

天然气水合物藏注热水开采敏感因素试验研究

李淑霞^{1,2}, 李 杰¹, 徐新华¹, 李小森²

(1. 中国石油大学石油工程学院, 山东青岛 266580; 2. 中国科学院可再生能源与天然气水合物重点实验室, 广东广州 510640)

摘要:采用自制的一维天然气水合物(NGH)开采模拟试验装置,模拟海洋地质条件,在填砂模型(填砂管直径 8 cm,长 80 cm)中生成天然气水合物,并通过注入热盐水进行热力开采的物理模拟试验,分析水合物藏地质因素和注热参数对注热水开采能量效率(水合物分解所得甲烷气的热量与注入热量之比)的影响。结果表明:影响能量效率的因素由大到小依次为注热水温度、水合物饱和度、初始温度、注热水时间、注热水速度;在水合物藏地质因素中,水合物饱和度越大,初始温度越高,注热水开采能量效率越高;在注热参数中,注热温度越高,能量效率越低;在注热开采时需要合理优化注热水温度、注热水时间和注热水速度;试验条件下,注热水开采能量效率最高的试验组合为水合物饱和度 48%,初始温度 5 ℃,注热水温度 40 ℃,注热水时间 350 min,注热水速度 12 mL/min,最高能量效率为 6.74。

关键词:天然气水合物;注热盐水;水合物分解;能量效率

中图分类号:TE 375 **文献标志码:**A

Experimental study on influencing factors for hydrate dissociation in a hot brine injection process

LI Shu-xia^{1,2}, LI Jie¹, XU Xin-hua¹, LI Xiao-sen²

(1. School of Petroleum Engineering in China University of Petroleum, Qingdao 266580, China;

2. Key Laboratory of Renewable Energy and Gas Hydrate, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China)

Abstract: The formation and dissociation of natural gas hydrate (NGH) was studied using a specially designed one-dimensional experimental set-up to simulate the hydrate bearing sediment below the seabed. NGH was formed in a sandpack model (with a diameter of 8 cm and length of 80 cm), and then hot brine was injected into the sandpack to dissociate the gas hydrate. The important factors that influencing the energy efficiency for hydrate dissociation were investigated, including the temperature of the injected hot brine, the saturation and initial temperature of hydrate formed, and the injection time and rate of the hot brine. The energy efficiency was defined as the ratio of the heat of the methane gas released to the injection heat. The experimental results show that, the order from big to small of factors that influencing the energy efficiency for hydrate dissociation is temperature of the injected hot brine, the saturation, initial temperature, the injection time and rate of the hot brine. The higher hydrate saturation and initial temperature, the higher energy efficiency, while the higher the hot-brine temperature, the lower the energy efficiency. The temperature, injection time and injection rate of hot-brine can be optimized in order to achieve a high thermal efficiency in the process of the hydrate dissociation. Under the experimental conditions, a maximum energy efficiency of 6.74 is achieved during the dissociation of hydrate formed at 5 ℃ with a saturation of 48%, when hot-brine of 40 ℃ is injected at a rate of 12 mL/min for 350 min.

Key words: natural gas hydrate; hot brine injection; hydrate dissociation; energy efficiency

天然气水合物的开采方法主要有注热法、降压法、注化学剂法、CO₂ 置换法以及固体开采法等^[1-4]。

在注热开采方面, Kamath^[5]、Ullerich^[6]、Wonmo^[7-8]、Uchida^[9]等试验研究了注热开采动态;唐良广^[10]、

收稿日期:2013-10-12

基金项目:国家自然科学基金项目(51274227;51374232);中国科学院可再生能源与天然气水合物重点实验室项目(y207k2)

作者简介:李淑霞(1970-),女,教授,博士,主要从事油藏数值模拟、天然气水合物开采机制研究。E-mail:lishuxia@upc.edu.cn。

万丽华^[11]、孙建业等^[12]、李淑霞等^[13]、郝永卯等^[14]也进行了沉积物中天然气水和物 (NGH) 的注热试验研究,但上述研究对注热开采的能量效率及敏感因素分析不够。因此,笔者通过正交设计试验^[15],对水合物藏注热水开采的地质因素和注热参数进行敏感性分析,为不同水合物藏的注热开采提供指导。

1 试验设备及方法

1.1 试验设备

采用自制的天然气水合物开采模拟试验系统,其具体试验流程见图 1。其中一维试验管尺寸为 $\Phi 80\text{ cm}\times 80\text{ cm}$,工作压力 20 MPa。沿试验管轴向设计有 11 套梯度取压、测温装置和电极系。填砂管的注入端配有供液和供气设备,出口端设有回压装置和气、液分离装置,利用数据采集处理软件自动采集不同时刻的温度、压力、产气、产水等参数。

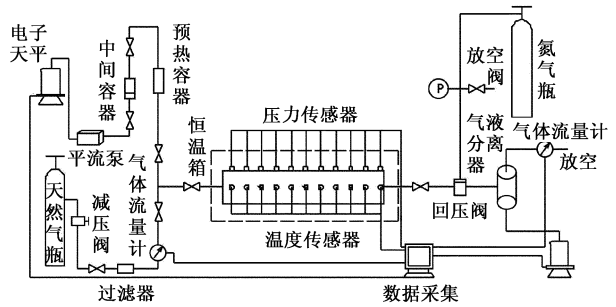


图 1 天然气水合物开采模拟试验装置示意图
Fig. 1 Sketch map of experimental system simulating NGH exploitation

1.2 试验材料及步骤

试验中注入水为配置的质量分数为 2.0% 的盐水,其中蒸馏水自制,NaCl 纯度 $\geq 99.5\%$; 试验用 CH_4 气纯度为 99.9%。填砂管填入粒径为 300 ~ 450 μm 的石英砂,填砂后测得孔隙度为 33.4%,渗透率为 1.2 μm^2 。

- 试验操作步骤如下:
- (1) NGH 等容生成。NGH 生成具体步骤参见文献^[16]。当一次水合物的生成不能达到所需要的饱和度时,需要进行二次注水或注气,然后继续降温合成,直至达到设计的 NGH 饱和度。
 - (2) 注热水开采。①加热预热罐中的盐水,使其达到预定的注热温度,之后打开管线保温带,其设定温度与预热罐的温度一致;②调节出口端回压阀的压力,使其与试验管中的压力达到一致,之后打开出口阀门;③打开进水阀门,用平流泵按照预定的注

热速度向填砂管内注入热盐水,记录注热过程中的产气产水量及压力、温度的变化;④当达到设定的注热时间时,停止注热水,等待气体不再产出后,逐步降低回压阀的压力到大气压,使填砂管中的剩余气体产出。

2 注热水开采敏感因素试验

2.1 正交设计试验结果

目前已发现的天然气水合物藏水合物饱和度差别较大,从 5% 到 95%^[24,17],但渗透率随水合物饱和度呈指数递减,在试验条件下,当水合物饱和度大于 50% 以后,渗透率已小于 $1\times 10^{-3}\text{ }\mu\text{m}^2$,使得注热开采在技术上存在一定的难度,所以本组试验水合物饱和度选取 12% ~ 48%;实际水合物藏的初始温度变化范围也比较大,从低于 0 $^{\circ}\text{C}$ 到 10 $^{\circ}\text{C}$ 以上,本次试验选取 -1 ~ 5 $^{\circ}\text{C}$;同时,根据实验室前期做过的注热分解试验,确定注热量的原则是:尽量使水合物最大程度的分解且尽量减少注入的热量。根据以前试验参数的合理范围,选取注热水的温度为 40 ~ 100 $^{\circ}\text{C}$,注热水的时间为 150 ~ 450 min,注热水速度为 9 ~ 18 mL/min。

采用五因素四水平正交设计试验,分别在不同地质因素和注热参数下进行试验,研究水合物饱和度 A、初始温度 B、注热水温度 C、注热水时间 D、注热水速度 E 5 个参数对能量效率的影响,各因素取值见表 1。

表 1 正交试验因素水平表

Table 1 Parameters in orthogonal experiment					
水平	A/%	B/ $^{\circ}\text{C}$	C/ $^{\circ}\text{C}$	D/min	E/(mL · min ⁻¹)
1	12	-1	40	150	9
2	24	1	60	250	12
3	36	3	80	350	15
4	48	5	100	450	18

利用正交设计方案进行注热水开采试验,分析各次试验的能量效率,并进行参数敏感性分析及最优方案组合,结果见表 2。

表 2 中均值表示每个因素每个水平下的平均能量效率,极差表示每个因素各个水平平均能量效率的最大值与最小值的差。可以看出,对注热水开采能量效率影响由大到小的因素依次为注热水温度、水合物饱和度、初始温度、注热水时间、注热水速度。能量效率最大的组合为水合物饱和度 48%、初始温度 5 $^{\circ}\text{C}$ 、注热水温度 40 $^{\circ}\text{C}$ 、注热水时间 350 min、注热水速度 12 mL/min,即为本组试验中的第 16 次试

验,能量效率达到了 6.74。

表 2 正交设计试验的基本数据及敏感因素分析

Table 2 Basic data and sensitivity factors analysis in orthogonal experiment						
因素水平	A/%	B/℃	C/℃	D/min	E/(mL · min ⁻¹)	能量效率
1	12	-1	40	150	9	2.84
2	12	1	60	250	12	1.58
3	12	3	80	350	15	0.72
4	12	5	100	450	18	0.37
5	24	-1	60	350	18	1.72
6	24	1	40	450	15	3.35
7	24	3	100	150	12	1.41
8	24	5	80	250	9	1.67
9	36	-1	80	450	12	2.09
10	36	1	100	350	9	2.53
11	36	3	40	250	18	5.40
12	36	5	60	150	15	4.06
13	48	-1	100	250	15	2.47
14	48	1	80	150	18	3.05
15	48	3	60	450	9	3.74
16	48	5	40	350	12	6.74
均值 1	1.38	2.28	4.58	2.84	2.63	
均值 2	2.04	2.63	2.78	2.78	2.96	
均值 3	3.52	2.82	1.88	2.93	2.65	
均值 4	4.00	3.21	1.70	2.39	2.64	
较优水平	A4	B4	C1	D3	E2	
极差	2.63	0.93	2.88	0.54	0.33	
因子主次	2	3	1	4	5	

2.2 敏感因素

各个因素对能量效率影响的趋势见图 2。由图 2 可以看出：

(1)水合物饱和度越大,注热水开采的能量效率越大。这是因为当其他条件相同时,水合物饱和度越大,水合物分解吸热越多,热损失相对越小,注入同样的热量时产生的气体越多,所以能量效率越大。

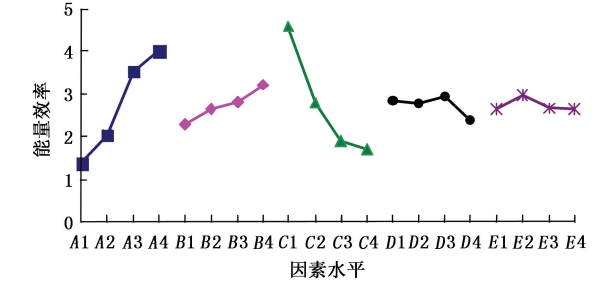


图 2 能量效率随各因素变化趋势

Fig.2 Variation of energy efficiency with various factors

(2)随着初始温度的增加,注热水开采的能量效率增大。原因是当其他条件相同时,初始温度越高,水合物分解所需的温差驱动力越小,从而用于水合物分解的热量就相对越多,能量效率越大。

(3)随着注热水温度的增加,能量效率逐渐减

小。因为当其他条件一致时,注入的热水温度越高,在注热水过程中水合物已分解部位的温度升高得越高,与周围环境的温差越大,向周围散失的热量越多,能量效率越低。

(4)对于注热水时间而言,在注热水前期(350 min 以前),能量效率变化不大,在注热水后期(350 min 以后)能量效率逐渐变小。这是由于注热前期水合物没有完全分解,当其他条件不变时,水合物分解产气量与注热时间成正比,而注入的热量也与注热时间成正比,所以注热前期能量效率变化较小。在注热水后期,水合物已经分解完毕,产气速率变得很小,继续注热则能量效率逐渐变小。

(5)随着注水速度的增加,能量效率先增加后减小。这是因为随着注热水速度的提高,热前缘推进速度加快,水合物能有效分解,从而能量效率增加;但注水速度太大使得温度升高加快,反应釜内外温差加大,热损失加大,能量效率降低。

2.3 注热水开采

综上所述可以看出:考虑水合物藏的地质参数时,水合物饱和度越大,初始温度越高,则能量效率越大,但水合物饱和度的影响远大于初始温度的影响。对实际水合物的开采,当水合物饱和度高到一定程度后,水合物藏渗透率会急剧降低,从而会增大注水压力,使注热水开采的可行性变差。建议对高饱和度水合物藏首先进行相应的地层处理,然后再进行注热水开采。

为了获得更大的能量效率,需要合理优化各种注热参数,本组试验条件下,注热水温度对能量效率影响最大,注热水温度越小,能量效率越大。但对水合物藏的实际开采,当注热水温度比较低时会影响水合物的分解速率,所以注入热水的温度不能过低;其次要选择合适的注热时间,使得注入的热量刚好使水合物全部分解,避免注热量过多,引起能量效率减少;当注热水速度过大或者过小时,都会影响水合物分解产气量,所以需要合理优化注热水速度,使总的能量效率达到最大。

3 结 论

(1)对水合物藏注热水开采能量效率影响由大到小的因素依次为注热水温度、水合物饱和度、初始温度、注热水时间、注热水速度。

(2)本试验条件下能量效率最大的参数组合为水合物饱和度 48%、初始温度 5℃、注热水温度 40℃、注热水时间 350 min、注热水速度 12 mL/min,能

量效率达到了6.74。

(3)为了获得更高的能量效率,需要合理优化注热参数;在确保水合物分解速度前提下,适当降低注热水温度;优化注热水时间,使得注入的热量刚好使水合物完全分解;优化注热水速度,使产气量达到最大。

参考文献:

- [1] 龚建明. Mallik 天然气水合物国际研讨会综述[J]. 海洋地质动态,2004,20(2):28-31.
GONG Jian-ming. Summary of the international symposium of Mallik natural gas hydrate [J]. Marine Geology Letters,2004,20(2):28-31.
- [2] 李淑霞,陈月明,杜庆军. 天然气水合物开采方法及数值模拟研究评述[J]. 中国石油大学学报:自然科学版,2006,30(3):146-150.
LI Shu-xia, CHEN Yue-ming, DU Qing-jun. Commentary of production method and numerical simulation of natural gas hydrates[J]. Journal of China University of Petroleum (Edition of Natural Science),2006,30(3):146-150.
- [3] TARUN G, MORIDIS G J, HOLDITCH S A. Analysis of reservoir performance of the Messoyakha gas hydrate reservoir[R]. SPE 114375, 2008.
- [4] 郭平,刘士鑫,杜建芬. 天然气水合物气藏开发[M]. 北京:石油工业出版社,2006.
- [5] KAMATH V A, GODBOLE S P. Evaluation of hot brine stimulation technique for gas production from natural gas hydrates[R]. SPE 13594,1987.
- [6] ULLERICH J W, SELIM M S, SLOAN E D. Theory and measurement of hydrate dissociation [J]. AIChE J, 1987,33(5):747-752.
- [7] WONMO S, HOSEOB L, SUNJOON K. Experimental investigation of production behaviors of methane hydrate saturated in porous rock [J]. Energy Sources, 2003,25:845-856.
- [8] WONMO S, HOSEOB L, HOJOON Y. An experimental study for hydrate dissociation phenomena and gas flowing analysis by electric heating method in porous rocks[J]. Korean Chem Eng Res, 2004,42(1):115-120.
- [9] UCHIDA T, TAKEYA S, CHUVILIN E M. Decomposition of methane hydrates in sand, sandstone, clays, and glass beads [J]. Geophys Res, 2004, 109 (B5): B05206.
- [10] 唐良广,肖睿,李刚,等. 热力法开采天然气水合物的模拟实验研究[J]. 过程工程学报,2006,6(4):548-553.
TANG Liang-guang, XIAO Rui, LI Gang, et al. Experimental investigation of production behavior of gas hydrate under thermal stimulation [J]. The Chinese Journal of Process Engineering, 2006,6(4):548-553.
- [11] 万丽华,李小森,李刚,等. 热盐水分解甲烷水合物实验研究[J]. 现代化工,2008,28(7):47-50.
WAN Li-hua, LI Xiao-sen, LI Gang, et al. An experimental study on dissociation behavior of methane hydrate under hot brine stimulation [J]. Modern Chemistry Industry, 2008,28(7):47-50.
- [12] 孙建业,业淦光,刘昌岭,等. 沉积物中天然气水合物合成及开采模拟实验研究[J]. 中国海洋大学学报:自然科学版,2009,39(6):1289-1294.
SUN Jian-ye, YE Yu-guang, LIU Chang-ling, et al. Simulation experiment of gas hydrate formation and exploitation in sediments[J]. Periodical of Ocean University of China, 2009,39(6):1289-1294.
- [13] 李淑霞,郝永卯,陈月明. 多孔介质中天然气水合物注热盐水分解实验研究[J]. 太原理工大学学报,2010,41(5):680-683.
LI Shu-xia, HAO Yong-mao, CHEN Yue-ming. Experimental study of hot-brine stimulation for dissociation of NGH in porous medium [J]. Journal of Taiyuan University of Technology,2010,41(5):680-683.
- [14] 郝永卯,陈月明,李淑霞. 天然气水合物注热开采实验研究 [J]. 中国石油大学学报:自然科学版,2007,31(4):60-63.
HAO Yong-mao, CHEN Yue-ming, LI Shu-xia. Experimental study on production of natural gas hydrate by thermal stimulation [J]. Journal of China University of Petroleum, 2007,31(4):60-63.
- [15] 方开泰,马长兴. 正交与均匀试验设计[M]. 北京:科学出版社,2001.
- [16] 李淑霞,陈月明,王瑞和,等. 初始压力对多孔介质中气体水合物生成的影响[J]. 实验力学,2009,24(4):313-319.
LI Shu-xia, CHEN Yue-ming, WANG Rui-he. On the influence of initial pressure on natural gas hydrate formation in a porous medium [J]. Journal of Experimental Mechanics, 2009,24(4):313-319.
- [17] 卢振权,祝有海,张永勤,等. 青海祁连山冻土区天然气水合物资源量的估算方法——以钻探区为例[J]. 地质通报,2010,29(9):1310-1318.
LU Zhen-quan, ZHU You-hai, ZHANG Yong-qin, et al. Estimation method of gas hydrate resource in the Qilian Mountain permafrost area, Qinghai, China—a case of the drilling area [J]. Geological Bulletin of China, 2010,29(9):1310-1318.

(编辑 李志芬)