



## مطالعه آزمایشگاهی تأثیر تغییر ترشوندگی بر میزان ذخیره‌سازی دی‌اکسید کربن در دما و فشار بالا

حسن تنگی، ایمان جعفری، رسول پرنودوار، دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم و تحقیقات تهران

چکیده

جمع‌آوری و تزریق گازهای گلخانه‌ای در سازندهای زمین‌شناسی اعماق زمین، در سطح جهان به عنوان گزینه‌ای محتمل به منظور کاهش اثرات مخرب زیست‌محیطی ناشی از انتشار این گازها مطرح است. کنترل و نگهداری گازهای گلخانه‌ای از جمله دی‌اکسید کربن در مخازن از اهمیت خاصی برخوردار است. از جمله عوامل مؤثر بر این امر، واکنش سطحی سیال-سیال و سیال-سنگ است که از میان این عوامل خاصیت ترشوندگی از اهمیت بیشتری برخوردار است. بنابراین شناخت این عوامل در ذخیره‌سازی، کنترل و نگهداری هرچه بهتر گازهای گلخانه‌ای در ساختارهای زمین‌شناسی کمک شایانی خواهد کرد. در این تحقیق به بررسی و مطالعه آزمایشگاهی عوامل تأثیرگذار بر میزان توزیع و رفتار سیال روی نمونه مغزه‌های کربناته گرفته شده از مخزن مورد مطالعه جهت تزریق در یکی از مخازن گازی ایران می‌پردازیم که در درک دقیق و صحیح از فرآیند ذخیره‌سازی کمک شایانی خواهد کرد. در این راستا به کمک روش قطره چسبیده به اندازه‌گیری زاویه تماس بین دی‌اکسید کربن، آب سازند و سنگ مخزن در فشارهای مختلف و در دو دمای ۲۵ و ۶۰ درجه سانتی‌گراد پرداخته شد و مشاهده گردید که با افزایش فشار، زاویه تماس افزایش می‌یابد. این در حالی است که با کاهش دما، زاویه تماس افزایش خواهد یافت. افزایش زاویه تماس منجر به تغییر ترشوندگی سنگ از حالت آب‌دوست به حالت میانه می‌شود که این تغییر ترشوندگی تأثیر قابل‌ملاحظه‌ای بر میزان ذخیره‌سازی دی‌اکسید کربن خواهد داشت. داده‌های زاویه تماس اندازه‌گیری شده تحت شرایط مخزن، طراحی فرآیند ازدیاد برداشت و ذخیره‌سازی دی‌اکسید کربن را تسهیل خواهد کرد.

واژگان کلیدی: ذخیره‌سازی، ترشوندگی، زاویه تماس، فشار، دما

### مقدمه

شروط اجرای این پروژه است [۲۰۱].

به طور کلی چهار دسته مخزن برای تزریق گازهای اسیدی مدنظر هستند:

- الف) لایه‌های آب زیر زمینی شور
- ب) مخازن نفت و گاز تخلیه شده
- ج) مخازن نفت و گاز در حال تولید
- د) مخازن گاز متان زغال سنگ

با توجه به اینکه بسیاری از مخازن نفت و گاز از بالا یا پایین توسط سفره‌های آب زیرزمینی پوشانده شده‌اند و به عبارتی حضور این سفره‌ها در بسیاری از مخازن، حجم بزرگ لایه‌های آبی، انحلال زیاد گاز اسیدی در آب، در دسترس بودن و فراوانی لایه‌های آبی از مهم‌ترین مزایای این نوع از مخازن بوده و آنها را به گزینه مناسبی برای دفع و یا ذخیره گازهای اسیدی تبدیل کرده است [۳]. کنترل و نگهداری گازهای اسیدی دفع‌شده<sup>۵</sup> در مخازن از اهمیت خاصی برخوردار است. از جمله عوامل مؤثر بر این امر، واکنش سطحی

افزایش چشم‌گیر گاز دی‌اکسید کربن جو زمین در دهه‌های اخیر که ۷۵ درصد از کل گازهای گلخانه‌ای را تشکیل می‌دهد باعث بروز مشکلات زیست‌محیطی متعددی هم‌چون افزایش دمای زمین، تغییرات ناگهانی آب و هوا، خشکسالی و ... شده است. پیش‌بینی می‌شود در صورت عدم جلوگیری از انتشار این گاز، خطرات بزرگی کمره زمین را تهدید کند. پس از انعقاد پیمان کیوتو در مقر سازمان ملل در سال ۱۹۹۷، کشورهای صنعتی متعهد شدند ظرف مدت ده سال حجم انتشار گازهای گلخانه‌ای خود را ۵ درصد کاهش دهند. جمع‌آوری و تزریق گازهای گلخانه‌ای در سازندهای زمین‌شناسی اعماق زمین، در سطح جهان به عنوان گزینه‌ای محتمل به منظور کاهش اثرات مخرب زیست‌محیطی ناشی از انتشار این گازها مطرح است. با استفاده از این روش می‌توان ۲۰ تا ۴۰ درصد دی‌اکسید کربن موجود در هوا را تا سال ۲۰۵۰ کاهش داد. پس از جداسازی گازهای اسیدی، حضور یک مخزن مناسب برای ذخیره گاز<sup>۴</sup> یکی از مهم‌ترین

همکاران [۶] نشان داده شد که در نمونه مغزه گرفته شده از جنس ماسه‌سنگ، دما تأثیر چندانی بر میزان زاویه تماس ندارد. این در حالی است که با افزایش فشار، زاویه تماس نمونه ماسه‌سنگی مورد نظر افزایش می‌یابد و به تبع آن ترشوندگی نمونه ماسه‌سنگ، از حالت آب دوست<sup>۷</sup> به حالت میانه<sup>۸</sup> تغییر می‌کند. Chalbaud و همکاران [۷] به مطالعه آزمایشگاهی ترشوندگی به کمک میکرومدل‌های شیشه‌ای پرداخته و مشاهده کردند که میکرومدل‌های آب‌دوست با افزایش فشار، خاصیت آب‌دوست بودن خود را حفظ می‌کنند. این در حالی است که در میکرومدل‌های شیشه‌ای حالت میانه و نفت‌دوست در فشار زیاد ترشوندگی تغییر می‌کند. Bennion و همکاران [۸] با انجام بررسی‌های آزمایشگاهی روی نمونه مغزه‌های گرفته شده از سازند ماسه‌ای در غرب کانادا نشان دادند که افزایش فشار در سنگ‌ها با ترشوندگی آب‌دوست، منجر به تغییر در ترشوندگی نمونه می‌شود. آنها در ادامه نشان دادند که این تغییر ترشوندگی بر میزان ذخیره‌سازی گازهای اسیدی تأثیر به‌سزایی دارد. در این مطالعه با انجام آزمایش‌های مختلف، اطلاعات آزمایشگاهی بیشتری جهت بررسی عوامل تأثیرگذار بر ترشوندگی سنگ‌های کربناته و تغییر ترشوندگی به سمت حالت میانه در دما و فشار مختلف ارائه شده است.

### ۱-۱-۱-۱- شرح آزمایش

#### ۱-۱-۱-۱- مواد اولیه

#### ۱-۱-۱-۱- آب مخزن

آب شور مخزن مورد استفاده در این آزمایش از میدانی واقع در جنوب غربی ایران در منطقه عسلویه گرفته شده است. چگالی آب مخزن در دمای ۲۵ °C، ۱/۴۷ g/cm<sup>3</sup> به دست آمد.

جدول ۱- مشخصات فیزیکی و شیمیایی آب مخزن را نشان می‌دهد.

#### ۱-۱-۲- محیط متخلخل

این آزمایش بر روی نمونه مغزه‌های گرفته شده از میدانی در منطقه عسلویه انجام گردیده است. سنگ مخزن این میدان مربوط به دو سازند دالان بالایی (پرمین فوقانی) و سازند کنگان (تریاس زیرین) می‌باشد که از توالی‌های کربناته-تبخیری تشکیل یافته است. نمونه مغزه‌های گرفته شده را به اسلایدهایی در ابعاد  $۲۵ \times ۳۶ \times ۱/۶$  میلی‌متر برش داده و سطح اسلاید را از یک سو تا ۰/۲۵ میکرومتر صیقل می‌دهیم تا اثرات ناهمگونی را در تعیین زاویه تماس از بین برود. مشخصات و محل دو نمونه مورد استفاده در این آزمایش در جدول ۲ آورده شده است.

سیال-سیال و سیال-سنگ است. آگاهی از این پارامترها (که در صدر آن می‌توان به خاصیت ترشوندگی اشاره کرد)، می‌تواند نقش مؤثری در ذخیره‌سازی، کنترل و نگهداری هر چه بهتر گازهای اسیدی در ساختارهای زمین‌شناسی ایفا نماید. تعیین ترشوندگی دقیق مخزن بسیار مشکل است. اگر ترشوندگی به‌طور دقیق و مناسب تعیین شود می‌تواند در اتخاذ روش‌های مناسب حفاری، تولید و مدیریت صیانت از مخازن و ... بسیار راهگشا باشد [۴]. در بسیاری از محاسبات دانستن ترشوندگی، حائز اهمیت فراوان است. روش‌های عملی متنوعی برای تعیین نوع و میزان ترشوندگی سنگ مخزن وجود دارد که این روش‌ها به‌طور کلی به دو دسته کمی و کیفی تقسیم می‌شوند. در روش‌های کیفی عددی برای ترشوندگی سنگ مخزن به دست نمی‌آید و تنها می‌توان قضاوت کرد که سنگ مورد آزمایش، آب‌دوست، نفت‌دوست یا خنثی است. این در حالی است که در روش‌های کمی با اندازه‌گیری‌های خاصی، اعدادی برای ترشوندگی تعیین می‌شود و به کمک مقیاس‌هایی عددی این اعداد با هم مقایسه می‌گردند. از جمله روش‌های اندازه‌گیری کمی می‌توان به روش زاویه تماس اشاره کرد [۵]. در این تحقیق با به کارگیری روش زاویه تماس<sup>۶</sup> به ارائه نوع ترشوندگی و بررسی تغییر آن خواهیم پرداخت. در این روش یک قطره از سیال (در اینجا آب) با سطح جامد سنگ (سطح صاف و صیقلی سنگ مخزن) تماس داده شده و اطراف آن سیال دیگری (مانند دی‌اکسید کربن) قرار داده می‌شود. پس از به تعادل رسیدن سیالات، زاویه تماس بین قطره سیال و سطح سنگ اندازه‌گیری می‌شود. اندازه زاویه نشان‌دهنده مستقیم میزان ترشوندگی سنگ است. این روش معمولاً جهت بررسی امکان تغییر ترشوندگی نفت و اثر عوامل مختلف مانند دما و فشار بر آن استفاده می‌شود. در بررسی‌های آزمایشگاهی انجام شده توسط Daoyong و

مشخصات فیزیکی و شیمیایی آب مخزن	
Sodium, mg/L	۲۰۵۰۰
Calcium, mg/L	۱۵۵۰
Potassium, mg/L	۵۴۵
Iron, mg/L	۰/۲۳
Barium, mg/L	۲/۵۵
Manganese, mg/L	< ۰/۱
Chloride, mg/L	۳۳۳۴۵
Sulfate, mg/L	۶۱۴۵
PH @ ۲۵ °C	۷/۴
Density @ ۲۵ °C	۱/۰۴۴

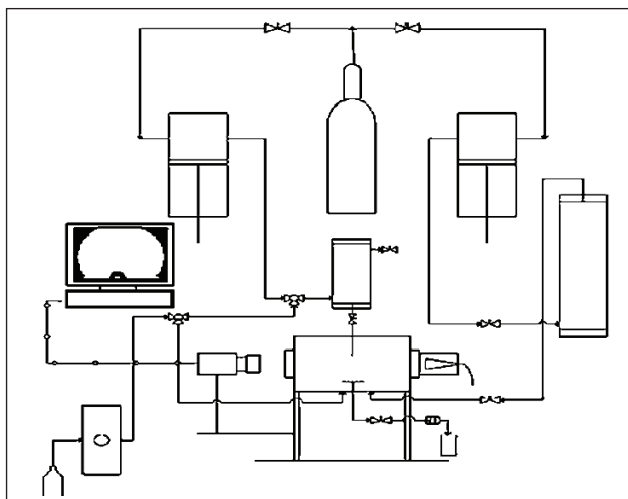


### ۱-۳- گاز

در محفظه فشار جامی افتد. به منظور افقی نگه داشتن اسلاید سنگ، شیاری افقی به ابعاد  $30 \times 2$  میلی متر در هر دو سوی آن و در وسط نگهدارنده به کار رفته است. این مجموعه هم چنین شامل پنل و سیستم کنترل سیال است. پنل کنترل دارای هشت شیر سوزنی جهت کنترل نرخ و مسیر جریان می باشد. سیستم کنترل سیال نیز دارای سه سینندر است که به ترتیب به منظور تنظیم فشار داخل محفظه به کمک دی اکسید کربن و تأمین آب مخزن استفاده می شوند. در مجموع شش ورودی در اطراف محفظه فشار استوانه ای قرار دارد. در این مطالعه ورودی بالا جهت ورود قطره آب به داخل محفظه فشار است، در حالی که خروجی پایین به عنوان خروجی تخلیه به کار گرفته می شود. در وسط نیز چهار ورودی جهت اندازه گیری فشار به کمک فشارسنج دیجیتال (DTG-6000, 3D-Instruments)، اندازه گیری دما به کمک دماسنج (JMQSS-125U-6, Omega)، نمایشگر دما (MDSS 41-T-A, Omega)، نصب شیرهای انفجاری (P-7019, Oseco) و تزریق دی اکسید کربن روی اطراف محفظه قرار گرفته است.

### ۱-۴- روش انجام آزمایش ها

اندازه گیری زاویه تماس به وسیله روش قطره چسبیده انجام



شکل ۱ | سیستم اندازه گیری زاویه تماس

درجه خلوص دی اکسید کربن (Farafan, IRAN) و نیتروژن (Farafan, IRAN) مورد استفاده در آزمایش به ترتیب برابر با  $99/99$  و  $99/9995$  درصد می باشد.

### ۱-۲- آنالیز و اندازه گیری ها

#### ۱-۲-۱- آماده سازی سطوح کربناته آب تر

تیغه های مورد نیاز برای انجام آزمایش های زاویه تماس در ابعاد  $36 \times 25 \times 1/6$  میلی متر از مغزه های کربناته برش داده شده اند. پس از برش کلیه نمونه ها، اسلایدها توسط تولوئن و با استفاده از دستگاه Soxhlet شسته شده و در اجاق خشک شده اند.

#### ۱-۳- شرح دستگاه

در این مطالعه به کمک روش آنالیز شکل متقارن قطره چسبیده<sup>۱</sup>، زاویه تماس تعادلی و دینامیکی سنگ مخزن-آب سازند-دی اکسید کربن در دما و فشار بالا اندازه گیری می شود. شماتیک کلی دستگاه مورد استفاده در این مطالعه برای حالت قطره چسبیده در شکل ۱- نشان داده شده است. اجزای اصلی سیستم شامل: یک پنجره است که جهت مشاهده بر روی محفظه (IFT-10-Temco) با حجم  $41/5 \text{ cm}^3$  نصب شده است. حداکثر فشار و دمای محفظه به ترتیب  $69 \text{ MPa}$  و  $177 \text{ }^\circ\text{C}$  می باشد. با عایق بندی محفظه فشار توسط نوار عایق بندی (HT95504\_1, Electothermal) که به یک کنترل کننده دمایی متصل است، دما در طول آزمایش ثابت نگه داشته می شود. حداکثر میزان عدم قطعیت اندازه گیری فشار و دما به ترتیب برابر  $0/32 \text{ MPa}$  و  $0/2 \text{ }^\circ\text{C}$  است.

در سیستم ADSA، پنجره محفظه فشار بالا، بین یک منبع نورانی و یک دوربین میکروسکوپی MZ6 قرار دارد (Leica Germany). یک کامپیوتر رومیزی برای جمع آوری و به دست آوردن عکس های دیجیتال از قطره چسبیده و پس از آن آنالیز تصویر قطره و محاسبات آن استفاده می شود. نگهدارنده اسلاید سنگ دارای یک طراحی ویژه و از جنس Stainless Steel ساخته شده است. از آنجا که قطر خارجی نگهدارنده اسلاید سنگ نسبت به قطر داخلی محفظه فشار (IFT-10) کمتر است، نگهدارنده به طور کامل

### ۲ | خصوصیات نمونه های مورد استفاده

Formation	Lithology	Depth ( m )	% Micro Pores (< 1 $\mu\text{m}$ )	% Meso Pores	% Macro Pores (< 1 $\mu\text{m}$ )	Mean Pore Throat Size ( $\mu\text{m}$ )	Porosity(%)
Dalan	Carbonate	1342/4	27/6	7/6	64/8	10/76	19/5
Kangan	Carbonate	1952/7	33/2	18/8	48/0	4/32	11/4

این روش که تنها نیازمند دو داده ورودی شتاب ثقلی و اختلاف چگالی دو فاز می باشد اطلاعاتی مثل تنش میان رویه، زاویه و شعاع تماس را به دست می دهد. عمل بالا را در دو دمای ۲۵ و ۶۰ درجه سانتی گراد و در فشارهای ۰/۲۵-۳۲۰۰ Psia انجام می دهیم. شکل- ۲ تصویر قطره آب را در حضور گاز دی اکسید کربن نشان می دهد.

## ۲- بررسی نتایج

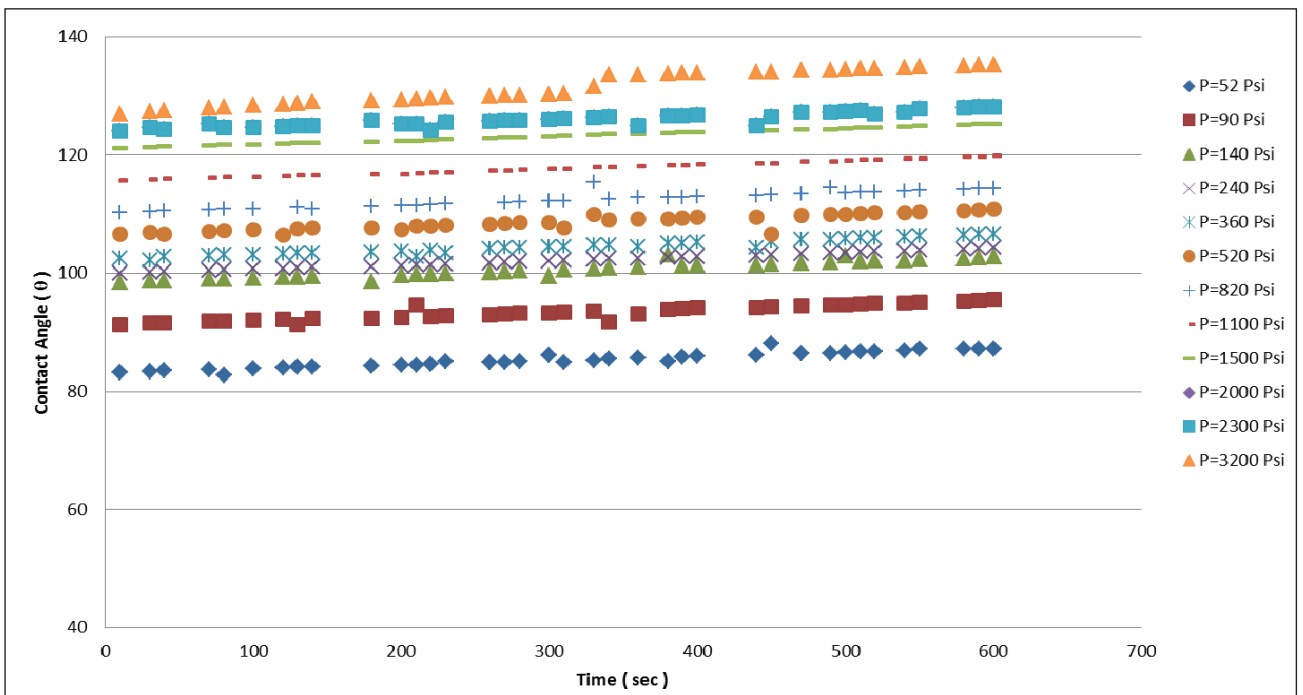
### ۲-۱- تأثیر فشار بر ترشوندگی

شکل-۳ زاویه تماس اندازه گیری شده در فشارهای مختلف نسبت به زمان را نشان می دهد. همان طور که مشاهده می شود در دمای ثابت با افزایش فشار زاویه تماس آب در حضور دی اکسید کربن افزایش می یابد. در ادامه می بینیم که با افزایش فشار، زاویه تماس از  $\theta = 84^\circ$  به  $\theta = 126^\circ$  تغییر می کند. این بدان معنی است که با افزایش فشار، ترشوندگی از حالت آب دوستی به حالت میانه تغییر پیدا خواهد کرد. در بیان علت موضوع می توان چنین بیان کرد که با افزایش فشار میزان کشش سطحی بین دی اکسید کربن و آب کاهش می یابد. این بدان معنی است که میزان انحلال گاز در آب و خلل و فرج افزایش می یابد. پس از این با کاهش میزان کشش سطحی در اثر افزایش فشار و به تبع آن افزایش انحلال گاز در آب شاهد تغییر ترشوندگی محیط از آب دوست بودن به حالت ترشوندگی میانه هستیم. این تغییر ترشوندگی تأثیر به سزایی در میزان ذخیره سازی دی اکسید کربن و فرآیندهای ازدیاد برداشت خواهد داشت.

می شود. در این روش به کمک دستگاه مربوطه فاز آب به درون سلول حاوی فاز گازی دی اکسید کربن تزریق شده و قطره آب رها می شود. سیستم دوربین و میکروسکوپ موجود، تصویر قطره آب چسبیده روی سطح سنگ را ثبت کرده و به نرم افزار سیستم ارسال می کند. این سیستم با استفاده از تکنیک آنالیز شکل متقارن قطره، زاویه تماس قطره آب چسبیده روی سطح سنگ احاطه شده توسط فاز گاز دی اکسید کربن را محاسبه می کند. اساس این روش پیش بینی تئوری نمودار لاپلاسی قطره و مقایسه آن با شکل واقعی قطره است.



شکل ۲ | تصویر قطره آب در حضور گاز دی اکسید کربن



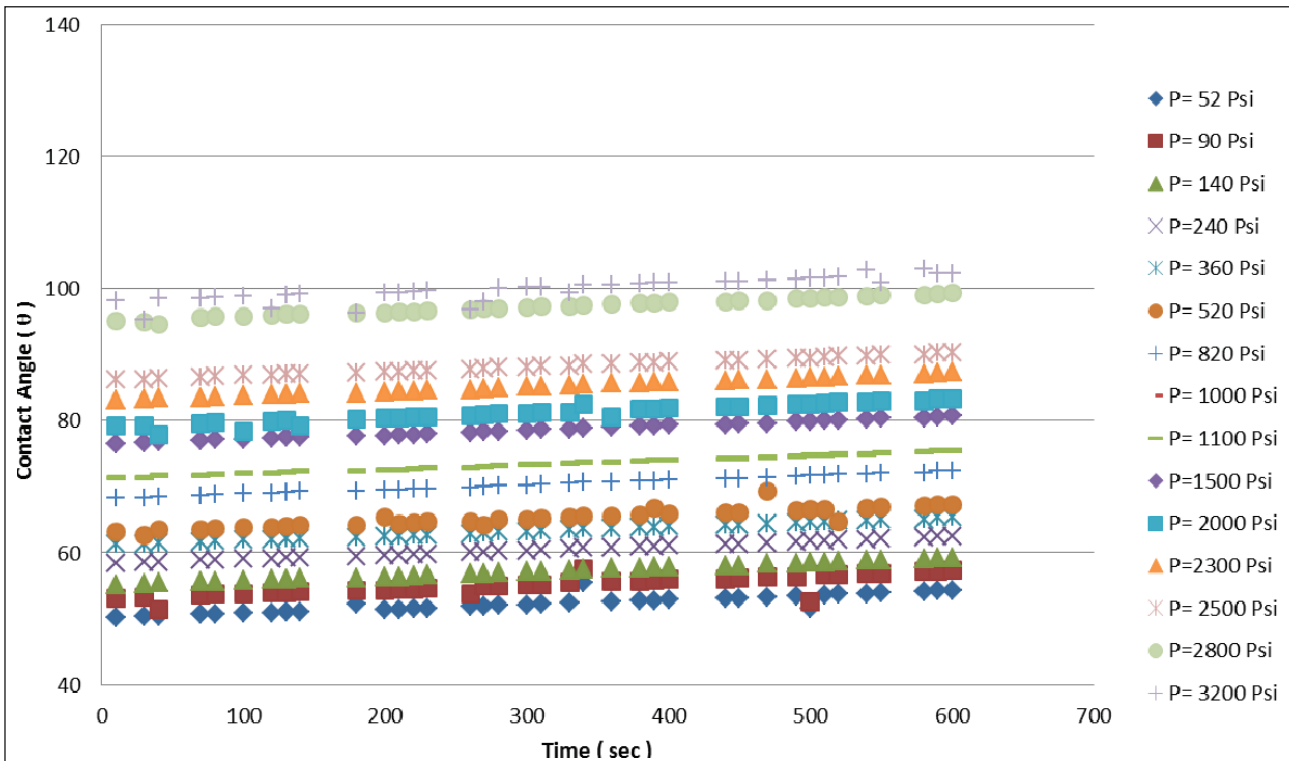
شکل ۳ | تغییرات زاویه تماس نسبت به زمان در دمای  $T = 25^\circ C$  و فشارهای مختلف



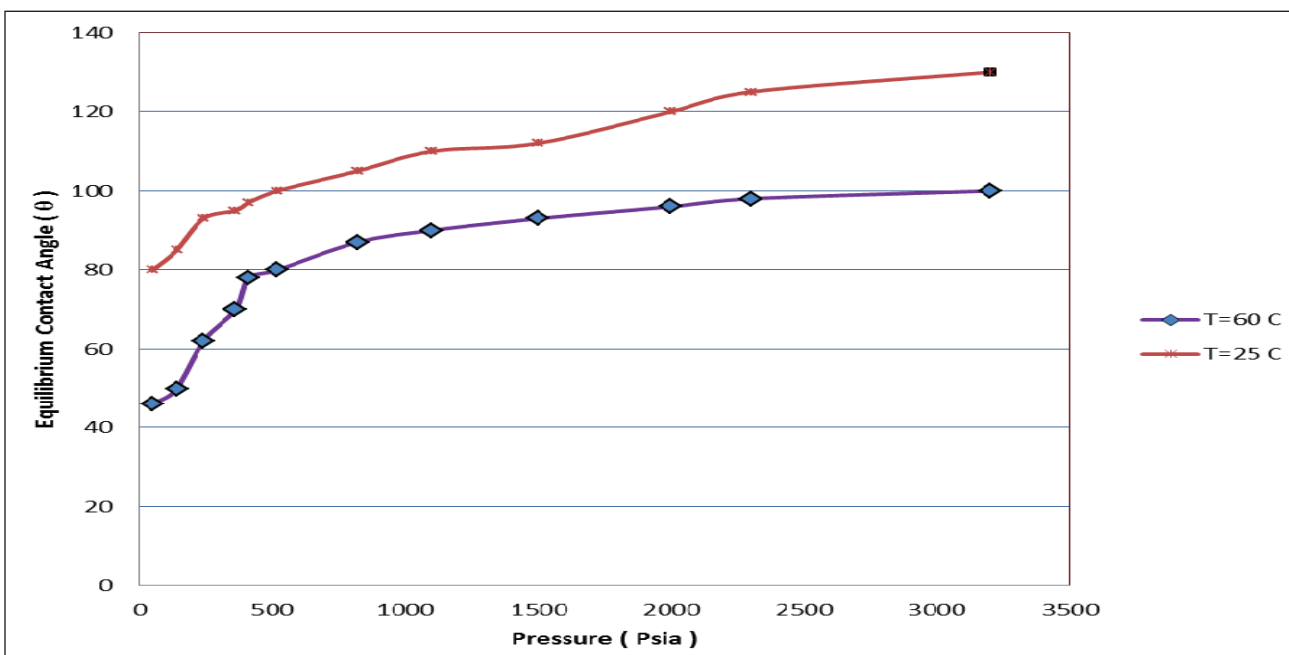
## ۲-۲- تأثیر دما بر میزان ترشوندگی

سانتی گراد نشان می دهد. با مقایسه شکل های ۳-۴ مشاهده می شود

شکل ۴- تغییرات زاویه تماس نسبت به زمان را در دمای ۶۰ درجه که با افزایش دما، زاویه تماس کاهش یافته است. در واقع باید گفت



شکل ۴ | تغییرات زاویه تماس نسبت به زمان در دمای ۶۰ °C و فشارهای مختلف



شکل ۵ | تغییرات تعادلی زاویه تماس نسبت به فشار در T = ۶۰ °C و T = ۲۵ °C

که زاویه تماس تابعی از فشار است. افزایش زاویه تماس که با کاهش کشش سطحی همراه است، سبب تغییر ترشوندگی از حالت آب دوست به حالت میانه شد.

افزایش دما سبب افزایش کشش سطحی و به تبع آن کاهش انحلال پذیری گاز دی اکسید کربن شد. کاهش انحلال پذیری دی اکسید کربن به معنی کاهش تمایل سنگ به جذب گاز و تمایل آن به جذب آب است. به عبارت دیگر با افزایش دما، ترشوندگی سنگ کاهش می یابد.

افزایش زاویه تماس و تغییر ترشوندگی سنگ از حالت به شدت آب دوست به حالت میانه، بازده ذخیره سازی دی اکسید کربن را به میزان قابل ملاحظه ای افزایش داد.

در دماهای بالا، افزایش فشار نه تنها تأثیری بر ترشوندگی سنگ مخزن نخواهد داشت بلکه زاویه تماس را کاهش داده و به تبع آن میزان ذخیره سازی دی اکسید کربن کاهش می یابد.

که با افزایش دما کشش سطحی افزایش می یابد که این افزایش، سبب کاهش میزان انحلال گاز در سنگ مخزن خواهد شد. کاهش انحلال گاز بیانگر تمایل کمتر سنگ به جذب دی اکسید کربن است. به بیان دیگر با افزایش دما شاهد کاهش زاویه تماس هستیم ولی ترشوندگی تغییر نمی کند. به منظور درک بهتر تأثیر دما بر میزان ترشوندگی، زاویه تماس تعادلی را نسبت به زمان به دست آوردیم. در نقاط پایانی زاویه تماس دینامیکی شاهد ثابت شدن زاویه تماس هستیم که این مقدار زاویه تماس تعادلی نام دارد. همان گونه که در شکل ۵- مشاهده می شود با افزایش دما زاویه تماس کاهش می یابد که این امر موجب کاهش تغییر ترشوندگی سنگ می شود. به عبارت دیگر در دماهای بالاتر با افزایش فشار شاهد تغییر ترشوندگی قابل توجهی نخواهیم بود.

### نتیجه گیری

با افزایش فشار زاویه تماس ( $\theta$ ) افزایش می یابد. در واقع می توان گفت

### پانویس ها

1.reservoir.oil3@yahoo.com

2.jafari3760@gmail.com

3.rasool\_parandvar@yahoo.com

4.geo-sequestration

5.acid gas disposal

6. contact angle

7. water wet

8. intermediat wet

9. oven

10. Axisymmetric Drop Shape analysis (ADSA)

### منابع

- [1] International Energy Agency (2004), Prospects for CO2 Capture and Storage, OECD/IEA, Paris.
- [2] Orr Jr F.M., (2004), "Storage of Carbon Dioxide in Geologic Formations", SPE 88842, Distinguished Author Series, J. Petrol. Technol. September, 90-97.
- [3] Bachu, S.,(2002) , "Sequestration of CO2 in Geological Media: Criteria and Approach for Site Selection in Response to Climate Change", Energy ConVers. Manage., 953-970.
- [4] Bachu, S.,( 2003), "Screening and ranking of sedimentary basins for sequestration of CO2 in geological media in response to climate change, Environmental Geology", 44, 277-289.
- [5] Benson, S.M., Cook, P.J.,( 2005), "Underground geological storage of carbon dioxide" In: Metz, B., et al. (Eds.), Intergovernmental Panel on Climate Change Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage, Cambridge University Press, pp. 195-276 (Chapter 5).
- [6] Daoyong Yang, Y.; Gu.,(2008), "Wettability determination of the reservoir brine- reservoir rocks-system with dissolution of CO2 at high pressure and elevated temperatures" Energy & Fuels.,504-509.
- [7] Chalbaud C., Robin M., Lombard J., M., Egermann P., Bertin H., (2009), "Interfacial Tension Measurements and Wettability Evaluation for Geological CO2 Storage", Adv. Water Resour. 32, 1, 1-109
- [8] D. Bennion.,(2006) , "supercritical CO2 and H2s - brine drainage and imbibition relative permeability relationships for intergranular sandstone and carbonate formations", Energy ConVers. Manage., 953-970