

Mechanism of Diffusion Influences to the Shale Gas Flow

Yu Liu¹, Changbin Wang¹, Fuquan Song^{2*}, Yunqian Long²

¹Petroleum Engineering Institute, Northeast Petroleum University, Daqing

²College of Petrochemical and Energy Engineering, Zhejiang Ocean University, Zhoushan

Email: fqsong2000@smmail.cn

Received: Jan. 13th, 2014; revised: Feb. 10th, 2014; accepted: Feb. 20th, 2014

Copyright © 2014 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

Abstract

Considering the complex pore structure and the diffusion from the matrix system to the fracture system, the single phase flow model of natural gas is established, and one new diffusion coefficient formula is given in the paper. Finally the flow mechanism from the matrix to the fracture and the shale gas flow characteristics affected by the diffusion are analyzed. The results show that: the Darcy flow rate is proportional to the pressure gradient and permeability; and the Darcy flow mainly influences the flow in high pressure, but the diffusion obviously influences the gas flow in low pressure, the proportion of the diffusion flow rate is larger. With the increase of formation pressure, the diffusion flow rate decreases significantly. The diffusion flow rate has nothing to do with the permeability.

Keywords

Shale Gas; Seepage; Diffusion; Mean Pressure

页岩气渗流中扩散影响机理分析

刘禹¹, 王常斌¹, 宋付权^{2*}, 龙运前²

¹东北石油大学石油工程学, 大庆

²浙江海洋学院石化与能源工程学院, 舟山

Email: fqsong2000@smmail.cn

*通讯作者。

收稿日期：2014年1月13日；修回日期：2014年2月10日；录用日期：2014年2月20日

摘要

基于页岩气藏复杂孔隙结构以及由基质系统向裂缝系统扩散现象，基于物理学理论，通过建立天然气单相流动模型，更加详细分析了页岩气从基质到裂缝的流动机理及扩散对页岩气流动的影响规律。分析表明：达西流动产生气体流量与压力梯度和渗透率成正比；高压条件下，渗流以达西流为主。在低压条件下，扩散产生气体流量所占比例较大；随着地层压力的增大，扩散作用明显减弱。扩散产生体积流量与渗透率大小无关。

关键词

页岩气；渗流；扩散；平均压力

1. 引言

目前，对页岩气从基质到裂缝的运移机理研究还没有明确的结论。以往的研究中，模拟裂缝或基质中的流体流动时，从基质到裂缝的运移，假设流体运移的主要贡献者是基质中的达西流，是由基质与裂缝间的压差产生的。因此，进一步讨论基质中的流动对更好地理解页岩基质对产量的贡献有重要意义。

页岩储层中孔隙的直径最低可到纳米级[1] [2]，与甲烷分子的直径接近。通过对 Knudsen 数计算，气体在页岩储层中的流动已到了滑脱流区和过渡流区，因此需要考虑滑脱和扩散效应[3]。国外学者对此进行了大量研究，Roy S 和 Raju R(2003)通过 Ar, N₂, O₂ 在孔径 200 nm 的氧化铝过滤膜上的传质实验建立了气体在纳米孔中的扩散数学模型[4]；Javadpour F(2007)使用 Roy S 和 Raju R 的模型描述了页岩气在纳米孔中的扩散和渗流[1]；Sigal R 和 Qin B(2008)用引入有效传递系数分析了页岩储层气体传质过程中自扩散作用的重要性[5]；Javadpour F(2009)建立了考虑克努森扩散和滑脱的页岩气渗流方程，并引出了视渗透率的概念[2]；Shabro V 和 Javadpour F(2009)建立了气体在微纳孔隙介质中的有限差分传质模型[5]。

本文主要研究页岩气藏基质中扩散现象，基于物理学理论，通过建立天然气单相流动模型，更加详细分析了页岩气的流动机理及扩散对页岩气流动的影响规律。

2. 纳米孔中的气体扩散

分子的扩散是指：由于在分子的无规则热运动下，宏观上从浓度高的区域向浓度低的区域运动的过程，这是热力学熵增原理的表现。根据尺度不同，学者们根据克努森(Knudsen)数，将气体的扩散分为：Knudsen 扩散 ($Kn > 10$)、过渡区扩散 ($0.01 < Kn < 10$)、Fick 扩散 ($Kn < 0.01$) 和表面扩散[6] [7]。克努森(Knudsen)数定义为分子自由程与特征尺度之比：

$$Kn = \lambda/d \quad (1)$$

式中 Kn ——克努森数，无量纲； λ ——分子自由程，m； d ——孔隙直径，m。

根据分子动力学理论，在理想气体中分子扩散系数公式为：

$$D_m = \frac{1}{3} \lambda \bar{v} = \frac{1}{3} \lambda \left(\frac{8RT}{\pi M} \right)^{0.5} \quad (2)$$

式中 D_m ——气体扩散系数，m²/s； \bar{v} ——气体分子平均速度，m/s； R ——气体常数，Pa·m³/(mol·K)；

T ——绝对温度, K; M ——摩尔质量, kg/mol。

2.1. 克努森扩散

Knudsen 流动分析的最初目的是出于研究低压下稀薄气体的流动, 1909 年, Martin Knudsen 首次以分子流动的术语从理论和实验解释了低压下气体流动现象[8]: 气体在多孔固体中扩散时, 如果孔径小于气体分子的平均自由程, 则气体分子对孔壁的碰撞, 较之气体分子间的碰撞要频繁得多, 称为 Knudsen 扩散。Knudsen 扩散发生在低压下小孔隙(微米或者更小)的孔隙介质中。

根据分子动力学理论, 当 $Kn > 1$ 时, 气体的平均自由程就是孔道的直径, 因此克努森扩散系数计算公式:

$$D_k = \frac{d}{3} \left(\frac{8RT}{\pi M} \right)^{0.5} \quad (3)$$

2.2. 菲克扩散

Fick 扩散系数可由斯托克斯 - 爱因斯坦(Stokes-Einstein)方程计算。斯托克斯 - 爱因斯坦方程最初是计算液相中的分子扩散系数的半经验公式, 特别适用于球形质点或分子在稀溶液中的扩散[6] [7]。Fick 扩散时, $Kn < 0.01$, 因此固体通道中 Fick 扩散主要是流体分子之间的碰撞, 与固体介质孔道壁面的碰撞较少, 可近似于在纯气体中的情况, 扩散系数即为理想气体的扩散系数:

$$D_f = \frac{1}{3} \lambda \bar{v} = \frac{1}{3} \frac{K_B T}{\sqrt{2\pi} \delta^2 p} \left(\frac{8RT}{\pi M} \right)^{0.5} \quad (4)$$

式中 D_f ——Fick 扩散系数, m^2/s ; K_B ——波尔兹曼常数, $1.38 \times 10^{-23} J/K$; δ ——气体分子直径, m; p ——压力, Pa。

其实, 菲克扩散和克努森扩散实质上是相同的, 都是宏观上分子的定向运动, 只是克努森扩散受到通道壁面的影响。

2.3. 过渡区扩散

在过渡区(Transition), 扩散由 Bosanquit 公式描述[9], 其由 Knudsen 扩散和 Fick 扩散综合而来[6], 即:

$$\bar{D} = \left(D_{fick}^{-1} + D_k^{-1} \right)^{-1} \quad (5)$$

表 1 为不同压力和孔隙特征尺度下的克努森值, 可知页岩气渗流中大部分的扩散都不属于克努森扩散, 有部分情况属于 Fick 扩散, 另一些部分情况属于过渡扩散。

表 2 为不同压力和孔隙特征尺度下的 D_k, \bar{D}, D_f 值: 过渡区扩散的扩散系数与 Fick 扩散的系数相差不大, 所以在计算页岩气扩散因素时, 显然过渡区扩散和 Fick 扩散系数更准确一些。

从上面分析来看, 克努森扩散、菲克扩散以及过渡区扩散本质上都是一致的, 都是分子扩散在不同尺度下的不同表现。这里, 我们给出一个在全尺度下统一的气体扩散系数公式:

$$D = \frac{1}{3} \lambda \bar{v} = \frac{1}{3} \min \left(\frac{K_B T}{\sqrt{2\pi} \delta^2 p}, d \right) \cdot \left(\frac{8RT}{\pi M} \right)^{0.5} \quad (6)$$

另外: 由于对扩散机理理解的不同, 部分文献得到了不恰当的结果, 如文献[10]和[11]中, 将气体平均自由程误认为是孔隙的直径(当作克努森扩散)。也有文献在分析页岩气渗流的特征时, 将扩散系数当成

Table 1. Kn in different pressures and pore characteristic scales
表 1. 不同压力和孔隙特征尺度下的克努森值

特征直径	平均压力					
	1 MPa	5 MPa	10 MPa	20 MPa	30 MPa	40 MPa
10 nm	0.59	0.12	0.059	0.029	0.020	0.015
20 nm	0.29	0.059	0.029	0.015	0.0098	0.0073
30 nm	0.20	0.039	0.020	0.0098	0.0065	0.0049
40 nm	0.15	0.029	0.015	0.0073	0.0049	0.0037
50 nm	0.12	0.023	0.012	0.0059	0.0039	0.0029
60 nm	0.10	0.020	0.0098	0.0049	0.0033	0.0024
70 nm	0.084	0.017	0.0084	0.0042	0.0028	0.0021
80 nm	0.073	0.015	0.0073	0.0037	0.0024	0.0018
90 nm	0.065	0.013	0.0065	0.0033	0.0022	0.0016
100 nm	0.059	0.012	0.0059	0.0029	0.0020	0.0015

Table 2. D_f, \bar{D}, D_k ($10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$) in different pressures and pore characteristic scales
表 2. 不同压力和孔隙特征尺度下的 D_k, \bar{D}, D_f ($10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$) 值

特征直径	平均压力					
	D_f, \bar{D}, D_k 1 MPa	5 MPa	10 MPa	20 MPa	30 MPa	40 MPa
10 nm	21.77, 8.04, 12.8	21.77, 2.28, 2.55	21.77, 1.20, 1.28	21.77, 0.62, 0.64	21.77, 0.42, 0.43	21.77, 0.31, 0.32
20 nm	43.54, 9.86, 12.8	43.54, 2.41, 2.55	43.54, 1.24, 1.28	43.54, 0.63, 0.64	43.54, 0.42, 0.43	43.54, 0.32, 0.32
30 nm	65.31, 10.7, 12.8	65.31, 2.45, 2.55	65.31, 1.25, 1.28	65.31, 0.63, 0.64	65.31, 0.42, 0.43	65.31, 0.32, 0.32
40 nm	87.08, 11.1, 12.8	87.08, 2.48, 2.55	87.08, 1.26, 1.28	87.08, 0.63, 0.64	87.08, 0.42, 0.43	87.08, 0.32, 0.32
50 nm	108.85, 11.4, 12.8	108.85, 2.49, 2.55	108.85, 1.26, 1.28	108.85, 0.63, 0.64	108.85, 0.42, 0.43	108.85, 0.32, 0.32
60 nm	130.62, 11.6, 12.8	130.62, 2.50, 2.55	130.62, 1.26, 1.28	130.62, 0.63, 0.64	130.62, 0.42, 0.43	130.62, 0.32, 0.32
70 nm	152.39, 11.8, 12.8	152.39, 2.51, 2.55	152.39, 1.26, 1.28	152.39, 0.63, 0.64	152.39, 0.42, 0.43	152.39, 0.32, 0.32
80 nm	174.16, 11.9, 12.8	174.16, 2.51, 2.55	174.16, 1.27, 1.28	174.16, 0.64, 0.64	174.16, 0.42, 0.43	174.16, 0.32, 0.32
90 nm	195.93, 12.0, 12.8	195.93, 2.52, 2.55	195.93, 1.27, 1.28	195.93, 0.64, 0.64	195.93, 0.42, 0.43	195.93, 0.32, 0.32
100 nm	217.70, 12.1, 12.8	217.70, 2.52, 2.55	217.70, 1.27, 1.28	217.70, 0.64, 0.64	217.70, 0.42, 0.43	217.70, 0.32, 0.32

定值[12], 未考虑扩散系数是随压力变化的, 给扩散系数直接赋值, 这样的分析肯定是不妥的。

2.4. 表面扩散

所谓表面扩散就是吸附在孔隙介质表面的分子沿着固体表面移动的现象。页岩干酪根和泥岩表面都吸附着大量气体, 2009年 Fathi 和 Akkutlu [13]指出表面扩散可能是页岩气重要的运移机制, 但是目前还没有相关数学模型来描述该机制。表面扩散类似于固体中的扩散, 由于固体表面的吸附力的束缚, 表面扩散对页岩气渗流的影响远远小于游离气的扩散, 因此在页岩气渗流中一般没有考虑。

3. 扩散流动对页岩气渗流的影响

3.1. 考虑扩散的页岩气渗流模型

页岩储层中的扩散作用是指在浓度差的作用下，游离相天然气从高浓度区域向低浓度区域运动，即天然气由基质向裂缝系统进行扩散，当区域浓度平衡时，扩散现象停止[14]。

达西流动产生的气体体积流量为：

$$q_1 = \frac{kA}{\mu} |\nabla p| \quad (7)$$

式中 q_1 ——达西流体积流量， m^3/s ； k ——渗透率， m^2 ； A ——流动截面积， m^2 ； μ ——流体粘度， $\text{Pa}\cdot\text{s}$ ； ∇p ——压力梯度， Pa/m 。

由扩散引起的气体体积流量为：

$$q_2 = \frac{MDA}{\rho} |\nabla p| \quad (8)$$

式中 q_2 ——扩散产生体积流量， m^3/s ； ρ ——气体密度， kg/m^3 ； C ——气体浓度， mol/m^3 ； l ——流动长度， m 。

对于真实气体， $C = \frac{\rho}{M}$ ， $\rho = \frac{pM}{ZRT}$ ，式中 Z ——气体压缩因子，无量纲。

假设 Z 为常数，则公式(2)变形为：

$$q_2 = \frac{DA}{p} |\nabla p| \quad (9)$$

则考虑扩散时，气体体积流量公式为：

$$q = q_1 + q_2 = \frac{k}{\mu} \left(1 + \frac{\mu D}{k p} \right) A |\nabla p| \quad (10)$$

式中 q ——考虑扩散作用的气体流量， m^3/s 。

3.2. 平均压力对扩散的影响

由于页岩气主要成分是甲烷，因此模型计算中所选气体为甲烷，选取页岩储层物性参数数据，计算压力梯度分别为0.1, 0.5, 1MPa/m时页岩基质随着储层压力降低其气体的流量变化。其中的关键参数是：

$$\mu = 0.015 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s} \quad [15], \quad k = 0.005 \times 10^{-15} \text{ m}^2, \quad A = 100 \text{ m}^2, \quad M = 16.04 \times 10^{-3} \text{ kg/mol},$$

$$R = 8.314 \text{ Pa}\cdot\text{m}^3/(\text{mol}\cdot\text{K}), \quad T = 323 \text{ K}, \quad \delta = 0.414 \text{ nm}, \quad d = 10 \text{ nm}.$$

由公式(6)计算出随压力变化的扩散系数，如图1所示：气体扩散系数随着压力的增加而逐渐减小。

根据此数学模型及相关页岩参数，计算得到压力梯度分别为0.1, 0.5, 1 MPa/m时，不同压力下Knudsen扩散引起体积流量变化曲线和甲烷分子扩散流动的分配系数变化曲线。

由图2可知：储层在压力较低的情况下，气体渗流受扩散效应影响较强，而在储层压力较高的情况下扩散效应不明显。达西、扩散产生体积流量均与压力梯度成正比，即压力梯度越大，流量越大。

由图3可知，在储层压力较高时，甲烷气体分子扩散流动流量分配系数很低，气体分子以达西流动为主，随储层压力下降扩散流动分配系数增加。与相关文献曲线趋势相同[16]。

从公式(4)和图3可以看出，压力梯度也不影响扩散因素对达西流的影响，所以在图4中，无论压力梯

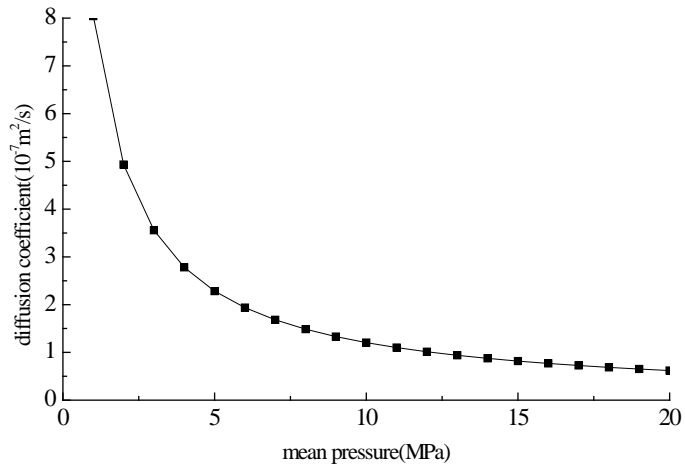


Figure 1. The diffusion coefficient D change with mean pressure
图1. 扩散系数 D 随平均压力变化

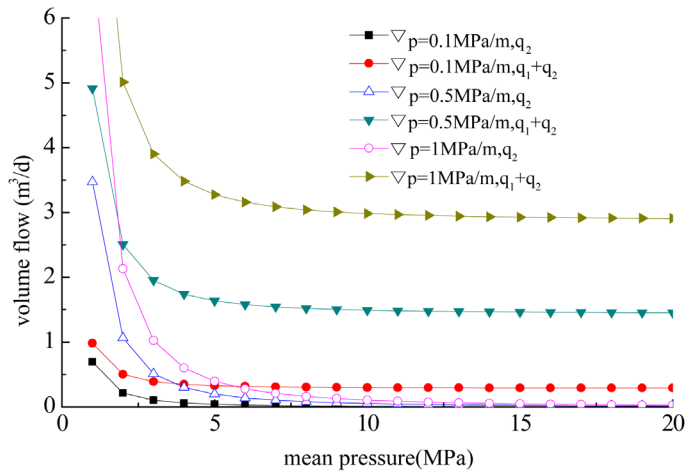


Figure 2. The diffusion flow change with reservoir pressure
图2. 扩散产生流量随储层压力变化

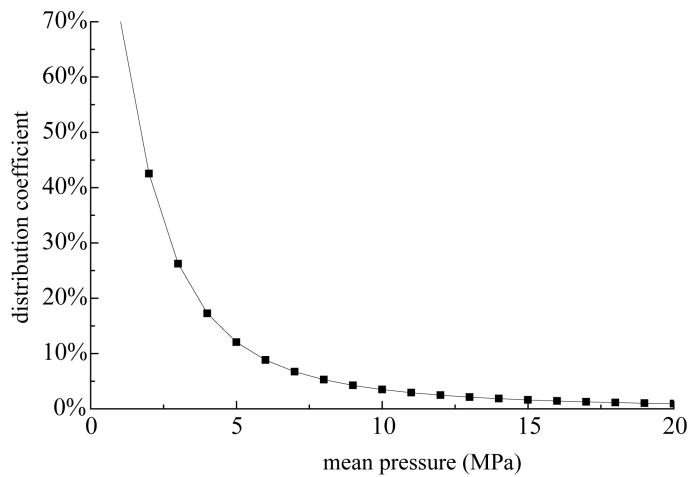


Figure 3. The distribution coefficients of diffusion flow
图3. 扩散流动分配系数

度等于多少(在合理的范围内), 扩散分配系数图都是重合的。

3.3. 压力梯度对扩散的影响

将页岩储层物性参数数据代入公式(2)和(4), 分别计算 $p = 1 \text{ MPa}$, $p = 5 \text{ MPa}$ 和 $p = 10 \text{ MPa}$ 时流量随压力梯度的变化关系, 并制图如下:

从图4可以看出: 平均压力不影响达西体积流量, 因此在图4中, 压力1、5、10 MPa下, 达西流曲线重合。压力梯度不影响扩散和达西流在渗流流量中的比例, 并随压力梯度的增大, 各流量成比例增大。

3.4. 渗透率对扩散的影响

将页岩储层物性参数数据代入公式(2)和(4), 分别计算 $p = 1 \text{ MPa}$, $p = 5 \text{ MPa}$ 和 $p = 10 \text{ MPa}$ 时流量随渗透率的变化关系, 如图5所示: 图5为不同压力梯度下渗透率影响的扩散流量和达西流量的变化, 由

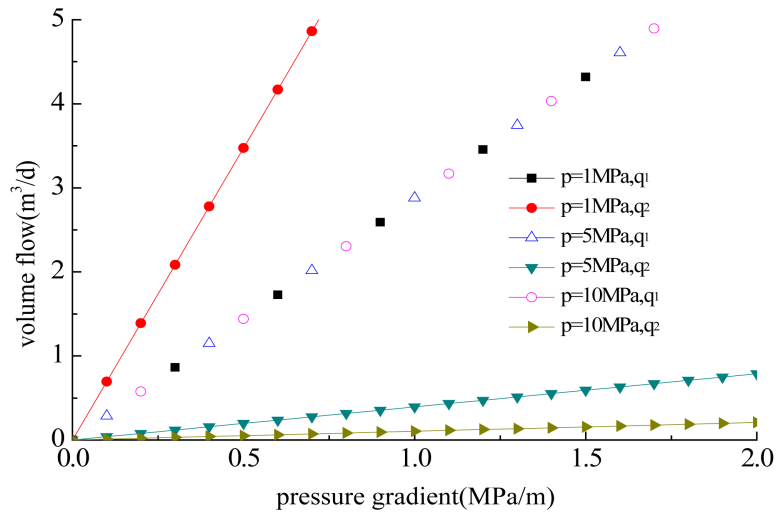


Figure 4. The volume flow change with pressure gradient
图4. 体积流量随压力梯度变化

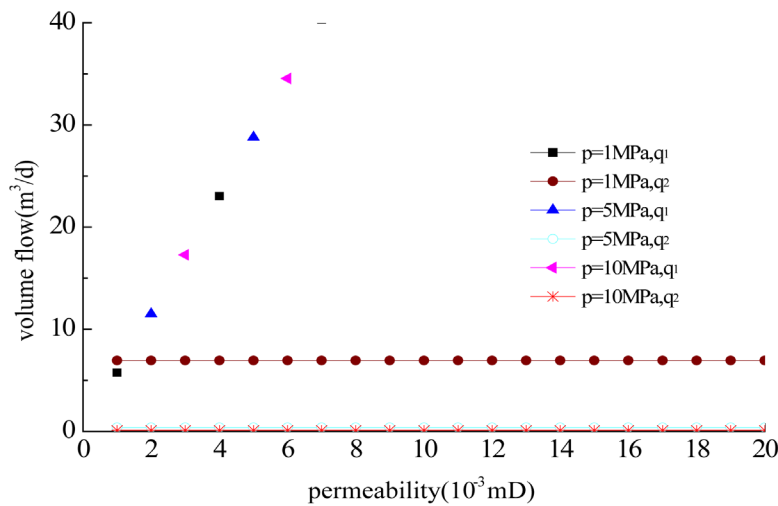


Figure 5. The volume flow change with permeability ($\nabla p = 1 \text{ MPa/m}$)
图5. 体积流量随渗透率变化 ($\nabla p = 1 \text{ MPa/m}$)

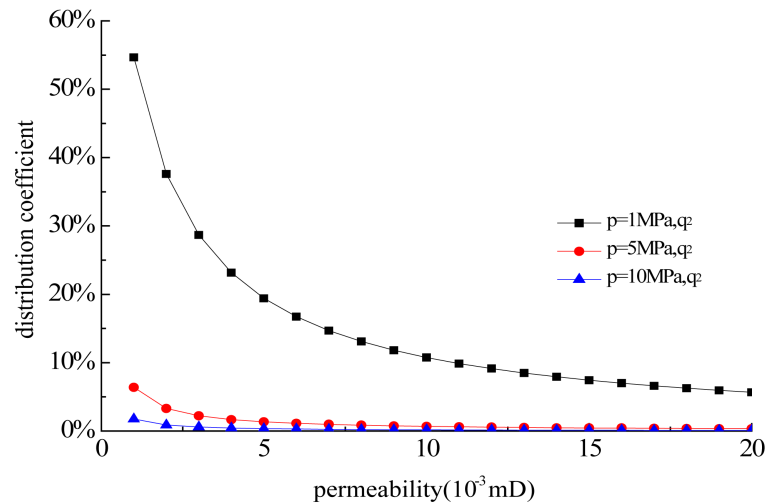


Figure 6. The flow distribution contrast in different permeabilities
图6. 渗透率不同条件下流量分配对比

图5可知，达西体积流量均随着渗透率增大而增大；扩散产生体积流量与渗透率大小无关，这也可以从公式(4)中看出。

图6为渗透率影响的流量分配的变化，由图可知：扩散流占比随渗透率、平均压力的增大而减小。

4. 结论

本文首先分析了页岩气扩散的机理和种类，继而分析了页岩气流动中扩散的影响。可得出以下结论：

- 1) 扩散主要在低压下影响页岩气的渗流：在低压条件下，扩散产生气体流量所占比例较大，随着地层压力的增大，扩散作用明显减弱；扩散产生体积流量随压力梯度增大而增大，与渗透率大小无关。
- 2) 达西流动产生气体流量与压力梯度和渗透率成正比；高压条件下，渗流以达西流为主。
- 3) 扩散系数与页岩气藏的平均压力和孔径半径密切相关，分子自由程不能简单用孔隙直径表示。

基金项目

国家重点基础研究发展计划(2013CB228002)。

参考文献 (References)

- [1] Javadpour, F., Fisher, D. and Unsworth, M. (2007) Nanoscale Gas Flow in Shale Gas Sediments. *Journal of Canadian Petroleum Technology*, **46**, 55-61.
- [2] Javadpour, F. (2009) Nanopores and Apparent Permeability of Gas Flow in Mudrocks (Shales and Siltstone). *Journal of Canadian Petroleum Technology*, **48**, 16-21.
- [3] Sondergeld, C.H., Newsham, K.E., Comisky, J.T., et al. (2010) Petrophysical Considerations in Evaluating and Producing Shale Gas Resources. Society of Petroleum Engineers, Pittsburgh.
- [4] Roy, S., Raju, R., Chuang, H.F., et al. (2003) Modeling Gas Flow through Microchannels and Nanopores. *Journal of Applied Physics*, **93**, 4870-4879.
- [5] Sigal, R.F. and Qin, B.F. (2008) Examination of the Importance of Self Diffusion in the Transportation of Gas in Shale Gas Reservoirs. *Petro Physics*, **49**, 301-305.
- [6] 陈晋南 (2004) 传递过程原理. 化学工业出版社, 北京.
- [7] 时钧 (1996) 化学工程手册. 化学工业出版社, 北京.
- [8] Steckelmacher, W. (1986) Knudsen Flow 75 Years on: The Current State of the Art for Flow of Rarefied Gases in Tubes and Systems. *Reports on Progress in Physics*, **49**, 1083-1107.

- [9] 近藤精一 (2006) 吸附科学. 化学工业出版社, 北京.
- [10] 姚同玉, 黄延章, 李继山 (2012) 页岩气在超低渗介质中的渗流行为. *力学学报*, **44**, 990-995.
- [11] 李治平, 李智锋 (2012) 页岩气纳米级孔隙渗流动态特征. *天然气工业*, **32**, 50-53.
- [12] 于荣泽, 张晓伟, 卞亚南, 等 (2012) 页岩气藏流动机理与产能影响因素分析. *天然气工业*, **32**, 10-15.
- [13] Fathi, E. and Akkutlu, I.Y. (2009) Matrix Heterogeneity Effects on Gas Transport and Adsorption in Coalbed and Shale Gas Reservoirs. *Transport in Porous Media*, **80**, 281-304.
- [14] Sampath, K. and Keighin, C.W. (1982) Factors Affecting Gas Slippage in Tight Sandstones of Cretaceous Age in the Uinta Basin, SPE9872.
- [15] API RP 27 (1956) Recommended Practice for Determining Permeability of Porous Media. 3rd Edition, API, Washington DC.
- [16] 高树生, 于兴河, 刘华勋 (2012) 滑脱效应对页岩气井产能影响的分析. *开发工程*, **31**, 55-58.