



ELSEVIER

Contents lists available at ScienceDirect

Engineering

journal homepage: www.elsevier.com/locate/eng



Research
Unconventional and Intelligent Oil & Gas Engineering—Article

基于实时CT扫描技术的CO₂和N₂交替注入条件下煤吸附膨胀和解吸收缩规律研究

张广磊^a, P.G. Ranjith^{b,*}, Herbert E. Huppert^c

^a Department of Earth Science and Engineering, Imperial College London, London SW7 2BP, UK

^b Deep Earth Energy Laboratory, Department of Civil Engineering, Monash University, Melbourne, VIC, 3800, Australia

^c Institute of Theoretical Geophysics, King's College, Cambridge CB2 1ST, UK

ARTICLE INFO

Article history:

Received 29 November 2021

Revised 20 February 2022

Accepted 17 March 2022

Available online 15 April 2022

关键词

CCS

CO₂-ECBM

碳中和

X射线成像

煤渗透率

摘要

深部煤层是分布最广泛的适宜二氧化碳(CO₂)地质封存的地层之一,且通常位于大型CO₂排放源附近。将CO₂注入到煤层中具有巨大的CO₂封存潜力,同时可以提高煤层气的采收率(CO₂-ECBM)。近年来,多个国家在煤层中已经开展了CO₂-ECBM的先导试验,并取得了良好的可行性验证效果。然而,目前CO₂-ECBM先导实验仍存在技术问题需要解决,即CO₂的注入会引起煤层渗透率降低进而影响长期注入能力。本文采用原位同步辐射X射线显微CT扫描技术,首次在原位条件下直接证明了注入氮气(N₂)可以置换解吸CO₂并减小因CO₂吸附引起的煤基质膨胀,进而重新打开因为CO₂吸附而闭合的裂隙促使渗透率回升。研究结果表明,煤层中注入经过简单处理的烟道气(主要成分为N₂和CO₂),是技术上可行的CO₂-ECBM替代方案。首先,发电厂产生的烟道气可以在去除颗粒物后直接注入,从而避免了较高的CO₂分离成本。其次,N₂的存在可以使煤层保持较高的渗透率,实现长期CO₂注入封存和煤层气增产。总之,深部煤层中注入烟道气一方面可以实现CO₂大量封存,另一方面可以强化煤层气开采,为煤矿实现净零排放提供了一条有效途径。

© 2022 THE AUTHORS. Published by Elsevier LTD on behalf of Chinese Academy of Engineering and Higher Education Press Limited Company. This is an open access article under the CC BY-NC-ND license (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

1. 引言

目前人类能源活动产生的二氧化碳(CO₂)排放量处于历史最高,且还在继续增加[1]。联合国政府间气候变化专门委员会(IPCC)强调,有必要将全球气温上升控制在比工业化前水平高1.5℃以内,这需要到2030年减少45%的CO₂排放量,并在2050年左右达到净零排放[2]。当前问题的一个解决方案是从人为碳源捕集CO₂,并将其安全永久地封存在深部地层中[3–7]。到2050年,碳捕集与封存(CCS)可以贡献所需减少的CO₂排放量的六分之

一[8]。因此,这项技术可以在大规模CO₂减排方面发挥重要作用[9],为未来几十年的能源转型提供过渡方案,在此期间我们将继续依赖化石能源,直到未来全球能源系统实现清洁低碳。二氧化碳提高石油采收率(CO₂-EOR)已在油气行业成功应用数十年[10],由Liu等[11–12]提出的封存驱动的CO₂-EOR的概念和技术有望实现油田最大采收率同时实现CO₂净零排放。同样,在深部煤层中封存CO₂有巨大潜力,可在碳封存的同时实现煤层气(CH₄)增产,即所谓的CO₂强化煤层气开采(CO₂-ECBM)[13–14]。研究表明CO₂在煤中的吸附性强于CH₄,从而更容

* Corresponding author.

E-mail address: ranjith.pg@monash.edu (P.G. Ranjith).

2095-8099/© 2022 THE AUTHORS. Published by Elsevier LTD on behalf of Chinese Academy of Engineering and Higher Education Press Limited Company. This is an open access article under the CC BY-NC-ND license (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>)

英文原文: *Engineering*, 2022, 18(11): 88–95

引用本文: Guanglei Zhang, P.G. Ranjith, Herbert E. Huppert. Direct Evidence of Coal Swelling and Shrinkage with Injecting CO₂ and N₂ Using *in-situ* Synchrotron X-ray Microtomography. *Engineering*, <https://doi.org/10.1016/j.eng.2022.03.010>.

易吸附到煤微孔表面[15]。由于煤层有长期赋存 CH_4 的历史记录，故具有已证实的可观存储容量和防止气体逃逸的能力。据估计，深部煤层的 CO_2 封存潜力高达200 Gt [5]，其封存能力尽管比盐水层（高达10 000 Gt）和油气田（高达900 Gt）小，但与目前每年近40 Gt的人为 CO_2 排放量相比仍然很大。此外，煤层是世界范围内适宜 CO_2 封存的最广泛的地层之一，通常位于大型 CO_2 排放源附近，比如化石燃料发电厂。自20世纪70年代[16]至80年代[17–18]，深部煤层中 CO_2 -ECBM的概念就处于实验室萌芽阶段，研究发现注入 CO_2 能够置换煤中吸附的 CH_4 。在20世纪90年代，研究人员正式提出了通过注入 CO_2 置换 CH_4 来强化煤层气开采（ECBM）的概念[19]。自1995年至今，北美洲[19–20]、亚洲[21–23]和欧洲[24]的十几个 CO_2 -ECBM先导实验项目证明了该技术在微型到大型现场中试的可行性，注入的 CO_2 总量在90~336 000 t不等[21]。正在进行的现场中试实验取得了较好的效果， CO_2 注入煤层中可以置换高达95%的 CH_4 。然而，该技术的大规模实施仍存在技术阻碍：注入 CO_2 期间煤层渗透率降低，特别是在注入井附近，渗透率降低甚至超过两个数量级[21–22,24–25]。基质膨胀还会在注入井附近产生高应力区[22,

26]，需要增加注入压力以保持注入速率，但须避免压力过高而诱发盖层破裂或断层激活。因此，为在全球范围内大规模应用 CO_2 -ECBM技术，需要解决 CO_2 注入引起的煤层渗透率和注入能力降低的问题。现场试验后采用了几种解决方案，包括水力压裂和多井注入等[21–22]。但这些技术也带来一些挑战，如成本和环境问题，因此亟需寻找更经济、更简单的替代方案。最近在日本Ishikari盆地进行的一项现场试验表明，注入氮气（ N_2 ）可以逆转由注入 CO_2 引起的渗透率降低现象，猜测其原因是 N_2 注入可以导致基质收缩而引起裂隙重新张开[22]。然而，这些结果是从应变或渗透率测量[27–30]中间接推断出来的，而没有在原位条件下直接观察裂隙网络演化过程。前述假设尚未通过直接观察 CO_2 或 N_2 注入引起的裂隙网络变化来验证。

本文通过建立全新的多场耦合原位CT微型三轴实验系统（图1；详细技术细节见文献[31–32]）来证明这一长期存在的假设。该实验装置可在高温高压条件下进行X射线显微CT扫描，同时进行岩心驱替测试。我们分5个阶段进行实验（图2；详见第2节）：①初始施加围压；② N_2 注入；③ CO_2 注入；④关井进行 CO_2 吸附；⑤第二次 N_2 注入。在各个实验阶段分步进行岩心驱替实验，以量化由 N_2

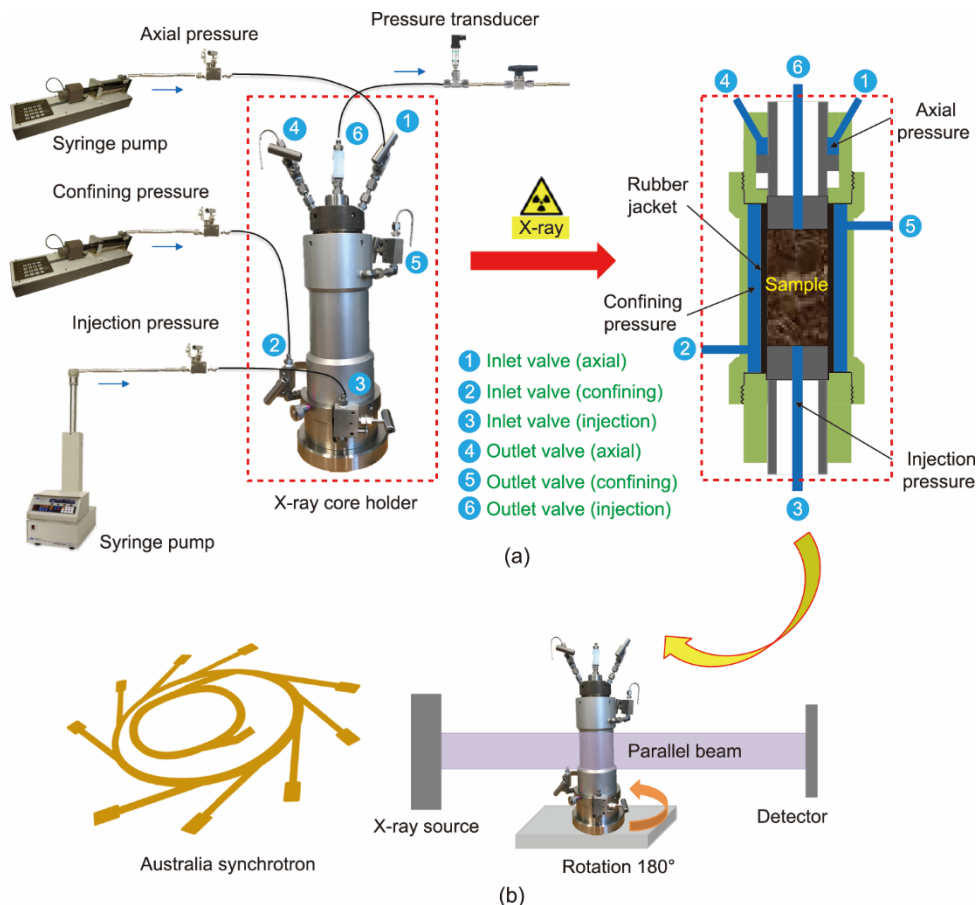


图1. (a) 多场耦合原位CT微型三轴实验系统，用于岩心驱替实验；(b) 同步辐射X射线相衬显微CT扫描。

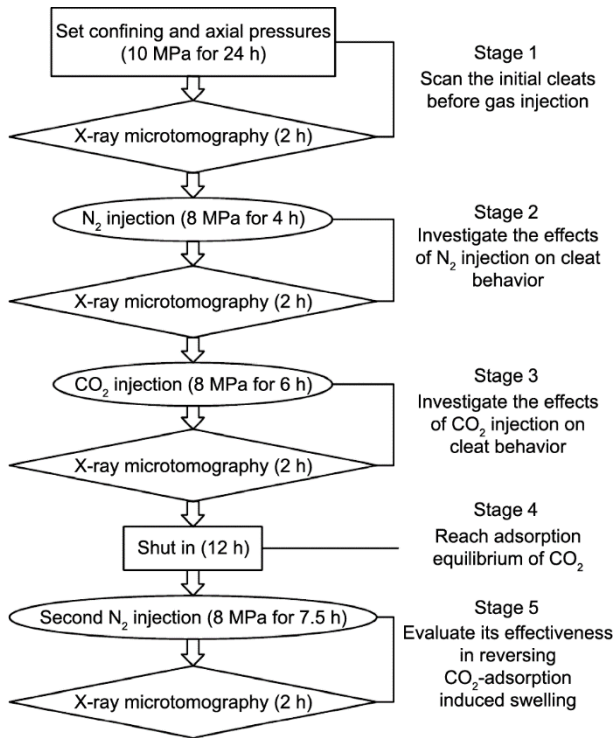


图2. 实验步骤流程图。

和CO₂交替注入引起的渗透率变化。同时，我们选择澳大利亚同步辐射X射线相衬显微CT扫描技术以获得高空间和时间分辨率CT图像。通过本实验，我们首次获得了N₂和CO₂交替注入引起的煤中裂隙网络变化的直接观察证据。

2. 材料和方法

2.1. 样品制备

实验所用烟煤样品（表1）取自山西大同煤田埋藏400 m的煤层，煤层详细地质条件见文献[33]。为防止煤样氧化和失去水分，运输和储存中用保鲜膜包裹煤样。本实验旨在研究流体注入对煤中裂隙网络演化的影响，因此

表1 煤样的物理性质

Coal rank	$R_{o,m}$	Proximate analysis (wt%)			Maceral groups (vol%)		
		M_{ad}	A_d	V_{daf}	Vitrinite	Inertinite	Liptinite
Sub-bituminous	0.46	2.00	23.05	25.86	46.9	48.8	4.3

$R_{o,m}$: maximum vitrinite reflectance under oil immersion; M_{ad} : moisture content (air-dried basis); A_d : ash yield (dry basis); V_{daf} : volatile matter content (dry, ash-free basis).

需要选择天然的富含裂隙的煤样。然而，在含有天然裂隙的煤块中钻取岩心样品时很容易发生断裂。因此，我们通过线切割方式获取了直径为35 mm、长度为70 mm的圆柱

煤样。

2.2. 实验程序

首先，将烟煤样品放置于微型三轴岩心夹持器中（图1），然后对样品施加10 MPa的围压和轴压。压力稳定24 h后我们扫描样品作为实验初始条件，之后注入N₂（8 MPa），然后换为CO₂（8 MPa），最后再换为N₂（8 MPa）。由于适宜封存CO₂的煤层最佳深度为800~1000 m [34]，实验选择8 MPa（约800 m埋深）作为流体压力，实验在室温（23 °C）条件下进行。在此温度、压力条件下，注入的CO₂将以液体形式存在，与现场大多数CO₂-ECBM工程注入的CO₂相态一致[21]。第一步注入N₂ 4 h，测量煤样的渗透率。随后，注入CO₂ 7 h，研究CO₂注入对煤渗透率的影响。之后，关闭岩心夹持器上游和下游，使高压CO₂在煤样中吸附12 h，这个过程在现场工程中被称为“关井”期，使注入的CO₂完全吸附到煤中[21]。最后，进行第二次N₂注入，以评估N₂注入对提高煤渗透率的有效性。每次流体注入后对煤样进行CT扫描（图2）。

2.3. 渗透率测量

由于煤的渗透率低，如采用稳态法测量渗透率需要很长时间才能达到稳态流。CO₂在煤中吸附是一个随时间变化的过程，因此有必要在短时间内测量渗透率。实验中采用Brace等[35]首创的瞬态法测量了煤的渗透率，该方法可以快速地测量致密岩石的渗透率。在渗透率测试期间，煤样上游压力保持在8 MPa，监测下游压力上升（从6 MPa到8 MPa）。每次渗透率测试后，下游压力释放至6 MPa，然后在随后的渗透率测试中再次增加到8 MPa。上游和下游之间压差的对数值随时间变化的规律绘制在图3中。衰减曲线服从线性函数，可通过以下方程进行拟合[35–36]：

$$\Delta P(t) = \Delta P_0 e^{-\alpha t} \quad (1)$$

$$\alpha = \frac{kA}{\beta V_{down} L \mu} \quad (2)$$

式中， $\Delta P(t)$ 是煤样上游和下游的压力差； ΔP_0 是初始阶段上游和下游的压力差； t 是时间； α 是衰减指数[$\ln(\Delta P)$ 直线斜率]； k 是渗透率； A 是样品的横截面积； β 是流体的压缩性； V_{down} 是下游储罐体积； L 是样品长度； μ 是流体的黏度。

2.4. 原位同步辐射X射线相衬显微CT扫描

在澳大利亚同步辐射中心成像与医学线站（IMBL）进行X射线显微CT扫描，IMBL的CT扫描详细参数见文献[31–32]。相位衬度CT成像方法和传统的常规吸收衬度

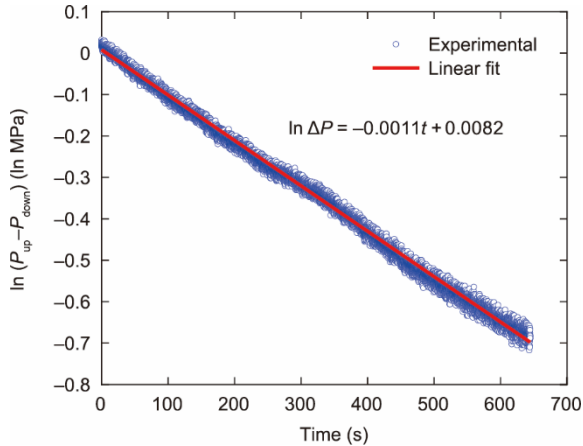


图3. 渗透率测量示例，显示了上游和下游压力差的对数衰减曲线。 P_{up} 是上游压力， P_{down} 是下游压力。

CT成像方法类似，但相衬成像时样品到探测器的距离更大。本实验中样品到Ruby探测器（与闪烁体耦合的PCO Edge相机镜头）的距离为5 m，采用相衬成像以突出CT图像中各相边界。扫描电压为65 keV，分辨率为14.6 μm 。CT扫描过程中，试样旋转180°共采集1800个投影图。每个投影图曝光时间为2 s，图像采集的总时间约为1 h。Ruby相机CMOS传感器像素矩阵为2560×2160，耦合到X射线闪烁体。成像视野水平宽度约45 mm，垂直高度约为30 mm，其中垂直高度取决于光源宽度而不是探测器的限制。实验中沿试样高度方向进行两次扫描并将两个图像拼接在一起，以获得高度为50 mm的样品图像。

2.5. CT图像处理

原始投影图首先在澳大利亚同步辐射中心计算机集群上通过X-TRACT软件[37]重建为CT切片，然后使用Avizo 9.5软件完成后续图像分析。首先使用非局部中值滤波法对灰度CT图像进行降噪处理（图4），然后使用分水岭算法进行图像分割。图像处理和分割详细技术细节见文

献[38]。完成图像分割后，我们在裂隙网络中提取孔隙网络模型以量化孔径分布。由于裂隙网络中的孔隙空间不是球形的，因此使用Avizo软件中的骨架法来分离任意孔隙形状。Avizo软件中的孔隙网络提取方法参考了文献[39]中的孔隙网络建模算法，主要包括三个步骤：①孔隙空间骨架化；②将骨架划分为各个组；③孔隙的几何分离和标记。

3. 结果和讨论

3.1. 流体注入过程中的渗透率演变规律

由于 N_2 是一种相对惰性的气体，第一次注入 N_2 时煤样的渗透率随注入时间的变化不大（图5）。这是因为 N_2 的吸附量远小于 CO_2 （约四分之一），煤样在注入 N_2 时没有出现明显的膨胀[19]。然而，在注入 CO_2 阶段，煤样渗透率发生了明显下降，6 h降低了一个数量级。渗透率在前两个小时内下降速度最快（下降了70%），然后下降速度减慢，直到达到1 μD 左右后相对恒定。这是因为注入 CO_2 后其在煤中的吸附很快完成，然后 CO_2 进一步扩散进入煤基质的速度相对较慢。此外，随着煤膨胀的体积应变增加，裂隙面接触面积增加，导致裂隙可压缩性下降。因此，渗透率下降的速度随着 CO_2 注入时间的增加而变缓。

接着，煤样在进行第二次 N_2 注入后渗透率显著回升，这是因为煤的体积应变与 CO_2 的吸附量直接相关。 N_2 的注入降低了孔隙中 CO_2 的分压，从而使吸附的 CO_2 从煤基质中解吸，有助于保持煤样渗透率。在7.5 h的 N_2 回注过程中，煤样的渗透率从大约1 μD 增加到15 μD ，恢复到 CO_2 注入前的30%。第二次注入 N_2 后渗透率并没有完全恢复到注入 CO_2 前的原始值，这与其他学者的研究结果一致。 N_2 驱替 CO_2 过程由于 N_2 注入压力和时间的不同，通常可

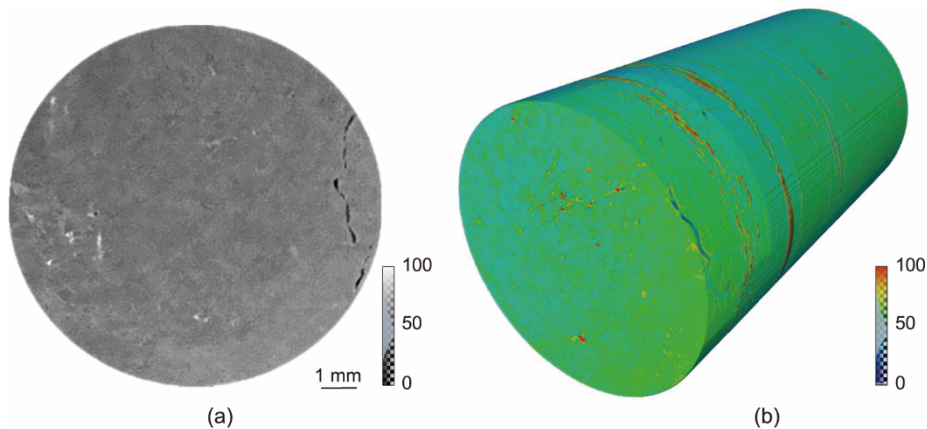


图4. 样品的X射线CT图像（取自第二阶段）。（a）二维灰度CT图像：矿物、有机质和裂隙根据X射线衰减程度分别显示为白色、灰色和黑色；（b）样品的三维体积渲染：色度图表示各相的相对X射线衰减强度。

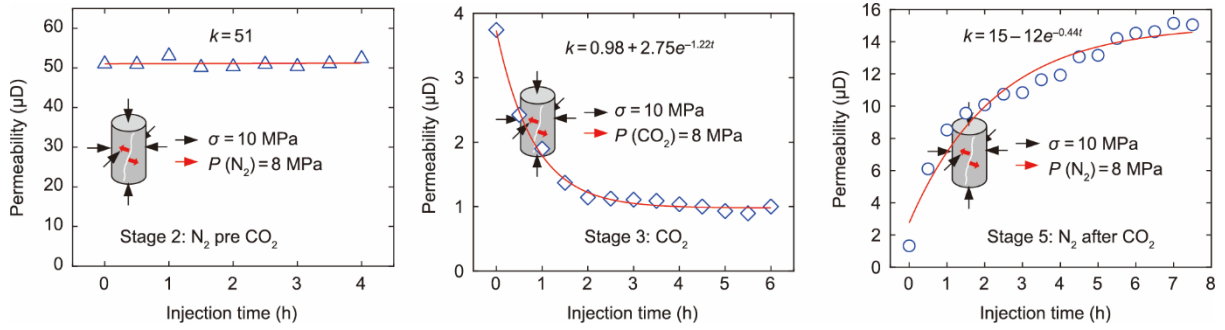


图5. 第二、第三和第五阶段的渗透率变化规律。 σ : 围压和轴向压力; P : 流体压力。

以实现25%~45%的渗透率回升[29]。渗透率回升程度随 N_2 注入压力和时间的增加而增加, 随围压的增加而减小[29]。事实上, 经过 CO_2 注入和关井期, 煤层在长时间的 CO_2 吸附后(18 h), 解吸过程可能需要很长的时间。另一方面, 我们认为 CO_2 吸附足够长的时间后会在煤中发生化学吸附而改变煤微结构, N_2 驱替并不能使煤样完全恢复到原始状态。

3.2. 渗透率演化的孔隙尺度机制

我们选定了—个目标区域(直径为10.5 mm, 长18 mm), 观察目标区域内不同注入阶段裂隙网络变化[图6和图7(a)]。在第二阶段(注入 N_2 4 h)后, 裂隙相对于第一阶段有所张开。这是因为注入 N_2 后, 有效应力从10 MPa降低到2 MPa, 导致裂隙张开。注入 N_2 后, 孔隙率从0.12%提高到0.20% (提高了67%)。在第三阶段(注入 CO_2 6 h)后, 由于 CO_2 吸附导致煤基质膨胀, 裂隙变窄甚至闭合。因此, 3.1小节观察到的渗透率大幅降低归因于此处观察到的裂隙闭合, 进而孔隙率从0.20%降至0.02%。与初始条件相比, 注入 CO_2 使孔隙率降低了83%。第五阶段(再次注入 N_2 7.5 h)后, 裂隙再次打开, 孔隙率回升至0.06%, 即初始状态的50%。此现象验证了注入 N_2 导致 CO_2 解吸, 从而引起煤基质收缩使裂隙打开的猜测。我们第一次观察到了将 CO_2 和 N_2 注入煤中, 由于煤基质膨胀和收缩而导致裂隙网络演变的直接证据, 而且观测到的裂隙网络演化规律与煤渗透率的变化高度—致。

我们利用孔隙网络模型[图7(b)]来表示复杂的裂隙网络并量化孔隙结构特征。孔径分布(图8)显示, 裂缝网络中等效半径小于40 μm 的孔(裂)隙占主导地位, 这表明大部分裂隙宽度小于40 μm 。注入 N_2 4 h后, 平均孔径没有明显变化, 但孔隙的数量从约11 300个增加到约15 000个(表2)。随着孔隙数量的增加, 注入 N_2 后连通性好的大孔(半径大于100 μm)的百分比从41.7%增加到55.2%, 这增加了流体通道的连通性[图7(b)和表2]。

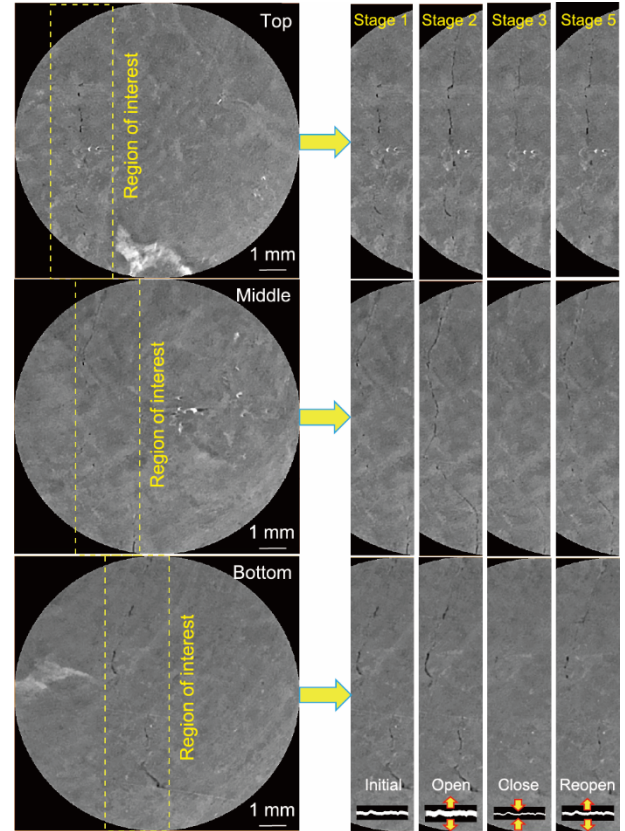


图6. 煤样沿长度方向典型位置(顶部、中部和底部)二位切片内的裂隙演化规律: 分别比较了第一阶段(初始状态)、第二阶段(注入 N_2)、第三阶段(注入 CO_2)和第五阶段(第二次注入 N_2)的CT图像。在灰度CT图像中, 煤的各种成分的亮度代表了每种成分的X射线衰减强度, 主要取决于各种成分的密度。矿物、有机质和裂隙分别以白色、灰色和黑色显示, 其中裂隙用黄色虚线框进行标记。

注入 CO_2 6 h后, 平均孔径从20.2 μm 下降到18.2 μm , 孔隙数量大幅减少至4194个。此外, 大孔的百分比显著降低至7.1%, 降低了裂隙网络的连通性。第二次注入 N_2 7.5 h后, 平均孔径恢复至21.6 μm , 孔隙数量回升至5980个。同时, 大孔比例回升至22.2%。这反映了注入 CO_2 可导致裂隙闭合, 孔隙度和连通性降低, 而注入 N_2 可以有效逆转这些变化。

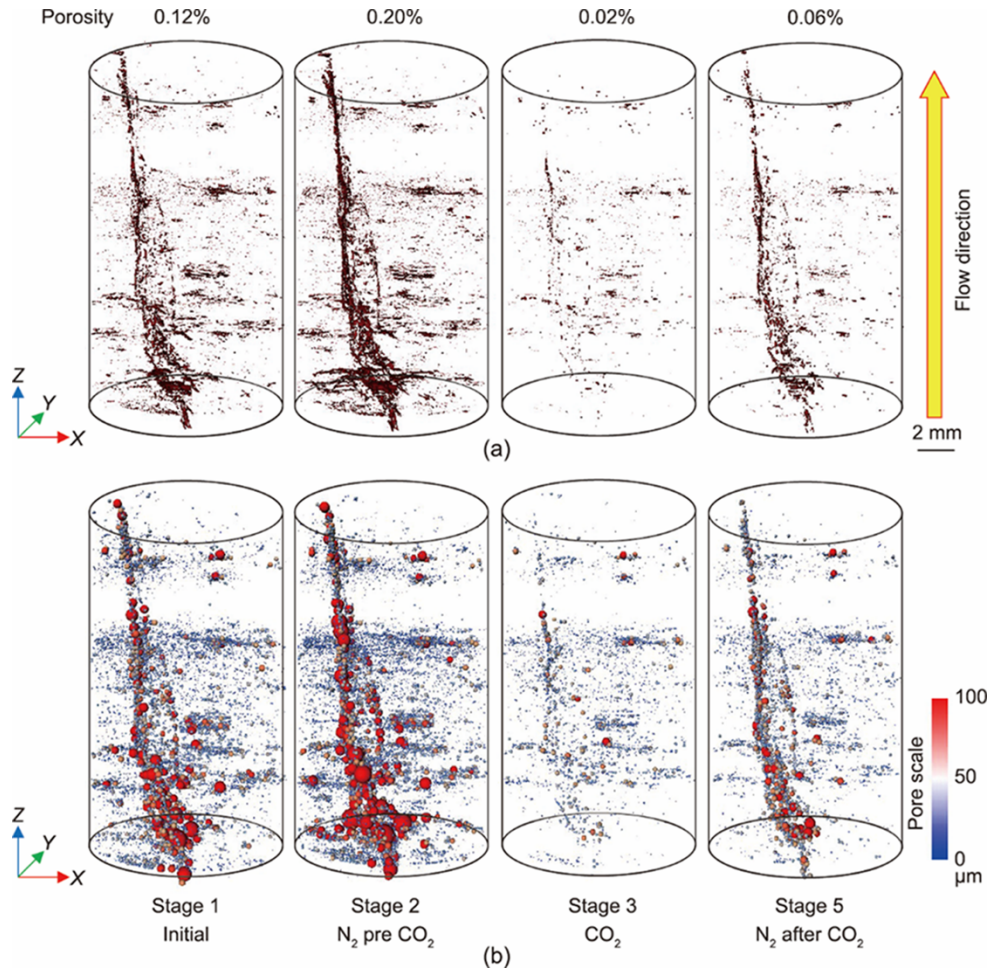


图7. (a) 三维的裂隙网络演化；(b) 等效孔隙网络模型（直径：10.5 mm；高度：18 mm）。

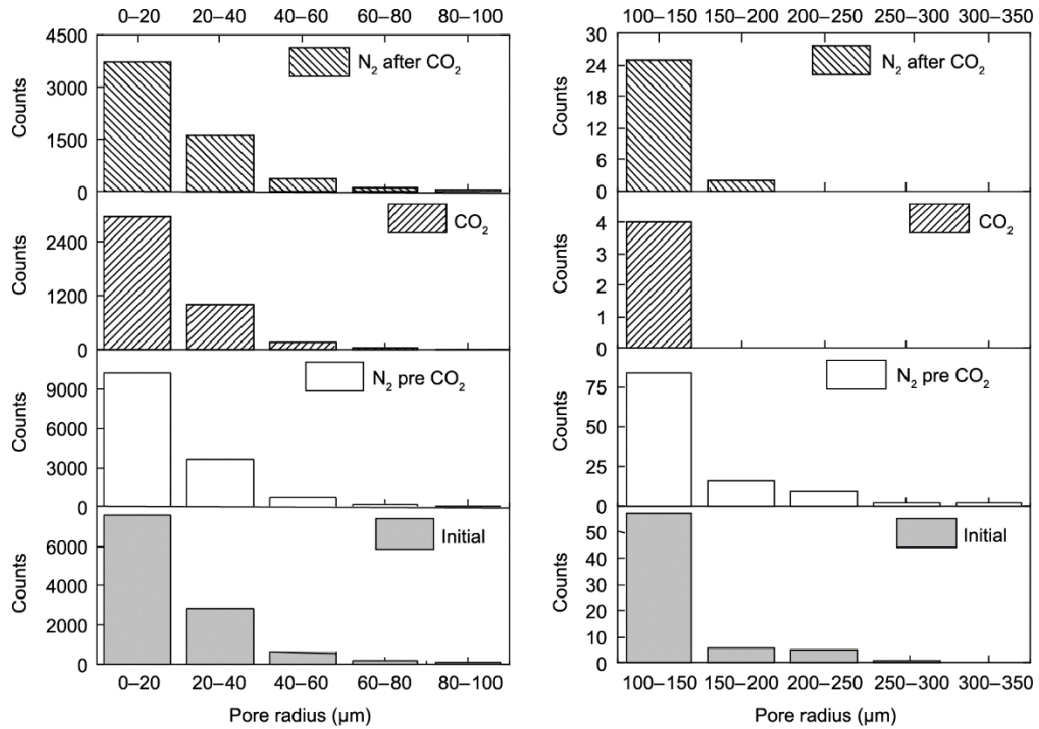


图8. 孔径分布。

表2 孔隙数量和大小

Condition	Total No.	Min radius (μm)	Max radius (μm)	Avg radius (μm)	Percentage of large pores ($>100 \mu\text{m}$)
Initial	11 323	9.1	272.0	20.5	41.7%
N ₂ pre-CO ₂	15 049	9.1	327.2	20.2	55.2%
CO ₂	4 194	9.1	117.1	18.2	7.1%
N ₂ after CO ₂	5 980	9.1	170.3	21.6	22.2%

No.: number; Min: minimum; Max: maximum; Avg: average.

3.3. 深部煤层中烟道气注入与强化煤层气开采

煤吸附 CO₂ 导致的体积变化对煤渗透率有显著的影响, 进而影响 CO₂ 注入和 CH₄ 的产出效率。已有的 CO₂-ECBM 现场工程表明, 由于注入井压力增加, 现场不得不在注入 CO₂ 一定时间后降低注入速率。我们的实验结果直接证明了现场工程的注入性下降, 可归因于煤吸附膨胀引起的渗透率降低。

我们的研究表明, 注入 N₂ 可以重新打开因 CO₂ 吸附膨胀而关闭的裂隙网络, 进而提升煤层渗透率。日本 Ishikari 盆地进行的现场试验表明, 注入 N₂ 时可以使 CO₂ 注入速率提高 4 倍 [22]。因此, 为了保持煤层渗透率, 我们建议采用 CO₂ 和 N₂ 交替注入或者烟道气 (主要是 N₂ 和 CO₂ 的混合物) 注入的方案替代纯 CO₂ 注入。事实上, 在加拿大 Alberta 进行的世界上第一个烟道气 ECBM 试点项目, 注入了烟道气 (13% CO₂ 和 87% N₂) 和合成烟气 (47% CO₂ 和 53% N₂), 且没有发现煤层膨胀和注入性下降现象 [40–41]。数值模拟表明, CO₂ 和 N₂ 混合注入可以获得比纯 CO₂ 注入更大的 CH₄ 回收率, 并且具有与纯 CO₂ 注入类似的 CO₂ 封存能力 [42]。其中, 注入气体中 N₂ 和 CO₂ 的最佳比例取决于技术和经济要求。在烟道气注入过程中, ECBM 由两种不同的机制控制: ①通过引入 N₂ 作为低吸附性气体来降低 CH₄ 分压; ②通过引入 CO₂ 作为强吸附性气体直接从煤基质中置换 CH₄。注入气体中的 CO₂ 比例越高, 可以封存的 CO₂ 就越多, 但会导致更多的膨胀和渗透率下降。与注入 CO₂ 相比, 注入 N₂ 有助于维持较高的渗透率 (大于 1 mD [13,43]), 同时 CH₄ 回收速度更快。总体而言, 我们预计 CO₂ 和 N₂ 的最佳组合将取决于经济性 (CH₄ 回收率) 和 CO₂ 封存量两方面, 并且还取决于储层特性 (如渗透率) 和技术参数 (如注入压力和注入井布置)。

发电厂烟道气中 CO₂ 浓度 (体积分数) 通常约为 10%~15% [44], 通过较少的处理过程即可用于 ECBM 工程, 驱替出的 CH₄ 也可用作这些发电站的替代燃料。然而, 早期的 N₂ 突破可能会降低 CH₄ 的纯度, 导致在使用前需要进行额外的气体分离。由于 CCS 的成本主要由捕集和气体分离的成本 (约占总成本的四分之三 [45]) 决

定, 因此通过注入气体混合物 (即烟道气) 而不是纯 CO₂ 可以大大降低总体成本。根据 Alberta 试点项目的生产经济分析 [46–47], 烟道气-ECBM 比 CO₂-ECBM 更经济, 需要大约 50% 的井口煤层气价格即可实现收支平衡。当然, 经济分析的结果会随着天然气价格和 CO₂ 成本而变化, ECBM 技术的进步 (如增加注入能力) 和政府激励措施也将改善煤层 CO₂ 封存的经济性。另一方面, 在项目设计中也需要考虑混合气体注入带来的一些劣势, 例如, 由于注入 N₂ 而导致的气体压缩成本增加以及早期 N₂ 突破后导致的 CH₄ 纯度降低。

4. 结论

CO₂ 作为吸附性气体, 其在煤中的吸附和解吸分别与煤的膨胀和收缩有关。在过去的几十年里, 世界各地的多个 CO₂-ECBM 现场工程和许多实验室的实验中都出现了渗透率降低现象。我们使用原位同步辐射 X 射线显微 CT 扫描技术直接观察和量化了这些现象。利用三维可视化技术, 我们能够在加载条件下直接观察到由于注入 CO₂/N₂ 而导致的煤膨胀/收缩现象。我们的研究结果证实, 煤吸附 CO₂ 时确实会膨胀。相反, N₂ 作为一种相对惰性的气体, 其注入会降低分压并导致 CO₂ 解吸。本文的研究结果表明, 从技术和经济角度来看, 烟道气注入可作为深部煤层气增产和 CO₂ 封存的可选技术方案。首先, 与注入纯 CO₂ 相比, 注入烟道气避免了昂贵的 CO₂ 捕集过程, 同时将渗透率保持在足够高的水平, 以便进行长期注气和煤层气增产。其次, 与注入纯 N₂ 相比, 它可以在煤层中封存 CO₂ 作为附加值。虽然本文的研究结果尚未在储层规模上应用, 但揭示了微观尺度机理。深部煤层中注入烟道气进行 ECBM 是否可行, 需要在各种地质条件下进行更多的研究工作中中试试验。

致谢

本研究是在澳大利亚核科学技术组织 (ANSTO) 的同

步辐射中心成像和医学线站上进行的, 特别感谢 Anton Maksimenko 博士在 CT 扫描方面提供的帮助。同时, 图像处理工作也得到了多模式澳大利亚科学成像与可视化环境超算中心(MASSIVE)[†]的支持。

Authors' contributions

P.G. Ranjith supervised the project. Guanglei Zhang performed the experiments, analyzed the data, and wrote the manuscript. Herbert E. Huppert and P. G. Ranjith reviewed and edited the manuscript.

Compliance with ethics guidelines

Guanglei Zhang, P.G. Ranjith, and Herbert E. Huppert declare that they have no conflict of interest or financial conflicts to disclose.

References

- [1] Keeling. The Keeling Curve [Internet]. 2020 [cited 2020 Mar 13]. Available from: <https://scripps.ucsd.edu/programs/keelingcurve/>.
- [2] IPCC. Global Warming of 1.5 °C. An IPCC Special Report on the impacts of global warming of 1.5 °C above pre-industrial levels and related global greenhouse gas emission pathways, in the context of strengthening the global response to the threat of climate change, sustainable development, and efforts to eradicate poverty. Report: IPCC; 2018.
- [3] Bickle MJ. Geological carbon storage. *Nat Geosci* 2009;2(12):815–8.
- [4] Huppert HE, Neufeld JA. The fluid mechanics of carbon dioxide sequestration. *Annu Rev Fluid Mech* 2014;46(1):255–72.
- [5] IPCC. IPCC special report on carbon dioxide capture and storage. In: Metz B, Davidson O, de Coninck HC, Loos M, Meyer LA, editors. Prepared by Working Group III of the Intergovernmental Panel on Climate Change. IPCC; 2005.
- [6] Bui M, Adjiman CS, Bardow A, Anthony EJ, Boston A, Brown S, et al. Carbon capture and storage (CCS): the way forward. *Energy Environ Sci* 2018;11(5):1062–176.
- [7] Boot-Handford ME, Abanades JC, Anthony EJ, Blunt MJ, Brandani S, Mac Dowell N, et al. Carbon capture and storage update. *Energy Environ Sci* 2014;7(1):130–89.
- [8] IEA. Technology Roadmap: carbon capture and storage Report. Paris: International Energy Agency; 2013.
- [9] Cook PJ editor Geologically storing carbon: learning from the Otway Project experience. Collingwood: CSIRO Publishing; 2014.
- [10] Metz B, Davidson O, de Coninck H, Loos M, Meyer L. IPCC special report on carbon dioxide capture and storage. Report. Geneva: Intergovernmental Panel on Climate Change; 2005 Sep.
- [11] Liu Y, Rui Z, Yang T, Dindoruk B. Using propanol as an additive to CO₂ for improving CO₂ utilization and storage in oil reservoirs. *Appl Energy* 2022;311:118640.
- [12] Liu Y, Rui Z. A storage-driven CO₂ EOR for net-zero emission target. *Engineering*. In press.
- [13] White CM, Smith DH, Jones KL, Goodman AL, Jikich SA, LaCount RB, et al. Sequestration of carbon dioxide in coal with enhanced coalbed methane recovery a review. *Energy Fuels* 2005;19(3):659–724.
- [14] Mukherjee M, Misra S. A review of experimental research on Enhanced Coal Bed Methane (ECBM) recovery via CO₂ sequestration. *Earth Sci Rev* 2018;179:392–410.
- [15] Harpalani S, Prusty BK, Dutta P. Methane/CO₂ sorption modeling for coalbed methane production and CO₂ sequestration. *Energy Fuels* 2006;20(4):1591–9.
- [16] Godec M, Koperna G, Gale J. CO₂-ECBM: a review of its status and global potential. *Energy Procedia* 2014;63:5858–69.
- [17] Fulton PF, Parente CA, Rogers BA, Shah N, Reznik A. A laboratory investigation of enhanced recovery of methane from coal by carbon dioxide injection. In: Proceedings of the SPE Unconventional Gas Recovery Symposium; 1980 May 18–21; Pittsburgh, PA, USA. Richardson: OnePetro; 1980.
- [18] Reznik AA, Singh PK, Foley WL. An analysis of the effect of CO₂ injection on the recovery of in situ methane from bituminous coal: an experimental simulation. *Soc Pet Eng J* 1984;24(05):521–8.
- [19] Gunter WD, Gentzis T, Rottenfusser BA, Richardson R. Deep coalbed methane in Alberta, Canada: a fuel resource with the potential of zero greenhouse gas emissions. *Energy Convers Manage* 1997;38:S217–22.
- [20] Stevens SH, Spector D, Riemer P. Enhanced coalbed methane recovery using CO₂ injection: worldwide resource and CO₂ sequestration potential. In: Proceedings of the SPE International Oil and Gas Conference and Exhibition in China; 1998 Nov 2–6; Beijing, China. Richardson: OnePetro; 1998.
- [21] Pan Z, Ye J, Zhou F, Tan Y, Connell LD, Fan J. CO₂ storage in coal to enhance coalbed methane recovery: a review of field experiments in China. *Int Geol Rev* 2018;60(5–6):754–76.
- [22] Fujioka M, Yamaguchi S, Nako M. CO₂-ECBM field tests in the Ishikari Coal Basin of Japan. *Int J Coal Geol* 2010;82(3–4):287–98.
- [23] Wong S, Law D, Deng X, Robinson J, Kadatz B, Gunter WD, et al. Enhanced coalbed methane and CO₂ storage in anthracitic coals—micro-pilot test at south Qinshui, Shanxi, China. *Int J Greenh Gas Control* 2007;1(2):215–22.
- [24] van Bergen F, Pagnier H, Krzystolik P. Field experiment of enhanced coalbed methane-CO₂ in the upper Silesian basin of Poland. *Environ Geosci* 2006;13(3):201–24.
- [25] Reeves SR. The Coal-Seq project: key results from field, laboratory, and modeling studies. In: Rubin ES, Keith DW, Gilboy CF, Wilson M, Morris T, Gale J, Thambimuthu K, editors. The 7th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies; 2004 Sep; Vancouver, Canada. Amsterdam: Elsevier; 2004. p. 1399–403.
- [26] Fokker PA, van der Meer LGH. The injectivity of coalbed CO₂ injection wells. *Energy* 2004;29(9–10):1423–9.
- [27] Karacan CÖ. Heterogeneous sorption and swelling in a confined and stressed coal during CO₂ injection. *Energy Fuels* 2003;17(6):1595–608.
- [28] Walker Jr PL, Verma SK, Rivera-Utrilla J, Khan MR. A direct measurement of expansion in coals and macerals induced by carbon dioxide and methanol. *Fuel* 1988;67(5):719–26.
- [29] Zhang X, Ranjith PG, Li D, Perera MSA, Ranathunga AS, Zhang B. CO₂ enhanced flow characteristics of naturally-fractured bituminous coals with N₂ injection at different reservoir depths. *J CO₂ Util* 2018;28:393–402.
- [30] Kiyama T, Nishimoto S, Fujioka M, Xue Z, Ishijima Y, Pan Z, et al. Coal swelling strain and permeability change with injecting liquid/supercritical CO₂ and N₂ at stress-constrained conditions. *Int J Coal Geol* 2011;85(1):56–64.
- [31] Zhang G, Ranjith PG, Wu B, Perera MSA, Haque A, Li D. Synchrotron X-ray tomographic characterization of microstructural evolution in coal due to supercritical CO₂ injection at in-situ conditions. *Fuel* 2019;255:115696.
- [32] Zhang G, Ranjith PG, Liang W, Haque A, Perera MSA, Li D. Stress-dependent fracture porosity and permeability of fractured coal: an in-situ X-ray tomography study. *Int J Coal Geol* 2019;213:103279.
- [33] Zhang B, Liang W, Ranjith PG, Li Z, Li C, Hou D. Coupling effects of supercritical CO₂ sequestration in deep coal seam. *Energy Fuels* 2019;33(1):460–73.
- [34] Orr Jr FM. Onshore geologic storage of CO₂. *Science* 2009;325(5948):1656–8.
- [35] Brace WF, Walsh J, Franjos WT. Permeability of granite under high pressure. *J Geophys Res* 1968;73(6):2225–36.
- [36] Heller R, Vermynen J, Zoback M. Experimental investigation of matrix permeability of gas shales. *AAPG Bull* 2014;98(5):975–95.
- [37] Mayo SC, Gureyev TE, Nesterets YI, Thompson DA, Siu KKW, Wallwork K. A dedicated micro-CT beamline for the Australian Synchrotron and the RemoteCT project. *J Phys: Conf Ser* 2013;463:012002.
- [38] Zhang G, Ranjith PG, Perera MSA, Haque A, Choi X, Sampath KSM. Characterization of coal porosity and permeability evolution by demineralisation

[†] <https://www.massive.org.au>.

- using image processing techniques: a micro-computed tomography study. *J Nat Gas Sci Eng* 2018;56:384–96.
- [39] Youssef S, Rosenberg E, Gland NF, Kenter JA, Skalinski M, Vizika O, et al. High resolution CT and pore-network models to assess petrophysical properties of homogeneous and heterogeneous carbonates. In: *Proceedings of the SPE/EAGE Reservoir Characterization and Simulation Conference*; 2007 Oct 28–31; Abu Dhabi, UAE. Richardson: OnePetro; 2007.
- [40] Gunter W. Coalbed methane, a fossil fuel resource with the potential for zero greenhouse gas emissions—the Alberta, Canada Program 1996–2009: a summary. Alberta CO₂-ECBM research and field pilots summary. Alberta Research Council; 2009.
- [41] Mavor MJ, Gunter WD, Robinson JR. Alberta multiwell micro-pilot testing for CBM properties, enhanced methane recovery and CO₂ storage potential. In: *Proceedings of the SPE Annual Technical Conference and Exhibition*; 2004 Sep 26–29; Houston, Texas, USA. Richardson: OnePetro; 2004.
- [42] Talapatra A, Halder S, Chowdhury AI. Enhancing coal bed methane recovery: using injection of nitrogen and carbon dioxide mixture. *Petrol Sci Technol* 2021; 39(2):49–62.
- [43] Stevens SH, Kuuskraa VA, Gale J, Beecy D. CO₂ injection and sequestration in depleted oil and gas fields and deep coal seams: worldwide potential and costs. *Environ Geosci* 2001;8(3):200–9.
- [44] Davis SJ, Lewis NS, Shaner M, Aggarwal S, Arent D, Azevedo IL, et al. Net-zero emissions energy systems. *Science* 2018;360(6396):eaas9793.
- [45] Xu X, Song C, Wincek R, Andresen JM, Miller BG, Scaroni AW. Separation of CO₂ from power plant flue gas using a novel CO₂ “molecular basket” adsorbent. *Fuel Chem Div Prepr* 2003;48(1):162–3.
- [46] Wong S, Gunter W, Mavor M. Economics of CO₂ sequestration in coalbed methane reservoirs. In: *Proceedings of the SPE/CERI Gas Technology Symposium*; 2000 Apr 3–5; Calgary, Alberta, Canada. Richardson: OnePetro; 2000.
- [47] Wong S, Gunter W, Law D, Mavor M. Economics of flue gas injection and CO₂ sequestration in coalbed methane reservoirs. In: Williams D, Durie B, McMullan P, Paulson C Smith, A, editors. *Proceedings of the 5th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies*. Cairns: CSIRO Publishing; 2001. p. 543–8.