

Міністерство освіти і науки України
Київський національний університет імені Тараса Шевченка
ННІ «Інститут геології»
Кафедра геофізики

КВАЛІФІКАЦІЙНА РОБОТА МАГІСТРА
спеціальність 103 – Науки про Землю
освітня програма «Геофізика»

ТЕМА: «Застосування методу магнітно-резонансної томографії для дослідження процесу витіснення нафти з пористих середовищ»

Виконав магістрант кафедри геофізики
2-го року навчання
Букатюк Роман Миколайович

Науковий керівник доктор геологічних наук, професор
Вижва Сергій Андрійович

Робота рекомендується до захисту (протокол № 15
засідання кафедри геофізики від 4 травня 2022 року)

Виконувач обов'язків доктор геологічних наук
завідувача кафедри Шабатура Олександр Вікторович

Київ - 2022

ЗМІСТ

ПЕРЕЛІК СКОРОЧЕНЬ.....	3
ВСТУП	4
1. ОСНОВИ МАГНІТНО-РЕЗОНАНСНОЇ ТОМОГРАФІЇ	7
1.1. Вступ.....	7
1.2. Спінова фізика.....	10
1.3. Принципи отримання зображень	21
2. ЗАСТОСУВАННЯ МРТ У НАФТОГАЗОВІЙ ГАЛУЗІ.....	25
2.1. Вивчення газових гідратів.....	26
2.2. Дослідження конвекції в рідинах.....	29
2.3. Удосконалення методики вилучення нафти	34
3. ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНА ЧАСТИНА ДОСЛІДЖЕННЯ	40
3.1. Експериментальна установка.....	40
3.2. Роздільність МРТ і поле зору.....	42
3.3. Пористе середовище.....	43
3.4. Рідини... ..	44
3.5. Опис експерименту... ..	44
4. РЕЗУЛЬТАТИ ДОСЛІДЖЕННЯ.....	47
4.1. Експеримент 1.....	48
4.2. Експеримент 2.....	55
4.3. Експеримент 3.....	63
ВИСНОВКИ... ..	71
СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ.....	75

Перелік умовних позначень, символів, одиниць вимірювання, скорочень

ВНК	водофазний контакт
ГМ	гідрат метану
МР	магнітний резонанс
МРТ	магнітно-резонансна томографія
пк	піксель
сП	сантипуаз
Тл	тесла
ЯМР	ядерно-магнітний резонанс
CO ₂	вуглекислий газ
CW	безперервна хвиля
FOV	поле зору
MI	середня інтенсивність
PV	поровий об'єм
sc-CO ₂	вуглекислий газ у надкритичному стані
SNR	відношення сигнал-завада

ВСТУП

Метод магнітно-резонансної томографії лише досить недавно вийшов за рамки медицини, однак рік у рік він усе частіше знаходить застосування в галузях інженерії, нафтогазової геології та геофізики.

Актуальність роботи полягає в тому, що Україна для своєї енергонезалежності та забезпечення потреб економіки повинна нарощувати видобуток вуглеводнів. Використання експериментальних моделей пористого середовища та застосування методу МРТ дають змогу змоделювати найоптимальніші умови вилучення вуглеводнів із земних надр, а отже, зробити видобуток якомога більш економічно вигідним.

Мета роботи – дослідити процес витіснення нафти водою з пористих середовищ за допомогою методу магнітно-резонансної томографії; вивчити зміну коефіцієнта нафтонасиченості та просторового розподілу нафтової фази під час виконання дослідів; обчислити залишкову нафтонасиченість у досліджуваних зразках; вивчити характерні особливості поведінки міжфазної поверхні під час проведення експериментів.

Об'єкт досліджень – моделі пористого середовища, представлені піском, насиченим гасом типу РТХ2000 як нафтовою фазою; водний розчин $MnCl_2$ як витісняльна фаза; процес витіснення нафтової фази з порового простору піску водною фазою.

Предмет досліджень – МРТ-сигнал та його інтенсивність, зумовлені вмістом гідрогену в компонентах досліджуваної системи.

Розв'язувані задачі:

- опанувати теоретичні аспекти ядерного магнітного резонансу, магнітно-резонансної томографії та будову МРТ-апаратів;
- здійснити пошук та опрацювати сучасні наукові статті, що описують застосування МРТ для візуалізації багатофазного потоку в пористих середовищах;

- підібрати найвідповідніші речовини для імітації пористого середовища та рідини для відтворення поведінки флюїдів, що його заповнюють;
- створити модель пористого середовища та дослідницьку систему, що буде наближено відтворювати процес витіснення нафти з реального геологічного середовища;
- виконати досліди з витіснення водою нафти з порового простору із застосуванням експериментальної установки для отримання вхідних даних;
- здійснити обробку даних у програмному забезпеченні MATLAB задля отримання візуальних та числових результатів;
- удосконалити наявний код у MATLAB для кращої репрезентативності отриманих результатів;
- виконати інтерпретацію отриманих результатів та зробити висновки.

Методологічні засади та методи дослідження включають створення моделі пористого середовища, у якій відтворюватиметься процес витіснення нафти водою; застосування МРТ для отримання зображень, що диференціюють зразок за вмістом гідрогену в ньому; обробку вхідних даних у програмному забезпеченні MATLAB та їхню інтерпретацію для отримання кінцевих результатів.

Наукова новизна роботи полягає в тому, що вперше в Україні описано застосування методу МРТ для дослідження процесу витіснення нафти з пористого середовища та отримано кількісні результати динаміки зміни нафтонасиченості зразка під час закачування в нього води.

Практичне значення отриманих результатів полягає в тому, що, удосконаливши модель та експериментальну установку, запропоновану методику можна використовувати для оптимізації процесу вилучення вуглеводнів з природних резервуарів.

Теоретичне значення роботи полягає в тому, що отримані кількісні та якісні результати дослідження можуть бути використані для вдосконалення методики прогнозу поведінки рідин у багатофазному потоці, розробці нових алгоритмів

моделювання та можливості контролю достовірності результатів, адже саме МРТ наразі дає змогу отримати зображення з найвищою розрізненністю.

Основні наукові здобутки: отримано послідовності МРТ-зображень, що відображають поведінку та характер розподілу нафтової фази в процесі її витіснення з пористого середовища; побудовано криві зміни нафтонасиченості з часом; обчислено залишкову нафтонасиченість досліджуваних зразків.

Власний внесок здобувача: досліджено наукові роботи на тематику застосування МРТ для вивчення пористих середовищ та багатофазних потоків; під керівництвом наукового керівника складено експериментальну установку та проведено три експерименти, унаслідок чого отримано МРТ-зображення досліджуваного явища; оптимізовано код у середовищі MATLAB для покращення якості та інформативності отриманих даних; здійснено інтерпретацію отриманих результатів.

Апробація. Результати дослідження було представлено на П'ятому Міжнародному паливному конгресі, що відбувався 23-24 листопада 2021 року в Києві. На цьому конгресі дослідження (*Bukatiuk, 2021*) посіло друге місце серед студентських робіт.

Структура. Робота складається з чотирьох розділів, містить тридцять вісім рисунків та одну таблицю. Для написання цієї роботи було використано 21 джерело літератури.

Експериментальну частину дослідження було виконано в лабораторії енергій та теоретичної і прикладної механіки (LEMTA) та лабораторії кристалографії, магнітного резонансу та моделювання (CRM²) у рамках навчання за програмою обміну студентів «Erasmus+» у Вищій національній школі геології (ENSG) університету Лотарингії, місто Вандевр-ле-Нансі, Франція.

Висловлюю глибоку подяку професорці університету Лотарингії Панфіловій Ірині, під керівництвом якої я виконав експериментальну частину дослідження, а також своєму науковому керівнику професорові Вижві Сергію Андрійовичу.

ОСНОВИ МАГНІТНО-РЕЗОНАНСНОЇ ТОМОГРАФІЇ

1.1. Вступ

Ядерний магнітний резонанс (ЯМР) — це явище, яке виникає, коли ядра певних атомів потрапляють у статичне магнітне поле й піддаються впливу другого коливального магнітного поля. Деяким ядрам це явище притаманне, іншим же — ні, залежно від того, чи володіють вони властивістю під назвою спін. Розглянемо для більшої ясності будову ядра.

Більшість речовин, які можна досліджувати завдяки ЯМР, складаються з молекул. Молекули, відповідно, складаються з атомів. Розглянемо, наприклад, молекулу води. Кожна така молекула містить один атом кисню й два атоми гідрогену. Ядро кожного з атомів гідрогену складається з одного протона. Протон, відповідно, має властивість, що називається спіном, який можна уявити як невеличке магнітне поле, що викликає появу ЯМР-сигналу.

Спектроскопією називають вивчення взаємодії електромагнітного випромінювання з речовиною. Ядерно-магнітна резонансна спектроскопія полягає у використанні явища ЯМР для вивчення фізичних, хімічних і біологічних властивостей речовини. Як наслідок, ЯМР-спектроскопія широко застосовується в кількох областях науки. ЯМР-спектроскопію зазвичай використовують хіміки для вивчення структури хімічних речовин за допомогою простих одновимірних методів. Двовимірні методи застосовують для визначення структури більш складних молекул. Ці методи часто є альтернативою рентгенівській кристалографії. Для дослідження молекулярної динаміки в розчинах застосовують спектроскопічні методи ЯМР у часовій області. Для визначення молекулярної структури твердих речовин використовують ЯМР-спектроскопію твердого тіла. Також розроблені методи ЯМР для вимірювання коефіцієнтів дифузії.

Універсальність ЯМР робить його достатньо поширеним у науці. Учені усвідомлюють, що знання наукових та технологічних принципів ЯМР є вкрай важливими для розробки нових способів практичного й теоретичного

застосування цього явища для різних галузей. Багато динамічних концепцій ЯМР-спектроскопії складно пояснити за допомогою статичних діаграм у друкованих виданнях, тому вони вимагають використання анімаційних матеріалів. Вичерпна картина основних принципів, необхідних для елементарного засвоєння ЯМР-спектроскопії, охоплює одразу декілька рівнів: мікроскопічний, макроскопічний та системний.

Магнітно-резонансна томографія (МРТ) – це метод візуалізації, який використовується в основному в медичних установах для отримання високоякісних зображень людського тіла зсередини. МРТ ґрунтується на принципах ядерного магнітного резонансу (ЯМР) — спектроскопічної методики, яка використовується вченими для отримання мікроскопічної хімічної та фізичної інформації про молекули. Цей метод отримав назву магнітно-резонансної томографії, а не ядерної магнітно-резонансної томографії (ЯМРТ) через негативні конотації, пов'язані зі словом «ядерний» наприкінці 1970-х років (*Hornak, 1997-2017*). МРТ спочатку була технікою томографічної візуалізації, тобто вона створювала зображення ЯМР-сигналу тонкого зрізу тканин. Згодом МРТ вийшла за межі техніки томографічної візуалізації до техніки об'ємної візуалізації. Надалі буде представлено вичерпну картину основних принципів МРТ.

Станом на 2003 рік в усьому світі було приблизно 10 000 апаратів МРТ, а за рік було зроблено близько 75 мільйонів МРТ-сканувань. Оскільки галузь МРТ продовжує розвиватися, збільшуються й можливості МРТ.

Для зчитування магнітно-резонансних зображень потрібні рентгенологи, навчені МРТ. Рентгенолог – це лікар, який спеціалізується в області радіології. Технолог МРТ – це особа, яка керує МРТ-сканером для отримання зображень, зазначених радіологом. Нещодавно в області МРТ з'явилися дві нові посади спеціаліста: технолог із постобробки та фахівець з охорони здоров'я. Технолог із постобробки МРТ застосовує різні алгоритми постобробки до магнітно-резонансних зображень, щоб отримати більше інформації із зображень або

забезпечити кращу візуалізацію інформації на магнітно-резонансних (МР) зображеннях. Фахівець з охорони здоров'я допомагає лікарням і клінікам налаштовувати та підтримувати систему МРТ в належному стані.

Через складність системи МРТ, для її належного функціонування існує потреба в техніках з обслуговування МРТ. Важливими задачами вчених у галузі МРТ є виготовлення контрастної речовини, розвиток молекулярної візуалізації, а також розробка покращеної візуалізації послідовності імпульсів.

Для розробки підсистем МРТ потрібні інженери-біомедики та матеріалознавці. Новою сферою, що вимагає чимало кваліфікованих працівників, є розробка сумісних з МРТ пристроїв. Це, наприклад, кардіостимулятори, дефібрилятори, хірургічні затискачі та шпильки, а також катетери.

Вчені з візуалізації потрібні для розробки алгоритму постобробки магнітно-резонансних зображень та коду для виявлення й діагностики патологій. Комп'ютерні науковці потрібні для розробки зручних для користувача ефективних графічних інтерфейсів (GUI) для нещодавно розробленого програмного забезпечення.

Магнітний резонанс був створений як томографічна методика отримання ЯМР-зображень зрізу тканин. Кожен зріз має певну товщину й складається з кількох об'ємних елементів, або вокселів. Об'єм вокселя становить приблизно 2 мм³. Магнітно-резонансне зображення складається з кількох елементів, що називаються пікселями. Інтенсивність пікселя пропорційна інтенсивності ЯМР-сигналу вмісту певного елемента в зображуваному вокселі.

Магнітно-резонансна томографія ґрунтується на поглинанні та випромінюванні енергії в радіочастотному діапазоні електромагнітного спектра. Зазвичай ученим не вдається отримувати зображення об'єкта, чиї розміри менші за довжину хвилі. Утім МРТ обходить це обмеження, створюючи зображення на основі просторових варіацій фази та частоти радіочастотної енергії, що поглинається та випромінюється об'єктом зображення (*Hornak, 1997-2017*).

Тіло людини передусім складається з жиру й води, які містять велику кількість атомів гідрогену, що становлять в організмі людини приблизно 63% всіх атомів гідрогену. Ядра гідрогену містять ЯМР-сигнал. У зв'язку з цим магнітно-резонансна томографія передусім відображає ЯМР-сигнал від ядер гідрогену. Кожен воксель зображення людського тіла містить одну або кілька тканин. Візьмімо воксель з однією тканиною всередині. Якщо збільшити воксель, то можна ідентифікувати клітини. У кожній клітині містяться молекули води. Кожна молекула складається вже з одного атома кисню й двох атомів гідрогену. Атоми гідрогену містять ядро, що складається з одного протона. Цей протон має властивість, що називається спіном і яку можна уявити як невеличке магнітне поле, що викликає появу ЯМР-сигналу.

1.2. Спінова фізика

Спін є фундаментальною природною властивістю, так само як електричний заряд чи маса. Спін кратний $1/2$ і може бути додатним або від'ємним. Протони, електрони та нейтрони володіють спіном. Окремі неспарені електрони, протони та нейтрони мають спін $1/2$.

В атомі дейтерію ^2H з одним неспареним електроном, одним неспареним протоном і одним неспареним нейтроном загальний електронний спін дорівнює $1/2$ і загальний спін ядра становить 1.

Дві чи більше частинок зі спінами, що мають протилежні знаки, можуть об'єднуватися в пари, що призводить до компенсування спостережуваного спіну. Прикладом речовини, для якої характерна така компенсація, є гелій. У ядерному магнітному резонансі вирішальне значення мають саме неспарені ядерні спіни.

Частинка з чистим спіном, поміщена в магнітне поле з напруженістю B , може поглинути фотон із частотою ν . Частота ν залежить від гіромагнітного співвідношення γ частинки:

$$\nu = \gamma B.$$

Для гідрогену гіромагнітне співвідношення $\gamma = 42,58$ МГц/Т.

Модель оболонки ядра показує, що нуклони, як і електрони, заповнюють окремі орбіталі. Коли кількість протонів або нейтронів дорівнює 2, 8, 20, 28, 50, 82 і 126, орбіталі заповнюються. Оскільки нуклони, як і електрони, мають свій власний спіні, то внаслідок заповнення орбіталей спіні можуть спаровуватись та компенсуватись. Майже кожен елемент періодичної таблиці має ізотоп з відмінним від нуля ядерним спіном. ЯМР можна застосовувати лише на ізотопах, розповсюдженість яких у природі достатньо висока для виявлення. Найбільш використовувані в ЯМР ядра включають ^1H , ^2H , ^{31}P , ^{23}Na , ^{14}N , ^{13}C , ^{19}F (Hornak, 1997-2017).

Щоби зрозуміти, як частинки зі спіном поведуться в магнітному полі, розглянемо звичайнісінький протон. Кожен протон має властивість, яка називається спіном. Спін протона можна уявити як вектор магнітного моменту, який змушує протон поводитися як крихітний магніт з північним і південним полюсами.

Коли протон поміщають у зовнішнє магнітне поле, вектор спіну частинки набуває напрямку зовнішнього магнітного поля, як і магніт. Існують низькоенергетична конфігурація, або стан, коли полюси вирівняні як N-S-N-S, та високоенергетичний стан N-N-S-S.

Частинка може переходити від одного енергетичного стану до іншого поглинаючи фотон. Частинка з нижнього енергетичного рівня, після того як поглинає фотон, переходить на верхній енергетичний рівень. Енергія цього фотона повинна точно відповідати різниці енергій між двома рівнями. Енергія E фотона пов'язана з його частотою ν сталою Планка ($h = 6,626 \times 10^{-34}$ Дж·с):

$$E = h \cdot \nu$$

У ЯМР і МРТ величина ν називається резонансною частотою і частотою Лармора відповідно.

Енергія двох спінових станів може бути представлена діаграмою енергетичних рівнів. Відомо, що $\nu = \gamma B$ і $E = h \nu$, тому енергія фотона, необхідна для переходу між двома спіновими станами, дорівнює

$$E = h \gamma B.$$

Коли енергія фотона збігається з різницею енергій між двома спіновими станами, відбувається поглинання енергії.

У ЯМР-експерименті частота фотона перебуває в діапазоні радіочастот (РЧ). У ЯМР-спектроскопії частота становить від 60 до 800 МГц для ядер гідрогену. У клінічній МРТ частота для візуалізації гідрогену зазвичай становить від 15 до 80 МГц (*Hornak, 1997-2017*).

Найпростішим ЯМР-експериментом є дослід із безперервною хвилею (CW). Існує два способи проведення цього експерименту. У першому постійно ввімкнена стала частота, досліджує рівні енергії за змінного магнітного поля. Експеримент CW також можна проводити зі сталим магнітним полем і змінною частотою.

Коли групу спінів поміщають в магнітне поле, кожен спін вирівнюється в одній з двох можливих орієнтацій.

За кімнатної температури кількість спінів на нижньому енергетичному рівні (N^+) трохи перевищує кількість спінів на верхньому рівні (N^-) (*Hornak, 1997-2017*). Згідно зі статистикою Больцмана

$$N^-/N^+ = e^{-E/kT},$$

де E – різниця енергій між спіновими станами; k – стала Больцмана ($1,3805 \times 10^{23}$ Дж/К) і T – температура в Кельвінах.

Зі зниженням температури зменшується і відношення N^-/N^+ . Зі зростанням температури коефіцієнт наближається до одиниці.

Сигнал у ЯМР-спектроскопії виникає завдяки різниці між енергією, що поглинається спінами, які здійснюють перехід з нижчого енергетичного стану в стан з вищою енергією, та енергією, що випромінюється спінами, які одночасно

здійснюють перехід із стану з вищою енергією в стан з нижчою енергією. Отже, сигнал пропорційний інверсії заселеності. ЯМР є досить чутливою спектроскопією, оскільки вона здатна виявляти дуже незначні інверсії заселеності. Саме резонанс, або обмін енергією на певній частоті між спінами й спектрометром, надає ЯМР чутливості.

Опис ЯМР у мікроскопічному масштабі є достатньо громіздким. Макроскопічна картина є більш зручною. Першим кроком у розробці макроскопічної картини є визначення спінової групи. Спіновий пакет — це група спінів, які зазнають однакової напруженості магнітного поля.

У будь-який момент часу магнітне поле, викликане спінами в кожному спіновому пакеті, може бути представлено вектором намагніченості. Розмір кожного вектора пропорційний величині інверсії заселеності.

Векторна сума векторів намагніченості всіх спінових пакетів є чистою намагніченістю. Щоб описати імпульсний ЯМР, необхідно оперувати поняттям чистої намагніченості.

Після адаптування звичайної системи координат ЯМР зовнішнє магнітне поле та вектор чистої намагніченості в стані рівноваги будуть напрямлені вздовж осі Z.

У стані рівноваги вектор чистої намагніченості лежить уздовж напрямку прикладеного магнітного поля B_0 і називається рівноважною намагніченістю M_0 . У цій конфігурації Z-компонента намагніченості M_z дорівнює M_0 . M_z називають поздовжньою намагніченістю. Поперечна (M_x або M_y) намагніченість відсутня.

Чисту намагніченість можна змінити, піддавши ядерну спіновою систему впливу енергії з частотою, що дорівнює різниці енергії між спіновими станами. Якщо в систему вкласти достатню кількість енергії, спінову систему можна наситити й зробити $M_z=0$.

Стала часу, яка описує, як M_z повертається до свого рівноважного значення, називається часом ядерної спінової релаксації (T_1). Рівняння, що регулює цю поведінку є функцією часу t після зміщення:

$$M_z = M_0 (1 - e^{-t/T_1}).$$

Тому T_1 визначається як час, необхідний для зміни Z-компоненти намагніченості у е разів.

Якщо чисту намагніченість розташувати вздовж осі -Z, вона поступово повернеться в положення рівноваги вздовж осі +Z зі швидкістю, що регулюється часом T_1 . Рівняння, що контролює цю поведінку як функцію часу t після зміщення:

$$M_z = M_0 (1 - 2e^{-t/T_1}).$$

Час ядерної спін-ґраткової релаксації (T_1) — це час зменшення різниці між поздовжньою намагніченістю (M_z) та її рівноважним значенням у е разів.

Якщо чисту намагніченість помістити в площину XY, вона буде обертатися навколо осі Z з частотою, що дорівнює частоті фотона, що зумовить перехід між двома енергетичними рівнями спіну. Ця частота називається частотою Лармора.

Окрім обертання, чиста намагніченість починає дефазуватися, оскільки кожен зі складових спін-пакетів зазнає впливу дещо іншого магнітного поля й обертається з власною ларморовою частотою. Що більше часу проходить, то більшою стає різниця фаз. Чистий вектор намагніченості спочатку встановлюється вздовж осі +Y. Цей вектор розглядають як суму кількох тонших векторів з окремих спін-пакетів.

Стала часу, яка описує повернення до рівноваги поперечної намагніченості M_{xy} , називається часом спін-спінової релаксації, T_2 :

$$M_{KF} = M_{KF0} e^{-t/T_2}.$$

Час T_2 завжди менший або дорівнює T_1 . Чиста намагніченість у площині XY зводиться до нуля, а поздовжня намагніченість зростає до значення M_0 уздовж осі Z.

Будь-яка поперечна намагніченість має таку саму поведінку. Поперечна складова обертається навколо напрямку прикладеної намагніченості та дефазується. T_1 регулює швидкість відновлення поздовжньої намагніченості.

Отже, час T_2 спін-спінової релаксації, є часом, упродовж якого поперечна намагніченість зменшується в e разів. Вище процеси T_2 і T_1 було описано окремо для наочності. Тобто показано, що вектори намагніченості спочатку повністю заповнюють площину XY , перш ніж вишикуватися вздовж осі Z . Насправді обидва процеси відбуваються одночасно з єдиним обмеженням, що час T_2 менший або дорівнює часу T_1 (Hornak, 1997-2017).

Затуханню поперечної намагніченості сприяють два фактори:

- 1) молекулярні взаємодії (призводять до чистого молекулярного T_2 -ефекту);
- 2) варіації напруженості магнітного поля B_0 (призводять до неоднорідного T_2 -ефекту).

Саме поєднання цих двох факторів насправді призводить до затухання поперечної намагніченості. Комбінована стала часу позначається символом T_2^* . Зв'язок між T_2 внаслідок молекулярних процесів та неоднорідностей магнітного поля має такий вигляд:

$$1/T_2^* = 1/T_2 + 1/T_2' .$$

Щойно було розглянуто поведінку спінів у лабораторній системі відліку. Зручно визначити обертову систему відліку, яка обертається навколо осі Z із частотою Лармора. Цю обертову систему координат відрізнятимемо від лабораторної за штрихами на осях X і Y : $X'Y'$.

Вектор намагніченості, що обертається з частотою Лармора в лабораторній системі відліку, виявляється нерухомим у системі відліку, що обертається навколо осі Z . В обертовій системі релаксація намагніченості M_z до її рівноважного значення має такий самий вигляд, як і в лабораторній системі.

Вектор поперечної намагніченості, що обертається навколо осі Z із тією самою швидкістю, що й рамка, виявиться нерухомим в обертовій системі. Вектор намагніченості, що рухається швидше за обертову рамку, обертається за годинниковою стрілкою навколо осі Z . Вектор намагніченості, що рухається

повільніше за обертову рамку, обертається проти годинникової стрілки навколо осі Z.

Котушка з дроту, намотаного в напрямку осі X, створить магнітне поле вздовж цієї самої осі, коли через котушку пропускатимуть постійний струм. Змінний струм створюватиме магнітне поле змінного напрямку.

У системі відліку, що обертається навколо осі Z із частотою, що дорівнює частоті змінного струму, магнітне поле вздовж осі X' буде сталим, як і в разі постійного струму в лабораторній системі відліку.

Це аналогічно переміщенню котушки навколо обертової системи координат з частотою Лармора. У магнітному резонансі магнітне поле, створене котушкою, що пропускає змінний струм із частотою Лармора, називається магнітним полем B_1 . Коли змінний струм через котушку вмикають і вимикають, він створює імпульсне магнітне поле B_1 вздовж осі X' (Hornak, 1997-2017).

Спіни реагують на цей імпульс так, щоб заставити вектор чистої намагніченості обертатися навколо напрямку прикладеного поля B_1 . Кут повороту залежить від тривалості τ вмикання поля та його величини B_1 :

$$\theta = 2\pi \gamma r B_1 \tau.$$

Уважатимемо, що час τ значно менший, ніж T_1 і T_2 .

Імпульс 90° — це імпульс, який обертає вектор намагніченості за годинниковою стрілкою на 90 градусів навколо осі X'. Імпульс 90° повертає рівноважну намагніченість вниз до осі Y'. У лабораторній рамці рівноважна намагніченість обертається вниз навколо осі Z до площини XY. Очевидно, що обертова система відліку корисна для опису поведінки намагніченості у відповідь на імпульсне магнітне поле.

Імпульс 180° поверне вектор намагніченості на 180 градусів. Імпульс 180° повертає рівноважну намагніченість вниз уздовж осі -Z.

Чиста намагніченість за будь-якої орієнтації буде поводитися відповідно до рівняння обертання. Наприклад, чистий вектор намагніченості вздовж осі Y'

розташується вздовж осі $-Y'$, якщо на нього діятиме імпульс 180° величиною B_1 уздовж осі X' .

Вектор чистої намагніченості між X' і Y' опиниться між X' і $-Y'$ після застосування прикладеного вздовж осі X' імпульсу 180° величиною B_1 .

Матриця обертання, або трансформація координат, також може використовуватися для прогнозування результату обертання. Тут θ – кут повороту навколо осі X' , $[X', Y', Z]$ – початкове розташування вектора, а $[X'', Y'', Z'']$ – розташування вектора після повороту.

$$\begin{matrix} X'' \\ [Y''] \\ Z'' \end{matrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos\theta & \sin\theta \\ 0 & -\sin\theta & \cos\theta \end{bmatrix} \begin{matrix} X' \\ [Y'] \\ Z \end{matrix}$$

Рухи в розчині, які призводять до змінних у часі магнітних полів, призводять до спінової релаксації.

Змінні в часі поля на частоті Лармора викликають переходи між спіновими станами, а отже, і зміну величини M_z . Нижче зображено магнітне поле поблизу атома гідрогену зеленого кольору як частини молекули води, котра обертається навколо зовнішнього поля B_0 , та магнітне поле, зумовлене атомом гідрогену синього кольору. Зауважимо, що поле, спричинене гідрогеном зеленого кольору, є синусоїдальним (рис. 1.1).

Для молекул існує певний розподіл частот обертання. На T_1 впливають лише ті частоти, що збігаються з частотою Лармора. Оскільки частота Лармора пропорційна B_0 , то T_1 буде змінюватися як функція напруженості магнітного поля. Загалом, час T_1 обернено пропорційний щільності руху молекул на частоті Лармора (Hornak, 1997-2017).

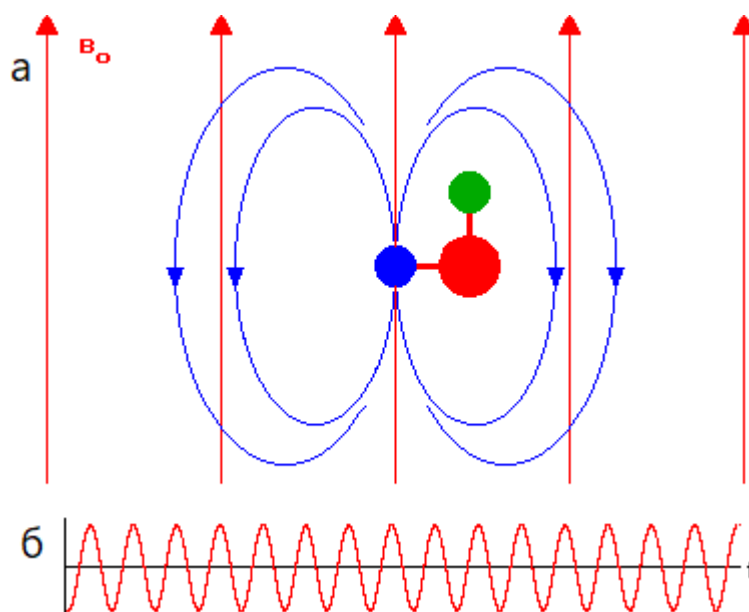


Рис. 1.1 – Схематичне зображення магнітного поля, зумовленого атомом гідрогену зеленого кольору (а) та його синусоїдальне представлення (б).

Запозичено в (Hornak, J.P., 1997-2017)

Частотний розподіл обертання залежить від температури та в'язкості розчину. Отже, T_1 буде змінюватися з температурою. На частоті Лармора, позначеній як ν_0 , T_1 (280 K) < T_1 (340 K). Температура тіла людини змінюється не достатньо сильно для того, аби сильно впливати на T_1 . Однак в'язкість істотно відрізняється для різних тканин і впливає на T_1 , як це показано на графіку руху молекул (рис. 1.2).

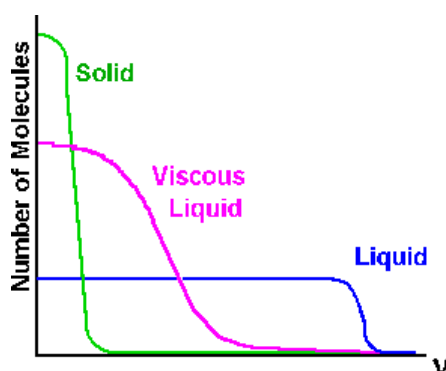


Рис. 1.2 – Вплив в'язкості на рух молекул: синя крива відповідає рідині, рожева – в'язкій рідині, зелена – твердій речовині.

Запозичено в (Hornak, J.P., 1997-2017)

Флуктуаційні поля, які збурюють енергетичні рівні спінових станів, призводять до дефазування поперечної намагніченості (рис. 1.3). Це помітно, якщо дослідити нижченаведений графік напруженості B_0 поля атомів гідрогену червоного кольору, що входять до складу молекули води. Рухомість молекул на частоті, меншій чи рівній частоті Лармора, обернено пропорційна часу T_2 .

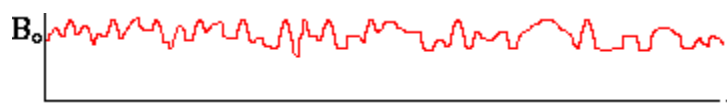
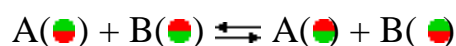


Рис. 1.3 – Дефазування поперечної намагніченості внаслідок впливу флуктуаційних полів. Запозичено в (Hornak, J.P., 1997-2017)

Загалом, час релаксації збільшується зі зростанням B_0 , оскільки під час випадкових рухів молекул існує менше частотних компонент, що призводять до релаксації.

Спіновий обмін — це обмін спіновим станом між двома спінами. Наприклад, якщо у нас є два спіни, А і В, до того ж А напрямлений угору, а В — униз, то спіновий обмін між А і В можна представити за допомогою такого рівняння:

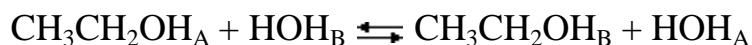


Стрілка вказує на те, що реакція обміну є оборотною.

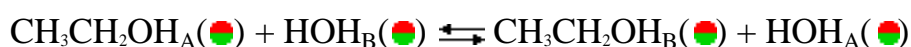
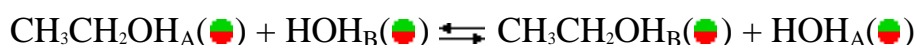
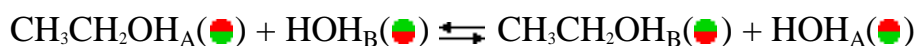
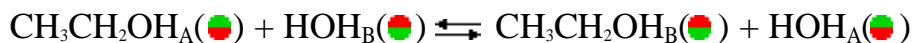
Різниця енергій між верхнім і нижнім енергетичними станами А і В має бути однаковою, щоби спіновий обмін відбувся. У мікроскопічному масштабі спіни у верхньому енергетичному стані (В) випромінює фотон, який поглинає спіни у нижньому енергетичному стані (А). Отже, В опиняється в нижньому енергетичному стані, натомість А — у верхньому.

Спіновий обмін не вплине на час T_1 , утім відобразиться на T_2 . T_1 не зазнає жодних змін, оскільки розподіл спінів між верхнім і нижнім станами не змінюється. T_2 зазнає змін, оскільки фазова когерентність поперечної намагніченості під час обміну втрачається (Hornak, 1997-2017).

Інша форма обміну має назву хімічний обмін. Під час хімічного обміну ядра А і В належать різним молекулам. Розглянемо хімічний обмін між водою та етанолом.



Під час прямої реакції гідроген В із води потрапляє до молекули етанолу, а гідроген А з етанолу потрапляє до молекули води. Загалом існує чотири сценарії для ядерного спіну, представлені чотирма рівняннями.



Хімічний обмін вплине як на T_1 , так і на T_2 . Тепер час T_1 зазнає впливу, адже енергія передається від одного ядра до іншого. Наприклад, якщо у верхньому енергетичному стані існує більше ядер типу А, а для ядер типу В розподіл Больцмана є нормальним, то обмінний процес змістить надлишок енергії від А в В. Унаслідок цього час T_1 виявиться меншим. T_2 і собі зазнає впливу, тому що фазова когерентність поперечної намагніченості не зберігається під час хімічного обміну (Hornak, 1997-2017).

Рівняння Блоха — це система диференціальних рівнянь, які можна використовувати для опису поведінки вектора намагніченості за будь-яких умов. Якщо правильно проінтегрувати рівняння Блоха, то вони дадуть компоненти намагніченості X' , Y' і Z як функції часу:

$$\begin{aligned} \frac{dM_{x^F}}{dt} &= (\omega_0 - \omega)M_{y^F} - \frac{M_{x^F}}{T_2}, \\ \frac{dM_{y^F}}{dt} &= -(\omega_0 - \omega)M_{x^F} + 2\pi\gamma B_1 M_z - \frac{M_{y^F}}{T_2}, \\ \frac{dM_z}{dt} &= -2\pi\gamma B_1 M_{y^F} - \frac{(M_z - M_{z0})}{T_1}, \end{aligned}$$

де $M = (M_x, M_y, M_z)$ – ядерна намагніченість, B – магнітне поле, що діє на ядро.

1.3. Принципи отримання зображень

Магнітно-резонансна томографія — це спосіб отримання зображень, який в переважно використовується для створення зображень ЯМР-сигналу на основі атомів гідрогену в об'єкті. У медичній МРТ радіологів найбільше цікавить ЯМР-сигнал води та жиру, основних гідрогеновмісних компонентів людського тіла.

Принцип, який лежить в основі будь-якої магнітно-резонансної томографії, — це рівняння резонансу, яке показує, що резонансна частота ν спіну пропорційна магнітному полю B_0 , яке на нього впливає:

$$\nu = \gamma B_0.$$

де γ — це гіромагнітне відношення.

Припустимо, наприклад, що голова людини містить лише три окремі невеликі ділянки з певною щільністю спінів гідрогену. Якщо ці ділянки піддаються дії магнітного поля однакової сили, то в спектрі ЯМР буде лише один пік (*Hornak, 1996-2020*).

Якби кожна область спіну зазнавала впливу неоднакового магнітного поля, то можна було б визначити розташування цих ділянок. Наявність градієнта поля дає змогу досягти цього результату. Градієнт магнітного поля — це зміна магнітного поля залежно від просторового положення. Одновимірний градієнт магнітного поля є його зміною в одному напрямку, водночас двовимірний градієнт — зміною у двох. Найкориснішим типом градієнта в магнітно-резонансній томографії є одновимірний лінійний градієнт магнітного поля (*Hornak, 1996-2020*). Одновимірний градієнт магнітного поля вздовж осі x у магнітному полі B_0 вказує, що магнітне поле збільшується в напрямку x . Довжини векторів представляють величину магнітного поля. Символами градієнта магнітного поля в напрямках x , y і z є відповідно G_x , G_y і G_z .

Точку в центрі магніту з координатами $(x,y,z) = 0,0,0$ називають ізоцентром магніту. Магнітне поле в ізоцентрі становить B_0 , а резонансна частота — ν_0 . Якщо лінійний градієнт магнітного поля застосувати до голови з трьома ділянками, що

містять спін, то ці три області зазнаватимуть впливу різних магнітних полів. Результатом є ЯМР-спектр з більш ніж одним сигналом (*Hornak, 1996-2020*). Амплітуда сигналу пропорційна кількості спінів у площині, перпендикулярній градієнту. Ця процедура називається частотним кодуванням і призводить до того, що резонансна частота буде пропорційною позиції спіну.

$$\begin{aligned} &= \gamma (B_0 + x G_x) = \omega + \gamma x G_x, \\ x &= (\omega - \omega_0) / (\gamma G_x). \end{aligned}$$

Цей принцип лежить в основі всієї магнітно-резонансної томографії. Аби продемонструвати, як зображення може бути згенеровано з ЯМР-спектрів, далі буде представлено метод зворотної проєкції.

Візуалізація способом зворотної проєкції є різновидом магнітно-резонансної томографії. Вона була однією з перших форм магнітно-резонансної томографії. Зворотне проєктування є розширенням щойно описаної процедури частотного кодування. У техніці зворотної проєкції об'єкт спочатку поміщають у магнітне поле. Одновимірний градієнт поля застосовується під кількома кутами, і для кожного градієнта записують ЯМР-спектр. Скажімо, потрібно створити зображення об'єкта на площині YZ. До об'єкта прикладають градієнт магнітного поля в напрямку +Y і записують спектр ЯМР.

Другий спектр записують із градієнтом уже під кутом один градус до осі +Y. Процес повторюється для 360°, від 0° до 359°. Після того, як ці дані було записано, їх можна зворотно спроектувати на комп'ютері.

Після придушення інтенсивності фону можна побачити зображення. Фактична схема зворотної проєкції називається зворотним перетворенням Радона.

У звичайній послідовності отримання зображень 90-FID цю процедуру можна застосувати за допомогою такої послідовності імпульсів. Зміна кута у градієнта здійснюється шляхом застосування лінійних комбінацій двох градієнтів (*Hornak,*

1996-2020). Тут градієнти Y і X застосовуються в таких пропорціях для досягнення необхідного градієнта частотного кодування G_f :

$$G_y = G_f \sin \theta,$$

$$G_x = G_f \cos \theta.$$

Щоби спосіб зворотної проєкції був життєздатною технікою томографічної візуалізації, потрібно мати змогу зображати спіни в тонкому зрізі. Градієнт G_z задовольняє цю вимогу. Далі буде описано, як здійснюють вибір зрізу.

Вибір зрізів у МРТ – це вибір спінів у площині, що проходить через об'єкт. Принцип вибору зрізів ґрунтується на рівнянні резонансу. Вибір зрізів відбувається шляхом застосування одновимірного лінійного градієнта магнітного поля впродовж застосування радіочастотного (РЧ) імпульсу. Імпульс 90° , застосований у поєднанні з градієнтом магнітного поля, обертає спіни, розташовані в зрізі чи площині, що проходить через об'єкт. Зобразимо куб із векторами чистої намагніченості невеликої інтенсивності. Для цього потрібно вивчити спектральний склад імпульсу 90° , який містить певний діапазон частот. Це видно після застосування теореми про згортку. Спектральний склад прямокутного імпульсу 90° має форму sinc-імпульсу. У вікні анімації відображаються реальні компоненти цього імпульсу. Амплітуда sinc-функції є найбільшою на РЧ, яку було увімкнено й вимкнено. Ця частота повернеться на 90° , у той час як інші менші та більші частоти повернуться на менші кути.

Застосування цього імпульсу 90° із градієнтом магнітного поля в напрямку X обертає частину спінів у площині, перпендикулярній осі X, на 90° . Не всі спіни повернуться, оскільки деякі частоти мають напруженість B_1 меншу, ніж це необхідно для обертання на 90° . Як наслідок, вибрані спіни насправді не формують зріз (Hornak, 1996-2020).

Рішення для неякісного профілю зрізу має вигляд імпульсу 90° у формі sinc-імпульсу. Цей імпульс має квадратний розподіл частот. У вікні анімації відображаються реальні компоненти цієї функції.

Томографічне зображення способом зворотної проєкції можна отримати, застосувавши певні імпульси. Аподизований sinc-імпульс у формі імпульсу 90° застосовують спільно з градієнтом вибору зрізів. Градієнт кодування частоти вмикається, як тільки імпульс вибору зрізів вимикається. Градієнт кодування частоти складається в цьому разі з градієнтів G_x та G_y . Величину спаду вільної індукції піддають перетворенню Фур'є для створення частотного доменного спектра, який надалі обернено проєктують для отримання зображення.

Техніка візуалізації методом зворотної проєкції є цінною для навчання, але ніколи не використовується в найсучасніших зображеннях. Натомість послуговуються методами отримання зображень Фур'є.

2. ЗАСТОСУВАННЯ МРТ У НАФТОГАЗОВІЙ ГАЛУЗІ

МРТ почали активно застосовувати в нафтогазовій галузі в XXI ст. Із кожним роком кількість досліджень на цю тему зростає. Вони досить різноманітні й охоплюють не лише вивчення поведінки нафти, але й інших рідин, газів та газогідратів. Далі ми коротко згадаємо деякі найсучасніші наукові роботи, опубліковані впродовж останніх трьох років із 2019 до 2021 р., у котрих головний акцент припадає на вивчення пористих середовищ та багатофазних потоків.

У статті (*Singh et al., 2020*) учені вимірювали площу поверхні розділу твердої та рідкої фаз для кількісного визначення змочуваності в багатофазному потоці через пористі середовища. У роботі (*O'Neill et al., 2019*) було виконано вимірювання швидкості двофазного потоку нафти та води з використанням витратоміра на основі ЯМР. (*Jia, et al., 2019*) у своєму дослідженні зробили огляд нинішнього прогресу в галузі вдосконаленого вилучення нафти за допомогою нагнітання вуглекислого газу та зберігання вуглецю в колекторах сланцевої нафти. Праця (*Sabbagh et al., 2020*) розглядає отримання та використання зображень як спосіб вимірювання показника заломлення пористого середовища на місці. У роботі (*Liu et al., 2019*) було розглянуто речовину зірчастий амфіфільний поліакриламід як каталізатор аномально високого вилучення нафти під час її в'язкопружного витіснення із середовища. У статті (*Chen et al., 2020*) автори висувують нові уявлення про потік води й газу та розпад гідратів у покладах гідратів природних газів із різними концентраціями. Експериментальне дослідження (*Wang et al., 2021*) сконцентроване на вивченні за допомогою методу МРТ поведінки фронту витіснення декану вуглекислим газом у високопроникному піску. (*Cheng et al., 2019*) у своїй праці на основі ЯМР розробили нові уявлення про спонтанне всмоктування в щільних нафтоносних пісковиках. У роботі (*Amarasinghe et al., 2020*) автори досліджували вплив проникності на розчинення вуглекислого газу та конвекцію в умовах пластової

температури і тиску, послуговуючись методами візуалізації. У статті (Xu et al., 2020) описано застосування МРТ для вивчення поведінки потоку та виявлення залишків захопленого вуглекислого газу в надкритичному стані в щільному конгломераті. Вплив наночастинок на основі кремнію на підвищення нафтовіддачі детально проаналізовано в дослідженні (Nasr et al, 2021). У праці (Lev and Boyce, 2020) автори розглядали можливість застосування МРТ уже для вивчення геологічних потоків.

Отже, чимало авторів нині далеко не нехтують використанням магнітно-резонансної томографії у своїх дослідженнях. Далі буде детально розглянуто застосування МРТ у нафтогазовій галузі.

2.1. Вивчення газових гідратів

Розглянемо застосування МРТ для вивчення поведінки газових гідратів, опираючись на роботу (Chen et al., 2019).

У цій статті метод МРТ використовується для дослідження гідратів природних газів як майбутнього альтернативного джерела енергії, який потрібно краще досліджувати, оскільки нафта, газ та вугілля вичерпуються. На термодинамічну рівновагу гідратів можуть впливати фактори температури, тиску та різниці хімічних потенціалів, тому під час експерименту необхідно підтримувати стан рівноваги. У цьому дослідженні для розробки NGH застосовують метод розгерметизації, попри те що ендотермічна дисоціація гідратів може призвести до утворення вторинного гідрату. Для опису цього процесу в пісковиках Берея була підготовлена трифазна модель.

Для того, щоб візуалізувати, як гідрати дисоціюють під час ін'єкції води, використовується магнітно-резонансна томографія (МРТ). Резонансна частота експериментальної установки (рис. 2.1) становить 9,4 Тл, напруженість магнітного поля — 400 МГц. Зважені за протонною щільністю двовимірні зображення були

отримані за допомогою стандартної послідовності імпульсів спінового відлуння (echo). Час отримання послідовності для одного зображення становив 2,14 хв.

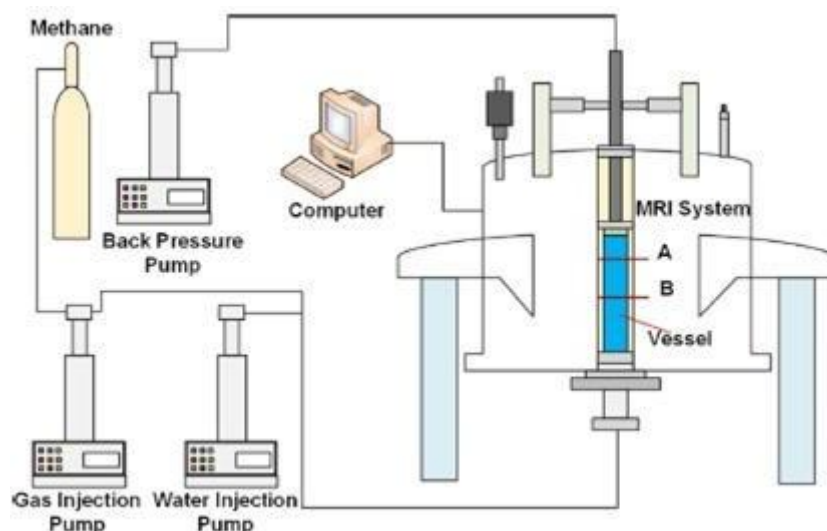


Рис. 2.1 – Схема експериментальної установки. Запозичено в (Chen et al., 2019)

Для наповнення посудини в цьому експерименті використовувалися скляні кульки із загальною пористістю 35,4% (Chen et al., 2019). Після вакуумування посудину заповнили дейонізованою водою під тиском 1000 кПа. Потім упродовж 1 години тиск підвищували до 6000 кПа, щоби збільшити насичення. Далі під час утворення гідрату вводили метан тиск у посудині підвищили до 6000 кПа. Під час експерименту температуру підтримували на рівні 274,15 К.

Загалом було проведено 16 експериментів. Охолоджену дейонізовану воду вводили спочатку в пробу осаду зі швидкістю 2 мл/хв, а потім у посудину зі швидкістю 10 мл/хв. Зображення отримували безперервно протягом усього процесу заводнення з інтервалом часу 2 хвилини. На рис. 2.2 показано зміну розподілу та дисоціації гідрату метану (ГМ) під час безперервного введення води зі швидкістю потоку 0,1 мл/хв. Спочатку на зображенні темним показано осад одразу після насичення водою. Потім він поступово стає яскравішим, тому що гідрат дисоціює, а пори поступово насичуються водою. Отже, можна легко

виділити яскраво-білу дисоційовану зону, або так званий проточний канал. Через 3600 хвилин все зображення стало яскраво-білим, тобто ГМ повністю дисоціював.

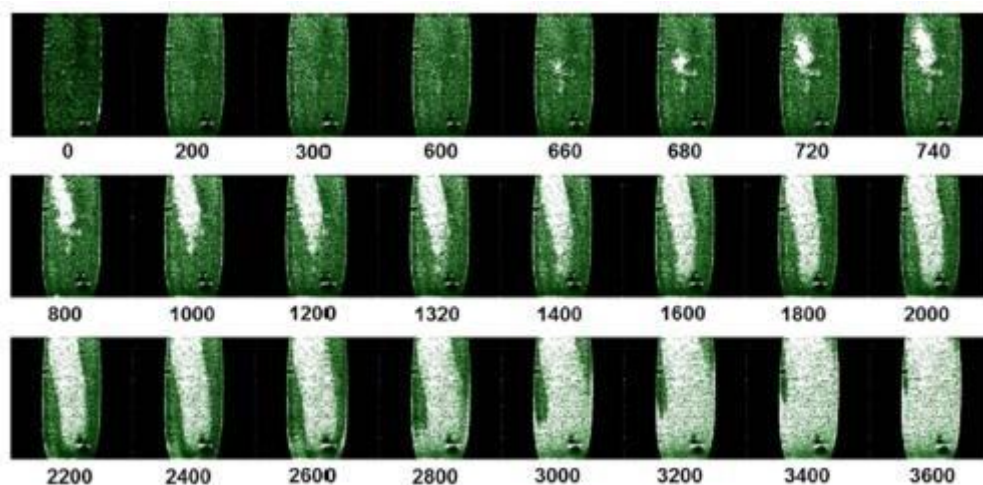


Рис. 2.2 – Зміни в дисоціації та розподілі ГМ протягом обводнення зі швидкістю потоку 0,1 мл/хв. Запозичено в (Chen et al., 2019)

Для оцінки швидкості насичення в часі використовують два графіки: зміни середньої інтенсивності (MI) та інкременту (приросту) водонасиченості під час процесу заводнення. Ці графіки корелюють, тому, проаналізувавши їх, можна виділити деякі тенденції. Для дослідження впливу протитиску на значення MI було також отримано графіки зміни MI впродовж закачування води для різних протитисків за однакової швидкості потоку. Залежно від швидкості введення отримані досить різні результати.

Важливою частиною дослідження є вивчення впливу протитиску та витрати води на дисоціацію ГМ. Висока швидкість потоку сприяє дисоціації гідратів, і, навпаки, що вищим є протитиск, то довше триває процес дисоціації. До того ж можна виділити чотири стадії поведінки ГМ в пробі осаду. Перша відповідає стабільності гідратного резервуара. Другий етап — локальна дисоціація з появою яскраво-білої зони на МРТ-зображенні. Третій — утворення проточних каналів унаслідок дії капілярних сил. А завершальна стадія відповідає розширенню та зникненню проточного каналу.

Для зазначених експериментів один дослід триває від 20 хвилин, коли швидкість води становить 10 мл/хв, до 3600 хвилин, коли вона становить 0,1 мл/хв, у той час як протитиск залишається сталим на рівні 3200 кПа.

Час появи й зникнення проточного каналу залежно від протитиску та швидкості впорскування води представлено для наочності гістограмами (рис. 2.3).

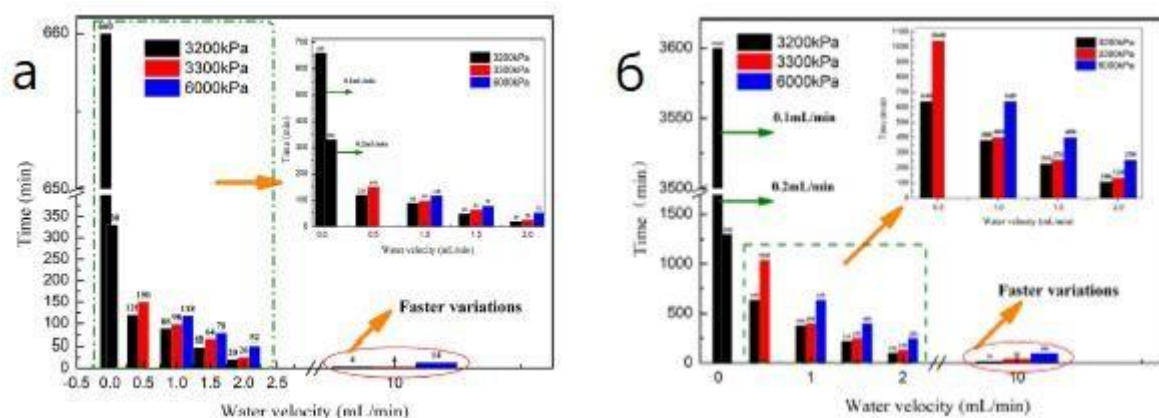


Рис. 2.3 – Час появи (а) та зникнення (б) проточного каналу під час процесу безперервного заводнення. Запозичено в (Chen et al., 2019)

2.2. Дослідження конвекції в рідинах

Можливість використання МРТ для вивчення конвекції в рідинах достатньо детально описано в роботі (Teng et al., 2020).

Відомо, що глобальне потепління спричинене парниковим ефектом, а основним викинутим парниковим газом є вуглекислий газ (CO_2). Глибокі солоні водоносні горизонти мають великий потенціал для геологічного зберігання CO_2 , а переривання розчинення (англ. «dissolution trapping») вважається одним із найбільш ефективних і безпечних методів зберігання CO_2 . Насичений CO_2 розсіл має більшу густину, ніж природно сформована ропа, що призводить до гравітаційної нестабільності та густинної (щільнісної) конвекції; це посилює масоперенос CO_2 . Від'ємна плавучість розсолу може знизити ризики витоку вздовж геологічних розломів. Отже, у цій роботі за допомогою чисельного моделювання та лабораторних експериментів було досліджено густинну конвекцію.

Для кращого опису механізму густинної конвекції було використано декілька безрозмірних параметрів – число Релея, що є відношенням між виштовхувальними та дисперсійними силами, і число Шервуда, що є коефіцієнтом масопередачі.

Експериментальна система (рис. 2.4) складається з системи ЯМР Varian 400 МГц з наборами для візуалізації, поліімідної посудини, прозорого полікарбонатного ексикатора Nalgene, вакуумного та шприцевого насосів (*Teng et al., 2020*). Для відведення повітря з посудини використовуються ексикатор і вакуумний насос. МРТ-сканування виконували за допомогою SEMS. Області з темним фоном були усунені, щоб уникнути зайвих обчислень, граничний ефект було також зменшено.

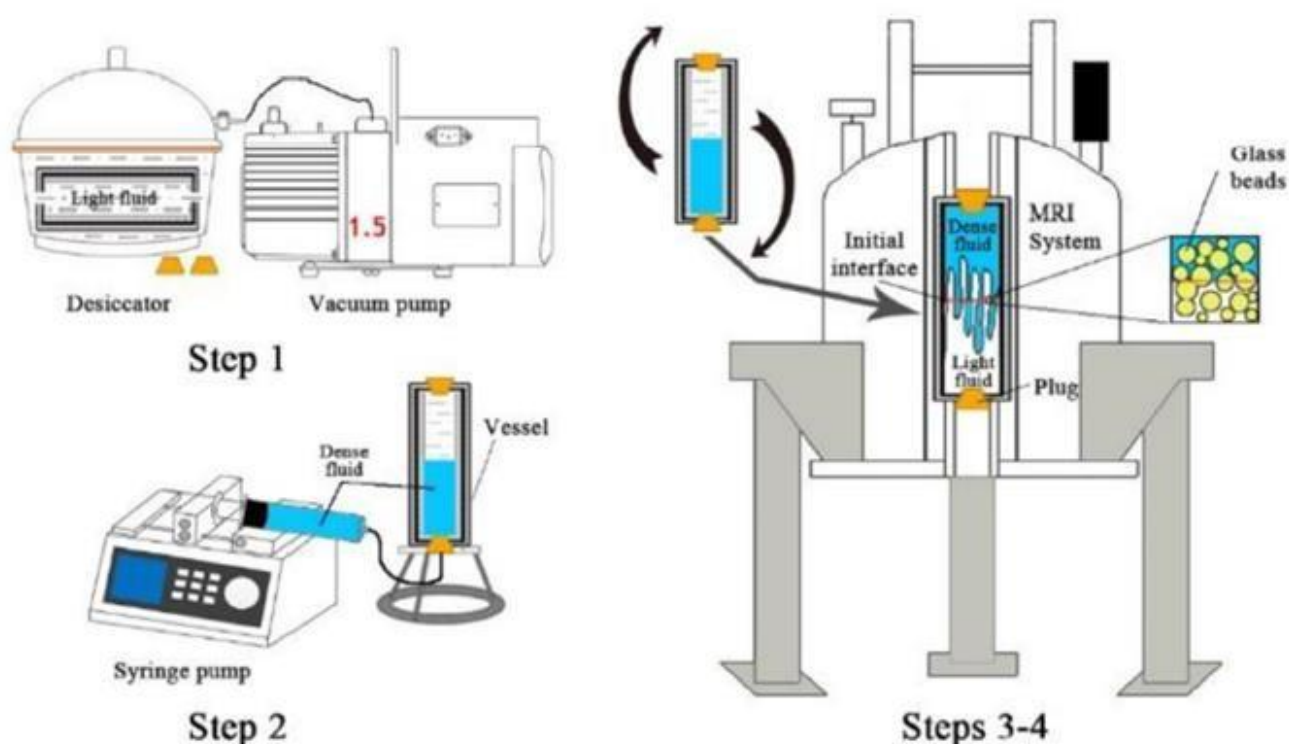


Рис. 2.4 – Схема та процедура експерименту з густинної конвекції.

Запозичено в (*Teng et al., 2020*)

Безпосередньо дослідити природну конвекцію розсолу, насиченого CO₂, і природної ропи за допомогою МРТ важко через подібність сигналів. Отже, із цієї метою використовують інші рідини як еквіваленти. Для імітації густинної конвекції в цьому дослідженні було використано чотири пари рідин. Першими з них були

розчин $MnCl_2$ / дейонізована вода та D_2O / дейонізована вода. Іншими двома парами були силіконова олія (cst 5) / додекан і силіконова олія (cst 10) / додекан.

Отож, як важку рідину використовували D_2O , розчин $MnCl_2$ або диметилсиліконову олію, а як легку рідину – H_2O чи додекан. Пари вибирали відповідно до їхніх густин чи в'язкостей та чіткості отриманих зображень. Як пористе середовище використовували скляні кульки діаметром 100, 200, 400 і 600 мкм, якими наповнювали поліімідну посудину. Перед упакуванням кульки промивають і висушують, щоби видалити забруднення.

Експериментальні процедури включали такі етапи:

1) Посудину заповнювали скляними кульками та насичували легкою рідиною за допомогою ексикатора та вакуумного насоса.

2) Щільну рідину вводили знизу вгору за допомогою шприцевого насоса з постійною швидкістю потоку 0,1 мл/хв. Ін'єкція продовжувалася до тих пір, поки легка рідина в нижній половині посудини не була витіснена важкою рідиною.

3) Було виконано швидке сканування, щоби визначити міжфазну поверхню й отримати початковий стан після того, як посудину встановили в МРТ-зонд перед конвекційним експериментом.

4) Посудину зняли із зонда та швидко перевернули. Потім посудину негайно знову помістили в зонд. Затримка між перевертанням зразка та початком отримання першого зображення становила пів хвилини чи навіть менше.

5) МР-зображення збиралися одночасно без затримок до завершення процесу конвекції.

Цикл сканування закінчувався, коли зміна інтенсивності МРТ-сигналу становила менш ніж 1%. Загалом було проведено 16 експериментів, кожен дослід виконували 2-4 рази.

Перейдемо безпосередньо до дослідів. Існує 2 види так званого пальцювання (розклинювання, розщеплювання, англ. «fingering») рідини: конвективне та в'язке. У цьому експерименті переважає перший тип. Для

візуалізації міжфазних процесів було побудовано псевдотривимірні моделі (рис. 2.5). Спочатку виникають хвилеподібні коливання, потім висхідний палець розщеплюється на два нові. Новий палець поширюється латерально, у кінцевому підсумку стикаючись і зливаючись з іншим, формуючи грубу структуру. Поділи й злиття змінюють кількість пальців. Аби відрізнити одну рідину від іншої, МР-зображення було перетворено на бінарні (рис. 2.6), на яких важка рідина представлена чорним кольором, а легка – білим. Можна виділити такі етапи розвитку конвективних пальців: його поява, поширення, утворення нового пальця та зрощення пальців.

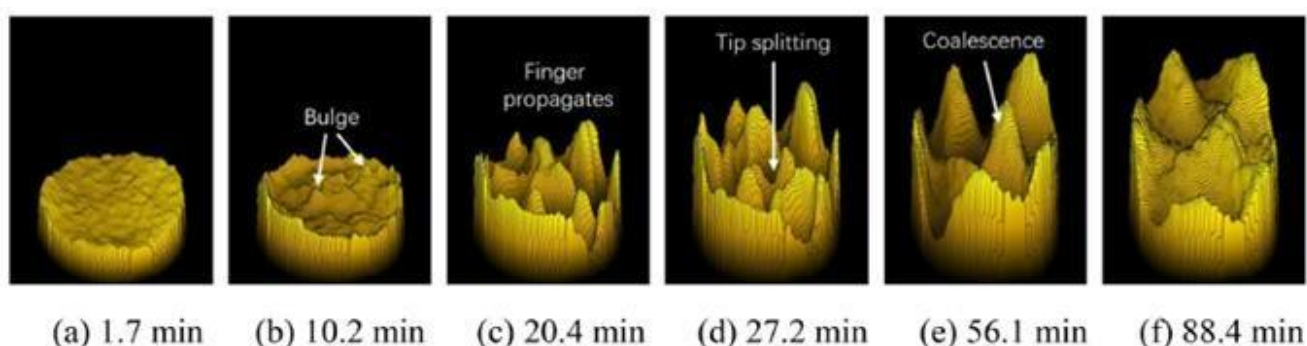


Рис. 2.5 – Псевдотривимірні зображення розвитку та розподілу висхідних конвективних пальців, дослід 2В. Запозичено в (Teng et al., 2020)

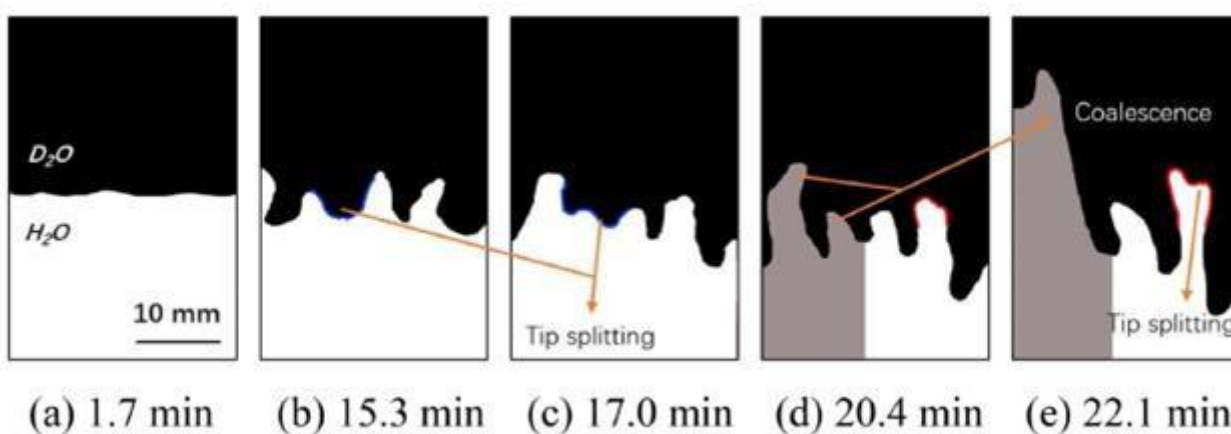


Рис. 2.6 – Бінарні зображення розвитку структури пальців, дослід 3В. Запозичено в (Teng et al., 2020)

Найбільшим номером пальця є його початковий номер. Зрощення призводить до зменшення кількості пальців та збільшення їхнього діаметра. Можуть існувати певні умови, за яких пальцювання не відбувається. Наприклад,

якби для пари розчин $MnCl_2$ / дейонізована вода зі скляними кульками BZ-01 співвідношення вимірів посудини було би недостатнім для розвитку цього процесу. На рис. 2.7 зображено початкову пальцеву структуру для тих самих умов наповнення для різних пар рідин.

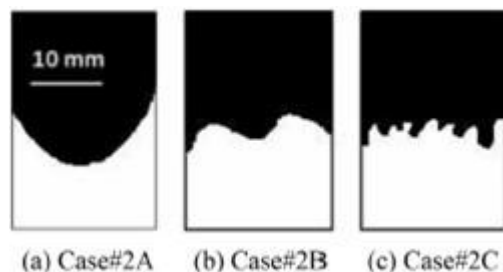


Рис. 2.7 – Структура пальців на стадії появи для скляних кульок BZ-02:

**(a) розчин $MnCl_2$ /дейонізована вода, (b) D_2O /дейонізована вода,
(c) cst 5/додекан. Запозичено в (Teng et al., 2020)**

Зменшення кількості пальців з часом є наближено лінійним процесом, що підтверджують графіки. Як тільки конвективний процес закінчується, кількість пальців падає до мінімуму та залишається незмінною.

Час початку конвекції можна визначити як перетин між низхідним трендом МРТ-сигналу та горизонтальною лінією, що представляє початковий сигнал. Конвективні пальці зображені іноді нечітко, імовірно, тому, що рухові верхньої щільної рідини вниз під дією сили тяжіння може перешкоджати сили в'язкості та поверхневого натягу.

Для фіксованого контрасту в'язкості час початку конвекції зменшується зі збільшенням числа Релея (Ra). Число Релея сильно залежить від різниці густин, однак контраст в'язкості, попри те, що він зазвичай є незначним, також може впливати на процес конвекції. Число Релея можна замінити відношенням Ra/M , де M – різниця в'язкостей. Отож, квадратичну кореляцію між часом початку конвекції та відношенням Ra/M буде отримано графічно.

Що вищим є контраст в'язкості, то пізніше суміш стає рухливою та повільніше розвивається конвективна нестійкість, отже, конвекція розпочинається пізніше. Часом змішування називають відтинок часу від початку змішування до повного

змішування, тобто до тих пір, поки зміни інтенсивності сигналу не стануть меншими за 1%. Отже, ефект в'язкості домінує над ефектом різниці густин для пар рідин із високими контрастами в'язкості.

2.3. Удосконалення методики вилучення нафти

Удосконалення процесу вилучення нафти методом закачування вуглекислого газу розглянемо, ґрунтуючись на праці (*Zhao et al., 2020*).

Усе більший глобальний попит на енергію вимагає більш інтенсивного виробництва традиційних видів енергії. Технологія закачування CO₂ часто є ефективнішою, ніж заводнення водою, тому вона дає змогу розробляти залишкову нафту з родовищ. Упорскування CO₂ є досить розумною операцією, оскільки воно не тільки покращує видобуток нафти, але й зменшує викиди CO₂.

Експериментальна система (рис. 2.8) складається зі зразка керна та саморобного сумісного з ЯМР кернотримача. Вимірювання МРТ здійснювали на ЯМР-системах Varian. В експерименті використовувалися два шприцеві насоси: один для нагнітання дейонізованої води, водного розчину MnCl₂ із концентрацією йонів Mn²⁺ 5 г/л та н-декану в передавальні ємності; другий – для введення CO₂. Протитиск контролюється регулятором протитиску. Нижче представлена спрощена схема поперечного перерізу кернотримача високого тиску. Він складається з ніпеля та розподільної пробки, титанової торцевої кришки, поліімідної трубки високого тиску, ущільнювального кільця, термоусадної трубки, керна та фільтрової сітки. Корпус виготовлений з поліімиду, а торцеві кришки виготовлені з титану й утримуються на місці за допомогою немагнітних кобальтових гвинтів.

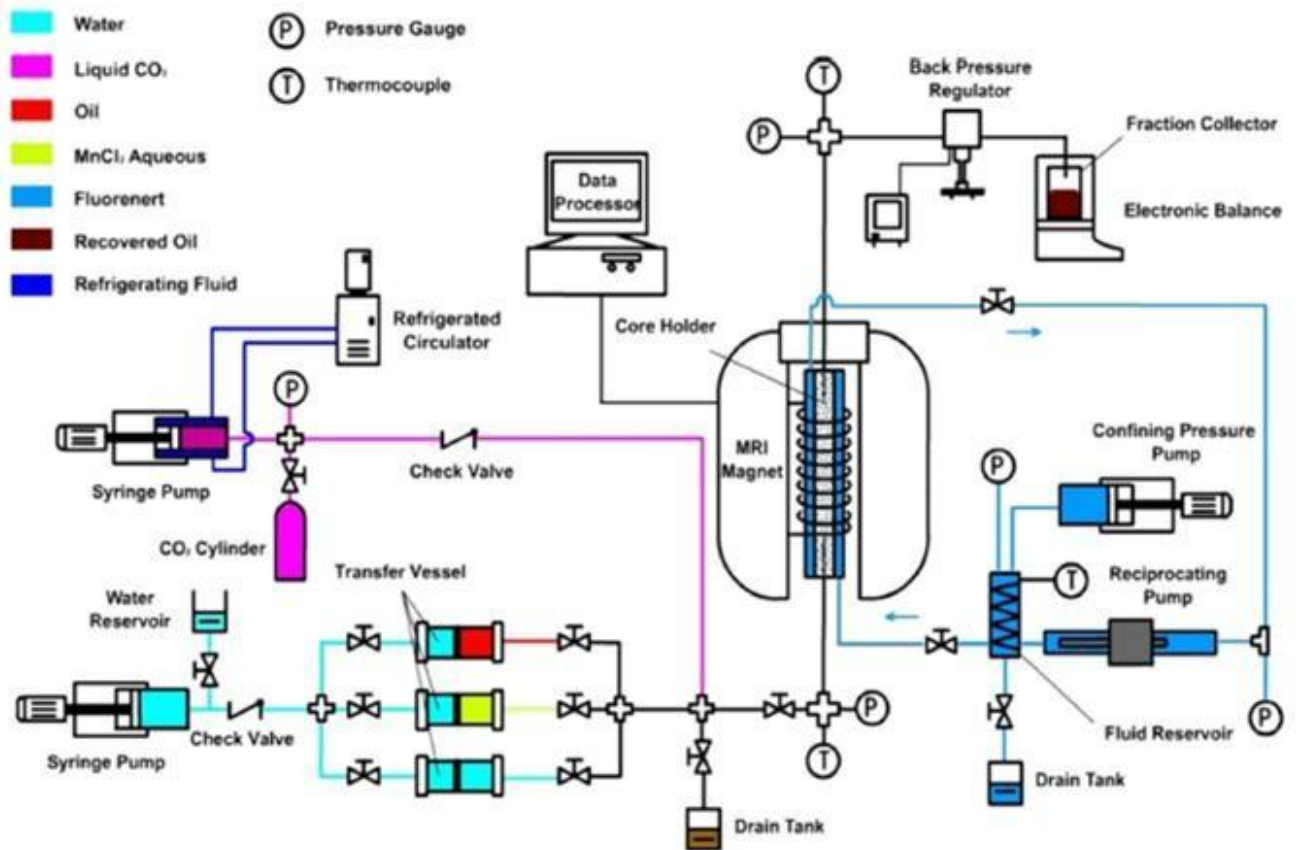


Рис. 2.8 – Схема експериментальної установки для МРТ-моніторингу заводнення та закачування CO₂ у зразок керна для вдосконаленого вилучення нафти. Запозичено в (Zhao et al., 2020)

Процедура експерименту (Zhao et al., 2020):

1) Для експерименту зразок керна спочатку впродовж певного періоду часу нагрівали приблизно до 110°C, щоби видалити воду, потім зразок помістили в кернотримач, а впускний та випускний краї запечатали двома шарами тефлонових термоусадних трубок, після чого кернотримач помістили в надпровідний магніт МРТ та видалили повітря зі зразка керна за допомогою вакуумного насоса.

2) Керн насичували дейонізованою водою за певних температури й тиску впродовж 10 год, аби досягти повної насиченості порового простору водою. Після ретельного налаштування, регулювання та встановлення параметрів імпульсу, зразок керна було проскановано для отримання МР-зображень, розподіл пористості було отримано шляхом калібрування стандартного еталона з відомою пористістю.

3) Регулятор протитиску на виході був повністю закритий, а початковий тиск витіснення (тиск усередині термоусадної трубки) у кернотримачі можна було наростити. Початковий тиск витіснення та всесторонній тиск синхронно зростали, а всесторонній тиск завжди підтримувався на 2 МПа вищим за початковий тиск витіснення. Після досягнення бажаного тиску температуру й тиск охолоджувальної рідини під час її циркуляції через ємність для нагрівання рідини та кернотримач підтримували за допомогою рециркуляційного насоса.

4) Водний розчин $MnCl_2$ вводять у дейонізовану воду, допоки дейонізована вода не буде витіснена розчином $MnCl_2$. $MnCl_2$ як парамагнетик може зменшити час релаксації протонів води. За достатньо високих концентрацій $MnCl_2$ сигнал водної фази може повністю зникнути. Тоді за тих самих налаштувань МРТ фіксуватиметься лише сигнал нафтової фази. Далі введенням нафти витісняють водний розчин $MnCl_2$, аж допоки вміст нафти не досягне 100%. Тоді закачувати нафту припиняють. Для нафтонасиченого зразка керна було знову отримано зображення, щоби вивчити розподіл нафти в досліджуваному зразку та визначити його початкову нафтонасиченість.

5) Для заводнення та подальшого експерименту із введенням CO_2 воду та вуглекислий газ у надкритичному стані ($sc-CO_2$) вводили з певною швидкістю, а зразок керна сканували та зображали в різний час, аби візуалізувати потік рідини та визначити рівень насиченості під час процесу заводнення керна.

Розглянемо результати дослідів. На МРТ-зображеннях (рис. 2.9) яскраві області (червоний колір) відповідають високим сигналам, що вказують на великі концентрації нафти, тоді як темні області (сині та чорні) відповідають низьким концентраціям нафти. Спочатку вміст нафти на краях керна був значно нижчим, аніж у середній частині. Під час заводнення зі швидкістю потоку 0,05 мл/хв утворився загальний поршневий фронт витіснення (зображення від 0 PV до 32,37 PV). Через неоднорідність порового простору та проникності відбулося в'язке пальцювання та формування каналу. На МР-зображеннях поблизу стінок

посудини видно високопроникні канали. Залишкова нафта утворилася під дією капілярного тиску внаслідок ефекту Жамена. Загалом фронт витіснення просунувся вгору приблизно на третину висоти керна.

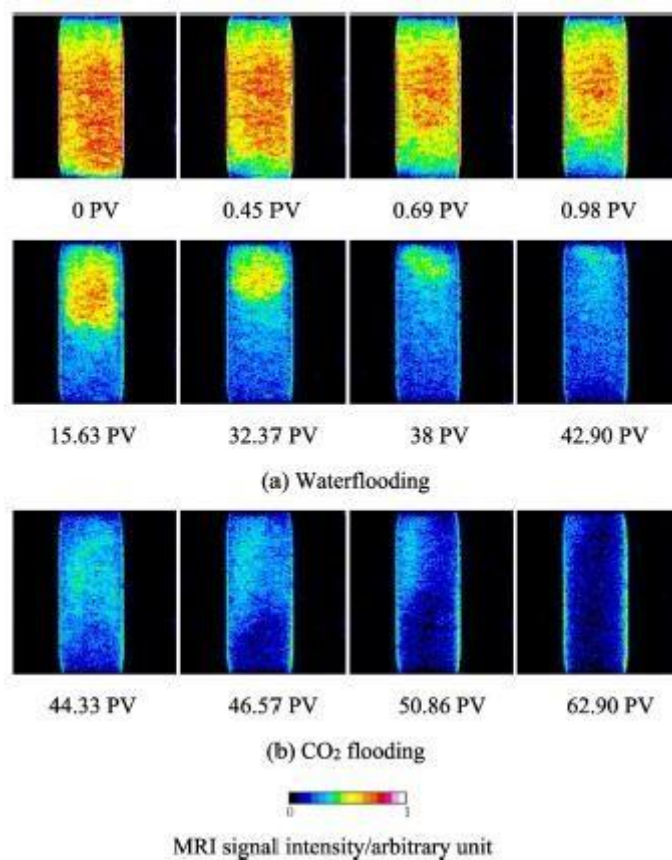


Рис. 2.9 – Розподіл інтенсивності МРТ-сигналу в зразку керна під час заводнення (а) та закачування $sc\text{-CO}_2$ (б). Шкалу інтенсивності МРТ-сигналу подано внизу. Запозичено в (Zhao et al., 2020)

На першому етапі коефіцієнт видобутку нафти сягнув близько 15,6%, після чого зростав повільніше через канали, по яких вода мала тенденцію рухатися. На другому етапі коефіцієнт видобутку нафти зріс експоненційно з 15,6 до 45,1%. Загалом, за 32,37 PV обводненість становила понад 98%, а додаткове заводнення майже не вилучало нафти. У зразку все ще залишилася досить значна кількість нафти, що затрималася на краю керна внаслідок явища під назвою ефект капілярного краю.

Для подальшого підвищення видобутку нафти швидкість закачування води підвищили з 0,05 до 0,1 мл/хв. Коефіцієнт видобутку нафти знову почав зростати:

він підвищився із 49,7 до 55,9%, а відношення швидкості введення води до вилучення нафти за цей час зменшилося з 1:18,2 до 1:126,6. Після цього було додатково вилучено лише невеличку кількість нафти, а в зразку все ще були залишки нафти. Отже, більша швидкість нагнітання води може частково подолати ефект Жамена, однак економічної вигоди від цього немає, оскільки для цього потрібна велика кількість води. Отже, заводнення було зупинено за 42,90 PV, а за після цього розпочали закачувати sc-CO₂.

Нагнітання sc-CO₂ здійснювали за сталої швидкості потоку 0,25 мл/хв, але ефективна швидкість витіснення була значно нижчою через розчинення газу. Частина залишкової нафти розчиняється в sc-CO₂, утворюючи нову фазу, зменшуючи в'язкість нафти та збільшуючи її об'єм, тобто підвищуючи рухливість нафти. Маленькі краплі можуть зливатися у великі краплі, формуючи облямівку, яка стримує формування CO₂ каналу та пальцювання. Через це нафтонасиченість спочатку трохи знизилася, але потім за безперервного закачування CO₂ вилучення нафти знову підвищилося. Загалом, за 60,86 PV коефіцієнт вилучення нафти склав 64% (рис. 2.10), а співвідношення закачування / вилучення – 1:127,6. За 62,90 PV рівень вилучення досяг 69,1%, а співвідношення впало до 1:196,8. Отже, нагнітання sc-CO₂ підвищило рівень вилучення нафти на 13,2%.

З огляду на зміну профілів нафто насичення за різних PV, заводнення є досить ефективним навколо вхідного отвору, але нафтонасиченість біля вихідного отвору дещо відрізняється. Це пов'язано з ефектом капілярного краю. Після початку введення sc-CO₂ нафтонасиченість навколо вихідного отвору значно впала, що підтверджує ефективність цього методу вилучення.

Експериментальні профілі насичення кінця капілярів підтверджують, що закачування sc-CO₂ є значно ефективнішим методом витіснення залишкової нафти з вихідного отвору керна, ніж заводнення, оскільки насиченість змочувальної фази в цьому разі значно нижча.

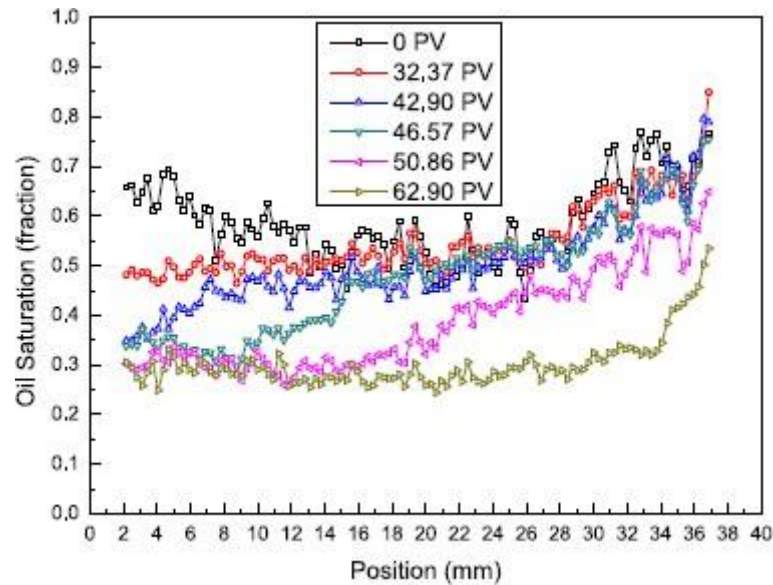


Рис. 2.10 – Зміна профілів нафтонасиченості в часі для зразка керна під час заводнення (від 0 до 42,90 PV) та закачування CO_2 (від 46,57 до 62,90 PV).

Запозичено в (Zhao et al., 2020)

Із кривих відносної проникності було виявлено, що від заводнення водою до нагнітання sc-CO_2 насиченість краю як змочувальної, так і незмочувальної фаз значно зменшилася. Це чітко демонструє, що закачування sc-CO_2 розширило діапазон мобільності обох фаз. Для оцінки ефективності переміщення можна використовувати криві відносної проникності та застосувати відносно просту математичну формулу.

3. ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНА ЧАСТИНА ДОСЛІДЖЕННЯ

Під час виконання експериментів досить багато часу забирає робота з апаратурою, планування експерименту та перевірка справності дослідної установки. У цій експериментальній роботі саме підготовчий етап є надзвичайно важливим для отримання достовірних результатів. У цій главі описано схему експериментальної установки та моделей, використаних в експерименті, інструментарій для отримання зображень, модель пористого середовища та підготовку зразків.

Експерименти було проведено в лабораторії енергій та теоретичної і прикладної механіки (LEMTA) та лабораторії кристалографії, магнітного резонансу та моделювання (CRM²).

3.1. Експериментальна установка

Експериментальна установка, використана для цього дослідження, складається з двох частин: перша – це МРТ-спектрометр з високою роздільністю 600 МГц типу Bruker III 600 із широким отвором, оснащений вертикальним магнітом з індукцією 14 Тл, екранованими градієнтними котушками, що забезпечують максимальну силу градієнта до 450 мТл/м, і квадратурний резонатор із діаметром 40 мм.

За допомогою цієї установки вимірюють та безпосередньо візуалізують двофазний потік у вертикальній моделі пористого середовища, представленій піском, у стандартних умовах (кімнатна температура й атмосферний тиск). Техніка МРТ дає змогу здійснювати неінвазивні, тобто безпроникні, вимірювання (двовимірне чи навіть тривимірне картування) концентрації ядер гідрогену ¹H в рідкій фазі, що міститься в пористому середовищі. Ці ядра гідрогену можуть бути частиною молекул води або інших рідин. Атоми гідрогену, пов'язані з водою чи

вуглеводнями, забезпечують отримання зображень розподілу фаз, а також можливість розрізняти тверду й рідку фази.

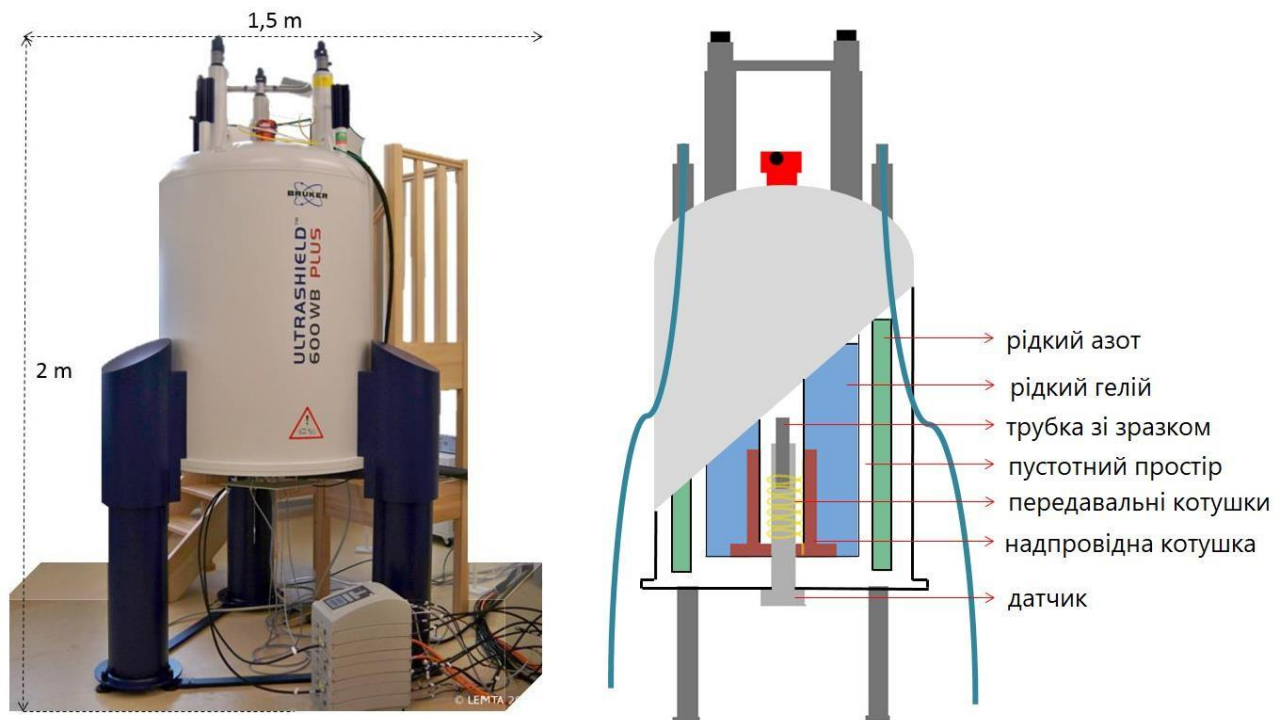


Рис. 3.1 – Апарат МРТ, використовуваний для експериментів (а), схематичне зображення спектрометра та легенда (б). Видозмінено з (Fannir, 2019)

Друга частина установки – це циліндрична колонка, що слугує в експерименті пористим середовищем. Трубку заввишки 14 см із внутрішнім діаметром 34 мм заповнюють піском та утрамбовують. Усередині цієї трубки поміщають два пористі фільтри та дві кришки, для того щоб вони утримували піщинки. Матеріали, використані для цієї установки, тривалий час ретельно підбирали, щоб уникнути будь-якого впливу на результати експерименту. По-перше, у жодному разі не можна використовувати феромагнітні матеріали всередині та поблизу магніту, по-друге, провідники потрібно використовувати лише поза резонатором, щоб уникнути втрати сигналу та спотворення зображення (Fannir, 2019).

До нижньої частини зразка для впорскування води знизу вгору з постійною швидкістю потоку під'єднують шприцевий насос, який може вводити рідину дуже повільно з точністю $\pm 0,5\%$.

Сигнал отримують та обробляють за допомогою програмного забезпечення Bruker ParaVision. Подальшу обробку здійснюють із використанням програмного забезпечення MATLAB. Потужність сигналу інтенсивності МРТ пропорційна кількості цільової рідини в зразку.

3.2. Роздільність МРТ і поле зору

МРТ-сигнал було отримано в об'ємному резонаторі з діаметром і висотою 4 см. За межами цього лімітованого об'єму виявити сигнал фактично неможливо, тому потрібно ретельно обирати ділянку зображення, яку ще називають полем зору (FOV). Оскільки досліджуване явище є макроскопічним, то важливо отримати зображення з якомога більшою площею. Для цього дослідження було вибрано FOV 5 см x 5 см, що трохи більше за зону виявлення. Це дає змогу обмежити аліасинг, тобто спотворення сигналу, за межами FOV (*Fannir, 2019*). Окрім цього, напрямок зчитування було спрямовано в напрямку потоку, оскільки в цьому разі не буде аліасингу через цифрову фільтрацію.

Далі було отримано матрицю 256 × 256 пікселів, що дає роздільність 0,19 мм на піксель. Можна збільшити розмір матриці, але тоді більший час збору даних призведе до зменшення сигналу за рахунок T_2^* -релаксації.

Модель дослідження повинна бути побудована відповідно до вказаних раніше обмежень FOV. Для цього модель заповнюють певним матеріалом, а потім встановлюють усередині тримача (рис. 3.2), призначеного для розміщення в зонді візуалізації. У результаті отримують декілька зображень, для того щоб точно визначити область спостереження у зразку.

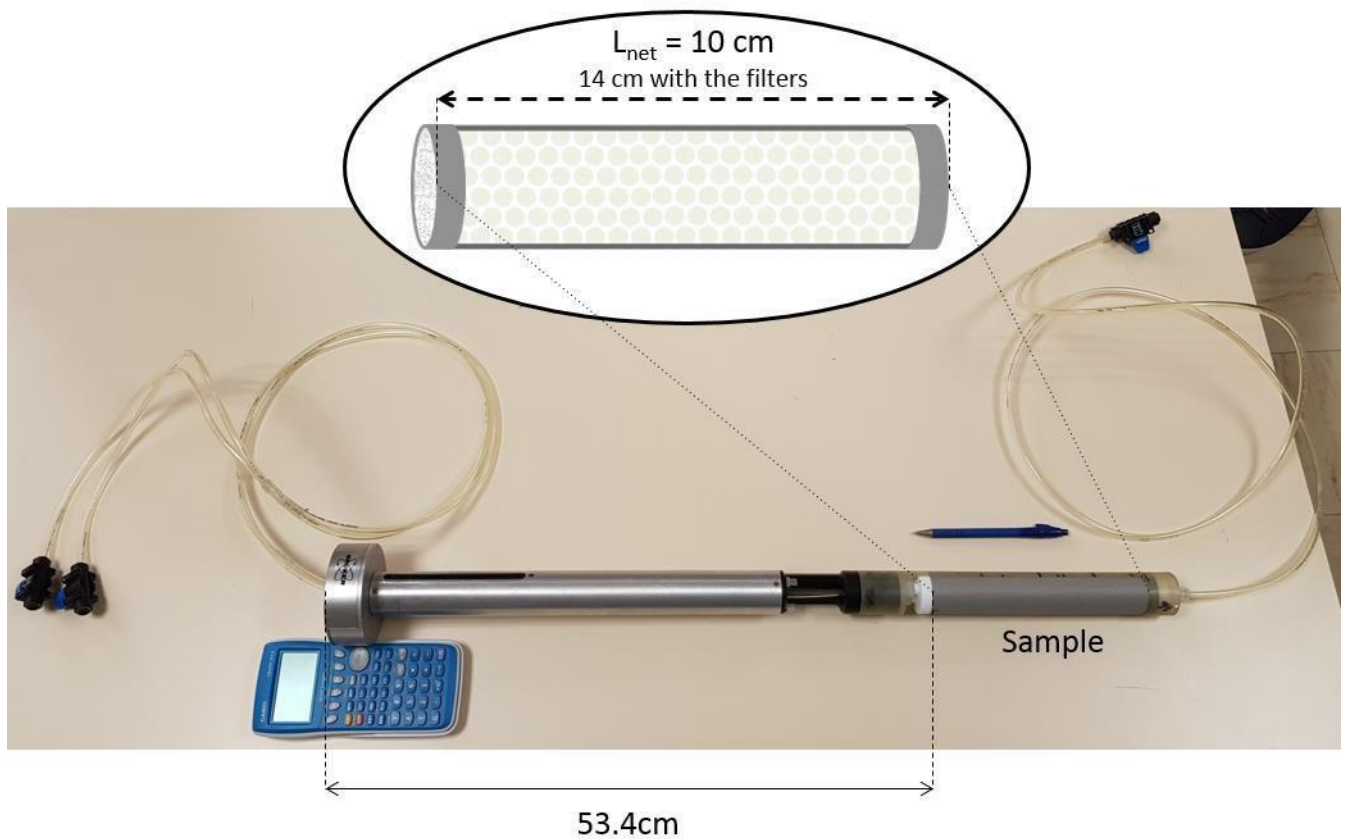


Рис. 3.2 – Тримач із моделлю, що містить зразок пористого середовища, та встановленими ввідними й вивідними трубками. Запозичено з (Fannir, 2019)

3.3. Пористе середовище

Для виготовлення трубки як матеріал було взято полівінілхлорид (ПВХ). Синтетичним пористим середовищем слугував пісок масою 139,3 г із середнім розміром зерен приблизно 0,13 мм. Середня пористість, виміряна гравіметричним методом, становила близько 38%, а абсолютна проникність пористого середовища було обчислено за допомогою рівняння Козені-Кармана для неконсолідованого середовища:

$$K = \frac{\varphi^3}{36C(1-\varphi)^2} d^2,$$

де K – абсолютна проникність зразка, C – константа Козені-Кармана (у цьому дослідженні $C = 5$), φ – пористість зразка, d – середній діаметр зерен.

Пористість було отримано з розмірів моделі та петрофізичних властивостей піску. Оскільки середовище було заповнене рівномірно, то можна припустити, що

об'єм пористого середовища в межах FOV можна розглядати як репрезентативний елементарний об'єм (REV) (Fannir, 2019).

3.4. Рідини

В експериментах було використано два типи рідин: розчин $MnCl_2$ у воді як витіснявальну фазу та пальне марки РТХ2000 як нафтову фазу. $MnCl_2$ як парамагнетик знижує час релаксації протонів води, отже, покращує якість сигналу. У процесі дослідження як нафтову фазу було потенційно розглянуто різні типи рідин на основі їхніх фізичних властивостей та доступності.

Найбільш підхожою рідиною для експерименту виявився гас (керосин) марки РТХ2000 – це суміш вуглеводнів складу $C_{11}-C_{14}$, n-алканів та <2% ароматичних вуглеводнів, стабільна за стандартних умов та майже нерозчинна у воді. Ця рідина дає змогу приблизно відтворити поведінку нафти в пористих середовищах. Вона має в'язкість 2,96 мПа·с та густину 810 кг/м³. Зразок гасу типу РТХ2000 було випробувано в лабораторії LEMTA для перевірки його сумісності з МРТ з погляду сигналу та часу релаксації та отримано позитивний результат.

Фізичні властивості двох використовуваних для експерименту рідин наведені в таблиці нижче. Поверхневий натяг σ між нафтою та водою становить 0,05 Н/м.

Рідина	Густина, кг/м ³	В'язкість, сП	Поверхневий натяг, Н/м
Нафта	800	2,96	0,05
Вода	1000	1	

3.5. Опис експерименту

Спочатку потрібно наповнити нафтою полівінілхлоридну трубку. Щоби видалити повітря й отримати повністю насичений зразок, використовують вакуумний насос. На початковому етапі встановлюють гідростатичну рівновагу водонафтового контакту (ВНК) усередині пористого середовища, яку обчислюють відповідно до рівнів води й нафти в резервуарах. За таких обставин ВНК

рівномірно розподіляється поблизу нижнього фільтра. Швидкість введення контролюють за допомогою шприцевого насоса (рис. 3.3). Водний розчин $MnCl_2$ вводять в колонку знизу вгору з метою запобігання деформації ВНК під дією сили тяжіння. Об'ємну швидкість впорскування в цьому дослідженні змінювали від 0,12 до 0,16 мл/хв. Для кожного експерименту послідовне вимірювання магнітного резонансу виконують впродовж понад 10 годин, що відповідає впорскуванню 3 чи більше порових об'ємів (PV) води. Вимірювання магнітного резонансу виконують у ручному або автоматизованому режимі через певні проміжки часу.

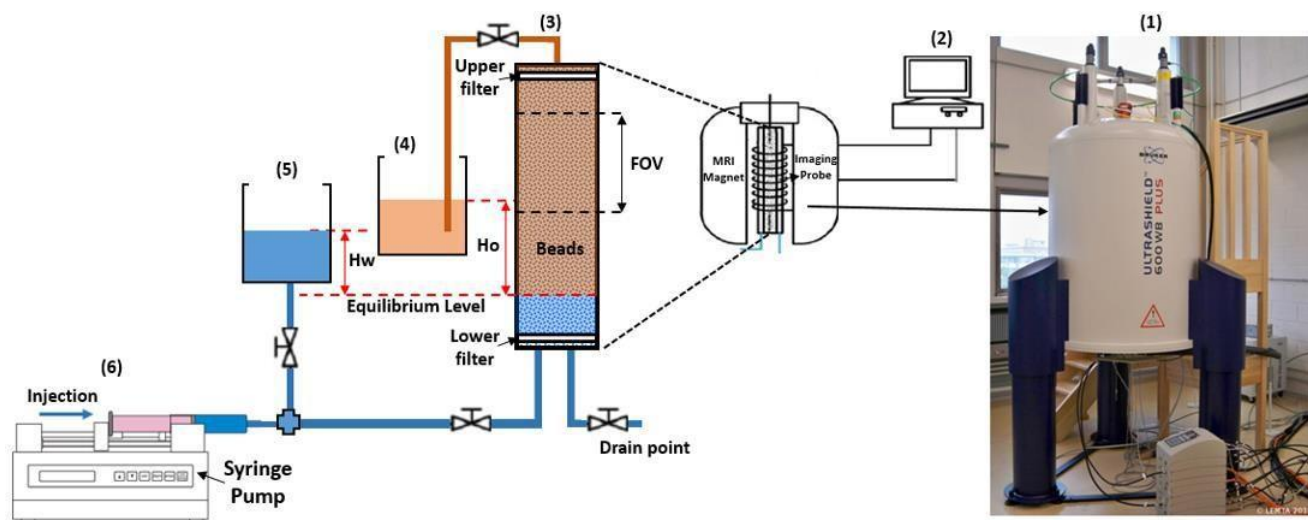


Рис. 3.3 – Експериментальна установка: (1) апарат МРТ, (2) комп'ютер для обробки даних, (3) зразок пористого середовища, (4) ємність із нафтою, (5) посудина з водою, (6) водяний насос. Запозичено з (Fannir, 2019)

Щоразу, коли зразок поміщують у зону виявлення МРТ-спектроскопії, це впливає на однорідність поля та спотворює його. Перед тим як приступити до отримання зображень, кожен зразок потрібно перевірити на гомогенність. Важливо, аби модель не містила бульбашок повітря, адже вони псують якість зображень та точність вимірювань. Якщо повітря все ж виявлено, від нього потрібно позбутись. Також вкрай важливо налаштувати візуалізаційний датчик перед отриманням кожного зображення, адже через чутливість цього датчика на його параметри налаштування впливає зміна відношення вода/нафта під час експерименту. Якщо датчик налаштований неправильно, то це призводить до

зниження вимірюваного сигналу та зменшення його точності. Регулювання датчика припиняють, коли зміни параметрів налаштування більше не спостерігаються.

Точність вимірювань залежить передусім від відношення сигнал/завада (SNR) вимірювань інтенсивності ЯМР, отриманих для кожного вокселя зображення. SNR відповідно залежить від багатьох факторів, як-от розмір вокселя, інтенсивність магнітного поля, природа пористого середовища, кількість повторень у послідовності МРТ тощо. У цьому дослідженні через використання спектрометра високонапруженого поля (14Т) SNR становить кілька відсотків.

4. РЕЗУЛЬТАТИ ДОСЛІДЖЕННЯ

Результати дослідження у формі графіків, зображень та відео було отримано в результаті опрацювання даних МРТ в програмному забезпеченні MATLAB. Загалом було виконано три експерименти, результати яких представлені у вигляді профілів нафтонасиченості в часі, побудованими за радіальними, аксіальними перерізами та як одновимірні криві; кривих падіння нафтонасиченості з часом, розподілу залишкової нафтонасиченості, частотної гістограми розподілу залишкової нафтонасиченості та зображень витіснення нафтової фази водою в певні моменти часу. Експерименти були виконані за схожих умов: лише в третьому досліді швидкість впорскування води була вищою, аніж у перших двох. Утім динаміка витіснення нафти з пористого середовища та поведінка рідин вкрай різняться в кожному досліді. Це нескладно помітити, якщо побудувати криві залежності нафтонасиченості від кількості введених порових об'ємів води (рис. 4.1). Якщо в експериментах 1 і 3 падіння нафтонасиченості можна описати за допомогою двох головних фаз, то в досліді 2 таких фаз уже три.

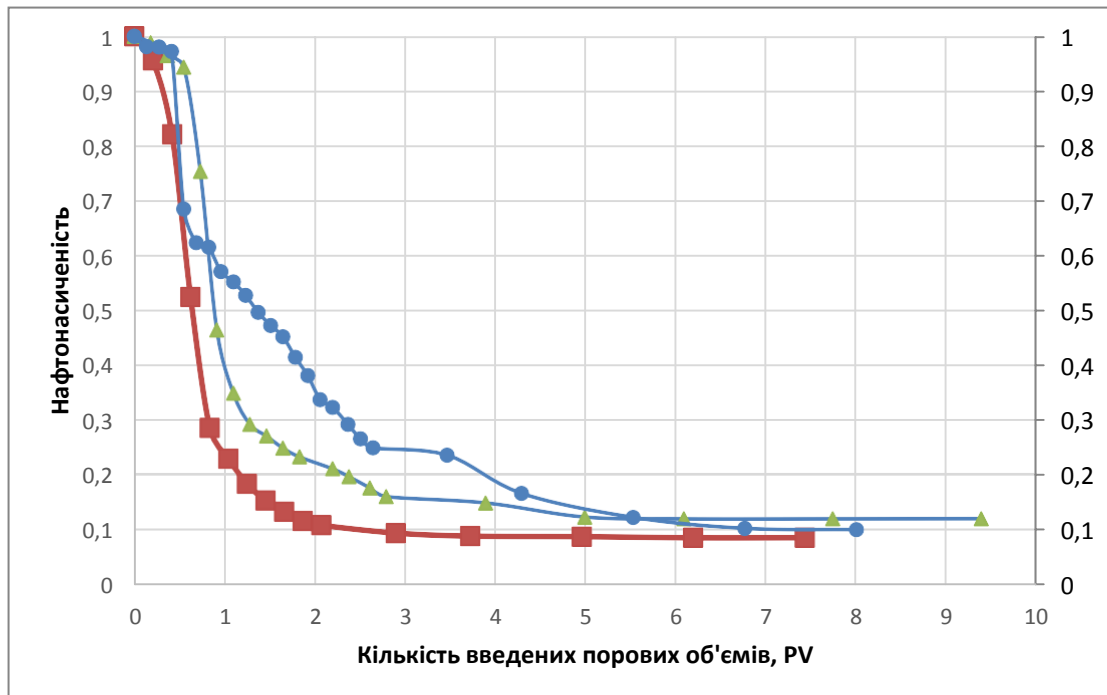


Рис. 4.1 – Графіки залежності нафтонасиченості від введених порових об'ємів: червона лінія – дослід 1, синя – дослід 2, зелена – дослід 3

4.1. Експеримент 1

Швидкість впорскування води в першому експерименті становить 0,12 мл/хв. Концентрація $MnCl_2$ у розчині становить 1 г / 800 мл.

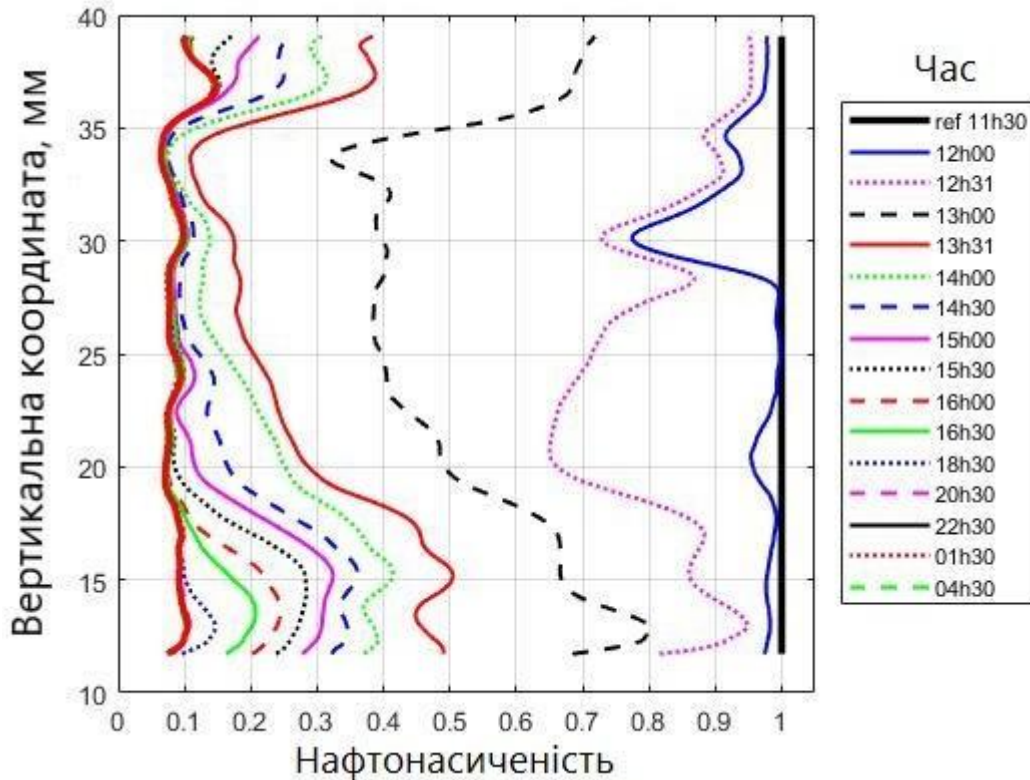


Рис. 4.2 – Зміна профілів нафтонасиченості в часі (за радіальними перерізами)

Криві зміни нафтонасиченості, побудовані за радіальними перерізами, відображають розподіл нафти в зразку вздовж вертикалі в часі. Добре видно, що о 12:00 з'являються 3 клини водної фази, що різко врізаються у нафтову фазу, найбільший на висоті $z=30$ мм (рис. 4.2). Нафтонасиченість коливається від 100 до <80%. Через пів години міжфазна поверхня в нижній частині посудини починає здійснювати поршневі рух (англ. «piston-like shock»), себто просуватися на достатньо значну відстань квазіпаралельно до своєї поверхні в попередній момент часу (Panfilov, 2010; Panfilov, 2019). Протягом наступної години границя істотно переміщується й нафтонасиченість падає до 10% на $z=33$ мм, водночас на краях вона становить від 40 до 50%. Після 13:30 положення основного клина майже не змінюється, водночас вода повільно витісняє нафту скраю. Отже, до 4:30 ранку процес витіснення був завершений і в зразку залишилася залишкова

нафта. Нафтонасиченість в середньому становила $\sim 10\%$, хоча досягала 15% на $z=37$ мм.

Отже, проаналізувавши криві, можна помітити, що витіснення нафтової фази водою відбувається у два етапи: на першому тривалістю близько 2 год процес заводнення відбувається досить стрімко, спочатку переважно в нижній частині зразка, а потім поступово зміщується вгору. Друга стадія значно повільніша, упродовж цього етапу водна фаза переважно витісняє нафту поблизу верхньої кромки та в нижній частині посудини, де не було стрімкого розвитку процесу в перші години експерименту.

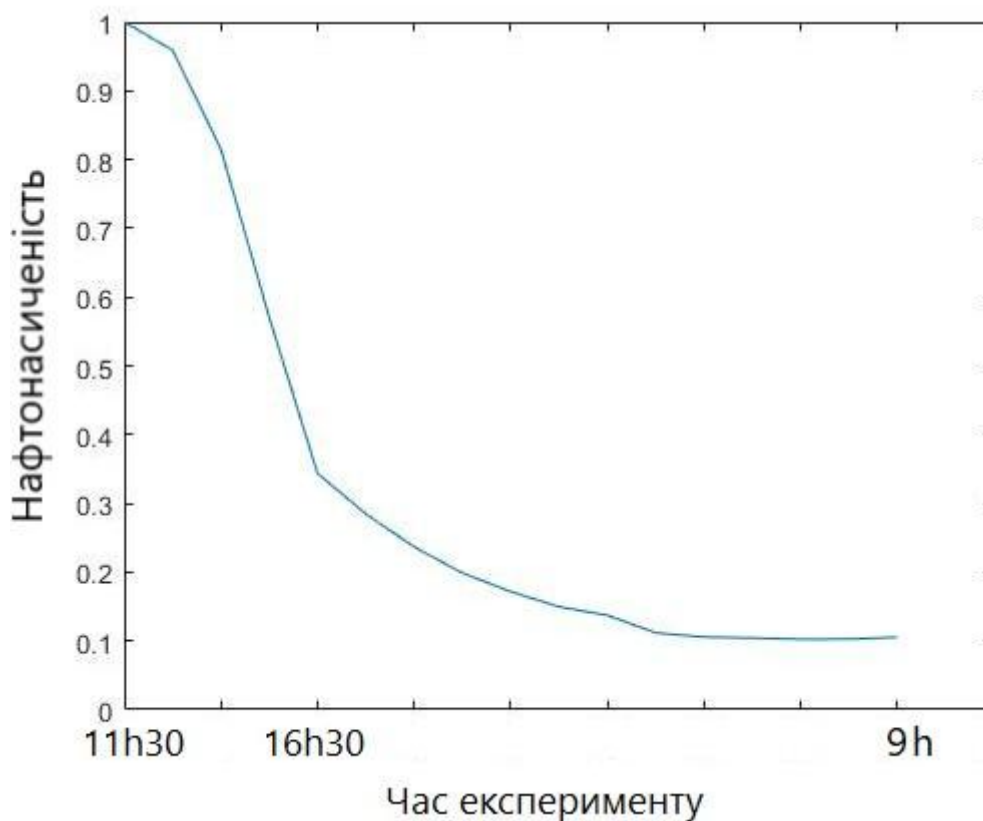


Рис. 4.3 – Крива падіння нафтонасиченості з часом

Крива зміни нафтонасиченості зразка в часі показує, наскільки інтенсивно відбувається витіснення нафти водою з порового простору в певний проміжок часу та дає змогу оцінити залишкову нафтонасиченість піску. Якщо зобразити графік як ламану, тоді можна з легкістю обчислити швидкість витіснення нафти водою в різні часові відтинки. Якщо ж зобразити графік у вигляді плавної кривої,

тоді можна знайти інтенсивність витіснення нафти зі зразка в певний момент часу, провівши дотичну до цієї кривої в зазначеній точці. Проаналізувавши графік (рис. 4.3), бачимо, що увесь процес умовно можна поділити на 4 фази: на першій вода повільно починає просочуватися в пісок, на другій відбувається вкрай інтенсивне витіснення нафти з порового простору, на третій процес значно вповільнюється, а під час четвертої фази нафтонасиченість фактично не змінюється: графік досягає горизонтальної асимптоти, яка відповідає залишковій нафтонасиченості. У цьому експерименті близько 10% нафти неможливо витіснити.

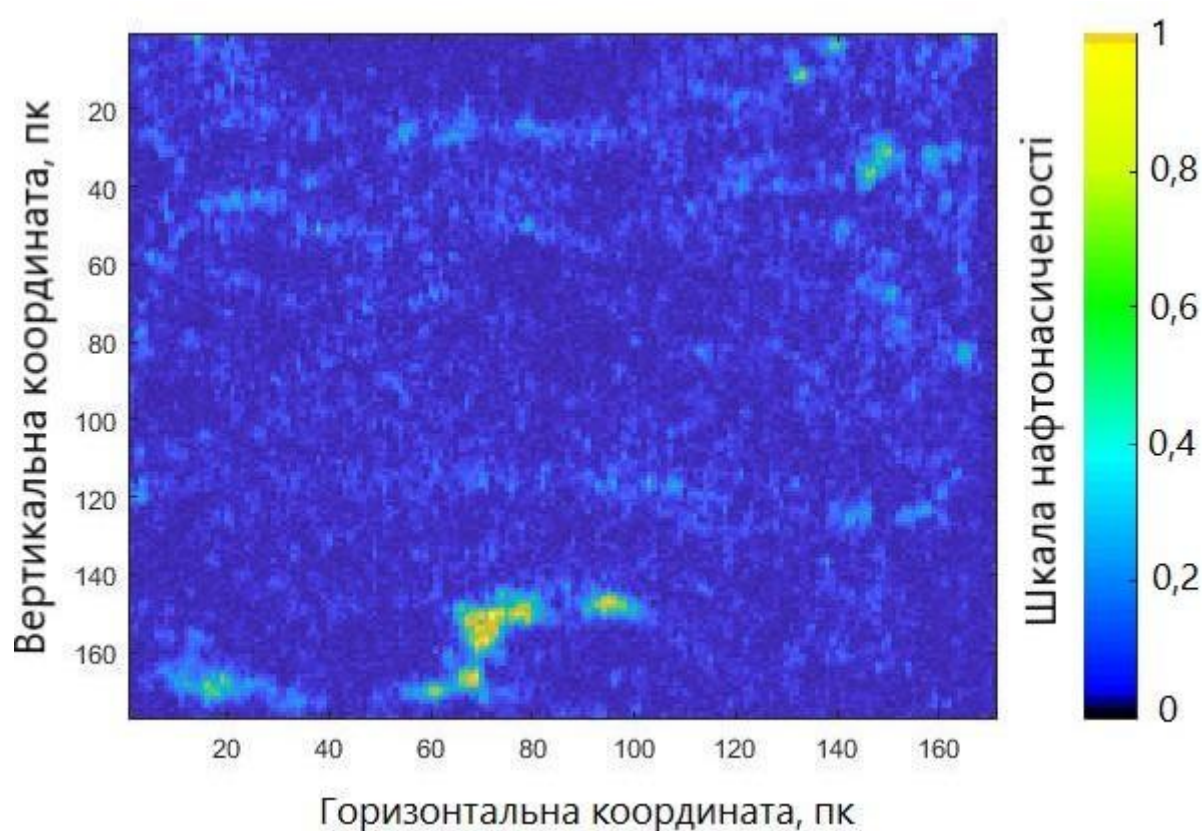


Рис. 4.4 – Розподіл залишкової нафтонасиченості в зразку

Зображення залишкової нафтонасиченості (рис. 4.4) показує, що нафта розподіляється рівномірно в досліджуваному зразку, хоча в ньому все ще наявні деякі яскраві плями, із яких нафта не була повністю витіснена. Вони здебільшого зосереджені у верхній частині зразка у формі вигнутої видовженої структури (зображення перевернене), що простягається вдовж горизонтальної осі в межах

від 0 до 110 пк, а також невеличких плямок, розкиданих у вигляді точок унизу поблизу стінок.

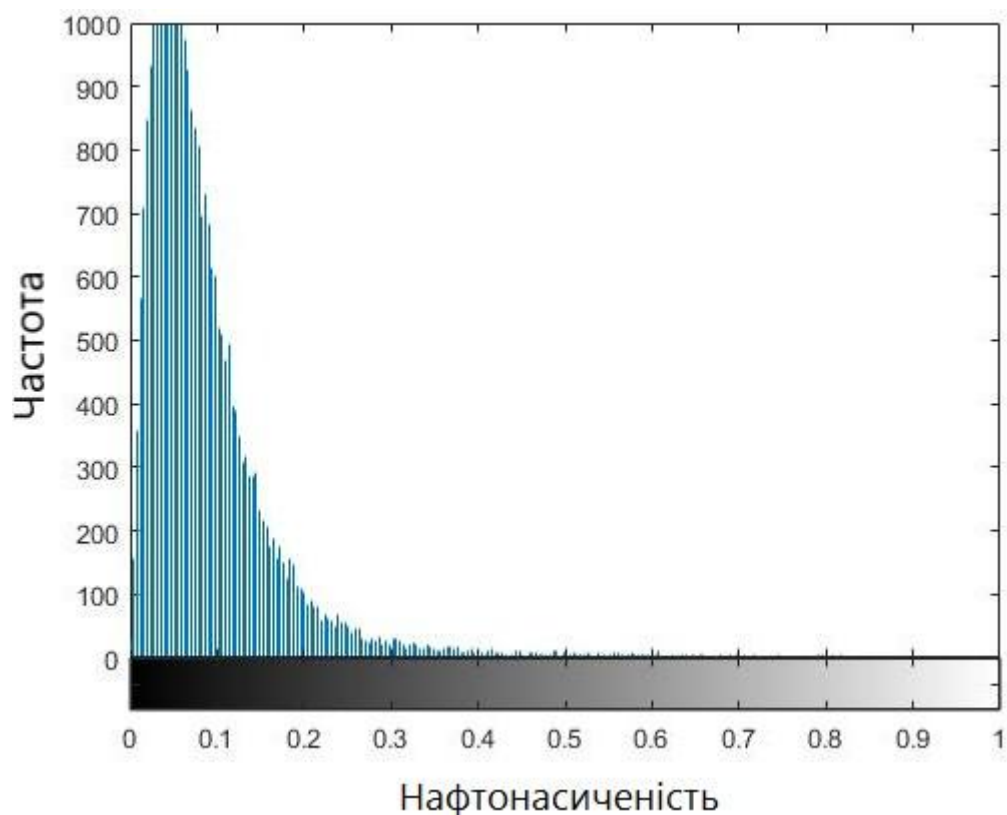


Рис. 4.5 – Частотна гістограма розподілу залишкової нафтонасиченості

Гістограма частот залишкової нафтонасиченості (рис. 4.5) підтверджує, що найчастіше в зразку нафта займає від 4 до 8% об'єму пор, хоча на деяких невеликих обмежених ділянках вона може досягати навіть до 50% або ж, навпаки, у значних об'ємах нафта в порах майже відсутня. Переважно вміст залишкової нафти в порах не перевищує 15-20%.

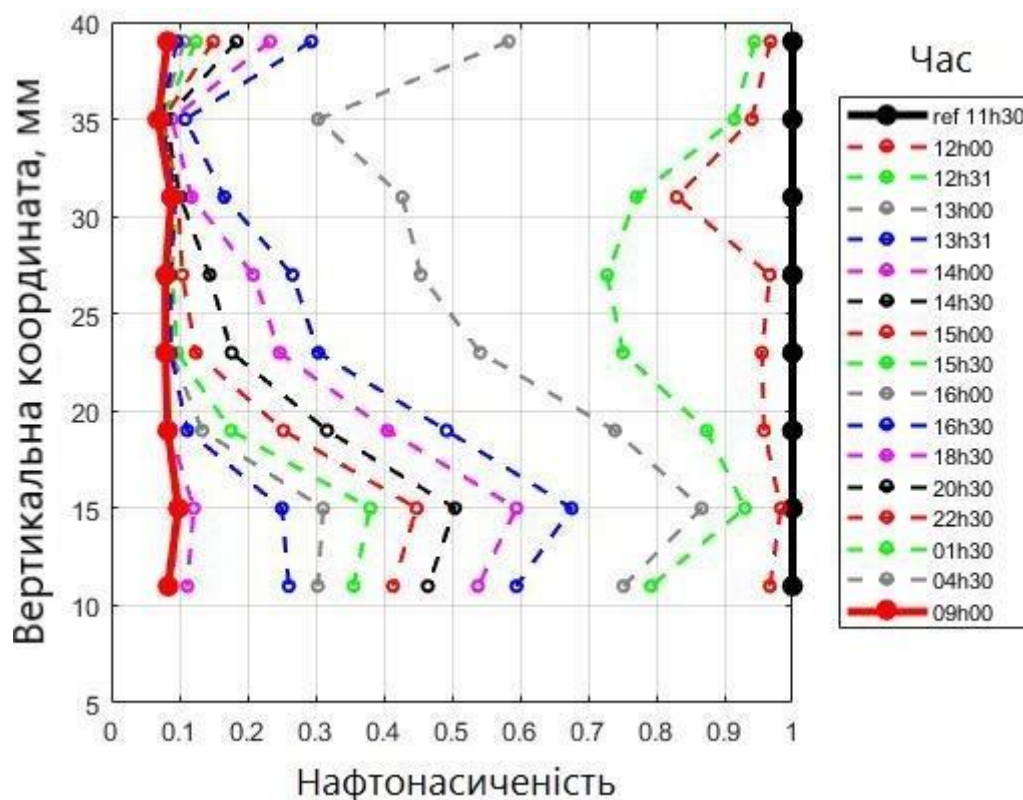


Рис. 4.6 – Зміна профілів нафтонасиченості в часі (за аксіальними перерізами)

Криві зміни нафтонасиченості в часі, побудовані за аксіальними перерізами, мають досить схожу форму до тих, що побудовані за радіальними перерізами. Основна відмінність між ними полягає в тому, що точки в цьому графіку з'єднані прямими, тобто міжфазні поверхні зображені як ламані. Коли починається процес витіснення, нафта виштовхується найбільш інтенсивно на $z=27-35$ мм, де, імовірно, сформувався клин (рис. 4.6). До 12:30 фронт витіснення поширюється латерально і набуває округлої форми, насиченість нафтою досягає $\sim 73\%$, хоча залишається $>90\%$ поруч із краями. Зміщення границі відбувається трохи ефективніше на дні посудини ($z=10$ мм), якщо порівняти з більш віддаленими від дна ділянками ($z=15$ мм). Між 12:30 і 13:30 відбувається поршневе витіснення. Фронт води активно поширюється на $z=35$ мм, а нафтонасиченість там знижується майже до 10%, хоча вона становить 30% на $z=40$ мм і все ще майже 70% на $z=15$ мм. Починаючи з 13:30, крила фронту міжфазної поверхні поступово рухаються в

бік незаміщеної нафтової фази. Зрештою, о 6 ранку середнє значення залишкової нафтонасиченості нарешті сягає 8-9%.

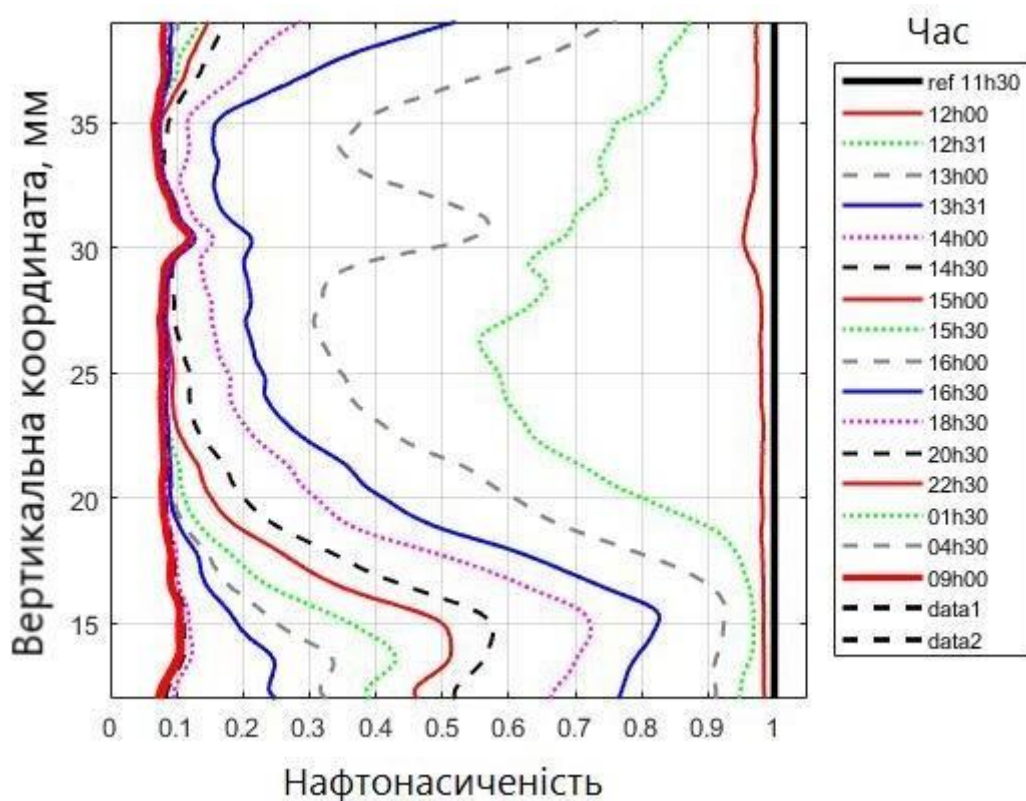
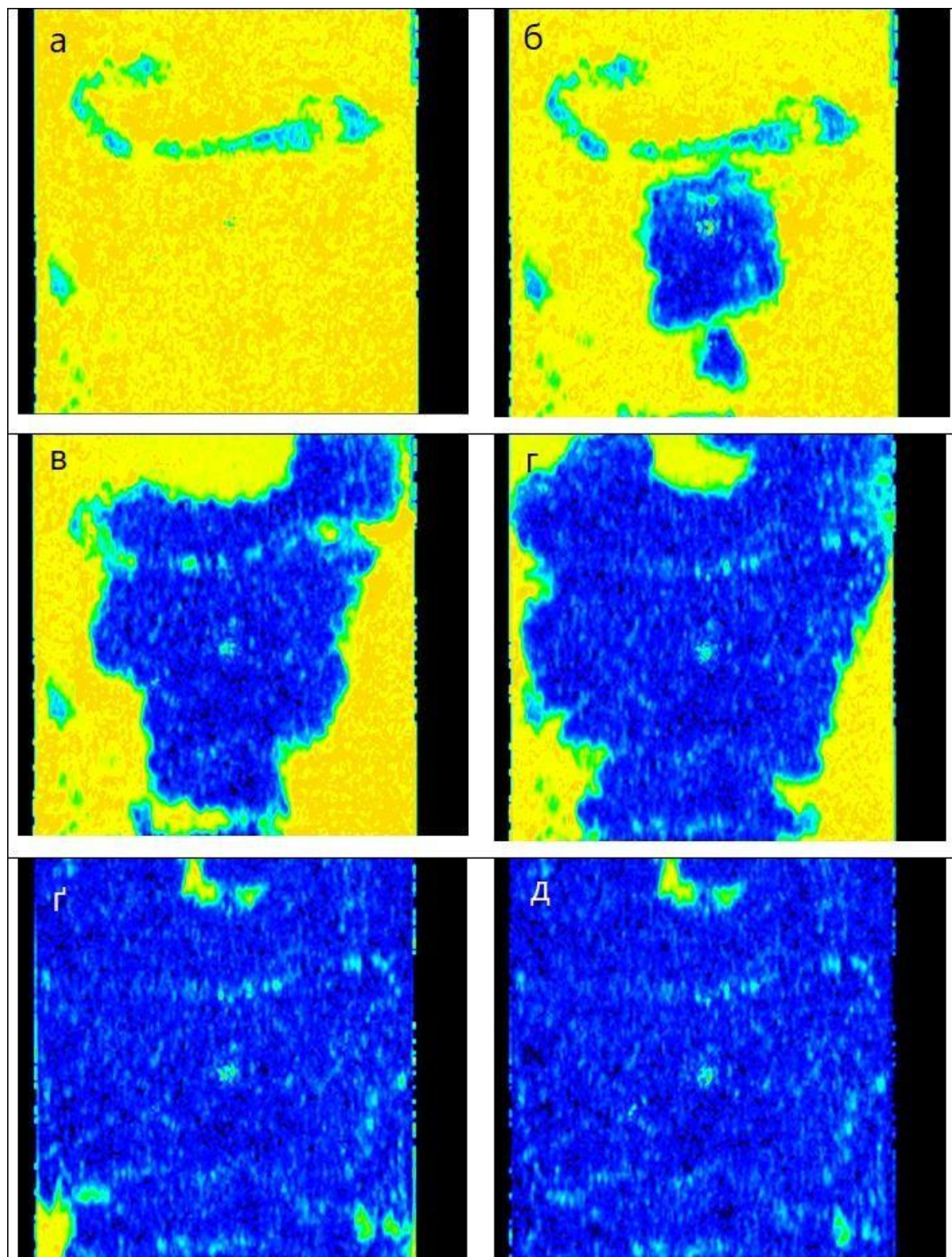


Рис. 4.7 – Одновимірні криві зміни нафтонасиченості в часі

Одновимірні криві зміни нафтонасиченості з часом дуже схожі на ті, що побудовані за аксіальними перерізами, але вони все ж мають певні відмінності. Найбільш помітна з них полягає в тому, що вони зображені у формі кривих, а не ламаних. З 11:30 до 12:30 витіснення нафти відбувається як звичайно, тобто водний фронт поширюється у вигляді язика (рис. 4.7). Утім, до 13:00 фронт розпадається на два клини, що просуваються далі, досягаючи водонасиченості 70 і 65% на $z=27$ і 34 мм відповідно, водночас між цими клинами нафти в порах усе ще $\sim 57\%$. Ба більше, нафтонасиченість в нижній частині зразка все ще перевищує 90%. Далі впродовж однієї години міжфазна поверхня переміщується приблизно рівномірно, доки нафтонасиченість не падає до $\sim 10\%$ у фронтів частині, водночас залишаючись на рівні близько 58% поблизу нижнього краю зразка. Після цього вода витісняє нафту лише поблизу верхнього й нижнього країв. Процес

стабілізується о 6 ранку, коли залишкова нафтонасиченість становить усього близько 10%.



**Рис. 4.8 – Витіснення нафтової фази водою в різні моменти часу:
а) 12:05, б) 12:36, в) 13:05, г) 13:36, ґ) 16:35, д) 9:06 наступного дня**

Експеримент розпочався о 9.03 ранку. Ін'єкція води починається о 10:00. О 12:00 у верхній частині поля зору виникає лінійна видовжена водонасичена структура (рис. 4.8). Через 30 хвилин досить велика водна пляма розміром 10 x 10 мм охоплює ділянку під лінійним включенням, а на дні зразка з'являється інша горизонтально спрямована структура. Після цього відбувається поршневий висхідний рух водної фази до 13:30, коли вода вже покриває центральну частину зразка. Залишаються дві зони поблизу правої та лівої кромки, а також одна у верхній частині, які ще не насичені водою. Від 13.30 переважає вже так званий процес розгалуження, або пальцювання (англ. «fingering»), тобто повільного заміщення нафти водною фазою, унаслідок якого фронт розгалужується на крихітні відростки у формі щупалець чи пальчиків (*Bukatiuk, 2021*). Отже, вода повільно виштовхує залишки нафти до закінчення експерименту о 9.28 ранку. Певні залишки нафти все ще залишаються в піску у вигляді яскравих плям у верхній частині посудини та на дні біля стінок.

4.2. Експеримент 2

Швидкість впорскування води в другому експерименті становить 0,12 мл/хв. Концентрація $MnCl_2$ у розчині становить 2 г / 800 мл.

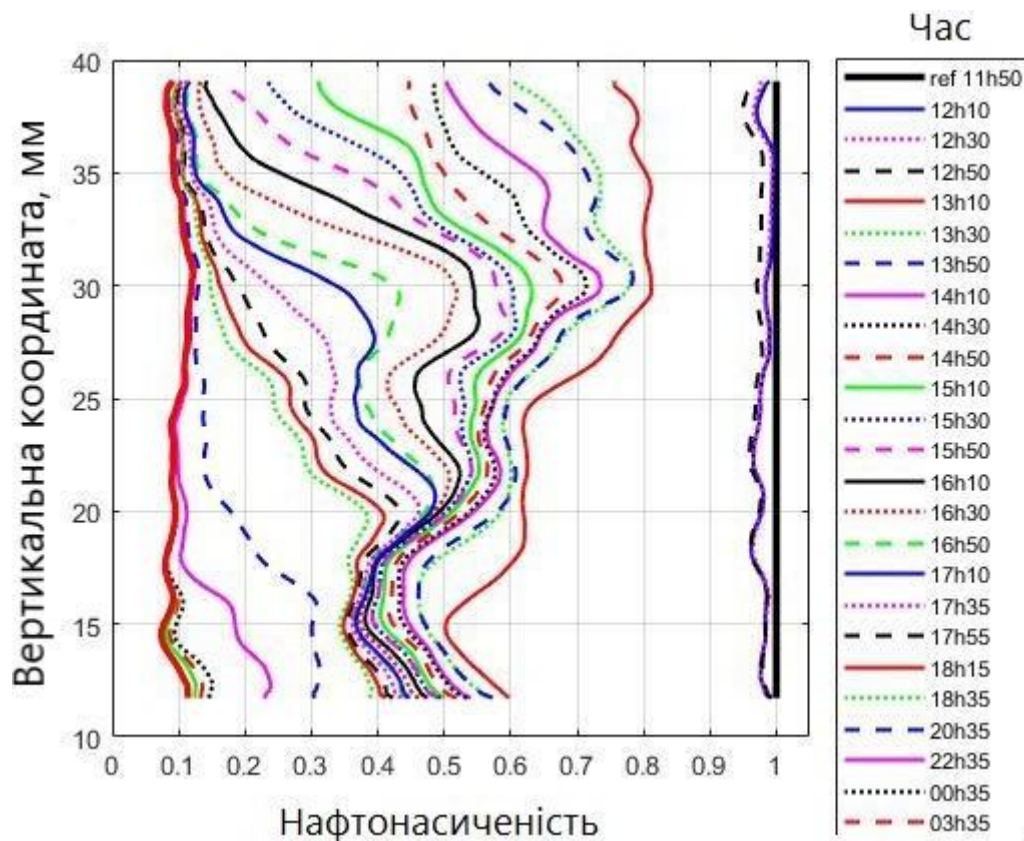


Рис. 4.9 – Зміна профілів нафтонасиченості в часі (за радіальними перерізами)

Можна виділити 3 етапи витіснення нафти (рис. 4.9). На першій стадії вода інтенсивніше витісняє нафту в нижній частині посудини. Упродовж перших трьох годин біля нижнього й верхнього країв формується два клини, які зуміли витіснити до 58% нафти поблизу дна посудини, тоді як менш ніж 25% нафти було витіснено на $z=30$ мм. На другому етапі процес витіснення охоплює переважно верхню частину зразка. Із 14:50 до 18:35 нафтонасиченість біля верхньої кромки падає з 45 до менш ніж 10%, до того ж на $z=30$ мм уміст нафти в поровому просторі знижується на понад 50%. На останньому етапі залишкова нафта витісняється переважно з нижньої частини зразка, досягаючи залишкової нафтонасиченості на рівні 7-12%.

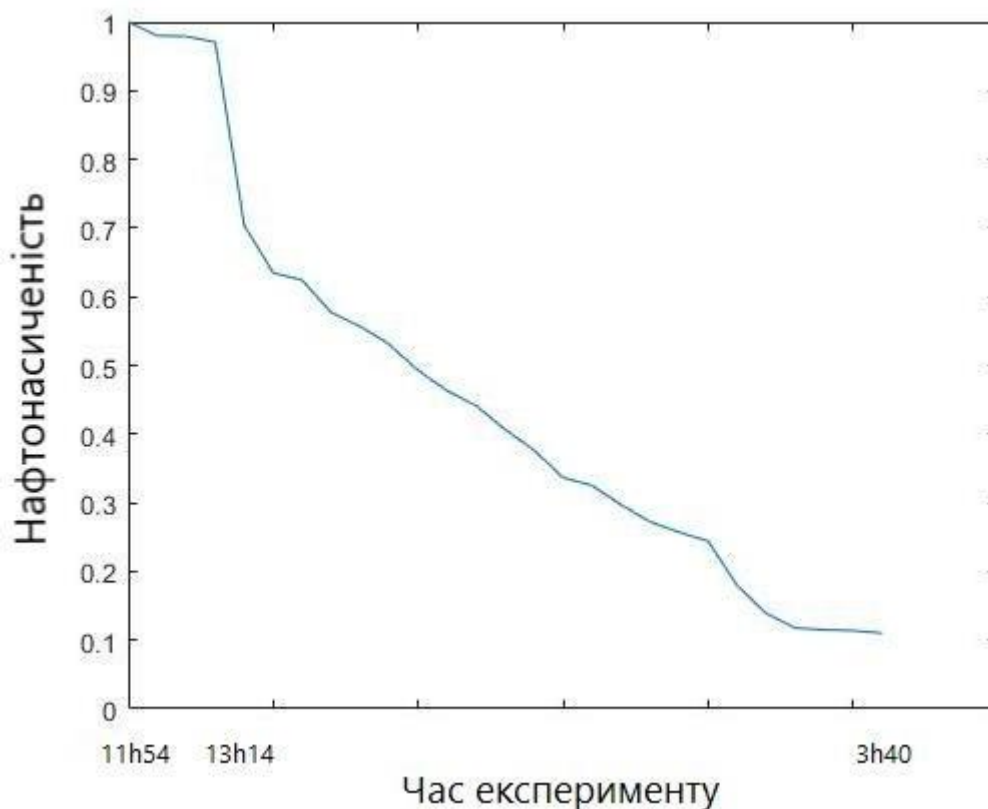


Рис. 4.10 – Крива падіння нафтонасиченості з часом

Крива зміни нафтонасиченості з часом показує, що процес витіснення нафти можна умовно поділити на 4 фази (рис. 4.10). На першому етапі цей процес відбувається вкрай повільно, водній фазі складно проникати в поровий простір. На другій стадії витіснення відбувається надзвичайно інтенсивно: приблизно за пів години нафтонасиченість падає на понад 30%. Далі настає досить тривала фаза значно повільнішого витіснення нафти, яка наприкінці експерименту переходить у стадію залишкової нафти. Останній відповідає вихід кривої на горизонтальну асимптоту. Отже, залишкова нафтонасиченість складає близько 11%.

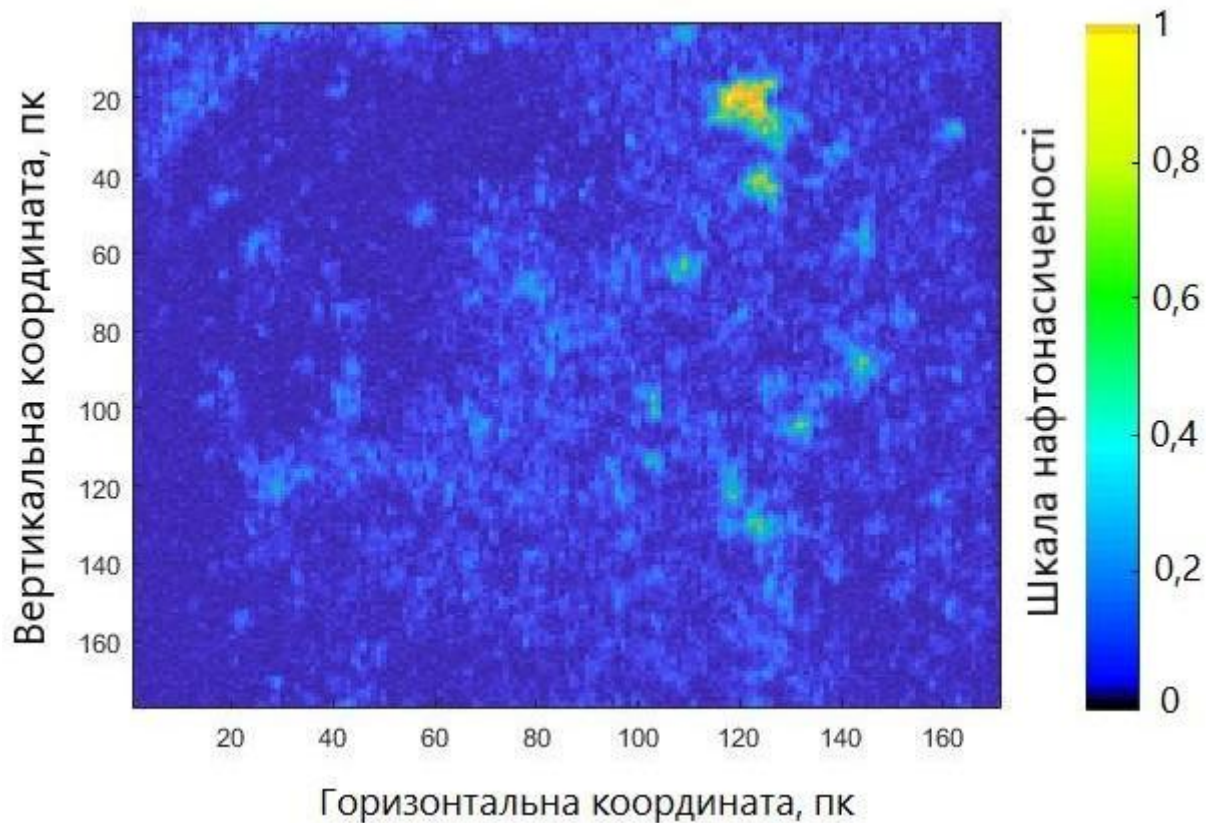


Рис. 4.11 – Розподіл залишкової нафтонасиченості в зразку

Зображення залишкової нафтонасиченості показує, що існує деяка асиметрія в її розподілі в межах зразка (рис. 4.11). Можна чітко спостерігати яскраві локалізовані ділянки, з яких нафта витіснена не повністю. Вони здебільшого зосереджені в нижній частині циліндра та приурочені до значень горизонтальної координати від 100 до 140 пк. Такі ділянки порового простору здебільшого мають форму плям неправильної форми.

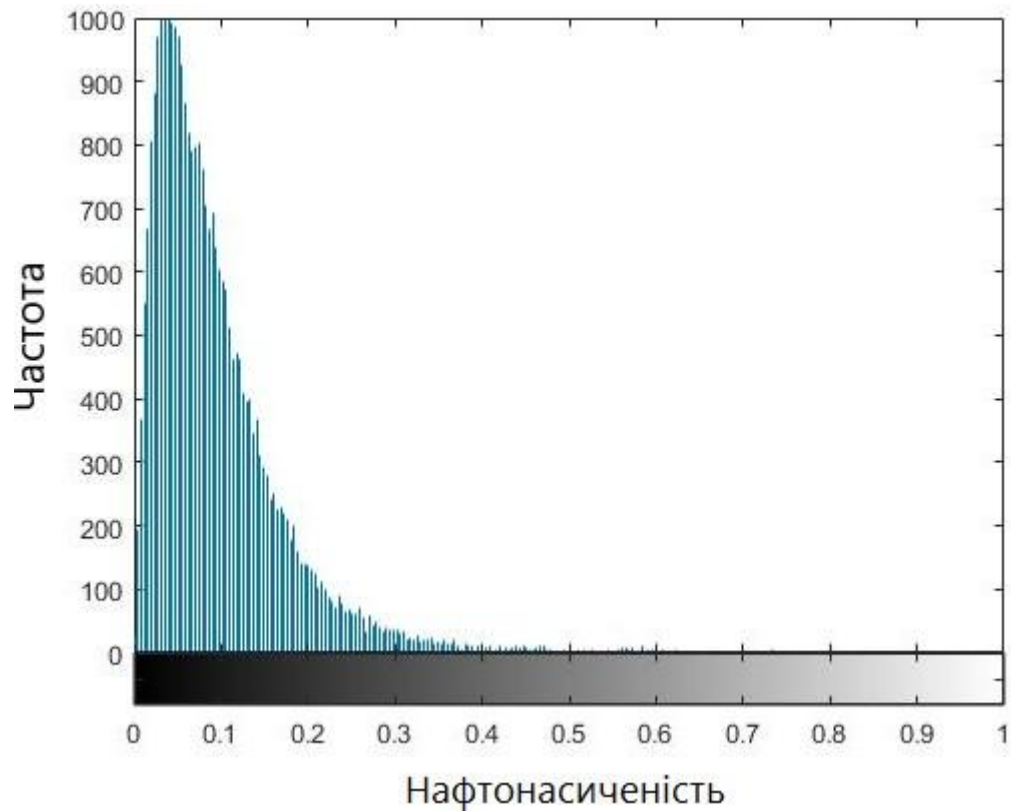


Рис. 4.12 – Частотна гістограма розподілу залишкової нафтонасиченості

Гістограма залишкової нафтонасиченості (рис. 4.12) чітко показує, що найчастіше нафта займає близько 4-6% об'єму пор. Розподіл асиметричний і в окремих пікселях насиченість нафтою досягає рівня 50-60%. Переважно значення залишкової нафтонасиченості не перевищують позначку 15-25%.

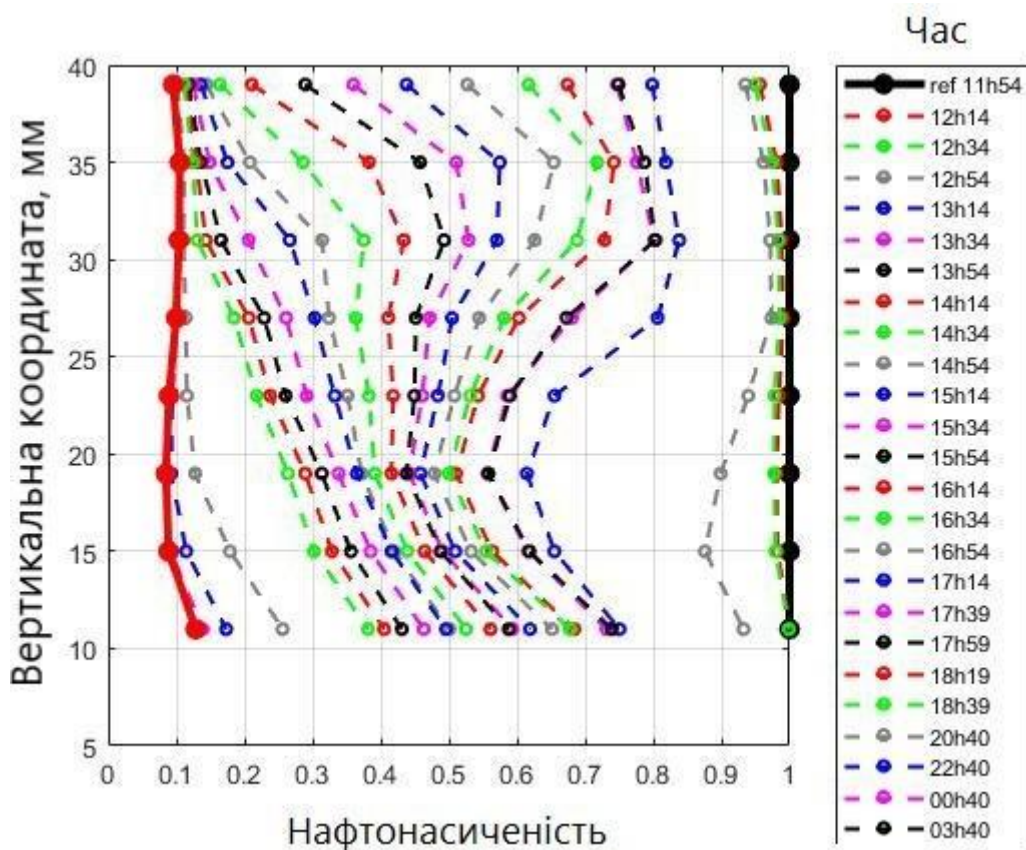


Рис. 4.13 – Зміна профілів нафтонасиченості в часі (за аксіальн. перерізами)

Криві зміни нафтонасиченості з часом, побудовані за аксіальними перерізами, мають надзвичайно подібну тенденцію, що й криві, накреслені за радіальними перерізами. На графіку (рис. 4.13) чітко видно три фази заводнення: спочатку нафта витісняється переважно з нижньої частини посудини, потім зверху, і, зрештою, вода виштовхує залишки нафти в нижній частині зразка.

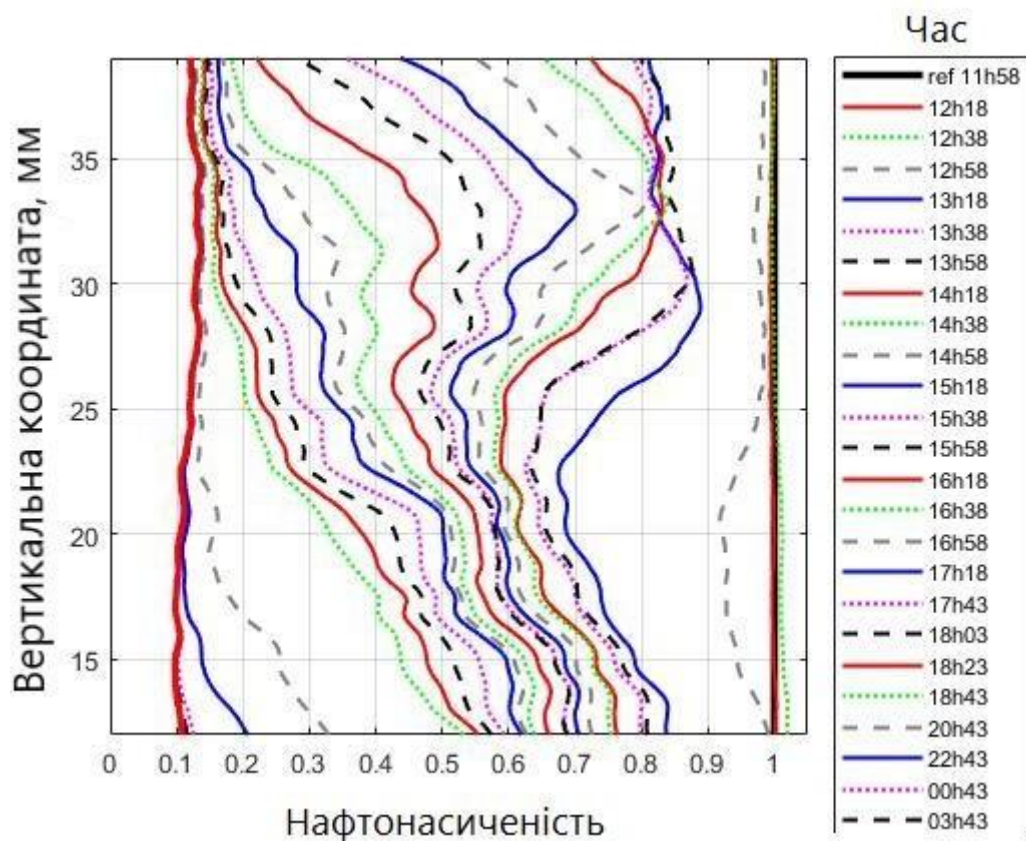


Рис. 4.14 – Одновимірні криві зміни нафтонасиченості в часі

Одновимірні криві також не надто відрізняються від щойно проаналізованих графіків. Однак варто звернути увагу на те, що міжфазну поверхню за допомогою одновимірних кривих можна дослідити більш глибоко, оскільки в цьому разі візуалізується більше деталей і крихітних розгалужень (рис. 4.14).

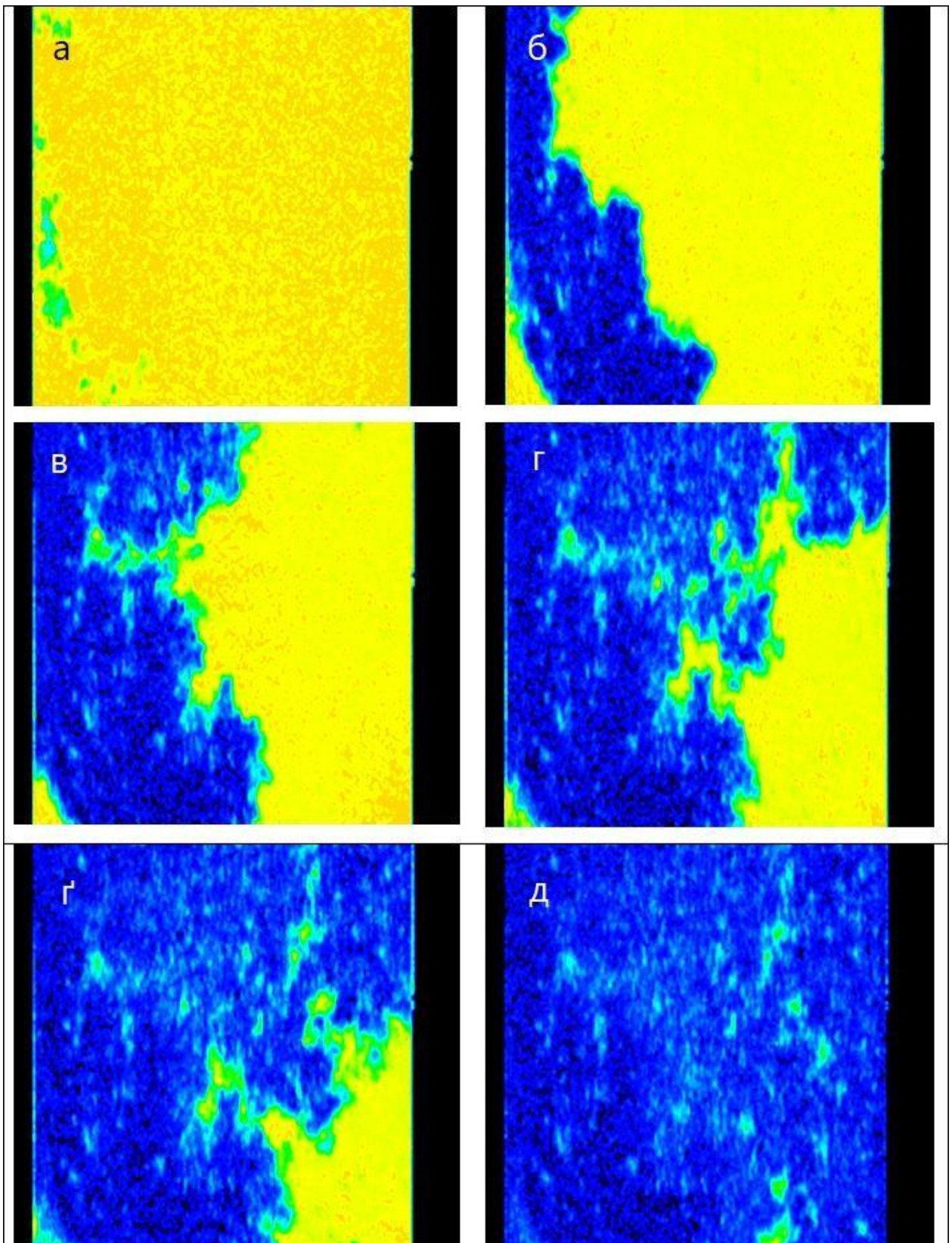


Рис. 4.15 – Витіснення нафтової фази водою в різні моменти часу:

а) 12:15, б) 13:14, в) 14:55, г) 16:55, ґ) 18:41, д) 9:09 наступного дня

Експеримент розпочався о 10:01. Об 10:25 починають вводити воду. О 12:10, у полі зору біля стінок посудини вперше з'являється вода (рис. 4.15). До 13:10

поблизу однієї зі стінок сформувався проточний канал. Після стрімкого поршневого прориву каналу відбувається спокійне пальцеподібне витіснення. Розгалуження спочатку поширюються латерально, наповнюючи центральну частину зразка водою, а згодом, після 14:30, водна фаза починає плавно зміщуватися вздовж протилежного краю посудини від верхньої кромки вниз, поступово витісняючи залишки нафти. Експеримент було завершено о 9:18 ранку, хоча в тій частині посудини, де на пізньому етапі відбувалося розгалуження потоку, у поровому просторі залишалось ще чимало плям із залишковою нафтою.

4.3. Експеримент 3

Швидкість впорскування води в першому експерименті становить 0,16 мл/хв. Концентрація $MnCl_2$ у розчині становить 2 г / 800 мл.

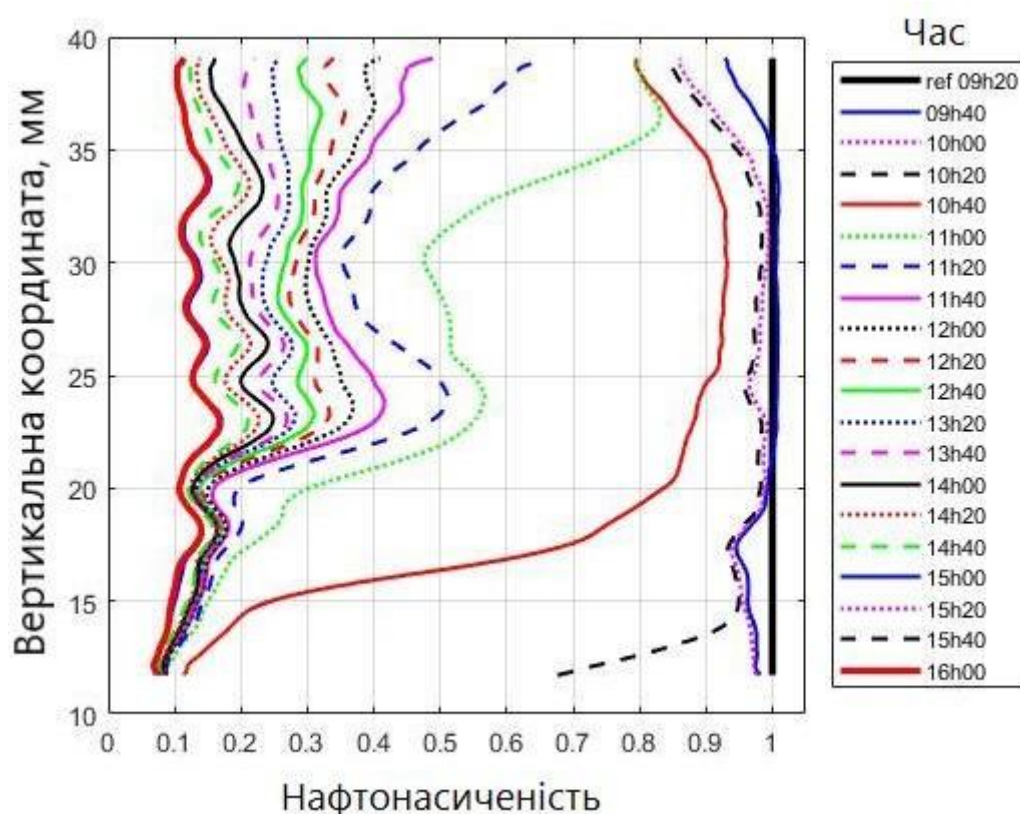


Рис. 4.16 – Зміна профілів нафтонасиченості в часі (за радіальн. перерізами)

Із кривих зміни нафтонасиченості з часом видно, що впродовж першої години міжфазна поверхня рухається досить повільно (рис. 4.16). Після цього в

нижній частині посудини відбувається дуже активне витіснення нафти. До 10:40 нафтонасиченість на дні зразка падає майже до 11%, у той час як у центральній частині вона залишається на рівні понад 90%. Після цього впродовж наступної години швидкість витіснення значно зростає в центральній і верхній частинах циліндра, досягаючи рівня нафтонасиченості $\sim 30\%$ на $z=30$ мм. Водночас форма кривих у нижній частині зразка більше майже не змінюється, адже нафта надалі виштовхується переважно з центральної та верхньої частин зразка. О 16:00 границя досягає рівня залишкової нафтонасиченості, яка варіює в різних частинах зразка від 8 до 17 %. Ця крива суттєво відрізняється від прямої та не схожа на криві, отримані в попередніх експериментах. Причиною цього може бути більша швидкість впорскування, що створює більш турбулентні умови заводнення. Також впливає на результат менша тривалість експерименту, що не дає змоги позбутися тієї частини нафти, яка не належить до залишкової та потребує більше часу для повного витіснення.

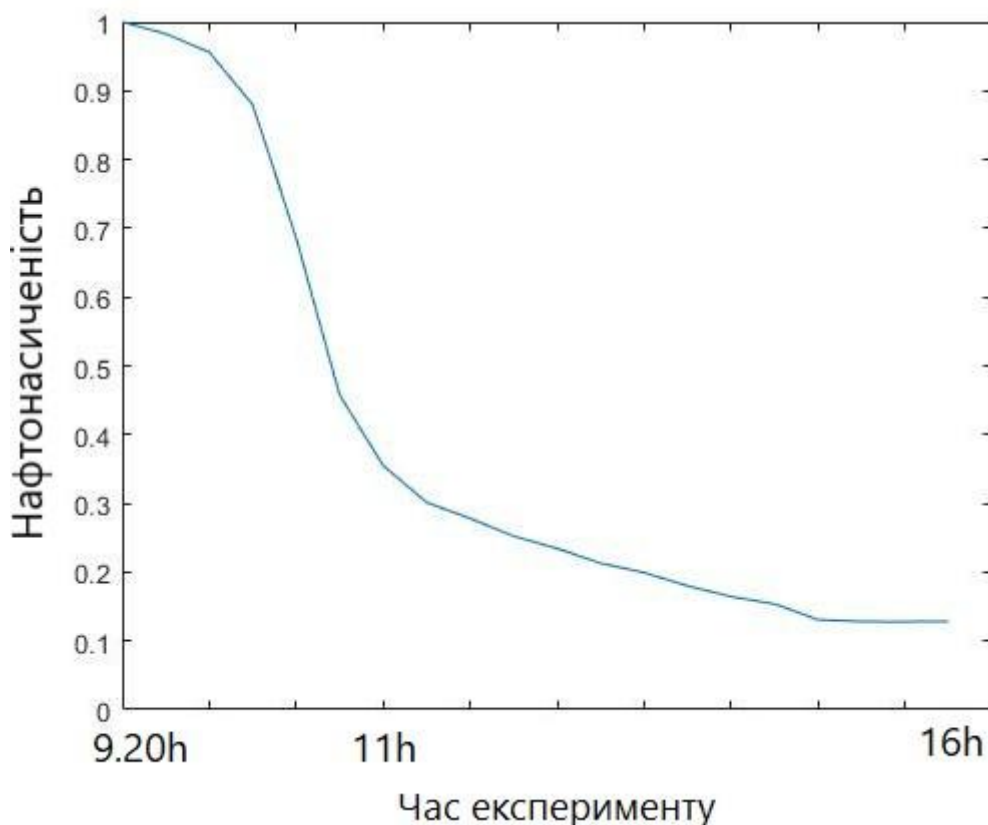


Рис. 4.17 – Крива падіння нафтонасиченості з часом

На графіку зміни нафтонасиченості з часом чітко простежуються 4 стадії процесу заводнення (рис. 4.17), що плавно перетікають одна в одну. Спочатку відбувається достатньо повільне проникнення водної фази, яке згодом змінюється бурхливим витісненням нафти: за 1 год нафтонасиченість зразка впала майже на 60%. Далі починається тривалий процес повільного рівномірного видалення залишків нафти. Зрештою, крива досягає горизонтальної асимптоти на рівні залишкової нафтонасиченості близько 12%.

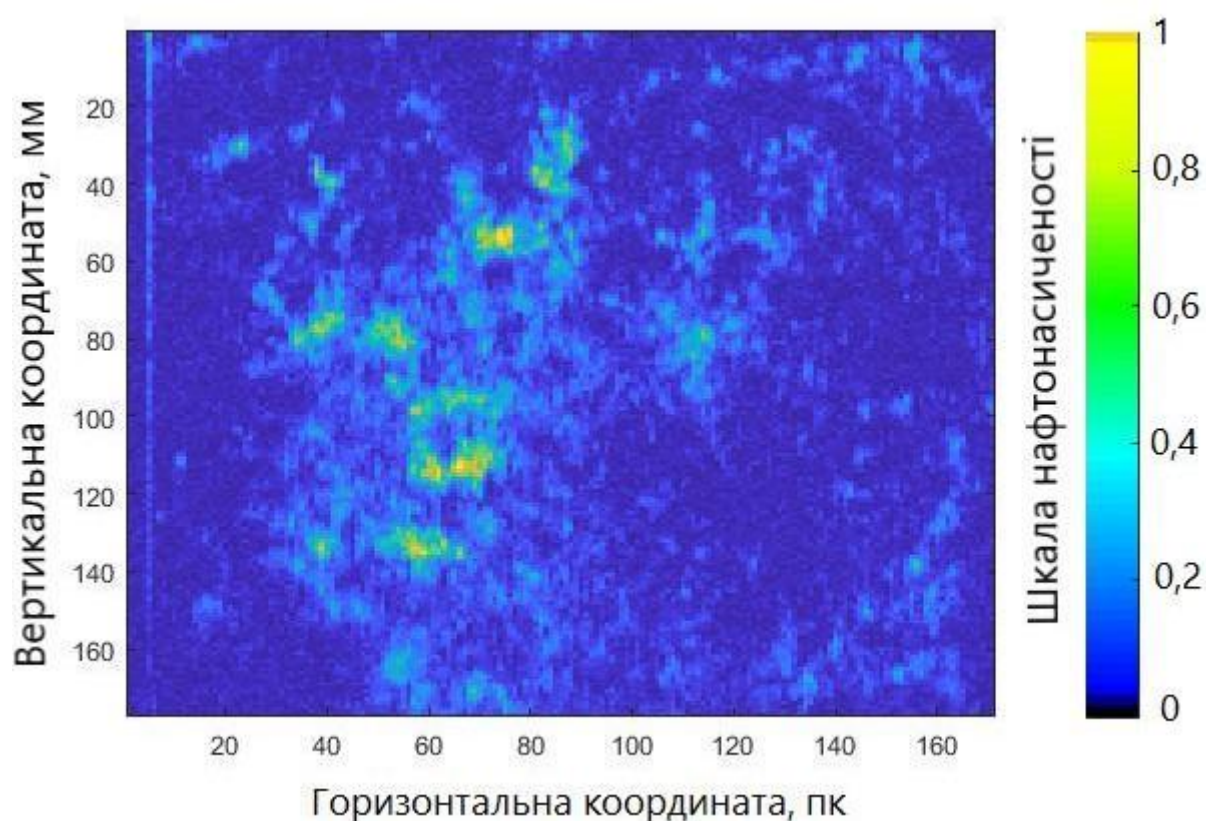


Рис. 4.18 – Розподіл залишкової нафтонасиченості в зразку

Зображення залишкової нафтонасиченості вказує на існування чіткої асиметрії в її розподілі в зразку (рис. 4.18). Велика площа покрита яскравими розмитими плямами, у межах яких витіснення нафти з порового простору було недостатньо ефективним. Ці ділянки переважно зосереджені в лівій частині поля зору зі значеннями горизонтальної координати від 30 до 80 пк. Деякі плямки дуже яскраві та мають досить значну площу. Отже, кількість залишкової нафти в цьому експерименті видається значно вищою, ніж у попередніх двох.

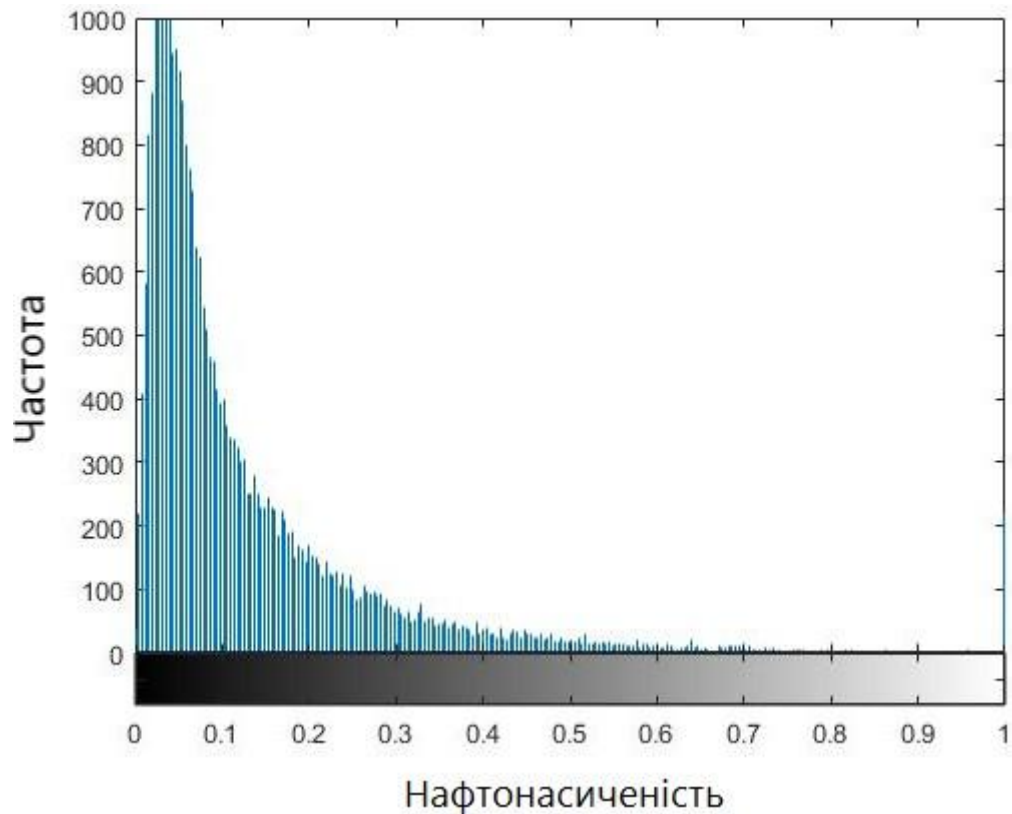


Рис. 4.19 – Частотна гістограма розподілу залишкової нафтонасиченості

Гістограма залишкової нафтонасиченості (рис. 4.19) підтверджує, що нафтонасиченість у досліджуваному зразку найчастіше має значення від 4 до 5%. Розподіл дуже асиметричний: правий хвіст гістограми досягає величини понад 70%, що є величезним значенням і підтверджує припущення про те, що нафта майже не витіснилася з деяких ділянок порового простору зразка. Переважно залишкова нафтонасиченість не перевищує позначки 25-30%.

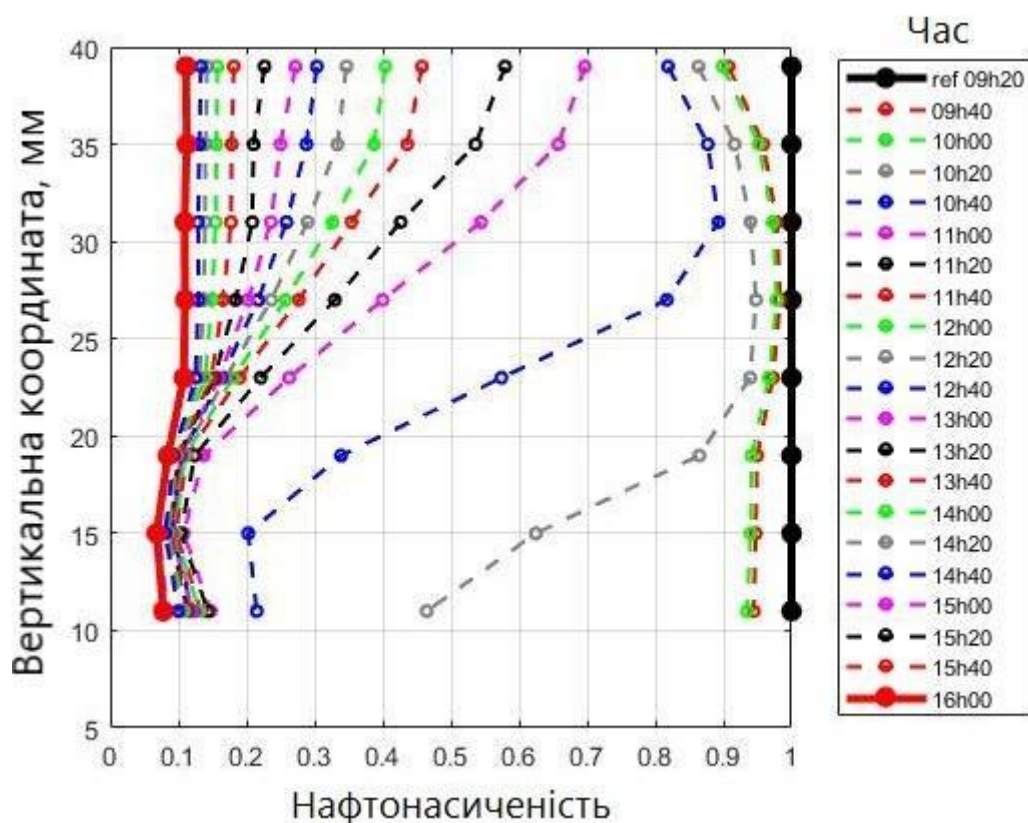


Рис. 4.20 – Зміна профілів нафтонасиченості в часі (за аксіальн. перерізами)

За кривими зміни нафтонасиченості з часом, побудованими за аксіальними перерізами, можна досить легко виділити три стадії витіснення нафти в цьому експерименті (рис. 4.20): невеличке повільне рівномірне просочування води у верхній частині посудини, стрімке активне витіснення нафти в нижній частині з поступовим зміщенням процесу вгору, вторинне повільне витіснення нафти у верхній частині циліндра. Крім того, залишкова нафтонасиченість за даними цих кривих коливається в значно вузких межах – 8-10%.

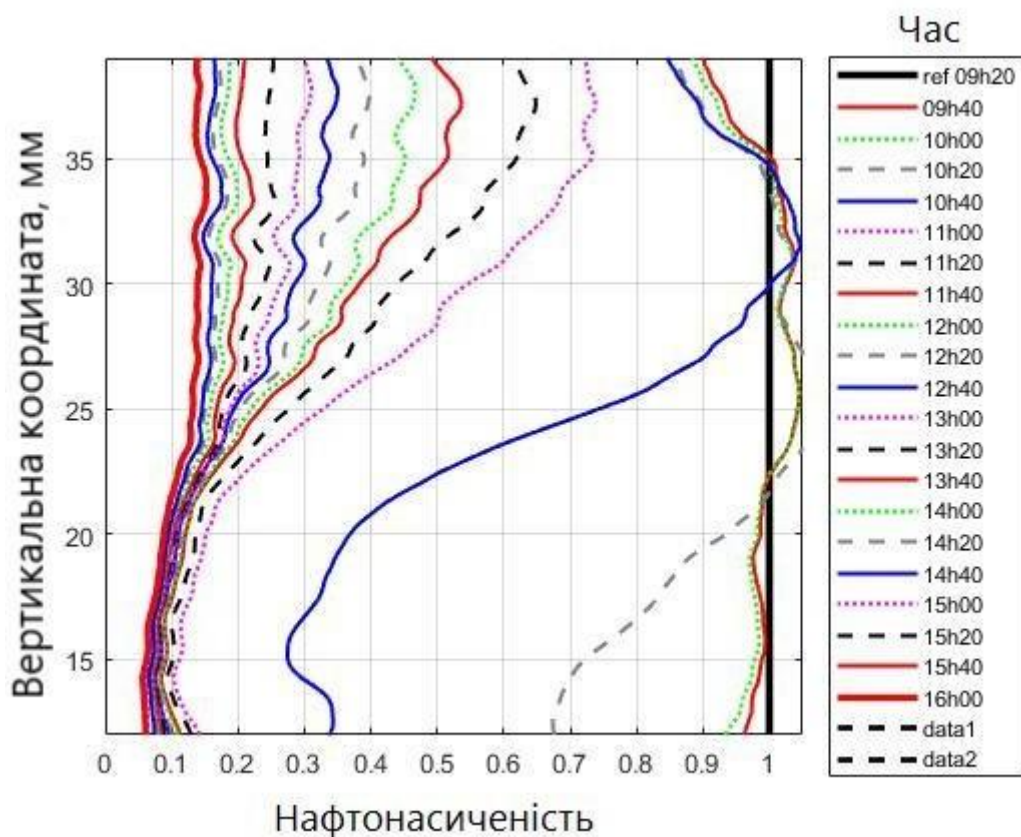


Рис. 4.21 – Одновимірні криві зміни нафтонасиченості в часі

Одновимірні графіки в цьому експерименті досить схожі на криві, побудовані на основі перерізів, однак мають одну відмінну рису. Одразу помітно, що для деяких із них нафтонасиченість перевищує 100% (рис. 4.21), що фізично є неможливим. Це може означати, що такий метод побудови кривих є менш точним за попередні, тому надалі має бути перевірений та вдосконалений. Крім того, одновимірна крива залишкової нафтонасиченості є більш плавною за криву, побудовану за радіальними перерізами. Утім, одновимірний графік також вказує на широкий діапазон значень залишкової нафтонасиченості від 7 до 17%.

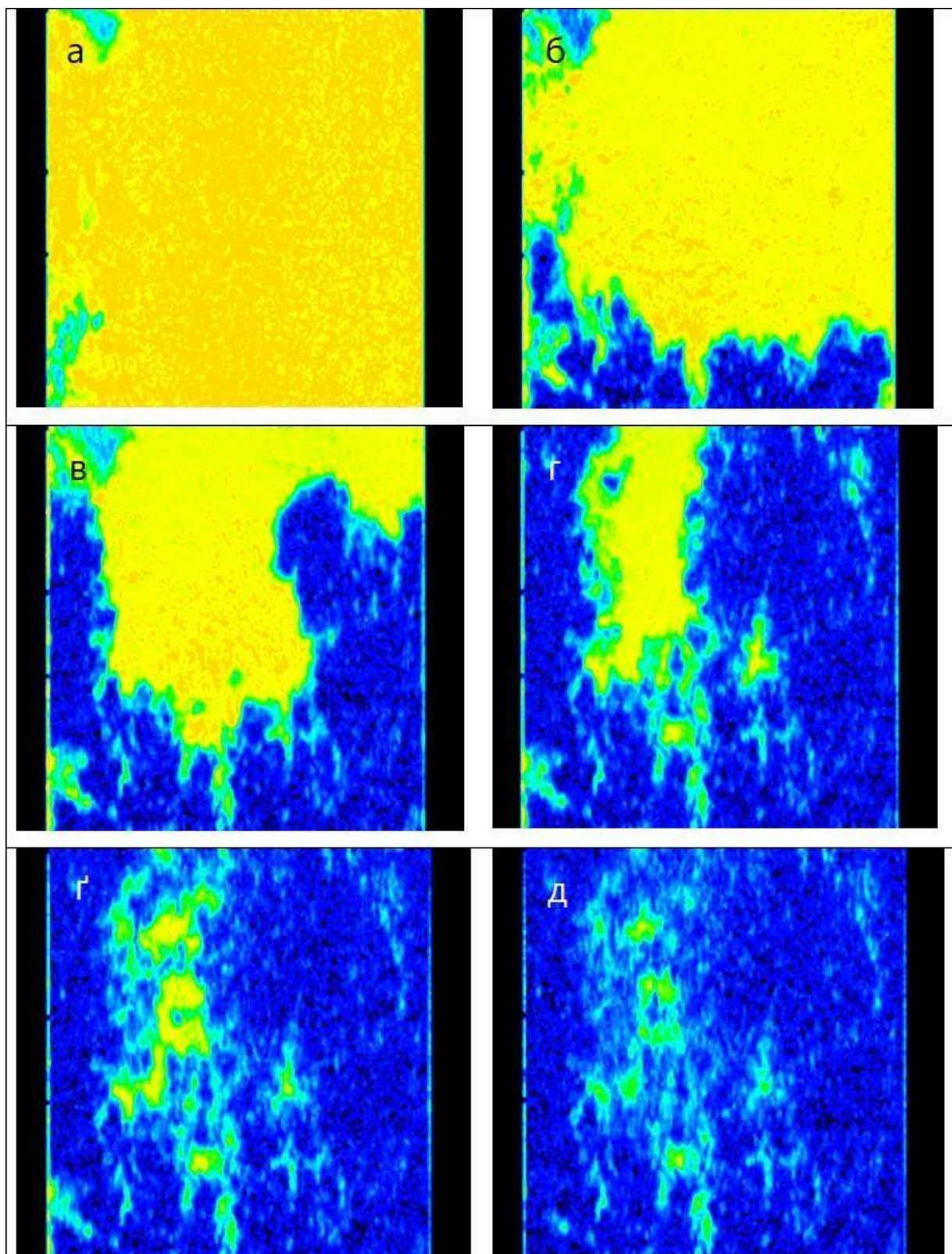


Рис. 4.22 – Витіснення нафтової фази водою в різні моменти часу:

а) 9:45, б) 10:44, в) 11:05, г) 12:45, д) 14:30, е) 19:51

Експеримент розпочався о 8 ранку. О 9 год починається впорскування води. О 9:40 у полі зору біля стінок посудини з'являється вода (рис. 4.22). О 10:20 у нижній частині зразка розпочинається поршневий процес витіснення нафти

водою. Спочатку він охоплює майже всю ширину посудини, але невдовзі приблизно о 10.40 розділяється на два окремі канали, що різко пробиваються вгору, досягнувши вершини циліндра всього за 40 хвилин. Після цього панівним стає процес пальцювання і впорскувана вода повільно витісняє нафту із центральної частини посудини. Експеримент проводився до 20:00. Між каналами в поровому просторі все ще залишилося достатньо багато нафти з невисокою інтенсивністю ЯМР-сигналу. Цю нафту можна було видалити зі зразка подальшим введенням водної фази.

ВИСНОВКИ

Магнітно-резонансна томографія нині все частіше застосовується в науках про Землю та нафтогазовій галузі. Завдяки високій роздільності цей метод є достатньо перспективним для вивчення багатофазних потоків флюїдів у поровому просторі. Через відмінність умісту гідрогену, а отже, і різну інтенсивність ЯМР-сигналу на отриманих зображеннях можна ідентифікувати різні речовини та межі розділу фаз.

Для того щоб вивчити, як нафта витісняється з піску під напором введеної води, дослідити інтенсивність зниження нафтонасиченості в часі та знайти залишкову нафтонасиченість, було розв'язано низку задач. По-перше, це вивчення теоретичних аспектів ЯМР та МРТ; по-друге, опрацювання нещодавно опублікованих наукових статей на тематику роботи; по-третє, відбір підхожих матеріалів та речовин для дослідів та побудова моделі пористого середовища; по-четверте, візуалізація досліджуваної моделі за допомогою МРТ; і зрештою, редагування коду в MATLAB, отримання кількісних та якісних результатів та їхнє розтлумачення.

На першому етапі найбільшою складністю був пошук відповідних підручників, адже більшість вітчизняних та іноземних авторів загострюють увагу саме на медичному аспекті застосування МРТ. На другому етапі було вкрай непросто знайти наукові статті, які фокусують увагу на застосуванні МРТ саме для вивчення фазових потоків у пористих середовищах. В українськомовному секторі Інтернету подібні наукові праці відсутні. В англійськомовних базах наукових статей уже вдається віднайти релевантні роботи, утім часто вони в закритому доступі. На етапі побудови моделі значною проблемою була відсутність необхідного комплектування для гарантування чистоти експерименту. Через це часто виникали проблеми з повітряними пухирцями, які, потрапивши в зразок, псують якість МРТ-зображень, а отже, і вносять похибки в обчислення кількісних

параметрів моделі. На четвертому етапі необхідно добре відкалібрувати апарат МРТ та обрати раціональний проміжок часу між вимірюваннями, інакше результати міститимуть систематичну похибку та будуть нерепрезентативними. На п'ятому етапі потрібно переконатися, що всі отримані результати є достовірними й тільки тоді приступати до їхньої якісної та кількісної інтерпретації.

Усі три експерименти проводилися фактично за однакових умов, лише в третьому досліді швидкість впорскування води була на $1/3$ вищою, аніж у перших двох. Незважаючи на це, процес заміщення нафти водою в кожному випадку доволі сильно відрізняється, хоча має й спільні риси. Зокрема в першому досліді вода спочатку проникає в середню частину зразка та поступово поширюється в усі боки, залишкова нафта займає простір вгорі поблизу вивідної трубки. У другому експерименті вода вже з'являється поблизу лівої стінки й формує вздовж неї канал, фронт якого повільно просувається до протилежної стінки, залишаючи найбільше нафти в нижній частині зразка. У третьому ж досліді вода починає просочуватися знизу, а згодом фронт розщеплюється на два канали, що прориваються вздовж стінок, а далі повільно заповнюють водною фазою поровий простір у центральній частині зразка, залишаючи у цій зоні достатньо яскраві нафтові плями.

Із другого боку, у кожному досліді можна виділити чотири фази витіснення нафти: 1) просочування першої води, 2) швидкий поршневий шок-процес видалення нафти, 3) повільне заповнення водою пустотного простору з розщепленням міжфазного фронту на пальці, 4) досягнення залишкової нафтонасиченості. Із графіків видно, що в другому досліді поршневе витіснення мало досить низьку ефективність.

У першому досліді процес стрімкого обводнення охоплює верхню частину моделі, водночас у третьому – нижню. Відповідно пальцювання найбільше значення в першому експерименті має на нижню частину зразка, а в третьому – на верхню. У другому досліді процес пальцювання охоплює весь зразок.

У першому експерименті для досягнення залишкової нафтонасиченості необхідно було ввести лише 3 PV води, у третьому – 5 PV, у другому – ~ 7 PV. Значення коефіцієнтів залишкової нафтонасиченості є достатньо близькими: для першого досліджу – 10%, другого – 11%, третього – 12%. Найчастіше вміст нафти в порах становить від 4 до 8%. Більша площа залишкових нафтових плям у третьому досліді, імовірно, пов'язана з вищою швидкістю впорскування та більшою турбулентністю потоку.

Отже, нафтонасиченість є просторово-часовою функцією та залежить як від координат точки спостереження (x, y, z) , так і від моменту часу t . Крім того різна поведінка флюїдів за однакових умов дослідження вказує на те, що процес витіснення нафти можна описувати за допомогою стохастичних моделей.

Як бачимо, застосування МРТ дає змогу вивчити поведінку флюїдів у багатофазному потоці, утім можливості цього методу значно ширші, аніж було показано в цій роботі. Зокрема, можна збільшити точність вимірювань, якщо використати більш підхожі матеріали для моделі, розчинники для підвищення сигналу рідини, підібрати оптимальну швидкість ін'єкції витісняльної фази, досягти гомогенності пористого середовища та підібрати чи створити комплектовання, яке унеможливить проникнення повітря до моделі та спростить її герметизування.

Також можна скористатися перевагами програмного забезпечення для кращої візуалізації отриманих результатів, наприклад побудови тривимірних, псевдотривимірних та навіть чотиривимірних моделей. Важливим кроком для вдосконалення моделі є можливість контролювати температуру й тиск зразка. За таких умов можна відтворити термодинамічні умови нафтогазоносних пластів та прогнозувати поведінку флюїдів у пластових умовах.

Знаючи літологічні особливості (склад порід, розмір зерен, пористість) продуктивних чи перспективних горизонтів та склад флюїдів можна відтворити їх за допомогою тривимірного принтера. Далі, створивши необхідні термодинамічні

умови, можна дізнатися, як саме відбуватиметься процес витіснення та обрати найоптимальніший спосіб вилучення вуглеводнів, оцінити приплив, не витрачаючи час та кошти на пробурювання свердловин, або зробити висновок про економічну недоцільність освоєння ділянки. МРТ можна застосовувати не лише для вивчення поведінки нафти й рідин, але також використовувати для газів і газових гідратів, як це було описано в роботі.

Отже, магнітно-резонансну томографію можна впроваджувати як в індустрію, так і залучати в науково-дослідний процес.

Список використаних джерел

Amarasinghe, W., Fjelde, I., Rydlanda, J.-Å., Guo, Y. (2020). Effects of permeability on CO₂ dissolution and convection at reservoir temperature and pressure conditions: A visualization study. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 99, 103082.

Bukatiuk, R. (2021). Application of MRI for Investigation of Oil Displacement in Porous Media. *The Fifth International Fuel Congress: Congress Book, 24-25 November, Kyiv, Ukraine, 2021*, 29-30.

Chen, B., Sun H., Zheng, J., Yang, M. (2020). New insights on water-gas flow and hydrate decomposition behaviors in natural gas hydrates deposits with various saturations. *Applied Energy*, 259, 114185.

Chen, B., Yang, M., Sun H., Wang P., Wang, D. (2019). Visualization study on the promotion of natural gas hydrate production by water flow erosion. *Fuel*, 235, 63-71.

Cheng, Z., Ning, Z., Yu, X., Wang, Q., Zhang, W. (2019). New insights into spontaneous imbibition in tight oil sandstones with NMR. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 179, 455-464.

Fannir, J. (2019). Mémoire en vue de l'obtention du grade de Docteur de L'Université de Lorraine.

Hornak, J.P. (1997-2017). The Basics of NMR: III. Retrieved from <https://www.cis.rit.edu/htbooks/nmr/bnmr.htm>

Hornak, J.P. (1996-2020). The Basics of MRI: XXI. Retrieved from <https://www.cis.rit.edu/htbooks/mri/index.html>

Jia, B., Tsau, J.-S., Barati, R. (2019). A review of the current progress of CO₂ injection EOR and carbon storage in shale oil reservoirs. *Fuel*, 236, 404-427.

Lev, E., Boyce, C. M. (2020). Opportunities for Characterizing Geological Flows Using Magnetic Resonance Imaging. *iScience*, 23, 101534.

Liu, R., Du, D., Pu, W., Peng, Q., Tao, Z., Pang, Y. (2019). Viscoelastic displacement and anomalously enhanced oil recovery of a novel star-like amphiphilic polyacrylamide. *Chemical Engineering Science*, 202, 222-237.

Nasr, M. S., Esmailnezhad, E., Choi, H. J. (2021). Effect of silicon-based nanoparticles on enhanced oil recovery: Review. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 122, 241-259.

O'Neill, K. T., Brancato, L., Stanwix, P. L., Fridjonsson, E. O., Johns, M. L. (2019). Two-phase oil/water flow measurement using an Earth's field nuclear magnetic resonance flow meter. *Chemical Engineering Research and Design*, 142, 369-385.

Panfilov, M. (2010). *Multiphase flow in porous media. Part II: macroscale flow*. Nancy: University.

Panfilov, M. (2019). *Physiochemical Fluid Dynamics in Porous Media. Application in Geosciences and Petroleum Engineering*. Weinheim: Wiley-VCH.

Sabbagh, R., Ansari, S., Nobes, D. S. (2020). An imaging approach for in-situ measurement of refractive index of a porous medium. *Optics and Lasers in Engineering*, 134, 106175.

Singh, D., Shantanu, R., Pant, H. J., Phirani, J. (2021). Solid-fluid interfacial area measurement for wettability quantification in multiphase flow through porous media. *Chemical Engineering Science*, 231, 116250.

Teng, Y., Wang P., Jiang, L., Liu, Y, Song, Y., Wei, Y. (2020). An experimental study of density-driven convection of fluid pairs with viscosity contrast in porous media. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 152, 119514.

Wang, S., Jiang, L., Cheng, Z., Liu, Y., Zhao, J., Song, Y. (2021). Experimental study on the CO₂-decane displacement front behavior in high permeability sand evaluated by magnetic resonance imaging. *Energy*, 217, 119433.

Xu, L., Li, Q., Myers, M., Tan, Y., Chen, Q., Li, X. (2020). Flow behavior characteristics and residual trapping of supercritical carbon dioxide in tight glutenite by MRI experiments. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 83, 103540.

Zhao, Y., Zhang, Y., Lei, X., Zhang, Y., Song, Y. (2020). CO₂ flooding enhanced oil recovery evaluated using magnetic resonance imaging technique. *Energy*, 203, 117878.