

天然气水合物

天然气水合物动态成藏理论

樊栓狮^{1,3}, 关进安^{2,3,4}, 梁德青^{2,3}, 宁伏龙⁵

(1. 华南理工大学传热强化与过程节能教育部重点实验室, 广东 广州 510640;

2. 中国科学院广州能源研究所, 广东 广州 510640;

3. 中国科学院广州天然气水合物研究中心, 广东 广州 510640;

4. 中国科学院研究生院, 北京 100039; 5. 中国地质大学工程学院, 湖北 武汉 430074)

摘要:总结了天然气水合物的赋存状态及其分类,从生成和分解速度角度提出了天然气水合物的动态成藏理论,并依据冻土层钻井气体喷溢、海底水合物露头和海底羽状气泡流等实例论证了这种动态成藏理论。指出天然气水合物赋存状态主要有3种类型,即成长型(渗透型、扩散型)、成熟型和消退型,认为我国南海北部陆坡区的西沙海槽、东沙群岛东南坡、台西南盆地、笔架南盆地等区域有可能存在着仍处于发育阶段的渗透型或扩散型水合物层,而青藏高原羌塘盆地则是属于消退型水合物,祁连山地区、准噶尔盆地等的烃类气体泄漏表明在我国西北和东北的冻土带也可能存在着含气水合物层。

关键词:天然气水合物;储层;分类;动态成藏;理论

中图分类号:TE122

文献标识码:A

文章编号:1672-1926(2007)06-0819-08

0 前言

天然气水合物是由小“客体”分子($< 0.9\text{ nm}$)如 CH_4 等在一定温度压力条件下接触到水分子而形成的白色似冰的笼型结晶化合物^[1],具有单位能量密度高、分布广、规模大、埋藏浅、成藏物化条件佳等优点,具广泛分布于世界各大洋海底与陆地永冻层(图1)。从图1中可以看出水合物在冻土带和大陆边缘陆坡广泛存在^[2],Klauda and Sandler认为全球海域的天然气水合物中储存有74 000 Gt的甲烷^[3],其数量之大,是全世界常规天然气储量的3个数量级。可见水合物气资源量极其丰富,被誉为21世纪的可代替能源。

天然气水合物在沉积物地层中聚集形成具有一定储量规模的矿藏是一个复杂的过程,它必须有充足的烃类气源、合适的相平衡温压条件和良好的圈闭条件。为了合理开发利用天然气水合物资源,需要根据水合物生成和储存状态的特点对其进行恰当

的分类,不少学者^[4-8]分别从生成水合物的气体来源和水合物在沉积层中的赋存状态、水合物的赋存范围以及水合物储层的演变过程等方面总结了水合物的分类特征。

无论是从水合物在沉积层的产状还是从水合物气体的来源等角度考虑对天然气水合物分类,都没有涉及到其自身的一项重要特征,即天然气水合物是一种并不稳定的固体,即使在合适的热力学条件下,水合物自身也会不断分解,这一点对于分析天然气水合物在自然界的赋存状态非常重要。本文根据天然气水合物的热稳定特性,认为其在自然界中的聚集是一种生成和分解同时存在的过程,据此提出了水合物的动态成藏理论,并且通过3个自然界水合物形成的实例来论证。

1 天然气水合物的赋存状态

目前,对于天然气水合物在自然界的赋存状态,通常分为以下几类:

收稿日期:2007-07-23;修回日期:2007-09-28

基金项目:中国科学院创新项目(编号:KGCX2-SW-224);国家自然科学基金(编号:90410003);广东省自然科学基金重点(编号:052001130)联合资助。

作者简介:樊栓狮(1965),男,陕西蒲城人,教授,博士生导师,主要从事天然气水合物、化工分离等研究。E-mail: fanss@ms.giec.ac.cn.

© 1994-2010 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

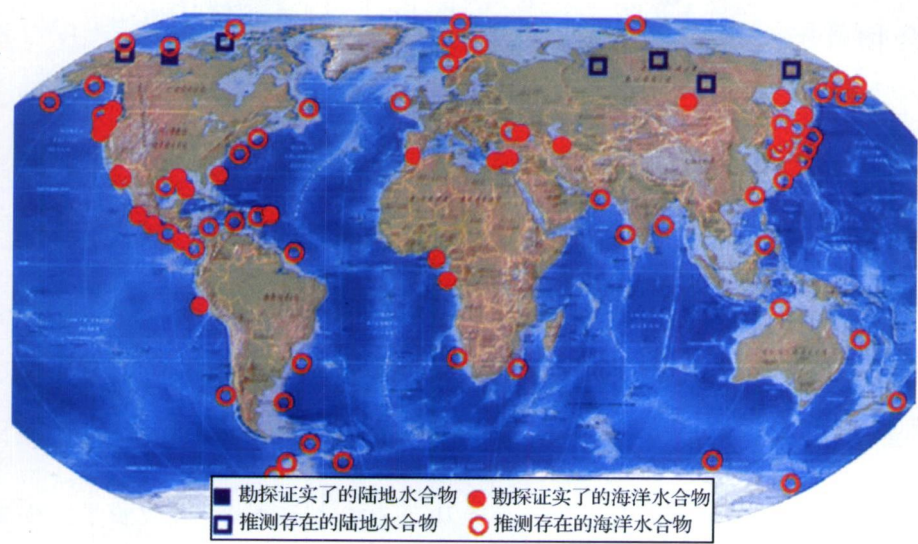


图 1 天然气水合物在全球的分布地点预测^[2]

(1) 根据天然气水合物的物质组分划分, 有气源说^[9]与水源说^[10] 2 类。天然气水合物是由气体和水组成的一种固体物质, 其笼型结构里包容了不同尺寸的气体分子。根据烃类气体成分比值 $[R = C_1 / (C_2 + C_3)]$ 和甲烷的碳同位素 $\delta^{13}C$ 值来判别甲烷气体的成因, 此即为气源说。在美国墨西哥湾水合物区块的研究工作表明形成水合物的烃类气体共有 3 种成因: 热成因气、生物成因气和混合成因气^[11]。天然气水合物在海底沉积物里生成和分解时, 会导致孔隙水中阴离子(Cl^- 、 SO_4^{2-} 等)、阳离子(Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 等)和氢氧同位素的异常^[12], 对孔隙水进行地球化学检测可以指示水合物的存在情况, 此即为水源说。

(2) 根据天然气水合物存在的地理地质环境和热稳定性划分, 可以分为陆地冻土层天然气水合物和海洋天然气水合物^[7-8]。天然气水合物广泛存在于全世界各地的海洋和内陆湖中, 特别是在大陆边缘的浅海里。另外一个水合物富集的地域是大陆冻土层, 在西伯利亚、阿拉斯加等地区的冻土层里均已钻获了含水合物岩心。通过对钻井过程的各项参数分析和研究表明, 水合物在冻土层存在 2 个明显的分层: 水合物稳定带 (Hydrate Stability Zone, HSZ) 和亚稳定带 (Hydrate Metastability Zone, HMZ) (图 2)。在冻土层, 由于水合物的自保护效应, 即使是离开 HSZ, 水合物也能在 HMZ 里存在一定的时间, 同时, 在这种环境下沉积层孔隙的聚气能力更强。Yakushev and Chuvilin 研究了在西伯利亚的残余水合物, 其分解实验的结果表明天然气水

合物的自保护效应能聚集更大量的天然气^[13]。

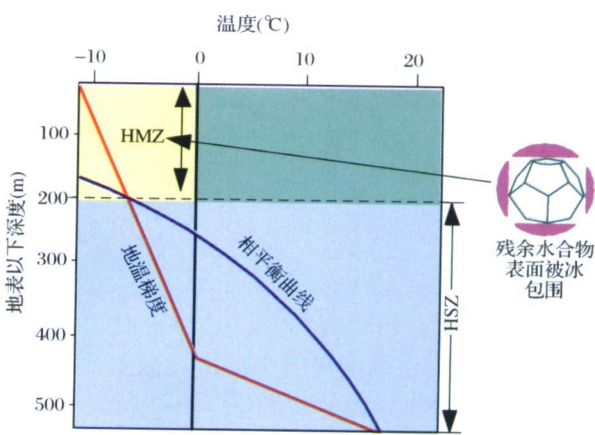


图 2 冻土带中 HSZ 与 HMZ 的分布范围
(左图显示 HMZ 通常处于水合物相平衡线外, 右图表明残余水合物通常被冰包裹)

(3) 根据水合物在沉积层里的生成产状划分, 有不同的划分方法。Malone 等^[4] 首先对海洋水合物产状进行了多年研究, 他们运用分型理论 (此理论是后来研究水合物在沉积层胶结性质的基础) 指出水合物主要存在于以下 4 种类型: 良好分散型水合物、结核状水合物、层状水合物和块状水合物 (图 3)。Uchida 等^[5] 通过 CT 研究了加拿大 Mackenzie 三角洲的含水合物岩心, 进一步将水合物在沉积层里划分为 6 种产状: 孔隙状水合物、扁平状水合物、散粒状水合物、层状水合物、节理状水合物和脉络状水合物。地震波探测水合物沉积层时, 由于水合物的饱和度不同会导致波幅和波速的不同。Dai 等^[14] 总结出了水合物在沉积层中的 6 种分布模式, 其分别是

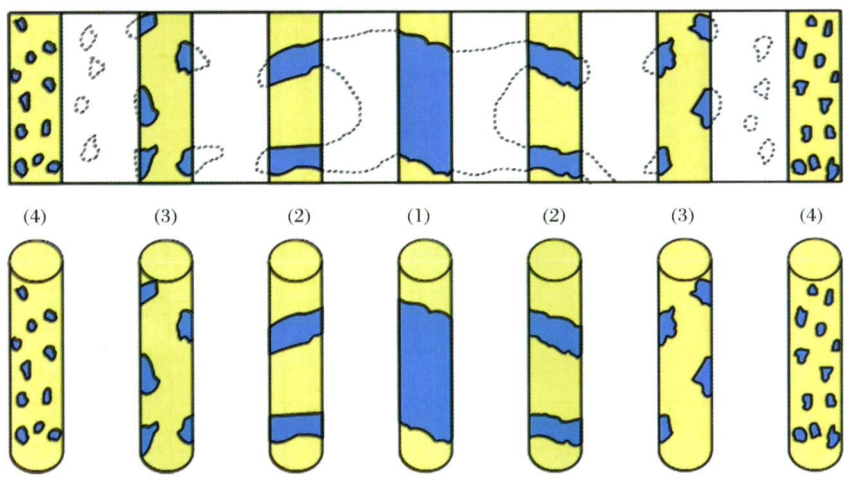


图 3 分型理论划分的水合物产状⁴¹

(1) 块状水合物; (2) 层状水合物; (3) 结核状水合物; (4) 分散状水合物

接触胶粘模式、颗粒包裹模式、骨架/颗粒支撑模式、孔隙填充模式、掺杂模式以及结核或裂隙填充模式。

(4) 根据不同地质条件下的水合物生成速度或含水合物层的产气速度和潜能划分, 樊栓狮等^[6]认为海域水合物可以分为渗漏体系和扩散体系。渗漏体系里气体以热成因气为主, 水合物在沉积层里生成速度快; 扩散体系里以生物成因气为主, 水合物生成速度缓慢。Moridis^[15]根据天然气水合物聚集特征、位置和分布形态将含水合物层分为 3 类。第 1 类由上、下 2 个带组成: 上带为水合物聚集层, 下带为含游离气的两相流体, 其产气潜能大, 这种类型的水合物藏最有希望被开发利用。第 2 类含 2 个明显特征带, 即含水合物沉积层及其之上不含游离气的动态水流体(如含水土层)。第 3 类只有单一分布的水合物聚集层。对于天然气水合物不同赋存状态的划分, 可以见表 1。

2 天然气水合物动态成藏

巨大的天然气水合物储量对地球气候变化产生了重大的影响, 无论是“水合物炮弹假说”(the Hydrate Gun Hypothesis) 还是“晚古新世热量最大事件”(the Late Palaeocene Thermal Maximum, LPTM), 其原因很可能都是大量的甲烷水合物分解^[16]造成, 这说明地壳表层的天然气水合物藏是处于不断的变动状态。对从 ODP 和 IODP 采集的岩心样本的地球化学测试也表明, 在同一地质剖面上的甲烷水合物其形成时期并不相同, 说明天然气水合物的生成是个不断进行的过程, 其成藏也是在不断的变动中。通过使用海底摄像仪器在墨西哥湾^[17,18]、Cascadia 古陆边缘的水合物脊^[19]和挪威外海海底^[20]拍摄到的图片表明, 这些地方的海底水合物层仍处于不断的生长和分解之中(图4)。同样的情

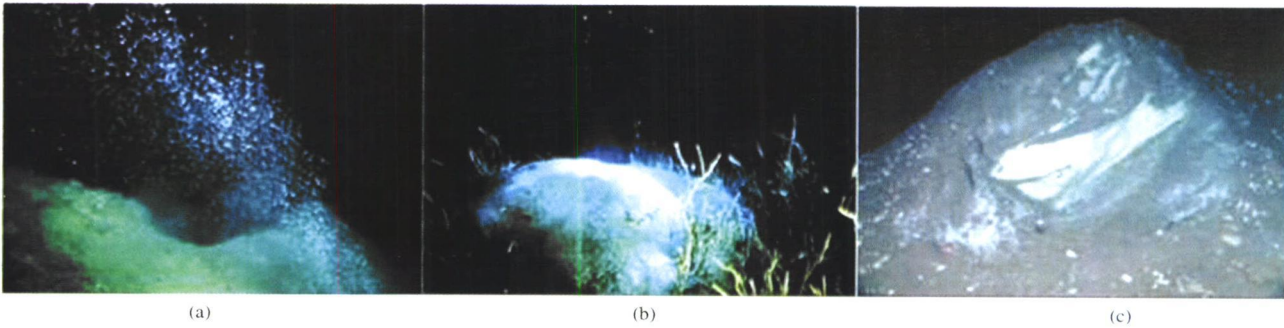


图 4 海底天然气渗漏通道从顺畅到封闭的变化过程

(a) 在 Norwegian-Barents-Spitzbergen 大陆边缘 Hakon Mosby Mud Volcano(HMMV), 气体携带水合物从渗漏孔喷出海底面^[20], 其中在离喷口 1 m 高处可见白色的水合物团和气泡, 表明该渗漏孔处于旺盛发育状态; (b) 在 GOM 北部斜坡拍摄到的水合物堆(mound), 可见少许气泡从此水合物堆上泄漏出^[18], 表明该渗漏区逐渐接近静态; (c) 在 Barkley Canyon 水深 850 m 海底生长的约 7 m 长、3 m 高的水合物堆^[22], 此地区孔口完全被封闭, 未观察到气体渗漏现象。

表 1 天然气水合物赋存状态的分类

分类缘由	特征说明		
	具体划分	分类依据	分类说明
按物质组成分类	气源说	根据天然气水合物中 $[C_1/(C_1 + C_2)]$ 值和 $\delta^{13}C$ 值判别甲烷气的成因	根据天然气水合物的物质组成(水和气)来分类,可以将水合物气分为3类:生物成因、热成因和混合成因
	水源说	根据孔隙水里的阴离子(Cl^- 、 SO_4^{2-} 等)、阳离子(Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 等)以及氢、氧同位素的浓度比值来判定	
按地质地理条件分类	陆地水合物区 海洋水合物区	主要存在于大陆冻土层 全球海域广泛存在	可以划分为水合物稳定带和亚稳定带
按水合物生成和产气速度分类	水合物生成速度	由于地质和气体运移条件不同,使得天然气水合物生成速度不同	可以分为渗漏型和扩散型2类,其中渗漏型水合物生长速度快,扩散型则缓慢
	水合物产气速度	由于毗邻沉积层油气田的远近及地质条件不同导致水合物气田产气量和速度不同	可以分为3类
按生成产状分类	各学者划分不一	根据岩心取样观察到的水合物产状,或者根据水合物的聚集程度等等	主要是水合物在沉积层骨架中的胶结类型不同

况在西伯利亚的含天然气水合物沉积层的 Yam-burg 油气田和 Yamal 半岛的 Bavanenkovo 油气田、北部加拿大的 92GSC Taglu 井、Mallik 2L-38 井以及阿拉斯加的 Hot Ice No-2 井里都存在^[21]。以上的事实表明,水合物成藏处在水合物不断分解和生成的过程,此过程直接决定了水合物藏的资源量和未来对其开采的经济性评价,因此,必须根据水合物的生长与分解过程来划分水合物的储量情况。据此,我们提出了一种新的分类依据:天然气水合物的动态成藏理论。

2.1 天然气水合物动态成藏原理

天然气水合物的动态成藏是指当水合物在沉积层中生成的同时,由于气液界面的传质和传热的变动,必然也同时存在着水合物的分解过程,这种水合物生成和分解的共同作用决定了水合物的储集性质。天然气水合物在多孔沉积层里的生成由许多不同的参数共同作用,除了温度、压力、孔隙率、孔隙水盐度等外,气体的运移也是个很重要的因素。Xu and Ruppel^[23]认为天然气水合物在海洋沉积层中形成时,甲烷气的运移加快了其在海水里的溶解和扩散,运移速度的大小关系到水合物在多孔介质里的形成。同时,在海底含水合物沉积层里,水合物在毛孔里形成是一种典型的多相流动现象,毛孔里的游离气、水、水合物及盐处于热力学平衡状态,而随着水合物的不断形成,毛孔里盐度增加,同时气相和液相之间产生压力差,这些都导致水合物-水-气-盐的相平衡条件发生改变,促使孔隙中进一步的相平衡^[24-26]。可见,由于气体的不断运移,在沉积层

里天然气水合物的生成和分解必然始终是共同存在的过程。

在生成和分解共同作用下,水合物在微观上的生长速度与其分解速度的相对大小决定着其宏观上的含水合物沉积层(或水合物藏)的增厚或变薄。若生长速度大于分解速度,则此水合物藏仍处于增长状态,其资源量还在不断的变大,这种可称为成长型水合物储层,包括天然气从地壳往海底沉积层快速上移渗漏而形成的渗漏型水合物和天然气在合适的热力学条件下缓慢演变形成的扩散型水合物;若生长速度小于分解速度,则此水合物藏是处于减小状态,其资源量在逐渐的变少,甚至最后水合物藏完全消失,这种可称为消退型水合物层;若生成和分解速度大小基本一致,宏观表现为水合物藏的异常稳定,这种可称为成熟型水合物层。天然气水合物生成和分解速度的相对大小决定着动态成藏的演变程度,而生成和分解的速度又是随着地质地理条件、热力学环境和气体运移量等的变动而时时变动,这样的分类能更准确地反映水合物的赋存状态。

2.2 天然气水合物动态成藏的意义

天然气水合物的动态成藏机理表明,除了生成速度和分解速度相平衡的稳定型水合物层外,HSZ和HMZ的厚度始终还是处于变动状态,这样在开采或钻探时必须考虑到这种储层厚度的变化。更重要的是,水合物的动态成藏预示着全球天然气水合物资源量并不是始终不变的,不同地质条件和地理位置的水合物层的变动并不相同。对于生长速度大于分解速度的成长中的水合物层,比如在墨西哥湾

布什山高地发现的渗透型水合物藏, 其资源含量仍在不停的增加, 有资料表明此地区的天然气渗透速率越来越大^[27], 这种成长型的气体水合物藏在当前情况下显然是不适于开采的, 必须研究相应的耦合有时间和地质因素的动力学模型, 确定最优的开采方案。对于生长速度小于分解速度的消退型水合物层, 目前的任务是正确的评估其经济价值和开展可

行性分析, 例如早在 20 世纪 90 年代就已停产的麦索亚哈油气田的水合物层, 由于油气产量的急剧减少直接导致水合物层的不断变薄^[28], 最后已不具有任何的开采价值。对这种消退型水合物层必须采取必要的技术措施使得其经济效益最大化。而对于稳定型水合物层, 则必须对其采取经济性评估来确定是否具备开采价值(表 2)。

表 2 天然气水合物动态成藏类型及特征

名称	类型	特 征	实 例	技 术 措 施
天然气水合物的动态成藏	成长型	在沉积层里天然气水合物的生成速度大于分解速度, 水合物处于不断的生长阶段; 又可分为水合物快速生成的渗透型和缓慢生成的扩散型 2 种	可以认为有海底气体渗漏的地点如墨西哥湾、Cascadia 地区的水合物脊等是处于成长中的天然气水合物藏	由于天然气水合物资源量仍处于不断增长状态, 可以暂缓开采, 应研究耦合时间和地质因素的相应动力学模型, 确定最优开采时间
	成熟型	在沉积层里天然气水合物的生长速度与分解速度相平衡, 水合物层表现稳定	目前并不能断定稳定型水合物层的地点, 但由于水合物的自保护效应, 我们可以将冻土层残余水合物视为稳定型水合物	由于天然气水合物资源量异常稳定, 必须结合经济性评估来确定是否开采
	消退型	在沉积层里天然气水合物的生长速度小于分解速度, 水合物层处于消退状态	比较典型的是前苏联麦索亚哈油气田, 目前已停止开发, 资料表明我国的青藏高原有消亡型水合物层	由于天然气水合物资源量在不断减少, 必须结合经济性评估, 尽快研究适当的开采技术方案

3 重要实例

天然气水合物的动态成藏表明天然气水合物层的变动状况可以被预测, 而这种变动现象在世界各地的海洋和大陆永冻区含水合物沉积层中都有发现。

3.1 冻土层钻井

冻土层内及其下的气喷或气体漏泄现象广泛出现于俄罗斯的西西伯利亚和东西伯利亚、加拿大麦克肯茨三角洲和美国阿拉斯加的 Kilmne 湾地区, 这些地区往往都是天然气水合物或天然气田分布区^[29]。冻土层内的气喷多来自于浅层的微生物气, 也有部分是由深部的热解气或天然气经活动断层运移上来的, 组分以甲烷为主。气喷的流量随时间的推移而逐渐降低, 一般持续数天至数月, 最长达 7 个月。这些气体在水合物稳定带内聚集时有可能形成天然气水合物, 甚至有部分气喷气就是由天然气水合物分解后所释放的, 特别是那些持续时间较长的气喷往往就是水合物分解后的气体的喷发。

最先发现并开展这方面研究的是在麦索亚哈油气田^[7-8, 28], 在钻进操作过程中发现有大量气体从解冻的冻土带岩芯释放出来。研究表明, 残余的气体水合物是这些气体的来源, 而水合物的自保护效应被用于解释残余气体水合物的存在。这种现象也存在于西西伯利亚的 Yamburg 油气田、Mallik 5L 国际野外实验钻井、Hot Ice 2 钻井等。

3.2 海底水合物露头

天然气水合物出露海底面形成水合物丘的现象在墨西哥湾和 Cascadia 水合物脊广泛存在。天然气水合物在自然界中极不稳定, 温压条件的微小变化就会引起它的分解或生成。在墨西哥湾水合物研究区域的水深 500 m 以下拍摄到了天然气水合物小丘和丘群, 350 d 的观察和摄像可以看出其明显的改变^[30]。ODP204 航次在 Cascadia 南北水合物脊也发现多处海底水合物出露情况。这些水合物丘充分说明海底沉积层的水合物生成和分解的情况。MBARI 溶解实验也说明了此区域水合物的生成速度大于分解速度, 水合物层是处于不断增加的阶段。

3.3 海底气泡羽状流

在地壳动力作用下, 天然气(主要为热成因气)从地壳内部往上运移, 穿过海底沉积层泄漏进入海水, 形成海底气泡羽状流。形成这种海底气泡羽状流的地区常发现富含天然气水合物的海底沉积层, 比如墨西哥湾、Cascadia 的南北水合物脊、南海海槽和鄂霍次克海等地^[31-33]。这种现象表明这些地区不仅海底气体运移量巨大, 而且气体的运移速度相当快。这些巨大量的高速运移气体一方面给海底沉积层带来了充足的气源(这些气体在合适的温度、压力和地质条件下在沉积层里生成天然气水合物); 另一方面气体运移又会不断破坏孔隙里的热力学平衡, 导致水合物分解。一部分分解的水合物气在新的相

平衡点再次形成天然气水合物,而一部分分解气甚至部分水合物则被向上运移的气体所携带。羽状气泡携带水合物喷溢出海底,形成海底“火焰”现象,这些“火焰”高度从几十毫米到几十米不等,在黑海观察到从海底泥火山口溢出的海底羽状流气泡高达1 300 m^[34],表明在该地区海底沉积层里水合物的生成和分解过程受剧烈的气体运移影响而处于旺盛发育状态。

4 天然气水合物赋存状态分类研究对我国天然气水合物研究的指导意义

我国南海、东海、台湾西南海域都发现了天然气水合物存在的明显的地震波证据,研究表明南海北部陆坡区的西沙海槽、东沙群岛东南坡、台西南盆地、笔架南盆地等海区极有可能存在着大量的天然气水合物资源^[35-36],而青藏高原羌塘盆地烃源岩广泛分布,有机质含量和演化程度高,盆地内生烃潜力巨大,完全具备天然气水合物形成需要的天然气来源^[37]条件。

对天然气水合物赋存状态的研究首先必须明确其存在类型,接着才能采取相应的开采措施。我国南海琼东南盆地、南沙海槽和东海陆坡等地的地质条件与美国墨西哥湾类似,在这些区域内可能存在

以天然气泄漏为标志的渗漏体系水合物,目前已在南海采集到了冷碳酸盐岩,在临近东海的冲绳海槽发现了海底天然气“火焰”柱^[38],这说明这些地区极有可能存在处于发育型的天然气水合物藏,由于其水合物资源仍在不断增加,现今应该继续让其发育,直到其慢慢成长为成熟型的水合物层,同时还要研究符合其特征的动力学模型。而全球气温的增高导致青藏高原年均气温上升了0.3~0.4℃,其冻土区将逐年退化^[39],这说明青藏高原的水合物层是属于消退型储层;由于其资源量在不断减少,目前必须尽快对其评估,研究相应的开采方案。

我国东北和西北地区冻土带是另一块潜在的天然气水合物成藏区。在祁连山地区的钻探出现了明显的烃类气体泄漏现象^[40](图5)。尽管对该地区木里煤田33号钻孔喷出的气体成因尚不清楚,但持续时间将近1 a(有可能还将继续延续下去)的冻土层内气体漏泄说明有源源不断的气源补给,很有可能是深部的煤层气沿活动断层运移上来的(因冻土层本身的渗透性很差)。若这里具备适宜的温压条件就有可能形成天然气水合物,甚至这些气体有部分可能就是天然气水合物分解所释放的气体。根据天然气水合物的动态成藏理论,应对该地区可能形成水合物的地点进行进一步的调查,确定其所属的成藏类型,以便采取相应的开采措施。



图5 残余水合物被点燃后燃烧对比

(左图为东北西伯利亚 Yamburg 油气田浅层钻井被点燃产生的火焰^[2],右图为祁连山木里煤田33号井气体溢出及燃烧^[40])

5 结论

(1)根据天然气水合物的生成和分解速度的相对变化即天然气水合物的动态成藏理论,提出了一种新的分类方法:即水合物层有成长型(渗漏型和扩散型)、成熟型和消退型3种类型。对于成长型水合物层,由于其天然气水合物含量仍在增加,所以可以等待其进一步演变成稳定的成熟型水合物藏后再行开采。对于消亡型水合物层,其资源量在减少,所以

必须进行经济评估,研究相应的技术措施,争取尽快开发。对于稳定型水合物层,其含水合物资源量基本不改变,则可以根据天然气市场上的需求变化和国家的相应政策,对其进行经济性评估,在适当的时机开采。

(2)在我国南海琼东南盆地、南沙海槽和东海陆坡等地区,很有可能存在快速发育的渗漏型天然气水合物层,应该研究其成藏特点,建立相应的耦合时间和地质因素的动力学模型来预测其资源量和最优

开采方案。青藏高原冻土区羌塘盆地的热力学条件表明该区应该属于消退型天然气水合物层,目前必须尽快对其进行评估,研究相应开采方案和配套设备,争取早日开采利用。我国东北和西北部的冻土带毗邻大型油气藏,也很有可能存在着天然气水合物层,对于这两地区还需要进一步确定其水合物成藏类型和特点。

致谢:感谢中国地质大学(武汉)工程学院蒋国盛教授和吴翔副教授在论文写作过程中提出的宝贵意见和建议。

参考文献:

- [1] Sloan E D. Clathrate Hydrates of Natural Gases[M]. 2nd ed. New York: Marcel Dekker, 1998.
- [2] Tréhu A M, Ruppel C, Holland M, *et al.* Gas Hydrates in Marine Sediments: Lessons from Scientific Ocean Drilling [J]. *Oceanography*, 2006, 19(4): 124-142.
- [3] Klauda J B, Sandler S I. Global distribution of methane hydrate in ocean sediment [J]. *Energy & Fuels*, 2005, 19(2): 459-470.
- [4] Malone R D. Overview Gas Hydrate Geology and Geography [C]//Annals of the New York Academy of Sciences. New York: [s. n.] 1994, 225-231.
- [5] Uchida T, Dallimore S, Mikami J. Occurrences of natural gas hydrates beneath the permafrost zone in machenzie delta visual and X-ray CT imagery [C]//Holder G D, Bishnoi P R. Gas Hydrates Challenges for the Future. New York: The New York Academy of Sciences: 2000: 1020-1033.
- [6] 樊栓狮, 刘峰, 陈多福. 海洋天然气水合物的形成机理探讨 [J]. *天然气地球科学*, 2004, 15(5): 524-530.
- [7] Perlova E V, Yakushev V S, Makhonina N A, *et al.* Submarine Gas Hydrate Deposits: from Genesis, Geology to Peculiarities of Gas Production and Treatment [C]//Proceedings of the Fifth International Conference on Gas Hydrates (ICGH5). Trondheim, Norway, 2005, 3(3009).
- [8] Yakushev V S, Perlova E V, Makhonina N A, *et al.* Classification of gas hydrate deposits as important step to natural gas production from hydrates [C]//Proceedings of the fifth international conference on gas hydrates (ICGH5). Trondheim, Norway, 2005, 3(3015).
- [9] Bernard B, Brooks J M, Sackett W M. A geochemical model for characterization of hydrocarbon gas source in marine sediments [C]//Proceeding 9th Annual Offshore Technology Conference. Houston: Offshore Technology Conference, 1977, 435-438.
- [10] Hesse R, Harrison W E. Gas hydrates (clathrates) causing pore water freshening and oxygen isotope fractionation in deep water sedimentary sections of terrigenous continental margins [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 1981, 55: 453-462.
- [11] Sassen R, Sweet S T, Milkov A V, *et al.* Geology and geochemistry of gas hydrates, central Gulf of Mexico continental slope [J]. *Gulf Coast Associ Geol Societies Trans*, 1999, 49: 462-468.
- [12] 蒋少勇, 杨竞红, 凌洪飞, 等. 用地球化学方法勘查中国南海的天然气水合物 [J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2004, 24(3): 103-109.
- [13] Yakushev V S, Chuvilin E M. Natural gas and gas hydrate accumulations within permafrost in Russia [J]. *Cold Regions Science and Technology*, 2000 31(3): 189-197.
- [14] Dai J C, Xu H B, Snyder F, *et al.* Detection and estimation of gas hydrates using rock physics and seismic inversion: Examples from the northern deepwater Gulf of Mexico [J]. *The Leading Edge*, 2004, 23(1): 60-66.
- [15] Moridis G J. Numerical simulation of gas production from methane hydrates [R]. SPE 75691, 2002.
- [16] Archer D. Methane hydrate stability and anthropogenic climate change [J]. *Biogeosciences Discuss*, 2007, 4: 993-1057.
- [17] Kastner M, Bartlett D, MacDonald I, *et al.* CH₄ fluxes across the seafloor at the three distinct gas hydrate fields: Impacts on ocean and atmosphere chemistry [C]//Proceedings of the fifth international conference on gas hydrates (ICGH5). Trondheim, Norway, 2005, 3(3002).
- [18] Solomon E A, Kastner M, Robertson G, *et al.* Insights into the dynamics of in situ gas hydrate formation and dissociation at the Bush Hill gas hydrate field, Gulf of Mexico [C]//Proceedings of the fifth international conference on gas hydrates (ICGH5). Trondheim, Norway, 2005, 3(3035).
- [19] Liu Xiaoli, Flemings P B. Passing gas through the hydrate stability zone at southern Hydrate Ridge, offshore Oregon [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2006, 241: 211-226.
- [20] Sauter E J, Muyakshin S I, Charlou J L, *et al.* Methane discharge from a deep sea submarine mud volcano into the upper water column by gas hydrate coated methane bubbles [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2006, 243: 354-365.
- [21] Yakushev V. Relic gas hydrates in northwestern Siberia [J]. *The national energy technology methane hydrate newsletter: Fire in the ice*, Fall, 2004: 8-10.
- [22] Pohlman J W, Canuel E A, Chapman N R, *et al.* The origin of thermogenic gas hydrates on the northern Cascadia Margin as inferred from isotopic (¹³C/¹²C and D/H) and molecular composition of hydrate and vent gas [J]. *Organic Geochemistry*, 2005, 36: 703-716.
- [23] Xu W Y, Ruppel C. Prediction the occurrence, distribution, and evolution of methane gas hydrate in porous marine sediments [J]. *Journal of Geophysical Research*, 1999, 104(B3): 508F-5095.
- [24] Clennell M B, Judd A, Hovland M. Movement and accumulation of methane in marine sediments: relation to gas hydrate systems [M]//Max M D. *Natural Gas Hydrate in Oceanic and Permafrost Environments*. Rotterdam, Netherlands: Kluwer Academic Publishers, 2000: 105-122.

- [25] Milkov A V, Dickens G R, Claypool G E. Coexistence of gas hydrate, free gas, and brine within the regional gas hydrate stability zone at Hydrate Ridge (Oregon margin): evidence from prolonged degassing of a pressurized core[J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2004, 222: 829-843.
- [26] Liu X L. Dynamics of shallow marine gas hydrate and free gas systems[D]. Central County, America: Pennsylvania State University, 2006.
- [27] MacDonald I R, Guinasso N L Jr., Ackleson S G, *et al.* Natural oil slicks in the Gulf of Mexico visible from space[J]. *Journal of Geophysical Research (Oceans)*, 1993, 98(C9): 16351-16364.
- [28] 蒋国盛, 王达, 汤凤林, 等. 天然气水合勘探与开发[M]. 武汉: 中国地质大学出版社, 2002.
- [29] Mikami J, Masuda Y, Uchida T, *et al.* Dissociation of natural gas hydrates observed by X-ray CT scanner[M]//Holder G D, Bishnoi P R. *Gas Hydrates Challenges for the Future*. New York: The New York academy of sciences, 2000: 1011-1020.
- [30] MacDonald I R, Bend L C, Vardaro M, *et al.* Thermal and visual time series at a seafloor gas hydrate deposit on the Gulf of Mexico slope[J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2005, 233: 45-59.
- [31] Solomon E A, Kastner M, Robertson G, *et al.* Insights into the dynamics of in situ gas hydrate formation and dissociation at the Bush Hill gas hydrate field, Gulf of Mexico[C]//Proceedings of the Fifth International Conference on Gas Hydrates (ICGH5), Trondheim, Norway, 2005, 3(3035).
- [32] Milkov A V, Lee Y J, Borowski W S, *et al.* Coexistence of gas hydrate, free gas, and brine within the regional gas hydrate stability zone at Hydrate Ridge (Oregon margin): Evidence from prolonged degassing of a pressurized core[J]. *Earth Planet Sci Lett*, 2004, 222: 829-843.
- [33] Obzhirov A, Salyuk A, Vereshchagina O, *et al.* Methane flux and gas hydrate and seismic activity in the Sea of Okhotsk [C]//Proceedings of the Fifth International Conference on Gas Hydrates (ICGH5), Trondheim, Norway, 2005, 3(3038).
- [34] Greinert J, Artemov y, Egorov V, *et al.* 1300 m high rising bubbles from mud volcanoes at 2080 m in the Black Sea Hydroacoustic characteristics and temporal variability[J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2006, 244: 1-15.
- [35] 吴时国, 张光学, 郭常升, 等. 东沙海区天然气水合物形成及分布的地质因素[J]. *石油学报*, 2004, 25(4): 7-12.
- [36] 姚伯初. 南海天然气水合物的形成和分布[J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2005, 25(2): 81-90.
- [37] 陈多福, 王茂春, 夏斌. 青藏高原冻土带天然气水合物的形成条件与分布预测[J]. *地球物理学报*, 2005, 48(1): 165-172.
- [38] 赵洪伟, 龚建明, 陈建文, 等. 与火山—热液作用有关的海洋天然气水合物[J]. *石油实验地质*, 2005, 27(4): 395-403.
- [39] 祝有海, 刘亚玲, 张永勤. 祁连山多年冻土区天然气水合物的形成条件[J]. *地质通报*, 2006, 25(12): 58-64.
- [40] 库新勃, 吴青柏, 蒋观利, 等. 青藏高原多年冻土区天然气水合物可能分布范围[J]. *天然气地球科学*, 2007, 18(4): 588-592.

A DYNAMIC THEORY ON NATURAL GAS HYDRATE RESERVOIR FORMATION

FAN Shuar-shi¹, GUAN Jir-an^{2,3,4}, LIANG De-qing^{2,3}, NING Fu-long³

(1. South China University of Technology, Key Laboratory of Enhanced Heat Transfer and Energy Conservation, MOE, Guangzhou 510640, China; 2. Guangzhou Institute of Energy Conversion, CAS, Guangzhou 511640, China;

3. Guangzhou Center for Gas Hydrate Research, Guangzhou 541640, China; 4. Graduate School of the Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China; 5. Faculty of Engineering, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China)

Abstract: Classification on natural gas hydrate deposits occurrence is summarized, and a dynamic theory of gas hydrate reservoir formation is put forward. According to this theory, there are three types of reservoirs: growing type (including seeping type and diffusing type), mature type and regressive type. This theory is demonstrated by three examples: the natural gas blowout when drilling in the permafrost, the hydrate cropouts in the seafloor and the gas bubbles in abyssal plumes. Then, several conclusions are drawn: there maybe exist the seeping and diffusing types of gas hydrate reservoirs which may still be growing in the Xisha trough, Dongsha continental slope of the South China Sea, west and south of Taiwan basin, and Bijianan basin; whereas in the Qiangtang basin of the Qinghai-Tibet plateau may exist the regressive-type gas hydrate deposit. Furthermore, the phenomenon of hydrocarbon gas leaking in the Qilian mountain areas and Junger basin indicates that these areas may ensconce gas hydrate reservoirs.

Key words: Gas hydrate; Reservoir; Classification; Dynamic accumulation; Theory.