文章编号: 0253-2778(2017) 2-0142-13

非常规油气开采中的微纳米力学问题研究进展

范竞存 余 吴 陈 杰 李向哲 汪奉超 吴恒安

(中国科学技术大学近代力学系,中国科学院材料力学行为和设计重点实验室,安徽合肥 230027)

摘要:非常规油气资源储量丰富,开发前景广阔,其开采过程涉及一系列微纳米力学问题.聚合物、 纳米流体驱油技术能够提高石油采收率,它们的微观驱替机理引起了人们的广泛关注.页岩气以吸 附和游离态贮存于页岩微纳米孔隙中,在注入气的驱替下,流入宏观裂缝.本文结合课题组相关工 作 综述了目前非常规油气开采中的微纳米力学问题研究进展.重点讨论了强化采油技术中粘弹性 聚合物溶液和纳米流体的微观驱替机理和页岩气的吸附、注气驱替以及微流动机制,总结并展望了 下一步研究工作的重点和方向.

关键词:非常规油气;微纳米力学;聚合物驱油;纳米流体驱油;吸附;驱替;微流动 中图分类号:TE31;TE37;TE357.4 文献标识码:A doi:10.3969/j.issn.0253-2778.2017.02.005

引用格式: 范竞存 余昊 陈杰 等. 非常规油气开采中的微纳米力学问题研究进展 [J]. 中国科学技术大学学报, 2017 ₄7(2): 142–154.

FAN Jingcun , YU Hao , CHEN Jie , et al. Research progress of micro/nano mechanical problems in unconventional oil and gas exploitation [J]. Journal of University of Science and Technology of China , 2017 , 47(2):142–154.

Research progress of micro/nano mechanical problems in unconventional oil and gas exploitation

FAN Jingcun , YU Hao , CHEN Jie , LI Xiangzhe , WANG Fengchao , WU Hengan

(Department of Modern Mechanics , CAS Key Laboratory of Mechanical Behavior and Design of Materials ,

University of Science and Technology of China , Hefei 230027 , China)

Abstract: Unconventional oil and gas resources have a promising development prospect due to their abundant reserves. The exploitation of them involves a series of micro/nano mechanical problems. To enhance the oil recovery , polymer flooding and nanofluid flooding are employed. The microscopic displacement mechanisms of these two methods have attracted wide attention. Shale gas , which is stored in adsorbed state and bulk state in the micro/ nano pores of shale , flows into the fractures with the displacement of injection gases. Recent research progress of

通讯作者: 吴恒安,中国科学技术大学近代力学系教授,工程科学学院副院长,中国科学院材料力学行为和设计重点 实验室主任.1997 年获得中国科学技术大学理论与应用力学学士学位,2002 年获得固体力学博士学位, 同年获中国科学院院长奖.2002~2004 年在新加坡国立大学机械工程系任博士后研究员,2004 年任中国 科学技术大学工程科学学院近代力学系副教授,2010 年晋升教授。曾获得 2013 年度安徽省杰出青年科 学基金,2014 年度中国科学技术大学杰出研究校长奖,2015 年度国家杰出青年科学基金,入选,2015 年度科 技部创新人才推进计划中青年科技创新领军人才.研究领域包括微纳米尺度材料力学行为和设计、微纳米 尺度固液界面和流动、计算力学方法及其应用.已在 Science、Nature、Journal of the Mechanics and Physics of Solids 等学术期刊发表被 SCI 收录论文 90 余篇,SCI 他引 1900 余次.E-mail: wuha@ustc.edu.cn



收稿日期: 2016-10-07; 修回日期: 2016-11-10

基金项目: 国家自然科学基金(11525211,11472263,11572307),中国科学院战略性先导科技专项 B 类(XDB22040402),中石油战略合作 项目(2015A-4812)资助

作者简介: 范竞存 ,男 ,1992 年生 硕士生. 研究方向: 非常规石油开采中的微观力学机理。E-mail: fanjc@ mail.ustc.edu.cn

特

约

评

述

micro/nano mechanical problems in unconventional oil and gas exploitation based on our previous study was reviewed. The microscopic displacement mechanisms of polymer and nanofluid flooding were discussed. Then , the adsorption of shale gas , displacement of injection gases and the mechanisms of micro flow were reviewed. Finally , the direction and key point of future work were discussed.

Key words: unconventional oil and gas; micro/nano mechanics; polymer flooding; nanofluid flooding; adsorption; displacement; micro flow

0 引言

随着世界经济的发展,各国对石油天然气资源 的需求日益增加.然而,常规油气资源增产难度越来 越大.为满足巨大的能源需求,非常规油气资源逐渐 成为人们关注的焦点.非常规油气资源并没有明确 的定义,一般指用传统技术无法获得的、与常规油气 资源储存地点、开采方法等不同的油气资源^[1],可 分为非常规石油资源和非常规天然气资源.前者主 要指重油、页岩油、油砂等,后者主要指页岩气、煤层 气、致密气等.非常规油气资源储量大,但储层地质 结构复杂,传统开采技术并不能完全适用^[2].非常规 油气开采涉及一系列微纳米力学问题,这些问题的 研究对改进开采技术,进一步开发非常规油气资源 具有重要的意义.

石油开采一般分为三个阶段:一次采油、二次采 油和三次采油(也称为强化采油).其中,一次采油仅 利用油藏的天然能量,石油采收率很低;二次采油通 过注水、注气的方法维持地层能量,采收率虽较一次 采油有提高,但仍处于较低水平,油藏中还存在大量 原油;三次采油,又称为强化采油(enhanced oil recovery EOR),是在二次采油后,向油藏中注入特 殊的流体,通过物理、化学、热量、生物等方法改变油 藏岩石及流体性质,从而进一步提高采收率的方法. 许多油田没有经过一次、二次采油,直接进行三次采 油,因此,强化采油(EOR)的概念更具有普遍性.目 前世界上采出的大部分石油都来自成熟油田,新发 现油藏所占比例逐渐降低,仅依靠一次、二次采油难 以满足日益增长的能源需求.因此,EOR 成为人们研 究的热点^[34].

作为一种清洁能源,页岩气因其储量丰富、分布 广泛,引起了人们的极大关注^[5].页岩气所贮存的页 岩层由大量微纳米孔隙构成(图1),整体上表现为 低孔隙度、低渗透率^[6].Wang等^[7]对北美多个地区 页岩样品进行分析,认为页岩孔隙度极低(<5%), 渗透率在 10⁻⁹~10⁻³ μm²之间.Schieber^[8] 观察了页 岩中复杂的孔隙结构,认为主要存在三种孔隙类型: 直径在 5~1000 nm 之间的层状碳酸盐孔隙、直径在 50~1000 nm 之间的溶解碳酸盐孔隙和直径在 10~ 100 nm 之间的有机质孔隙.Elgmati 等^[9]通过实验得 出页岩孔隙直径在 2~20 nm 之间,有机质作为干酪 根的主要成分,其含量达到 40%~50%.因此页岩气 开发需要解决诸多微纳米力学问题:①页岩气在微 纳米孔隙中的贮存机制;②页岩气注气驱替的相关 机制;③页岩气开采过程中从微纳米孔隙最终运移 到井筒的多尺度运移机制(图 1).



图 贝石 沙尺皮运移机制

Fig.1 Multiscale transport mechanisms of shale gas^[10]

综上所述,非常规油气开采中涉及众多微纳米 力学问题.结合课题组工作,本文详细介绍了这些问 题的相关研究进展.在节1中,我们阐述了强化采油 技术中粘弹性聚合物溶液和纳米流体的微观驱替机 理.在节2中,我们主要介绍了页岩气的吸附、注气 驱替和微流动等方面的机理.最后,总结并展望了此 领域未来发展的重点和方向.

非常规石油开采中的微纳米力学 问题

强化采油的最终目的是提高整体的采油效率. 根据油藏中物质守恒原则,整体的采油效率可以表 示为

$$E_{\rm ro} = \frac{N_p}{N} \tag{1}$$

式中 N 表示原有石油总量; N_p表示采油后采出的石 油总量.整体采油效率由宏观采油效率(又称为体积 波及效率) 和微观采油效率(又称为驱替效率) 组 成,其关系为

$$E_{\rm ro} = E_{\rm vo} E_{\rm do} = E_{\rm a} E_{\rm v} E_{\rm do}$$
(2)

式中 E_a 为面积波及效率; E_y 为垂向波及效率.

微观采油效率,又称为驱替效率,是指在微纳米 孔隙尺度下,当驱替液与油滴接触时,油滴被驱替出 来的效率.它是采油量与波及体积中的原有石油量 之比,表达式为

$$E_{\rm do} = \frac{S_{\rm oi} - S_{\rm or}}{S_{\rm oi}} \tag{3}$$

式中 S_{oi} 为原始油饱和度; S_{oi} 为采油后的剩余油饱和度.

采用 EOR 可以提高宏观和(或)微观采油效 率 进而提高整体的采收率.常规的 EOR 方法主要 有化学驱、气体混相驱、热力采油等.其中 化学驱包 含聚合物驱、表面活性剂驱、碱驱、三元复合驱等.此 外 近些年纳米流体驱也成为研究热点.本节接下来 将主要介绍聚合物驱和纳米流体驱的相关研究.

1.1 聚合物驱油

特

约

评

述

聚合物驱使用聚合物溶液为驱油剂,是化学驱 的重要方法^[34],在世界上尤其在中国大庆油田有 广泛的应用^[11].在工程实际中,聚合物驱最常用的 聚合物主要有两种:人工合成的部分水解聚丙烯酰 胺(HPAM)和生物聚合物黄原胶.除此以外,人们也 在研究用于采油的新型聚合物^[12].早期人们普遍认 为聚合物驱是通过提高宏观采油效率来提高整体采 收率的,具体表现为聚合物溶液增加了驱替液粘度, 并且造成了油水相渗透率不均衡降低 (disproportionate permeability reduction,DPR),减小 了驱替液和被驱替液的流度比,从而提高波及系数. 随着对聚合物驱油机理研究的逐渐深入,人们发现 由于聚合物溶液具有粘弹性,其在微观孔道中有特 殊的流动性质.聚合物驱不仅能提高宏观采油效率, 还能够提高微观驱替效率^[1344].

从微观上看,当水相流经孔道后,会在互不连接的地方存在残余油^[15].Wang^[16]指出,当粘弹性聚合物溶液流经具有侧面盲端的微观孔道时,聚合物溶液与盲端中的油不仅会产生切应力,还会在聚合物长链分子的作用下产生法向应力.由于法向应力的作用,聚合物溶液对油滴产生了更大的拉力,从而更有利于将油滴从侧面盲端中"拉"出来.聚合物溶液

的粘弹性越大,对油滴的拉拽效果越好,越有利于提 高驱替效率.经实验发现^[13],使用水、甘油、粘弹性 HPAM 溶液分别作为驱替剂进行驱油试验时, HPAM 驱替后孔道盲端中的残余油量最少(图2). 聚合物溶液在孔道中流动时,不仅能够像非弹性流 体一样"推"着前面的油,还能"拉"着侧面和后面的 油.这是由于聚合物分子为长链高分子,长链与长链 之间相互缠绕、相互制约.运动时,聚合物长链分子 就会产生拉伸,带动周围的分子一起运动,从而能够 拉拽盲端中的残余油^[17].Sedaghat 等^[18-19]的实验结 果表明,人工合成聚合物(HPAM,PAM)的驱油效果 比生物聚合物(黄原胶)好,其中,HPAM 的效果最 好,而且增加聚合物的分子量有利于提高采收率.



After water flooding After glycerin flooding After HPAM flooding 图 2 水驱、甘油驱、HPAM 驱替后孔道 盲端中的残余油(深色)^[13]

```
Fig.2 Residual oil ( darker color) in dead ends after water , glycerin and HPAM flooding<sup>[13]</sup>
```

为验证聚合物的粘弹性对驱油效率的影响,各 国学者进行了一系列的实验^[16-20].实验均发现,聚合 物溶液的粘弹性越强,驱油效果越好.高粘弹性聚合 物驱的采油率甚至是常规聚合物驱采油率的两 倍^[21].一些数值模拟研究结果也得出相似的结 论^[22-28],即聚合物溶液的粘弹性是影响微观驱替效 率的重要因素.Yin等^[22]用 UCM (upper-convected Maxwell)方程描述流体的粘弹性,使用有限体积法 研究了粘弹性聚合物溶液流经变截面孔道时的性 质.模拟结果表明,流体的弹性越大,流速越大,越有 利于驱替出角落处的残余油.

剪切增稠是聚合物溶液提高采收率的另一种机 理.理论上,聚合物溶液在多孔介质中的流变性质随 剪切率的变化可以分为三个阶段:牛顿流阶段、剪切 变稀阶段和剪切增稠阶段.剪切增稠阶段只有在聚 合物溶液流经多孔介质并且速度很大时才会出 现^[26-27].Clarke等人^[29-30]用二维微网络结构研究了 粘弹性聚合物溶液的流动性质,发现当德博拉数*De* 达到某特定值时,聚合物溶液呈现出增稠的性质,产 生弹性湍流(图 3).而在一般的剪切流变性质测试 中 粘弹性聚合物溶液(HPAM)不会呈现增稠现象. 弹性湍流的产生被认为是驱替出残余油的机理.进 一步研究发现,弹性湍流的产生与线粘弹性松弛时 间无关,而与一个和浓度、分子量无关的特征时间有 关,这种现象有可能是由流动诱导的高度非平衡分 子构型造成的^[31].脉冲梯度场核磁共振(PFG-NMR)测试结果显示,砂岩中聚合物溶液出现弹性 波动时,被困的残余油滴确实会发生移动.这种能够 直接测量不透明多孔介质中流动性质的技术,首次 由 Mitchell 等^[32]提出.





Fig.3 Shear rheometry of polymer solutions and apparent viscosity measured in coreflood and microfluidic network^[32]

除聚合物(polymer)外,表面活性剂(surfactant) 以及碱剂(alkali)也是化学驱方法中常用的驱替剂, 在注水时加入三者复合体系的驱油方法称为三元复 合驱(ASP flooding).将三者联合起来使用,具有协 同增强效应,是一种较新的技术方法.表面活性剂能 够大幅度降低油-水间的界面张力,提高毛细管数. 碱剂在注入地层后,能与原油中的有机酸发生化学 反应,生成表面活性剂石油酸皂.石油酸皂能与注入 的表面活性剂产生协同作用,进一步降低界面张力. 同时,碱剂还能够降低聚合物和表面活性剂的吸附 损失.除此以外,乳化、带油、泡沫滞留、改变岩石润 湿性等也是三元复合驱提高原油采油率的 机理^[33-34].

1.2 纳米流体驱油

传统的常规 EOR 方法虽然能够提高采收率,但 提高幅度有限,一些大型油田的原油地质储量 (OOIP)仍有50%以上未被开采出^[35],人们急需一 种突破常规的方法来大幅提高采收率.纳米技术作 为一种新兴的油气开采技术,已经在提高传感器灵 敏度、控制失水量、提高固井质量、提高井眼稳定性 等方面有了较为普遍的应用^[36-37].在 EOR 中运用纳 米技术来提高采收率近些年逐渐成为人们关注的焦 点^[38-39] 具体方法主要为使用纳米流体进行驱油.

纳米流体是指以一定的方式和比例在基液中加入纳米颗粒(尺寸一般为1~100 nm)制备成的均匀、稳定的流体.纳米颗粒尺寸小、比表面积大,加入不同的纳米颗粒可以制得不同纳米流体,具有不同的特殊性质^[40-41].利用这些特殊性质提高采收率近些年成为研究的热点^[42-43],其中涉及的微纳米力学问题是解释纳米流体提高采收率机理的关键问题.

纳米流体驱油中影响采油效率的因素有很多, 如油滴的尺寸,纳米颗粒的浓度、尺寸、所带电荷、表 面润湿性等.为研究这些因素的影响,学者们展开了 一系列的理论、实验、模拟工作^[4445].

与简单流体不同 纳米流体在固体表面上有特 殊的铺展、粘附行为.Li 等^[46]的分子动力学模拟结 果表明 增加纳米颗粒的浓度或者增强颗粒表面润 湿性 纳米流体的粘性将会增大 纳米流体在固体表 面上的铺展速度变缓.当吸附在固体表面上的油滴 浸没在纳米流体中时,纳米颗粒会在固体表面-油 滴-水的三相接触线处形成楔形薄膜,并对固体表面 和油滴产生分离压力^[47].楔形薄膜中,尖端的分离 压力大,厚端的分离压力小.由于压力差的存在,油/ 纳米流体表面向前移动 薄膜铺展开来 逐渐将油滴 从固体表面分离(图4).这种机理被称为结构性分 离压机理^[48].在合适的颗粒浓度、颗粒尺寸、接触 角、毛细压力条件下,不仅三相接触线会移动,纳米 流体薄膜也会自发地在固体表面上铺展.研究发现, 减小颗粒尺寸和界面张力有助于这一过程的发生. 对于界面张力为 0.5 mN/m 的纳米流体系统,其发 生铺展过程的合适条件为:颗粒有效尺寸为 40 nm 左右、较小的平衡接触角(小于 3°)、较高的有效浓 度(体积分数大于 30%)^[49].为验证纳米流体的驱油 效果 ,Zhang 等^[48] 用烧结的玻璃珠为介质 ,利用 X 射线显微层析(micro-CT)技术观察了驱油前后的油



图 4 纳米流体结构性分离压驱油机理示意图^[50] Fig.4 Schematic presentation of mechanism of oil displacement driven by nanofluid structural disjoining pressure^[50]

特

约

评

特

约

评

述

分布情况 结果显示 ,在低毛细管数下 ,纳米流体驱 油的采收率相比盐水驱油的采收率提高了 15%.

纳米流体中纳米颗粒的带电情况以及润湿性会 影响采油效率.Wang 等^[51]采用分子动力学模拟的 方法,研究了固体表面油滴在带电纳米颗粒悬浮液 中的脱离过程.结果表明,带电纳米颗粒构成的纳米 流体能有效提高固体表面油滴的脱离效率.当粒子 所带电荷超过一个临界值时,油滴可以自发地从固 体表面完全脱离.油滴的脱离过程主要分为两个阶 段:首先,在纳米流体的作用下,油滴的接触角增加, 之后油滴的形状发生改变,并最终脱离固体表面 (图5).研究还发现,除纳米颗粒的所带电荷大小 外,纳米颗粒的表面润湿性也是影响油滴脱离的重 要因素.疏水性纳米颗粒构成的纳米流体扩散能力 高、粘度低,有利于流体的铺展,进而促进油滴的脱 离.因此,使用疏水性纳米颗粒比使用亲水性纳米颗 粒的纳米流体脱油效果更好.



图 5 油滴在带电纳米颗粒悬浮液中自发从固体表面脱离^[51] Fig.5 Consecutive snapshots of the spontaneous detachment of an oil droplet from a solid substrate immersed

in a charged nanoparticle suspension^[51]

研发新型纳米颗粒流体也是进一步提高采收率 的重要方法.Luo 等^[52]设计并制备了两性石墨烯薄 片纳米流体,可以在低浓度下有效提高驱油效率.经 实验发现,在盐水环境下(NaCl质量分数4%,CaCl₂ 质量分数1%),纳米薄片可以自发地处于油水界 面,并降低界面张力.在温和的水动条件下,包含纳 米薄片的薄膜会逐渐爬升并压缩油相.在强烈的水 动条件下,会形成固体状的界面薄膜,并迅速将油水 分离.石墨烯薄片纳米流体相比常规纳米流体驱油 效率提高了 2 倍,这是 Janus 型双亲性二维材料纳 米流体在 EOR 上的首次运用.

2 非常规天然气开采中的微纳米力 学问题

页岩气开采是指贮存在微纳米孔隙和颗粒间的 页岩气在人为驱动下运移至宏观裂缝,最终汇集到 井筒的过程.在本节中,我们主要讨论页岩气吸附、 注气驱替和微流动三个方面的机理.

2.1 吸附

页岩气具有多种贮存方式:①吸附在有机质 (干酪根)孔隙表面;②游离于孔隙和裂缝中;③溶 解于沥青和干酪根中.其中吸附是主要贮存方式,吸 附气可以占到页岩气总量20%~85%^[33].吸附量的 大小与有机碳含量成正比,此外还受储层的压力、温 度和比表面积^[54]等因素的影响,关系十分复杂.吸 附机理的准确认识对页岩气解吸以及产量预测起到 至关重要的作用.常用来描述页岩气吸附的等温吸 附模型有:

2.1.1 Langmuir 吸附模型

Langmuir 吸附模型来源于分子动理论,在给定 温度和压力下,吸附和解吸附气体分子达到一个动态平衡状态,并假设吸附为单层吸附^[55].

$$v(P) = \frac{v_L P}{P + P_L} \tag{4}$$

式中,v(P)表示在压强 P下的吸附体积; v_L 表示 Langmuir 体积,即无限大压力下气体最大吸附体积; P_L 表示 Langmuir 压力,即吸附体积为 Langmuir 体积 一半时对应的压力.

Lu 等^[56]通过实验测量了页岩样品的吸附气含 量 结果表明页岩气吸附量与温度和压力有关,传统 的 Langmuir 吸附模型只适用于单一温度变量,改进 的 Bi-Langmuir 吸附模型可以对不同温度下页岩吸 附量进行预测并且与实验结果一致,从而可以将实 验室测量的吸附数据在页岩气开采现场推广应用. 2.1.2 BET 吸附模型

Langmuir 吸附模型基于单分子层吸附的假设并 不能很好地描述多分子层吸附情况,1938年 Brunauer等^[57]基于单分子层 Langmuir 吸附模型推 导得到多分子层吸附 BET 模型:

$$v(P) = \frac{v_m CP}{(P_0 - P) [1 + (C - 1) P/P_0]}$$
(5)
式中 P₀表示气体饱和压力; v_m表示单分子层饱和吸

附体积; C 表示与净吸附热有关的常数.

Yu 等^[58]对马塞卢斯的页岩样品分析得出其吸 附规律与 Langmuir 吸附模型不一致,而与 BET 吸附 模型相吻合,并且 BET 吸附模型对产量的预测高于 Langmuir 吸附模型,尤其在开采的前期阶段(图6).此 外,对于多相多组分吸附演化出一系列模型: Extended Langmuir 模型^[59]、Ideal Adsorbed Solution 模 型^[60]和 Modified Vacancy Solution 模型^[61].



图 6 Langmuir 和 BET 模型对比^[58]



Tan 和 Gubbins^[62]观察了超临界温度下不同孔 径纳米通道的吸附现象,认为存在一个最佳孔径可 以使吸附量最大化.Zhu 和 Zhao^[63]利用分子动力学 方法对甲烷气体在碳纳米管中的吸附现象进行研 究 结果表明在不同压力下均存在一个最佳孔径,并 建立了吸附相状态方程解释这种现象(图 7).

作为吸附的逆过程,页岩气的解吸附一般通过 升高温度或者降低压力来降低页岩的吸附能力,提 高页岩气的解吸附量,从而增加页岩气产量.Lu 等^[64]对不同温度下页岩吸附能力进行研究,发现温 度变化会显著影响页岩的吸附能力,温度上升吸附 能力下降,同时解吸附速率上升.Chen 等^[65]和 Milewska-Duda等^[66]通过研究页岩吸附气的解吸附 过程,指出降低压力可以促进吸附态气体解吸成为 游离气.



图 7 温度 300K ,压力 20~300bar ,甲烷吸附密度 与碳纳米管孔径关系(a) ,以及不同碳纳米管孔径 对应的粘附能 和势井深度(b) ^[63]

Fig. 7 Adsorption density in CNT as a function of the pore size at 300 K and pressures ranging from 20 to 300 bar(a) , and variation of the adhesion energy and the potential well depth with respect to the pore size for the CNT(b) ^[63]

2.2 注气驱替

升高温度和降低压力只能在一定程度上促进页 岩气的解吸附过程,仍有大量的页岩气存留在页岩 有机质表面.另外解吸附过程产生的游离气无法主 动运移至井口,实际生产中广泛采用注气驱替的方 法来提高页岩气产量.

CO₂和 N₂在自然界中广泛存在 获取成本低 安 全稳定,是两种常用的驱替气体^[67]. Mazumder 等^[68] 采用 CO₂和 N₂以及两者混合物分别驱替 CH₄,并分 析了注入速率对驱替效果的影响,结果表明驱替气 体注入速率越高 驱替效果越好.Wang 等^[69]和 Zhou 等 $^{[70]}$ 分别对 CO₂和 N₂驱替 CH₄的效率进行了实验 研究 结果表明虽然 CO2开始驱替所需的初始浓度 较高,但是在驱替过程中效率高于 N2.并且,两种气 体最终驱替量都在吸附甲烷气体的 90% 以上. Wu 等^[71]利用分子动力学模拟也得到了相似结果(图 8) ,并揭示了 CO₂和 N₂不同的驱替机制: CO₂与壁面 吸附力高于 CH₄, 驱替过程中 CO₂会直接取代 CH₄ 的吸附位置; N_2 虽然与壁面吸附力低于 CH_4 ,但是 注入 N₂会导致局部压力降低,从而促进 CH₄解吸附. Yuan 等^[72] 通过分子动力学模拟研究了碳纳米管中 CO2驱替 CH4的过程,发现驱替在 CO2分子垂直于壁 面时最容易进行,并认为碳纳米管存在一个最佳管 特

约

评

径使驱替效率最高。



Fig.8 The processes of CH₄ displaced by CO₂ and N₂ respectively^[71]

2.3 微流动

特

约

评

述

页岩气从微纳米孔隙运移到宏观裂缝,是页岩 气产出的一个重要环节^[73].在微纳米通道中分子与 壁面之间作用剧烈,产生表面扩散和滑移两种不同 干宏观的流动机制.其中表面扩散是指吸附层分子 沿着壁面运动,滑移是由分子不断从吸附层进出 导致^[74].

通道内流动类型由克努森数 Kn 决定: $Kn = \lambda /$ H 其中 λ 为气体分子平均自由程 H 为流动的特征 长度 这里指通道宽度.Kn<0.001 0.001<Kn<0.1 0. 1<Kn<10 Kn>10 分别对应连续流 滑移流 过渡流, 自由分子流^[75].对于页岩气,在 0.1~100 MPa 范围 内小于1 µm 孔隙内流动已经不再是宏观连续流动 (图9) 基于连续介质假设的 N-S 方程失去描述能 力[76].目前实验手段尚不能获得微纳米通道内页岩 气的流动细节.近年发展起来的微纳米尺度流动数 值模拟方法主要分为三种:直接蒙特卡洛方法 (DSMC)、分子动力学方法(MD)、格子玻尔兹曼方 法(LBM).直接蒙特卡洛方法遵循玻尔兹曼方程,采 用随机方法模拟每个粒子的行为,主要用以模拟高 空稀薄气体流动 ,为了保证计算精度需要巨大的运 算量^[77].与直接蒙特卡洛方法相似,分子动力学方 法虽然能准确计算微纳米尺度流动问题,但是由于 计算量巨大 空间和时间尺度受到限制^[78].

格子玻尔兹曼方法源自格子气动机^[79],并可以 从离散的玻尔兹曼方程推导得到^[80],近年在多相 流、多孔介质流动、化学反应与燃烧、界面动力学等 方面应用广泛^[81-83],具有计算量小、易于并行等特 点.格子玻尔兹曼方法所具有的粒子特性使其不受 N-S 方程限制,可以应用于微纳米尺度流动问题,对



压力的关系[76] Fig.9 Knudsen number relationship to pore diameter and

mean reservoir pressure at 400 K^[76]

于滑移区(0.001<Kn<0.1)、过渡区(0.1<Kn<10)都 能很好地描述^[84].近期 Zhuo 等^[85]通过一种滤波矩 阵格子玻尔兹曼模型 成功地描述了 Kn=10 附近的 微尺度流动行为.

基于格子玻尔兹曼方法 月前有许多关于页岩 气微纳米通道流动机制的研究工作.Fathi 等^[86]利用 格子玻尔兹曼方法模拟页岩纳米孔隙中流动行为, 并提出一种改进的克林肯伯格公式; Yao 等^[87]结合 微尺度格子玻尔兹曼模拟结果,验证了常用页岩气 藏表观渗透率计算模型的准确性.Zhang 等^[88]借助 格子玻尔兹曼方法对不同孔径下滑移速度的修正进 行研究,认为孔径越小速度修正越显著; Ren 等^[89] 将纳米通道内分为两个区域(图10) 自由气体采用 格子玻尔兹曼方法模拟 ,并且考虑真实页岩气高压 环境 吸附层扩散通过公式计算得到 结果表明表面 扩散作用在孔径小于 5nm 时对流动贡献显著; Ning 等^[90]利用多松弛模型 对不同壁面吸附力下的流动 进行研究,认为随着吸附力增大,通道内流量将会 降低.



第47卷

2.4 表观渗透率

随着微纳米通道内的流动复杂性增加,基于宏观黏性流的达西渗透率不再适用^[91].为了考虑滑移效应,克林肯伯格提出一个表观渗透率与固有渗透率的修正关系,即克林肯伯格公式^[92]:

$$k_{\rm app} = k_{\infty} (1 + \frac{b_{\rm K}}{P_{\rm a}})$$
(6)

式中 k_{app} 表示表观渗透率; k_{a} 表示固有渗透率; P_{a} 表示通道内平均圧力; b_{K} 为克氏系数 ,由孔道半径大小与气体分子自由程所决定 ,其表达式为 $b_{K} = 4K_{c}$ $\lambda P_{a}/r.K_{c}$ 一般取为 1.0 λ 为分子的平均自由程 r为孔隙半径.

克林肯伯格公式对渗透率较低情况下表观渗透 率的预测并不准确,Tang等^[93]提出一个二阶改进 克林肯伯格公式:

$$k_{\rm app} = k_{\infty} (1 + \frac{A}{P_{\rm a}} + \frac{B}{P_{\rm a}^2})$$
(7)

为了准确预测表观渗透率,许多考虑更多流动 机制的模型被提出.含尘气体模型(DGM)^[94]由斯蒂 芬-麦克斯韦尔扩散方程扩展而来,考虑了分子扩 散、克努森扩散和黏性流三种流动机制共同作用,用 于描述多孔介质中不同流动类型的表观渗透率;在 此模型基础上,Javadpour^[95]发展了一种表观渗透率 模型,它同时考虑滑移和克努森扩散作用; Freeman 等^[96]认为扩散和对流在通道内相互竞争并且最终 妥协,并以此模型计算表观渗透率.

基于克努森数的修正因子可以描述不同流动类 型的表观渗透率,其表达式为

$$k_{app} = f(Kn) k_{\infty}$$
 (8)
式中 $f(Kn)$ 表示克努森修正因子.

众多学者结合大量实验结果^[97-99]对不同流动 类型修正因子进行研究,对于滑移流修正因子为^[94]

$$f(Kn) = 1 + 4Kn \tag{9}$$

过渡流的克努森数较小阶段(0.1<Kn<0.8),修 正因子为^[100]

$$f(Kn) = 0.8453 + 5.4567Kn + 0.1633 Kn^{2} (10)$$

Beskok 等^[101]基于实验和理论分析提出可以适用所有流动类型的修正因子

$$f(Kn) = [1 + \alpha(Kn) Kn] \left[1 + \frac{4Kn}{1 - bKn} \right] (11)$$

式中,b 为滑移系数, 一般取为 – 1; 根据 Loyalka 等^[102]的分析结果 α (*Kn*) 可以确定为

$$\alpha(Kn) = \frac{128}{15\pi^2} \tan^{-1}(4.0 Kn^{0.4})$$

根据式(9)~(12),可以得到不同流动类型渗 透率修正因子的大小(图11),克努森修正因子在连 续流动区域(*Kn*<0.001)为1在此区域之外,增大克 努森数表观渗透率急剧增加^[103].



3 结论与展望

非常规油气开采中涉及的微纳米力学问题复杂 而众多,有关研究涵盖理论、模拟和实验等各个方 面.本文回顾了近年来有关聚合物驱、纳米流体驱的 微观驱替机理,页岩气吸附、注气驱替和微流动等问 题的研究进展.

聚合物驱不仅能扩大宏观波及体积 ,还能够提 高微观采油效率.聚合物溶液的粘弹性在提升微观 驱替效率上起到了至关重要的作用,有关机理主要 包括: 对盲端残余油的提拉作用以及在多孔介质中 的剪切增稠性质.但这些机理对聚合物驱提高微观 驱替效率的解释尚不完善,仍需要进一步研究.此 外, 军内试验中模拟微观孔道的模型一般只能达到 微米量级 而实际储层中的微观孔道尺寸可达纳米 量级.在纳米尺度下,聚合物溶液的流动特性对驱油 效率的影响仍有待进一步研究.纳米流体驱油是一 种新兴的 EOR 技术,具有巨大的应用潜能.纳米颗 粒的存在减小了基底--纳米流体界面张力,使纳米流 体更容易铺展,并对油滴产生分离压力,促进油滴从 基底上脱离 提高石油采收率.纳米流体驱油技术目 前还主要停留在初期试验阶段,对纳米流体本身以 及纳米流体对采油的影响等多方面的研究都有待进 一步深入.

特

约

评

页岩气吸附的基本模型包括单分子层 Langmuir 吸附模型和多分子层 BET 吸附模型.但是真实页岩 气组分复杂 多相多组分吸附模型有待进一步研究. 页岩气本身不具备主动运移的能力 ,需要人为驱替 生产.目前广泛使用的驱替气体是 CO,和 N,或者两 者的混合物.CO,需要较高浓度驱替才能进行,但是 驱替过程效率很高; N_2 虽然在较低浓度下驱替可以 进行 但是驱替过程效率较低.如何找到一种在低浓 度下驱替可以进行并且效率高的方法将是未来研究 的热点.贮存在有机质纳米孔隙或者颗粒表面的页 岩气被驱替进入裂缝 这个过程涉及微纳米通道流 动问题.在微纳米孔隙中的流动不同于宏观黏性流, 出现了滑移和扩散两种新的流动机制,使得流动变 得十分复杂.目前对于滑移流的研究比较充分,当流 动进入过渡流,考虑扩散机制的流动有待于进一步 研究.由于流动中出现滑移和扩散机制 表观渗透率 要远大于固有渗透率,这会直接影响页岩气产量评 估.目前对表观渗透率的研究集中干简单通道模型, 如何借助数字岩心重构技术,对真实页岩整体渗透 率进行预测将是下一步研究的重点.

参考文献(References)

 [1]邹才能,陶士振,白斌,等.论非常规油气与常规油气的区别和联系[J].中国石油勘探,2015,20(1): 1-16.

ZOU Caineng , TAO Shizhen , BAI Bin ,et al. Differences and relations between unconventional and conventional oil and gas [J]. China Petroleum Exploration , 2015 , 20(1): 1–16.

- [2] JIA C Z, ZHENG M, ZHANG Y F. Unconventional hydrocarbon resources in China and the prospect of exploration and development [J]. Petroleum Exploration and Development, 2012, 39(2): 139–146.
- [3] ALVARADO V, MANRIQUE E. Enhanced oil recovery: an update review [J]. Energies, 2010, 3(9): 1529–1575.
- [4] MANRIQUE E J, THOMAS C P, RAVIKIRAN R, et al. EOR: Current status and opportunities [C]//SPE Improved Oil Recovery Symposium. Richardson, Texas, USA: Society of Petroleum Engineers, 2010.
- [5]王红岩,李景明,赵群,等.中国新能源资源基础及发展前景展望[J].石油学报,2009,30(3):469-473.
 WANG Hongyan, LI Jingming, ZHAO Qun, et al. Resources and development of new energy in China [J]. Acta Petrolei Sinica, 2009,30(3):469-473.
- [6] SONDERGELD C H, AMBROSE R J, RAI C S, et al. Micro-structural studies of gas shales [C]//SPE

Unconventional Gas Conference. Richardson, Texas, USA: Society of Petroleum Engineers, 2010.

- [7] WANG F P, REED R M. Pore networks and fluid flow in gas shales [C]//SPE annual technical conference and exhibition. Richardson, Texas, USA: Society of Petroleum Engineers, 2009.
- [8] SCHIEBER J. Common themes in the formation and preservation of intrinsic porosity in shales and mudstonesillustrated with examples across the Phanerozoic [C]// SPE Unconventional Gas Conference. Richardson, Texas, USA: Society of Petroleum Engineers, 2010.
- [9] ELGMATI M M, ZHANG H, BAI B, et al. Submicronpore characterization of shale gas plays [C]//North American Unconventional Gas Conference and Exhibition. Richardson, Texas, USA: Society of Petroleum Engineers, 2011.
- [10] SONDERGELD C H , NEWSHAM K E , COMISKY J T , et al. Petrophysical considerations in evaluating and producing shale gas resources [C]//SPE Unconventional Gas Conference. Richardson , Texas , USA: Society of Petroleum Engineers , 2010.
- [11] OMOLE O, ADELEYE J O, FALODE O, et al. Development of enhanced oil recovery in Daqing [J]. Journal of Petroleum and Gas Engineering, 2013, 4(2): 46–50.
- [12] WU X C , ZHANG S , XIONG C M , et al. Successful field test of a new polymer flooding technology for improving heavy oil reservoir recovery: Case study of strongly heterogeneous and multi-layer conglomerate heavy oil reservoir XJ6 [C]//SPE EOR Conference at Oil and Gas West Asia. Richardson , Texas , USA: Society of Petroleum Engineers , 2016.
- [13] WANG D M, CHENG J C, YANG Q Y, et al. Viscouselastic polymer can increase microscale displacement efficiency in cores [C]//SPE annual technical conference and exhibition. Richardson, Texas, USA: Society of Petroleum Engineers, 2000.
- [14] WANG D M , XIA H F , YANG S R , et al. The influence of visco-elasticity on micro forces and displacement efficiency in pores , cores and in the field [C]//SPE EOR Conference at Oil & Gas West Asia. Richardson , Texas , USA: Society of Petroleum Engineers , 2010.
- [15] DATTA S S, RAMAKRISHNAN T S, WEITZ D A. Mobilization of a trapped non-wetting fluid from a threedimensional porous medium [J]. Physics of Fluids 2014, 26(2): 022002; doi: 10.1063/1.4866641.
- [16] WANG D M , WANG G , WU W X , et al. The influence of viscoelasticity on displacement efficiency-from micro to macro scale [C]//SPE Annual Technical Conference and Exhibition. Richardson , Texas , USA: Society of Petroleum

特

约

评

Engineers, 2007.

 [17] 夏惠芬,王德民,刘中春,等.粘弹性聚合物溶液提高 微观驱油效率的机理研究[J].石油学报,2001,22
 (4):60-65.

XIA Huifen , WANG Demin , LIU Zhongchun , et al.Study on the mechanism of polymer solution with visco-elastic behavior increasing microscopic oil displacement efficiency [J]. Acta Petrolei Sinica , 2001 , 22(4): 60-65.

- [18] SEDAGHAT M H, GHAZANFARI M H, PARVAZDAVANI M, et al. Experimental investigation of microscopic/macroscopic efficiency of polymer flooding in fractured heavy oil five-spot systems [J]. Journal of Energy Resources Technology, 2013, 135(3): 032901; doi: 10.1115/1.4023171.
- [19] SEDAGHAT M H, GHAZANFARI M H, MASIHI M, et al. Experimental and numerical investigation of polymer flooding in fractured heavy oil five-spot systems [J]. Journal of Petroleum Science and Engineering, 2013, 108: 370-382.
- [20] XIA H F, WANG D M, WANG G, et al. Effect of polymer solution viscoelasticity on residual oil [J]. Petroleum Science and Technology, 2008, 26 (4): 398-412.
- [21] WANG D M, WANG G, XIA H F. Large scale high visco-elastic fluid flooding in the field achieves high recoveries [C]//SPE Enhanced Oil Recovery Conference. Richardson, Texas, USA: Society of Petroleum Engineers, 2011.
- [22] YIN H J, WANG D M, ZHONG H Y, et al. Flow characteristics of viscoelastic polymer solution in micropores [C]//SPE EOR Conference at Oil and Gas West Asia. Richardson, Texas, USA: Society of Petroleum Engineers, 2012.
- [23] ZHANG L J , YUE X A. Displacement of polymer solution on residual oil trapped in dead ends [J]. Journal of Central South University of Technology , 2008 , 15: 84–87.
- [24] XIA H F , WANG D M , WANG G , et al. Mechanism of the effect of micro-forces on residual oil in chemical flooding [C]//SPE Symposium on Improved Oil Recovery. Richardson, Texas, USA : Society of Petroleum Engineers , 2008.
- [25] CAO R Y, CHENG L S, LIAN P Q. Flow behavior of viscoelastic polymer solution in porous media [J]. Journal of Dispersion Science and Technology, 2015, 36(1): 41–50.
- [26] WANG J , LIU H Q , XU J. Mechanistic simulation studies on viscous-elastic polymer flooding in petroleum reservoirs [J]. Journal of Dispersion Science and Technology , 2013 , 34(3): 417-426.
- [27] WANG J, LIU H Q. A novel model and sensitivity

analysis for viscoelastic polymer flooding in offshore oilfield [J]. Journal of Industrial and Engineering Chemistry , 2014 , 20(2): 656-667.

- [28] LOTFOLLAHI M, KOH H, LI Z, et al. Mechanistic simulation of residual oil saturation in viscoelastic polymer floods [C]//SPE EOR Conference at Oil and Gas West Asia. Richardson, Texas, USA: Society of Petroleum Engineers, 2016.
- [29] CLARKE A, HOWE A M, MITCHELL J, et al. Mechanism of anomalously increased oil displacement with aqueous viscoelastic polymer solutions [J]. Soft Matter, 2015, 11(18): 3536-3541.
- [30] CLARKE A , HOWE A M , MITCHELL J , et al. How viscoelastic-polymer flooding enhances displacement efficiency [J]. SPE Journal , 2015 , 21(3) : 675-687.
- [31] HOWE A M, CLARKE A, GIERNALCZYK D. Flow of concentrated viscoelastic polymer solutions in porous media: Effect of MW and concentration on elastic turbulence onset in various geometries [J]. Soft Matter, 2015, 11(32): 6419-6431.
- [32] MITCHELL J, LYONS K, HOWE A M, et al. Viscoelastic polymer flows and elastic turbulence in threedimensional porous structures [J]. Soft Matter, 2016, 12 (2): 460-468.
- [33] ARIHARA N, YONEYAMA T, AKITA Y, et al. Oil recovery mechanisms of alkali-surfactant-polymer flooding [C]//SPE Asia Pacific Oil and Gas Conference and Exhibition. Richardson, Texas, USA: Society of Petroleum Engineers, 1999.
- [34] SHENG J J. A comprehensive review of alkalinesurfactant-polymer (ASP) flooding [J]. Asia-Pacific Journal of Chemical Engineering, 2014, 9(4): 471-489.
- [35] FLETCHER A, DAVIS J. How EOR can be transformed by nanotechnology [C]//SPE Improved Oil Recovery Symposium. Richardson, Texas, USA: Society of Petroleum Engineers, 2010.
- [36] EVDOKIMOV I N, ELISEEV N Y, LOSEV A P, et al. Emerging petroleum-oriented nanotechnologies for reservoir engineering [C]//SPE Russian Oil and Gas Technical Conference and Exhibition. Richardson, Texas, USA: Society of Petroleum Engineers, 2006.
- [37] LI L , XU X G , SUN J S , et al. Vital role of nanomaterials in drilling fluid and reservoir protection applications [C]//Abu Dhabi International Petroleum Conference and Exhibition. Richardson, Texas, USA: Society of Petroleum Engineers , 2012.
- [38] ENGESET B. The potential of hydrophilic silica nanoparticles for eor purposes: A literateur review and an experimental study [D]. Trondheim, Norway: Norwegian University of Science and Technology, 2012.

特

约

评

- [39] SABET M, HOSSEINI S N, ZAMANI A, et al. Application of nanotechnology for enhanced oil recovery: A review [J]. Defect and Diffusion Forum, 2016, 367: 149–156.
- [40] SINGH S K , AHMED R M , GROWCOCK F. Vital role of nanopolymers in drilling and stimulations fluid applications [C]//SPE Annual Technical Conference and Exhibition. Richardson, Texas, USA: Society of Petroleum Engineers, 2010.
- [41] MISHRA P C , MUKHERJEE S , NAYAK S K , et al. A brief review on viscosity of nanofluids [J]. International Nano Letters , 2014 , 4(4): 109–120.
- [42] CHERAGHIAN G, HENDRANINGRAT L. A review on applications of nanotechnology in the enhanced oil recovery part A: Effects of nanoparticles on interfacial tension [J]. International Nano Letters, 2016, 6(2): 129–138.
- [43] CHERAGHIAN G, HENDRANINGRAT L. A review on applications of nanotechnology in the enhanced oil recovery part B: effects of nanoparticles on flooding [J]. International Nano Letters, 2016, 6(1): 1–10.
- [44] ZHAO Y P. Physical Mechanics of Surfaces and Interfaces [M]. Beijing: Science Press, 2012.
- [45] ZHAO Y P. Moving contact line problem: Advances and perspec-tives [J]. Theoretical and Applied Mechanics Letters , 2014 , 4(3): 034002; doi: 10.1063/2.1403402.
- [46] LI Y Q, WANG F C, LIU H, et al. Nanoparticle-tuned spreading behavior of nanofluid droplets on the solid substrate [J]. Microfluidics and Nanofluidics, 2015, 18 (1): 111–120.
- [47] WASAN D T , NIKOLOV A D. Spreading of nanofluids on solids [J]. Nature , 2003 , 423(6936) : 156–159.
- [48] ZHANG H, NIKOLOV A, WASAN D. Enhanced oil recovery (EOR) using nanoparticle dispersions: Underlying mechanism and imbibition experiments [J]. Energy & Fuels, 2014, 28(5): 3002–3009.
- [49] KONDIPARTY K, NIKOLOV A, WU S, et al. Wetting and spreading of nanofluids on solid surfaces driven by the structural disjoining pressure: statics analysis and experiments [J]. Langmuir, 2011, 27(7): 3324-3335.
- [50] ZHANG H , RAMAKRISHNAN T S , NIKOLOV A , et al. Enhanced oil recovery driven by nanofilm structural disjoining pressure: Flooding experiments and microvisualization [J]. Energy & Fuels , 2016 , 30(4): 2771-2779.
- [51] WANG F C , WU H A. Enhanced oil droplet detachment from solid surfaces in charged nanoparticle suspensions [J]. Soft Matter , 2013 , 9(33) : 7974–7980.
- [52] LUO D, WANG F, ZHU J Y, et al. Nanofluid of graphene-based amphiphilic Janus nanosheets for tertiary

or enhanced oil recovery: High performance at low concentration [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America , 2016 ,113 (28) : 7711–7716.

- [53] LU X C, LI F C, WATSON A T. Adsorption measurements in Devonian shales [J]. Fuel, 1995, 74 (4): 599-603.
- [54] SCHETTLER JR P D, PARMELY C R. Contributions to total storage capacity in Devonian shales [C]//SPE Eastern Regional Meeting. Richardson, Texas, USA : Society of Petroleum Engineers, 1991.
- [55] LANGMUIR I. The adsorption of gases on plane surfaces of glass, mica and platinum [J]. Journal of the American Chemical Society, 1918, 40(9): 1361–1403.
- [56] LU X C , LI F C , WATSON A T. Adsorption studies of natural gas storage in Devonian shales [J]. SPE Formation Evaluation , 1995 , 10(02) : 109–113.
- [57] BRUNAUER S , EMMETT P H , TELLER E. Adsorption of gases in multimolecular layers [J]. Journal of the American Chemical Society , 1938 , 60(2): 309–319.
- [58] YU W, SEPEHRNOORI K, PATZEK T W. Modeling gas adsorption in Marcellus shale with Langmuir and BET isotherms [J]. SPE Journal, 2016,21(2): SPE-I70801– PA; doi: 10.2118/170801-PA.
- [59] YANG R T. Gas Separation By Adsorption Processes [M]. Oxford ,UK: Butterworth-Heinemann , 2013.
- [60] MYERS A L , PRAUSNITZ J M. Thermodynamics of mixed-gas adsorption [J]. AIChE Journal , 1965 , 11(1): 121–127.
- [61] CLARKSON C R. Application of a new multicomponent gas adsorption model to coal gas adsorption systems [J]. SPE Journal, 2003, 8(3): 236–251.
- [62] TAN Z M, GUBBINS K E. Adsorption in carbon micropores at supercritical temperatures [J]. Journal of Physical Chemistry, 1990, 94(15): 6061-6069.
- [63] ZHU X Y , ZHAO Y P. Atomic mechanisms and equation of state of methane adsorption in carbon nanopores [J]. The Journal of Physical Chemistry C , 2014 , 118(31): 17737–17744.
- [64] LU X C, LI F C, WATSON A T. Adsorption measurements in Devonian shales [J]. Fuel, 1995, 74 (4): 599-603.
- [65] CHEN J H , WONG D S H , TAN C S , et al. Adsorption and desorption of carbon dioxide onto and from activated carbon at high pressures [J]. Industrial & Engineering Chemistry Research , 1997 , 36(7): 2808–2815.
- [66] MILEWSKA-DUDA J , DUDA J , NODZEÑSKI A , et al. Absorption and adsorption of methane and carbon dioxide in hard coal and active carbon [J]. Langmuir , 2000 , 16 (12): 5458–5466.

- [67] SHIMADA S , LI H , OSHIMA Y , et al. Displacement behavior of CH_4 adsorbed on coals by injecting pure CO_2 , N_2 , and CO_2 -N₂ mixture [J]. Environmental Geology , 2005 , 49(1) : 44-52.
- [68] MAZUMDER S, WOLF K, VAN HEMERT P, et al. Laboratory experiments on environmental friendly means to improve coalbed methane production by carbon dioxide/ flue gas injection [J]. Transport in Porous Media, 2008, 75(1): 63-92.
- [69] WANG L G , CHENG Y P , WANG Y K. Laboratory study of the displacement coalbed CH_4 process and efficiency of CO_2 and N_2 injection [J]. The Scientific World Journal , 2014 , 2014: 242947; doi: 10.1155/2014/242947.
- [70] ZHOU F D , HUSSAIN F , CINAR Y. Injecting pure N₂ and CO₂ to coal for enhanced coalbed methane: experimental observations and numerical simulation [J]. International Journal of Coal Geology , 2013 , 116: 53-62.
- [71] WU H A, CHEN J, LIU H. Molecular dynamics simulations about adsorption and displacement of methane in carbon nanochannels [J]. The Journal of Physical Chemistry C, 2015, 119(24): 13652–13657.
- [72] YUAN Q Z , ZHU X Y , LIN K , et al. Molecular dynamics simulations of the enhanced recovery of confined methane with carbon dioxide [J]. Physical Chemistry Chemical Physics , 2015 , 17(47) : 31887-31893.
- [73] YAO J , SUN H , HUANG Z Q , et al. Key mechanical problems in the development of shale gas reservoirs [J]. Scientia Sinica Physica , Mechanica & Astronomica 2013 , 43(12): 1527–1547.
- [74] KANG S M , FATHI E , AMBROSE R J , et al. Carbon dioxide storage capacity of organic-rich shales [J]. SPE Journal , 2011 , 16(04) : 842-855.
- [75] ROY S , RAJU R , CHUANG H F , et al. Modeling gas flow through microchannels and nanopores [J]. Journal of Applied Physics , 2003 , 93(8): 4870-4879.
- [76] WANG J J, CHEN L, KANG Q J, et al. The lattice Boltzmann method for isothermal micro-gaseous flow and its application in shale gas flow: A review [J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2016, 95: 94–108.
- [77] ORAN E S , OH C K , CYBYK B Z. Direct simulation monte carlo: Recent advances and applications [J]. Annual Review of Fluid Mechanics , 1998 , 30 (1): 403-441.
- [78] CAO B Y, CHEN M, GUO Z Y. Liquid flow in surfacenanostructured channels studied by molecular dynamics simulation [J]. Physical Review E, 2006, 74 (6): 066311.
- [79] MCNAMARA G R , ZANETTI G. Use of the Boltzmann equation to simulate lattice-gas automata [J]. Physical

Review Letters , 1988 , 61(20): 2332.

- [80] HE X, LUO L S. A priori derivation of the lattice Boltzmann equation [J]. Physical Review E, 1997, 55 (6): R6333.
- [81] GUO Z, ZHAO T S. Lattice Boltzmann model for incompressible flows through porous media [J]. Physical Review E, 2002, 66(3): 036304.
- [82] SUCCI S, FOTI E, HIGUERA F. Three-dimensional flows in complex geometries with the lattice Boltzmann method [J]. EPL (Europhysics Letters), 1989, 10(5): 433.
- [83] KANG Q J, ZHANG D X, CHEN S Y, et al. Lattice Boltzmann simulation of chemical dissolution in porous media [J]. Physical Review E, 2002, 65(3): 036318.
- [84] LI B, KWOK D Y. Discrete Boltzmann equation for microfluidics [J]. Physical Review Letters, 2003, 90 (12): 124502.
- [85] ZHUO C S , ZHONG C W. Filter-matrix lattice Boltzmann model for microchannel gas flows [J]. Physical Review E , 2013 , 88(5): 053311.
- [86] FATHI E, TINNI A, AKKUTLU I Y. Correction to Klinkenberg slip theory for gas flow in nano-capillaries [J]. International Journal of Coal Geology, 2012, 103: 51–59.
- [87] 姚军,赵建林,张敏,等. 基于格子 Boltzmann 方法的页岩 气 微 观 流 动 模 拟 [J]. 石 油 学 报,2015,10: 1280-1289.
 YAO Jun, ZHAO Jianlin, ZHANG Min, et al. Microscale shale gas flow simulation based on Lattice Boltzmann
- [88] ZHANG X L , XIAO L Z , SHAN X W , et al. Lattice Boltzmann simulation of shale gas transport in organic nano-pores [J]. Scientific Reports , 2014 , 4: 4843.

method [J]. Acta Petrolei Sinica , 2015 ,10: 1280-1289.

- [89] REN J J , GUO P , GUO Z L , et al. A lattice Boltzmann model for simulating gas flow in kerogen pores [J]. Transport in Porous Media , 2015 , 106(2) : 285–301.
- [90] NING Y, JIANG Y, LIU H L, et al. Numerical modeling of slippage and adsorption effects on gas transport in shale formations using the lattice Boltzmann method [J]. Journal of Natural Gas Science and Engineering, 2015, 26: 345–355.
- [91] YAO J , SUN H , FAN D Y , et al. Numerical simulation of gas transport mechanisms in tight shale gas reservoirs[J]. Petroleum Science , 2013 , 10(4) : 528-537.
- [92] KLINKENBERG L J. The permeability of porous media to liquids and gases [C]//Drilling and production practice. Washington, D. C.: American Petroleum Institute, 1941.
- [93] TANG G H , TAO W Q , HE Y L. Gas slippage effect on microscale porous flow using the lattice Boltzmann method [J]. Physical Review E , 2005 , 72(5): 056301.

特约评述

- [94] MASON E A, MALINAUSKAS A P. Gas Transport In Porous Media: The Dusty-Gas Model [M]. Amsterdam, the Netherlands: Elsevier Science Ltd, 1983.
- [95] JAVADPOUR F. Nanopores and apparent permeability of gas flow in mudrocks (shales and siltstone) [J]. Journal of Canadian Petroleum Technology, 2009, 48 (08): 16–21.
- [96] FREEMAN C M , MORIDIS G J , BLASINGAME T A. A numerical study of microscale flow behavior in tight gas and shale gas reservoir systems [J]. Transport in Porous Media , 2011 , 90(1): 253–268.
- [97] BARRAL C, OXARANGO L, PIERSON P. Characterizing the gas permeability of natural and synthetic materials [J]. Transport in Porous Media, 2010, 81(2): 277–293.
- [98] BRACE W F, WALSH J B, FRANGOS W T. Permeability of granite under high pressure [J]. Journal of Geophysical Research, 1968, 73(6): 2225–2236.
- [99] CUI X, BUSTIN A M M, BUSTIN R M. Measurements

of gas permeability and diffusivity of tight reservoir rocks: different approaches and their applications [J]. Geofluids , 2009 , 9(3): 208-223.

- [100] SAKHAEE-POUR A, BRYANT S. Gas permeability of shale [J]. SPE Reservoir Evaluation & Engineering, 2012, 15(4): 401-409.
- [101] BESKOK A, KARNIADAKIS G E. Report: A model for flows in channels, pipes, and ducts at micro and nano scales [J]. Microscale Thermophysical Engineering, 1999, 3(1): 43-77.
- [102] LOYALKA S K , HAMOODI S A. Poiseuille flow of a rarefied gas in a cylindrical tube: Solution of linearized Boltzmann equation [J]. Physics of Fluids A: Fluid Dynamics , 1990 , 2(11): 2061–2065.
- [103] YUAN Y, DOONECHALY N G, RAHMAN S. An analytical model of apparent gas permeability for tight porous media [J]. Transport in Porous Media, 2016, 111(1): 193-214.