渗透含水层储气库储气过程中气-水-岩相互作用及储气量影响因素

TOOSEH Esmaeel Kazemi¹, JAFARI Arezou¹, TEYMOURI Ali²

(1. Petroleum Engineering Department, Chemical Engineering Faculty, Tarbiat Modares University, Tehran, Iran; 2. National Iranian Gas Company, Tehran, Iran)

摘要: 利用室内岩心实验研究了低渗透含水层储气库天然气储气过程中气-水-岩相互作用以及影响储气过程的主要参数。研究表明, 实验条件下储气量占岩心孔隙体积的百分比为 6%~20%。注气速度对储气量有重要影响, 注气速度较高时, 储气量较高。提高压力也会使储气量增加。统计分析表明, 注气速度比压力对储气量的影响更大。储气时间对储气过程也有影响, 长期储存后会有大部分天然气滞留在储集层中无法被采出。原子吸收光谱分析表明, 将天然气注入盐水饱和岩心的过程中, 盐水中的离子浓度和水蒸发量增大, 可能形成沉淀物, 降低岩石的孔隙度和渗透率。气相色谱分析表明, 在岩心中储存后, 天然气中二氧化碳浓度降低, 甲烷浓度增加。图 8 表 5 参 24

关键词: 地下储气库; 天然气; 储气量; 含水层; 注气速度; 注气压力

中图分类号: TE972+.2

文献标识码: A

Gas-water-rock interactions and factors affecting gas storage capacity during natural gas storage in a low permeability aquifer

TOOSEH Esmaeel Kazemi¹, JAFARI Arezou¹, TEYMOURI Ali²

(1. Petroleum Engineering Department, Chemical Engineering Faculty, Tarbiat Modares University, Tehran, Iran; 2. National Iranian Gas Company, Tehran, Iran)

Abstract: Gas-water-rock interactions during natural gas storage in a low permeability aquifer and main factors affecting the storage capacity were investigated in laboratory with core experiments. The results showed that gas injection flow rate had a major impact on stored gas volume and stored gas volume is higher at high flow rate. Gas storage volume ranged between 6%–20% of the pore space at experimental condition. Enhancing injection pressure can enhance gas storage volume. Statistics showed that injection flow rate had a greater influence on the gas storage volume than pressure. The retention time also had an impact on the gas storage process. Most of the natural gas was trapped in the reservoir and could not be produced after long time of retention. Atomic absorption spectroscopy indicated that ions concentrations of the brine and water evaporation increased when gas was injected into brine saturated core, and precipitation might occur, reducing porosity and permeability of core. Gas chromatography analysis showed that the concentration of carbon dioxide in the natural gas decreased and the concentration of methane increased after storage in the core.

Key words: underground gas storage; natural gas; gas storage volume; aquifer; gas injection rate; gas injection pressure

引用: TOOSEH E K, JAFARI A, TEYMOURI A. 低渗透含水层储气库储气过程中气-水-岩相互作用及储气量影响因素[J]. 石油勘探与开发, 2018, 45(6): 1053-1058.

TOOSEH E K, JAFARI A, TEYMOURI A. Gas-water-rock interactions and factors affecting gas storage capacity during natural gas storage in a low permeability aquifer[J]. Petroleum Exploration and Development, 2018, 45(6): 1053-1058.

0 引言

地下储气库是一种重要的天然气储存方式^[1]。衰竭油气藏、含水层和盐穴是用作地下储气库的主要储集层类型^[2-3]。将天然气储存在含水层中十分复杂^[4], 需要考虑过程中的各个方面^[5]。影响这一过程的参数包括流体在多孔介质中的流动特性、气相及水相的性质和储

集层条件等^[6], 但是目前这些参数尚未被深入研究^[7]。其中, 含水层温度和水的矿化度可能不会发生变化^[8], 而气体注入压力和流量值得进一步研究。Sohrabi 等^[9]通过交替注入甲烷和水来研究多相流动特征和气相波及系数。Pini 等^[10]通过对高渗透率岩心和低渗透率岩心进行实验, 研究储集层非均质性对 CO₂ 注入过程的影响, 发现在两个岩心入口处储气量较高, 随着岩心

长度的增加而降低,且在高流速下两个岩心中储气量较高。Lorenz等^[11]在低于100℃的温度下研究了氮气注入过程,发现气体注入过程中近井地带会发生盐析,储存时间越长、压力损失越大,盐析出得越多。Golghanddashti等^[12]通过在大气压力下将天然气注入岩心对盐析进行了研究,结果表明天然气的注入速度不会影响盐的析出,而热力学条件是盐析量的主要影响因素。Torabi等^[13]通过岩心驱替实验研究了压力对多孔介质中二氧化碳-原油非混相驱替的影响。Oh等^[14]通过模拟和实验研究了二氧化碳-水交替驱,发现通过提高注入速度可以使岩心入口处的储气量增加。Peysson等^[15]将二氧化碳注入盐水饱和的岩心中,发现气体注入速度对盐的析出有重要影响。Sadirli^[8]通过数值模拟研究了含水层中天然气的储气过程。

可见,研究者尚未对低渗透含水层中天然气的储气过程进行岩心尺度的实验研究。本文采用伊朗中部作为备选储气库的含水层石灰岩岩心开展岩心驱替实验,研究低渗透含水层天然气储气过程中气-水-岩相互作用,分析注气速度、压力及储气时间对储气量的影响。

1 实验材料和方法

1.1 岩样

在伊朗中部某含水层中采集了5块石灰岩岩心,取心深度1041.15 m。该含水层的岩性主要是石灰岩和白云岩,在某些层段分布有微裂隙。实验中使用了渗透率和孔隙度最高的岩心,岩心长度为7.62 cm,直径为3.81 cm,孔隙度为8.32%,渗透率为 $0.02 \times 10^{-3} \mu\text{m}^2$,孔隙体积为 7.22 cm^3 。

1.2 流体性质

根据对含水层中盐水的分析结果人工合成了实验中使用的盐水。测得盐水的密度为 1.095 g/cm^3 ,其在实验温度(46℃)下的黏度为 $0.75 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ 。盐水中 Ca^{2+} 、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 K^+ 、 Cl^- 和 SO_4^{2-} 的浓度分别为45.240, 30.270, 1.580, 0.641, 130.820和0.400 g/L, TDS(溶解性固体总量)为208.411 g/L。盐水矿化度的增加会使盐析的可能性增加,进而导致储气量减少。因此,在每次实验后都对岩心样品进行清洗,并在每次实验中将相同的盐水注入岩心样品中。

实验中使用的天然气取自家用燃气管道。为了收集足够的天然气用于实验,需要在容器中储存天然气。由于家用天然气的压力约为0.1 MPa,因此在储存之前需要分几步加压。首先被压缩机加压到0.35 MPa,然

后被气体增压机加压到3.5 MPa,多次重复该过程直到其压力达到8.0 MPa。设计的天然气加压装置如图1所示。采用气相色谱仪和热导检测器(TCD)测量了实验用天然气的成分。结果表明,甲烷是天然气的主要成分,约占98.98%,二氧化碳约占1.02%。

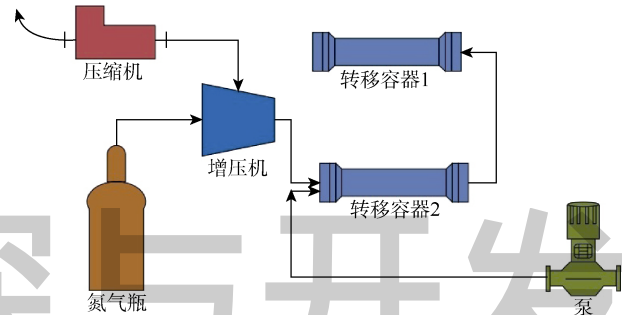


图1 气体加压装置示意图

1.3 实验装置

岩心驱替实验装置如图2所示。图中的两个容器一个储存盐水,另一个储存天然气,利用一个容积泵交替输送两个容器中的流体。该泵的最高运行压力为35 MPa,排量为 $0.01 \sim 30.00 \text{ cm}^3/\text{min}$ 。实验之前测量了泵的精度。将岩心放置在一个不锈钢岩心夹持器内,该岩心夹持器最多可容纳长度达12 cm、直径达3.81 cm的岩心。在岩心两端放置了两个传感器,以精确测量岩心承受的压力。使用背压调节器来维持岩心出口压力。使用液压过载泵来施加叠加压力。将分离器连接到输出管线以分离产生的液体和天然气。

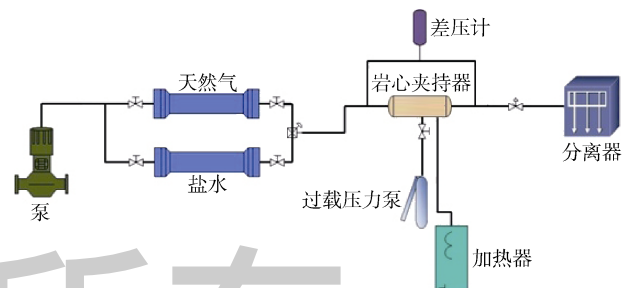


图2 实验装置示意图

1.4 实验流程

实验流程为:①注入2倍孔隙体积的甲醇洗涤岩心样品,再将岩心放置在90℃的烘箱内烘烤12 h后称重。②将干燥的岩心包裹在铝箔内并放入橡胶套筒中,然后将其放置在岩心夹持器中加热至46℃。此过程中岩心的气测渗透率为 $0.09 \times 10^{-3} \mu\text{m}^2$ 。③对岩心抽真空,再低速注入2倍孔隙体积的盐水。④测量岩心的渗透率,取出岩心称重,再将其放回岩心夹持器中。

⑤将岩心加压到所需的压力，并将天然气以恒定的流速注入，直到没有盐水产出。⑥取出岩心称重，通过计算实验前后岩心的质量差来计算岩心中储存的天然气量。

本文基于中心复合设计法 (CCD) 进行实验设计，这是一种响应曲面方法 (RSM)。与传统方法相比，这种方法可以通过更少的实验来研究各参数的同时效应对过程的影响以及每个参数对过程的影响。CCD 在操作框架中引入了最优条件^[16]。即使是高度耦合的过程也可以通过实验设计来研究^[17]。本研究选择了注气速度和压力这两个参数，并将其上限和下限引入 CCD。这些上、下限值基于实际含水层的运行状况得出。注气速度设定在 0.01~0.09 cm³/min，压力在 8~16 MPa。每个参数分别取 5 个值，共进行了 12 组实验。考虑到实验误差，在参数取值中心点（即注气速度 0.05 cm³/min、压力 12 MPa）条件下进行了 4 组实验。

2 结果与讨论

12 组实验的结果如表 1 所示。

表 1 实验结果

实验编号	注气速度/ (cm ³ ·min ⁻¹)	注入压力/ MPa	储气量/ cm ³	储气量占孔隙体积 的百分比/%
1	0.03	10	1.125	15.58
2	0.07	10	1.152	15.94
3	0.03	14	1.367	18.94
4	0.07	14	1.502	20.79
5	0.01	12	0.838	11.60
6	0.09	12	1.261	17.47
7	0.05	8	0.417	5.78
8	0.05	16	0.913	12.64
9	0.05	12	0.470	6.51
10	0.05	12	0.507	7.02
11	0.05	12	0.500	6.92
12	0.05	12	0.552	7.64

现场实际中认为储气时间也会影响储气过程。因此，本文通过两个储气时间分别为 1 d 和 5 d 的实验研究了储气时间对储气过程的影响。图 3 为两个实验结束后岩心中部截面的 CT 扫描图。表 2 为两个实验的结果。从图 3、表 2 可以看出，两个实验的结果相差不大，所以表 1 中 12 组实验的储气时间均设定为 1 d。

2.1 注气速度的影响

注气速度对储气量的影响如图 4 所示，可以看出，注气速度较低时储气量随注入速度的升高而减小，注气速度较高时储气量随注入速度的升高而增大。预计在注气速度进一步升高后储气量仍有增大的趋势，但应

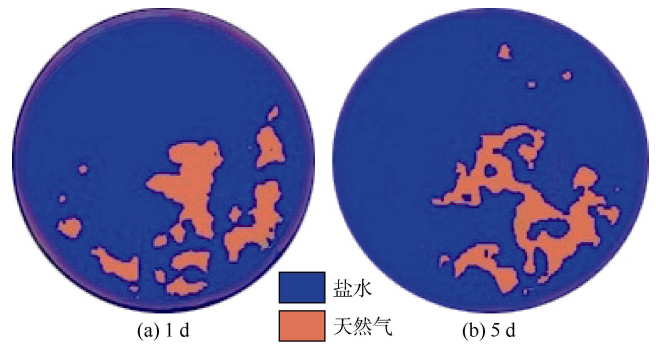


图 3 岩心中部截面 CT 扫描图像

表 2 储气时间分别为 1 d 和 5 d 的实验结果

储气时间/d	注气速度/ (cm ³ ·min ⁻¹)	注入压力/ MPa	储气量/ cm ³	采气量/ cm ³
1	0.05	16	0.913	0.867
5	0.05	16	0.987	0.926

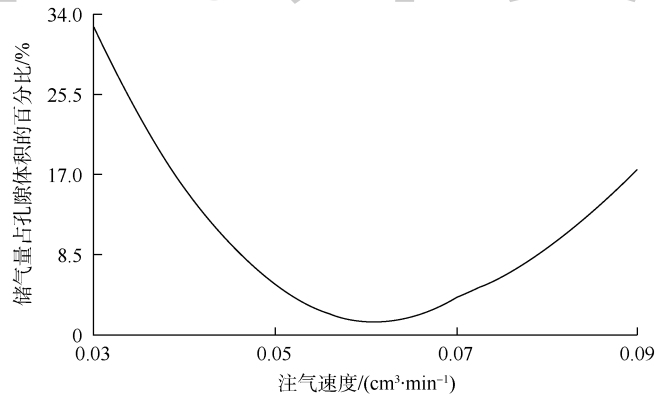


图 4 压力 12 MPa 下储气量与注气速度的关系

该考虑不同岩石对高注气速度的适应性^[18]。本文实验中将天然气注入岩心的过程是在毛细管的控制下进行的，各组实验的毛细管数计算值约 $(0.1 \sim 1.0) \times 10^{-10}$ ，因此，毛细管力是天然气-水流动的主要动力。此外，雷诺数在 0.049~0.117，表明各组实验中均存在达西流。

2.2 压力的影响

压力在包括气体在内的多相系统渗流中起主要作用^[13]。本文实验中天然气和水组成了非混相驱替流体。压力增加会使天然气的密度和黏度增加，则驱替流体的性能改善。由图 5 可知，储气量随着压力的增加而显著增加，通过将压力从 8 MPa 增加到 16 MPa，可以使岩心中储气量占孔隙体积的百分比从 5.78% 提高到 12.64%。

2.3 统计分析

借助统计方法可以分析注气速度和压力各自对储气量的影响以及两者间的关系。表 1 中 5 号实验的结果在统计分析中被忽略，因为其模型的 P 值是不可接

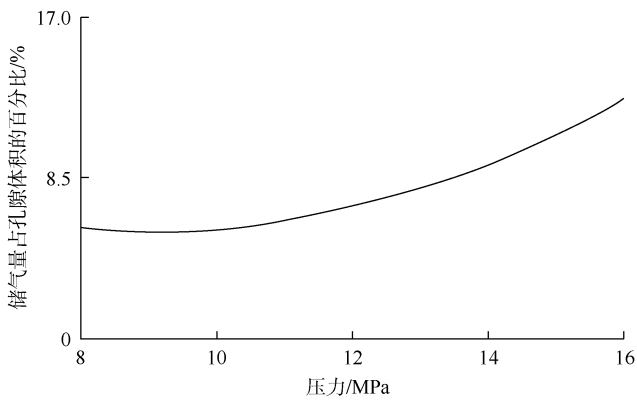


图5 注气速度 0.05 cm³/min 时储气量与压力的关系

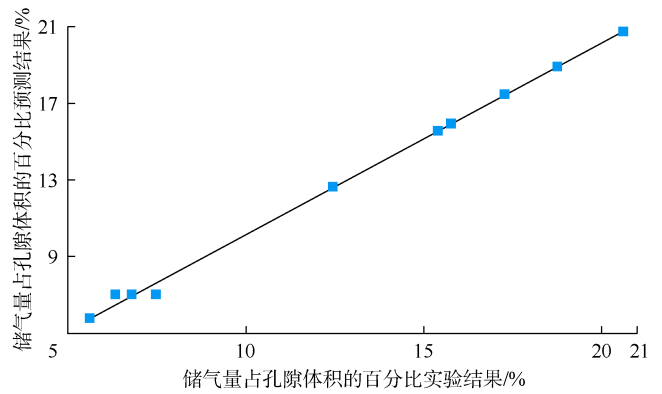


图6 储气量占孔隙体积百分比的模型预测结果及实验结果

受的。通过方差分析给出了储气量占孔隙体积百分比 (S) 的三次方模型(见(1)式)。在方差分析中以 95% 的置信度预测模型结果,并认为 $P < 0.05$ 时结果显著^[19]。模型 R^2 (复相关系数)为 0.998,证实了模型的可靠性。另一个统计指标是 F 值, F 值表示一个参数的重要性^[20]。表 3 为方差分析结果,可以看出,模型的 P 值为 0.000 5,证明在 95% 的置信度下模型显著。注气速度 (A) 和压力 (B) 是两个重要的参数, P 值均小于 0.05 (分别为 0.000 1 和 0.001 9)。注气速度的 F 值为 657.09,表明这个参数比压力 (F 值为 107.86) 更重要。 AB 的 P 值为 0.209 0,表明注气速度和压力之间没有显著的相关性。

$$S = 7.02 - 15.26A + 1.71B + 10.24A^2 + 0.55B^2 + 0.34A^2B + 15.81AB^2 \quad (1)$$

表 3 方差分析结果

来源	平方和	自由度	均方误差	F 值	P 值
模型	320.94	7	45.85	210.16	0.000 5
A	143.35	1	143.35	657.09	0.000 1
B	23.53	1	23.53	107.86	0.001 9
AB	0.56	1	0.56	2.54	0.209 0
A^2	248.70	1	248.70	1 140.01	<0.000 1
B^2	6.38	1	6.38	29.25	0.012 4
A^2B	0.30	1	0.30	1.39	0.323 1
AB^2	133.39	1	133.39	611.46	0.000 1
A^3	0	0	0		
B^3	0	0	0		
纯误差	0.65	3	0.22		
总离差	321.59	10			

由图 6 可知,储气量占孔隙体积百分比的模型预测结果与实验结果吻合度较高。由图 7 可知,压力对储气量的影响比注气速度小,表明储气量主要受注气速度的影响,这与方差分析结果相符。

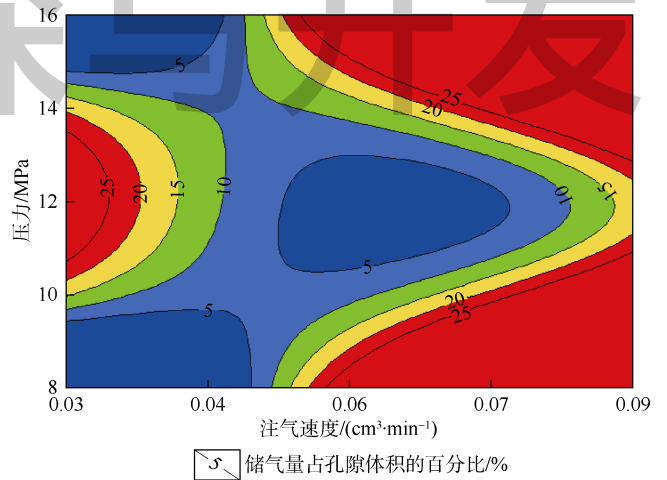


图7 不同注气速度、不同压力下储气量占孔隙体积百分比的等值线图

通过方差分析得出了获得最大储气量的最佳条件,即注气速度 0.07 cm³/min、压力 14.354 MPa。在最佳条件下进行实验,储气量占孔隙体积百分比的实验值为 21.32%,模型预测值为 27.66%,两者吻合较好。

2.4 储气时间的影响

为了研究在最佳条件下(注气速度 0.07 cm³/min、压力 14.354 MPa)储气时间对储气过程的影响,进行了储气时间分别为 1 d 和 60 d 的两个实验。在现场实际操作中,储气过程气水间相互作用达 6 个月^[21],但由于实验研究的局限性,储气时间缩短。在最佳条件下将天然气注入岩心,测得储气量占孔隙体积的百分比为 18.93%,残余气饱和度约为 13.07%,表明储气时间对储气过程有显著影响。只有大约 6% 的天然气可以被采出,这是天然气与多孔介质内水接触的结果。在含水层储气库中,储存的天然气因比水轻而更容易流动,这种流动发生在非均质多孔介质中,使得气和水不会正常分离。前人的研究也指出含水层储气库的采

收率低^[22]。这在选择储气库时需要考虑。

为了研究岩石和流体之间的相互作用，对岩心和流体进行了 CT 扫描及原子吸收光谱和气相色谱分析。图 8 为 60 d 后岩心入口、中部和出口的截面 CT 扫描图。可以看出，在较高的注气速度下，岩心的入口和出口之间的压差增加，可以克服较小孔隙中的毛细管力，使得注气速度较高时气体饱和度较高。随着岩心长度的增加，压力下降，气体饱和度降低。

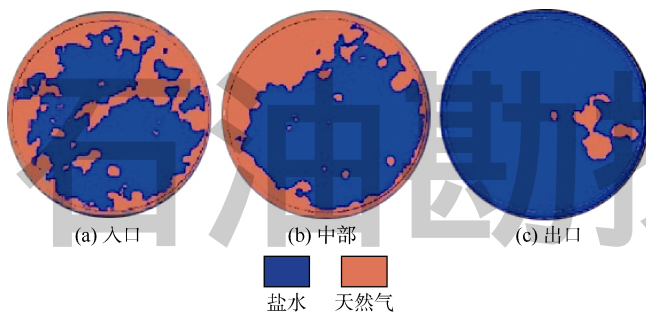


图 8 岩心不同部位截面 CT 扫描图

为了研究储气过程对盐水的影响，使用 Shimadzu aa-670 装置进行了原子吸收光谱分析。由表 4 可知，产出的盐水中，所有离子的浓度都增加，因此产出水的矿化度比注入水更高。气体注入过程中水分的蒸发可能导致盐溶解和析出过程中的过饱和^[23]。注气/生产井的干燥效应也很常见，会引起水中盐的析出，降低岩石渗透性和井的注入能力^[24]。

表 4 注入和产出水中的离子浓度

离子	注入水中的离子浓度/ ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)	产出水中的离子浓度/ ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)	变化率/%
Ca^{2+}	45 240	49 390	9.17
Na^+	30 270	38 413	26.90
Mg^{2+}	1 580	1 795	13.61
K^+	641	710	10.76

为了研究气体组分的变化，收集 1 d 和 60 d 后的产出气进行气相色谱分析。注入气主要成分是甲烷，还有少量二氧化碳。甲烷不溶于水，而二氧化碳容易溶于水并与水相互作用。由表 5 可知，二氧化碳的溶

表 5 气相色谱分析结果

组分	注入气中 组分含量/%	1 d 后产出气中 组分含量/%	60 d 后产出气中 组分含量/%
甲烷	98.98	99.06	99.85
二氧化碳	1.02	0.94	0.15

解导致产出气中甲烷浓度增加，且这种影响随着时间的延长而增强。

在含水层储气库实际运行中，应该重视含水层的岩石物理性质。储集层裂缝的存在将影响气体和盐水的迁移。还应考虑储集层压力限制和盖层破坏强度。实际运行中，储气时间较长，可能会发生更多气-水-岩相互作用，但由于天然气不参与显著的化学反应，气-水-岩相互作用不像二氧化碳储存过程那样大。

3 结论

选择注气速度和压力作为控制含水层储气库中天然气储气量的两个主要参数进行研究。较高的注气速度和压力有利于岩石内部储气能力的增强，注气速度比压力对储气量的影响更大。两个月后储存天然气的低采收率显示了长期储存后的滞留效应。原子吸收光谱分析表明，在将天然气注入盐水饱和岩心的过程中存在干燥效应，在长期储气过程中应考虑岩石-流体相互作用。气相色谱分析表明，在岩心中储存后，天然气中二氧化碳浓度降低，甲烷浓度增加。选择含水层作为储气库和储气库运行过程中，应考虑储集层的岩石物理性质。

致谢：本文研究工作得到了伊朗天然气储存公司（Natural Gas Storage Company）的资助，对该公司给予的支持和鼓励表示感谢。

参考文献：

- [1] AMINIAN K, MOHAGHEGH S D. Natural gas storage engineering[R]. Morgantown: West Virginia University, 2009.
- [2] KATZ D L V, LEE R L. Natural gas engineering: Production and storage[M]. New York: McGraw-Hill, 1990.
- [3] ŚLIZOWSKI J, LANKOF L, URBANČZYK K, et al. Potential capacity of gas storage caverns in rock salt bedded deposits in Poland[J]. Journal of Natural Gas Science & Engineering, 2017, 43: 167-178.
- [4] CHOI J W, GERMANOVICH L N, MURDOCH L C, et al. Pressure transients to characterize cavities dissolved for natural gas storage[J]. Journal of Natural Gas Science and Engineering, 2016, 33: 611-623.
- [5] LIU W, CHEN J, JIANG D, et al. Tightness and suitability evaluation of abandoned salt caverns served as hydrocarbon energies storage under adverse geological conditions (AGC)[J]. Applied Energy, 2016, 178: 703-720.
- [6] JUEZ-LARRÉ J, REMMELTS G, BREUNESE J N, et al. Using underground gas storage to replace the swing capacity of the giant natural gas field of Groningen in the Netherlands: A reservoir performance feasibility study[J]. Journal of Petroleum Science &

- Engineering, 2016, 145: 34-53.
- [7] LI C, WANG J, XU H, et al. Study on fluids flow characteristics of water-gas mutual flooding in sandstone underground gas storage with edge water[R]. IPTC 17093-MS, 2013.
- [8] SADIRLI P. Simulation and investigation of effective parameters in aquifer gas storage[D]. Tehran, Iran: Tarbiat Modares University, 2015.
- [9] SOHRABI M, TEHRANI D H, DANESH A, et al. Visualization of oil recovery by water-alternating-gas injection using high-pressure micromodels[J]. SPE Journal, 2004, 9(3): 290-301.
- [10] PINI R, KREVER S, BENSON S. Capillary pressure and heterogeneity for the CO₂/water system in sandstone rocks[C]//2011 AGU Fall Meeting Abstracts. San Francisco, CA, USA: AGU, 2011.
- [11] LORENZ S, MÜLLER W. Modelling of halite formation in natural gas storage aquifers[R]. Berkeley: TOUGH Symposium, 2003.
- [12] GOLGHANDDASHTI H, SAADAT M, ABBASI S, et al. Experimental investigation of salt precipitation during gas injection into a depleted gas reservoir[C]//Proceedings of 2012 International Petroleum Technology Conference. Bangkok, Thailand: IPTC, 2012: 246-250.
- [13] TORABI F, ASGHARI K. Effect of operating pressure, matrix permeability and connate water saturation on performance of CO₂ huff-and-puff process in matrix-fracture experimental model[J]. Fuel, 2010, 89(10): 2985-2990.
- [14] OH J, KIM K Y, HAN W S, et al. Experimental and numerical study on supercritical CO₂/brine transport in a fractured rock: Implications of mass transfer, capillary pressure and storage capacity[J]. Advances in Water Resources, 2013, 62(12): 442-453.
- [15] PEYSSON Y, ANDRÉ L, AZAROUAL M. Well injectivity during CO₂ storage operations in deep saline aquifers: Part 1: Experimental investigation of drying effects, salt precipitation and capillary forces[J]. International Journal of Greenhouse Gas Control, 2014, 22(3): 291-300.
- [16] ANTONY J. Design of experiments for engineers and scientists[M]. Amsterdam: Elsevier, 2014.
- [17] LAZIC Z R. Design of experiments in chemical engineering: A practical guide[M]. New Jersey: John Wiley & Sons, 2006.
- [18] VILARRASA V, CARRERA J. Geologic carbon storage is unlikely to trigger large earthquakes and reactivate faults through which CO₂ could leak[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2015, 112(19): 5938-5943.
- [19] RASTEGAR S O, MOUSAVI S M, SHOJAOSADATI S A. Cr and Ni recovery during bioleaching of dewatered metal-plating sludge using *Acidithiobacillus ferrooxidans*[J]. Bioresource Technology, 2014, 167: 61-68.
- [20] HASHEMI M, MOUSAVI S M, RAZAVI S H, et al. Comparison of submerged and solid state fermentation systems effects on the catalytic activity of *Bacillus*, sp. KR-8104 α -amylase at different pH and temperatures[J]. Industrial Crops & Products, 2013, 43(44): 661-667.
- [21] WANG X, ECONOMIDES M. Advanced natural gas engineering[M]. Amsterdam: Elsevier, 2013.
- [22] SUNJAY S, SINGH V. Geological storage: Underground gas storage[R]. Hyderabad, India: 8th Biennial International Conference & Exposition on Petroleum Geophysics, 2010.
- [23] OTT H, ROELS S M, KLOE K D. Salt precipitation due to supercritical gas injection: I. Capillary-driven flow in unimodal sandstone[J]. International Journal of Greenhouse Gas Control, 2015, 43(31): 247-255.
- [24] GRATTONI C, GUISE P, PHILLIPS G, et al. Evaluation of water evaporation and salt precipitation due to flow in gas reservoirs[R]. Noordwijk, The Netherlands: International Symposium of the Society of Core Analysts, 2009.

第一作者简介: TOOSEH Esmael Kazemi (1990-), 男, 伊朗人, 硕士, 伊朗国家石油公司工程师, 主要从事提高采收率、油藏模拟等方面的研究工作。地址: Faculty of Chemical Engineering, Tarbiat Modares University, Tehran 114-14115, Iran. E-mail: ektooseh@nigc.ir

联系作者简介: JAFARI Arezou, 女, 伊朗人, 博士, 伊朗塔比阿特莫达勒斯大学助理教授, 主要从事多孔介质中流体流动、流体流动及化学过程的 CFD 模拟、提高采收率和油藏模拟等方面的研究工作。地址: Faculty of Chemical Engineering, Tarbiat Modares University, Tehran 114-14115, Iran. E-mail: ajafari@modares.ac.ir

收稿日期: 2018-02-12 修回日期: 2018-08-26

(编辑 胡苇玮)

版权所有