

# 流体注入法定量表征页岩孔隙结构测试方法研究进展

俞雨溪<sup>1,2</sup>, 王宗秀<sup>1,2</sup>, 张凯逊<sup>1,2</sup>, 程明<sup>3</sup>

YU Yuxi<sup>1,2</sup>, WANG Zongxiu<sup>1,2</sup>, ZHANG Kaixun<sup>1,2</sup>, CHENG Ming<sup>3</sup>

1. 中国地质科学院地质力学研究所, 北京 100081;
2. 中国地质科学院页岩油气调查评价重点实验室, 北京 100081;
3. 中国科学院地质与地球物理研究所, 北京 100029

1. *Institute of Geomechanics, Chinese Academy of Geological Sciences, Beijing 100081, China;*
2. *Key Lab of Shale Oil and Gas Geological Survey, Chinese Academy of Geological Sciences, Beijing 100081, China;*
3. *Institute of Geology and Geophysics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China*

YU Y X, WANG Z X, ZHANG K X, et al., 2020. Advances in quantitative characterization of shale pore structure by using fluid injection methods [J]. *Journal of Geomechanics*, 26 (2): 201–210 DOI: 10.12090/j.issn.1006-6616.2020.26.02.019

**Abstract:** Shale is compact and has complex structure, which makes it hard to characterize its pore structure quantitatively; however, the pore structure of shale can provide important information for shale reservoir evaluation and sweet spot determination. The fluid injection methods, represented by the gas adsorption method and the mercury injection method, are the most commonly used techniques in shale pore structure characterization, but neither of them can provide the complete pore size range of shale. In this paper, the research results of previous studies were reviewed and summarized, and the key factors affect the test result of gas adsorption method and mercury injection method were analyzed. The problems and future directions in the combined characterization of shale pore structure in the complete pore size were pointed out. It is noted that the characterization results from the gas adsorption using particle samples do not match those from the mercury injection using bulk samples, which makes the data combination impossible. And the combined characterization results are hard to be verified. For mercury injection, the usage of particle samples can improve the data quality compared to the bulk ones, as well as the combined characterization results. The understandings about conformance correction, premium particle size and data compatibility are the key issues to improve the combined characterization of shale pore structure.

**Key words:** shale; fluid injection methods; pore structure; particle sample; complete pore size range; combined characterization

**摘要:** 页岩致密且结构复杂, 对其孔隙结构进行定量表征一直是页岩储层研究的重点和难点, 因其能够为页岩油气储层评价和甜点确定提供重要信息。通过系统梳理已有研究成果, 介绍了以压汞法和气体吸附法为代表的流体注入法, 简述了能够影响测试结果的因素, 指出了目前页岩全孔径孔隙结构表征的问题及发展方向。分析表明, 颗粒样气体吸附法和块(柱)压汞法表征结果的数据匹配性差, 整合难度大; 同时由上述两种方法联合所获得的表征结果也无法被其他独立测试所验证。进一步指出采用颗粒样代替传统块(柱)样进行页岩压汞测试可以提高数据质量, 也是未来方法联用的发展方向, 其中样品颗粒堆积孔进汞量校正、颗粒样粒径选择、多方法数据匹配是实现页岩全孔径孔隙结构定量表征的关键。

**基金项目:** 国家自然科学基金(41802178); 中国地质科学院院长基金项目(JYYWF20181201)

**第一作者简介:** 俞雨溪(1987-), 女, 博士, 从事页岩储层微观结构表征和页岩油气成藏机理研究。E-mail: yuyuxi718@126.com

**通讯作者:** 王宗秀(1959-), 男, 研究员, 从事页岩气地质研究。E-mail: wangzongxiu@sohu.com

**收稿日期:** 2019-07-12; **修回日期:** 2019-12-20; **责任编辑:** 范二平

**引用格式:** 俞雨溪, 王宗秀, 张凯逊, 等, 2020. 流体注入法定量表征页岩孔隙结构测试方法研究进展 [J]. *地质力学学报*, 26 (2): 201–210 DOI: 10.12090/j.issn.1006-6616.2019.26.02.019

**关键词:** 页岩; 流体注入法; 孔隙结构; 颗粒样; 全孔径; 联合表征

**中图分类号:** P618.13 **文献标识码:** A

## 0 引言

随着全球页岩油气的大规模勘探开发,页岩层系作为产层,其储渗性能开始得到关注和研究(Curtis, 2002; 吴林强等, 2018; 尚春江等, 2019)。孔隙结构不仅控制页岩储层的物性条件,对其中流体赋存状态、含量及其渗流机制也具有重要影响(Sondergeld et al., 2010),可以为页岩储层评价和页岩油气成藏机理研究提供重要基础信息。因此,全面、精准获取页岩孔隙结构相关参数是探索页岩储层孔隙演化特征、物性控制因素、甜点分布等页岩油气科学研究和勘探开发的前提和基础。

目前,能够用于页岩孔隙结构表征和孔渗物性参数测定的技术手段较多,包括二维(三维)孔隙图像分析方法(CT、电镜等)、流体注入技术、核磁共振 T2 谱分析方法和小角散射分析方法等(Clarkson et al., 2013; Al Hinai et al., 2014; Houben et al., 2014)。其中,微观图像分析技术信息采集区域小,数据代表性较差(Sondergeld et al., 2010),而核磁共振技术和小角衍射技术等需要借助其他测试结果进行标定与检验(Josh et al., 2012)。因此,流体注入测试系列在页岩孔隙结构和物性研究中应用最为广泛,能够满足规模化经济测试需要,包括测量全孔径范围氦孔隙度的气体膨胀法(Luffel and Guidry, 1993)、测量岩心柱裂缝渗透率的脉冲衰减法(Brace et al., 1968)和测量页岩颗粒基质渗透率的压力衰减法(Luffel et al., 1992),而针对孔隙结构表征的测试方法主要为气体吸附法和压汞法。

一直以来,发展完善的孔隙结构定量表征测试方法是页岩储层孔隙结构研究的热点和难点。有学者通过联合多种孔隙结构测试方法来提升表征能力(田华等, 2012; Schmitt et al., 2013; Wang et al., 2015; 曹涛涛等, 2016),还有学者以改进测试样品规格为突破口(Comisky et al., 2011; Darlak et al., 2011; Wei et al., 2016; Zhang et al., 2018)。如何选择适合的测试方法和数据处理方法对页岩样品孔隙结构进行表征?影响表征结果准确性的因素

有哪些?文章通过系统梳理总结已有研究成果,从页岩自身孔隙结构特点出发,对比分析了流体注入系列中不同测试方法的原理和优劣势,对目前常用的气体吸附-压汞联用方法进行了总结并指出其存在的问题,在此基础上指出了以颗粒样测试为代表的页岩孔隙结构测试技术发展趋势。该综述成果将有助于加深对页岩孔隙结构测试结果影响因素的认识,规范页岩孔隙结构测试细节,同时可为页岩孔隙结构全孔径定量表征方法的发展和完善提供重要信息。

## 1 页岩孔隙结构特点及其测试难点

研究发现,页岩储层与一般常规储层岩石在孔隙结构上有很大区别,这对页岩孔隙结构测试提出了新的要求和挑战,主要表现在:①页岩属于孔-缝双重介质,加之自身质脆易裂,页岩样品中自然裂缝与后期钻制样品过程中形成的人工裂缝均十分发育,需要保证孔隙结构表征结果不受人工裂缝影响(Sondergeld et al., 2010; Handwerger et al., 2011);②页岩致密,纳米级孔隙发育且渗流流体能力差(Nelson, 2009; 邹才能等, 2010),这造成一些低压类注入测试(如气体吸附法)很难达到完全的压力平衡从而影响数据质量(Clarkson and Bustin, 1999; Wei et al., 2014),也会导致高压类注入测试(如压汞法)流体注入程度低而不能获得可靠信息(Darlak et al., 2011),同时也会大大增加去除孔隙流体等样品前处理过程所需的时间(Handwerger et al., 2011);③页岩孔隙孔径分布跨度大(Bennett et al., 1991; Milner et al., 2010),采用单一测试方法往往无法覆盖整个孔径范围(Bustin et al., 2008);④页岩微观非均质性显著(Aplin et al., 2012),结构具有各向异性(Kwon et al., 2004),需要充分考虑测试样品的代表性。

由于页岩孔隙结构具有以上复杂特性,对于同一地区、同一层系样品,很可能出现不同测试方法获得的表征结果不同(Bustin et al., 2008);相同测试方法、不同测试条件获得的测试结果也不同(Comisky et al., 2011; Zhang et al., 2018)。因此,需要充分认识页岩孔隙结构特点,才能够

对测试方法适用性和数据质量有更加准确的把握。

## 2 流体注入法

### 2.1 气体吸附法

气体吸附法是一种比较成熟的纳米粉体材料孔隙结构研究手段 (Clarkson and Bustin, 1996)。等温条件下, 通过气体在一定压力变化范围内 (小于气体的饱和蒸气压) 发生的样品表面物理吸附过程来反映孔径分布、比表面和孔体积的大小。不同平衡压力对应不同孔径范围, 根据平衡时气体吸附体积可以推算对应孔径范围的孔体积大小。页岩孔隙结构表征中常用的气体吸附法包括氮气吸附和二氧化碳吸附两种, 前者能够表征 1 ~

300 nm 孔隙, 尤其适用于中孔 (孔径 2 ~ 50 nm), 后者主要用来表征微孔 (孔径测试范围 0.4 ~ 2 nm)。已有研究发现, 在二者的孔径测试重合区间往往能获得具有一致性的表征结果 (Clarkson et al., 2013), 这为实现从微孔到中孔“纳米级”孔隙的表征提供了基础。

对于氮气吸附法, 研究发现, 吸附分支数据能够表征样品中孔径的分布特征, 而由脱附分支数据解释获得的数据表征了样品中孔喉的分布特征 (3.8 nm 处的“鬼峰”数据无效) (Conner et al., 1986; Groen et al., 2003)。此外, 由氮气吸附测试获得的吸附-脱附曲线形态以及二者围成的滞留环形状还能够判断所测试孔隙的几何形状特征 (De Boer, 1958) (图 1)。

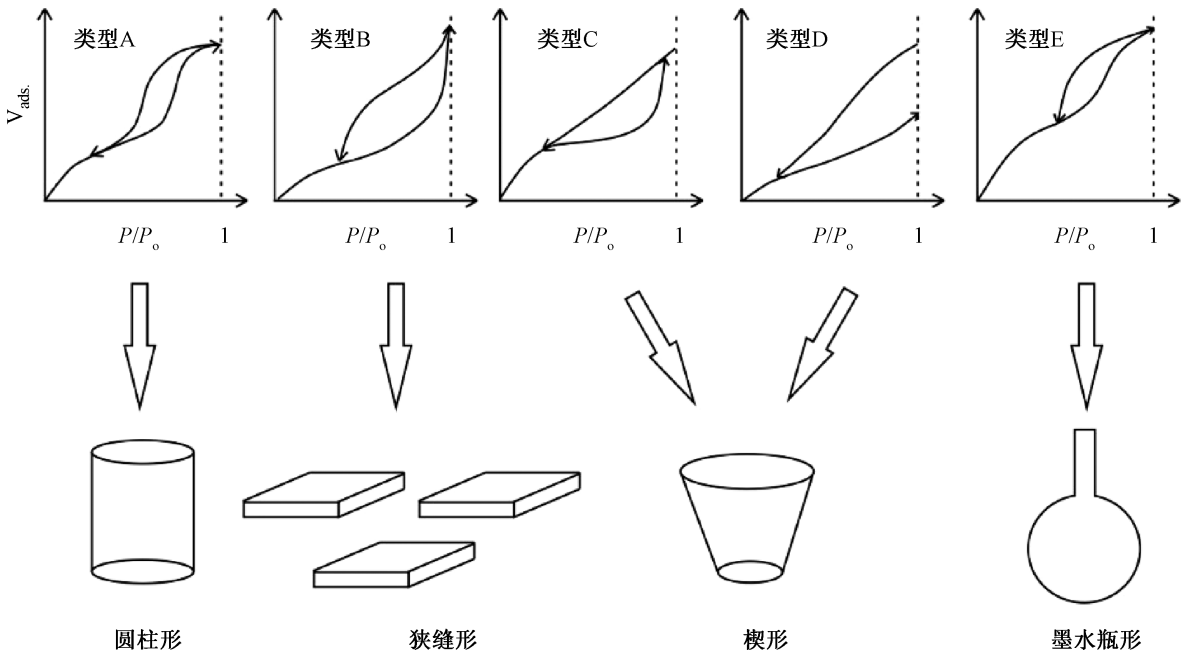


图 1 氮气吸附测试中 5 类滞留环及其对应孔隙形状 (据 Labani et al., 2013 修改)

Fig. 1 Five types of hysteresis loops and their related pore shapes (modified after Labani et al., 2013)

气体吸附法表征孔隙结构的关键之一是数据解释模型的选择。目前, 常用于页岩孔隙结构表征的模型包括 BJH 模型 (主要针对中孔)、DA 或 DR 模型 (主要针对微孔) 以及 NLDFT 模型 (气体吸附测试中的全孔径范围)。相关学者通过对比 TEM 观测和 X 衍射等其他独立方法所得的孔径分布结果, 认为 NLDFT 模型相比其他计算模型的准确性更高, 常以其为标准衡量其他计算模型的效果 (Lowell et al., 2004)。

气体吸附法采用颗粒样测试, 但目前并无统一标准。有多位学者以四川盆地龙马溪组页岩为

研究对象, 采用  $N_2$  和  $CO_2$  吸附法开展孔隙结构特征研究, 但针对“颗粒样粒径对气体吸附测试结果影响”这一问题认识并不一致: Wei et al. (2016) 发现当粉碎粒径小于 140 目 ( $<106 \mu m$ ) 时会造成 10 ~ 100 nm 中一大孔的孔体积增加, 但对微孔孔体积和总比表面参数影响不大; Han et al. (2016) 则认为当颗粒被粉碎至 130 目后 ( $<113 \mu m$ ), 孔体积和比表面等孔隙结构测试结果趋于稳定, 不再受颗粒样粒径大小影响, 而在此之前 (113 ~ 4000  $\mu m$ ), 各尺度孔隙的孔体积和比表面均随粒径减小而增大; Zhang et al. (2018) 发现在

8~200 目 (75~2360  $\mu\text{m}$ ) 范围内, 随颗粒样粒径减小, 总孔体积呈减小趋势, 总比表面则呈增加趋势, 并且微孔和大孔测试结果对颗粒样粒径变化最为敏感。可见, 样品规格对气体吸附测试结果的影响不容忽视, 甚至同一地区、同一套页岩层系, 不同岩石类型的页岩样品中很可能存在差异性。

## 2.2 压汞法

页岩中的“微米级”孔隙的数量虽相对较少, 但对页岩中流体的储集和渗流具有重要的作用, 在孔隙结构研究中不可忽视。压汞法能够针对页岩中的“微米级”、“亚微米级”进行表征。

压汞法测试压力范围为 0~60000 psi, 可以获得 3.6~100000 nm 孔径范围内的孔隙结构信息。显然, 压汞法相比气体吸附法具有更宽的孔径测试范围。压汞法通过外部逐步增压的方式迫使一定体积的汞注入样品的内部空间, 由 Washburn 公式可确定不同进汞压力所对应的圆柱孔孔径大小。

一直以来, 学术界对压汞法表征页岩孔隙结构的能力存在质疑 (Clarkson and Bustin, 1996; Bustin et al., 2008)。Darłak et al. (2011) 发现, 对于传统块 (柱) 样岩石压汞测试, 页岩的进汞饱和度不足 50%, 不能全面获取样品内部结构信息; 并且块 (柱) 样中的微裂缝也在可测孔径范围内, 对获取真实微米级大孔信息形成强烈干扰 (Sondergeld et al., 2010)。为了解决注汞程度低的问题, 有学者开始尝试在煤岩和页岩中使用颗粒样进行压汞测试 (Li et al., 1999; Comisky et al., 2011; Darłak et al., 2011; Yu et al., 2019)。页岩颗粒压汞实验数据表明, 颗粒样可将样品的进汞饱和度提高近一倍 (高达 70% 以上) (表 1)。

表 1 颗粒样和块样压汞充满度对比 (Comisky et al., 2011; Darłak et al., 2011)

Table 1 Comparison of mercury saturation using particle samples and bulk samples (data collected from Comisky et al., 2011; Darłak et al., 2011)

样号	氮气测 孔隙度/%	20~35 目颗粒样 压汞孔隙度/%	汞饱 和度/%	块样压汞 孔隙度/%	汞饱 和度/%
1	5.45	5.42	99	2.42	44
2	7.67	6.56	85	3.32	43
3	7.98	7.24	91	4.59	57
4	1.1	0.80	73	0.43	39
5	1.88	1.48	79	0.89	47
6	9.43	7.70	82	4.44	47
7	6	3.90	65	2.15	36
8	4.9	3.60	73	1.81	37

为了更直观地显示汞在页岩样品中的注入情况, 有学者采用 75  $^{\circ}\text{C}$  下为液态的合金溶液 (Wood's metal) 代替汞, 对不同类型的页岩样品进行了高压注射 (最大压力 316 MPa, 对应 4.1 nm 孔径), 然后切换至室温并保持高压, 待液态金属冻结后取出样品并切片抛光, 在电镜下观测合金在样品中的赋存情况 (Klaver et al., 2015)。测试结果表明, 对于含有裂缝的样品, 合金主要充填在裂缝空间而无法进入大部分孔隙之中; 而在粉砂含量较高的页岩样品中, 合金能够进入绝大部分孔隙空间 (最小孔径 10 nm); 高压下产生的基质变形表现为颗粒旋转、裂缝扩展和闭合以及孔隙闭合和坍塌等, 严重破坏了页岩原有的孔隙结构; 制样造成的裂缝以及高压下产生的基质压缩变形是影响压汞数据有效性的主要因素, 并以前者影响最为显著。可见, 如何检验压汞数据质量是定量表征页岩“大孔”结构的关键。

## 3 页岩全孔径孔隙结构表征

研究表明, 二氧化碳吸附法对微孔 (<2 nm) 具有较好的表征能力, 氮气吸附法对中孔 (2~50 nm) 部分数据质量较高 (谢晓永等, 2006), 压汞法则主要针对中—大孔 (杨峰等, 2013)。由于单一方法测试孔径范围有限, 需要将气体吸附—压汞法联用, 数据互为补充, 从而实现全孔径范围的孔隙结构表征 (Conner et al., 1986)。

在气体吸附—压汞联用表征页岩全孔径孔隙结构中相关学者做了诸多尝试。在数据拼接准则上, 不同学者认识不同: 如田华等 (2012) 采用 50 nm 作为两种方法的数据拼接点; Wang et al. (2015) 采用 100 nm 作为拼接点; 曹涛涛等 (2016) 采用 10 nm 作为拼接点; Schmitt et al. (2013) 以氮气吸附和压汞法拟合所得孔径分布曲线 (孔体积变化率) 的交点作为拼接点。在数据整合方法上, 多数学者多采用“一刀断”的方法直接机械拼合, Wang et al. (2015) 以 100 nm 为分界点, 分别以氮孔隙度、氮气吸附 >100 nm 的孔体积为限制条件, 基于压汞和氮气吸附的孔体积分布频率, 提供了三种数据整合方法, 但不同方法表征结果存在明显差异。目前, 方法联用测试页岩孔隙结构尚未获得理想的应用效果, 存在的主要问题是: ①整合后的孔径曲线不连续, 拼接点处数据大幅



度跳跃或为明显拐点; ②对全孔径孔隙结构联合表征结果缺乏验证环节。同时, 这些研究中多使用颗粒样及其平行块(柱)样分别进行气体吸附和压汞测试, 对压汞数据有效性缺乏论证。

研究成果显示, 造成联合方法对页岩表征能力差的关键问题是氮气吸附法和压汞法在重合孔

径测试区间很难获得具有一致性的孔隙结构测试结果 (Bustin et al., 2008), 二者的孔径分布曲线不仅形态趋势不同, 甚至重合区孔体积大小也可相差几个数量级 (图 2)。二者数据匹配程度低, 无法满足数据整合的前提, 最终导致无法获得真实的全孔径范围孔隙结构特征。

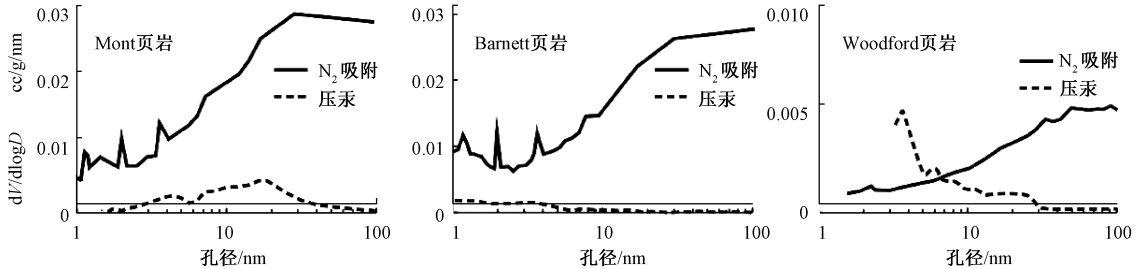


图 2 压汞法与  $N_2$  吸附测定孔径分布曲线对比 (据 Clarkson et al., 2013; Kuila and Prasad, 2013 修改)

Fig. 2 Comparison of pore size distribution results from mercury injection and  $N_2$  adsorption (modified after Clarkson et al., 2013; Kuila and Prasad, 2013)

有学者将造成氮气吸附和压汞孔隙结构表征结果差异的原因归纳为以下两点: 一是表征的孔隙结构类型不同; 二是测试压力条件不同 (Kuila and Prasad, 2013)。气体吸附分支曲线数据反映孔隙孔径信息, 进汞曲线数据反映孔喉信息 (Conner et al., 1986)。当测试样品中“墨水瓶孔”发育时, 孔径与孔喉的差异性不可忽视。但当前研究多表明, 一般页岩气体吸附滞留环类型多为 B 类型 (图 1), 这表明在气体吸附测试的孔径范围内, 页岩中以狭缝孔为主, 而代表墨水瓶孔的 E 类型滞留环 (图 1) 较为少见 (Adesida, 2011; Labani et al., 2013; Kuila and Prasad, 2013)。可见, 在重叠的孔径测试范围, 页岩中孔径与孔喉分化并不明显, 继而对孔径分布测试结果的影响也有限。

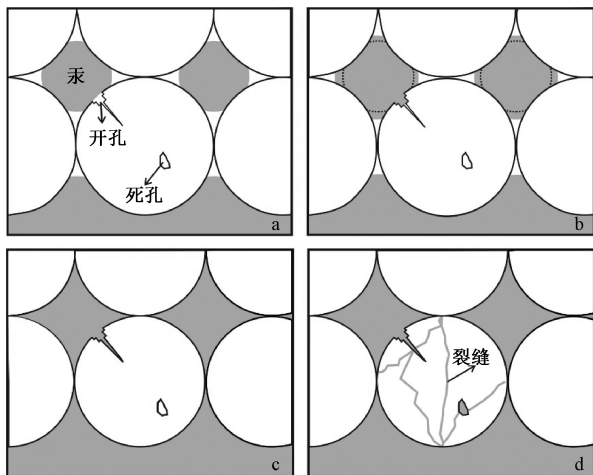
也有学者指出, 气体吸附测试在近气压条件下进行, 而压汞测试属于覆压测试, 孔隙在进汞压力下结构和体积会发生改变 (Labani et al., 2013; Al Hinai et al., 2014)。但最新研究表明 (Peng et al., 2017), 进汞压力对页岩孔隙的影响主要体现在汞进入孔隙后页岩骨架被压缩所造成的孔隙扩张, 尤其当汞进入 10 nm 以下孔隙时, 由基质压缩导致的变形才会对进汞量产生明显影响。可见, 对于气体吸附-压汞主要的孔径重合测试区间 (10~100 nm), 测试压力也不是造成孔径分布差异的根本原因, 而目前对影响气体吸附-压汞测试结果匹配性的主控因素仍不明确, 严重制约了对页岩孔隙结构特征形成正确、全面地认识。

#### 4 展望: 颗粒样测试在页岩孔隙结构定量表征中的应用

针对页岩孔隙结构特点, 有学者以改进测试样品规格为突破口提高流体注入测试系列对页岩孔隙结构的表征能力。Luffel et al. (1992, 1993) 最早以页岩颗粒样品取代块(柱)样品, 首次获取了能够反映页岩基质(不包括裂缝)物性特征的孔隙度和渗透率参数。而越来越多的学者也开始认识到, 颗粒样测试在某种程度上更有利于反映页岩基质孔隙结构: 一方面, 页岩样品在粉碎研磨过程中多沿固有的薄弱面开裂, 可以去除微裂缝等对测试结果的影响 (Luffel and Guidry, 1992; Guidry et al., 1995), 更适用于对孔隙结构的表征; 另一方面, 粉碎和筛选过程并不会造成页岩有机质含量和矿物组成变化 (Wei et al., 2016), 通过粉碎样品至一定粒径颗粒, 可以在基本保留页岩原始结构的前提下合理暴露孔隙, 通过增加流体探针与孔隙的接触面积来获取高质量数据 (Clarkson and Bustin, 1999; Comisky et al., 2011; Darlak et al., 2011; Wei et al., 2014), 同时对提高页岩样品前处理质量和测试效率也十分有利 (Handwerger et al., 2011)。此外, 颗粒样测试可以使用碎岩心样品和岩屑样品, 对于易碎页岩来说, 极大地扩展了样品来源。虽然页岩颗粒样孔隙结构测试优势明显, 但目前相关认识尚不

深入, 缺乏系统研究。

尽管颗粒样相比块(柱)样更适用于页岩样品的压汞测试, 但这同时也对数据解释方法提出了新的挑战。研究表明(Friesen and Mikula, 1987; 韩贝贝等, 2015), 颗粒(粉末)样品在压汞过程中随进汞压力增大依次可以出现以下四个阶段(Yu et al., 2019): 阶段 A—样品颗粒堆积孔进汞段(汞贴合样品表面阶段)、阶段 B—样品内部孔隙进汞段、阶段 C—样品基质压缩变形段、阶段 D—样品原始结构破坏段(图 3)。现有的颗粒压汞数据校正方法的核心在于对阶段 B 起始压力(即样品最大进汞孔径)的识别, 主要包括近似替代法和直接计算法。前者代表如: Li et al (1999) 在煤岩颗粒压汞测试中, 通过对比颗粒样和压片样(由颗粒压制而成)的进汞曲线来确定最大进汞孔径, 但校正结果受制片压力影响较大; Peng et al. (2017) 则直接将配套平行块样的实测最大进汞孔径作为颗粒样数据校正依据。后者代表如: Comisky et al. (2011) 根据压汞过程中孔隙压缩系数随压力变化的分段特征确定了页岩的最大进汞孔径, 但由于孔隙压缩率与压汞过程之间物理意义不明, 其理论基础并不牢靠(Peng et al., 2017)。



a—d 分别对应阶段 A—D

图 3 颗粒样压汞的四个阶段 (Yu et al., 2019)

Fig. 3 Four stages during mercury injection using particle samples, a—d corresponding to Stage A—D (modified after Yu et al., 2019)

在以上现有颗粒压汞数据校正方法中, 阶段 B 对应的压汞数据往往被直接作为有效数据用于反映岩石孔隙结构特征, 并没有考虑到样品颗粒堆

积孔进汞作用是伴随整个压汞测试过程的。在一定压力下, 汞进入页岩内部发育孔隙, 同时也会进入相同孔径大小的样品颗粒堆积孔。Stanmore et al. (1997) 的球状堆积理论计算结果表明, 样品孔隙度越小、使用颗粒样的粒径越小, 样品颗粒堆积孔进汞量在实测进汞量中所占比重就越大; 随压力逐渐增大, 其影响程度逐渐降低。因此, 对于页岩颗粒压汞, 阶段 B 进汞过程中样品颗粒堆积孔进汞量也不能忽视。

分形理论可以帮助描述上述颗粒样品压汞测试中的物理过程, 是一种涵盖多尺度的数据分析方法, 十分具有发展潜质。Friesen and Mikula (1987) 基于门格海绵分形模型, 以煤岩颗粒样品为例, 对颗粒样品压汞测试的四个阶段进行了划分, 同时明确了不同阶段的理论分形维数范围:

$$\lg\left(-\frac{dV_p}{dP}\right) \propto (4 - D) \lg P \quad (1)$$

式中,  $V_p$  为在进汞压力  $P$  下的累计进汞体积,  $D$  为分形维数。

当孔隙具有分形特征时,  $\lg\left(\frac{dV_p}{dP}\right)$  和  $\lg P$  具有线性相关性, 通过在双对数坐标系统中拟合的斜率  $K$  可以计算孔隙的分形维数:

$$D = 4 + K \quad (2)$$

其中阶段 A (图 3a) 中样品颗粒堆积形成的孔隙具有体分形特征, 对应分形维数  $D$  分布在 1~2; 阶段 B (图 3b) 中页岩自身发育孔隙具有表面分形特征, 对应分形维数  $D$  分布在 2~3; 阶段 C (图 3c) 以基质压缩变形产生的进汞量为主导, 分形维数  $D$  分布在 3~4, 并且  $D$  越接近 4, 基质压缩效应越显著; 阶段 D (图 3d) 中原始孔隙结构已遭破坏, 导致这一标度内的孔隙已不再具有分形特征, 表现为无法线性拟合的散点。以上阶段划分依据完全基于分形维数在该分形模型中所代表的物理意义, 是通过数学推导获得的理论结果, 适用于所有孔隙具有表面分形特征的岩石颗粒样品(Friesen and Mikula, 1987)。Yu et al. (2019)

将页岩实测压汞数据投影在  $\lg\left(\frac{dV_p}{dP}\right)$  vs  $\lg P$  双对数坐标图后发现, 压汞数据具有明显的分段性, 实测分形维数  $D$  与理论值范围吻合(图 4)。目前, 该分形方法目前更多应用于煤岩压缩性研究(Li et al., 1999; 韩贝贝等, 2015)和页岩孔隙分形特

征研究 (王欣等, 2015)。尚未有学者将其发展为一种成熟的颗粒压汞数据校正方法。

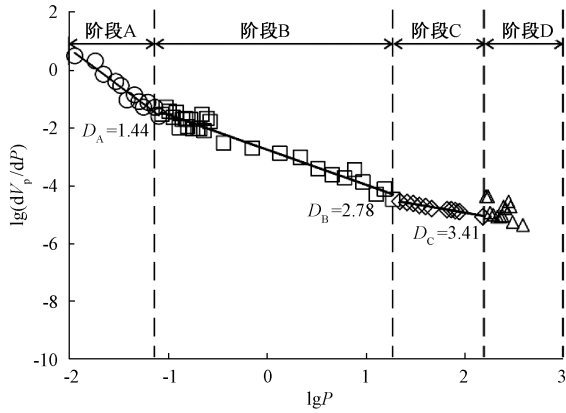


图4 页岩实测压汞数据的分形特征 (鄂尔多斯三叠系张家滩陆相页岩, Yu et al., 2019)

Fig. 4 Fractal characteristics of mercury injection data of a certain shale sample from Triassic Zhangjiatan shale in the Ordos Basin (modified after Yu et al., 2019)

对于页岩颗粒样孔隙结构测试来说,除了亟需发展完善颗粒压汞数据校正方法和全孔径孔隙结构联合表征方法研究外,另一关键问题就是颗粒样粒径标准的选择。无论是压汞法还是气体吸附法,采用颗粒样粒径越小,越有利于获取高质量的测试数据 (Clarkson and Bustin, 1999; Comisky et al., 2011; Darlak et al., 2011; Han et al., 2016),但过度粉碎同时也会破坏页岩原始结构 (Zhang et al., 2018)。如何衡量利弊并找到二者平衡点是确定颗粒样孔隙结构测试最优粒径的关键。

在页岩颗粒样的孔隙度和渗透率测试中,采用20~35目(500~850  $\mu\text{m}$ )颗粒能够获取与块(柱)样相当的测试结果 (Luffel and Guidry, 1992; Luffel et al., 1993; Handwerker et al., 2011),因此被GRI (1996)和API-RP 40 (1998)等岩心测试标准所采纳作为标准粒径。这一粒径是否同样适用于孔隙结构测试?目前尚无定论。Comisky et al. (2011)与Darlak et al. (2011)等基于压汞法提出20~35目是最优粒径,能够获取最接近柱样氦孔隙度测试值的压汞孔隙度以及具有可重复性的孔径分布结果。而对于气体吸附法,由于不同学者考虑角度不同,所给出的最优粒径存在差异。Adesida (2011)与Chen et al. (2015)基于 $\text{N}_2$ 吸附法提出20目以下颗粒(<850  $\mu\text{m}$ )会造成总孔体积增大,为了保存页岩原始结构,推荐使用20目

(850  $\mu\text{m}$ )及其以上粒径;而Han et al. (2016)从测试结果稳定性角度出发,认为130目(113  $\mu\text{m}$ )及其以下粒径的页岩颗粒样更适用于 $\text{N}_2$ 和 $\text{CO}_2$ 吸附实验。可见,不同孔隙结构测试方法所需的最优颗粒样粒径可能不同,需要同时考虑颗粒样粒径对不同方法测试结果匹配性的影响。

由于注入类测试效果本身就受颗粒样粒径大小影响,加之页岩样品自身也会存在差异,探索粉碎和筛选对页岩孔隙结构所造成的影响应同时借助非注入类测试技术开展机理研究。以CT成像、三维X射线显微成像为代表的射线辐射三维图像分析技术可以直观获取包括闭孔在内的多尺度孔隙结构特征,有利于从根本上认识颗粒制样过程对页岩孔隙结构的影响。

## 5 结论

流体注入测试系列是目前页岩储层表征研究中应用最为广泛的测试方法。气体吸附法和压汞法联用能够提供覆盖全孔径范围的孔隙结构定量信息,通过提高不同测试方法的数据匹配性、采用其他物性参数等进行辅助验证有助于完善现有的全孔径孔隙结构表征方法。其中,保证压汞数据质量是页岩全孔径孔隙结构表征的关键。采用页岩颗粒样开展流体注入测试是一种有效的方法,是未来页岩孔隙结构定量表征测试方法研究的趋势,其中颗粒粒径的选择以及配套数据处理方法的建立是目前发展该项技术亟待解决的关键问题。

## References

- ADESIDA A, 2011. Pore size distribution of Barnett shale using nitrogen adsorption data [D]. Oklahoma: University of Oklahoma.
- AL HINAI A, REZAAE R, ESTEBAN L, et al., 2014. Comparisons of pore size distribution: a case from the Western Australian gas shale formations [J]. *Journal of Unconventional Oil and Gas Resources*, 8: 1-13.
- API RP 40, 1998. Recommended practices for core analysis [R]. 2nd ed. American: American Petroleum Institute.
- APLIN A C, COUPLES G D, DREWS M, et al., 2012. Multi-scale effective flow properties of heterogeneous mudstones [C] // *Proceedings of AAPG Hedberg conference, petroleum systems: modeling the past, planning the future-nice*. France: American

- Association of Petroleum Geologists: 1-5.
- BENNETT R H, BRYANT W R, HULBERT M H, et al., 1991. Microstructure of fine-grained sediments [M]. New York: Springer-Verlag.
- BRACE W F, WALSH J B, FRANGOS W T, 1986. Permeability of granite under high pressure [J]. *Journal of Geophysical Research*, 73 (6): 2225-2236.
- BUSTIN R M, BUSTIN A M M, CUI X, et al., 2008. Impact of shale properties on pore structure and storage characteristics [C] // Proceedings of society of petroleum engineers shale gas production conference. Texas, USA; Society of Petroleum Engineers.
- CAO T T, SONG Z G, LIU G X, et al., 2016. Characteristics of shale pores, fractal dimension and their controlling factors determined by nitrogen adsorption and mercury injection methods [J]. *Petroleum Geology and Recovery Efficiency*, 23 (2): 1-8. (in Chinese with English abstract)
- CHEN Y Y, WEI L, MASTALERZ M, et al., 2015. The effect of analytical particle size on gas adsorption porosimetry of shale [J]. *International Journal of Coal Geology*, 138: 103-112.
- CLARKSON C R, BUSTIN R M, 1996. Variation in micropore capacity and size distribution with composition in bituminous coal of the Western Canadian Sedimentary Basin: Implications for coalbed methane potential [J]. *Fuel*, 75 (13): 1483-1498.
- CLARKSON C R, BUSTIN R M, 1999. The effect of pore structure and gas pressure upon the transport properties of coal: a laboratory and modeling study. 1. Isotherms and pore volume distributions [J]. *Fuel*, 78 (11): 1333-1344.
- CLARKSON C R, SOLANO N, BUSTIN R M, et al., 2013. Pore structure characterization of North American shale gas reservoirs using USANS/SANS, gas adsorption, and mercury intrusion [J]. *Fuel*, 103: 606-616.
- COMISKY J T, SANTIAGO M, MCCOLLOM B, et al., 2011. Sample size effects on the application of mercury injection capillary pressure for determining the storage capacity of tight gas and oil shales [C] // Proceedings of Canadian Unconventional Resources Conference. Calgary, Alberta, Canada; Society of Petroleum Engineers.
- CONNER W C, CEVALLOS-CANAU J F, WEIST E L, et al., 1986. Characterization of pore structure: porosimetry and sorption [J]. *Langmuir*, 2 (2): 151-154.
- CURTIS J B, 2002. Fractured shale-gas systems [J]. *AAPG Bulletin*, 86 (11): 1921-1938.
- DARŁAK B, KOWALSKA-WŁODARCZYK M, SUCH P, 2011. Methodological aspects of porosity and pore space measurements in shale rocks [J]. *Nafta-Gaz*, 67 (5): 326-330.
- DE BOER J H, 1958. The structure and properties of porous materials [M] // EVERETT D H, STONE F S. Proceedings of the tenth symposium of the Colston research society. London: Butterworths: 68-94.
- FRIESEN W I, MIKULA R J, 1987. Fractal dimensions of coal particles [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 120 (1): 263-271.
- GROEN J C, PEFFER L A A, PÉREZ-RAMÍREZ J, 2003. Pore size determination in modified micro- and mesoporous materials. Pitfalls and limitations in gas adsorption data analysis [J]. *Microporous and Mesoporous Materials*, 60 (1-3): 1-17.
- GUIDRY F K, LUFFEL D L, CURTIS J B, 1995. Development of laboratory and Petrophysical techniques for evaluating shale reservoirs [R]. GRI Final Technical Report GRI-95/0496. Chicago, IL: Gas Research Institute.
- HAN B B, QIN Y, ZHANG Z, et al., 2015. Study on coal compressibility and correction of compression amount based on compressibility of mercury injection test [J]. *Coal Science and Technology*, 43 (3): 68-72. (in Chinese with English abstract)
- HAN H, CAO Y, CHEN S J, et al., 2016. Influence of particle size on gas-adsorption experiments of shales: an example from a Longmaxi Shale sample from the Sichuan Basin, China [J]. *Fuel*, 186: 750-757.
- HANDWERGER D A, KELLER J, VAUGHN K, 2011. Improved Petrophysical core measurements on tight shale reservoirs using retort and crushed samples [C] // Proceedings of SPE annual technical conference and exhibition. November; SPE.
- HOUBEN M E, DESBOIS G, URAI J L, 2014. A comparative study of representative 2D microstructures in Shaly and Sandy facies of Opalinus Clay (Mont Terri, Switzerland) inferred from BIB-SEM and MIP methods [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 49 (1): 143-161.
- JOSH M, ESTEBAN L, PIANE C D, et al., 2012. Laboratory characterisation of shale properties [J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 88-89: 107-124.
- KLAVER J, HEMES S, HOUBEN M, et al., 2015. The connectivity of pore space in mudstones: insights from high-pressure Wood's metal injection, BIB-SEM imaging, and mercury intrusion porosimetry



- [J]. *Geofluids*, 15 (4): 577-591.
- KUILA U, PRASAD M A, 2013. Specific surface area and pore-size distribution in clays and shales [J]. *Geophysical Prospecting*, 61 (2): 341-362.
- KWON O, KRONENBERG A K, GANGI A F, et al., 2004. Permeability of illite-bearing shale: 1. Anisotropy and effects of clay content and loading [J]. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 109 (B10): B10205.
- LABANI M M, REZAEI R, SAEEDI A, et al., 2013. Evaluation of pore size spectrum of gas shale reservoirs using low pressure nitrogen adsorption, gas expansion and mercury porosimetry: a case study from the Perth and Canning Basins, Western Australia [J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 112 (3): 7-16.
- LI Y H, LU G Q, RUDOLPH V, 1999. Compressibility and fractal dimension of fine coal particles in relation to pore structure characterisation using mercury porosimetry [J]. *Particle & Particle Systems Characterization*, 16 (1): 25-31.
- LOWELL S, SHIELDS J E, THOMAS M A, et al., 2004. Characterization of porous solids and powders: Surface area, pore size and density [M]. Netherlands: Springer.
- LUFFEL D L, GUIDRY F K, 1992. New core analysis methods for measuring reservoir rock properties of Devonian shale [J]. *Journal of Petroleum Technology*, 44 (11): 1184-1190.
- LUFFEL D L, HOPKINS C W, SCHETTLER P D Jr, 1993. Matrix permeability measurement of gas productive shales [C] // *Proceedings of SPE annual technical conference and exhibition*. Houston: SPE.
- MILNER M, MCLIN R, PETRIELLO J, 2010. Imaging texture and porosity in mudstones and shales: comparison of secondary and ion-milled backscatter SEM methods [C] // *Proceedings of Canadian Unconventional Resources and International Petroleum Conference*. Calgary, Alberta, Canada: Society of Petroleum Engineers: 1-10.
- NELSON P H, 2009. Pore-throat sizes in sandstones, tight sandstones, and shales [J]. *AAPG Bulletin*, 93 (3): 329-340.
- PENG S, ZHANG T W, LOUCKS R G, et al., 2017. Application of mercury injection capillary pressure to mudrocks: conformance and compression corrections [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 88: 30-40.
- SCHMITT M, FERNANDES C P, DA CUNHA NETO J A B, et al., 2013. Characterization of pore systems in seal rocks using Nitrogen Gas Adsorption combined with Mercury Injection Capillary Pressure techniques [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 39 (1): 138-149.
- SHANG C J, KANG Y S, DENG Z, et al., 2019. The influence mechanism of filled natural fractures on the variation law of shale permeability in loading process [J]. *Journal of Geomechanics*, 25 (3): 382-391. (in Chinese with English abstract)
- SONDERGELD C H, AMBROSE R J, RAI C S, et al., 2010. Microstructural studies of gas shales [C] // *Proceedings of Society of Petroleum Engineers Unconventional Gas Conference*. Pittsburgh, Pennsylvania, USA: Society of Petroleum Engineers: 1-17.
- STANMORE B R, HE Y H, WHITE E T, et al., 1997. Porosity and water retention in coarse coking coal [J]. *Fuel*, 76 (3): 215-222.
- TIAN H, ZHANG S C, LIU S B, et al., 2012. Determination of organic-rich shale pore features by mercury injection and gas adsorption methods [J]. *Acta Petrolei Sinica*, 33 (3): 419-427. (in Chinese with English abstract)
- WANG G C, JU Y W, YAN Z F, et al., 2015. Pore structure characteristics of coal-bearing shale using fluid invasion methods: a case study in the Huainan-Huaibei Coalfield in China [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 62: 1-13.
- WANG X, QI M, HU Y L, et al., 2015. Analysis of the shale pore structures by the combination of high-pressure mercury injection and fractal theory [J]. *Petroleum Geology and Oilfield Development in Daqing*, 34 (2): 165-169. (in Chinese with English abstract)
- WEI L, MASTALERZ M, SCHIMMELMANN A, et al., 2014. Influence of Soxhlet-extractable bitumen and oil on porosity in thermally maturing organic-rich shales [J]. *International Journal of Coal Geology*, 132: 38-50.
- WEI M M, XIONG Y Q, ZHANG L, et al., 2016. The effect of sample particle size on the determination of pore structure parameters in shales [J]. *International Journal of Coal Geology*, 163: 177-185.
- WU L Q, LIU C L, ZHANG T, et al., 2018. The application of two factor method in quantitative prediction of tectonic fractures: a case study of shale in Qing-1 member, Songliao Basin [J]. *Journal of Geomechanics*, 24 (5): 598-606. (in Chinese with English abstract)
- XIE X Y, TANG H M, WANG C H, et al., 2006. Contrast of nitrogen adsorption method and mercury porosimetry method in analysis of shale's pore size distribution [J]. *Natural Gas Industry*, 26 (12): 100-102. (in Chinese with English abstract)

YANG F, NING Z F, KONG D T, et al., 2013. Pore structure of shales from high pressure mercury injection and nitrogen adsorption method [J]. *Natural Gas Geoscience*, 24 (3): 450-455. (in Chinese with English abstract)

YU Y X, LUO X R, WANG Z X, et al., 2019. A new correction method for Mercury Injection Capillary Pressure (MICP) to characterize the pore structure of shale [J]. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 68: 102896.

ZHANG S W, XIAN X F, ZHOU J P, et al., 2018. Experimental study of the pore structure characterization in shale with different particle size [J]. *Journal of Energy Resources Technology*, 140 (5): 054502.

ZOU C N, DONG D Z, WANG S J, et al., 2010. Geological characteristics, formation mechanism and resource potential of shale gas in China [J]. *Petroleum Exploration and Development*, 37 (6): 641-653. (in Chinese with English abstract)

#### 附中文参考文献

曹涛涛, 宋之光, 刘光祥, 等, 2016. 氮气吸附法—压汞法分析页岩孔隙、分形特征及其影响因素 [J]. *油气地质与采收率*, 23

(2): 1-8.

韩贝贝, 秦勇, 张政, 等, 2015. 基于压汞试验的煤可压缩性研究及压缩量校正 [J]. *煤炭科学技术*, 43 (3): 68-72.

尚春江, 康永尚, 邓泽, 等, 2019. 充填天然裂缝对页岩受载过程中渗透率变化规律影响机理分析 [J]. *地质力学学报*, 25 (3): 382-391.

田华, 张水昌, 柳少波, 等, 2012. 压汞法和气体吸附法研究富有机质页岩孔隙特征 [J]. *石油学报*, 33 (3): 419-427.

王欣, 齐梅, 胡永乐, 等, 2015. 高压压汞法结合分形理论分析页岩孔隙结构 [J]. *大庆石油地质与开发*, 34 (2): 165-169.

吴林强, 刘成林, 张涛, 等, 2018. “二元法”在构造裂缝定量预测中的应用: 以松辽盆地青一段泥页岩为例 [J]. *地质力学学报*, 24 (5): 598-606.

谢晓永, 唐洪明, 王春华, 等, 2006. 氮气吸附法和压汞法在测试泥页岩孔径分布中的对比 [J]. *天然气工业*, 26 (12): 100-102.

杨峰, 宁正福, 孔德涛, 等, 2013. 高压压汞法和氮气吸附法分析页岩孔隙结构 [J]. *天然气地球科学*, 24 (3): 450-455.

邹才能, 董大忠, 王社教, 等, 2010. 中国页岩气形成机理、地质特征及资源潜力 [J]. *石油勘探与开发*, 37 (6): 641-653.

#### 开放科学 (资源服务) 标识码 (OSID):

可扫码直接下载文章电子版, 也有可能听到作者的语音介绍及更多文章相关资讯

