

页岩气压裂返排液外排处理技术研究现状及展望

李 静^{1,2}, 陈天欣^{1,2}, 周 微^{1,2}, 赵 靓^{1,2}, 刘文士³

(1. 中国石油西南油气田公司安全环保与技术监督研究院, 四川成都 610041;

2. 页岩气评价与开采四川省重点实验室, 四川成都 610041;

3. 西南石油大学, 四川成都 610500)

[摘要] 考察了国内外不同页岩气区块中压裂返排液的水质特征, 并对比了川南两个区块压裂返排液有机物的组成类别, 对各国压裂返排液开展达标排放的政策要求进行了详细分析。针对川南地区开展的压裂返排液处理外排实践进行了重点介绍。四川作为国内页岩气的重要产区, 基于水环境质量标准制定了页岩气压裂返排液达标排放的水质要求。由此分析了国内外页岩气压裂返排液处理外排的技术研究和应用进展, 并梳理出达标处理工艺中所涉及到的关键技术, 明确了技术路线和优化方向, 以期为同领域的研究和应用提供参考。

[关键词] 页岩气压裂返排液; 处理外排; 反渗透; MVR 蒸发; 高级氧化

[中图分类号] X741 **[文献标识码]** A **[文章编号]** 1005-829X(2022)05-0034-07

Research status and prospect of the shale gas fracturing flowback fluids discharge treatment technology

LI Jing^{1,2}, CHEN Tianxin^{1,2}, ZHOU Wei^{1,2}, ZHAO Liang^{1,2}, LIU Wenshi³

(1. *Safety, Environment and Technology Supervision Research Institute, PetroChina Southwest Oil and Gas Field Company, Chengdu 610041, China*; 2. *National Engineering Laboratory for Exploration and*

Development of Low-Permeability Oil & Gas Fields, Chengdu 610041, China;

3. *Southwest Petroleum University, Chengdu 610500, China*)

Abstract: The water quality characteristics of fracturing flowback fluids in different shale gas blocks at home and abroad were investigated, and the organic matter composition of the fracturing flowback fluids in the two blocks in southern Sichuan was compared. The policy requirements of different countries were analyzed in detail, and the practice of fracturing flowback fluid treatment and efflux in southern Sichuan was mainly introduced. As an important production area of shale gas in China, Sichuan has formulated the water quality requirements for upto standard discharge of shale gas fracturing flowback fluid based on water environment quality standards. According to the flowback water quality requirements of the discharge, the technological research and application progress of the shale gas fracturing flowback fluid treatment at home and abroad was analyzed, and the key technologies involved in the standard treatment process were sorted out. The technical route was clarified and optimization direction, in order to provide reference for research and application in the same field.

Key words: shale gas fracturing flowback fluids; treatment for discharge; reverse osmosis; MVR evaporation; advanced oxidation processes(AOPs)

作为页岩气藏储层改造的主要技术,水力压裂使页岩气产量有了突飞猛进的增长,但同时也带来了压裂返排液处理处置的问题。根据国内外页岩气开采的实际情况可知,压裂返排液前期排量较大,后

期逐渐减少,产水会持续整个页岩气井的生命周期。压裂返排液水质呈现出悬浮颗粒物(TSS)浓度高、总溶解性固体(TDS)浓度高、有机物含量高且组成复杂和水质变化范围宽等特点^[1-3]。由于具有较大的水生

生态毒性效应^[4],对返排液的妥善处置不仅是开发区域环境保护的要求,也是页岩气清洁和可持续开发的主要技术内容。

页岩气压裂返排液的处置方式主要包括回用配液、深井回注和处理达标外排。回用配液取决于返排液水质和配液水质要求的差异,研究和实践均证明目前四川盆地页岩气开发压裂返排液回用没有显著的技术障碍,通过去除悬浮固体和杀菌即可满足回用配液水质要求,平台或区域回用率可达85%以上^[5-6]。但当页岩气整个区块压裂施工减少,返排液回用需求降低时,区块内气井产水仍需寻找可靠的处置途径。深井回注受区域地质条件和外环境状况限制,部分开发区域距回注井较远,导致返排液的处置成本居高不下。处理达标外排已成为四川盆地页岩气开发企业返排液处置方式的现实选择^[7]。笔者整理了国内外典型页岩气田压裂返排液水质和达标排放要求,总结了返排液达标外排处理技术的研究和应用进展,明确了技术研发的方向,为下一步研究和应用提供参考。

1 返排液水质和达标排放要求

1.1 页岩气压裂返排液水质特点

P. F. ZIEMKIEWICZ等^[8]在分析 Marcellus 页岩区返排液造成地表水环境恶化的案例后指出,了解返排液中特征污染物及其环境行为是评估页岩气开发环境影响和设计预防措施的关键。总体上,压裂返排液包含高浓度的TDS和TSS^[9],对同一口页岩气井来说,返排液的溶解性总固体随返排时间不断增加,主要来自于压裂液与地层物质的混合或溶解:其中Cl⁻占比在50%以上,其次为Na⁺(约占30%~40%)。与TDS随返排时间变化趋势相似,其他阳离子如Ca²⁺、Mg²⁺、Ba²⁺、Sr²⁺和K⁺浓度也不断增加。此外,Br⁻、I⁻和NH₄⁺在美国 Marcellus 和 Fayetteville 页岩区的压裂返排液中分别最高可达约1 000 mg/L、56 mg/L和420 mg/L^[8,10]。尽管不同页岩区压裂返排液因储层差异而呈现显著不同的水质,但总的来说,上述离子是页岩气压裂返排液中TDS的主要组成。至于其他重金属,包括Ni、Cd、As等,含量通常在μg/L量级。有机物方面,与TDS随返排时间增加不断增加相反,TOC在返排前14 d最高可达500 mg/L,后期显著降低并稳定在约30~50 mg/L^[11]。J. L. LUEK等^[12]在总结了所有相关研

究基础上对所有已检出的有机物进行溯源分析,认为属于压裂液化学添加剂的有表面活性剂/分散剂(如乙氧基化醇等),杀菌剂(如戊二醛等)和邻苯二甲酸酯;属于地质成因的有机物有脂肪族化合物、芳香族化合物、多环芳烃;属于转化/降解产物的有小分子有机酸(如乙酸等),卤化有机化合物(如二氯甲烷等)。在众多分析数据中,苯系物是最常检测到的有机物之一,Marcellus页岩区压裂返排液中苯的质量浓度可达1 mg/L^[12]。

与美国相对成熟的页岩气产业和较丰富的积累数据相比,国内这方面的研究还停留在起步阶段,笔者整理了部分文献中的国内外页岩气压裂返排液水质,结果见表1。

由表1可知,不同区块、不同返排时间的压裂返排液水质呈现显著差异,但均呈现了高矿化度、高有机物和高硬度的特点,其中以 Marcellus 页岩区压裂返排液矿化度较高(最高达到345 000 mg/L,接近饱和氯化钠溶液浓度)。从已报道的数据来看,我国四川盆地页岩气压裂返排液矿化度整体上在10 000~40 000 mg/L,矿化度及无机阴阳离子含量等均处于国外页岩气压裂返排液水质范围的较低水平。有机物组成方面,GC-MS分析显示^[17],烷基胺类、环氧烷烃类以及长链烷烃类是主要的有机污染物;笔者对威远区块和长宁区块压裂返排液进行半定量分析,结果见图1。

由图1可知,返排液中的有机物主要为饱和烷烃类、环己烷类、酯类、醇类等(共占约58%~82%),不同区块的压裂返排液有机物组成差异也同样明显。

1.2 页岩气压裂返排液处理达标排放要求

处理外排曾是美国 Marcellus 页岩区主要的压裂返排液处置途径。根据相关统计,该区域2009年通过市政污水处理厂处理后排放的压裂返排液和产出水分别占约78.5%和84%,但2013年上述比例分别降至约0.4%和0.1%;相应地,通过现场或集中建站回用的返排液和产出水比例则分别从21.3%增至96.9%和从15.3%增至87.9%^[18]。接受压裂返排液的市政污水处理厂通常通过撇油和投加Na₂SO₄以减少进水中的石油类、Ba²⁺含量和Sr²⁺含量,但由于市政污水处理厂对压裂返排液中的TDS等几乎没有去除效果,并且返排液中的较高含量的Br⁻会在污水处理厂的消毒环节形成

表 1 国内外页岩气压裂返排液典型水质对比

Table 1 Comparison of shale gas fracturing flowback fluid typical water quality at home and abroad

水质指标	长宁-威远 ^[7]	长宁-威远 ^[7]	涪陵 ^[13]	Marcellus ^[11]	Marcellus ^[14]	Denver-Julesburg盆地 ^[15]	Barnett ^[16] (返排第 1 d)	Barnett ^[16] (返排第 10~12 d)
pH	6.5	—	—	5.1~8.42(6.56)	6.4	6.8	6.7~8(7.2)	6.5~7.2(7.05)
TDS	30 972	11 300~20 755	13 500	680~345 000(106 390)	166 484	22 500	5 850~31 400(25 050)	16 400~97 800(50 550)
TSS	95	—	—	4~7 600(352)	776	360	48~237(153)	120~535(242)
TOC	13.57	—	78	1.2~1 530(160)	19.4	590	34.7~99.1(47.5)	6.2~36.2(9.75)
COD	3 582	—	472.6	195~36 600(15 358)	—	1 218	850~4 280(1 485)	927~3 150(2 945)
石油类	4.15	—	—	4.6~802(74)	—	59	5.6~1 720(862.8)	88.2~1 430(163.5)
总碱度	335.33	—	1 010	7.5~577(165)	—	150	482~1 590(980)	215~1 240(725)
Na ⁺	12 535	3 745~9 980	3 980	69.2~117 000(24 123)	27 946	—	278~12 200(7 805)	4 370~28 200(18 850)
K ⁺	—	93.09~449	110	—	—	—	4~216(111)	80~750(316)
NH ₃ -N	49	—	25	—	—	24.7	9~223(186)	18~486(303)
Ca ²⁺	370.25	70.9~438	164	37.8~41 000(7 220)	15 021	—	13~768(564)	1 110~6 730(1 600)
Mg ²⁺	65.555	6.25~449	16.0	17.3~2 550(632)	1 720	—	2~116(89)	149~755(255)
Ba ²⁺	141.9	23.2~40.1	30.7	0.24~13 800(2 224)	236	—	0.053~3.31(1.50)	0.93~17.9(3.6)
Sr ²⁺	68.945	19.8~96.5	—	0.59~8 460(1 695)	1 799	—	ND~206(132)	48~1 550(529)
总铁	ND	10.09~59.9	6.78	2.6~321(76)	—	81.4	ND	12.1~93.8(24.9)
F ⁻	16	—	—	—	—	—	1.6~30.6(4.75)	3.5~12.8(3.8)
Cl ⁻	15 042	6 500~11 600	6 930	64.2~196 000(57 447)	104 300	13 600	3 330~17 900(11 405)	9 600~60 800(34 700)
Br ⁻	92.34	—	25	0.2~1 990(511)	—	87.2	34.3~532(303.5)	117~798(589)
总硼	—	—	10.6	—	—	—	0.51~39.1(23.5)	7.0~31.9(30.3)

注:除 pH 为无量纲外,其他指标单位为 mg/L;“—”表示文献未检测或未提供信息;“ND”表示在检测限以下;数据范围后的“()”内为若干个水样检测值的中位值。

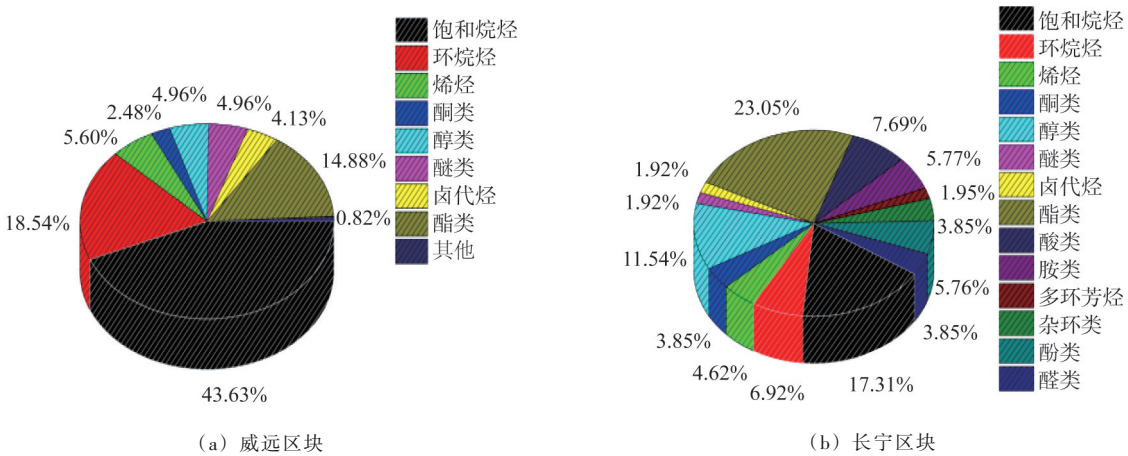


图 1 川南盆地页岩气压裂返排液有机物组成类别

Fig. 1 Organic composition of shale gas fracturing flowback fluid in southern Sichuan Basin

致癌性的溴代有机副产物(如三卤甲烷和卤代乙酸)^[19],处理后废水的排放增加了接纳水体中有害有毒物质浓度,甚至可能引发了一些环境事件^[20]。2011年以后,宾夕法尼亚州对天然气开采废水执行了更为严格标准(如TDS<500 mg/L,Cl⁻<250 mg/L,SO₄²⁻<250 mg/L,Ba²⁺<10 mg/L,Sr²⁺<10 mg/L等),实际上限制了页岩气开发废水进入市政污水处理厂。

我国正在制定页岩气污染排放标准,截止到目前

尚未发布压裂返排液处理排放标准。重庆、四川等页岩气开发有利区域均开始了页岩气压裂返排液处理外排工程建设,其中重庆涪陵全国首个页岩气产出水处理工程已正式投运,长宁页岩气田返排液处理工程和浙江油田西南采气厂泸州太阳-大寨气田水处理工程正在建设。以长宁页岩气田返排液处理工程为例,出水要求达到《地表水环境质量标准》(GB 3838—2002)中地表水Ⅲ类水域标准和集中式生活饮用水地表水源

地补充项目标准限值后(表2),通过经批准的排污口 外排补充地表水。

表2 四川地区页岩气压裂返排液处理外排水质限值
Table 2 Treated effluent quality limit of shale gas fracturing flowback fluid in Sichuan area

水质指标	出水要求	《污水综合排放标准》 (GB 8978—1996) 一级标准	《四川省水污染物排放标准》 (DB 51/190—93) 一级标准	《城镇污水处理厂 污染物排放标准》 (GB 18918—2002) 一级A类标准	《地表水环境质量标准》 (GB 3838—2002) 地表水Ⅲ类水域标准和集 中式生活饮用水地表水源 地补充项目标准限值
pH	6~9	6~9	6~9	6~9	6~9
COD	≤20	100	100	50	20
BOD ₅	≤4	30	30	10	4
NH ₃ -N	≤1.0	15	15	5(8)	1.0
总氮	≤1.0	—	—	15	1.0
硫化物	≤0.2	1.0	1.0	1.0	0.2
石油类	≤0.05	5.0	10	1.0	0.05
挥发酚	≤0.005	0.5	0.5	0.5	0.005
硫酸盐 (以SO ₄ ²⁻ 计)	≤250	—	—	—	250
氯化物 (以Cl ⁻ 计)	≤250	—	300	—	250
铁	≤0.3	—	—	—	0.3
锰	≤0.1	2.0	2.0	2.0	0.1
钡	—	—	2.0	—	—

注:表中除pH为无量纲外,其他指标单位为mg/L。

由表2可知,页岩气压裂返排液处理外排的出水要求基于水环境质量标准,限值要显著严于《污水综合排放标准》(GB 8978—1996)、《四川省水污染物排放标准》(GB 51/190—93)和《城镇污水处理厂污染物排放标准》(GB 18918—2002)。水环境质量标准基于环境毒理学实验数据,立足环境基准,出发点源于环境与健康风险管理,应用于污水处理排放限值虽欠科学^[21],但在压裂返排液处理排放标准缺失的情况下,体现了开发企业和生态环境主管部门慎重的态度。结合表1中四川盆地页岩气压裂返排液水质特征,处理达标外排的主要目标污染物为氯化物、有机物、氨氮、总氮、石油类等。

2 处理工艺和关键技术需求

2.1 页岩气压裂返排液处理达标外排工艺综述

考虑页岩气压裂返排液的复杂水质,指望通过某一个技术单元实现无害化处理是不现实的,其处理外排一定是集成多个技术单元的处理工艺。A. CARRERO-PARREÑO等^[22]建议压裂返排液外排处理工艺应依次以混凝沉降(固液分离)、软化、氧化、脱盐等为主要模块进行设计。其中混凝沉降比较成熟;脱盐技术主要在反渗透(RO,适合矿化度低于约40 000 mg/L)和机械蒸汽再压缩蒸发(MVR,适合矿化度高于约40 000 mg/L的返

排液或者反渗透浓水)等技术中选择,工艺研究的关键是设计合理的预处理技术以保证脱盐单元稳定运行和结合排放标准确定后处理技术。四川盆地页岩气压裂返排液外排处理工艺流程基本上基于以上设计思路。

同样以长宁页岩气田返排液处理工程为例,工艺流程见图2。

由图2可知,压裂返排液经均质调节后通过絮凝气浮去除悬浮颗粒和部分石油类,投加“NaOH-Na₂SO₄-Na₂CO₃”降低返排液中Ca²⁺、Mg²⁺、Ba²⁺和Sr²⁺含量以减少后续脱盐过程结垢风险;管式微滤膜截留软化过程产生的悬浮固体颗粒,出水通过纳滤进一步软化能确保后续蒸发出盐产品质量;脱盐过程基于返排液矿化度变化范围(普遍低于40 000 mg/L)采用“常规反渗透—一次浓水高压反渗透—二次浓水MVR蒸发”分段提浓;MVR蒸发的冷凝水经过氨氮吸附树脂处理后进入苦咸水淡化膜(二级反渗透),与常规反渗透和高压反渗透所产淡水一起再次进入苦咸水淡化膜(二级反渗透)过滤达到排放要求排至接纳水体;MVR蒸发同时产生满足《工业盐》(GB/T 5462—2016)二类标准的结晶盐。浙江油田西南采气厂泸州太阳-大寨气田水处理项目与上述工艺基本类似,但为减少膜污染风险延长膜使用寿命,返排液经简单处理后采

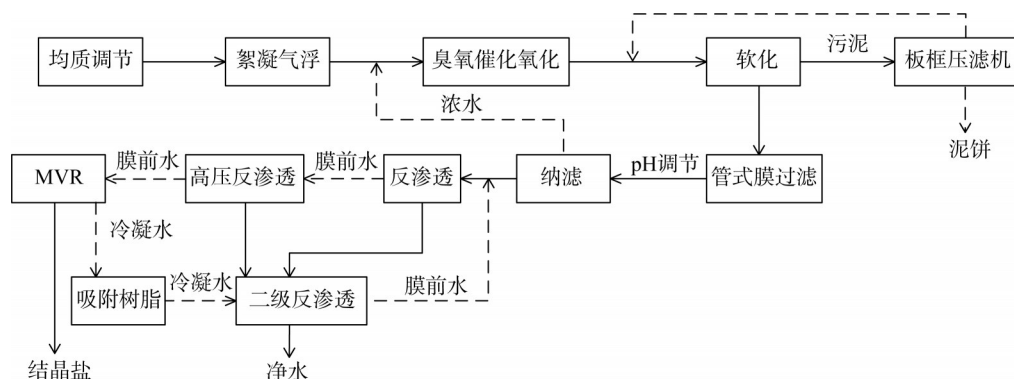


图2 长宁页岩气田压裂返排液外排处理工艺流程

Fig. 2 Fracturing flowback water treatment process in Changning shale gas field

用二级 MVR 蒸发, 冷凝水再采用高压反渗透进一步过滤; 针对返排液中存在较难降解的链状和环状大分子有机物, 依次设计了 Fenton 高级氧化法、厌氧/好氧(A/O)、膜生物反应器(MBR)等单元实现对有机物的去除; A/O-MBR 串联的深度生化处理拟分别将氨氮和总氮质量浓度控制在 3 mg/L 和 8 mg/L, 再经反渗透膜系统和离子交换树脂以确保氨氮和总氮质量浓度达到表 2 中的严苛限值(均为 1.0 mg/L)。

2.2 页岩气压裂返排液处理达标外排工艺中的关键技术

国家能源局《页岩气发展规划(2016—2020

年)》中提出要重点开展页岩气压裂返排液处理处置技术等的攻关研究, 增产改造过程中将返排的压裂液回收再利用或进行无害化处理, 降低污染物在环境中的排放。应该要指出的是, 截止到目前, 页岩气开发历史最悠久的美国也未实现压裂返排液的达标排放, 主要以回注和回用为主要的处置途径。2010 年, 美国燃气技术研究院(Gas Technology Institute, GTI)联合戴文能源公司(Devon Energy Corporation)等在 Barnett 页岩区以 MVR 蒸发脱盐工艺为核心进行了页岩气压裂返排液处理外排现场试验^[23], 其主要工艺流程见图 3。

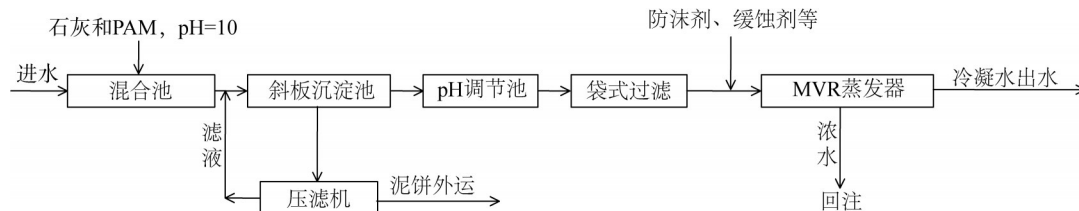


图3 美国燃气技术研究院设计 Barnett 页岩区压裂返排液处理达标外排现场试验工艺

Fig. 3 Fracturing flowback fluid treatment and standard discharge process in Barnett shale area designed out the Gas Technology Research Institute of the United States

在 60 d 的稳定运行中, 3 台 MVR 蒸发器总处理量在 954~1 194 m³/d, 淡水回收率达到 72.5%, 出水矿化度从 50 000 mg/L 左右降低至约 171 mg/L, 苯系物去除率在 95% 以上, 钡离子和硼离子去除率超过 99%, 综合成本在约 25.2 美元/m³; 但冷凝水出水平均 TOC、氨氮仍高达 22、68 mg/L, 达不到表 2 中的排放要求。可见, 简单的概念或框架设计并不能保证实现压裂返排液的无害化处理。

我国页岩气行业进行的压裂返排液处理外排探索和实践正是在国外相关经验的基础上进行的。在

完成相应的初步工艺集成后, 现阶段应该长期跟踪投运工程运行状况, 进一步验证技术的有效性和稳定性。基于研究的进展, 笔者认为应重点在以下方面实现技术突破:

(1) 更经济的脱盐技术。经济性是制约废水处理技术应用的主要因素之一, 而高盐废水处理运行成本很大一部分在脱盐工段的能耗。MVR 蒸发采用压缩机提高二次蒸汽的能量并回收二次蒸汽的潜热, 故相对传统的多效蒸发显著降低了能耗。涪陵页岩气田和长宁页岩气田均采用“膜-MVR 蒸发”分

段提浓,考虑四川盆地页岩气压裂返排液的水质特征,其理论能耗相比MVR蒸发可进一步降低^[24]。近年来,更低能耗的脱盐新技术出现并得到初步应用^[25],如能应用于压裂返排液处理,将有可能提升处理外排的技术经济性和市场接受度。

(2)高效氧化技术。压裂返排液中的有机物若得不到有效去除,将对膜和MVR蒸发器等脱盐单元的稳定运行带来影响,也可能影响出水效果和结晶盐品质。压裂返排液中的高盐分及其组成是生物处理法、Fenton氧化法和臭氧氧化法等有机物去除方法低效的因素之一。当盐分质量浓度超过10 000 mg/L时就可能导致微生物的质壁分离以致失活,影响生物处理效果^[3]。一些研究显示采用生物法对石油化工废水进行处理时,水力停留时间最短也有10~48 h,意味着在同样处理量时须占用较大面积,较难在山高、路窄、弯多、人居环境复杂的开发区域实施;并且,最新的研究显示,压裂返排液中约有30%有机物难以生物降解^[26]。Fenton氧化法除需调节pH、产生大量铁泥外,其主要的氧化剂羟基自由基($\cdot\text{OH}$)易被返排液中的 Cl^- 、 Br^- 和 HCO_3^- 等猝灭。诸多研究已经证实臭氧氧化对返排液中COD或者TOC的去除率低于10%^[15,26],主要是因为页岩气压裂返排液中含有大量的饱和烷烃,其与臭氧的反应活性低;此外,高含量的 Br^- 也会消耗臭氧,从而导致臭氧氧化处理效果较差。类似的,采用粒状活性炭吸附处理时,COD和TOC的去除率低于25%^[26]。从目前的研究来看,常规氧化法应用于页岩气压裂返排液均有其不足。寻找针对页岩气压裂返排液特殊的水化学环境的高效氧化工艺,是目前该类废水外排处理技术研究的重中之重。

(3)面向水质的工艺参数调整方法。压裂返排液水质波动范围大,给工艺的稳定运行带来挑战。应对之策应为建立返排液水质快速检测方法,即基于统计和水化学模型建立从快速可得的水质指标到影响工艺运行的关键水质指标预测方法,再集成流程模拟工具包通过预测水质计算工艺参数,自动反馈并调节处理装置。

(4)压裂返排液处理方式的确定。压裂返排液处置途径的确定是基于返排液水质水量特征、地理位置、环境条件、法规要求以及技术经济性等综合考虑的结果。不同开发场景下可能对应不同的返排液

处置方式。美国燃气技术研究院的GRI-ProwCal™模型和J. SLUTZ等^[27]结合案例进行的水管理成本分析曾进行了有益的尝试。建立基于应用场景的压裂返排液管理决策系统,可提升返排液处置方案的效率和科学性,支撑形成具体的返排液解决方案。

此外,研究和应用还需进一步优化流程设计,减少单元环节,同时通过控制工艺参数减少杂盐、废盐甚至二次危险废物的产生。

3 结论

在无回用需求和回注运输距离较远时,页岩气压裂返排液处理外排已成为页岩气开发企业的现实选择。我国已经开始了压裂返排液处理外排的探索和实践,在基于国外经验基础上,采用“混凝沉降(固液分离)-软化-氧化-脱盐”的模块组合集成处理工艺。着眼页岩气压裂返排液盐分高、有机物含量高且组成复杂、水质变化大等问题,目前在框架工作外仍须进行大量的研究以优化技术方案,实现压裂返排液经济、有效、稳定处理。技术上应着重开展低能耗脱盐技术、高盐复杂有机废水高效氧化、面向水质的工艺参数调整方法以及基于应用场景的压裂返排液管理决策系统的研发和应用;管理上应在基于对页岩气压裂返排液环境风险物质充分识别的基础上,充分考虑特征污染物环境行为和毒理效应以及接纳水体的环境容量等因素形成压裂返排液处理外排标准。

参考文献

- [1] BARBOT E, VIDIC N S, GREGORY K B, et al. Spatial and temporal correlation of water quality parameters of produced waters from Devonian-age shale following hydraulic fracturing[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(6): 2562-2569.
- [2] LIU Dan, LI Jian, ZOU Caineng, et al. Recycling flowback water for hydraulic fracturing in Sichuan Basin, China: Implications for gas production, water footprint, and water quality of regenerated flowback water[J]. *Fuel*, 2020, 272: 117621.
- [3] BUTKOVSKIY A, BRUNING H, KOOLS S A E, et al. Organic pollutants in shale gas flowback and produced waters: Identification, potential ecological impact, and implications for treatment strategies[J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, 51(9): 4740-4754.
- [4] CASTRO-ALVAREZ F, MARSTERS P, PONCE DE LEÓN BARIDO D, et al. Sustainability lessons from shale development in the United

- States for Mexico and other emerging unconventional oil and gas developers[J]. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2018, 82: 1320–1332.
- [5] NB/T 14002.3—2015 页岩气 储层改造 第3部分:压裂返排液回收和处理方法[S].
- [6] 四川省环境保护厅.四川省页岩气开采业污染防治技术政策[Z].2018-02-01.
- [7] LIU Wenshi, SUN Lingru, TAO Sha. Removal of Ca^{2+} , Mg^{2+} , Ba^{2+} and Sr^{2+} from shale gas flowback water from the Sichuan Basin in China by chemical softening under the guidance of OLI Stream Analyzer: Precipitation behaviors and optimization study[J]. *Water Science and Technology*, 2020, 82(1): 194–206.
- [8] ZIEMKIEWICZ P F, HE Y T. Evolution of water chemistry during Marcellus Shale gas development: A case study in West Virginia[J]. *Chemosphere*, 2015, 134: 224–231.
- [9] ESTRADA J M, BHAMIDIMARRI R. A review of the issues and treatment options for wastewater from shale gas extraction by hydraulic fracturing[J]. *Fuel*, 2016, 182: 292–303.
- [10] GREGORY K B, VIDIC R D, DZOMBAK D A. Water management challenges associated with the production of shale gas by hydraulic fracturing[J]. *Elements*, 2011, 7(3): 181–186.
- [11] Hayers, T. Sampling and analysis of water streams associated with the development of Marcellus Shale gas[R]. Final report prepared for Marcellus Shale Coalition, 2012.
- [12] LUEK J L, GONSIOR M. Organic compounds in hydraulic fracturing fluids and wastewaters: A review[J]. *Water Research*, 2017, 123: 536–548.
- [13] KONG Fanxin, CHEN Jinfu, WANG Heming, et al. Application of coagulation-UF hybrid process for shale gas fracturing flowback water recycling: Performance and fouling analysis[J]. *Journal of Membrane Science*, 2017, 524: 460–469.
- [14] HE Can, WANG Xuhan, LIU Wenshi, et al. Microfiltration in recycling of Marcellus Shale flowback water: Solids removal and potential fouling of polymeric microfiltration membranes[J]. *Journal of Membrane Science*, 2014, 462: 88–95.
- [15] LESTER Y, FERRER I, THURMAN E M, et al. Characterization of hydraulic fracturing flowback water in Colorado: Implications for water treatment[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, 512/513: 637–644.
- [16] HAYERS T, SEVERIN B. Barnett and appalachian shale water management and reuse technologies[R]. Final report prepared for Research Partnership to Secure Energy for America, 2012.
- [17] 涂奔州, 李慧强, 操卫平, 等. 页岩气压裂返排液破胶剂筛选[J]. 油气田环境保护, 2017, 27(2): 27–30.
- TU Yizhou, LI Huiqiang, CAO Weiping, et al. Screening of gel breaking agent for hydraulic fracturing flowback fluid treatment[J]. *Environmental Protection of Oil & Gas Fields*, 2017, 27(2): 27–30.
- [18] MA G Y, GEZA M, XU P. Review of flowback and produced water management, treatment, and beneficial use for major shale gas development basins[C]//Shale Energy Engineering Conference. Pittsburgh: American Society of Civil Engineers, 2014: 53–62.
- [19] PARKER K M, ZENG Teng, HARKNESS J, et al. Enhanced formation of disinfection byproducts in shale gas wastewater-impacted drinking water supplies[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48(19): 11161–11169.
- [20] WARNER N R, CHRISTIE C A, JACKSON R B, et al. Impacts of shale gas wastewater disposal on water quality in western Pennsylvania[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(20): 11849–11857.
- [21] 陈华.《城镇污水处理厂污染物排放标准》与《地表水环境质量标准》的比较和发展趋势探索[J]. 净水技术, 2019, 38(10): 56–61.
- CHEN Hua. Comparison between standards for pollutants discharge from municipal WWTPs and standards for environmental quality of surface water and exploration on the development trends[J]. *Water Purification Technology*, 2019, 38(10): 56–61.
- [22] CARRERO-PARREÑO A, ONISHI V C, SALCEDO-DÍAZ R, et al. Optimal pretreatment system of flowback water from shale gas production [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2017, 56(15): 4386–4398.
- [23] HAYES T, HALLDORSON B, HORNER P, et al. Mechanical vapor recompression for the treatment of shale-gas flowback water[J]. *Oil and Gas Facilities*, 2014, 3(4): 54–62.
- [24] THIEL G P, TOW E W, BANCHIK L D, et al. Energy consumption in desalinating produced water from shale oil and gas extraction[J]. *Desalination*, 2015, 366: 94–112.
- [25] HUSNAIN T, MI Baoxia, RIFFAT R. A combined forward osmosis and membrane distillation system for sidestream treatment[J]. *Journal of Water Resource and Protection*, 2015, 7(14): 1111–1120.
- [26] BUTKOVSKIY A, FABER A H, WANG Yue, et al. Removal of organic compounds from shale gas flowback water[J]. *Water Research*, 2018, 138: 47–55.
- [27] SLUTZ J, ANDERSON J, BRODERICK R, et al. Key shale gas water management strategies: An economic assessment tool[C]//Society of Petroleum Engineers, 2012.
-
- [作者简介] 李静(1969—), 高级工程师。E-mail: xn_lijing@petrochina.com.cn。
- [收稿日期] 2022-03-11(修改稿)