

A Bodai Agyagkő Formáció kőzetmintáin végzett nanopermeabilitás mérések eredményei

Results of measuring nanopermeability of Boda Claystone Formation coreplugs

BARACZA KRISZTIÁN¹, SZILÁGYINÉ SEBŐK SZILVIA²,
HORVÁTH GÁBOR³, DÓCS ROLAND⁴

1 Miskolci Egyetem, Alkalmazott Földtudományi Kutatóintézet, krisztian.baracza@uni-miskolc.hu,

2 Miskolci Egyetem, Alkalmazott Földtudományi Kutatóintézet, szilvia.szilagyine@uni-miskolc.hu,

3 Miskolci Egyetem, Alkalmazott Földtudományi Kutatóintézet, afkgabor@uni-miskolc.hu

4 Miskolci Egyetem, Alkalmazott Földtudományi Kutatóintézet, afkdocs@uni-miskolc.hu

Abstract

The increase of oil and gas prices in the worldmarket and the issues of radioactive waste disposal have brought ultra-low-permeability storage rocks into the focus of industrial and economic interest. This process has also necessarily led to the development of measuring methods suitable for determining petrophysical parameters of ultra-low-permeability rocks. The development of measuring equipments and methods have made it possible to measure gas flow rates on a scale previously was impossible, paving the way for the development of new methods such as the Nano-K permeameter presented in this study. In our investigation, the results of measurements of samples belonging to the Boda Claystone Formation were compared with results of extremely low permeability rocks from other unconventional hydrocarbon reservoir rocks.

Összefoglaló

A kőolaj és a földgáz világszertei árának növekedése, valamint a radioaktív hulladék elhelyezés témakörét érintő és megoldásra váró kérdések illetve a kapcsolódó intézkedések miatt az extrém kis átteresztőképességgel rendelkező tárolókőzetek az ipari- gazdasági érdeklődés fókuszába kerültek. Ez a folyamat az extrém alacsony permeabilitású kőzetek kőzetfizikai paramétereinek meghatározására alkalmas mérési módszerek fejlesztését is szükségképpen vont maga után. A mérés-technikai berendezések fejlesztésében történt előrehaladások segítségével lehetőség nyílt az addig nem mérhető mértékű gáz térfogatáramok mérésére is, utat nyitva olyan új módszerek kifejlesztésére, mint amelyet a tanulmányban bemutatásra kerülő Nano-K permeameter is alkalmaz. Vizsgálataink során a Bodai Agyagkő Formációba tartozó minták mérési eredményeit vetettük össze egyéb, nem konvencionális szénhidrogén tározó kőzetből származó extrém alacsony permeabilitású kőzetek mérési eredményeivel.

Kulcsszavak: *nanopermeabilitás, átteresztőképesség, Nano-K permeameter, Bodai Agyagkő, Bodai Aleurolit, BAF, radioaktív hulladék, nem konvencionális,*

Bevezető

A Bodai Agyagkő- 2011 előtt még Bodai Aleurolit- Formáció már több, mint három évtizede fokozott érdeklődésre tart számot a magas radioaktivitású hulladékok elhelyezésének megoldását célzó kutatások körében. A geológiai formációban történő elhelyezés alapfeltétele a befogadó közeg izolációs képessége, ami a kőzetek esetében olyan alacsony átteresztőképességet jelent, mely kizárja az advektív felszín alatti vízáramlás lehetőségét [2],

A radioaktív hulladékok elhelyezésére alkalmas, kis átteresztőképességű kőzetek mellett a nem konvencionális tárolókőzetek esetében is kritikus fontosságú a porozitás- és permeabilitásviszonyok, szemcséközi teret leíró tulajdonságok és az abban lejátszódó folyamatok megismerése. A palagázt

tároló finomszemcsés üledékes kőzetek pórusméret tartománya a nanométeres nagyságrendet közelíti. Porózus közegek permeabilitásának meghatározására számos empirikus- analitikai és a Darcy törvényen alapuló labor- és experimentális módszert dolgoztak ki, melyek közül több mind a mai napig használatban van. A mérési módszerek részletes ismertetésétől terjedelmi okokból eltekintünk, de hivatkozunk Sharma&Siginer valamint Christiansen,& Howarth [1][2] műveire, melyek átfogó historikus képet nyújtanak a permeabilitás mérés metódusait illetően. A nano mérettartományban megjelenő permeabilitás mérésére alkalmas módszerek és eszközök kifejlesztésére azonban csak a növekvő ipari-gazdasági igények talaján kifejlődő tudományos kutatások eme tartomány felé fordulását követően kerülhetett sor.

A kőzetminták laboratóriumi permeabilitás meghatározása során használható eljárásokat két nagy csoportba sorolhatjuk. Ezek a térfogat, illetve tömegáram mérésén, valamint a nyomásváltozás vizsgálatán alapuló módszerek. Azon minták esetében, ahol a permeabilitás értékek kellően magasak ($>10^{-3}$ mD), alacsonyabb differenciális nyomások mellett van lehetősége a fluidumok (beleértve a gázok is) átáramoltatására. Ebből következően magasabb térfogatáramok kialakítására van lehetőség a lamináris áramlási viszonyok megtartása mellett, mely alapvető feltétele a mérési módszereknek. Ilyen módszerek esetében a fluidum adott differenciál nyomás mellett a kőzeten keresztül kialakult és stabilizálódott térfogat/tömegáramát mérve meghatározható a minta permeabilitása.

Azon minták esetében, ahol a fluidumok áramlása során fellépő nyomásvesztések ezen tartományon kívül esnek, a lamináris áramlási viszonyok megtartása mellett kialakuló térfogat, illetve tömegáramok a mérhetőnél alacsonyabbak. Ilyen esetekben kerülnek alkalmazásra a nyomás lecsengési (PPD= Pressure Pulse Decay) valamint nyomás felépülési (PB= Pressure Buildup) technikákon alapuló mérési módszerek. A két technika ugyanazon elven működik, egy állandó nyomáson lévő rendszerben előidézett ismert mértékű nyomásváltozás kiegyenlítődéshöz szükséges idő intervallum kerül meghatározásra. A lecsengési, illetve felépülési görbék felvételét követően a minta permeabilitása meghatározható válik.

A PPD elven működő berendezések esetében a mérési kör három részre tagolható: a minta előtti ismert térfogat, a minta utáni ismert térfogat, illetve a minta pórus térfogata. A mérés kezdetén a nyomás állandó a három szakaszban majd ezt követően a minta előtti szakasz leválasztásra kerül egy szelep segítségével. A leválasztott szakaszban ezután a nyomás fokozására kerül sor, melyet összenyitva az alacsonyabb oldali nyomással nyomás kiegyenlítődésh veszi kezdetét. A nyomás lecsengés sebessége a kőzet átteresztőképességének a függvénye. A PB módszer elve hasonló abban az esetben nyomás csökkentés történik és a kiegyenlítődésh iránya megfordul.

1. Általános jellemzők

A Bodai Agyagkő -korábbi nevén Bodai Aleurolit- Formáció kőzetanyagában uralkodóan agyagkő, aleurolit, finomszemű homokkő és dolomit kőzettípusok jelennek meg, melyben kősó utáni pszeudomorfozák formájában pátos karbonát kitöltések is előfordulnak [2]. Ezt, mint öskörnyezeti markert sós iszaplapályokra jellemző intenzív bepárlódással és korai diagenetikus kősóképződéssel hozták kapcsolatba. A rendelkezésre álló BAF magmintákat a formációból már jól ismert vörösesbarna agyagkő alkotja, mely változó mértékben albitfészkes megjelenésű (2. ábra).

2. A Nano-K permeaméter bemutatása és a mérés menete

Az eszköz tranziens áramlási viszonyok között képes meghatározni a kőzetmagok pórusrendszerében jelentkező ellenállást. A mérőeszköz segítségével meghatározhatóvá vált a rendkívül kis (10^{-3} - 10^{-9}) mD átteresztő képesség tartományba eső kőzetminták permeabilitása, amelyre mindezidáig nem volt lehetőség. A mérőberendezés beszerzésével, a jelenleg rendelkezésre álló eszközpark műszereivel együttesen értelmezhető mérési tartomány, jelentősen kiterjeszhetővé vált. A Nano-K permeabilitás mérő elsősorban a nem hagyományos szénhidrogén tároló rétegekből

származó kőzetminták, valamint olyan geológiai formációkból származó kőzetek záró képességének elemzése végezhető el, amelyek alkalmasak lehetnek kis és közepes aktivitású radioaktív hulladékok elhelyezésére. A GeoCore Magminta, Gyűjteményi és Laboratóriumi földtani tudásközpont fejlesztése című projekt keretén belül beszerzett eszközök üzembeállítása lehetővé teszi a projektben résztvevő másik két intézménnyel (MBFSZ- újabb nevén SZTFH és ATOMKI) történő szinergikus együttműködést az adott kutatási területen, megalapozva a közös kutatómunkát.

A mérőeszköz elülső oldalán található két horizontális irányban elhelyezett mintabefogó, melyekhez egy-egy áramlásmérő, regulátorok és a mintatartók feltöltését, leeresztését, illetve a bennük történő áramlást szabályozó szelepek, valamint a nitrogén gáz áramlását szabályozó szelepek tartoznak kiegészítve egy digitális kijelzővel. A nitrogén utánpótlásért felelős port, a Swagelok kompressziós szerelékek, a mintatartók járulékos fluidumait elvezető drén portok és hálózati dugaljok, adatátviteli modulok és USB portok a bal oldali panelen kaptak helyet, míg maga az áramlásmérő bemenete a jobb oldali panelen helyezkedik el. A berendezés 1” és 1,5” átmérőjű hengeres testek mérésére alkalmas, amelyek hossza 2-8 cm-ig terjedhet. A mintát gumiköpenybe helyezük és beszereljük a magbefogó cellába. A rendszer köpeny oldalát desztillált víz segítségével légtelenítjük, majd a mintára 100 bar köpenynyomást adunk, hogy megakadályozzuk mérés során a gáz minta melletti elszivárgását. A mérést nitrogén gáz segítségével végezzük. A belépő oldalra maximum 32 psi nyomást állítunk be a reduktor segítségével a kiáramlási oldalt pedig a légkörre nyitva hagyjuk és megvárjuk amíg a gázáramlás állandósul. Nagy tömörségű minta esetében ez akár több napba is telhet. Arról, hogy az áramlás állandósult, a piknométer segítségével győződünk meg. Felszereljük a nagy pontosságú Nano-Q áramlásmérőt a kiáramlási pontra és elindítjuk a mérést. Bemenő adatként szükséges a minta hossza, átmérője, valamint a légköri nyomás, így kimenő adatként megkapjuk a permeabilitást.

3. Mérési eredmények

3.1. Abszolút permeabilitás és porozitás mérések eredményei

A mérésre alkalmas minták kiválasztását, majd a minták 3D scannelését és archiválását követően a permeabilitás mérést megelőzően héliumos porozitásmérést hajtottunk végre. A mérési eredményeken feltáró statisztikai vizsgálatokat végeztünk, a kis mintaszám miatt azonban a kiugró vagy extrém mérési értékeket felvevő mintákat sem távolítottuk el az adatsorból. Ennek megfelelően a magok eredményeinek leíró statisztikai paramétereit az 1. táblázat mutatja be. Héliumos porozitás szempontjából a mért agyagkő minták 0,00423 és 1,19 % közé esnek, középértékük 0,603%.

A BAF minták permeabilitása 0,00312 és 4,366 μD közé esik. A minimum érték megfelel az agyagkövekre jellemző átlagos alacsony átteresztőképességnek, maximuma viszont némiképp eltér az elvárttól. Ezzel az értékkel a BAF 3/4/1 jelű minta extrém magas értéként jelentkezik a box ploton, melyet a 3. ábra szemléltet. Az alacsony mintaszám miatt nem került eltávolításra az adatok közül ez a mérés, így a középérték az átlagos eltérés és a szórás értéke is csak tájékoztató jellegű.

Egy kibővített mintaállományt vizsgálva, melybe kis átteresztőképességgel rendelkező, eltérő litológiájú minták is tartoztak, a BAF 3/4/1 jelű minta permeabilitása már nem mutatkozik extrém értéknek. A kibővített, eltérő litológiájú mintaállomány porozitás és permeabilitás értékeinek kapcsolatát vizsgálva az 5. ábra látható diagramot kapjuk. A vizsgált BAF minták mellett a márga, mészmárga, illetve ezek változó arányú összetételével jellemezhető mintákon túl aleurolitként, breccsaként, homokkőként meghatározott minták is szerepeltek az adatsorban. Egyértelműen pozitív, erős korreláció – nem meglepő módon- csak a homokkövek porozitása és permeabilitása. között jelölhető ki, melyek esetében a porozitás mértékének növekedésével a permeabilitás értéke is nő. Ezzel szemben a márgák, márgaszerű kőzetminták között ilyen jellegű kapcsolat nem írható le, a porozitás kis mértékű emelkedését nem követi az átteresztőképesség növekedése, vagy a viszonylag magasnak mondható átteresztőképesség is alacsony porozitással párosul.



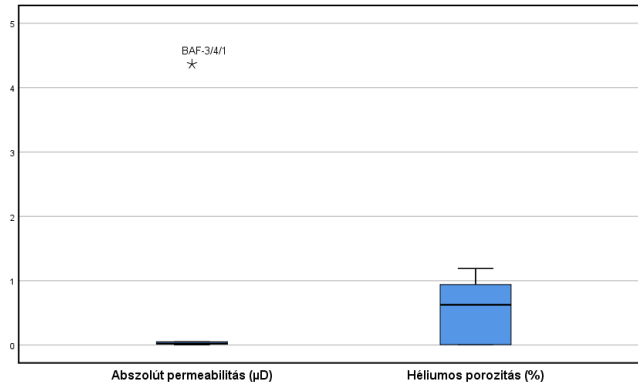
1. ábra: Nano-K permeabilitásmérő



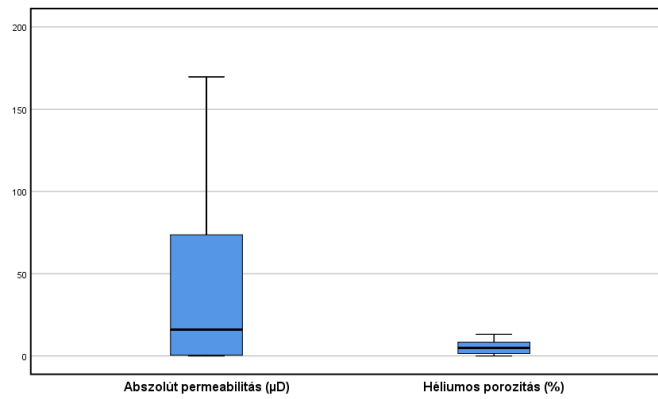
2. ábra: Bodai agyagkőből kialakított plugok NanoK méréshez

1. táblázat: Leíró statisztikai paraméterek a BAF minták jellemzőivel

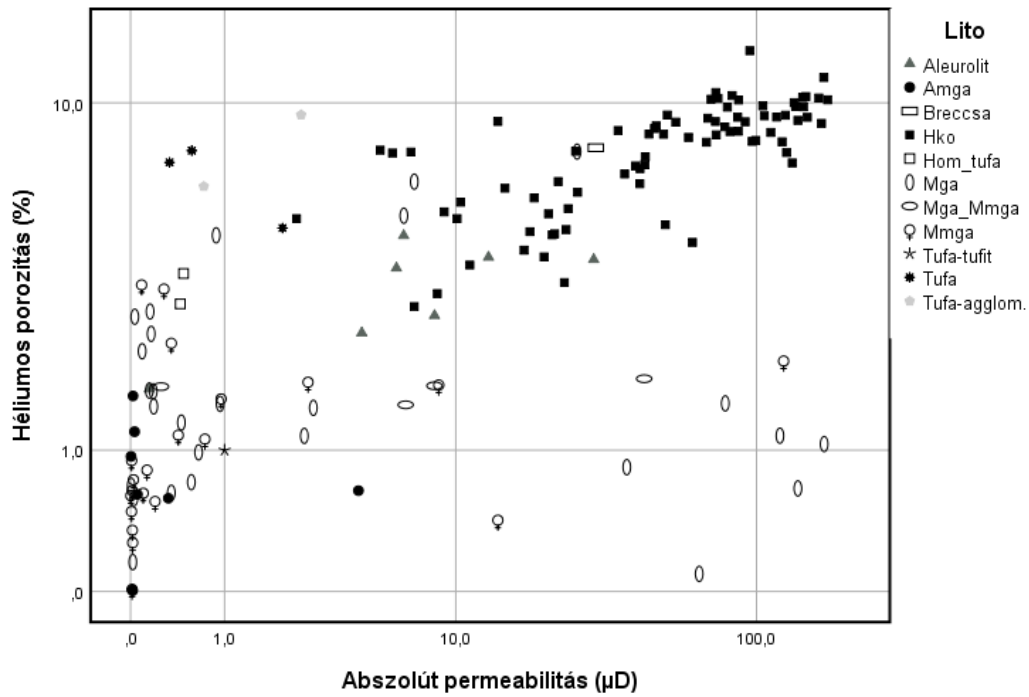
<i>Mért paraméter</i>	<i>Minimum</i>	<i>Maximum</i>	<i>Közéérték</i>	<i>Átlagos eltérés</i>	<i>Szórás</i>
Abszolút permeabilitás	0,00312	4,366	0,835	1,116	1,654
Héliumos porozitás	0,00423	1,190	0,603	0,4827	0,341
Mintaszám	7	7	7	7	7



3. ábra: BAF minták permeabilitás és porozitás mérésének eredményei



4. ábra: Alacsony átteresztőképességű, eltérő litológiájú minták permeabilitás és porozitás mérésének eredményei



5. ábra: Eltérő litológiájú alacsony átteresztőképességű magminták permeabilitásának és porozitásának kapcsolata

4. Összefoglalás

A minták előkészítése és a mérés kivitelezése során néhány alapvető feltételnek kell eleget tennünk a pontos mérési eredmények érdekében. Ezek közül a legfontosabb, hogy a mintákat tömegállandóság eléréséig szükséges szárítani a mérés megkezdése előtt. A minta kialakítása során figyelemmel kell lenni az esetleg megjelenő mikrorepedésekre is, melyek főleg az agyagkő minták esetében nagyobb arányban alakulhatnak ki. A mintaelőkészítés során, vagy akár a mérés közben létrejött repedések a mérési eredményeket torzíthatják, téves értékelésre adhatnak alapot, így szükségszerűvé válhat újramérésük, illetve új minta kialakítása. A bemeneti nyomás megválasztása során törekedni kell a turbulens áramlás lehetőségének elkerülésére. A mért BAF minták mind porozitás, mind permeabilitás alapján az elvárásoknak megfelelően beilleszthetők az ultra alacsony áteresztőképességű kőzetek közé.

Köszönetnyilvánítás

A kutatómunka a Miskolci Egyetemen működő Alkalmazott Földtudományi Kutatóintézet GEOCORE Magminta, Gyűjteményi és Laboratóriumi földtani tudásközpont fejlesztése című és GINOP-2.3.3-15-2017-00043 azonosító számú projektjének részeként – a Széchenyi 2020 program keretében – az Európai Unió támogatásával, az Európai Strukturális és Beruházási Alapok társfinanszírozásával valósult meg.

Irodalom

- [1] Christiansen, R. L., Susan M. Howarth, S. M. (1995): Literature review and recommendation of methods for measuring relative permeability of anhydrite from the Salado Formation at the waste isolation pilot plant, Sandia National Laboratories Albuquerque, New Mexico, Livermore, California, USA
- [2] Sharma, S., Siginer, D. A. (2008): Permeability measurement methods in porous media: A review, Proceedings of IMECE2008, ASME International Mechanical Engineering Congress and Exposition, 2008, Boston, Massachusetts, USA
- [3] Szűcs, István (2013): A nukleáris ipar hulladékkezelési kihívásai, Pannon Egyetem Környezetmérnöki Intézet, Veszprém
- [4] Máthé, Zoltán & Varga, Andrea (2012): „Ízesítő” a permi Bodai Agyakő Formáció öskörnyezeti rekonstrukciójához: kőso utáni pszeudomorfózák a BAT-4 fúrás agyagkőmintáiban, Földtani Közlöny, 142/2. 201-204. Budapest