

刘乐乐, 李彦龙, 张旭辉, 等. 2021. 降压开采导致天然气水合物系统状态演化模拟实验 [J]. 工程地质学报, 29(6): 1916-1925. doi: 10.13544/j.cnki.jeg.2021-0695

Liu Lele, Li Yanlong, Zhang Xuhui, et al. 2021. Experimental study on gas hydrate system state evolving during depressurization [J]. Journal of Engineering Geology, 29(6): 1916-1925. doi: 10.13544/j.cnki.jeg.2021-0695

降压开采导致天然气水合物系统状态演化模拟实验*

刘乐乐^{①②} 李彦龙^{①②} 张旭辉^③ 罗大双^③ 刘昌岭^{①②}

(①自然资源部天然气水合物重点实验室, 青岛海洋地质研究所, 青岛 266237, 中国)

(②青岛海洋科学与技术国家实验室, 海洋矿产资源评价与探测技术功能实验室, 青岛 266237, 中国)

(③中国科学院力学研究所, 北京 100190, 中国)

摘要 天然气水合物是一种重要的潜在替代能源, 降压法是现阶段水合物开采的首选方法。水合物降压开采涉及传热、多相渗流、分解相变和储层变形等多个相互影响的物理效应, 深入理解其在降压开采过程中的演化规律, 对于促进水合物开采效率、实现商业化开发具有重要的指导意义。本文基于一维实验模拟系统, 开展了水合物降压开采储层多物理场演化模拟实验, 在非均匀温度条件下采用过量气法合成水合物, 分析了水合物非均匀性分布特征, 探讨了降压过程中样品孔隙压力和温度的演化规律, 对比了产气过程与传热演化过程的对应关系。结果表明: 水合物合成后温度分布呈两侧高中间低的抛物线形状, 水合物分布具有中间多而两侧无的非均匀性特征, 且温度回升具有由两侧向中间发展的特点; 降压分解产气过程与传热演化过程具有良好的对应性, 稳态产气阶段由传热效应控制。控制降压模式、以对流换热替代热传导等方式有益于提升水合物开采产气效率。

关键词 天然气水合物; 降压法; 水合物饱和度; 渗流; 传热

中图分类号: P744.4 文献标识码: A doi: 10.13544/j.cnki.jeg.2021-0695

EXPERIMENTAL STUDY ON GAS HYDRATE SYSTEM STATE EVOLVING DURING DEPRESSURIZATION

LIU Lele^{①②} LI Yanlong^{①②} ZHANG Xuhui^③ LUO Dashuang^③ LIU Changling^{①②}

(①Key Laboratory of Gas Hydrate, Ministry of Land and Resources, Qingdao Institute of Marine Geology, Qingdao 266237, China)

(②Evaluation and Detection Technology Laboratory of Marine Mineral Resources, Qingdao National Laboratory for Marine Science and Technology, Qingdao 266237, China)

(③Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

Abstract Natural gas hydrate has been treated as a potential energy resource for decades. Depressurization is currently the most promising method for hydrate production. However, its efficiency is far from the commercial need. Hydrate production involves heat transfer, multi-phase seepage, phase transition, and reservoir deformation.

* 收稿日期: 2021-10-25; 修回日期: 2021-12-03.

基金项目: 国家重点研发计划政府间国际科技创新合作重点专项(资助号: 2018YFE0126400), 国家自然科学基金(资助号: 41872136, 41976074).

This research is supported by the National Key Research and Development Project (Grant No. 2018YFE0126400) and the National Natural Science Foundation of China(Grant Nos. 41872136, 41976074).

第一作者简介: 刘乐乐(1986-), 男, 博士, 研究员, 硕士生导师, 主要从事天然气水合物开采渗流力学方面的科研工作. E-mail: lele.liu@qnlm.cn

通讯作者简介: 李彦龙(1989-), 男, 博士, 副研究员, 硕士生导师, 主要从事天然气水合物开采工程地质学方面的科研工作. E-mail: ylli@qnlm.ac

A thorough understanding of how multiple physical processes evolve during depressurization is of great significance for efficiency enhancement of hydrate production. An experiment was carried out to simulate depressurization induced evolution of the multiple physical processes. Methane hydrate was formed by using the gas excess method under a heterogeneous temperature condition. Evolutions of pore pressures and temperatures were analyzed. A comparison between gas production process and heat transfer process was discussed. Main conclusions are drawn as follow: temperature distribution is parabola-like after hydrate formation, which has higher temperatures in two sides of the sample. In addition, hydrate distribution is inhomogeneous. Pore pressures decrease completely from the outlet to the inlet, and temperatures increase from the two sides into the middle part. The gas production process related to the heat transfer process well, and the stable stage for gas production is controlled by the heat transfer process. It is a feasible way to replace heat conduction by heat convection or choose a slow depressurization strategy to enhance production efficiency for the commercial need.

Key words Gas hydrate; Depressurization; Hydrate saturation; Seepage; Heat transfer

0 引言

天然气水合物(简称“水合物”)是一种似冰雪笼型结晶化合物,由天然气和水在合适的温度和压力条件下形成,它多数分布于海洋湖泊等深水地层环境中,具有储量大等特点,被认为是一种潜在的替代能源(Sloan, 2003, Li et al., 2021b)。目前,国际上已经在加拿大马更些三角洲冻土区(Numasawa et al., 2008)、美国阿拉斯加冻土区(Schoderbek et al., 2013)和日本南海海槽(Yamamoto et al., 2014)开展了数次水合物开采工程试验,大量研究结果表明采用降压法及其衍生方法开采水合物具有明显的优势(李守定等, 2020; 吴能友等, 2020)。我国南海水合物能源资源丰富(刘昌岭等, 2021; 刘杰等, 2021), 2017年和2020年,中国地质调查局牵头在南海北部海域完成了两轮海域水合物试采(Li et al., 2018, Ye et al., 2020),实现了泥质粉砂型水合物安全可控开采,极大地带动了国内水合物基础研究和技术研发工作的发展(李守定等, 2019; 何家雄等, 2020)。

水合物降压开采过程主要涉及传热、多相渗流、分解相变和储层变形等多个相互影响的物理效应(Hong et al., 2003, Liu et al., 2015)。海洋水合物储层孔隙压力、温度、孔隙三相(固相水合物和液相水及气相天然气)含量以及储层物性参数等在降压开采过程中不断发生变化,体现了水合物系统状态的时空演化特征(吴能友等, 2021)。阐明水合物系统状态在降压开采过程中的时空演化规律,对于降压方案设计、施工流程优化和开采影响范围预测等均具有科学指导意义。国内外专家学者针对降压法开

采水合物开展了大量的研究工作,在产能潜力评价和开采安全保障等方面取得了一些成果(Yang et al., 2012; Konno et al., 2016; Merey et al., 2017; 吴能友等, 2017; Mao et al., 2021)。依据产气效率的高低,水合物降压开采产气过程通常分为3个阶段(孙建业等, 2010)。降压幅度越大意味着水合物分解驱动力越大,但会导致结冰、二次水合物生成以及细粒沉积物剥离、运移、产出等问题(Li et al., 2020); 这些现象本质上是储层传热传质多物理场演化过程的一种体现。水合物降压分解产气过程的“先快后慢”三阶段典型特征是由于降压分解中后期水合物分解吸热受限所致,产气过程与水合物分解阵面演化过程具有较好的对应关系(刘乐乐等, 2013)。水合物分解阵面在开采过程中的演化过程已有解析、半解析和数值模型进行描述(刘乐乐等, 2014; Terzariol et al., 2017; 彭盈钰等, 2020); 降压开始之后的渗流阵面演化过程以及分解阵面演化过程基于岩芯尺度下压力和温度实验数据已获得基本认识(刘乐乐等, 2013, 2015)。场地尺度下水合物降压开采储层多物理场演化过程受水合物分解动力学与传热传质学及工程地质学参数影响明显(Zhang et al., 2021),然而目前对这些基础物性参数的演化机理认识仍不够清楚,需要采用系统化的理念揭示多物理场演化机理及其主控因素。

为了综合分析降压开采导致的水合物系统状态变化过程并理解其演化机理,本文基于一维模拟实验装置,开展了水合物降压开采储层多物理场演化模拟实验,探讨了孔隙压力和温度在降压分解过程中的变化规律,分析了产气过程与传热演化过程的对应关系,为水合物中长期开采效率的提升提出了建议。

1 实验装置

水合物开采多物理场演化一维模拟实验装置主要由低温高压反应釜、孔隙流体供给模块、温度控制模块、围压加载模块、产水产气模块及测量采集模块组成,如图 1 所示。

低温高压反应釜结构如图 2 所示,其轴线上安装柔性胶筒,柔性胶筒内空间用于制备含水合物沉积物样品,样品直径为 6.0 cm,长度为 100.0 cm;沿样品长度方向,穿过柔性胶筒在样品表面布置 5 个压力传感器和 10 个温度探头,最外侧压力传感器到样品两端的距离为 10.0 cm,两相邻压力传感器的间距均为 20.0 cm,最外侧温度探头到样品两端的距离为 5.0 cm,两相邻温度探头的间距均为 10.0 cm,从流体入口到出口,压力传感器的编号依次为 P1~P5,温度探头的编号为逆序,依次为 T10~T1;样品外包装柔性胶筒的壁厚为 0.5 cm,长度为 112.0 cm,目的在于隔离样品孔隙空间与胶筒外环腔以便施加围压;反应釜的内径为 16.0 cm,长度为

160.0 cm,最大可承受 30 MPa 的内压力,在 -20~50 °C 温度范围内可正常工作;温度控制通过反应釜外的制冷液环腔进行,为了降低环境传热的干扰,制冷液环腔和反应釜端盖外均包裹保温材料;反应釜通过旋转支撑架可实现从水平到竖直任意角度悬停。

孔隙流体供给模块主要用于合成水合物所用气体和水的供给,包括高压气瓶、盛水容器和高压恒流泵等部件,其中高压恒流泵工作压力上限为 20 MPa,最大可提供 $50 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ 的注入流量。温度控制模块的核心部件为恒温水浴箱,其温度下限为 -20 °C,控制精度为 $\pm 0.5 \text{ }^\circ\text{C}$,它与高压低温反应釜的制冷液环腔形成回路,采用乙二醇作为冷媒进行循环,将反应釜内部热量不断携带至恒温水浴箱以实现制冷控温。围压加载模块用于模拟含水合物沉积物承受的应力条件,主要包括围压泵和活塞容器,采用氟油作为媒介传递压力,最大围压可施加 25 MPa,控制精度为 $\pm 0.1 \text{ MPa}$;产水产气模块主要由气动控制式背压阀、气液分离器和盛水容器等组成,压力控制精度为 $\pm 0.1 \text{ MPa}$;测量采集模块主要

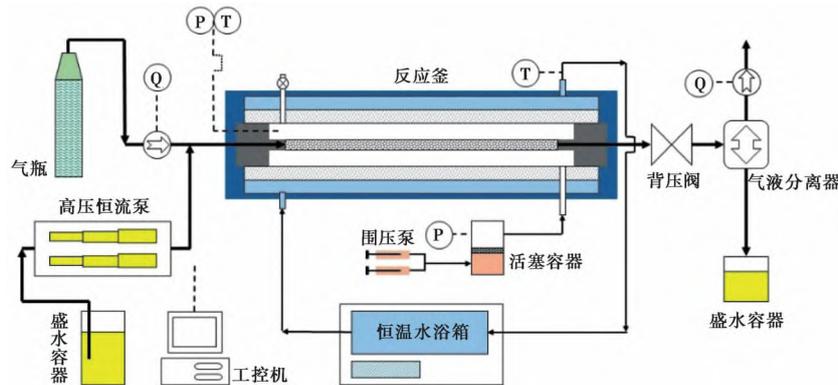


图 1 天然气水合物开采多物理场演化模拟实验装置

Fig. 1 Experimental apparatus for multi-physical-field evolution during gas hydrate recovery

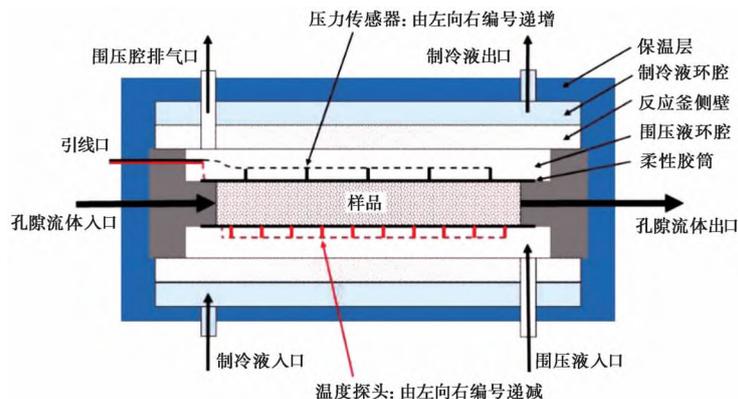


图 2 含水合物沉积物反应釜结构示意图

Fig. 2 Schematic diagram of vessel for hydrate-bearing sediments

由压力传感器、温度探头、气体流量计、数据采集仪和工控机等组成,压力和温度的测量精度分别为 ± 0.1 MPa 和 ± 0.1 °C。

2 实验材料与实验步骤

2.1 实验材料

实验样品骨架由石英砂制成,其粒径范围是 $0.1\sim 0.3$ mm; 样品内的水合物采用甲烷气体和蒸馏水合成,其中甲烷气体纯度为99.99%,蒸馏水由实验室自制。

2.2 实验材料与步骤

样品骨架制备: 根据实际条件确定样品干密度($1.42\text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$), 据此计算确定需要装填的石英砂总质量(4000 g); 将需要装填的石英砂按重量等分10份, 竖直放置柔性胶筒, 然后将石英砂逐份装入其中并压实至设定高度, 以保证样品的均匀度, 装填结束后的样品骨架孔隙度为39.9%。

甲烷水合物合成: 旋转低温高压反应釜至竖直向放置, 施加1 MPa 围压后, 采用高压恒流泵对石英砂样品进行注水饱和, 流出水量与样品孔隙体积两倍相当时停止饱和, 记录注入水量和流出水量。

在样品出口阀门打开的条件下, 缓慢平稳注入甲烷气体驱替孔隙水, 流出水量达到设定值后关闭出口阀门, 继续缓慢注入甲烷气体至孔隙压力升高至设定值(通常为5.5 MPa), 样品围压在此过程中同步增加, 始终高于孔隙压力至少0.5 MPa。

开启温度控制模块, 降温至1 °C左右合成甲烷水合物, 待孔隙压力相对稳定后, 根据水合物饱和度目标值选择再次注入甲烷气体或者停止, 通常循环注气4~7次以提升甲烷水合物饱和度; 待甲烷水合物饱和度满足要求, 样品孔隙压力和温度在12 h内基本不再变化时, 合成过程结束, 记录总进气量(通常为76.7 SL)。

开采多物理场演化过程模拟: 调节出口背压阀至设定压力值, 降压分解甲烷水合物, 孔隙流体在压差作用下产出, 水合物分解吸热致使样品温度降低, 样品外部环境热量传至样品, 持续测量样品孔隙压力、温度、产气量和产水量等参数, 待产气量在2 h内基本不再增加时, 实验结束。本文选取一次快速降压条件下的典型案例进行详细分析, 其他分阶段降压实验结果可参考作者的前期成果(Li et al., 2021a)。

3 典型实验结果分析

3.1 甲烷水合物合成阶段

甲烷水合物合成阶段的样品孔隙压力和围压随时间变化情况如图3所示。在初始注气之后分别在12 h、25 h、33 h、38 h 和52 h 进行了5次补气, 补气过程中围压(P_c) 恒定为6.0 MPa。5个孔隙压力在第1次和第2次补气过程中升降同步; 第2个孔隙压力(P_2) 在第3次和第4次补气过程中仅有约0.25 MPa 的升降幅度; 第2个和第3个孔隙压力(P_2 和 P_3) 在第5次补气过程中的升降幅度均明显小于其他3个孔隙压力的升降幅度。其主要原因是: 随着甲烷水合物的合成, 样品孔隙连通性逐渐降低, 导致某处孔隙压力与其他位置孔隙压力升降不同步, 类似的现象在之前的研究中也发现(Lee et al., 2010)。5次补气结束后静置约40 h 待甲烷水合物合成, 随后5个孔隙压力稳定在3.16~4.10 MPa 范围内的不同值, 反映了个别压力传感器探头与样品接触点形成了圈闭区域, 导致测量的孔隙压力值与圈闭区域外样品真实孔隙压力存在一定差别。即使样品孔隙中所有孔隙水均转化为甲烷水合物, 水合物饱和度上限仅为48.7%, 虽然水合物合成导致样品连通性降低, 但是样品孔隙之间必然仍是相互连通的, 则水合物合成后样品孔隙压力分布应该是较为均匀的, 如果存在压力梯度必然发生渗流以达到孔隙压力均匀状态。因此, 采用5个压力传感器测量压力平均值3.54 MPa 代表水合物合成后样品的孔隙压力。

甲烷水合物合成阶段的典型样品温度和环腔中制冷液温度(T_f) 随时间变化情况如图4所示。可以看出, 注气以及每次补气均会导致样品温度不同程度地升高, 这是因为注入的常温甲烷气体会携带一定热量进入样品。环腔制冷液(出口) 温度在补气过程中基本稳定在3.5~4.0 °C。约85 h后, 样品温度逐渐稳定, 稳定后的10个温度具有不同的温度值。

甲烷水合物合成结束后, 样品孔隙压力和温度沿样品长度分布情况如图5所示, 横坐标表示测点与样品左端(孔隙流体进入端) 之间的距离。可以看出, 样品温度分布呈两端高且中间低的抛物线形状, 这是因为反应釜两侧端盖外没有循环制冷液, 环境热量更容易从两端传入样品; 样品中部的温度

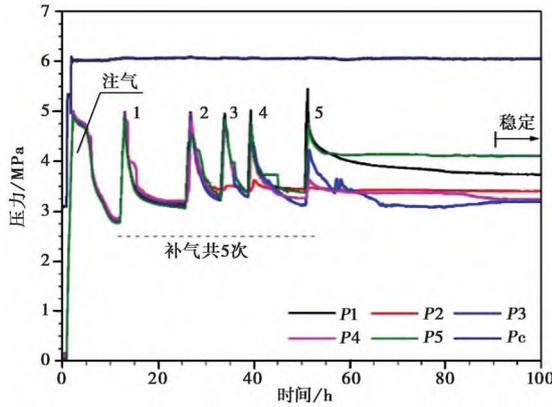


图3 甲烷水合物合成阶段压力随时间变化曲线
Fig. 3 Pressures changing over elapsed time during methane hydrate formation

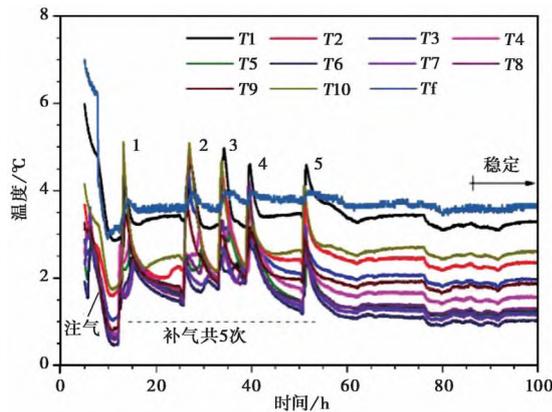


图4 甲烷水合物合成阶段温度随时间变化曲线
Fig. 4 Temperatures changing over time during methane hydrate formation

T6 为 1.0 °C, 靠近样品左端的温度 T10 为 2.5 °C, 靠近样品右端的温度 T1 为 3.2 °C, 即样品右端温度较左端温度稍高, 这是因为制冷液由样品左端下部进入环腔随后从样品右端上部流出环腔(图2), 制冷液与围压液以及样品等物质不断换热, 导致样品右端围压液温度高于样品左端围压液温度, 最终导致样品右端温度稍高于样品左端温度。如图5所示, 样品温度分布可由式(1)表示(相关系数为 0.977):

$$T = a_1 - a_2x + a_3x^2 \quad (1)$$

式中: 拟合参数 $a_1 = 2.76 \text{ °C}$, $a_2 = 7.71 \text{ °C} \cdot \text{m}^{-1}$, $a_3 = 8.60 \text{ °C} \cdot \text{m}^{-2}$ 。

根据文献(Sun et al., 2005), 甲烷水合物相平衡压力和温度关系满足下式:

$$\frac{P_g}{P^*} = 1.15 \exp\left(49.3185 - \frac{9459}{T/T^* + 273.15}\right) \quad (2)$$

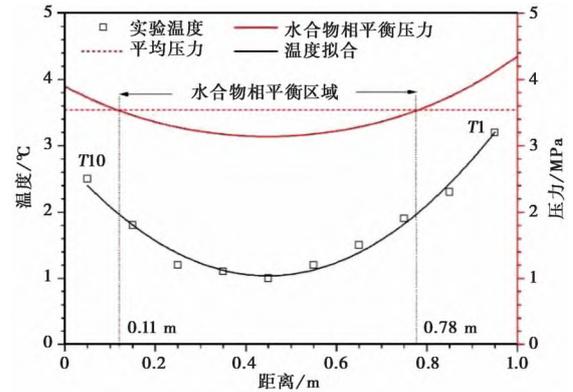


图5 甲烷水合物合成后样品温度和压力分布情况
Fig. 5 Temperature and pressure distributions along sample length after methane hydrate formation

式中: 参数 P^* 和 T^* 用于保证等式两端的量纲一致性, 分别等于 1 Pa 和 1 °C。

图5中水合物相平衡压力曲线根据式(1)和式(2)确定, 再结合样品孔隙压力平均值 3.54 MPa 确定水合物相平衡区域为 0.11~0.78 m 范围。在水合物相平衡区域两侧存在着水合物非稳定区域, 其水合物含量必然为 0。假设水合物合成前孔隙水和甲烷气是均匀分布的, 且水合物合成过程中孔隙水静止未迁移, 则水合物非稳定区域的孔隙水饱和度和甲烷气饱和度分别为 44.3% 和 55.7%。在水合物相平衡区域内, 水合物合成前后孔隙水质量守恒, 即:

$$V_2 \phi S_{h2} \rho_h \frac{N_h M_w}{M_h} + V_2 \phi S_{w2} \rho_w = m_{w2}^* \quad (3)$$

甲烷气摩尔数守恒, 即:

$$\frac{V_2 \phi S_{h2} \rho_h}{M_h} + \frac{P_{g2}}{RT_2} V_2 \phi S_{g2} = \frac{V_{g2}^*}{V_{SL}} \quad (4)$$

三相饱和度满足下述归一关系, 即:

$$S_{h2} + S_{w2} + S_{g2} = 1 \quad (5)$$

其中

$$m_{w2}^* = \frac{V_2}{V} m_w^* \quad (6)$$

$$V_{g2}^* = V_g^* - \frac{P_{g1} V_1 \phi S_{g1}}{RT_1} V_{SL} - \frac{P_{g3} V_3 \phi S_{g3}}{RT_3} V_{SL} \quad (7)$$

式中: S_{h2} 、 S_{w2} 和 S_{g2} 分别为水合物相平衡区域内甲烷水合物、孔隙水和甲烷气的饱和度, 可联立式(1)和式(3)~式(7)求解, 所用参数名称及取值如表1所示。

甲烷水合物合成后水合物、孔隙水和甲烷气三相饱和度沿样品长度分布情况如图6所示, 样品中

表 1 样品三相饱和度求解参数

Table 1 Parameters for calculating hydrate, water, and methane saturations within the sample

参数名称	取值
总进气量 V_g^* (标准状态 SL)	76.7
总进水量 m_w^* /g	500
孔隙度 ϕ /%	39.9
样品总体积 V /cm ³	2826.0
水合物相平衡区域体积 V_2 /cm ³	1893.4
左侧水合物非稳定区域体积 V_1 /cm ³	310.9
右侧水合物非稳定区域体积 V_3 /cm ³	621.7
水合物密度 ρ_h /g·cm ⁻³	0.91*
孔隙水密度 ρ_w /g·cm ⁻³	1
水合物摩尔质量 M_h /g·mol ⁻¹	119.5*
孔隙水摩尔质量 M_w /g·mol ⁻¹	18
水合物数 N_h	5.75*
气体常数 R /J·mol ⁻¹ ·K ⁻¹	8.31
气体摩尔体积 V_{SL} /SL·mol ⁻¹	22.4
孔隙压力 P_{g1}, P_{g2}, P_{g3} /MPa	3.54
水合物相平衡区域温度 T_2 /℃	式(1) 且 $0.11 \leq x \leq 0.78$
左侧水合物非稳定区域温度 T_1 /℃	式(1) 且 $0 < x < 0.11$
右侧水合物非稳定区域温度 T_3 /℃	式(1) 且 $0.78 < x \leq 1$

* 数值来源于(业渝光等, 2011)

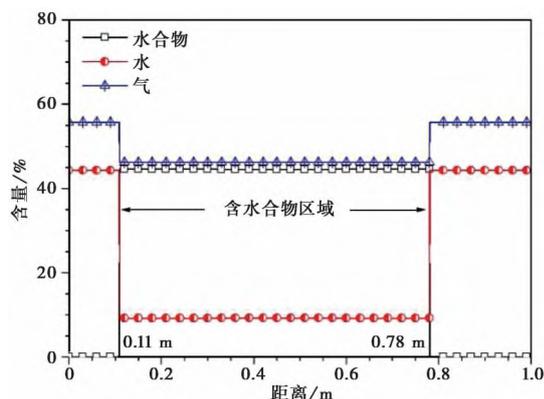


图 6 甲烷水合物合成后水合物、水和气三相含量分布

Fig. 6 Saturation distributions of methane hydrate, water, and methane gas after methane hydrate formation

间水合物相平衡稳定区域内水合物饱和度、孔隙水饱和度和甲烷气饱和度分别为 44.6%、9.2% 和 46.2%。

样品温度分布不均匀,导致样品两侧区域在水合物合成后无水合物,但是在水合物合成初期,两侧

区域孔隙压力在水合物相平衡压力之上,其孔隙中应有水合物生成;随着水合物合成,样品中间区域更具合成优势,孔隙压力可降低至两侧区域温度对应的相平衡压力之下,则两侧区域甲烷气在压力梯度驱动下向中间区域运移,孔隙压力随之降低;两侧区域已经合成的水合物开始分解,直到水合物完全分解且两侧区域孔隙压力与中间区域孔隙压力相同时水合物合成结束。

3.2 多物理场演化模拟阶段

图 7 所示为甲烷水合物降压分解样品孔隙压力演化曲线。可以看出,降压开始之后,孔隙压力 $P5$ 、 $P3$ 和 $P1$ 几乎同时降低,其中 $P5$ 迅速降至 0,而 $P3$ 和 $P1$ 在降低过程中经历了两个平台期,对应的压力分别为 2.5 MPa 和 0.8 MPa,两个平台期之间的时间间隔大约为 7 h,平台期之后孔隙压力缓慢降至 0;孔隙压力 $P4$ 缓慢降低至 3.0 MPa 后突然降至 0;孔隙压力 $P2$ 在保持初始压力约 2 h 后快速降至第 1 个平台期,随后又降至第 2 个平台期,平台期的持续时间分别为 6 h 和 3 h。总体来讲,孔隙压力 $P5$ 、 $P4$ 、 $P3$ 、 $P2$ 和 $P1$ 开始降低的顺序与其空间位置顺序并不完全一致,这主要是因为样品孔隙连通性较差,并且水合物饱和度越高则连通性越差;然而,孔隙压力降低至 0 的顺序符合压力传感器空间位置距降压端由近及远的顺序,反映了孔隙压力场的演化过程。

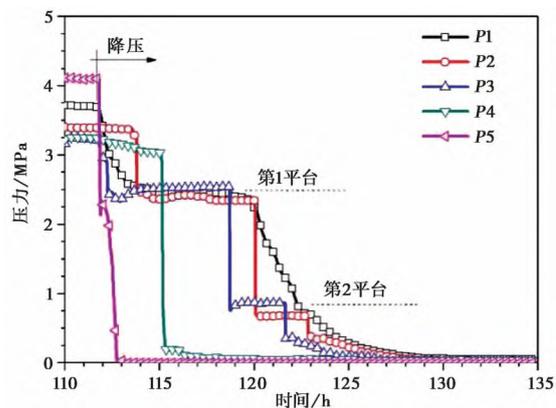


图 7 降压分解孔隙压力演化

Fig. 7 Pore pressure evolutions during depressurization

图 8 所示为甲烷水合物降压分解过程中样品温度演化曲线。可以看出,环腔制冷液温度 Tf 在降压之后略微降低(0.5℃),随后稳定在 3.5℃ 左右;此外,降压开始之后,温度 $T1 \sim T10$ 几乎同时开始降低,降低幅度不同但都在 2.5~4.0℃ 范围之内;与

样品中部温度相比,样品两侧温度回升更早,在135 h时两侧温度 $T1$ 、 $T2$ 、 $T3$ 、 $T4$ 、 $T9$ 和 $T10$ 基本恢复至初始温度,而中部温度 $T5 \sim T8$ 仍然未完全恢复至初始值;总体上,样品温度在降压后快速降低,随后按照从两侧向中间的顺序逐渐回升,反映了降压分解温度场的演化过程。值得注意的是,样品中部的温度 $T3 \sim T9$ 在降压分解过程中均降低至冰点以下,并且维持时间达到数小时甚至几十小时,这必将导致孔隙水结冰或者二次水合物的生成,造成样品孔隙连通性下降而渗流不畅,即孔隙压力消散受阻,图7中孔隙压力演化曲线存在的“平台期”很好地反映了此效应。

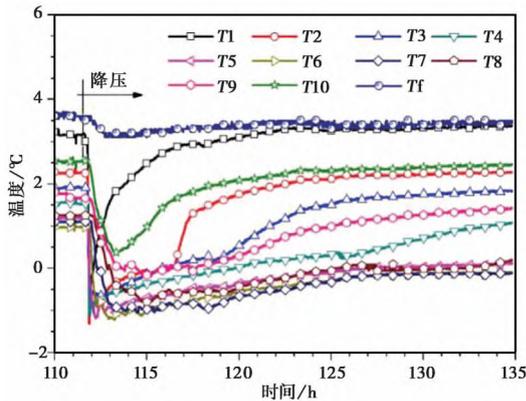


图8 降压分解温度演化

Fig. 8 Temperature evolutions during depressurization

降压分解累积产气量和产气速率演化曲线如图9所示。可以看出,累积产气量(76 SL)略低于合成水合物阶段的累计注气量(76.7 SL)。此外,降压分解产气过程的阶段性非常明显:阶段I持续时间大体为0~113 h,仅占总产气时间的5.6%,产气速率稳定维持在 $500 \text{ SmL} \cdot \text{min}^{-1}$ 上下;阶段II持续时间大体为113~121 h,占总产气时间的44.4%,产气速率维持在 $150 \text{ SmL} \cdot \text{min}^{-1}$ 上下;阶段III持续时间大体为121 h至结束,占总产气时间的50.0%,产气速率逐渐降低至0。

综合图7、图8和图9可以看出,快速产气阶段I中,样品孔隙压力 $P1 \sim P5$ 均有所降低,温度 $T1 \sim T10$ 均快速降低,样品水合物均处于分解状态,故而产气速率可以达到较高的水平;时间发展到113 h时(图10),除温度 $T1$ 和 $T10$ 处于回升状态之外,温度 $T2 \sim T9$ 均处于降低状态,即样品中间水合物相平衡区域内水合物分解吸热引起温度降低,而两侧水合物非稳定区域内因为没有水合物分解,温度逐渐回升;时间发展到119 h时(图10),温度 $T1 \sim T6$ 和

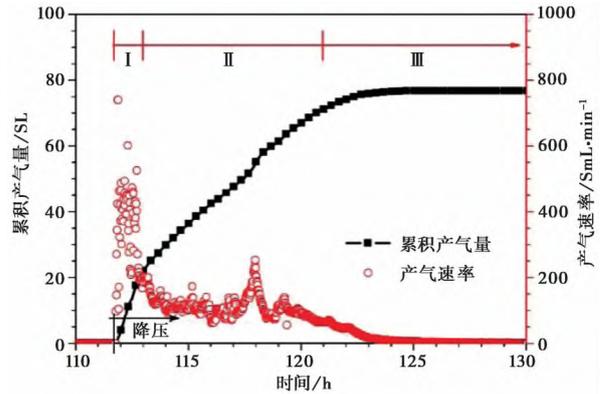


图9 降压分解累积产气量和产气速率演化
Fig. 9 Evolutions of produced gas volume and velocity during depressurization

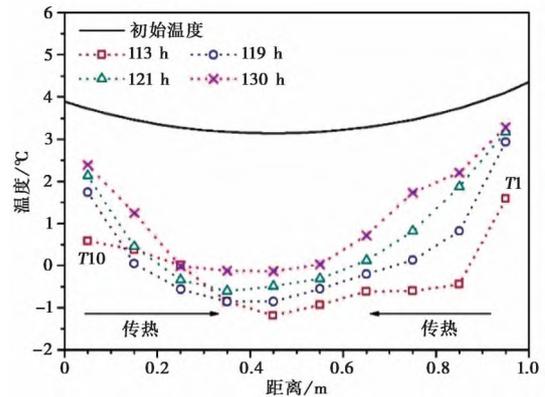


图10 降压分解传热演化

Fig. 10 Heat transfer evolution during depressurization

$T10$ 均开始回升,而温度 $T7$ 基本保持不变,温度 $T8$ 和 $T9$ 继续降低,这反映了在样品 $0.15 \sim 0.35 \text{ m}$ 范围内的水合物仍然处于分解状态,而此范围之外的水合物分解已经基本完成;时间发展到121 h时(图10),稳定产气阶段II基本结束,温度 $T1 \sim T10$ 均有所回升,说明样品内所有水合物分解已经基本结束;阶段III主要是少量剩余水合物分解产气以及滞留低温气体升温膨胀产气,产气速率随着温度回升逐渐变为0。

降压效应在快速产气阶段作用明显,孔隙压力快速演化导致水合物开始分解的样品区域迅速扩大,利用自身热量可在短时间内获得可观的产气量;然而水合物后续的分解完全由传热控制,水合物分解吸热降低样品温度以扩大环境传热速率,待外界传热速率和水合物分解吸热速率相当时,样品温度可保持相对的稳定(图8),待水合物分解结束之后,样品在外界传热作用下温度逐渐回升;稳定产气阶段持续时间较长,其阶段产气量是最终产气量的主

体部分,占比达到 65%,提高该阶段的稳定产气速率水平是改善中长期降压产气效率的关键。类似地,降压开采中长期产气效率达到商业化水平需要从根本上解决储层环境换热效率低下的问题,将热传导为主的环境换热方式升级为热对流为主的环境换热方式是水合物商业化开采技术发展面临的重要课题之一。

4 对现场实际生产的启示

4.1 改善近井地层的温度环境

图 8 中温度的快速降低可归结为水合物分解吸热效应和气流焦耳-汤姆逊效应的综合作用 (Zhao et al.,2020; Li et al.,2021a)。图 8 和图 9 对比表明,储层温度的快速降低发生在快速产气阶段,而生产后期尽管水合物分解变缓,但温度的回升依然非常缓慢,局部位置将长期维持低温状态。

这表明,对于实际水合物开采而言,一旦在生产初期由于快速降压导致井筒附近温度降至冰点或水合物相平衡温度以下,则该区域的温度回升将非常缓慢。尽管近井地层的水合物已经分解完成,但该区域的焦耳-汤姆逊效应将持续发挥作用,远地层传热效率不足以弥补被带走的热量,近井地层结冰或二次水合物生成风险增大。为缓解上述现象,建议在降压方案制定过程中重点考虑采用分阶段缓慢降压模式,缓解开采初期的温度陡降,将有助于维持开采中后期的稳定产气。

实际上,笔者团队曾提出“小步慢跑”的降压策略 (Li et al.,2021c),即在海域水合物试采初期控制井底生产压差缓慢增大,维持较低的产能一段时间后逐步放开生产压差。其主要目的就是为了解缓水合物试采初期的地层出砂矛盾 (Li et al.,2019) 和地层稳定性矛盾 (万义钊等,2018),使井周地层在开采初期逐渐达到桥架稳定状态,在开采中后期缓慢增大生产压差以提高产能。本文的研究结果进一步证实了“小步慢跑”的必要性。

4.2 改善近井地层的传热模式

除调控降压模式之外,国内外学者也提出了诸多改善井底温度条件的辅助降压开采方法,如原位补热降压充填开采方法 (李守定等,2020)、射频波辐射加热 (Rahim et al.,2015)、微波加热 (Li et al.,2008; Wang et al.,2020) 等方法,有助于改善近井地

层的温度环境,对于开采后期防止结冰或二次水合物生成有一定的辅助作用,从而利于产能的提高。

原位补热降压开采常用的补热方式是在井壁或者井附近储层补充热量。如果由开采井向储层内部注入热流体,这与降压开采流体产出方向相反,传热与产气效率是矛盾的;如果采用电加热或者填充氧化钙等发热材料的方式,那么储层内传质与传热的方向是相反的,同样面临传热与产气效率矛盾的问题。为了改变井周储层的温度环境,一方面是控制水合物的分解速率,另外一个很重要的方面是将储层内传质与传热的方向一致化,将远处的高温孔隙水抽向开采井以补充水合物分解所需的热量。然而远处储层内孔隙水流经水合物分解区域后其热量已被明显消耗,对于改善井周储层的温度环境效果甚微。因此,可以考虑将浅层高温海水引入井周储层进行热量补给,高温海水引入位置选在近井地层易结冰和易生成二次水合物区域的边缘,这些热海水进入储层后与降压开采流体产出方向一致,并且浅层海水所携带的盐离子可能从一定程度上降低水合物的相平衡条件,均有益于水合物开采。浅层高温海水被管道输运至水合物储层后,其热量损失在可接受的范围内,海水温度仍可明显高于水合物储层原位孔隙水的温度 (Feng et al.,2016; Wang et al.,2018)。需要注意的是,浅层海水大规模注入水合物储层将使生产井水气比大幅升高,导致开采举升分离系统的工作压力增大。因此,浅层温海水注入工艺不仅需要考虑到防止结冰和二次水合物生成的有益影响,还需要兼顾生产工艺承载力的限制。

此外,还可考虑对浅层热海水引入位置与井壁之间储层进行必要的增渗改造,进而降低热海水补给导致气水比下降对产气的影响。对于我国南海泥质粉砂水合物储层,采用砾石替换井周低渗储层也是一种可取的方式 (Wu et al.,2021),井周储层渗透性得到改善,孔隙流体运移速率的提升也有益于改善井周储层的换热效率。

5 结论

基于本文实验,获得以下结论:

(1) 水合物合成后样品温度分布呈开口向上的抛物线形状,水合物分布具有样品中部多而两侧无的非均匀性特征。

(2) 降压后样品孔隙压力和温度降低均未表现出明显的顺序性,但孔隙压力完全消散体现出由近

及远的特征,且温度回升具有由两侧向中间发展的特点。

(3) 降压分解产气速率演化过程与传热演化过程具有良好的对应性,稳态产气阶段由传热效应控制,其产气量占总产气量的 65%,改善传热效率是促进产气效率达到商业水准的基础。

(4) 通过控制降压节奏来控制水合物分解速率,补给热量与储层改造相结合能够改善井周储层传热效率,是两种防止井周储层内结冰或二次水合物生成可供考虑的经济性建议。

参 考 文 献

- Feng J C, Wang Y, Li X S. 2016. Hydrate dissociation induced by depressurization in conjunction with warm brine stimulation in cubic hydrate simulator with silica sand [J]. *Applied Energy*, 174: 181–191.
- He J X, Zhong C M, Yao Y J, et al. 2020. The exploration and production test of gas hydrate and its research progress and exploitation prospect in the northern South China Sea [J]. *Marine Geology Frontiers*, 36 (12): 1–14.
- Hong H, Pooladi-Darvish M, Bishnoi P R. 2003. Analytical modelling of gas production from hydrates in porous media [J]. *Journal of Canadian Petroleum Technology*, 42(11): 45–56.
- Konno Y, Masuda Y, Akamine K, et al. 2016. Sustainable gas production from methane hydrate reservoirs by the cyclic depressurization method [J]. *Energy Conversion and Management*, 108: 439–445.
- Lee J, Park S, Sung W. 2010. An experimental study on the productivity of dissociated gas from gas hydrate by depressurization scheme. *Energy Conversion and Management*, 51(12): 2510–2515.
- Li D L, Liang D Q, Fan S S, et al. 2008. In situ hydrate dissociation using microwave heating: Preliminary study [J]. *Energy Conversion and Management*, 49(8): 2207–2213.
- Li J, Ye J, Qin X, et al. 2018. The first offshore natural gas hydrate production test in South China Sea [J]. *China Geology*, 1(1): 5–16.
- Li S D, Li X, Wang S J, et al. 2020. A novel method for natural gas hydrate production: Depressurization and backfilling with in-situ supplemental heat [J]. *Journal of Engineering Geology*, 28(2): 282–293.
- Li S D, Sun Y M, Chen W C, et al. 2019. Analyses of gas production methods and offshore production tests of natural gas hydrates [J]. *Journal of Engineering Geology*, 27(1): 55–68.
- Li Y L, He C Q, Wu N Y, et al. 2021a. Laboratory study on hydrate production using a slow, multistage depressurization strategy [J]. *Geofluids*, (3): 1–13.
- Li Y L, Liu L, Jin Y, et al. 2021b. Characterization and development of marine natural gas hydrate reservoirs in marine clayey-silt reservoirs: A review and discussion [J]. *Advances in Geo-Energy Research*, 5: 75–86.
- Li Y L, Wu N Y, He C Q, et al. 2021c. Nucleation probability and memory effect of methane-propane mixed gas hydrate [J]. *Fuel*, 291: 120103.
- Li Y L, Ning F, Wu N, et al. 2020. Protocol for sand control screen design of production wells for clayey silt hydrate reservoirs: A case study [J]. *Energy Science and Engineering*, 8(5): 1438–1449.
- Li Y L, Wu N Y, Ning F, et al. 2019. A sand-production control system for gas production from clayey silt hydrate reservoirs [J]. *China Geology*, 2: 1–13.
- Liu C L, Sun Y B. 2021. Characteristics of marine gas hydrate reservoir and its resource evaluation methods [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 41(5): 44–57.
- Liu J, Liu L H, Wu N Y, et al. 2021. Evolution of gas hydrate stability zone in the deep water of Dongsha sea area since the Last Glaciation Maximum [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 41(2): 146–155.
- Liu L L, Lu X B, Zhang X H. 2013. An experimental study of seepage front due to methane hydrate dissociation by depressurization in sandy sediment [J]. *Natural Gas Industry*, 33(11): 130–136.
- Liu L L, Lu X B, Zhang X H. 2014. Numerical analysis on evolution of natural gas hydrate decomposition region in hydrate-bearing sediment [J]. *Acta Petrolei Sinica*, 35(5): 941–951.
- Liu L L, Lu X B, Zhang X H. 2015. On the hydrate dissociation front evolution in simulation experiment of depressurization mining [J]. *Journal of Experimental Mechanics*, 30(4): 469–476.
- Liu L L, Lu X B, Zhang X H. 2015. A theoretical model for predicting the spatial distribution of gas hydrate dissociation under the combination of depressurization and heating without the discontinuous interface assumption [J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 133: 589–601.
- Mao P, Wu N, Sun J, et al. 2021. Numerical simulations of depressurization-induced gas production from hydrate reservoirs at site GMGS3-W19 with different free gas saturations in the northern South China Sea [J]. *Energy Science and Engineering*, 9: 1416–1439.
- Merey S, Sinayuc C. 2017. Numerical simulations for short-term depressurization production test of two gas hydrate sections in the Black Sea [J]. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 44: 77–95.
- Numasawa M, Yamamoto K, Yasuda M, et al. 2008. Objectives and operation overview of the 2007 JOGMEC/NRCAN/AURORA Mallik 2L-38 gas hydrate production test [C] // International Conference on Gas Hydrates. Vancouver, British Columbia, Canada [s.n.].
- Peng Y Y, Su Z, Liu L H, et al. 2020. Numerical study on the movement of the decomposition front of natural gas hydrate under depressurization [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 40 (6): 198–207.
- Rahim I, Nomura S, Mukasa S, et al. 2015. Decomposition of methane hydrate for hydrogen production using microwave and radio frequency in-liquid plasma methods [J]. *Applied Thermal Engineering*, 90: 120–126.
- Schoderbek D, Farrell H, Hester K, et al. 2013. ConocoPhillips gas

- hydrate production test final technical report [R]. Houston, TX (United States): Conoco Phillips Co.
- Sloan E D. 2003. Fundamental principles and applications of natural gas hydrates [J]. *Nature*, 426: 353–363.
- Sun J Y, Ye Y G, Liu C L, et al. 2010. Experimental research of gas hydrate dissociation in sediment by depressurization method [J]. *Geoscience*, 24(3): 614–621.
- Sun X, Nanchary N, Mohanty K K. 2005. 1-D modeling of hydrate depressurization in porous media [J]. *Transport in Porous Media*, 58: 315–338.
- Terzariol M, Goldshtein G, Santamarina J C. 2017. Maximum recoverable gas from hydrate bearing sediments by depressurization [J]. *Energy*, 141: 1622–1628.
- Wan Y Z, Wu N Y, Hu G W, et al. 2018. Reservoir stability in the process of natural gas hydrate production by depressurization in the Shenhu area of the South China Sea [J]. *Natural Gas Industry*, 38(4): 117–128.
- Wang B, Dong H, Fan Z, et al. 2020. Numerical analysis of microwave stimulation for enhancing energy recovery from depressurized methane hydrate sediments [J]. *Applied Energy*, 262: 114559.
- Wang B, Dong H, Liu Y, et al. 2018. Evaluation of thermal stimulation on gas production from depressurized methane hydrate deposits [J]. *Applied Energy*, 227: 710–718.
- Wu N Y, Huang L, Hu G W, et al. 2017. Geological controlling factors and scientific challenge for offshore gas hydrate exploitation [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 37(5): 1–11.
- Wu N Y, Li Y L, Liu L L, et al. 2021. Controlling factors and research prospect on creeping behaviors of marine natural gas hydrate-bearing-strata [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 41(5): 3–11.
- Wu N Y, Li Y L, Wan Y Z, et al. 2020. Prospect of marine natural gas hydrate stimulation theory and technology system [J]. *Natural Gas Industry*, 40(8): 100–115.
- Wu N Y, Li Y L, Chen Q, et al. 2021. Sand production management during marine natural gas hydrate exploitation: review and an innovative solution [J]. *Energy & Fuels*, 03822.
- Yamamoto K, Terao Y, Fujii T, et al. 2014. Operational overview of the first offshore production test of methane hydrates in the Eastern nankai Trough [C]//Offshore Technology Conference. Houston, Texas, USA [s.n.].
- Yang X, Sun C Y, Su K H, et al. 2012. A three-dimensional study on the formation and dissociation of methane hydrate in porous sediment by depressurization [J]. *Energy Conversion and Management*, 56: 1–7.
- Ye J, Qin X, Xie W, et al. 2020. The second natural gas hydrate production test in the South China Sea [J]. *China Geology*, 3: 197–209.
- Ye Y G, Liu C L. 2011. Natural gas hydrates experimental techniques and their applications [M]. Beijing: Geology Press.
- Zhang Y, Wan Y, Liu L, et al. 2021. Changes in reaction surface during the methane hydrate dissociation and its implications for hydrate production [J]. *Energy*, 230: 120848.
- Zhao J, Liu Y, Guo X, et al. 2020. Gas production behavior from hydrate-bearing fine natural sediments through optimized step-wise depressurization [J]. *Applied Energy*, 260: 114275.
- 何家雄, 钟灿鸣, 姚永坚, 等. 2020. 南海北部天然气水合物勘查试采及研究进展与勘探前景 [J]. *海洋地质前沿*, 36(12): 1–14.
- 李守定, 李晓, 王思敬, 等. 2020. 天然气水合物原位补热降压充填开采方法 [J]. *工程地质学报*, 28(2): 282–293.
- 李守定, 孙一鸣, 陈卫昌, 等. 2019. 天然气水合物开采方法及海域试采分析 [J]. *工程地质学报*, 27(1): 55–68.
- 刘昌岭, 孙运宝. 2021. 海洋天然气水合物储层特性及其资源量评价方法 [J]. *海洋地质与第四纪地质*, 41(5): 44–57.
- 刘杰, 刘丽华, 吴能友, 等. 2021. 南海东沙海域深水区长冰期以来天然气水合物稳定带演化 [J]. *海洋地质与第四纪地质*, 41(2): 146–155.
- 刘乐乐, 鲁晓兵, 张旭辉. 2013. 砂土沉积物中甲烷水合物降压分解渗流界面实验 [J]. *天然气工业*, 33(11): 130–136.
- 刘乐乐, 鲁晓兵, 张旭辉. 2014. 天然气水合物分解区演化数值分析 [J]. *石油学报*, 35(5): 941–951.
- 刘乐乐, 鲁晓兵, 张旭辉. 2015. 降压开采模拟试验的水合物分解界面演化过程 [J]. *实验力学*, 30(4): 469–476.
- 彭盈钰, 苏正, 刘丽华, 等. 2020. 天然气水合物降压开采分解前缘移动数值研究 [J]. *海洋地质与第四纪地质*, 40(6): 198–207.
- 孙建业, 业渝光, 刘昌岭, 等. 2010. 沉积物中天然气水合物减压分解实验 [J]. *现代地质*, 24(3): 614–621.
- 万义钊, 吴能友, 胡高伟, 等. 2018. 南海神狐海域天然气水合物降压开采过程中储层的稳定性 [J]. *天然气工业*, 38(4): 117–128.
- 吴能友, 黄丽, 胡高伟, 等. 2017. 海域天然气水合物开采的地质控制因素和科学挑战 [J]. *海洋地质与第四纪地质*, 37(5): 1–11.
- 吴能友, 李彦龙, 刘乐乐, 等. 2021. 海洋天然气水合物储层蠕变行为的主控因素与研究展望 [J]. *海洋地质与第四纪地质*, 41(5): 3–11.
- 吴能友, 李彦龙, 万义钊, 等. 2020. 海域天然气水合物开采增产理论与技术体系展望 [J]. *天然气工业*, 40(8): 100–115.
- 业渝光, 刘昌岭. 2011. 天然气水合物实验技术及应用 [M]. 北京: 地质出版社.