利用声波资料计算天然气水合物饱和度的 可靠性实验

赵 军 戢宇强 武延亮

西南石油大学地球科学与技术学院

摘 要 为了探讨利用声波速度数据计算天然气水合物(以下简称水合物)饱和度的可靠性,通过岩石物理实验测量非固结砂 泥沉积物中水合物生成过程中的纵、横波速度及其变化值;利用物质平衡方程,结合 *pVT* 状态方程及其测试条件,建立了实验过程 中水合物饱和度的计算模型;在此基础上,分析了非固结沉积物声波速度随水合物饱和度增加的变化规律,利用修正的 Lee 权重声 波公式,计算了水合物的饱和度,并与实验得到的饱和度数据进行了比较。研究结果表明:①在水合物含量达到一定程度的情况下, 可以利用声波资料计算水合物的饱和度;②随着沉积物中水合物含量的不断增加,非固结砂泥沉积物的纵、横波速度也随之增大, 二者之间具有较好的线性相关性;③利用声波资料计算所得的水合物饱和度数值与实验室测试得到的结果可比性较高、误差较小。 结论认为,该研究成果为利用实际声波测井资料计算水合物的饱和度提供了依据。

关键词 天然气水合物 多孔介质 非固结沉积物 岩石物理实验 饱和度 计算模型 声波速度 *pVT* 状态方程 DOI: 10.3787/j.issn.1000-0976.2017.12.005

Reliability experiment on the calculation of natural gas hydrate saturation using acoustic wave data

Zhao Jun, Ji Yuqiang & Wu Yanliang

(School of Geosciences and Technology, Southwest Petroleum University, Chengdu, Sichuan 610500, China) NATUR. GAS IND. VOLUME 37, ISSUE 12, pp.35-39, 12/25/2017. (ISSN 1000-0976; In Chinese) Abstract: In this paper, compression wave velocity, shear wave velocity and their change during the formation of natural gas hydrate in unconsolidated sand and mud sediments were measured through petrophysical experiments to discuss the reliability of calculating natural gas hydrate saturation by using acoustic velocity data. Then, a computation model of natural gas hydrate saturation during the experiments was established based on the material balance equation, combined with the p-V-T state equation and its test conditions. On this basis, the changing law of the acoustic velocity of the unconsolidated sediments with the increase of natural gas hydrate saturation was analyzed. Finally, natural gas hydrate saturation was calculated by using the modified Lee's weight sonic formula, and was compared with that measured in the experiments. And the following research results were obtained. First, the acoustic data can be used to calculate the natural gas hydrate saturation when the content of natural gas hydrate reaches a certain extent. Second, the compression and shear wave velocities of unconsolidated sand and mud sediments increase with the rise of their natural gas hydrate content, and they are in a good relationship of linear correlation. And third, the natural gas hydrate saturation calculated based on the acoustic data is close to that measured in the laboratory with much smaller errors. It is concluded that the research results provide a basis for the calculation of natural gas hydrate saturation using the actual acoustic logging data.

Keywords: Natural gas hydrate; Porous media; Unconsolidated sediment; Petrophysical experiment; Saturation; Computation model; Acoustic velocity; p-V-T state equation

基金项目:国家重点研发计划项目"海洋水合物固态流化测试新技术"(编号:2016YFC0304008)。

作者简介:赵军,1970年生,教授;主要从事岩石物理及其解释与评价工作。地址:(610500)四川省成都市新都区新都大道8号。 ORCID:0000-0003-1798-7721。E-mail:zhaojun_70@126.com

0 引言

天然气水合物(以下简称水合物)具有分布广 泛、资源量巨大、密度高等特点,被誉为是清洁、高 效、储量丰富的新型潜在能源,已被许多国家给予高 度关注并重点研究^[1-3]。目前水合物饱和度的计算主 要采用阿尔奇公式、双水模型以及类似的饱和度方程。 Tinivella 应用双相介质理论,根据纵波速度估算了水 合物的饱和度^[4]; Lee 等指出, 含水合物的深海沉积 速度可以通过三相时间平均方程的加权和三相 Wood 方程估算出来^[5-6];王秀娟等应用热弹性理论的纵波 速度来估算水合物饱和度,并考虑了物质热力学性质 对饱和度估算结果的影响,其效果较好^[7]:莫修文等 在前人研究的基础上,提出了利用测井解释的氯离子 质量浓度计算水合物饱和度的方法^[8-9];陈玉凤等利 用搭建的水合物电阻率测量系统来研究水合物饱和度 与电阻率之间的关系,结果表明电阻率增大指数和含 水饱和度并不是阿尔奇公式所描述的直线关系,认为 采用电阻率估算饱和度需要进行一定的校正[10-14]。

前人采用声、电参数对水合物饱和度的计算进 行了大量的研究,也取得了大量的成果,尤其在利 用电阻率参数计算天然气饱和度方面进行了较为深 入的研究,虽然在利用声波资料评估水合物含量方 面也进行了有益的尝试,但计算结果缺乏实验的验 证与支持。笔者利用非固结砂泥沉积物实验室条件 下生成水合物过程中实时测量的声波速度数据,在 准确获得水合物饱和度实验数据的基础上,对比分 析了利用实验测试的声波资料计算的饱和度与实验 获得的水合物饱和度的相关性及其精度误差,从实 验的角度为声波资料评估水合物饱和度提供了依据。

1 实验测试饱和度的确定

1.1 计量室及管线体积的标定

水合物的生成采用分阶段持续供给天然气的方法,故实验装置中计量室和管线的体积将对计算结果产生较大的影响。因此需对计量室的体积(*V*₁)及 其管线体积(*V*_s)进行标定,原理如图1所示。

计量室体积及管线体积的标定方法如下所述。

高压反应釜内装入实心不锈钢模块,并向体系 中充入一定压力的气体,关闭阀门②并打开阀门① 放空入口标准容积室内气体,记录初始稳定压力为 *p*_{1a};关闭阀门①,打开阀门②,记录稳定状态压力 为*p*_{1b}。此时建立*pVT*平衡状态方程为:



$$\frac{p_{1a}V_s}{Z_{1a}} = \frac{p_{1b}(V_s + V_1)}{Z_{1b}}$$
(1)

式中 p_{1a} 表示初始稳定状态压力, MPa; V_s 表示管线体积, cm³; Z_{1a} 表示压力为 p_{1a} 条件下的天然气压缩因子; p_{1b} 表示稳定状态压力, MPa; V_1 表示计量室体积, cm³; Z_{1b} 表示压力为 p_{1b} 条件下的天然气压缩因子。

往标准容积室内装入已知体积 V₂ 的模块,重复 上述步骤,记录阀门②关闭和打开时的稳定状态压 力分别为 p_{2a} 和 p_{2b}。此时建立 pVT 平衡状态方程为:

$$\frac{p_{2a}V_s}{Z_{2a}} = \frac{p_{2b}(V_s + V_1 - V_2)}{Z_{2b}}$$
(2)

式中 p_{2a} 表示初始稳定状态压力, MPa; Z_{2a} 表示压力 为 p_{2a} 条件下的天然气压缩因子; p_{2b} 表示稳定状态压 力, MPa; V_2 表示模块体积, cm³; Z_{2b} 表示压力为 p_{2b} 条件下的天然气压缩因子。

联立上述两个 *pVT* 平衡状态方程即可求得计量 室体积(*V*₁)及其管线体积(*V*_s)。为了提高精度可 不断更换装入标准容积室内的模块体积,并重复上 述过程,由此可得多个恒温状态下的 *pVT* 平衡状态 方程,与式(1)联立可求得多个计量室的体积(*V*₁) 及其管线体积(*V*_s),最后取平均值。

1.2 测试饱和度的确定

水合物的生成采用分阶段持续供给天然气的方法,即首先向饱含水的多孔介质中充入天然气排出一定量的水,为水合物的生成提供空间,然后分阶段持续向多孔介质中通入天然气,并在适当条件下合成水合物,计算平衡时的含水饱和度及水合物饱和度,不断重复上述过程,直到多孔介质孔隙中的水被完全消耗。假设 *V_{ei}、V_{wi}、V_{ci}*分别为第*i*次合成反应开始时多孔介质孔隙中天然气、剩余水以及生成的水合物所占的体积,则水合物的合成过程可以用图 2 表示。

以第一次水合物合成过程为例。反应开始时, 釜内压力为 *p*_{1a}, 对应的压缩因子为 *Z*_{1a}, 此时系统中



物质的量为 n_{1a} 的天然气充满釜内空间 V_{e1} 和管线体积 (V_s) ,此时可建立pVT平衡状态方程为:

$$p_{\rm la}(V_{\rm el} + V_{\rm s}) = Z_{\rm la} n_{\rm la} RT$$
 (3)

式中 V_{e1} 表示第一次加入天然气时釜内的天然气体积, cm³; n_{1a} 表示第一次加入天然气的物质的量,mol;R表示阿伏伽德罗常数,1/mol;T表示温度,℃。

反应结束时,釜内压力为*p*_{1b},对应的压缩因子为*Z*_{1b},此时系统中物质的量为*n*_{1b}的天然气充满釜内空间*V*_{e2}和管线体积(*V*_s),此时可建立*pVT*平衡状态方程为:

$$p_{1b}(V_{e2} + V_s) = Z_{1b}n_{1b}RT$$
 (4)

式中 p_{1b} 表示第一次反应结束时釜内压力,MPa; V_{e2} 表示反应结束时釜内的天然气体积,cm³; Z_{1b} 表示釜 内压力为 p_{1b} 时对应的压缩因子; n_{1b} 表示反应结束时 釜内天然气的物质的量,mol。

则第一次水合物的合成反应过程中消耗天然气 的物质的量为:

$$\Delta n_{\rm l} = n_{\rm la} - n_{\rm lb} = \frac{p_{\rm la} \left(V_{\rm el} + V_{\rm s} \right)}{Z_{\rm la} RT} - \frac{p_{\rm lb} \left(V_{\rm e2} + V_{\rm s} \right)}{Z_{\rm lb} RT} \quad (5)$$

式中 Δn_1 表示第一次反应消耗的天然气的物质的量, mol。

反应釜中天然气所占的体积 *V*_{e1} 可通过第一次排出的水的质量求得,而 *V*_{e2} 可通过如下步骤得到。

向计量室中充入物质的量为n₃的天然气,其 稳定压力为p₃,对应的压缩因子为Z₃,此时可建立 *pVT*平衡状态方程为:

$$p_3 V_1 = Z_3 n_3 RT \tag{6}$$

式中 *p*₃ 表示再次充入天然气后稳定状态压力, MPa; *Z*₃ 表示稳定状态对应的压缩因子; *n*₃ 表示再次向计 量室中充入的天然气的物质的量, mol。

打开阀门②,使该部分天然气扩散进入反应釜 并迅速膨胀达到平衡,压力变为*p*_{2a},对应的压缩因 子为*Z*_{2a},此时可建立*pVT*平衡状态方程为:

$$p_{2a}(V_{e2} + V_{s} + V_{1}) = Z_{2a}(n_{1b} + n_{3})RT$$
 (7)
联立两式得到 V_{e2} 表达式为:

$$V_{e2} = \left[\frac{p_{2a}(V_{s} + V_{1})}{Z_{2a}} - \frac{p_{1b}V_{s}}{Z_{1b}} - \frac{p_{3}V_{1}}{Z_{3}}\right] / \left[\frac{p_{1b}}{Z_{1b}} - \frac{p_{2a}}{Z_{2a}}\right] (8)$$

结合求出的 V_{e2} ,再利用式(5)可以求出天然 气消耗量 Δn_1 ,并根据水合物生成的反应方程式算出 消耗 Δn_1 天然气时相应的海水消耗量,用体积表示为 Δn_{w1} 。此时釜中剩余水的体积为:

$$V_{w2} = V_{w1} - \Delta V_{w1}$$
 (9)

式中 V_{w1} 表示第一次反应前釜内水的体积, cm³; V_{w2} 表示第一次反应后釜内水的体积, cm³; ΔV_{w1} 表示消 耗 Δn_1 天然气时相应的海水消耗量, cm³。

因此,当第一次水合物合成结束时,多孔介质 的含水饱和度为:

$$S_{\rm w} = \frac{V_{\rm w2}}{V_{\varphi}} \tag{10}$$

式中 S_w 表示第一次反应结束时多孔介质的含水饱和度; V_a 表示釜内孔隙体积, cm³。

故水合物饱和度为:

$$S_{\rm c} = \frac{V_{\rm c2}}{V_{\rm o}} = \frac{V_{\rm o} - V_{\rm w2} - V_{\rm c2}}{V_{\rm o}} \tag{11}$$

式中 S_{c} 表示第一次反应结束时多孔介质的水合物 饱和度; V_{c2} 表示第一次反应生成的水合物的体积, cm³。

按照上述步骤即可求得每个阶段水合物生成结 束时多孔介质中的含水饱和度及水合物饱和度值。

2 实验数据处理

2.1 纵横波速度随水合物饱和度的变化规律

实验记录了在不同的轴压下,水合物在形成过 程中纵横波速度的变化。依据记录的实验参数,结合 理论推导出来的计算公式,即可求得反应温度恒为1 ℃的实验条件下,反应釜中水合物在多孔介质中形 成过程中水合物饱和度(表1)。

图 3 为不同轴压下纵横波速度与水合物饱和度 的关系图。其显示,在不同的轴压条件下,随水合物 含量的增加,样品的纵横波速度也呈明显的增大趋 势,且二者具有较好的线性相关性。说明随着松散 样品中水合物含量的增加,增强了样品的力学特性, 从而使样品的声波传播特性增强。

2.2 利用声波数据计算水合物饱和度的探讨

为了探讨利用声波数据计算非固结沉积物中含 水合物饱和度的准确性,根据本次实验采集的声波

	轩	由压 20 MPa		轴压 15 MPa				轴压 10 MPa			
加气 次数	$S_{ m c}$	纵波速度 / (km•s ⁻¹)	横波速度 / (km•s ⁻¹)	加气 次数	$S_{ m c}$	纵波速度 / (km•s ⁻¹)	横波速度 / (km•s ^{−1})	加气 次数	$S_{ m c}$	纵波速度 / (km•s ⁻¹)	横波速度 / (km•s ⁻¹)
1	5.35%	3.466	1.561	1	4.79%	2.542	1.356	1	6.50%	2.017	0.851
2	8.58%	3.598	1.707	2	8.80%	2.638	1.394	2	11.96%	2.175	0.885
3	10.93%	3.670	1.820	3	13.84%	2.779	1.536	3	17.37%	2.341	0.935
4	12.72%	3.755	1.866	4	17.71%	2.974	1.684	4	29.10%	2.58	0.975
5	27.96%	3.905	2.068	5	28.98%	3.113	1.715	5	42.44%	2.792	1.084
6	55.36%	4.567	2.212	6	37.96%	3.345	1.865	6	51.59%	3.123	1.365
7	59.60%	5.056	2.336	7	44.46%	3.765	1.988	7	57.78%	3.365	1.584
8	72.13%	5.102	2.404	8	56.61%	3.945	2.084	8	68.07%	3.589	1.743
9	77.83%	5.357	2.681	9	69.37%	4.095	2.194				

表1 不同轴压下水合物沉积物纵、横波测试数据处理结果表



图 3 不同压实程度下水合物饱和度与纵、横波波速之间的关系图

实测数据,再利用 Lee 等提出的适合于海洋沉积物 中水合物评价的加权平均公式来计算本次实验中水 合物的饱和度。计算公式如下:

$$\frac{1}{v_{\rm p}} = \frac{W\varphi(1-S_{\rm h})^{r}}{v_{\rm Wood}} + \frac{1-W\varphi(1-S_{\rm h})^{r}}{v_{\rm Timur}}$$
(12)

式中 v_p 表示纵波速度, m/s; W表示权重系数, 多数 情况下为1; φ 表示孔隙度; S_h 表示水合物饱和度; v_{Wood} 、 v_{Timur} 分别表示 Wood 公式和 Timur 公式计算的 速度, m/s; r表示水合物储层胶结指数, 一般取 32。

结合相关文献,设定公式(12)中的参数值如下所示:骨架密度为2.65 g/cm³,水合物密度为1.1 g/cm³,岩石密度为2.35 g/cm³,骨架纵波速度为5 543 m/s,水的纵波速度为1 604 m/s,水合物的纵波速度取3 810 m/s,而本次实验非固结砂泥沉积物的测试孔隙度范围在0.36~0.42 之间。对于Lee权重公式的权重系数 W 取为1,水合物储层胶结指数

一般取值为32。

图 4 是利用 Lee 权重公式计算的水合物饱和度 与实验测得的水合物饱和度的对比图,由图 4 可见, 利用声波资料计算的水合物饱和度与实验测试得到 的水合物饱和度相关性较好,数据点基本沿 45°线 分布,平均误差为 7.6%,但通过对比发现,当沉积 物中水合物含量较少时,利用声波数据计算的水合 物饱和度值误差较大。因此,对于沉积物中水合物 的含量,在水合物丰度较高的情况下,可以利用声 波资料来预测。

3 结论

 利用相平衡状态方程,在对实验仪器进行标 定的基础上,可以计算实验过程中不同阶段所形成 的水合物饱和度,该实验流程及其计算方法可为其



图 4 实验计算的水合物饱和度与声波计算饱和度关系图

他类似实验提供借鉴。

2)非固结砂泥沉积物中随着沉积物中水合物的 不断增加,其纵、横波速度也随之增大,它们之间 具有较好的线性相关性。这为利用声波资料评估水 合物含量提供了很好的依据。

3)利用声波数据采用 Lee 等修改的加权模型计 算了水合物饱和度,并与实验测试结果进行了对比, 认为两者总体可比性较高、误差较小,但在低饱和度 条件下,利用声波数据计算水合物饱和度则需慎重。

参考文献

[1]梁金强,张光学,陆敬安,苏丕波,沙志彬,龚跃华,等.南海东北部陆坡天然气水合物富集特征及成因模式[J].天然气工业,2016,36(10):157-162.

Liang Jinqiang, Zhang Guangxue, Lu Jing'an, Su Pibo, Sha Zhibin, Gong Yuehua, et al. Accumulation characteristics and geneticmodels of natural gas hydrate reservoirs in the NE slope of the South China Sea[J]. Natural Gas Industry, 2016, 36(10): 157-162.

[2]周守为,赵金洲,李清平,陈伟,周建良,魏纳,等.全球首次 海洋天然气水合物固态流化试采工程参数优化设计[J].天然 气工业,2017,37(9):1-14.

Zhou Shouwei, Zhao Jinzhou, Li Qingping, Chen Wei, Zhou Jianliang, Wei Na, et al. The first global physical simulation experimental systems for the exploitation of marine natural gas hydrates through solid fluidization[J]. Natural Gas Industry, 2017, 37(9): 1-14.

 [3]赵金洲,周守为,张烈辉,伍开松,郭平,李清平,等.世界 首个海洋天然气水合物固态流化开采大型物理模拟实验系统
 [J].天然气工业,2017,37(9):15-22.

Zhao Jinzhou, Zhou Shouwei, Zhang Liehui, Wu Kaisong, Guo Ping, Li Qingping, et al. The first global physical simulation experimental systems for the exploitation of marine natural gas hydrates through solid fluidization[J]. Natural Gas Industry, 2017, 37(9): 15-22.

[4] Tinivella U. A method for estimating gas hydrate and free gas concentrations in sediments[J]. Bollettino di Geofisica Teoricaed Applicata, 1999, 40: 19-30.

- [5] Lee MW, Hutchinson DR, Dillon WP, Miller JJ, Agena WF & Swift BA. Method of eastmating the amount of in-situ gas hydrates in deep marine sediments[J]. Marine and Petroleum Geology. 1993, 10(5): 493-506.
- [6] Lee MW, Hutchinson DR, Collect TS & Dillon WP. Seismic velocities for hydrate-bearing sediments using weighted equation[J]. Journal of Geophysical Research, 1996, 101: 20347-20358.
- [7] 王秀娟,刘学伟,吴时国.基于热弹性理论的天然气水合物和 游离气饱和度估算[J].石油物探,2005,44(6):545-550.
 Wang Xiujuan, Liu Xuewei & Wu Shiguo. The estimation of gas hydrate concentration and free gas satoration based on thermoelasticity[J]. Geophysical Prospecting for Petroleum, 2005, 44(6): 545-550.
- [8] 莫修文,陆敬安,沙志彬,马龙.确定天然气水合物饱和度 的测井解释新方法[J].吉林大学学报(地球科学版),2012, 42(4):921-927.

Mo Xiuwen, Lu Jing'an, Sha Zhibin & Ma Long. A new method for gas hydrate saturation estimation using well logging data[J]. Journal of Jilin University (Earth Science Edition), 2012, 42(4): 921-927.

- [9] Kumar A, Maini B, Bishnoi PR, Clarke M, Zatsepina O & Srinivasan S. Experimental determination of permeability in the presence of hydrates and its effect on the dissociation characteristics of gas hydrates in porous media[J]. Journal of Petroleum Science and Engineering, 2010, 70(1/2): 114-122.
- [10] 陈玉凤,李栋梁,梁德青,杜建伟,吴能友.含天然气水合物的海底沉积物的电学特性实验[J].地球物理学进展,2013, 28(2):1041-1047.

Chen Yufeng, Li Dongliang, Liang Deqing, Du Jianwei & Wu Nengyou. Resistivity measurement on the marine sediments containing natural gas hydrate[J]. Progress in Geophysics, 2013, 28(2): 1041-1047.

[11] 陆敬安,杨胜雄,吴能友,张光学,张明,梁金强.南海神狐 海域天然气水合物地球物理测井评价 [J].现代地质,2008, 22(3):447-451.

Lu Jing'an, Yang Shengxiong, Wu Nengyou, Zhang Guangxue, Zhang Ming & Liang Jinqiang. Well logging evaluation of gas hydrates in Shenhu area, South China Sea[J]. Geoscience, 2008, 22(3): 447-451.

- [12] Lu Hailiang, Kawasaki T, Ukita T, Moudrakovski I, Fujii T, Noguchi S, et al. Particle size effect on the saturation of methane hydrate in sediments – Constrained from experimental results[J]. Marine and Petroleum Geology, 2011, 28(10): 1801-1805.
- [13] 陈玉凤,李栋梁,梁德青,周雪冰,吴能友.南海沉积物天然 气水合物饱和度与电阻率的关系 [J].石油学报,2013,34(3): 507-512.
 Chen Yufeng, Li Dongliang, Liang Deqing, Zhou Xuebing &

Wu Nengyou. Relationship between gas hydrate saturation and resistivity in sediments of the South China Sea[J]. Acta Petrolei Sinica, 2013, 34(3): 507-512.

[14] Lu SM & McMechan GA. Estimation of gas hydrate and free gas saturation, concentration, and distribution from seismic data[J]. Geophysics, 2002, 67(2): 582-593.

(修改回稿日期 2017-10-16 编 辑 韩晓渝)