(19)中华人民共和国国家知识产权局

(12)发明专利

(10)授权公告号 CN 103512783 B
(45)授权公告日 2016.06.29

(21)申请号 201310421445.2

(22)申请日 2013.09.16

(73)专利权人 中国科学院力学研究所
地址 100190 北京市海淀区北四环西路15号

(72)发明人 张旭辉 鲁晓兵 刘昌龄 业渝光

(74)专利代理机构 北京和信华成知识产权代理事务所(普通合伙) 11390
代理人 王艺

(51)Int.Cl.
*G01N 1/28*(2006.01)

(56)对比文件
US 2003/0178195 A1,2003.09.25,
CN 102252918 A,2011.11.23,
CN 103267662 A,2013.08.28,
CN 103267662 A,2013.08.28,
王英梅等.温度梯度对粗砂中甲烷水合物形成和分解过程的影响及电阻率的响应.《天然气地球科学》.2012,第23卷(第1期),第19-25页.

审查员 沈晓霞

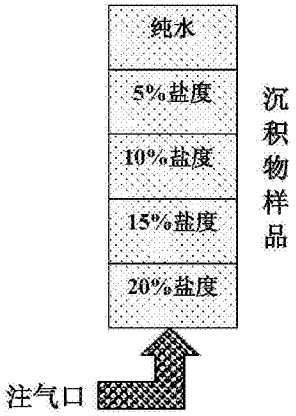
权利要求书1页 说明书3页 附图1页

(54)发明名称

一种水合物沉积物样品制备方法

(57)摘要

本发明公开一种水合物沉积物样品制备方法,包括:从沉积物样品的一端注入天然气,其中,进气端至出气端的沉积物样品含盐量从高到低具有梯度,和/或,进气端至出气端的沉积物样品的温度从高到低具有梯度,使得出气端的沉积物样品先形成水合物,再逐渐延伸至进气端的沉积物样品形成水合物。本发明可以通过样品进出气两端的温度或盐度梯度控制或者两种方式联合,使得水合物在出气端先合成,达到需要的水合物含量后,通过温度振荡,促进水气的自然平衡分布,这样制备含水合物沉积物方法,周期短、水合物含量可控范围广且均匀性好。




CN 103512783 B

1.一种水合物沉积物样品制备方法,包括:

从沉积物样品的一端注入天然气,其中,进气端至出气端的沉积物样品含盐量从高到低具有梯度,使得出气端的沉积物样品先形成水合物,再逐渐延伸至进气端的沉积物样品形成水合物。

2.如权利要求1所述的方法,其特征在于,

出气端的沉积物样品先形成水合物之后,逐步提高注入天然气的压力,使得从出气端至进气端的沉积物样品逐步形成水合物。

3.如权利要求1或2所述的方法,其特征在于,所述方法还包括:

进气端的沉积物样品形成水合物之后,对所述沉积物样品反复进行升温-降温的温度振荡,使得水合物分解再合成,从而在沉积物样品的孔隙中更加均匀地分布。

4.如权利要求3所述的方法,其特征在于,

所述升温-降温的温度振荡的幅度为±1度。

5.如权利要求1或2或4中任意一项所述的方法,其特征在于,

在从沉积物样品的一端注入天然气的步骤之前,还包括制备沉积物样品,包括如下步骤:

配制N份不同盐度的水溶液;

将所述水溶液分别与试验用土混合;

按照溶液浓度从大到小的顺序分N层砸实成沉积物样品;

其中,N为大于2的整数。

6.如权利要求5所述的方法,其特征在于,

所述N为5,所配制的水溶液的盐度分别为:0%,5%,10%,15%,20%。

7.如权利要求3所述的方法,其特征在于,

在从沉积物样品的一端注入天然气的步骤之前,还包括制备沉积物样品,包括如下步骤:

配制N份不同盐度的水溶液;

将所述水溶液分别与试验用土混合;

按照溶液浓度从大到小的顺序分N层砸实成沉积物样品;

其中,N为大于2的整数。

8.如权利要求7所述的方法,其特征在于,

所述N为5,所配制的水溶液的盐度分别为:0%,5%,10%,15%,20%。

# 一种水合物沉积物样品制备方法

## 技术领域

[0001] 本发明涉及水合物沉积物研究领域，特别涉及一种水合物沉积物样品制备方法。

## 背景技术

[0002] 天然气水合物是天然气和水在高压和低温条件下形成的类冰固体化合物，是21世纪的战略能源。水合物沉积物广泛分布于陆地冻土环境与海洋、湖泊等深水地层环境。由于在温度或压力的扰动下水合物相变，因此从现场取得完整的水合物沉积物样品难度很大，需要走向室内研究。而制备均匀、不同水合物含量的水合物沉积物是实验室研究水合物沉积物力学特性测量、水合物开采及其安全性模拟的最为关键环节。

[0003] 目前，国际上报道的含水合物沉积物样品制备方法主要有四种：气溶水、升降温循环；控制含水量；冰晶成核诱导；预制水合物混合土。这些方法还存在一些缺陷：对于后两种方法，水合物在沉积物中的分布及其与沉积物的胶结与实际有较大差别；前两种方法中，由于恒温控制，水合物首先在进气口形成，堵塞气体向内部流动，水合物的合成速率慢、水合物含量低且均匀性差。含水合物沉积物样品制备是水合物相关实验研究的国际难点。

## 发明内容

[0004] 本发明要解决的技术问题就是克服现有技术的实验室水合物沉积物样品制备的周期长、代表性差的问题，提出一种新型的水合物沉积物样品制备方法，能够加快水合物沉积物样品制备周期。

[0005] 为了解决上述问题，本发明提供一种水合物沉积物样品制备方法，包括：

[0006] 从沉积物样品的一端注入天然气，其中，进气端至出气端的沉积物样品含盐量从高到低具有梯度，和/或，进气端至出气端的沉积物样品的温度从高到低具有梯度，使得出气端的沉积物样品先形成水合物，再逐渐延伸至进气端的沉积物样品形成水合物。

[0007] 优选地，当采用进气端至出气端的沉积物样品含盐量从高到低具有梯度时，出气端的沉积物样品先形成水合物之后，逐步提高注入天然气的压力，使得从出气端至进气端的沉积物样品逐步形成水合物。

[0008] 优选地，所述方法还包括：

[0009] 进气端的沉积物样品形成水合物之后，对所述沉积物样品反复进行升温-降温的温度震荡，使得水合物分解再合成，从而在沉积物样品的孔隙中更加均匀地分布。

[0010] 优选地，所述升温-降温的温度震荡的幅度为±1度。

[0011] 优选地，当采用进气端至出气端的沉积物样品含盐量从高到低具有梯度时，在从沉积物样品的一端注入天然气的步骤之前，还包括制备沉积物样品，包括如下步骤：

[0012] 配置N份不同盐度的水溶液；

[0013] 将所述水溶液分别与试验用土混合；

[0014] 按照溶液浓度从大到小的顺序分N层砸实成沉积物样品；

[0015] 其中，N为大于2的整数。

[0016] 优选地，所述N为5，所配置的水溶液的盐度分别为：0%，5%，10%，15%，20%。

[0017] 本发明提供一种新型的含水合物沉积物样品制备方法，可以通过样品进出气两端的温度或盐度梯度控制或者两种方式联合，使得水合物在出气端先合成，达到需要的水合物含量后，通过温度振荡，促进水气的自然平衡分布，这样制备含水合物沉积物方法，周期短、水合物含量可控范围广且均匀性好。

## 附图说明

[0018] 图1为本发明实施例一采用盐度梯度方式的示意图；

[0019] 图2为本发明实施例二采用温度梯度的示意图。

## 具体实施方式

[0020] 下文中将结合附图对本发明的实施例进行详细说明。需要说明的是，在不冲突的情况下，本申请中的实施例及实施例中的特征可以相互任意组合。

[0021] 本发明提供一种新型的水合物沉积物样品制备方法。该方法是在水合物沉积物样品制备过程中沿着样品高度方向提供一定的温度梯度或盐度梯度或两种方式联合，使得水合物在沉积物孔隙中逐渐均匀形成。

[0022] 具体地，本发明包括两个步骤：

[0023] 1、从沉积物样品的一端注入天然气，其中，进气端至出气端的沉积物样品含盐量从高到低具有梯度，和/或，进气端至出气端的沉积物样品的温度从高到低具有梯度，使得出气端的沉积物样品先形成水合物，再逐渐延伸至进气端的沉积物样品形成水合物；

[0024] 2、进气端的沉积物样品形成水合物之后，对所述沉积物样品反复进行升温-降温的温度震荡，使得水合物分解再合成，从而在沉积物样品的孔隙中更加均匀地分布。

[0025] 其中，步骤2为可选步骤，为了使得水合物在沉积物样品中更加均匀。

[0026] 下面以具体的实施例进一步说明本发明。

[0027] 实施例一，采用盐度梯度方式

[0028] 如图1所示，对于控制盐度梯度的含水合物沉积物样品制备方法，以土力学三轴试样制备为例，首先配制不同盐度的水溶液N份，N为大于2的整数。以N等于5为例，配置溶液盐度分别为0%，5%，10%，15%，20%；然后将水溶液分别与试验用土混合，再按照溶液浓度从大到小的顺序分5层砸实成样品；接着从沉积物样品的底部（进气端，盐度为20%）注入一定压力的甲烷气体，保持温度、压力和盐度条件能够使得含纯水的沉积物孔隙中率先形成水合物。

[0029] 合成过程如下：举例说明，参照表1，在气体压力4.3MPa和温度4℃时，假定样品长度为L，距离样品顶部0～1/5L段水合物首先开始合成，当气体不再消耗时，这一段合成结束；由于盐度越高，水合物相平衡条件越高，也即是说相同温度下，盐度增加，水合物合成需要更高的压力，因此，逐渐提高气体压力0.1MPa/次，气体再次消耗时，距离样品顶部1/5L～2/5L段水合物开始合成，当气体不再消耗时，这一段合成结束；依次类推，逐渐向下直至20%盐度水溶液的沉积物孔隙中形成水合物，整个过程中控制进气量能够提供试验需要的水合物饱和度；最后再反复进行升温-降温的温度震荡（升温时温度高于相平衡温度1℃，降温时低于相平衡温度1℃），使得水合物分解再合成，从而在沉积物孔隙中更加均匀地分布。

[0030] 表1相平衡温压条件

[0031]

| 温度(℃) | -2 | -1 | 0 | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 压力(MPa) | 2.1 | 2.4 | 2.7 | 3.0 | 3.4 | 3.8 | 4.3 | 4.8 | 5.4 |

[0032] 实施例二,采用温度梯度方式

[0033] 如图2所示,对于控制温度梯度的含水合物沉积物样品制备方法,以土力学三轴试样制备为例,首先按照一定的含水量砸实成沉积物样品;然后从底部(进气端)注入一定压力的甲烷气体,保持温度和压力条件能够使得顶部沉积物孔隙中率先形成水合物,也就是说顶部(出气端)温度较低,底部(进气端)温度较高。

[0034] 合成过程如下:举例说明,参照表1,气体压力4.3MPa时,假定样品长度为L,控制距离样品顶部1/5处温度为4℃,0～1/5L段温度低于这个值,1/5L～4/5L段高于这个值,那么0～1/5L这一段水合物首先开始合成,气体不再消耗时,这一段合成完毕;逐渐向下降温,控制距离样品顶部2/5处的温度为4℃,1/5L～2/5L段水合物合成;依次类推,直至底部沉积物孔隙中形成水合物,整个过程中控制进气量能够提供试验需要的水合物饱和度;最后再反复进行升温-降温的温度震荡(升温时温度高于相平衡温度1℃,降温时低于相平衡温度1℃),使得水合物分解再合成,从而在沉积物孔隙中更加均匀地分布。

[0035] 综上所述,本发明针对现有技术的实验室水合物沉积物样品制备的不均匀、周期长、代表性差的难点,提出一种新型的水合物沉积物样品制备方法。本发明解决了实验室水合物沉积物样品制备的难点,既可为我国水合物沉积物力学性质三轴测量提供实验材料,也同样适用于水合物开采及其安全性实验室研究的实验材料制备,在传热工程与技术领域也具有潜在的应用价值。

[0036] 以上所述仅为本发明的优选实施例而已,并不用于限制本发明,对于本领域的技术人员来说,本发明可以有各种更改和变化。凡在本发明的精神和原则之内,所作的任何修改、等同替换、改进等,均应包含在本发明的保护范围之内。

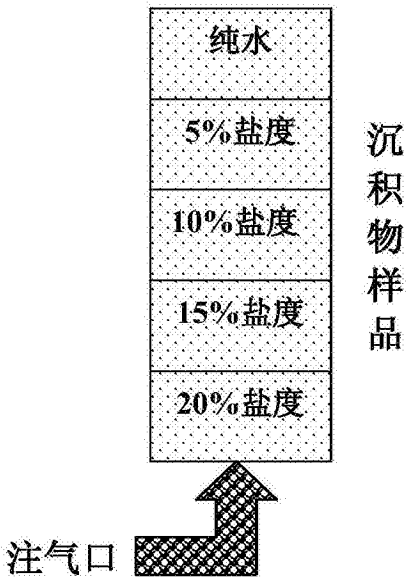



图1

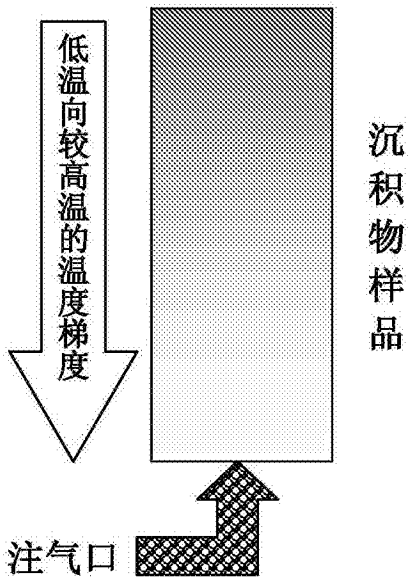



图2