

页岩油气开采对地下水污染研究现状与动向

邹佳婕¹, 代朝猛¹, 韩跃鸣¹, 胡佳俊², 张亚雷³, 刘曙光¹, 周 琅⁴

(1. 同济大学 土木工程学院, 上海 200092; 2. 上海大学 生命科学学院, 上海 200444; 3. 同济大学 环境科学与工程学院, 上海 200092;

4. 德克萨斯大学奥斯汀分校 土木、建筑和环境工程系, 奥斯汀 TX 78712)

摘要: 页岩油和页岩气开采过程产生的大量废料, 如果不经处理, 将对地下水造成污染。首先, 介绍了页岩油气的分布和赋存机理, 以及地面干馏、水平钻井和水力压裂等开采技术; 然后, 阐述了页岩油气在现场准备、钻井压裂、采油采气等不同开采环节中的主要污染源; 进而讨论了页岩油气开采中主要的地下水污染物, 分别是有机污染物、重金属和放射性物质, 同时阐述了其带来的地下水污染长期性、隐蔽性和差异性的特点; 最后, 从技术改进和废料处理等方面对页岩油气开采对地下水污染的防治手段进行了展望。

关键词: 页岩油; 页岩气; 地下水污染; 水力压裂; 水平钻井
中图分类号: X523; X592; TD83 **文献标志码:** A

A Review on Current Situation of Groundwater Pollution from Shale Oil and Gas Extraction

ZOU Jiajie¹, DAI Chaomeng¹, HAN Yueming¹, HU Jiajun², ZHANG Yalei³, LIU Shuguang¹, ZHOU Lang⁴

(1. College of Civil Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China; 2. Shanghai Key Laboratory of Bio-Energy Crops, School of Life Sciences, Shanghai University, Shanghai 200444, China; 3. College of Environmental Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China; 4. Department of Civil, Architectural and Environmental Engineering, University of Texas at Austin, Austin, TX 78712, United States)

Abstract: The extraction of shale oil and gas produces a large number of waste materials that are generally discharged into the groundwater environment, causing contamination of groundwater which threatens human health. First, the distribution and storage mechanism of shale oil and gas, as well as the extraction technologies,

which include oil shale retorting, horizontal drilling, and hydraulic fracturing, are introduced. Then, various events that may cause groundwater pollution and the main sources of contamination in the extraction processes, which consist of preparations, drilling and fracturing, and capture of shale oil and gas, are summarized. Afterwards, three types of groundwater pollutants caused by shale oil and gas exploitation, which are organic contaminants, heavy metals, and radioactive material, are discussed, and the characteristics of groundwater contamination are expounded. Finally, the prospect of groundwater pollution research in the exploitation of shale oil and gas is proposed from the perspectives of technological improvement and waste treatment.

Keywords: shale oil; shale gas; groundwater pollution; hydraulic fracturing; horizontal drilling

能源一直是人类经济社会发展的共同问题, 石油、煤炭和天然气等传统能源储量日益减少, 寻找新型能源的问题越来越受到人们的关注。页岩油和页岩气是在页岩中形成和赋存的油气资源, 是目前极具潜力、储量丰富的非常规能源。世界油页岩矿床储量转化为可开发页岩油量, 可达4 000亿t, 相当于世界已探明原油的5.4倍^[1]。2020年我国已探明的页岩气储量就达4 026.17亿m³。我国页岩油气开采调查也不断取得新进展, 在松辽盆地和川东南地区均实现了页岩油气的勘探新突破^[2]。

可以产生页岩油和页岩气的岩石统称为页岩, 是一种灰分、有机质含量高的固体可燃有机矿产。与传统的油气岩层相比, 油气在页岩岩层中的流动性更差、渗透率更低^[3], 需要借助外力破坏岩层, 以

收稿日期: 2022-07-23

基金项目: 国家重点研发计划(2019YFE0114900); 国家自然科学基金(42077175); 上海市科技创新行动计划(21230712100)

第一作者: 邹佳婕, 博士生, 主要研究方向为地下水污染治理。E-mail: satoshi@tongji.edu.cn

通信作者: 代朝猛, 研究员, 博士生导师, 工学博士, 主要研究方向为地下水安全保障理论与技术。

E-mail: daichaomeng@tongji.edu.cn



论文
拓展
介绍

提高低渗透岩层的产油产气率。但随之而来的还有地下水污染的问题。页岩油气的开采方法不仅是利用外力打破岩层,还涉及了一些特定化学品和支撑剂混合物的使用以及高温高压环境,这使得在开发周期内,可能有化学品残留、油气泄露等问题,最终导致页岩油气开发区域的地下水污染问题^[4-6]。页岩油气开采中的一大难题是难以切断与周围地下水系的联系,这一方面导致开采效率降低,另一方面导致化学品或者油气进入地下水^[5],造成地下水系的扩散型污染。

本文针对页岩油和页岩气开采对地下水造成的污染进行介绍。首先介绍了页岩油气的成藏机理和分布,其次介绍了开采手段以及开采周期中可能造成地下水污染的环节,进而阐述了页岩油气开采造成的地下水污染的污染特征,包括污染物种类和污染特点,进而对污染防治方法进行了论述,最后对该研究方向提出了新展望。

1 页岩油气的成藏机理和分布

能产生和储存非常规油气的是富含细颗粒的岩石,根据其产油气的性质,又分为油页岩和气页岩,主要由矿物、干酪根和少量的沥青^[6]组成。若环境中有机质能有效地保存、聚集以及转化,就具备了形成页岩的条件,因此油页岩通常成藏于陆地、湖泊、海洋、沼泽等环境中。

页岩油是成熟有机质页岩石油的总称,一般会在页岩孔隙和缝隙中,以吸附态或游离态形式存在。页岩气是从页岩中开采的非常规天然气,来自生物作用、热解作用和热裂解作用,其存在形式多样,既可以在天然裂缝和晶体孔隙中以游离态存在,也可以吸附在岩石和黏土颗粒表层,或者溶解在页岩层产生的碳氢化合物中^[7]。在热解作用下页岩中的干酪根可以转化为气、油,因此页岩油的开采通常也伴随着页岩气的溢出。热解的主要产物是各类长短链烷烃和烯烃,直链脂肪族为最主要成分,而环状和支链的脂肪族含量相对较低,其中以气体形式存在的甲烷、乙烯等为页岩气,其他为页岩油,并且随着温度的不同其成分和含量有所变化。

我国页岩资源储量大,分布广泛,目前处于世界第二位。我国页岩大多为陆相成因,其脂质含量较高^[8],在27个省(自治区)和50个盆地、95个含矿区均有分布,其中以松辽盆地、鄂尔多斯盆地和准葛尔盆地分布最为集中^[9]。页岩油和页岩气均是我国未

来极具潜力的新型替代能源。

2 页岩油气开采周期的地下水污染

2.1 页岩油气的开采方法

页岩油气是较早开发和利用的非常规油气,已经发展出了不同实际情况下的开发技术。

2.1.1 页岩油

根据页岩的埋深不同,页岩油可以采取地面干馏、原位开采2种方式^[10]。地面干馏的过程主要包括将页岩从岩层中运送到地面以及从取出的页岩中提取页岩油2个步骤。运送是利用爆破或采矿机等将页岩从矿体中剥离出来,运送到地面,再将页岩低温干馏提取出所需要的页岩油。但大部分页岩埋藏较深,大多在500 m以下的岩层,不适合采用地表或深层的开采方式,于是发展出了原位开采技术,即岩层不经过开采运送,而是使用钻井或水力压裂的方式打破岩层,并采用各种加热方式直接在原位进行加热干馏提取页岩油,可以适用于埋深300~1 500 m的页岩层^[10]。随着发展已经衍生出了各类原位干馏技术和原位转化技术。

2.1.2 页岩气

页岩气存在于致密的、渗透性极低的页岩层中,几乎无法自然溢出,因此页岩气开采必须采取人工手段来提高其利用效率。页岩气的开采周期包括现场准备、水平钻井、水力压裂、回流和生产等活动,其中水平钻井和水力压裂是最为关键的技术。

水平井是最大斜角保持与垂直方向呈 $85^{\circ}\sim 95^{\circ}$ ^[11],并在相应岩层中维持一定长度的生产井。页岩气是在岩层裂缝孔隙中赋存的天然气,水平井由于其角度的可变性,可以适应多种岩层条件,将井筒定向在最大稳定性的方向,提高页岩气的采收效率。水平井向岩层延伸的部分既增加了岩层气藏的暴露和接触面积,也对流体流动状态有一定的改善作用^[12]。水力压裂技术是将水的冲击力作用在页岩气所在岩层,形成人工裂缝,进一步产生密集的裂缝网络,改善储层的渗透率,提高油气层中流体流速,使页岩气暴露以便于采集。水力压裂分为2个主要阶段:垫层阶段和泥浆阶段^[13]。垫层阶段需要将压裂液注入到井中以分解地下岩层,由于压裂液流动速度大于地层中流体的流速,因此形成垫层。在泥浆阶段,将压裂液与支撑剂混合,并将其填入垫层裂缝中,保持和支撑所形成的裂缝,使气体流向油井,完成开采工作。

2.2 页岩油气开采的污染环节

如图1所示,页岩油气的开采过程复杂,其间可能有油气迁移、污染物通过诱导和自然形成的裂缝迁移、废水排放和溢出、废渣残留和处理不当等因素,可能导致地下水的污染。整个页岩油气开采周

期大致包括现场准备、钻井开坑、水力压裂、油气采集几个环节。在整个周期中,产生的并非只有页岩油和页岩气,同时还有一些压裂液残留物、开采废水、页岩废渣等物质的排放和管理,造成一些不可避免的地下水污染。

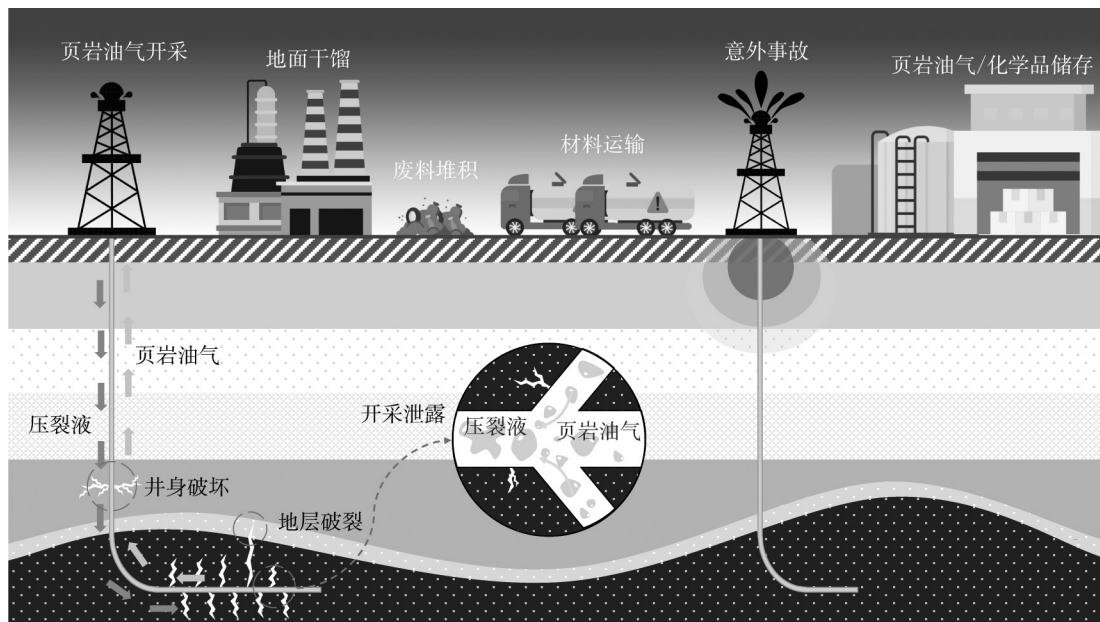


图1 页岩油气开采造成的地下水污染示意

Fig.1 Groundwater contamination cause by extraction of shale oil and gas

2.2.1 现场准备阶段

页岩油气的开采是一个涉及到复杂开采技术的工程,需要进行必要的现场准备工作,包括环境勘探、场地平整、道路修建、设备安装和原材料运输等工作。地面干馏开采页岩油时的岩层开挖,导致了油页岩层和含水层的接触,造成了地下水的污染。道路是环境污染的持续来源之一,从建设活动到运输活动,都可能带来不同程度的地下水污染。Ličbinský等^[14]的研究表明道路修建中会有包括沥青在内的建筑材料化合物的溢出,从而造成地下水中多环芳烃浓度的上升。据研究,道路运输会影响道路50 m以内的地下水质量^[15]。除此之外,新修建的道路在运行期间,同样会导致地下水中的重金属离子浓度增加^[16]。还有压裂液等的制备,包括原材料的运输、储存等过程,化学添加剂等有毒原材料在准备过程中可能产生现场溢出和泄露等事件,随着开采活动渗入地下,从而污染地下水。

2.2.2 钻井和压裂过程

钻井和压裂是页岩油气开采的核心环节,其工作过程中涉及到多种污染源,是产生大量废料的主要环节,对地下水环境有巨大威胁。

在钻井工作中,向井内注入钻井液并将岩层碎屑带出,产生的包括钻屑和钻井废水在内钻井废料,是页岩油气开采的重要污染源之一。钻井废料是由机械污水、钻井液废液以及钻井岩屑组成的。钻井时使用的设备有钻井泵、柴油机、水刹车等,在设备工作期间会排放各类污水。钻井液是在钻井时起到冲洗、冷却、润滑等作用的液体。钻井岩屑是钻井过程中钻头冲破岩层而产生的碎屑,会随着钻井废液被一同带出至地面。因此,成分来源的多样性使得钻井废料的污染物组成非常复杂。苯、乙苯和二甲苯天然存在于许多碳氢化合物矿床中,会随钻井过程带出并可能进入到地下水中。除此之外,页岩和残余页岩渣都会向水中释放有机污染物,除了页岩油开采过程外,开采后的残余页岩渣也会对地下水造成持续的污染。

页岩油的原位干馏以及页岩气的开采中最常使用的压裂方式是水力压裂法。该方法需要大量的水,通常是钻井过程所需水量的3倍以上,同时产生大量液体流出物,造成地下水污染。一个页岩气井需要消耗约20 000 m³的水、850 t的支撑剂和约210 t的化学溶液^[17]。据Kondash等^[18]的估计,2030年页岩

岩油气开发行业将需要 $5.77 \text{ 亿 m}^3 \sim 42.17 \text{ 亿 m}^3$ 的淡水,并产生 $4.99 \text{ 亿 m}^3 \sim 35.85 \text{ 亿 m}^3$ 的废水。水力压裂法运行的同时产生大量高度污染的废水,包括压裂液残留液、返排水和生产水,其污染成分随着开采条件各有不同,包括各类悬浮固体、无机盐、重金属、有机物以及天然放射性物质等。

页岩油气开采中的水循环如图2所示。压裂液是水力压裂的工作液,起到传递能量、形成和延伸裂缝、携带支撑剂的作用。根据页岩气不同的地质条件,压裂液的成分与比重也不同,主要由水、支撑剂和各种化学添加剂组成。化学添加剂在压裂液中的

体积分数不到 0.5% ^[19],但却是使用水力压裂法的页岩油气开采造成地下水污染的主要来源,包括酸、表面活性剂、杀菌剂、阻蚀剂、凝胶剂、pH调节剂和交联剂等。返排水是在水力压裂后立刻回流的压裂液,还携带有岩层中其他化学物质,含有溶解和分散的各类化合物,如压裂液中的化学添加剂、石油烃类等。生产水则是剩余的在油气生产过程中随着页岩气一起返回的部分液体,与返排水不同的是,除了油类化合物等外,生产水一般还携带有来自地层的咸水,具有高盐度的特征。生产水不经处理直接排放,可能会导致土地的盐碱化等问题。

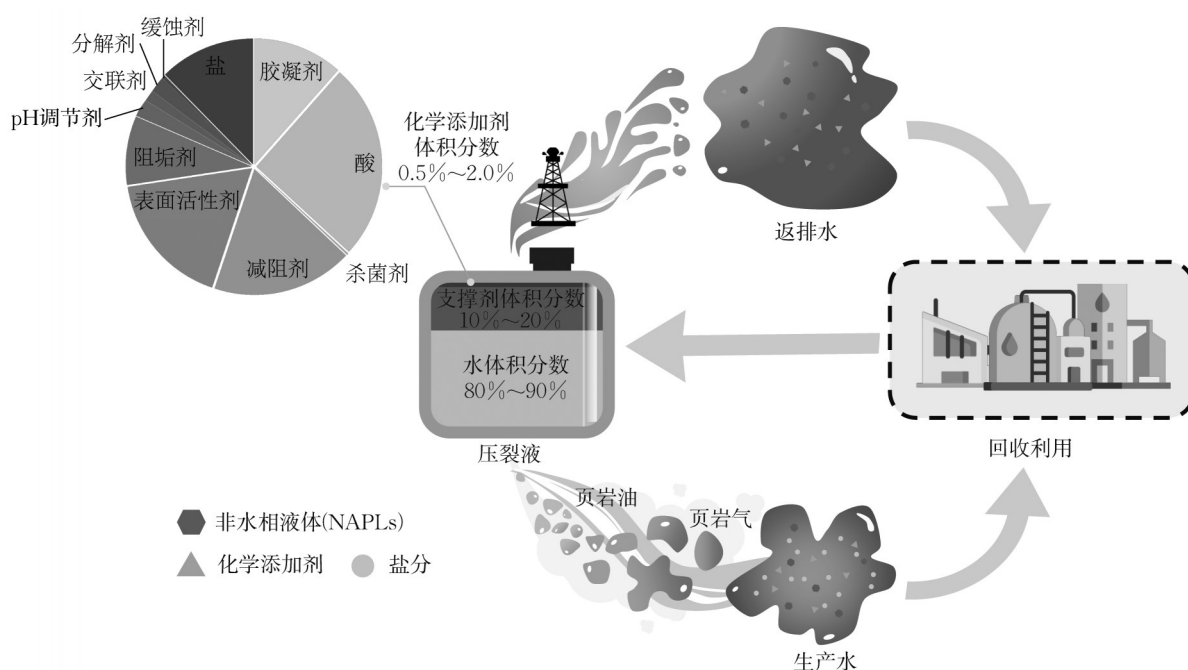


图2 页岩油气开采水循环示意

Fig. 2 Water cycle in extraction of shale oil and gas

除了以上所述的必然污染事件外,还有存在压裂液和废液存储和运输中的泄露溢出,亦或是水力压裂越流迁移等可能造成地下水污染的随机性事件。首先,水力压裂的巨大的需水量使稳定的水源成为开采的必要条件之一,地下水是最常使用的水源,地下水在页岩油气开采地区的大量开采,可能造成地下水系水量减小,增加受污染的风险。水力压裂的井筒可能由于各种人为或不可控因素遭到破坏,形成孔隙、裂缝等。Mullen等^[20]报道了Kockatea页岩开发时,页岩油气由于岩层裂缝渗入到深层含水层的案例。在固井和完井等作业过程中也有井漏、井喷等意外事件发生,产生的废液在迁移过程中泄露至浅层地下水,造成污染。2010年美国宾夕法尼亚州的一口井发生井喷,并发生了严重的扩散^[21]。

其次,在进行水力压裂作业时,可能会在非目标岩层造成预想外的裂缝,发生一些压裂事故,若含水层产生裂缝,为页岩油气、开采产生的废水废渣等可能造成地下水污染的物质提供了迁移通道,从而造成地下水污染。除此之外,钻井和压裂的过程均有可能导致低强度地震^[22],这种微地震可能对地下岩层裂缝网络和开采设备产生影响,造成潜在的污染物泄露至地下水的危险。

2.2.3 采油采气过程

页岩油和页岩气的采集和处理过程也可能造成地下水污染,主要涉及到以下几个方面。首先是页岩气在采集过程中的泄露。在调查中发现,页岩气井附近居民的饮用水井中,甲烷浓度随着与页岩气井距离的减小而升高,最高达 $64 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,远远超出

了污染的阈值^[23],这样的事件并非个例^[24]。甲烷以溶质形式进入到生活用井中,尽管甲烷本身对人体无害,但是当甲烷存在时,可被细菌氧化,导致氧气耗尽。低氧浓度可导致砷或铁等元素的溶解度增加,在这种条件下增殖的厌氧细菌可能会将硫酸盐还原成硫化物,从而造成水和空气质量问题^[3]。还有 Woda 等^[25]的研究表明,由页岩气井泄露的甲烷形成的气体羽流会向含水层移动,并且导致一些有害污染物的转移。

页岩油的地面干馏也带来了地下水污染的风险。页岩经过开采剥离后,被投入干馏炉热解生成页岩油,过程中产生从炉顶逸出并冷却的伴生水以及页岩的废渣。干馏废水中有机化合物含量很高,除了石油烃类外,还有大量有机氮、有机硫等。由于开采过程产生的废水会产生泄露和下渗,在油页岩采矿区的地下水中,苯系物普遍超标^[26]。Kahru 等^[27]发现油页岩渗滤液的主要污染物是苯酚、甲酚、二甲基苯酚和间苯二酚,其中苯酚的浓度高达 $380 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。页岩干馏后的废渣和灰分在开采现场若得不到合适的处理,可能随着地表水、雨水的冲刷,浸出各类有毒化合物,并渗入土壤,甚至进入地下水,破坏地下水环境。

除此之外,页岩油的原位开采虽然具有一定环保的优势,但仍会给地下水环境造成影响。原位开采中页岩油气释出的同时,油页岩以及油页岩灰都会释放有机污染物,并在岩层中长期吸附和积累,并缓慢释放到地下水环境中,造成对地下水的持续污染。Wang 等^[28]的研究发现,页岩油原位开采的固体残渣会带来地下水中铅离子和苯系物浓度的持续升高。另外,页岩油原位开采中的加热环节,会引起油页岩孔隙率和吸水率的升高,增加了地下水污染的风险^[29]。

3 页岩油气污染特征

3.1 污染物的类型与来源

3.1.1 有机污染物

有机污染物是页岩油气开采导致的地下水污染中的重点,一方面是参与开采的有机污染物组分多,其生物毒性强,通常具有积累性和持续性;另一方面是有机污染物的分子结构复杂,从地下水中去除相对较难。有机化合物污染几乎存在于整个页岩油气开采周期。Hu 等^[30]对油页岩原位开采中的水-岩相互作用进行了研究,发现随着反应时间和温度的提

高,地下水中的苯酚、总有机碳(TOC)、总石油烃(TPH)含量均有明显增加。在页岩油气生产过程中产生的有机污染物主要有石油烃(烷烃、烯烃、芳香烃、卤代烃等)、醇类化合物(甲醇、乙二醇等)、醚类化合物、酯类化合物以及大分子有机聚合物等。其来源也很广,包括压裂液、返排水和生产水、页岩油气、运输和机械污水、地层产物等。

在页岩油气产生的废液中,石油烃的含量很高,其中占比最高的是烷烃类。页岩气主要由气态烷烃组成,在开采过程中会不可避免地产生气体逸出。在 Marcellus 页岩气地区的含水层调查中发现^[31],由于泄露造成的甲烷气体污染,使得甲烷浓度高达 $64 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。页岩气井附近 1km 内的饮用水样本中,甲烷浓度比全部样本平均值高出 6 倍,乙烷高出 23 倍^[24]。另外,芳香烃类化合物也是常见的污染物,单环芳烃和多环芳烃均有检测出^[32-33]。在对 Barnett 页岩开发区的地下水调查中,发现了甲醇、乙醇以及各类苯系物^[34]。石油烃通过饮用、皮肤接触,或者通过挥发经由空气进入人体,威胁人体健康^[35]。在怀俄明州地下水调查中发现苯含量是安全水平的 50 倍,还有标本和 2-丁氧基乙醇等有害污染物^[36]。Marcellus 页岩区来自地下水的自来水由于高盐度和高甲苯含量而造成当地人的健康问题^[37]。

压裂液中使用的化学添加剂种类很多,其中所含有的有机化学品有甲醇、乙二醇、乙二醇单丁醚、萘等,用作杀菌、防冻、表面活性剂等。这些化学添加剂会在返排水和采出水中被检测出来。He 等^[38]在返排水中检测出了作为压裂液添加剂的表面活性剂聚乙二醇和 Triton-X。在美国怀俄明州的饮用水井中发现了压裂液成分 2-丁氧基乙醇^[21]。

3.1.2 重金属

钻井产生的油机钻屑中含有多种重金属,除了钻井液的添加剂外,还有来自岩层碎屑的重金属,主要有 Ba、Cr、Cu、Ni、Pb、Zn 等^[39]。在重庆某页岩气井的油基钻屑中发现了 Mn、Cd、Cu、Hg 等重金属,均高于背景值,以 Cd 的污染最为严重^[40]。重金属会增加页岩中有机物的反应活性,同时,废渣中的重金属会从钻屑中浸出并在降雨和地表径流等的作用下进入到地下水中,并在环境中持续存在,威胁人体健康。在页岩开采地区,砷、锑等含量超过了美国环境保护署的饮用水最大污染物限值^[4]。Wang 等^[28]的研究表明,油页岩原位开采会导致地下水环境的持续性铅污染。目前的调查研究显示,页岩油气开采带来的地下水中重金属浓度变化还未达到污染的标准。

准值^[40-41],但重金属对人体健康威胁较大,仍需要作为重要污染指标加以关注。

3.1.3 放射性物质

在页岩油气生产过程中,可能将天然存在的放射性物质带到地表,包括镭、铀和钍以及它们的一些衰变元素^[31,42-43]。²²⁶Ra和²²⁸Ra是返排水中最丰富的放射性核素^[44],可以由铀和钍衰变得来^[45]。²²²Rn是镭的一种气态衰变元素,会随着页岩气一起溢出。放射性核素在工作过程中或在废水处理阶段以水垢的形式沉淀,存在于固体废物和污泥之中^[46],最终通过各种方式进入地下水环境。除此之外,油气开采废水可能会渗透进入土壤,通过改变地下的盐度、pH值和氧化还原条件,进而使放射性元素进入地下水^[47-48]。Botha等^[49]发现在页岩气开采部分地区地下水中发现氡的含量超标。文献^[47]对加利福尼亚州油田附近水井的调查中发现,18%的水井中²²⁶Ra和²²⁸Ra的放射性活度超过饮用水标准。目前页岩油气开采对地下水中放射性物质的影响总体较小^[48,50],仍需进一步监测。

3.2 地下水污染特点

3.2.1 长期性

页岩油气的开采是一个稳定的长期过程,页岩油气井通常可以维持几十年的开采。而水力压裂并非一个连续过程,通常需要定期对其进行再压裂,以保证页岩油气的正常采集。这样的长期非连续的采集过程,事实上为页岩油气向地下水层的泄露提供了更多可趁之机。随着时间推移,页岩油气开采释放的污染物增多^[30]。短时间的大量取水、不间断的油气开采、定期的再压裂,都加剧了地下水污染的风险。Hill^[51]在对宾夕法尼亚州的页岩气开采对婴儿健康的影响调查中发现,在开采后的3年才逐渐出现负面影响,并且页岩气开采在此后对健康产生持续性的影响。

3.2.2 隐蔽性

页岩通常埋藏较深,其埋深甚至达到几千米。而页岩油气的开采本质是对地下岩层的改造,这种改造是在地下进行的,难以被观察到。加之页岩油气的生产周期较长,对开采区域的地下水进行实时监测也具有一定的难度。除此之外,如碳氢化合物等污染的标准浓度较低,在Qiao等^[42]研究中,中国4个地区地下水中多环芳烃(萘、菲、芘、苯并(a)芘、荧蒽等)的平均浓度为594.78 ng·L⁻¹,因此,在发生污染时不显著。综上,在地层内部发生的地下水污染潜伏性极强,难以察觉。

3.2.3 差异性

由于不同的页岩油气资源,其成藏原理、岩层结构、地理位置等都不同,在开采过程中使用的开发手段、使用的试剂等都有较大差异。压裂液、返排水和生产水的成分都有较大参差。Vieth-Hillebrand等^[43]在表征回流水化学成分的时候,发现每次压裂产生的回流水成分不尽相同,还含有从岩层中带出的物质。Woda等^[25]的研究发现地下含水层中氧化剂的含量也会影响地下水中碳氢化合物的浓度。这些复杂的差异性因素给页岩油气开采导致的地下水污染防治带来了一定的难度。

4 页岩油气污染防治措施

页岩油气污染防治措施,一方面是改良开采技术,如提高开采效率、改良钻井液或压裂液成分以及减少意外事故发生等,另一方面是对废料进行无毒化和资源化处理。

原位转化技术是一种改变热解方式的新型原位开采技术,目前已经开发出多种技术方案,包括壳牌提出的原位转化技术(Shell's in-Situ conversion process, ICP)、埃克森美孚提出的电压裂技术(electrofracTM process)、地热燃料电池(geothermic fuel cell, GFC)等多种技术方案^[52]。在此基础上,还有改进加热技术^[53-54]和使用催化剂提高热解速度等^[55-56]方式。钻井液和压裂液是页岩油气污染的最主要来源。Jain等^[57]利用聚丙烯酰胺-黏土复合材料改良水基钻井液的添加剂,提高了页岩气采集率,同时相比于传统添加剂污染性大幅降低。除此之外,纳米基钻井压裂液是一种环保型钻井压裂液,有替代油基钻井压裂液的潜力^[58-60]。

页岩油气废料无毒化通常有物理、化学、生物和以上三者组合的方法^[61-64]。生物处理由于其环境友好性具有广阔的发展前景,其中生物膜是处理页岩油气开采废水的常用方法。Akyon等^[61]用工程生物膜对页岩气生产水中的有机碳达到最高87%的去除率。油基钻屑、干馏废渣等都是成分复杂、污染毒性强、难以处理的废料,近年来发展出对其资源化利用的技术,将其作为建筑类材料回收利用。Oreshkin等^[65]表征了钻井污泥的基本物理性质,其研究表明开采废料具备作为砖、混凝土等建筑材料的条件。张翔宇等^[66]向石油开采中的钻井废弃泥浆加入骨料、固化剂等材料后,将其资源化利用为边坡加固和场地硬化的材料。除此之外,还有各类以废

弃泥浆或者钻井岩屑为原料的制备烧结砖^[67]和混凝土^[68]的工艺,对废料进行资源化再利用。

5 结语

地下水是重要的饮用水源,页岩油气开发带来的污染对人体健康有极大威胁。若不及时规范页岩油气开发和控制污染源,将埋下巨大的污染隐患。页岩油气的开发仍然在发展阶段,对开采技术的改良、污染的整治等问题,都需要进一步研究。因此,根据目前页岩油气开采造成的地下水污染现状,综合上述文献内容,提出以下后续建议:

(1)页岩油气开采亟需更加温和、高效的页岩油气开采手段,以减少对地下整体环境的影响。

(2)对页岩油气开发中的多种类污染源的识别和量化有助于控制和治理开采对地下水造成的污染。

(3)页岩油气开发相关的标准和法规仍需要进一步规范和完善。

作者贡献声明:

邹佳婕:完成论文主体逻辑框架,查找和筛选文献,整理内容点和创新点,撰写初稿,完成后续修改。

代朝猛:提出论文总体思路,对论文总体架构指导撰写,全文审阅。

韩跃鸣:对论文内容以及结构进行修改完善和优化。

胡佳俊:针对论文结构优化提出指导性建议。

张亚雷:对论文提出指导性建议。

刘曙光:对论文提出指导性建议。

周 焱:对论文提出指导性建议。

参考文献:

- [1] DYNI J R. Geology and resources of some world oil-shale deposits [J]. *Oil Shale*, 2003, 20 (3): 193
- [2] 中华人民共和国国土资源部. 中国矿产资源报告 [M]. 北京: 地质出版社, 2021.
Ministry of Land and Resources of the People's Republic of China. *China mineral resources report* [M]. Beijing: Geology Press, 2021.
- [3] VIDIC R D, BRANTLEY S L, VANDENBOSSCHE J M, *et al.* Impact of shale gas development on regional water quality [J]. *Science*, 2013, 340(6134): 1235009.
- [4] FONTENOT B E, HUNT L R, HILDENBRAND Z L, *et al.* An evaluation of water quality in private drinking water wells near natural gas extraction sites in the Barnett shale formation [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47 (17): 10032.
- [5] SUN Y, LIU Z, LI Q, *et al.* Controlling groundwater infiltration by gas flooding for oil shale in-situ pyrolysis exploitation [J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2019, 179: 444.
- [6] MA Y, LI S. The mechanism and kinetics of oil shale pyrolysis in the presence of water [J]. *Carbon Resources Conversion*, 2018, 1(2): 160.
- [7] CURTIS J B. Fractured shale-gas systems [J]. *Aapg Bulletin*, 2002, 86(11): 1921.
- [8] XU Y, SUN P, YAO S, *et al.* Progress in exploration, development and utilization of oil shale in China [J]. *Oil Shale*, 2019, 36(2): 285.
- [9] 柳蓉, 张坤, 刘招君, 等. 中国油页岩富集与地质事件研究 [J]. *沉积学报*, 2021, 39(1): 10.
LIU Rong, ZHANG Kun, LIU Zhaojun, *et al.* Study on oil shale enrichment and geological events in China [J]. *Acta Sedimentologica Sinica*, 2021, 39(1): 10.
- [10] 张传文, 孟庆强, 唐玄. 油页岩开采技术现状与展望 [J]. *矿产勘查*, 2021, 12(8): 1798.
ZHANG Chuanwen, MENG Qingqiang, TANG Xuan. Present situation and prospect of oil shale mining technology [J]. *Mineral Exploration*, 2021, 12(8): 1798.
- [11] AZAR J J. Oil and natural gas drilling [M]. *Encyclopedia of Energy*. Elsevier, 2004.
- [12] ISLAM M R, HOSSAIN M E. Advances in horizontal well drilling [M]. *Drilling Engineering Houston: Elsevier*, 2021.
- [13] GUO B, LYONS W C, GHALAMBOR A. 17 - Hydraulic fracturing [M]//*Petroleum Production Engineering*. Burlington: Gulf Professional Publishing, 2007.
- [14] LIČBINSKÝ R, HUŽLÍK J, PROVALILOVÁ I, *et al.* Groundwater contamination caused by road construction materials [J]. *Transactions on Transport Sciences*, 2012, 5 (4): 205.
- [15] ULIASZ-MISIAK B, WINID B, LEWANDOWSKA-ŚMIERZCHALSKA J, *et al.* Impact of road transport on groundwater quality [J]. *Science of The Total Environment*, 2022, 824: 153804.
- [16] EARON R, OLOFSSON B, RENMAN G. Initial effects of a new highway section on soil and groundwater [J]. *Water, Air & Soil Pollution*, 2012, 223(8): 5413.
- [17] MICHALSKI R, FICEK A. Environmental pollution by chemical substances used in the shale gas extraction—a review [J]. *Desalination and Water Treatment*, 2016, 57(3): 1336.
- [18] KONDASH A J, LAUER N E, VENGOSH A. Erratum: The intensification of the water footprint of hydraulic fracturing [J]. *Science advances*, 2018, 4(8): eaar5982.
- [19] 埃哲森. 水资源和页岩气开发 [R]. 上海: 埃森哲中国, 2013.
ACCENTURE. Water resources and shale gas development [R]. Shanghai: Accenture China, 2013.
- [20] MULLEN F, BOOGAERDT H, ARCHER R. Relation between fracture stability and gas leakage into deep aquifers in the north Perth basin in western Australia [J]. *Groundwater*,

- 2019, 57(5): 678.
- [21] RAHM D. Regulating hydraulic fracturing in shale gas plays: The case of Texas[J]. *Energy Policy*, 2011, 39(5): 2974.
- [22] ZOBACK M, KITASEI S, COPITHORNE B. Addressing the environmental risks from shale gas development [M]. Washington D C: Worldwatch Institute; 2010.
- [23] HOLZMAN D C. Methane found in well water near fracking sites[J]. *Environmental Health Perspectives*, 2011, 119(7): a289.
- [24] JACKSON R B, VENGOSH A, DARRAH T H, *et al.* Increased stray gas abundance in a subset of drinking water wells near Marcellus shale gas extraction[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2013, 110(28): 11250.
- [25] WODA J, WEN T, OAKLEY D, *et al.* Detecting and explaining why aquifers occasionally become degraded near hydraulically fractured shale gas wells [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2018, 115(49): 12349.
- [26] GROSS S A, AVENS H J, BANDUCCI A M, *et al.* Analysis of BTEX groundwater concentrations from surface spills associated with hydraulic fracturing operations[J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2013, 63(4): 424.
- [27] KAHRU A, MALOVERJIAN A, SILLAK H, *et al.* The toxicity and fate of phenolic pollutants in the contaminated soils associated with the oil-shale industry [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2002, 9(1): 27.
- [28] WANG H, ZHANG W, QIU S, *et al.* Release characteristics of Pb and BETX from in situ oil shale transformation on groundwater environment [J]. *Scientific Reports*, 2021, 11(1): 16166.
- [29] HU S, XIAO C, JIANG X, *et al.* Potential impact of in-situ oil shale exploitation on aquifer system [J]. *Water*, 2018, 10(5): 649.
- [30] HU S, XIAO C, LIANG X, *et al.* The influence of oil shale in-situ mining on groundwater environment: A water-rock interaction study[J]. *Chemosphere*, 2019, 228: 384.
- [31] OSBORN S G, VENGOSH A, WARNER N R, *et al.* Methane contamination of drinking water accompanying gas-well drilling and hydraulic fracturing [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2011, 108(20): 8172.
- [32] JEFIMOVA J, IRHA N, REINIK J, *et al.* Leaching of polycyclic aromatic hydrocarbons from oil shale processing waste deposit: A long-term field study [J]. *Science of The Total Environment*, 2014, 481: 605.
- [33] STRONG L C, GOULD T, KASINKAS L, *et al.* Biodegradation in waters from hydraulic fracturing: chemistry, microbiology, and engineering [J]. *Journal of Environmental Engineering*, 2014, 140(5): B4013001.
- [34] HILDENBRAND Z L, CARLTON D D, FONTENOT B E, *et al.* A comprehensive analysis of groundwater quality in the Barnett shale region [J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(13): 8254.
- [35] 姜林, 钟茂生, 贾晓洋, 等. 基于地下水暴露途径的健康风险评估及修复案例研究[J]. *环境科学*, 2012, 33(10): 3329.
- JIANG Lin, ZHONG Maosheng, JIA Xiaoyang, *et al.* Health risk assessment and remediation case study based on groundwater exposure pathway [J]. *Environmental Science*, 2012, 33(10): 3329.
- [36] JACKSON R B, VENGOSH A, CAREY J W, *et al.* The environmental costs and benefits of fracking[J]. *Annual Review of Environment and Resources*, 2014, 39(1): 327.
- [37] ZIEMKIEWICZ P F, QUARANTA J D, DARNELL A, *et al.* Exposure pathways related to shale gas development and procedures for reducing environmental and public risk [J]. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 2014, 16: 77.
- [38] HE Y, SUN C, ZHANG Y, *et al.* Developmental toxicity of the organic fraction from hydraulic fracturing flowback and produced waters to early life stages of zebrafish (*Danio rerio*) [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52(6): 3820.
- [39] KUJAWSKA J, CEL W, WASAG H. Leachability of heavy metals from shale gas drilling waste [J]. *Rocznik Ochrona Srodowiska*, 2016, 18: 909.
- [40] XU T, WANG L, WANG X, *et al.* Heavy metal pollution of oil-based drill cuttings at a shale gas drilling field in Chongqing, China: A human health risk assessment for the workers [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, 165: 160.
- [41] WOO N C, CHOI M J, LEE K S. Assessment of groundwater quality and contamination from uranium-bearing black shale in Goesan - Boeun areas, Korea [J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2002, 24(3): 264.
- [42] QIAO X, ZHENG B, LI X, *et al.* Influencing factors and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in groundwater in China [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2021, 402: 123419.
- [43] VIETH-HILLEBRAND A, WILKE F D H, SCHMID F E, *et al.* Characterizing the variability in chemical composition of flowback water-results from laboratory studies [J]. *Energy Procedia*, 2017, 125: 136.
- [44] HALUSZCZAK L O, ROSE A W, KUMP L R. Geochemical evaluation of flowback brine from Marcellus gas wells in Pennsylvania, USA[J]. *Applied Geochemistry*, 2013, 28: 55.
- [45] 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.
- [46] BROWN V J. Radionuclides in fracking wastewater: Managing a toxic blend [J]. *Environmental Health Perspectives*, 2014, 122(2): A50.
- [47] MCMAHON P B, VENGOSH A, DAVIS T A, *et al.* Occurrence and sources of radium in groundwater associated with oil fields in the southern San Joaquin Valley, California

- [J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 53(16): 9398.
- [48] THAKUR P, WARD A L, SCHAUB T M. Occurrence and behavior of uranium and thorium series radionuclides in the Permian shale hydraulic fracturing wastes [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2022, 29(28): 43058.
- [49] BOTHA R, LINDSAY R, NEWMAN R T, *et al.* Radon in groundwater baseline study prior to unconventional shale gas development and hydraulic fracturing in the Karoo Basin (South Africa) [J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2019, 147: 7.
- [50] ATKINS M L, SANTOS I R, PERKINS A, *et al.* Dissolved radon and uranium in groundwater in a potential coal seam gas development region (Richmond River Catchment, Australia) [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2016, 154: 83.
- [51] HILL E L. Shale gas development and infant health: evidence from Pennsylvania [J]. *Journal of Health Economics*, 2018, 61: 134.
- [52] CRAWFORD P, BIGLARBIGI K, DAMMER A, *et al.* Advances in world oil-shale production technologies [C]//*One Petro*, 2008: SPE-116570-MS.
- [53] PAN Y, XIAO L, CHEN C, *et al.* Development of radio frequency heating technology for shale oil extraction [J]. *Open Journal of Applied Sciences*, 2012, 2(2): 66.
- [54] KANG Z, ZHAO Y, YANG D, *et al.* A pilot investigation of pyrolysis from oil and gas extraction from oil shale by in-situ superheated steam injection [J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2020, 186: 106785.
- [55] BENYAMMA A, BENNOUNA C, MOREAU C, *et al.* Upgrading of distillate fractions of Timahdit Moroccan shale oil over a sulphided NiO-MoO₃-Al₂O₃ catalyst [J]. *Fuel*, 1991, 70(7): 845.
- [56] AL-ZEGHAYER Y S, SUNDERLAND P, AL-MASTRY W, *et al.* Activity of CoMo_y-Al₂O₃ as a catalyst in hydrodesulfurization: effects of Co/Mo ratio and drying condition [J]. *Applied Catalysis A: General*, 2005, 282(1): 163.
- [57] JAIN R, MAHTO V. Evaluation of polyacrylamide/clay composite as a potential drilling fluid additive in inhibitive water based drilling fluid system [J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2015, 133: 612.
- [58] SADEGHAKYAAD M, SABBAGHI S. The effect of the TiO₂/polyacrylamide nanocomposite on water-based drilling fluid properties [J]. *Powder Technology*, 2015, 272: 113.
- [59] AKHTARMANESH S, SHAHRABI M J A, ATASHNEZHAD A. Improvement of wellbore stability in shale using nanoparticles [J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2013, 112: 290.
- [60] YANG X, SHANG Z, LIU H, *et al.* Environmental-friendly salt water mud with nano-SiO₂ in horizontal drilling for shale gas [J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2017, 156: 408.
- [61] AKYON B, MCLAUGHLIN M, HERNANDEZ F, *et al.* Characterization and biological removal of organic compounds from hydraulic fracturing produced water [J]. *Environmental Science: Processes & Impacts*, 2019, 21(2): 279.
- [62] ZHUANG Y, ZHANG Z, ZHOU Z, *et al.* Co-treatment of shale-gas produced water and municipal wastewater: removal of nitrogen in a moving-bed biofilm reactor [J]. *Process Safety and Environmental Protection*, 2019, 126: 269.
- [63] TANG P, XIE W, TIRAFERRI A, *et al.* Organics removal from shale gas wastewater by pre-oxidation combined with biologically active filtration [J]. *Water Research*, 2021, 196: 117041.
- [64] JIANG Q, RENTSCHLER J, PERRON R, *et al.* Application of ceramic membrane and ion-exchange for the treatment of the flowback water from Marcellus shale gas production [J]. *Journal of Membrane Science*, 2013, 431: 55.
- [65] ORESKIN D V, CHEBOTAEV A N, PERFILOV V A. Disposal of drilling sludge in the production of building materials [J]. *Procedia Engineering*, 2015, 111: 607.
- [66] 张翔宇, 茆明军, 赵永庆, 等. 钻井废弃泥浆固相物资源化利用 [J]. *科技导报*, 2012, 30(13): 49.
- ZHANG Xiangyu, MAO Mingjun, ZHAO Yongqing, *et al.* Resource utilization of solid phase of drilling waste mud [J]. *Science & Technology Review*, 2012, 30(13): 49.
- [67] ZHANG A, LI M, LV P, *et al.* Disposal and reuse of drilling solid waste from a massive gas field [J]. *Procedia Environmental Sciences*, 2016, 31: 577.
- [68] FOROUTAN M, HASSAN M, DESROSIERS N, *et al.* Evaluation of the reuse and recycling of drill cuttings in concrete applications [J]. *Construction and Building Materials*, 2018, 164: 400.