

文章编号: 1000-7598 (2011)增刊 2-0198-06

# 不同水合物含量含二氧化碳水合物砂三轴试验研究

魏厚振, 颜荣涛, 陈 盼, 田慧会, 吴二林, 韦昌富

(中国科学院武汉岩土力学研究所 岩土力学与工程国家重点实验室, 武汉 430071)

**摘 要:** 天然气水合物是一种战略性替代能源, 又是全球气候环境问题和地质灾害的诱发因素之一。研究含天然气水合物沉积物的变形和强度等力学特性成为保障天然气水合物开发利用中工程与环境安全的一项重要研究内容。通过不同初始含水率控制试样的水合物含量的方法, 开展不同水合物含量的粉质砂的三轴剪切试验, 研究水合物含量对赋存介质的强度与变形特性的影响。试验结果表明, 水合物在砂样中的填充与胶结作用, 使得含水合物试样的剪切模量明显增加, 进一步采用双曲线模型对各试样初始模量的计算与分析后发现, 相同净围压下, 随着水合物含量增加, 试样的初始剪切模量具有上升趋势, 但上升趋势变缓; 试样强度随水合物含量增加而增大, 但水合物含量高的试样破坏峰值强度与净围压并不是线性关系, 净围压越大其峰值强度相应偏小; 通过摩尔-库仑定律得出的试样强度指标可知, 试样内摩擦角随水合物含量增加而增大, 但增加幅度不大, 但水合物含量 31.0% 和 51.0% 试样的与含水合物 0% 和 19.7% 试样相比, 前 2 组试样具有较大黏聚力  $c$  值。因此, 水合物对试样强度增长的贡献主要是其在试样中的胶结作用产生, 且其对强度影响还受含量和赋存形态的控制。

**关 键 词:** 含水合物砂; 力学特性; 三轴剪切试验**中图分类号:** TU 443**文献标识码:** A

## Deformation and failure behavior of carbon dioxide hydrate-bearing sands with different hydrate contents under triaxial shear tests

WEI Hou-zhen, YAN Rong-tao, CHEN Pan, TIAN Hui-hui, WU Er-lin, WEI Chang-fu

(State Key Laboratory of Geomechanics and Geotechnical Engineering, Institute of Rock and Soil Mechanics,  
Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071, China)

**Abstract:** Natural gas hydrate is one of the most important potential energy sources, which is a triggering factor of global climate change and geologic hazards. It is necessary to research engineering characteristic of hydrate-bearing sediment to insure the exploitation of hydrate successfully. A triaxial shear apparatus developed by ourselves was used to test the deformation and failure behaviors of sand with different hydrate content controlled by different original water content. As a result, it is found that the shear modulus of hydrate-bearing sand increased sharply because of samples filled and cemented by hydrate in pore, and original shear modulus of samples increased with increment of hydrate content at the same confining pressure in hyperbolic model. Friction angle increases with increment of hydrate contents slightly; however compared with the samples contained 31.0% and 51.0% hydrate, cohesion of the former two groups are much more than the latter two. Thus the contribution of strength increment is the cementation of hydrate on grains, and the effect is controlled by content and distribution of hydrate in samples.

**Key words:** hydrates bearing sand; mechanical behavior; triaxial shear test

### 1 前 言

随着日益增长的经济与社会需求, 我国正面临巨大的能源压力。能源紧张已成为制约我国经济和

社会可持续发展的重要问题。解决我国的能源问题, 不仅要努力提高常规能源的利用效率和效益, 更为重要的是要积极开发利用新型替代能源<sup>[1]</sup>。天然气水合物是主要分布在海洋和大陆多年冻土中的

收稿日期: 2010-12-13

基金项目: 中国科学院知识创新工程重要方向项目资助 (No. KZCX2-YW-JS108); 岩土力学与工程国家重点实验室前沿领域探索性项目资助 (No. SKLQ014)。

第一作者简介: 魏厚振, 男, 1980 年生, 博士, 助理研究员, 从事天然气水合物开发利用中的岩土力学与工程问题。E-mail: weihouzhen@163.com  
通讯作者: 韦昌富, 男, 1966 年生, 博士, 研究员, 博士生导师, 从事多孔介质多相多场耦合理论及其应用、天然气水合物开发利用中的岩土力学与工程问题研究。E-mail: cfwei@whrsm.ac.cn

一种具有巨大商业开发价值的新型战略性替代能源<sup>[2]</sup>。我国 2007 年 5 月和 2009 年 9 月分别在南海海洋和青海祁连山冻土区成功钻取到天然气水合物样品, 标志着我国成为世界少数几个成功获取水合物样品的国家之一, 目前已着手准备进行试验性开采。然而, 受环境变化以及人工工程活动的影响, 天然气水合物的分解将诱发崩塌、沉陷和滑坡等地质灾害, 使周边工程和环境遭受灾难性破坏<sup>[3]</sup>, 因此, 测定含天然气水合物沉积物的物理力学参数, 揭示含天然气水合物沉积物的变形和强度等工程特性变化机理, 成为保障天然气水合物开发利用中工程与环境安全的重要研究内容之一。

鉴于现场取芯和原位实验技术的局限, 目前对含水合物沉积物强度和变形等力学特性的研究主要是利用室内人工制得的含水合物沉积物试样进行试验。Wu 等<sup>[4]</sup>利用三轴仪对不同饱和度的含 CO<sub>2</sub> 水合物砂进行三轴剪切试验, 结果表明水合物饱和度较大的砂具有较大的三轴强度, 且水合物分解会导致试样内孔隙水压力上升导致试样破坏。Winters 等<sup>[5]</sup>利用美国地质调查局的天然气水合物和沉积物模拟实验装置 (GHASTLI), 对加拿大 Mallik 多年冻土地区钻取的含水合物沉积物试样和室内合成的含甲烷水合物渥太华砂样进行声波测试和三轴试验, 研究了在沉积物的孔隙中分别充满水合物和冰时的声波特性、水合物形成条件对试样声波特性的影响以及水合物含量分布、沉积物性质对强度的影响等。Hyodo 等<sup>[6-7]</sup>对含甲烷水合物砂进行了较为系统的室内三轴剪切实验, 得到了含甲烷水合物砂的力学性质与温度、孔压、有效围压和甲烷饱和度的关系以及甲烷分解过程中砂样应变、体变与有效围压、剪应力和临界孔隙比的关系。Masui<sup>[8-9]</sup>等采用相同的仪器, 对日本南海海槽 (Nankai Trough) 地区钻取的 4 个原状水合物岩芯样和室内合成水合物 Toyoura 砂样的三轴试验研究。国内从事有关含水合物沉积物力学特性研究尚属初步。Yun and Santamarina, et al<sup>[10]</sup>测试了在不同围压条件下砂土、粉土和黏土含不同饱和度四氢呋喃水合物的力学强度, 分析认为沉积物沉积物的颗粒大小及其分布、围压和水合物饱和度对强度有很明显影响, 同时沉积物表面会影响 THF 水合物的形成以及分布模式, 进而影响其力学强度。中国科学院力学研究所鲁晓兵、张旭辉和王淑云等<sup>[11-12]</sup>用自行研制改装的水合物沉积物合成与分解及三轴装置, 对含水合物沉积物的力学特性开展相关研究, 取得了有意义的成果。

本次通过自行改装的三轴仪器, 在试验仪器内控制水合物形成条件与环境, 制得均匀的含水合物试样后开展三轴剪切试验, 并通过控制不同初始含水率间接得到不同水合物含量对含水合物三轴剪切特性影响特征, 对于深入开展相关含水合物物理力学特性研究具有一定的价值与意义。

## 2 试验方法与仪器

### 2.1 制样方法

由于目前天然原状含天然气水合物沉积物试样非常不易获得, 目前大多数实验研究均采用实验室内人工制备的方法进行试验。力学特性研究中常采用的人工制备 HBS 试样主要有两种方法。一种方法是, 先在一定的压力和温度条件下利用水雾与气体相结合形成粉末状的固体气水合物, 接着将固体水合物颗粒与土颗粒混合, 再把制成的混合物放入低温的环境中以开展试验。第二种方法是, 首先制成具有一定含水率的土试样, 将其放入实验装置内, 然后施加一定压力的气体, 并降低温度后即可形成 HBS 试样。本次采用第二种方法在试验仪器内制样后开展剪切试验, 试验中控制土样中孔隙 CO<sub>2</sub> 气体压力为 4.0 MPa, 温度为 1.0℃, 该温度与压力条件位于 CO<sub>2</sub> 气体水合物形成相平衡关系曲线的稳定区域, 从而可使 CO<sub>2</sub> 气体与水可结合形成水合物。

### 2.2 试验仪器

根据试验要求自行设计加工了可对试样温度控制和施加高压气体的三轴压力室, 并通过英国 WF 公司生产的高压土工三轴仪进行围压与轴压加载控制以及应力应变数据测量, 仪器示意图如图 1 所示。整套装置由以下几部分组成: ①三轴室。土样安装在内部, 利用低温冷液在土样周边的环形换热器中循环制冷, 内置精度为±0.1℃的 Pt100 型铂金电阻温度传感器测试内部温度, 外覆 20 mm 的保温材料。其中循环换热器进出口位于三轴压力室上部, 装卸试样时连同压力室上部一起装卸, 压力室底座分别与围压系统和供气装置连接; ②供气装置。通过调压阀将气瓶内一定压力的气体施加至土样内, 气体压力值由压力表显示。③真空泵。主要作用是实验前抽除系统管路中的空气; ④卸压与回收装置。主要作用是试验结束后对系统内部气体进行安全卸压与回收。⑤恒温装置。采用内置冷液循环泵的低温制冷装置制得恒温冷媒介质对土样进行温度控制。整套系统设计最高压力为 40 MPa, 温度控制范围为-20~20℃, 精度为±0.1℃, 气体压力

表量程为 0~10 MPa, 精度±0.1%FS。

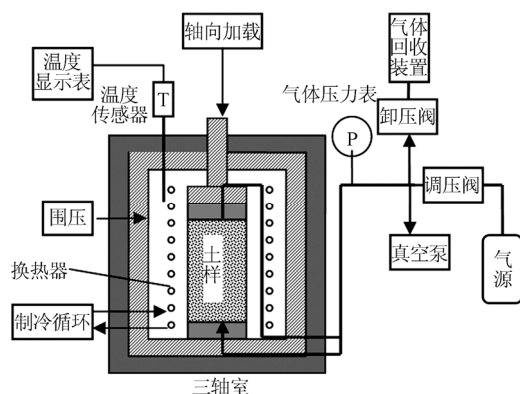


图1 装置结构示意图

Fig.1 Sketch of apparatus structure

### 2.3 试验材料

考虑到 CO<sub>2</sub> 不属于易燃易爆危险气体, 同时与水结合生成水合物所需温度与压力条件较为容易, 且形成的水合物结构与甲烷气体水合物结构一致。本次试验采用纯度为 99.99% CO<sub>2</sub> 气体, 土粒的相对密度 G<sub>s</sub> = 2.67, 干密度为 1.40 g/cm<sup>3</sup> 的粉质砂, 颗粒分布曲线如图 2 所示。

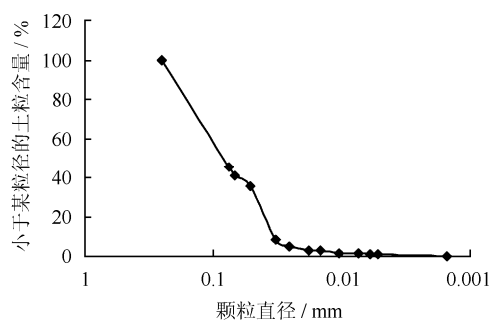


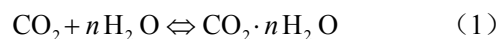
图2 实验砂土颗粒分布图

Fig.2 Distribution of particle sizes for sand

### 2.4 试验方案与步骤

由于试验仪器目前还无法实时准确地测试试样中水合物含量, 但在相平衡稳定区域内温压恒定、气体供给充足且时间充分的情况下, 由于砂土的毛细效应并不显著, 试样中的水分可与气体充分结合最终绝大部分将形成水合物。因此, 试样初始含水率与试样最终形成的水合物量具有很强的相关性。基于以上假设, 本次试验采用初始含水率分别为 0、12.5%、23.5%、32.5% 的试样, 在净围压分别为 1.0、1.5、2.0 MPa 下进行三轴剪切试验, 剪切过程中试样温度始终保持在 1.0℃, 孔压为 4.0 MPa。其中含水率为 0 时土样为 105℃ 烘干 8 h 后的烘干土样。

据式 (1),  $n$  mol 水对应生成 1 mol 的水合物, 一般  $n$  取 4.25, 假定水与 CO<sub>2</sub> 气体反应全部生成水合物, 由此可以计算得出水合物质量百分比, 相应的初始含水率为 12.5%、23.5%、32.5% 试样中水合物完成形成后的水合物质量百分比 (水合物质量与土颗粒质量之比), 分别为 19.7%、37.0%、51.0%



试验开始前清洗仪器各部件, 并检查气密性后, 将砂样按干密度为 1.40 g/cm<sup>3</sup> 制好安装至三轴压力室内, 密封好各部件, 开启真空泵, 抽除系统内空气。然后开启围压系统向试样施加围压, 开启供气装置, 向土样中施加 CO<sub>2</sub> 气体, 施加过程中保持总围压与孔压的差值为 1.0 MPa 左右, 待气体压力达到 4.0 MPa 后, 根据设定的不同净围压向土样施加不同的总围压。保持围压与孔隙气压恒定 12 h, 使 CO<sub>2</sub> 气体充分溶解于土样孔隙水后开启制冷循环系统, 将土样降温至 1.0℃ 并保持恒定 36 h, 从而保证土样中的孔隙水能与 CO<sub>2</sub> 气体充分反应形成水合物, 同时完成了土样在相应净围压条件下的固结。由于砂土试样中毛细效应较小, 且围压与孔隙压力较大, 本试验认为孔隙中的气体压力与水压力相等, 其有效净压力为围压与孔隙气压的差值。

试样中水合物形成完毕后, 开机进行剪切, 剪切速率为 0.5 mm/min, 剪切过程中每 30 s 记录土样剪切应力和应变数据, 试样应变达 10%~15% 即变形为 10~15 mm 时试验停止, 关闭供气装置, 开启卸压阀门, 安全卸除系统内的压力, 并将排出气体统一收集至回收装置内。

## 3 试验结果与讨论

### 3.1 应力-应变关系

不同水合物含量的 4 组试验主应力差与轴向应变关系如图 3 所示。从图中可以看出, 不含水合物的土样与水合物含量为 19.7% 土样的应力-应变关系曲线中无明显峰值点, 随着水合物含量的增大, 试样开始具有明显的峰值点, 尤其是含水率为 51.0% 试样, 较低净围压 1.0 MPa 时峰值点更为明显。由于试验用的土样较为松散, 不含水合物的土样的应力-应变曲线呈应变硬化型, 但随着水合物含量的增多, 其作为固体填充于土样孔隙中, 并对颗粒产生明显胶结作用, 导致土样由应变硬化向应变硬化-软化型的转变。

### 3.2 初始弹模

根据 Duncan-Chang 模型, 采用双曲线拟合应力-应变曲线有

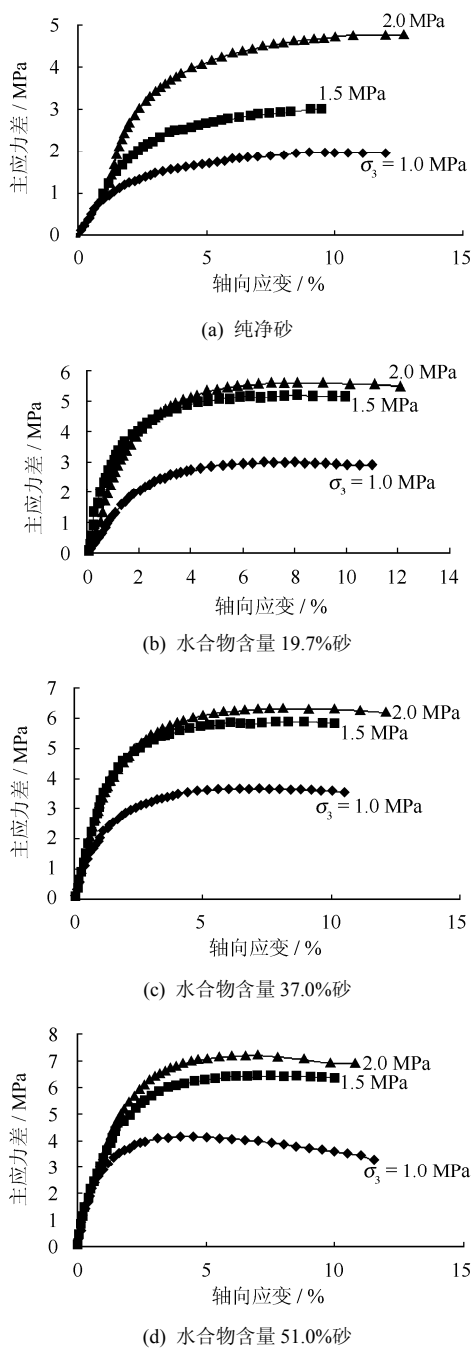


图 3 应力-应变关系曲线  
Fig.3 Stress-strain curves of hydrate-bearing sands with different hydrate contents

$$\sigma_1 - \sigma_3 = \frac{\varepsilon_a}{a + b\varepsilon_a} \quad (2)$$

从而

$$E_t = \frac{d(\sigma_1 - \sigma_3)}{d\varepsilon_1} = \frac{a}{(a + b\varepsilon_a)^2} = \frac{1}{a} [1 - b(\sigma_1 - \sigma_3)]^2 \quad (3)$$

由式 (3) 可得

$$a = \left( \frac{\varepsilon_a}{\sigma_1 - \sigma_3} \right)_{\varepsilon_a \rightarrow 0} = \frac{1}{E_0} \quad (4)$$

初始弹模  $E_0 = \frac{1}{a}$ ，根据式 (4)，各含量土样在

不同净围压下的初始弹模值计算结果见图 4。从图可知，相同净围压下各试样的初始剪切模量  $E_0$  随水合物含量增加而增大，原因是随着试样中水合物含量的增加，固体水合物填充试样孔隙内产生明显胶结作用，从而使得土样模量增大。同时，试样初始剪切模量随净围压增加而增大，但含水合物试样 3 组与不含水合物试样的增加模式有明显区别，主要表现为含水合物试样在较高围压下初始剪切模量  $E_0$  值的增加幅度低于不含水合物试样的增加值。图还可以看出，净围压为 1.0 MPa 下的水合物含量为 51.0% 的初始剪切模量比 37.0% 剪切模量略有下降，原因可能是因为 51.0% 在净围压 1.0 MPa 时应力-应变曲线呈应力硬化-软化型，采用双曲线不能很好拟合的原因。

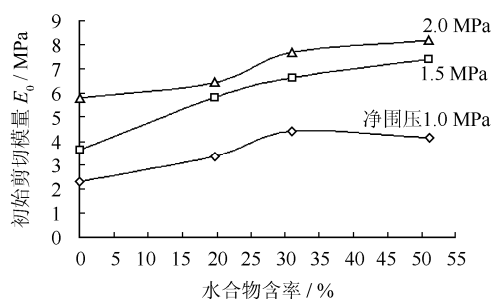


图 4 含水合物砂  $E_0$  随水合物含量变化关系曲线  
Fig.4 Relationships between  $E_0$  and hydrate content for hydrate-bearing sands

### 3.3 强度指标与水合物含量关系特征

将图 3 中不同水合物含量三轴剪切试验的破坏强度值与净围压值（曲线没有明显峰值以应变 5% 对应应力值处作为强度值）绘于图 5。由图可以看出，各组试样破坏强度值随水合物含量增加而增大，但含水合物 3 组试样的变化曲线与不含水合物试样的变化曲线有明显区别，其特征表现为破坏强度值与净围压值并非线性增加，而是随围压增大而减缓增加。主要原因是含水合物试样在较高应力作用下土样内水合物固体颗粒承受较高的应力以及孔隙压力发生显著变化，改变了水合物相平衡状态，导致水合物除本身物理破裂以外，还将发生相变分解成为气体与水，使得土样强度降低。

根据摩尔-库仑定律，土样的强度包络线可以表示为

$$\tau = c + \sigma \tan \varphi \quad (5)$$

式中： $\tau$  为抗剪强度； $c$  为黏聚力； $\sigma$  为法向应力； $\varphi$  为内摩擦角。

从式 (3) 可以看出，土的强度由  $c$ 、 $\varphi$  两部分组成： $c$  和  $\tan \varphi$ 。通常  $c$  主要是黏聚力，而纯净砂

土不具有黏聚力, 后者为摩擦强度。采用应力库仑-摩尔公式计算计算各组试样强度指标, 如图 6 所示。

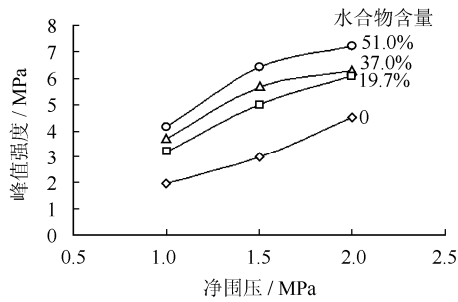
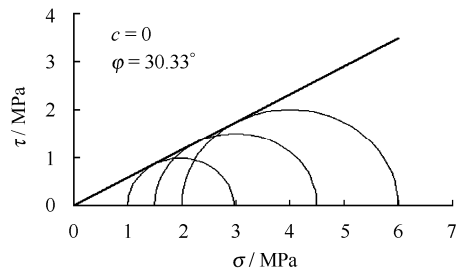
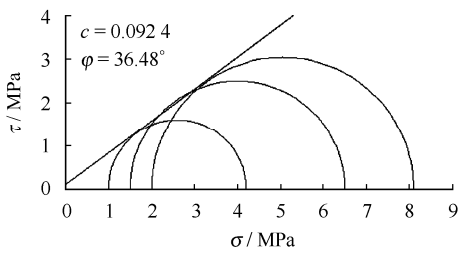


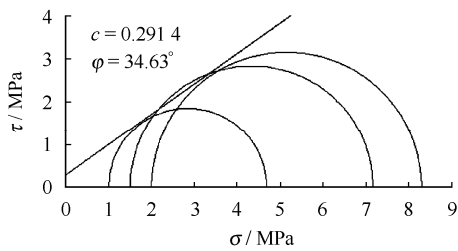
图 5 试样破坏强度与净围压关系图  
Fig.5 Relationships between strength and net confining pressure



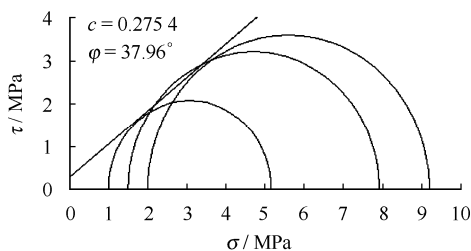
(a) 水合物含量 0%砂(干砂)



(b) 水合物含量 19.7%砂



(c) 水合物含量 37.0%砂



(d) 水合物含量 51.0%砂

图 6 不同水合物含量试样的应力摩尔圆  
Fig.6 Mohr's failure envelopes of hydrate-bearing sands with different hydrate contents

由图 7、8 可以看出, 含水合物土样的强度包络线采用直线并不能非常准确地反应土的强度特性。但为简单并便于对比, 本文仍采用摩尔-库仑原理进行强度指标拟合, 根据拟合结果提取黏聚力  $c$  和摩擦角  $\varphi$  并进行分析。如图 7 所示, 4 组试样内摩擦角  $\varphi$  相差并不明显, 即水合物对试样内摩擦角  $\varphi$  影响不大。如图 8 所示。由于水合物存在使得含水合物试样的具有较大的  $c$  值, 纯净细砂不具有黏聚力, 因此, 这里的  $c$  值主要是土样中水合物在颗粒间间的胶结作用。此外, 由水合物含量 37.0% 试样  $c$  值明显较 19.7% 土样  $c$  值要大, 而水合物含量 37.0% 与 51.0% 土样的  $c$  值相差不多。其主要原因是由于土样孔隙大小并非均一分布, 水合物形成条件即相平衡关系与纯净气-水体系中水合物形成条件具有一定的差别。水合物形成时将受孔隙毛细效应影响, 将优先在大孔隙内生成, 从而导致初始含水率较低土样中形成的水合物主要赋存于大孔隙中, 随着初始含水率大的试样中形成的水合物将更多地填充于较小孔隙内, 并形成较好的胶结。同时还可看出, 较小水合物含量试样中的  $c$  值较小, 而在水合物含量 37.0% 和 51.0% 两个试样的  $c$  接近于初始含水率 19.7%  $c$  值的 3 倍。从图中可看出, 随着水合物含量的增加, 试样的  $\varphi$  值逐渐增大, 但增加幅度不明显。因此可以认为水合物对试样强度贡献主要是胶结导致的  $c$  值增大, 而对  $\varphi$  值增加不多, 且这样的强度贡献具有一个含量阈值, 即低于这一含量值时其胶结效应并不明显, 这与文献[10]中结论相一致。

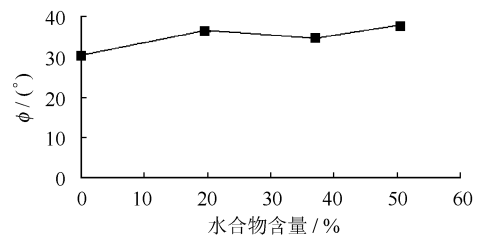


图 7  $\varphi$  值随水合物含量变化关系  
Fig.7 Relationship between friction angle  $\varphi$  and hydrate contents

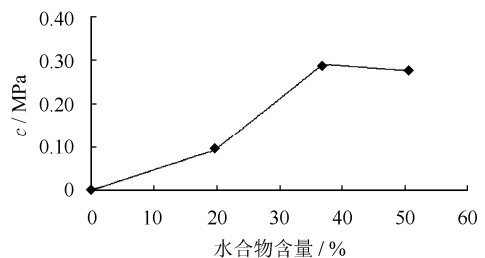


图 8  $c$  值随水合物含量变化关系图  
Fig.8 Relationship between cohesion  $c$  and hydrate content

## 4 结 论

(1) 水合物在砂样中的填充与胶结作用, 使得试样剪切模量增大, 应力-应变关系由应力硬化向应变硬化-软化转变。通过进行初始模量的计算与分析, 随着水合物含量增加, 试样的剪切模量具有上升趋势, 但上升趋势变缓。

(2) 不同净围压下试样破坏强度随水合物含量增加而增大, 但不同净围压下试样破坏强度值与净围压并非线性增加, 而是随净围压增大而减缓而增加。

(3) 试样内摩擦角  $\varphi$  值随水合物含量增加而增加, 但影响并不显著。水合物对试样强度贡献主要是胶结导致的  $c$  值增大, 且这样的强度贡献具有一个含量阈值, 即低于这一含量值时其胶结效应并不明显。

### 参 考 文 献

- [1] 中国科学院能源领域战略研究组. 中国至 2050 年能源科技发展路线图[M]. 北京: 科学出版社, 2009.
- [2] 金庆焕, 张光学, 杨木壮, 等. 天然气水合物资源概论[M]. 北京: 科学出版社, 2006.
- [3] SULTAN N, COCHONAT P, FOUCHER J P, et al. Effect of gas hydrates melting on seafloor slope instability[J]. **Marine Geology**, 2004, 213: 379—401.
- [4] WU Ling-yun, JOCELYN L H, GROZIC P. Laboratory analysis of carbon dioxide hydrate-bearing sands[J]. **Journal of Geotechnical and Geoenvironment Engineering. ASCE**, 2008, 134(4): 547—550.
- [5] WINTERS W J, WAITE W F, MASON D H, et al. Methane gas hydrate effect on sediment acoustic and strength properties[J]. **Journal of Petroleum Science and Engineering**, 2007, 56: 127—135.
- [6] HYODO M, NAKATA Y, YOSHIMOTO N, EBINUMA T. Basic research on the mechanical behavior of methane hydrate-sediment mixture[J]. **Soils and Foundations**, 2005, 45(1): 75—85.
- [7] HYODO M, NAKATA Y, YOSHIMOTO N, et al. Shear behaviour of methane hydrate-bearing sand[C]//Proceedings of Seventeenth (2007) International Offshore and Polar Engineering Conference, 2007. Lisbon, Portugal: [s. n.], 1326—1333.
- [8] MASUI A, HANEDA H, OGATA Y, AOKI K. Mechanical properties of sandy sediment containing marine gas hydrates in deep sea offshore Japan[C]//Proc. 17th Int. Offshore and Polar Engrg. Conf., Ocean Mining Symposium. Lisbon, Portugal, 2007, 53—56.
- [9] MASUI A, HANEDA H, OGATA Y, AOKI K. Effect of methane hydrate formation on shear strength of synthetic methane hydrate sediment[C]//Proc. 15<sup>th</sup> Int. Offshore and Polar Engrg. Conf. Seoul, Korea: [s. n.], 2005: 364—369.
- [10] YUN T S, SANTAMARINA J C, et al. Mechanical properties of sand, silt, and clay containing tetrahydrofuran hydrate[J]. **Journal of Geophysical Research-Solid Earth**, 2007, 112(B4): B04106.
- [11] LU Xiao-bing, WANG Li, WANG Shu-yun, et al. Study on the mechanical properties of Tetrahydrofuran hydrate deposit[C]//18th Proc. ISOPE. Vancouver: [s. n.], 2008: 57—60.
- [12] 张旭辉, 王淑云, 李清平, 等. 天然气水合物沉积物力学性质的试验研究[J]. **岩土力学**, 2010, 31(10): 3069—3074.
- ZHANG Xu-hui, WANG Shu-yun, LI Qing-ping, et al. Experimental study of mechanical properties of gas hydrate deposits[J]. **Rock and Soil Mechanic**, 2010, 31(10): 3069—3074.