

文章编号:1673-5005(2007)04-0051-05

天然气水合物渗流特征及其描述

陈月明, 张新军, 杜庆军

(中国石油大学 石油工程学院, 山东 东营 257061)

摘要:天然气水合物渗流是一个多相多组分非等温的物理化学渗流过程, 这个过程包含了相变、能量变化以及储层介质的物理性质的变化。提出了天然气水合物藏孔隙度、渗透率、饱和度等参数的定义方式。应用渗流力学理论, 结合水合物开采方式, 对其渗流过程进行了描述, 建立了天然气水合物藏开采的基本数学模型, 并探讨了目前天然气水合物渗流研究存在的问题, 为下一步天然气水合物藏的物理模拟和数值计算提供了理论基础。

关键词:天然气水合物; 渗流特征; 物理模型; 数学模型

中图分类号:TE 312

文献标识码:A

Seepage characteristics of natural gas hydrate and its description

CHEN Yue-ming, ZHANG Xin-jun, DU Qing-jun

(College of Petroleum Engineering in China University of Petroleum, Dongying 257061, Shandong Province, China)

Abstract: The natural gas hydrate seepage is a physical and chemical seepage process of multiphase and multicomponent in non-isothermal condition, which includes phase transformation, energy transformation and physical property change of reservoir. The defining methods of parameters of porosity, permeability and saturation in natural gas hydrate reservoir were presented. The process of natural gas hydrate seepage was described based on the theory of seepage fluid mechanics and exploration model. Physical model and basic mathematical model were built based on fluid mechanics theory in reservoir, and the present problems existing in the study of natural gas hydrate seepage were discussed, which provides theoretical foundation for further physical simulation and numerical calculation of natural gas hydrate reservoir.

Key words: natural gas hydrate; seepage characteristics; physical model; mathematical model

天然气水合物(Natural Gas Hydrate)是在一定条件下由轻烃、 CO_2 及 H_2S 等小分子气体与水相互作用形成的白色固态结晶物质, 是一种非化学计量型晶体化合物, 或称笼形水合物、气体水合物。自然界中存在的天然气水合物中天然气的主要成分为甲烷($>90\%$), 所以又常称为甲烷水合物(Methane Hydrates)。天然气水合物被认为是 21 世纪最重要的油气替代能源, 具有储量大、能量密度大、分布广的特点, 因而具有广阔的发展前景^[1]。天然气水合物藏的形成是气体和水通过渗流运移、聚集, 在适宜的温度、压力和储集环境下化合成藏的。自然界中形成天然气水合物需满足 4 个基本条件: ① 低温, 一般温度低于 $10\text{ }^\circ\text{C}$; ② 高压, 一般压力大于 10

MPa; ③ 具备天然气来源; ④ 具备有利的储集空间。天然气水合物的开采机理是通过打破水合物稳定存在的条件, 促使其在地层中分解为天然气和水, 然后将天然气开采至地面。目前提出的开采方式有降压法、注热法、注化学剂法等, 另外还有一些其他非常规方法^[2]。与传统型能源开发不同, 水合物在开采过程中将发生相变, 在水合物藏中水合物是固相, 而在开采过程中分解为液相和气相。从天然气水合物的各种方式的开采过程可以看出, 水合物的开发是一个多相多组分非等温的物理化学渗流过程, 这个过程除了气体和水在多孔介质中的一般渗流, 还包括水合物和水的相变、储集介质孔隙度和渗透率的变化、渗流过程中的分解热和生成热的变化等。为

收稿日期: 2007-04-28

基金项目: 国家“863”计划资助项目(2006AA09A209)和国家自然科学基金资助项目(504040037)

作者简介: 陈月明(1937-), 男(汉族), 浙江建德人, 教授, 博士生导师, 从事油气田开发教学和研究工作。

了更经济、高效的开发天然气水合物藏,笔者对天然气水合物在多孔介质中的渗流特征进行描述。

1 水合物在多孔介质中的渗流特征

1.1 基础参数描述

目前,天然气水合物多孔介质的孔隙度定义方法有两种:一种是将天然气水合物看作岩石骨架的一部分,将孔隙度定义为岩石中水、气的体积与岩石总体积的比;另一种是将天然气水合物看作岩石孔隙的一部分,将孔隙度定义为岩石中水、气、天然气水合物的体积与岩石总体积的比。考虑到与传统油气藏的类比,一般采用第二种定义方法^[3]。

实验室一般通过抽真空饱和水测定填砂管孔隙度。对总体积为 V 的填砂管,抽真空后,饱和水的体积为 V_e ,定义孔隙度 φ 为

$$\varphi = V_e/V. \quad (1)$$

渗透率定义为含天然气水合物的多孔介质允许流体通过的能力。根据达西公式中渗透率的表达式

$$k_i = \frac{Q\mu L}{A\Delta p}$$

进行测定,实验室填砂管的渗透率一般在 μm^2 级。对于含天然气水合物多孔介质,一般认为多孔介质的渗透率随天然气水合物饱和度 S_H 的增大呈指数下降,满足关系式

$$k_i = k_{i0}(1 - S_H)^N. \quad (2)$$

式中, k_{i0} 为天然气水合物饱和度为 0 时多孔介质渗透率; N 为渗透率下降指数。

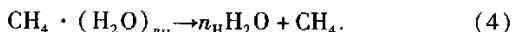
天然气水合物饱和度的定义有两种方法:一种定义为岩石中天然气水合物体积与岩石总体积的比值;另一种定义为岩石中天然气水合物体积 V_H 与岩石总孔隙体积的比。考虑到与传统油气资源的类比,通常采用第二种定义方法,即

$$S_H = \frac{V_H}{V_\varphi}. \quad (3)$$

1.2 天然气水合物渗流特征

天然气水合物开采过程中主要包含 3 种渗流过程。

(1) 储层压力或温度变化后,打破了天然气水合物的稳定存在条件,促使其分解为气和水。通过降压、加热或注抑制剂等方式打破天然气水合物稳定存在状态,使其分解,其分解速度与孔隙结构、水合物结构、储层温度、压力等条件有关。甲烷水合物分解的化学过程可以描述为



式中, n_H 为水合指数。

Kim 等^[4]根据天然气水合物分解动力学特征,将天然气水合物分解速度表示为

$$\dot{m}_g = K_d A_s (p_e - p). \quad (5)$$

其中

$$A_s = (\varphi_w^3 / 2k_i)^{1/2},$$

式中, K_d 为反应速度常数, $\text{g}/(\text{cm}^2 \cdot \text{Pa} \cdot \text{s})$; p 为水合物藏压力, Pa ; p_e 为反应临界压力, Pa 。

由化学式(4)可知 1 mol 天然气水合物分解后可生成 1 mol 的甲烷气和 n_H mol 的水,因此有

$$\dot{m}_H = -\dot{m}_g \frac{n_H M_w + M_g}{M_g}, \quad (6)$$

$$\dot{m}_w = \dot{m}_g \frac{n_H M_w}{M_g}. \quad (7)$$

式中, $\dot{m}_g$, $\dot{m}_w$, $\dot{m}_H$ 分别为单位时间、单位体积岩心中甲烷水合物分解产生的气和水的质量及相应分解掉的水合物的质量, $\text{g}/(\text{s} \cdot \text{cm}^3)$; M_g , M_w , M_H 分别为气、水及天然气水合物的摩尔质量, g/mol 。

(2) 分解后的气和水以及脱落的固体颗粒在孔隙空间渗流。天然气水合物开采过程中,随着水合物的分解,各相饱和度、储层孔隙度、渗透率等参数都在不断变化,同时压力降低后,储层疏松的固体水合物、固体颗粒也可能部分脱落。

根据孔隙度第二种定义,水合物为孔隙中的一相,因此在水合物开采过程中,孔隙度的变化仅与储层压缩系数有关,与水合物分解的多少无关。

Masuda 等^[5-6]研究表明,在天然气水合物模型中,由于水合物为固相,气、水两相是在除固相以外的孔隙中流动,在水合物分解过程中,水合物相不断减少,可流动空间和渗透率不断增大,因此提出渗透率随天然气水合物饱和度变化呈指数变化(式(2))。 $N=7$ 时无因次渗透率随天然气水合物饱和度变化规律如图 1 所示。

气、水相相对渗透率的计算参考 Hong 等^[7]提出的算法,计算式为

$$K_{rw} = K_{rwo} \bar{S}_w^{1/2} [1 - (1 - \bar{S}_w^{1/m})^m]^2,$$

$$K_{rg} = K_{rgo} \bar{S}_g^{1/2} (1 - \bar{S}_w^{1/m})^{2m}.$$

其中归一化饱和度分别为

$$\bar{S}_w = \frac{S_w - S_{wr}}{1 - S_{wr} - S_{gr}}, \quad \bar{S}_{wH} = \frac{S_w + S_H - S_{wr}}{1 - S_{wr} - S_{gr}},$$

$$\bar{S}_g = \frac{1 - S_w - S_H - S_{gr}}{1 - S_{wr} - S_{gr}}, \quad m = 0.45, \quad S_{wr} = 0.3,$$

$$S_{gr} = 0.05, \quad K_{rwo} = 0.5, \quad K_{rgo} = 1.0.$$

式中, K_{rwo} , K_{rgo} 分别为水相和气相相对渗透率的端点值。

总之,天然气水合物渗流是一个非常复杂的过程,涉及到固、液、气三相和水合物、水、轻烃、重烃、抑制剂等多个组分,以及渗流过程中地层温度的变化。此外,研究认为水合物的生成存在“记忆效应”,即由水合物分解产生的水比自由水更易生成水合物,因此水合物再生对渗流过程也会产生重要影响。

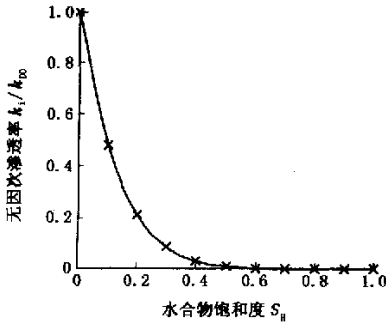


图1 无因次渗透率随水合物饱和度变化关系曲线

(3) 注入流体(能量)的渗流(传导)过程。天然气水合物的分解为吸热过程,并且部分水合物藏开发需要注入一定的流体,为储层输送热量或抑制剂,这一过程是注入流体渗流与水合物分解的双重过程,涉及许多物理、化学变化。目前研究主要针对天然气水合物藏中孔隙未完全被水合物充填,存在一定的可流动流体的模型。中国石油大学(华东)天然气水合物研究中心研究人员开发的实验设备能够在填砂管中模拟水合物生成、分解、渗流等过程,并通过供液模块注入热流体或抑制剂,研究注入过程中模型温度、压力变化^[8]。依据物质能量守恒,通过数值模拟方法,得到了注入流体在储层的推进前缘分布、温度和压力传播速度等参数的变化规律^[9]。

2 天然气水合物渗流数学模型

由以上分析可以看出,天然气水合物渗流过程非常复杂,不仅涉及地层温度变化引起的渗流过程本身的变化,同时还应考虑由于渗流场的存在而产生的热力过程,如热对流、热传递、地下热反应面的移动等。因此必须考虑两个场,即渗流场和温度场以及它们之间的相互影响与作用。目前国内外学者建立了许多天然气水合物开采模拟计算的数学模型,从简单的能量平衡方程、一维单相解析模型到复杂的三维三相数值模拟模型^[10-18],但比较完善的较少^[19]。

2.1 数学模型的假设条件

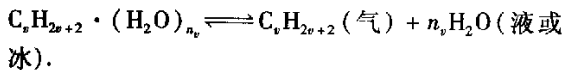
由于天然气水合物的开采是一个很复杂的过程,因此针对研究目的,假设:① 模型中考虑4相(水相、气相、固态水合物相、固态冰相)、9组分(水合物、水、甲烷、分解产生的甲烷、非甲烷烃类气体、分解产生的非甲烷烃类气体、盐、水溶性抑制剂和热焓拟组分),各组分存在于各相中;② 考虑岩石与流体的热膨胀及压缩性;③ 流体流动符合达西定律;④ 注剂扩散符合 Fick 定律;⑤ 在水合物藏的任一单元体体积中,相平衡瞬间建立;⑥ 模型中可描述包括降压、加热、加入化学剂的模拟计算。

2.2 基本数学模型

天然气水合物分解及渗流的数学模型主要包括控制方程、累积项、流动项、源汇项以及相平衡热物理性质。

2.2.1 控制方程

根据系统的热动力学性质,甲烷水合物的产出可以用式(4)描述。但在天然气水合物藏中非甲烷烃类水合物(包括乙烷、丙烷或丁烷)也存在,并且对水合物的成核和特性有重要影响。对非甲烷烃类水合物的描述为



式中, v 代表非甲烷烃类化合物 $\text{C}_v\text{H}_{2v+2}$ ($v=2,3,4$)。复合水合物结构式可以表示为

$$\chi_m[\text{CH}_4 \cdot (\text{H}_2\text{O})_{n_m}]\chi_v[\text{C}_v\text{H}_{2v+2} \cdot (\text{H}_2\text{O})_{n_v}].$$

式中, χ 为不同碳氢化合物的摩尔分数, $\chi_m + \chi_v = 1$; n_v, n_m 为水合指数。在自然的水合物中,尽管 χ_m 超过 95%,但其他少量的碳氢组分对水合物系统的相平衡影响很大,不可忽略。

非等温水合物系统可以用物质平衡和能量平衡方程来描述,每一个网格中,各组分 k 的质量守恒和能量守恒可表示为同一形式的控制方程,即

$$\frac{d}{dt} \int_{V_n} M^k dV = \int_{\Gamma_n} \mathbf{F}^k \cdot \mathbf{n} d\Gamma + \int_{V_n} q^k dV. \quad (8)$$

式中, M 为单位体积内质量和能量的增量; $k=1, \dots, NK$,代表不同的物质组分, NK 为最大物质组分, $k=NK+1$ 为能量组分; $\mathbf{F}$ 表示物质和能量的流动项; q 为源汇项; V_n 代表体积元; $\mathbf{n}$ 为面元 $d\Gamma$ 的法向量,方向指向 V_n 。

2.2.2 累积项

在质量守恒方程中,方程(8)的左端表示单元体单位时间内 k 组分的质量增量,其中 M^k 表达式为

$$M^k = \sum_{\beta=A,C,I,H} \varphi S_{\beta} \rho_{\beta} X_{\beta}^k.$$

式中, β 为模型中存在的4相: 水相($\beta = A$), 气相($\beta = G$, 包括 CH_4 , C_nH_{2n+2} 和水蒸气), 固态水合物相($\beta = H$), 固态冰相($\beta = I$); φ 为孔隙度; S_β 为相饱和度; ρ_β 为相密度; X_β^k 为 k 组分在 β 相中的质量分数。

显然, 各相饱和度之和等于1, 各个组分在各相中质量分数之和等于1, 即

$$\sum_{\beta=A,G,I,H} S_\beta = 1, \quad \sum_k X_\beta^k = 1.$$

在能量守恒方程中, 方程(8)的左端表示热量增量, 包括岩石和所有相的贡献, 可表示为

$$M^{NK+1} = (1 - \varphi)\rho_R C_R T + \sum_{\beta=A,G,H,I} \varphi S_\beta \rho_\beta u_\beta.$$

式中, ρ_R 和 C_R 分别为岩石固相密度和比热容; T 为温度; u_β 为 β 相的内能。

2.2.3 流动项

在质量方程中, 两个固相($\beta = H, I$) 对流动的贡献为0。包括水相和气相中水和烃类气体的流动项为

$$F^k = \sum_{\beta=A,G} (F_\beta^k + J_\beta^k).$$

其中

$$J_\beta^k = -\varphi S_\beta \tau_G D_\beta^k \rho_\beta \nabla X_\beta^k, \\ \tau_G = \varphi^{1/3} S_G^{2/3}.$$

式中, τ_G 为迂曲度; D_β^k 为水动力扩散张量。

对于水相,

$$F_A^k = -k_i \frac{K_{rA} \rho_A}{\mu_A} (\nabla p_A - \rho_A g) X_A^k.$$

式中, p_A 为水相压力; K_{rA} 为水相的相对渗透率; μ_A 为水相粘度; g 为重力加速度。

对于气相, 考虑渗流和扩散的质量流量表达为

$$F_G^k = -k_i \left(1 + \frac{b}{p_G}\right) \frac{K_{rG} \rho_G}{\mu_G} X_G^k (\nabla p_G - \rho_G g) + J_G^k.$$

在能量守恒方程中包括传导和对流的热流量为

$$F^{NK+1} = -\{(1 - \varphi)K_R + \varphi[S_H K_H + S_I K_I + S_A K_A + S_G K_G]\} \nabla T + \sum_{\beta=A,G} h_\beta F_\beta.$$

其中相的热焓为

$$h_A = \sum_k X_A^k h_A^k, \quad h_G = \sum_k X_G^k h_G^k.$$

式中, K_β 为热传导系数。

2.2.4 源汇项

在物质平衡模型中, 各组分的注入速度表示为

$$q^k = \sum_{\beta=A,G} X_\beta^k q_\beta.$$

在动力模型中, 因水合物分解、烃类气体和水的释放引起的附加源汇项必须考虑。因此, 源汇项变为 $q^k + m^k$, 其中各相 m^k 由式(5)~(7) 计算得到, k 代

表水、甲烷和非甲烷烃类。

在能量平衡模型中, 应考虑分解的热量, 因此热流速度为

$$q^{NK+1} = q_d + \sum_{\beta=A,G} h_\beta q_\beta + m_H \Delta H^0.$$

式中, q_d 为吸收或释放的能量; ΔH^0 为水合物分解热。

2.2.5 相平衡和热物理性质

平衡压力与温度之间的关系根据 Kamath^[20] 的回归方程计算得到:

$$p_e = \exp\left(e_1 + \frac{e_2}{T}\right).$$

其中

$$\begin{cases} e_1 = 38.980, e_2 = -8533.80, 0^\circ\text{C} < T \leq 25^\circ\text{C}; \\ e_1 = 14.717, e_2 = -1886.79, -25^\circ\text{C} \leq T \leq 0^\circ\text{C}. \end{cases}$$

通过对模型的数值求解, 形成了天然气水合物开采的数值模拟器, 通过与注热开采实验结果的对比较, 验证了模型的正确性^[9]。

3 水合物渗流研究中存在的问题

天然气水合物存在于储层的多孔介质中, 其中流体的渗流是一个非常复杂的过程。目前的研究还处于沿用油、气渗流理论解释的阶段, 天然气水合物的渗流机理还不是十分清楚。达西定律在天然气水合物藏中是否适用, 天然气水合物分解过程对渗流的影响如何, 天然气水合物分解后储层参数变化规律如何, 都是需要深入研究的课题。基于此, 目前渗流机理数学模型需要完善的有以下几方面。

(1) 储层参数变化规律。在天然气水合物的分解过程中, 许多储层参数都会发生一定程度的变化, 特别是多孔介质的渗透率和水、气的相对渗透率等参数的变化比较明显, 并且其变化对水合物藏的开采影响较大。目前在这方面已经开展了部分工作, 但规律研究还不系统, 还没有真正认识储层参数变化机理, 未提出适合于模型应用的参数和指标。

(2) 天然气水合物开采机理。对天然气水合物的生成、分解机理已经进行了大量的研究工作, 但大都是在实验室的纯水或填砂管中完成的, 几乎没有用天然气水合物真实岩心测定的。实践表明, 实验室研究结果与储层条件下的结果有一定的差异。随着研究的深入, 应逐步完善对于天然气水合物在储层条件下分解、流动、开采以及可能存在的再生过程的描述。

(3) 储层颗粒运移。天然气水合物储层中存在

多种固相,如天然气水合物、冰以及储层砂粒等。在开发过程中,随着储层压力、温度等参数的变化,必然引起这些固体颗粒的运动,并且在运动过程中其形态和相态会不断变化。如何描述这些固体颗粒在储层中的运移规律,有待深入研究。

4 结束语

天然气水合物藏的开发主要有降压法、加热法、注抑制剂法等,开采机理为首先打破其稳定存在的压力、温度条件,促使其分解为水和天然气,然后通过在水合物层渗流达到井底。水合物开采渗流过程除了气体和水在多孔介质中的一般渗流,还包括水合物和水的相变、储集介质孔隙度和渗透率的变化等。基于水合物渗流过程的特点,建立了描述水合物多相多组分非等温渗流过程的数学模型,并讨论了目前水合物渗流过程研究中存在的问题。

参考文献:

- [1] 史斗,孙成权,朱岳年. 国外天然气水合物研究进展[M]. 兰州:兰州大学出版社,1992:1-16.
- [2] LI Shu-xia, CHEN Yue-ming, DU Qing-jun. Schemes of gas production from natural gas hydrate[J]. Chemical Engineering, 2003, 54(12):102-107.
- [3] 李淑霞. 天然气水合物开采物理模拟与数值模拟研究[D]. 东营:中国石油大学石油工程学院, 2005.
- [4] 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.
- [5] MASUDA Y, NAGAWA S, ANDO S, et al. Numerical calculation of gas-production performance from reservoirs containing natural gas hydrates[R]. SPE 38291, 1997.
- [6] MASUDA Y, FUJINAGA Y, NAGAWA S, et al. Modeling and experimental studies sandstone cores: Proceedings of 3rd International Conference on Gas Hydrates, Salt Lake City[C]. Utah, USA, 2000.
- [7] HONG H, POOLADI-Darvish. A numerical study on gas production from formation containing gas hydrates: Petroleum Society's Canadian International Petroleum Conference, Calgary, Jun-2003[C]. Alberta, Canada, 2003.
- [8] 郝永卯,薄启炜,陈月明,等. 天然气水合物降压开采实验研究[J]. 石油勘探与开发, 2006, 33(2):217-220. HAO Yong-mao, BO Qi-wei, CHEN Yue-ming, et al. Laboratory investigation of pressure development of natural gas hydrate[J]. Petroleum Exploration and Development, 2006, 33(2):217-220.
- [9] 李淑霞,陈月明,杜庆军. 天然气水合物开采数值模拟的参数敏感性分析[J]. 现代地质, 2005, 19(1):108-112.
- [10] LI Shu-xia, CHEN Yue-ming, DU Qing-jun. Sensitivity analysis on numerical simulation of natural gas hydrate production[J]. Modern Geology, 2005, 19(1):108-112.
- [11] HOLDER G D, ANGERT P K. Simulation of gas production from a reservoir containing both gas hydrates and free natural gas[R]. SPE 11105, 1982.
- [12] MCGUIRE P L. Recovery of gas from hydrate deposits using conventional technology[R]. SPE/DOE 10832, 1982.
- [13] BAYLES G A, SAWYER W K, MALONE R D. A steam cycling model for gas production from a hydrate reservoir[J]. Chem Eng Commun, 1986, 47:225-245.
- [14] BURSHEARS M, OBRIEN T J, MALONE R D. A multi-phase, multi-dimensional, variable composition simulation of gas production from a conventional gas reservoirs in contact with hydrates[R]. SPE 15246, 1986.
- [15] SELIM M S, SLOAN E D. Hydrate dissociation in sediment[R]. SPE 16859, 1990.
- [16] YOUSIF M H, SLOAN E D. Experimental investigation of hydrate formation and dissociation in consolidated porous media[J]. SPERE, 1991, 11:452-458.
- [17] CHUANG Ji, AHMADI Goodarz, SMITH Duane H. Natural gas production from hydrate decomposition by depressurization[J]. Chemical Engineering Science, 2001, 56: 5801-5814.
- [18] SWINKELS W A M, DRENT H J J. Thermal reservoir simulation model of production from naturally occurring gas hydrate accumulations[R]. SPE 56550, 1999.
- [19] MORIDIS G J, COLLETT T S, DALLIMORE S R, et al. Numerical studies of gas production from several CH₄-hydrate zones at the mallik site[R]. Mackenzie Delta, Canada, LBNL 50257, 2002.
- [20] 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.
- [21] 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.
- [22] KAMATH V A, GODBOLE S P. Evaluation of hot-brine simulation technique for gas production from natural gas hydrates[R]. SPE 13596-PA, 1987.

(编辑 李志芬)