

文章编号: 0253-2697(2015)05-0612-08 DOI:10.7623/syxb201505011

天然气水合物二次生成及渗透率变化对降压开采的影响

阮徐可¹ 李小森¹ 杨明军² 于 锋³

(1. 中国科学院广州能源研究所天然气水合物开采及综合利用实验室 中国科学院广州天然气水合物研究中心 广东广州 510640;
2. 大连理工大学海洋能源利用与节能教育部重点实验室 辽宁大连 116024; 3. 吉林大学汽车工程学院热能工程系 吉林长春 130025)

摘要:在考虑天然气水合物二次生成及渗透率变化的基础上,建立了实验室尺度下的天然气水合物降压开采数学模型。利用该数学模型,对天然气水合物降压开采过程中的水合物二次生成进行了模拟,并分析评价了水合物二次生成及渗透率变化对水合物分解产气的影响。模拟结果表明:水合物二次生成主要局限于降压产气出口附近,二次水合物现象会引起局部水合物饱和度及温度、压力等发生明显变化;同时,水合物二次生成会导致产气速率大幅降低、产气持续时间延长和系统压力急剧增加,但累积产气量不受其影响。研究发现,不同于纯降压产气过程,在水合物二次生成的情形下,产气受出口压力的影响较大,而初始温度对产气的影响较小。

关键词:天然气水合物;降压;水合物二次生成;渗透率;数值模拟

中图分类号: TE311 **文献标识码:** A

Influences of gas hydrate reformation and permeability changes on depressurization recovery

Ruan Xuke¹ Li Xiaosen¹ Yang Mingjun² Yu Feng³

(1. *Laboratory for Exploitation and Comprehensive Utilization of Gas Hydrates, Guangzhou Institute of Energy Conversion, Chinese Academy of Sciences; Guangzhou Center for Gas Hydrate Research, Chinese Academy of Sciences, Guangdong Guangzhou 510640;* 2. *Key Laboratory of Ocean Energy Utilization and Energy Conservation of Ministry of Education, Dalian University of Technology, Liaoning Dalian 116024, China;* 3. *Department of Thermal Engineering, College of Automotive Engineering, Jilin University, Jilin Changchun 130025, China*)

Abstract: In the consideration of natural gas hydrate reformation and its permeability changes, a mathematic model was built for the laboratory-scale depressurization recovery of natural gas hydrate, so as to simulate gas hydrate reformation in the depressurization recovery process of natural gas hydrate and analytically evaluate the influences of gas hydrate reformation and its permeability changes on hydrate decomposition for gas recovery. The simulation results indicate that hydrate reformation mainly occurred in the vicinity of depressurization recovery outlet, leading to significant changes in local hydrate saturation, pressure and temperature. Meanwhile, hydrate reformation will result in a great reduction of gas recovery rate, the prolongation of gas recovery duration and abrupt increase of system pressure, but the cumulative gas output will not be affected. Research results indicate that it is different from pure depressurization recovery that under the case of hydrate reformation, gas recovery rate is greatly affected by outlet pressure, while initial temperature has less impact on gas recovery.

Key words: natural gas hydrate; depressurization; hydrate reformation; permeability; numerical simulation

引用:阮徐可,李小森,杨明军,于锋.天然气水合物二次生成及渗透率变化对水合物降压开采的影响[J].石油学报,2015,36(5):612-619.

Cite: Ruan Xuke, Li Xiaosen, Yang Mingjun, Yu Feng. Influences of gas hydrate reformation and permeability changes on depressurization recovery[J]. Acta Petrolei Sinica, 2015, 36(5): 612-619.

天然气水合物是一种普遍存在于自然界中的非化学计量结晶笼型化合物,主要分布于冻土地层和海洋大陆架海底层^[1]。因其分解可以释放天然气,而且

资源量巨大,被认为是 21 世纪一种潜在的清洁能源,目前已引起广泛关注^[2]。近年来,中国分别在南海神狐海域、青藏高原祁连山等地发现了天然气水合物^[3],

基金项目:国家自然科学基金项目(No. 51306188, No. 51309115)、国家杰出青年科学基金项目(No. 51225603)、中国地质调查局国家海洋地质专项(GHZ2012006003)和中国科学院广州能源所所长创新基金项目(y307r11001)资助。

第一作者:阮徐可,男,1983 年 10 月生,2006 年获佳木斯大学学士学位,2012 年获大连理工大学博士学位,现为中国科学院广州能源研究所助理研究员,主要从事天然气水合物开采数值模拟研究。Email: ruanxk@ms.giec.ac.cn

通信作者:李小森,男,1967 年 6 月生,1989 年获内蒙古工业大学学士学位,2000 年获清华大学博士学位,现为中国科学院广州能源研究所研究员、天然气水合物中心首席科学家,主要从事天然气水合物开采技术及综合利用、环境影响等研究工作。Email: lixs@ms.giec.ac.cn

这无疑将会推动中国今后在天然气水合物资源的开发投入和开采研究,因此开展天然气水合物开采的相关研究具有重要的现实意义。

目前天然气水合物的主要开采方法包括热采法、降压法、注化学试剂法、CO₂ 置换法等^[2,4-9]。这些天然气水合物开采方法的主要思路是:通过人为方式打破天然气水合物稳定存在的温度-压力条件(即相平衡条件),造成固体水合物分解产生天然气和水,进而将气、水产出。热采法是通过将热水、蒸汽或其他外部热源输入到天然气水合物地层,使储层温度上升,迫使水合物失稳而发生分解产气;注化学试剂法是通过如甲醇、乙醇、盐水等试剂来改变水合物的相平衡条件,降低水合物稳定存在的温度、压力,促进水合物分解产气;CO₂ 置换法是通过向天然气水合物中引入另一种客体分子,降低水合物相中甲烷气体分子的分压而将甲烷分子从水合物相中置换出来,达到开采天然气的目的^[9];降压法是通过泵吸作用降低水合物储藏内的压力,就可使其分解产生天然气和水。相对而言,由于降压法不需要额外的能量注入,在水合物藏的工业开采中无疑被视为一种简单而经济的开采方法^[10]。

近期不少水合物开采的实验和数值模拟研究都发现^[10-13],在水合物分解产气过程中会出现水合物二次生成的现象。这是由于大量水合物分解吸热会引起局部温度的下降,同时受到焦耳-汤姆逊效应影响,气、水在低温高压区附近就可能会再次形成水合物,即水合物二次生成现象。水合物的二次生成会堵塞流体流通渠道,影响流体在多孔介质中的流动,减少原位储层的渗透率^[14]。但这对天然气水合物开采产气的影响到底有多大,目前还没有相关具体的研究对其进行讨论。笔者在建立天然气水合物降压开采过程中的水合物二次生成模拟,并对水合物二次生成及渗透率变化对开采产气的影响进行研究评价。

1 数学模型

1.1 假设条件

笔者设计了在实验室尺度下的天然气水合物降压开采模型(图1),其考虑了甲烷、水和水合物3个组分,以及气相、液相、水合物相三相。开采模型在遵守质量守恒、能量守恒的基础上,考虑到降压法开采天然气水合物的诸多不确定因素,同时在模型中引入基本假设^[4,5]:①只考虑sI型水合物,不考虑盐分的影响;②水合物降压开采系统中只有气-液两相流动,且气相只有甲烷,液相只有水,流体的流动符合达西定律,而作为固体形态的天然气水合物不参与流动;③水合物

分解反应过程中没有冰的生成,只考虑水合物的二次生成;④在传热传质过程中,不考虑分子扩散及动力学扩散作用;⑤忽略气体在水中的溶解,忽略重力作用。

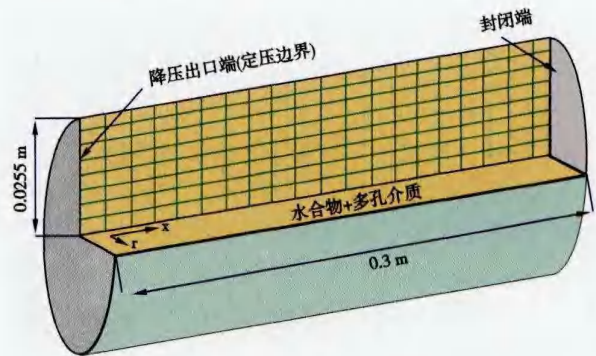


图1 天然气水合物开采模型及网格划分

Fig. 1 Schematic showing the production of natural gas hydrate and the computational grid

1.2 控制方程

1.2.1 质量守恒方程

在实验室尺度下的圆柱反应釜封闭体系中(图1),系统内各组分的质量守恒方程形式为:单位时间体积内的质量流入与单位时间体积内的质量流出相减等于单位时间体积内的质量变化量。由此可得含天然气、水和天然气水合物的多孔介质内三相对应柱坐标系下的质量守恒方程为:

气相控制方程:

$$\nabla \cdot \left(\frac{\rho_g K K_{rg}}{\mu_g} \nabla p_g \right) + \dot{q}_g + \dot{m}_g = \frac{\partial}{\partial t} (\phi \rho_g S_g) \quad (1)$$

水相控制方程:

$$\nabla \cdot \left(\frac{\rho_w K K_{rw}}{\mu_w} \nabla p_w \right) + \dot{q}_w + \dot{m}_w = \frac{\partial}{\partial t} (\phi \rho_w S_w) \quad (2)$$

水合物相控制方程:

$$-\dot{m}_h = \frac{\partial}{\partial t} (\phi \rho_h S_h) \quad (3)$$

式中: μ_l 为不同相 l 的黏度,Pa·s;下标 l 为不同相,气相为g、水相为w、水合物相为h; ρ_l 为各相 l 的密度,kg/m³; ϕ 为孔隙度; p_l 为不同相的压力,Pa; S_l 为不同相的饱和度; K 为绝对渗透率,mD; K_{ri} 为不同流体的相对渗透率; t 为时间,s; \dot{m}_l 为水合物分解而发生变化的不同相的质量,kg/(s·m³); \dot{q}_l 为不同相注入/产出的流量,kg/(s·m³)。

1.2.2 能量守恒方程

能量守恒方程中考虑了导热、对流以及水合物分解反应热和边界传热等能量交换形式,而气、液、固各相之间的热阻则忽略不考虑。同理,根据能量守恒原则可得能量守恒方程,其各项能量变化为:

$$\nabla \cdot (k_c \nabla T) - \nabla \cdot (\rho_g v_g H_g + \rho_w v_w H_w) + \dot{q}_g H_g + \dot{q}_w H_w + \dot{q}_h + \dot{q}_{in} = \frac{\partial}{\partial t} [(1 - \phi) \rho_i U_i + \phi (S_h \rho_h U_h + S_g \rho_g U_g + S_w \rho_w U_w)] \quad (4)$$

式中: $\nabla \cdot (k_c \nabla T)$ 为导热项, $\nabla \cdot (\rho_g v_g H_g + \rho_w v_w H_w)$ 为对流传热项; T 为温度, K; v_i 为不同相的渗流速度, m/s; H_i 为不同相的热焓值, J/kg; \dot{q}_h 为水合物分解反应热, J/(m³·s); \dot{q}_{in} 为外部热源热量传递项, J/(m³·s); U_i 为不同相的内能, J/kg; k_c 为多孔介质系统的复合导热系数, W/(m·K)。其计算得到:

$$k_c = (1 - \phi) k_r + \phi (k_h S_h + k_w S_w + k_g S_g) \quad (5)$$

式中: k_r 为多孔介质的导热系数, W/(m·K); k_l 为不同相的导热系数, W/(m·K)。

式(4)根据 Selim 对水合物分解反应热的定义^[15] 可得:

$$\dot{q}_h = \dot{m}_h \Delta H_D \quad (6)$$

$$\dot{m}_h \Delta H_D = \dot{m}_g H_g + \dot{m}_w H_w + \dot{m}_h H_h \quad (7)$$

ΔH_D 为水合物分解焓变, 四相点以上的水合物分解潜热可计算为^[16]:

$$\Delta H_D = 446.12 \times 10^3 - 132.638T \quad (8)$$

对于气、水以及天然气水合物、多孔介质等各项焓值的计算为:

$$dH_l = \frac{\partial H_l}{\partial T} dT + \frac{\partial H_l}{\partial p_l} dp_l = C_{pl} dT + \sigma_l dp_l \quad (l = h, g, w) \quad (9)$$

$$dH_r = \frac{\partial H_r}{\partial T} dT = C_{pr} dT \quad (10)$$

式中: C_{pl} 为不同相的定压比热容, J/(kg·K); C_{pr} 为多孔介质的比热容, J/(kg·K)。

对于气相节流系数^[17] 可由:

$$\sigma_g = \left(\frac{\partial H_g}{\partial p_g} \right)_T \approx -1.5 \times 10^{-4} \quad (11)$$

在忽略重力影响的情况下, 气、水两相流动遵循达西渗流方程:

$$v_l = \frac{KK_{rl}}{\mu_l} \nabla p_l \quad (l = g, w) \quad (12)$$

三相饱和度满足:

$$S_g + S_w + S_h = 1 \quad (13)$$

1.3 天然气水合物生成与分解动力学方程

1.3.1 水合物分解动力学方程

根据天然气水合物的分解产气特征, 本文采用 Kim-Bishnoi 水合物动力学模型^[18] 来计算分解产气量, 然后再根据水合数确定产水量等信息。模型计算中的天然气水合物分解动力学方程为:

$$\dot{m}_g = M_g k_d \phi S_h A_s (f_c - f) \quad (14)$$

式中: k_d 为水合物分解速率常数, mol/(m²Pa·s); A_s 为反应比表面积, 其计算一般通过经验公式得到^[19], 考虑了多孔介质结构等对水合物分解比表面积的影响, m²/m³; f 和 f_c 分别为局部气体逸度和反应平衡逸度, Pa, 而在实际操作计算中通常采用局部气体压力 p_g 和反应平衡压力 p_c 代替; M_g 为气体摩尔质量, kg/mol。平衡压力可计算为^[1]:

$$p_c = 1.15 \exp \left(49.3185 - \frac{9459}{T_c} \right) \quad (15)$$

式中: T_c 为平衡温度, K。

1.3.2 水合物生成动力学方程

对于天然气水合物降压开采过程中的水合物二次生成模拟, 目前尚未有可供参考的实验数据或模型可以直接用来进行研究分析, 本文研究中对开采过程中的水合物二次生成动力学采用的数学模型^[20] 为:

$$\dot{m}_g = M_g k_f \phi S_g S_w A_{st} (f_c - f_g) \quad (16)$$

式中: k_f 为水合物生成速率常数, 与水合物形成过程中扩散和吸附速率常数有关^[20], mol/(m²Pa·s); A_{st} 为水合物形成过程水合物颗粒比表面积, 此处取值为 0.01277 m²/m³^[21]。

根据水合物反应的平衡关系, 可以得到:

$$-\dot{m}_h = \dot{m}_g \frac{N_h M_w + M_g}{M_g} \quad (17)$$

$$\dot{m}_w = \dot{m}_g \frac{N_h M_w}{M_g} \quad (18)$$

式中: N_h 为水合物系数, 一般可取值为 6; M_w 为水的摩尔质量, kg/mol。

1.4 渗透率方程

绝对渗透率采用 Masuda 等^[22] 给出的关系式, 此关系式将渗透率与水合物饱和度两者之间建立起了彼此联系。

$$K = K_0 (1 - S_h)^N \quad (19)$$

式中: N 为渗透率衰减指数, 其一般是由孔隙结构决定。

对于气、水的相对渗透率采用 Corey 模型^[23]:

$$K_{rw} = \left[\frac{S_w - S_{wr}}{S_w + S_g - S_{gr}} \right]^{n_w} \quad (20)$$

$$K_{rg} = \left[\frac{S_g - S_{gr}}{S_w + S_g - S_{gr}} \right]^{n_g} \quad (21)$$

式中: S_{wr} 为束缚水饱和度; S_{gr} 为残余气饱和度; n_w 为水相相对渗透率指数, $n_w = 4$; n_g 为气相相对渗透率指数, $n_g = 2$ 。

而对于可能伴有水合物二次生成现象的天然气水合物开采过程, 渗透率的变化将比单独水合物分解过程的变化来得复杂, 笔者对此变化过程进行模拟^[24]:

$$K = K_0(1 - S_{h-form})^N(1 - S_{h-norm})^{N_{form}} \quad (22)$$

$$S_{h-norm} = \frac{S_h - S_{h-form}}{1 - S_{h-form}} \quad (23)$$

式中: K_0 为多孔介质的绝对渗透率, mD; S_{h-form} 为水合物二次生成的饱和度; S_{h-norm} 为无量纲量, 与水合物饱和度和二次生成的水合物饱和度相关; N 和 N_{form} 分别为 2 和 $10^{[24]}$ 。

1.5 边界条件及初始条件

对于实验室尺度开采模型给出的边界条件为 ($0 \leq r \leq R, 0 \leq x \leq L$):

$$T = T_0, p = p_0, S_h = S_{h0}, S_w = S_{w0}, S_g = S_{g0} \quad (24)$$

初始条件为:

$$p = p_0(x = 0), \frac{\partial p}{\partial x} = 0(x = L), \frac{\partial p}{\partial r} = 0(r = 0, R)$$

$$\frac{\partial T}{\partial x} = 0(x = 0, L), \frac{\partial T}{\partial r} = 0(r = 0), T = T_0(r = R) \quad (25)$$

式中: r 为半径, m; R 为直径, m; L 为岩心长度, m; p_0 为初始压力, MPa; T_0 为初始温度, K; S_{h0} 、 S_{w0} 、 S_{g0} 分别为初始水合物饱和度、初始水饱和度以及初始气体饱和度。

2 模型求解与结果验证

数学模型控制方程中包括了各组分的质量守恒方程、能量守恒方程、两相流渗流方程、水合物生成/分解动力学方程以及初始条件和边界条件。这些偏微分方程不能直接进行解析求解, 必须采用数值方法求解^[25]。对此, 笔者将通过有限差分法将偏微分方程式(1)~(4)进行泰勒级数展开^[26], 然后在空间上采用油藏数值模拟中常用的点中心分离离散, 时间上则采用一阶向后差分分离离散, 最终将偏微分方程组离散为代数方程组。这些离散的代数方程组中, 达西系数项、压力项以及饱和度项均采用的是 $n + 1$ 时刻的值, 所以这样一种全隐式数值方法离散偏微分方程组得到的差分方程是非线性的, 这些非线性方程组利用 Newton-Raphson 迭代法可构建关于温度、压力、饱和度的系数矩阵, 并进行耦合迭代求解, 最后同时求得压力、温度以及饱和度等值。具体的离散形式及其求解步骤可参考文献^[19, 27-29]。

为了验证本文数值模拟结果的准确性, 将数值模拟结果与 Masuda 的实验结果^[22]进行了对比。Masuda 等的实验中使用的是长 30 cm、直径为 5.1 cm 的填砂管, 水合物试样就在此中生成。降压分解实验时, 试样一端封闭, 另一端作为降压分解的出口, 并设定恒定的出口压力。试样所在环境温度为恒温。轴对称的模

型模拟区域及网格划分如图 1 所示, 采用均化网格, 降压出口为模型左端模拟设置半径为 0.1 cm 的降压开采井口, 降压压力保持恒定。实验的主要物理参数如表 1 所示。从实验结果与笔者数值模拟结果的对比可以看出(图 2), 模拟值与实验值基本吻合, 其表现特征基本一致, 从而验证了该数学模型的准确性。模拟值与实验数据的最大相对误差为 8.74%, 这些差异主要是由于一些关键参数的缺乏, 如水合物分解比表面积、沉积物内多相流的相对渗透率以及水合物在沉积物中饱和度的真实分布情况等, 都会对模拟计算结果产生一定影响。

表 1 Masuda 等^[22]实验研究的几个水合物分解中的主要物理量值
Table 1 Primary physical variable values in the experimental hydrate dissociation study of Masuda et al.^[22]

参数	取值	参数	取值
试样长度/cm	30	试样直径/cm	5.1
初始试样内压力/MPa	3.75	初始试样内温度/K	275.45
孔隙度	0.182	绝对渗透率/mD	97.98
降压出口压力/MPa	2.84	外界环境温度/K	275.45
初始水合物饱和度	0.443	初始水饱和度	0.206
初始气体饱和度	0.351	渗透率衰减指数	$10^{[4,5]}$

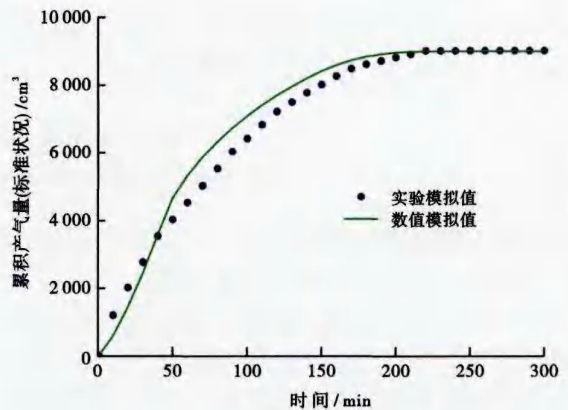


图 2 累积产气量实验数据^[22]与模拟结果的比较

Fig. 2 Comparison of the numerical simulation results and the experiment data^[22] for cumulative gas production

3 分析与讨论

3.1 水合物饱和度及温度、压力变化

图 3 为实验尺度下的模拟开采系统中所处不同位置上的水合物饱和度随时间变化曲线, 图 4 为对应不同位置上的温度、压力随时间的变化曲线, 4 个测量点(1#、2#、3#、4#)分别位于距离降压出口 0.1 cm、1.5 cm、3.0 cm 和 9.0 cm 处。从模拟结果可知(图 3、图 4), 随着水合物降压开采过程的进行, 天然气水合物不断分解, 系统内各点的水合物饱和度从初始的 0.443 逐渐降低至 0 附近; 由于水合物大量分解吸热

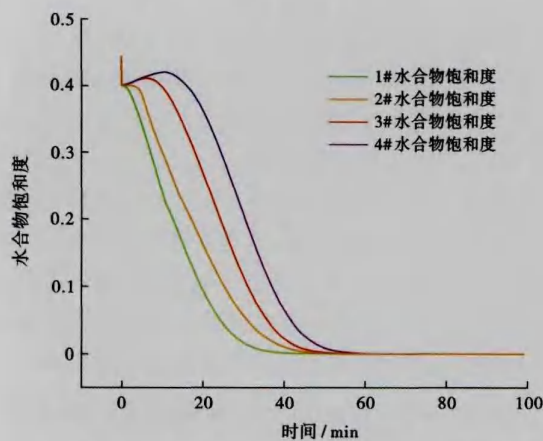


图3 水合物饱和度随时间在不同位置处的变化

Fig. 3 Time evolutions for hydrate saturation at different position

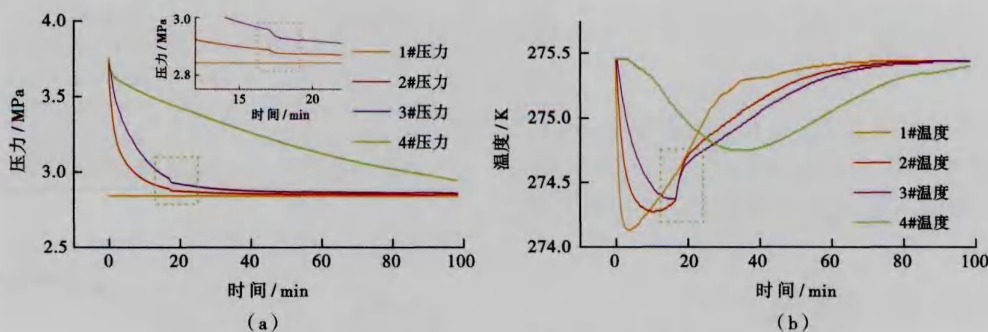


图4 温度、压力随时间在不同位置处的变化

Fig. 4 Time evolutions for temperature and pressure at different position

两处的水合物分解过程中发生了“水合物二次生成”现象,从而引起了对应水合物饱和度的增加。

1#处未出现水合物二次生成现象的原因,是由于虽然降压出口附近会受到焦耳-汤姆逊节流效应的影响和水合物分解吸热引起温度下降,但因为临近降压出口的天然气水合物最一开始分解产气,系统内的潜热和系统环境的传热可以同时首先保证此处温度的快速回升,而1#作为降压开采出口设置点,压力保持2.84 MPa恒定,这使得1#处的温度和压力达不到水合物相平衡条件;同时因为1#临近降压出口,水合物分解产生的气体和水流动剧烈,也可以较顺利地快速从降压出口端流出,因此从温度、压力以及气、水流动条件上都避免了水合物二次生成现象的出现。而对于远离开采口的4#处同样未发生水合物二次生成的情况,这是由于远端位置上既没有像降压出口附近的低温集中区,也不存在2#、3#附近那样的气、水等流体密集区,从而大大降低了在开采口远端位置上发生水合物二次生成的概率。由此说明发生水合物二次生成仅局限于降压出口附近这样很小的范围内。

的原因,温度曲线变化会随开采进程呈现一个先下降、之后随着水合物分解完成以及系统环境供热影响下逐渐上升的过程,而系统压力会随着水合物分解产气的采出呈现整体逐渐下降的过程。与此同时,对比4个不同位置上水合物饱和度随时间变化曲线可以看出,不同于1#和4#处的水合物饱和度曲线变化,2#和3#处的水合物饱和度变化曲线在不断下降过程中,有一个较明显的上升段。同时比较图4的温度-压力变化曲线可以发现,对应时间点下(约第18 min)2#和3#两点的压力有一个突降[图4(a)虚线框内]、温度曲线上一个快速爬升[图4(b)虚线框内]。由于水合物生成是一个放热反应过程,同时水和气生成水合物会导致压力的下降,故结合水合物饱和度以及温度、压力等的变化,这个水合物饱和度曲线的上升即表明在这

3.2 累积产气量和产气速率的变化

本文进一步研究了水合物二次生成及其引起的渗透率变化对水合物降压开采产气的影响。图5分别给出了天然气水合物降压开采过程中累积产气量和产气速率随时间变化曲线。二次水合物生成引起的渗透率变化由式(22)、式(23)对其进行描述。从图5(a)中可以看出,最终的累积产气量并不受水合物二次生成及渗透率变化等因素的影响,与未发生水合物二次生成的降压开采产气基本一致,达到5951 cm³(标准状况下)。而根据水合物相平衡条件[式(15)]和水合物生成动力学方程[式(16)~式(18)]可知,发生水合物二次生成的情形下,水合物饱和度从0.400最大增加到0.419。虽然二次生成的水合物量不大,但其影响渗透率变化较大,渗透率从0.592 mD降至0.042 mD。同时从图5(b)可知,相较于纯降压产气情形下,考虑水合物二次生成及渗透率变化的情形时,产气速率会发生较大幅度降低,最高产气率相差3.7倍,产气时间也会被极大拉长,产气持续时间会增加2.8倍。

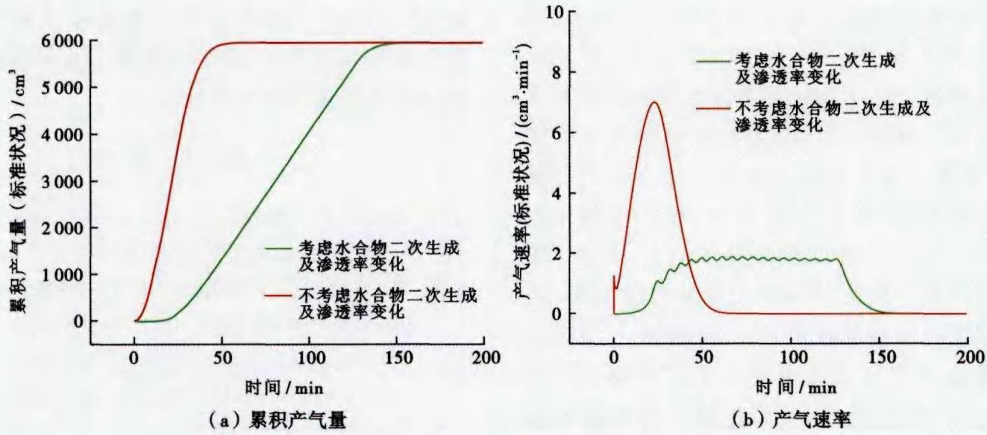


图 5 不同情况下的累积产气量随时间变化比较
 Fig. 5 Comparison of the cumulative gas production for different cases

3.3 系统压力的变化

从以上的讨论中可知,局部水合物的二次生成极大降低了渗透率,阻碍了流体的扩散和流动,从而导致流体聚集而引起系统压力的明显增加,这种巨大的压力变化会对系统产生极大影响。由此进一步研究了两种不同情况下天然气水合物降压开采过程中系统压力随时间的变化关系。从图 6 可以看出,两种情况下的压力变化曲线都从初始压力 3.75 MPa 快速升高到一个最高点,然后开始逐渐下降到出口压力 2.84 MPa 附近。笔者把系统压力在开始时刻的快速上升解释为系统内自由气体和水合物分解产气共同作用的效果。同时从图 6 也可以看出,相比无水合物二次生成现象下的降压产气过程,考虑水合物二次生成及渗透率变化的情况下,产气过程中系统压力发生了明显的增加,变化得更剧烈。在本次研究中,最高压力增加了将近 1.3 倍。在实际储藏开采中,如果遇到水合物二次生成导致渗透率变化引起的储层内压力骤升,则可能会破坏储层稳定条件,进而影响整个开采过程,这将是

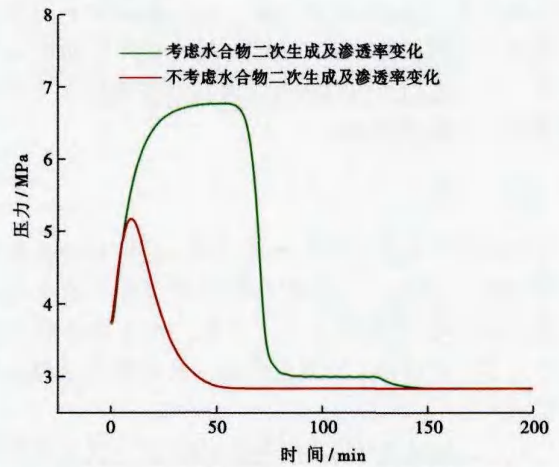
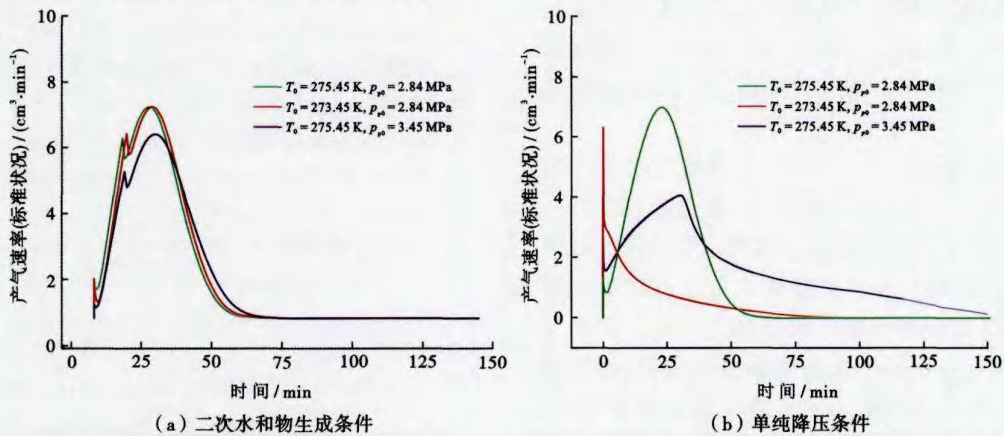


图 6 不同情况下的压力随时间变化关系
 Fig. 6 Variation of pressure with time for different cases

后实际应用中需要引起注意的问题。

3.4 不同初始温度和出口压力

图 7(a)为在考虑水合物二次生成的情况下,不同初始温度和出口压力对整个水合物降压产气过程的影响



注: p_{01} 为出口压力, MPa
 图 7 不同条件初始温度-出口压力下产气速率的比较
 Fig. 7 Effect of different initial temperature and outlet pressure on gas production rate in depressurization

响。设定的不同初始温度是 273.45 K 和 275.45 K, 不同的出口压力为 2.84 MPa 和 3.45 MPa。图 7(b) 是不同初始温度和出口压力条件下单纯水合物降压开采的产气情况比较。从图 7 可知, 不同于纯降压下的情形, 在考虑水合物二次生成的情况下其水合物产气率曲线上升段出现两个“突变”。第一个“突变”是由于在产气的初期, 在降压出口低压的压差作用下, 初始饱和度为 0.351 的这部分自由气体被大量地释放出来, 从而形成产气率瞬间冲高的现象; 产气率曲线上的第二个“突变”则是由于产气过程中发生了水合物二次生成, 导致系统内气体被消耗, 从而导致产出气量的减少, 形成了产气速率曲线上的下降。

此外, 通过比较图 7 不同压力和不同温度对产气变化的影响, 可以发现水合物二次生成情况下的产气受出口压力的影响较大, 而初始温度对产气的影响则较小。这与之前天然气水合物降压开采敏感性分析的相关研究结果不尽相同^[5,19,25]。

4 结论

在建立的实验室尺度天然气水合物降压开采数学模型基础上, 通过对水合物降压开采过程中的水合物二次生成模拟, 分析评价了水合物二次生成及其引起的渗透率变化对开采产气的影响。通过数值模拟研究可知:

(1) 天然气水合物降压开采过程中, 二次生成的水合物主要会集中在降压出口附近有限的范围内, 而且水合物的二次生成会引起水合物饱和度以及温度、压力等产生明显的变化, 局部的水合物饱和度会增加, 压力会发生突降, 温度变化会出现瞬间的快速爬升现象。

(2) 相较于纯降压产气情况, 水合物二次生成及渗透率变化对整个天然气水合物降压开采过程的产气情况影响不大, 但会导致产气速率及产气时间发生变化。产气速率会发生较大幅度降低, 最高产气率可相差 3.7 倍, 产气时间也会被极大拉长, 产气持续时间将增加 2.8 倍。

(3) 不同于纯降压产气情况, 水合物二次生成的情况下产气受出口压力的影响较大, 而初始温度对产气的影响则较小。由于压降是天然气水合物降压分解主要的内驱力, 其出口压力直接影响着水合物分解的快慢和多少, 也进而影响整个温度场的变化。因此有必要对此开展进一步的工作来研究出口压力、初始温度与水合物二次生成现象之间可能存在的联系, 从而寻找控制或避免水合物二次生成的方法和措施。

(4) 在水合物二次生成及渗透率发生变化的情形下, 系统内压力会发生明显的增加, 这种巨大的压力变

化会对系统产生极大影响。在实际开采过程中, 其可能会破坏储层条件, 进而影响整个开采过程, 因此需要在以后实际应用中引起注意。

参 考 文 献

- [1] Sloan Jr. E D, Koh C. Clathrate hydrates of natural gases[M]. 3rd ed. Boca Raton: CRC Press, 2007.
- [2] 宋永臣, 阮徐可, 梁海峰, 等. 天然气水合物热开采技术研究进展[J]. 过程工程学报, 2009, 9(5): 1035-1040.
Song Yongchen, Ruan Xuke, Liang Haifeng, et al. Research advance in thermal recovery of natural gas hydrate[J]. The Chinese Journal of Process Engineering, 2009, 9(5): 1035-1040.
- [3] 于兴河, 王建忠, 梁金强, 等. 南海北部陆坡天然气水合物沉积成藏特征[J]. 石油学报, 2014, 35(2): 253-264.
Yu Xinghe, Wang Jianzhong, Liang Jinqiang, et al. Depositional accumulation characteristics of gas hydrate in the northern continental slope of South China Sea[J]. Acta Petrolei Sinica, 2014, 35(2): 253-264.
- [4] Ruan Xuke, Song Yongchen, Zhao Jiafei, et al. Numerical simulation of methane production from hydrates induced by different depressurizing approaches[J]. Energies, 2012, 5(2): 438-458.
- [5] Ruan Xuke, Song Yongchen, Liang Haifeng, et al. Numerical simulation of the gas production behavior of hydrate dissociation by depressurization in hydrate-bearing porous medium[J]. Energy & Fuels, 2012, 26(3): 1681-1694.
- [6] Wang Yi, Li Xiaosen, Li Gang, et al. Experimental investigation into methane hydrate production during three-dimensional thermal stimulation with five-spot well system[J]. Applied Energy, 2013, 110: 90-97.
- [7] Li Gang, Li Xiaosen, Tang Lianguang, et al. Experimental investigation of production behavior of methane hydrate under ethylene glycol injection in unconsolidated sediment[J]. Energy & Fuels, 2007, 21(6): 3388-3393.
- [8] Hyodo M, Li Yanghui, Yoneda J, et al. A comparative analysis of the mechanical behavior of carbon dioxide and methane hydrate-bearing sediments[J]. American Mineralogist, 2014, 99(1): 178-183.
- [9] 徐纯刚, 李小森, 蔡晶, 等. 二氧化碳置换法模拟开采天然气水合物的研究进展[J]. 化工学报, 2013, 64(7): 2309-2315.
Xu Chungang, Li Xiaosen, Cai Jing, et al. Advance on simulation exploitation of natural gas hydrate by replacement with CO₂[J]. CIESC Journal, 2013, 64(7): 2309-2315.
- [10] Li Gang, Moridis G J, Zhang Keni, et al. Evaluation of gas production potential from marine gas hydrate deposits in Shenhu area of South China Sea[J]. Energy & Fuels, 2010, 24(11): 6018-6033.
- [11] Ahn T, Kang J M, Lee J, et al. Experimental investigation of methane hydrate reformation under dissociation process[J]. International Journal of Offshore and Polar Engineering, 2010, 20(1): 68-71.
- [12] Seol Y, Myshakin E. Experimental and numerical observations of hydrate reformation during depressurization in a core-scale reactor[J]. Energy & Fuels, 2011, 25(3): 1099-1110.

- [13] Ahn T, Park C, Lee J, et al. Experimental characterization of production behaviour accompanying the hydrate reformation in methane-hydrate-bearing sediments[J]. *Journal of Canadian Petroleum Technology*, 2012, 51(1): 14-19.
- [14] Sakamoto Y, Komai T, Kawamura T, et al. Laboratory-scale experiment of methane hydrate dissociation by hot-water injection and numerical analysis for permeability estimation in reservoir: Part 1-Numerical study for estimation of permeability in methane hydrate reservoir[J]. *International Journal of Offshore and Polar Engineering*, 2007, 17(1): 47-56.
- [15] Selim M S, Sloan E D. Hydrate dissociation in sediment[J]. *SPE Reservoir Engineering*, 1990, 5(2): 245-251.
- [16] Selim M S, Sloan E D. Heat and mass transfer during the dissociation of hydrate in porous media[J]. *AIChE Journal*, 1989, 35(6): 1049-1052.
- [17] Tester J W, Modell M. *Thermodynamics and its applications*[M]. 3rd ed. New Jersey: Prentice Hall, 1996.
- [18] Kim H C, Bishnoi P R, Heidemann R A, et al. Kinetics of methane hydrate decomposition[J]. *Chemical Engineering Science*, 1987, 42(7): 1645-1653.
- [19] Sun Xuefei, Mohanty K K. Kinetic simulation of methane hydrate formation and dissociation in porous media[J]. *Chemical Engineering Science*, 2006, 61(11): 3476-3495.
- [20] Malegaonkar M B, Dholabhai P D, Bishnoi P R. Kinetics of carbon dioxide and methane hydrate formation[J]. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 1997, 75(6): 1090-1099.
- [21] Englezos P, Kalogerakis N, Dholabhai P D, et al. Kinetics of formation of methane and ethane gas hydrates[J]. *Chemical Engineering Science*, 1987, 42(11): 2647-2658.
- [22] Masuda Y, Fujinaga Y, Naganawa S. Modeling and experimental studies on dissociation of methane gas hydrates in Berea sandstone cores[C]// *Proceedings of the 3th International Conference on Gas Hydrates(ICGH 1999)*. Salt Lake City, USA, 1999.
- [23] Corey A T. The interrelation between gas and oil relative permeabilities[J]. *Producers Monthly*, 1954, 19(1): 38-41.
- [24] Konno Y, Masuda Y, Takenaka T, et al. Numerical study on permeability hysteresis during hydrate dissociation in hot water injection[C]// *Proceedings of the 6th International Conference on Gas Hydrates(ICGH 2008)*. Vancouver, British Columbia, Canada, July 6-10, 2008.
- [25] Liang Haifeng, Song Yongchen, Chen Yongjun. Numerical simulation for laboratory-scale methane hydrate dissociation by depressurization[J]. *Energy Conversion and Management*, 2010, 51(10): 1883-1890.
- [26] 刘乐乐, 鲁晓兵, 张旭辉. 天然气水合物分解区演化数值分析[J]. *石油学报*, 2014, 35(5): 941-951.
Liu Lele, Lu Xiaobing, Zhang Xuhui. Numerical analysis on evolution of natural gas hydrate decomposition region in hydrate-bearing sediment[J]. *Acta Petrolei Sinica*, 2014, 35(5): 941-951.
- [27] Ertekin T, Abou-Kassem J H, King G R. *Basic applied reservoir simulation*[M]. Richardson: Society of Petroleum Engineers, 2001.
- [28] Song Yongchen, Liang Haifeng. 2-D numerical simulation of natural gas hydrate decomposition through depressurization by fully implicit method[J]. *China Ocean Engineering*, 2009, 23(3): 529-542.
- [29] 阮徐可. 多孔介质中甲烷水合物降压分解实验与数值模拟[D]. 大连: 大连理工大学, 2012.
Ruan Xuke. Experimental and numerical study of the factors on the gas production from hydrates in porous media[D]. Dalian: Dalian University of Technology, 2012.

(收稿日期 2014-11-05 改回日期 2015-03-16 编辑 王培玺)