

文章编号:1673-5005(2012)04-0097-05

水合物沉积物试验岩样制备及力学性质研究

李令东¹, 程远方¹, 孙晓杰², 崔 青¹

(1. 中国石油大学 石油工程学院, 山东 青岛 266580; 2. 天津中油渤星工程科技有限公司, 天津 300451)

摘要:水合物沉积物现场取心及原位力学试验技术难度大、成本高,室内制备岩样是目前对其力学性质研究的主要手段。采用三轴压力室内直接合成和混合制样两种方法,分别以覆膜砂和膨润土为基质试验制备水合物沉积物岩样,并进行三轴压缩力学试验。结果表明:尽管沉积物中水合物对基质骨架颗粒存在一定胶结作用,但水合物沉积物的力学性质仍主要由基质的性质决定,覆膜砂基质水合物沉积物的力学性质明显好于膨润土沉积物;水合物沉积物的强度及弹性模量随着围压的增加而增加,但泊松比与围压无明显相关性。

关键词:水合物;水合物沉积物;岩样制备;三轴试验;力学性质

中图分类号:TE 311 **文献标志码:**A **doi:**10.3969/j.issn.1673-5005.2012.04.018

Experimental sample preparation and mechanical properties study of hydrate bearing sediments

LI Ling-dong¹, CHENG Yuan-fang¹, SUN Xiao-jie², CUI Qing¹

(1. School of Petroleum Engineering in China University of Petroleum, Qingdao 266580, China;

2. Tianjin Boxing Construction and Technology Company Limited, China National Petroleum Corporation, Tianjin 300451, China)

Abstract: As the original coring and in-situ mechanical experiment are difficult and expensive, the experimental preparation of hydrate bearing sediments is the main approach to studying its mechanical properties. Using the direct synthesis in triaxial cell and compound method respectively, the precoated sand and bentonite base hydrate bearing rock samples were prepared, and the triaxial tests were carried out. The results show that although the hydrate in sediments has certain cementation to rock skeleton particles, the mechanical properties of hydrate bearing sediments mainly depend on the base material. And the precoated-sand hydrate deposits are significantly better than the bentonite sediments. The strength and elastic modulus of hydrate bearing deposits increase with the confining pressure increasing, but the Poisson's ratio has no obvious correlation with confining pressure.

Key words: hydrate; hydrate bearing sediments; rock sample preparation; triaxial test; mechanical properties

水合物作为一种清洁、高效和储量丰富的新型潜在能源,已被许多国家给予高度关注并进行重点研究。水合物沉积物是指蕴含水合物的黏土、砂以及混合土等土质的沉积物质,其力学性质是水合物地层稳定性分析及水合物开发评价、资源评估的重要基础参数^[1-3]。采用现有技术进行水合物沉积物现场取心尚不够成熟,各国学者对其力学性质的研究主要通过室内试验制备模拟岩样来实现^[4,5]。

Winters^[6]、Masui^[7]、Hyodo 和 Clayton^[8-10]等合成了甲烷水合物沉积物样品并进行了力学试验;李洋辉等^[11]、张旭辉等^[12]也进行了一定的研究。从目前水合物沉积物力学性质研究来看,室内合成水合物沉积物岩样的基质均为单一的砂质或土质,而未见不同岩样基质以及不同制备方式合成水合物沉积物岩样的力学性质研究。基于此,笔者分别通过烧结覆膜砂样于三轴压力室内直接合成水合物沉积物岩

收稿日期:2012-04-16

基金项目:国家科技重大专项课题(2008ZX05026-004-11;2011ZX05026-004-08)

作者简介:李令东(1984-),男(汉族),黑龙江宝清人,博士研究生,主要从事油气井岩石力学、水合物开采及有限元模拟研究。

样和将合成的水合物与膨润土混合制成沉积物岩样两种方式,制备覆膜砂和膨润土为基质的水合物沉积物岩样,并进行三轴压缩试验,对比分析基质性质及围压对沉积物岩样力学性质的影响,以期对不同基质类型的水合物沉积物研究提供参考。

1 水合物沉积物岩样制备

1.1 覆膜砂水合物沉积物岩样制备

水合物只有在低温高压的环境下才能稳定存在,其室内合成必须满足水合物相平衡的稳定条件。根据 Makogon^[13-14] 对水合物相平衡的研究,当环境温度为 2℃ 时,水合物相平衡压力约为 3.5 MPa,即只要保持压力高于 3.5 MPa 便可生成水合物,该条件在本试验中能够实现。

试验材料以及所需设备和仪器见表 1。覆膜砂水合物沉积物岩样采用三轴压力室内直接合成的方法,即沉积物合成系统与三轴力学试验系统嵌套在一起,能够更加有效地避免试验过程中水合物分解。水合物沉积物合成系统示意图如图 1 所示。试验系统整体置于环境恒温的低温冷库中,该冷库由沈阳秋斌制冷设备有限公司制造,其空间大, M190C 制冷控制精度度高,控温范围宽,能够满足试验要求。

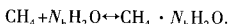
表 1 水合物沉积物岩样制备试验材料及仪器

Table 1 Experimental materials and apparatus for preparation of hydrate bearing sediments

试验材料及主要设备	主要参数说明
覆膜砂	粒径 250 ~ 420 μm
甲烷气	纯度 99.9% (青岛天源气体制造有限公司生产)
制样模具	直径 25 mm, 高度 50 ± 1 mm (自制)
Sartorius 电子天平	型号 BS2202S, 量程 2 200 g, 精度 0.01 g
高温烤箱	加热功率 3 kW, 工作温度: 室温 ~ 400℃
岩样孔隙度测定仪	型号 QKY-1, 测量误差: 0.5% ~ 1.0%
低温冷库	M190C 冷冻冷藏微电脑控制, 控温: -25℃ ~ 室温
水合物沉积物合成试验系统	中国石油大学(华东)岩石力学实验室研制
低温三轴试验系统	中国石油大学(华东)岩石力学实验室研制

覆膜砂水合物沉积物试验岩样制备过程中, 为使其能接近海底沉积砂样性质, 保证其具有一定强度和孔隙度, 选取覆膜砂(砂粒表面在造型前即覆有一层树脂膜的型砂或芯砂)经过高温烧结形成基样, 进一步在沉积物合成系统的三轴压力室内形成水合物沉积物岩样。

甲烷与水生成水合物的反应式为



式中, N_h 为甲烷水合物系数, 本试验取值为 5.75。

试验时保持沉积物合成系统三轴压力室内的压

力和温度在水合物相平衡稳定区域, 保证所有注入的水完全参加反应, 甲烷过量。根据物质守恒原理, 由参加反应的水的质量可以获得生成水合物的质量, 进而根据水合物密度得到其体积。再由已测得的覆膜砂烧结形成岩样的孔隙度可以得到沉积物岩样的水合物饱和度。

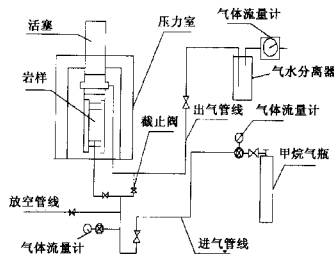


图 1 水合物沉积物合成系统

Fig. 1 In-situ synthesized apparatus for hydrates sediment

覆膜砂水合物沉积物试验岩样制备的具体流程如下:

(1) 先用电子天平称量 41 g 覆膜砂, 将覆膜砂均匀倒入制样模具中, 然后采用低温三轴试验机的轴压系统对制样模具活塞进行加压, 持续时间为 5 min。

(2) 将压实的基样及模具放入高温烤箱中加热, 加热温度设定为 300℃, 15 min 后取出模具。

(3) 模具冷却后将模具打开, 取出烧结好的原状基样, 并进行孔隙度测试。

(4) 根据需要的水合物饱和度将烧结的基样加入预定质量的水, 然后把一定含水量的基质岩样放入冰箱冷冻 24 h, 冰箱温度设定为 -5℃。

(5) 将冷冻好的基样用橡胶管密封后放到水合物沉积物合成系统(图 1)的三轴压力室中, 然后通过进气管路通入压力为 1 MPa 或者 0.5 MPa 的甲烷排掉基样孔隙内的空气(设置冷库温度为 -5℃), 此时截止阀是关闭的, 排完气后将其打开, 并通过围压加载系统采用 0.5 MPa/min 的加载速率同步升高围压到 4.5 MPa, 同时将孔隙气压升到 4 MPa, 调节冷库温度升至 2℃ 以消除结冰对水合物生成的影响, 保持 24 h。本试验采用两端供气的方式通入甲烷气体, 能有效避免孔隙内水的排出, 在岩样骨架孔隙内较均匀地生成水合物。

(6) 当气体流量计累积读数不再发生变化时,

继续维持 24 h, 可认为水合物完全生成。

(7) 打开放空管线排出管线中多余的气体, 覆膜砂水合物沉积物岩样制备完毕, 待进行后续力学性质试验。

1.2 膨润土水合物沉积物岩样制备

采用混合制样方法试验制备膨润土水合物沉积物岩样, 将预先合成的水合物粉末与特定规格的膨润土在一定温度压力条件下混合压缩固结成岩样。试验材料见表 1, 其中覆膜砂换为膨润土。具体的试验方法及流程为:

(1) 首先利用水合物合成系统在一定温度和压力下生成纯水合物, 并将水合物碾碎成粉末。

(2) 为与覆膜砂水合物岩样中水合物含量一致, 根据计算将蒸馏水、水合物和膨润土按一定质量比例的配方在低温冷库内将其混合均匀。

(3) 将水合物和膨润土混合物加入制样模具内, 在低温三轴试验机的轴压系统内进行加压。

(4) 将压实的岩样连同模具整体放入冰箱内, 设置温度 $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$, 冷冻 24 h。

(5) 取出模具并拆开, 得到制备好的膨润土水合物沉积物岩样, 保存在低温冷库内, 以备后续力学试验。

根据以上流程的第二步中蒸馏水和水合物各自的质量及密度, 可以计算出各自的体积, 在第三步制样模具经过加压实后, 可认为沉积物岩样仅饱和水和水合物, 由其各自体积则可估算得到水合物的饱和度。

2 水合物沉积物力学试验

前述水合物沉积物岩样制备好后, 借助于水合物沉积物低温三轴试验系统便可进行后续三轴力学试验, 整个力学试验过程均在冷库内低温环境中进行, 维持冷库恒温 $2\text{ }^{\circ}\text{C}$ 。低温三轴试验系统实物如图 2 所示, 主要包括控制测量系统、轴压加载系统、围压和孔压加载系统, 同时还内嵌水合物沉积物合成系统。轴压加载最大可施加轴向力 100 kN, 围压和孔压加载最高可分别为 50 和 30 MPa, 轴向和径向变形测量最大范围分别为 5 和 3 mm, 试样尺寸为 $\Phi 25\text{ mm} \times 50\text{ mm}$ 。试验采用液压油来施加围压, 型号为 HS32, 具有良好的低温性能、高压抗磨性能以及热稳定性和防锈功能。

对于覆膜砂水合物沉积物岩样, 其在三轴压力室内直接合成水合物后, 调节试验围压至预定值, 之后按一定速率进行轴向力加载, 同时由控制软件记

录岩样的轴向和径向应变, 并实时显示试验岩样的应力应变曲线。对于膨润土水合物沉积物岩样, 利用混合制样法制备好后, 将其密封在橡胶管内并置于三轴试验机压力室中固定, 之后密封锁紧压力室并对其充入液压油, 通过控制系统按一定速率施加围压至预定值, 再进行轴向力加载并同时记录岩样应力应变曲线, 直至试验结束, 卸掉围压并取出岩样, 待进行下一轮次试验。本试验分别研究了围压 5、10 和 15 MPa 条件下两种基质的水合物沉积物岩样的力学性质。



图 2 低温三轴试验系统主体图

Fig. 2 Close-up view of low temperature triaxial apparatus

3 试验结果分析

本文中主要讨论不同基质水合物沉积物的力学性质和围压对水合物沉积物力学性质的影响。

3.1 岩样基质对水合物沉积物力学性质的影响

控制覆膜砂基质和膨润土基质水合物沉积物岩样尺寸一致, 均为 $\Phi 25\text{ mm} \times 50\text{ mm}$, 同时在前述水合物沉积物岩样制备时根据需要的含水物饱和度和调整试验材料的配方, 预先控制两种沉积物岩样的水合物饱和度接近相同, 本试验保持水合物饱和度均约为 60%, 以便于进行对比研究。

试验结果见表 2 和图 3、4。可以看出覆膜砂水合物沉积物岩样的力学性质明显好于膨润土沉积物岩样。对比两种岩样的应力应变曲线 (图 3), 可见膨润土沉积物岩样在不同围压下均呈现明显的塑性, 变形量随应力的增加而增大。根据膨润土岩样的应力应变曲线形式, 取轴向应变 2% 时的应力作为岩样强度, 选割线模量 E_{50} 作为岩样平均弹性模量。对比表 2 的数据发现, 覆膜砂岩样的弹性模量

约为膨润土岩样的3.6~3.8倍,而前者的泊松比要低于后者,说明膨润土沉积物岩样的可变形性更大,即塑性更强。从试验后的岩样破坏形式来看,膨润土沉积物岩样亦表现出塑性破坏。以围压15 MPa为例,对比图3中两种岩样的偏应力强度最大值,覆膜砂岩样约为32 MPa,而膨润土岩样为7 MPa,仅为前者的22%。从图4两种岩样强度包络线来看,覆膜砂岩样内聚力和内摩擦角更大,内摩擦角约为膨润土岩样的3.3倍,这都表明覆膜砂岩样的强度明显

高于膨润土岩样。

表2 不同基质水合物沉积物岩样力学试验结果

Table 2 Experimental results of hydrate bearing sediments with different base materials

水合物沉积物 基岩类型	围压 p/MPa	峰值强度/ MPa	弹性模量 E/MPa	泊松比 μ
覆膜砂水合物 沉积物岩样	5	23.69	2010	0.22
	10	35.75	2550	0.23
	15	47.02	2850	0.19
膨润土水合物 沉积物岩样	5	9.15	557	0.31
	10	15.40	678	0.31
	15	22.01	749	0.32

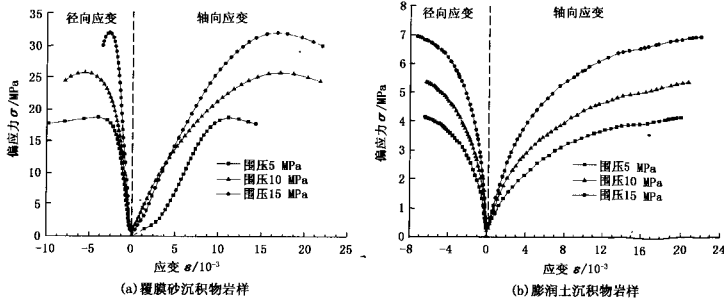


图3 水合物沉积物岩样的应力应变曲线

Fig. 3 Stress-strain curves of hydrate bearing rock samples

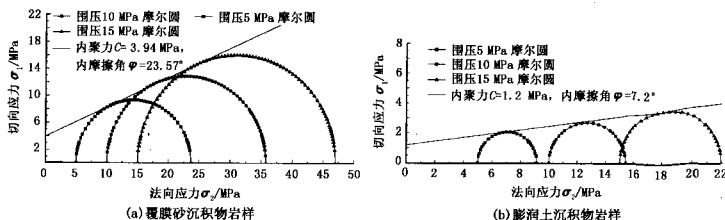


图4 水合物沉积物岩样的摩尔圆及强度包络线

Fig. 4 Mohr circles and strength envelopes of hydrate bearing rock samples

本试验膨润土岩样结果与张旭辉^[12]的研究结果接近,他们通过细粉砂作为岩样基质研究了水合物沉积物力学性质,得到内聚力和内摩擦角分别为1.17 MPa和8.5°(水合物饱和度为30.7%,冰饱和度为55.4%),其内摩擦角比本研究略大,可能的原因一是基质材料为细粉砂,二是沉积物岩样中含有冰相,并且水合物和冰加一起的饱和度要高于本研究的水合物饱和度。

尽管水合物沉积物中水合物对岩石骨架颗粒存在一定的胶结作用,但沉积物的力学性质仍主要决定于基质岩性、岩石颗粒大小等因素。在水合物地

层钻探过程中,预先通过充分地质调查以确定水合物地层岩性相关资料,并结合室内水合物沉积物力学试验,可以为井眼稳定性以及钻井平台桩基稳定的评估提供依据,以期有效规避钻探风险并保证钻探施工的顺利进行。

3.2 围压对水合物沉积物力学性质的影响

从表2可以看出,随着围压的增加,覆膜砂基质和膨润土基质岩样的强度和弹性模量均相应增加,而泊松比却几乎不变。这些规律从两种岩样的应力应变曲线(图3)同样可以看出。对于覆膜砂沉积物岩样,在围压5 MPa时岩样基质颗粒压实程度低,所

以在应力加载的初始阶段呈现出一定塑性。水合物沉积物的强度主要由水合物强度、岩石颗粒间摩擦力和基质颗粒间的相互作用共同决定,而围压的增加抑制了压实过程中的裂隙发育,使其颗粒间的摩擦力及咬合力增加,并导致其致密程度更大,从而增加了试验岩样的强度和弹性模量。低围压条件下,岩样强度随围压增加而增大的规律与李洋辉等^[11]的研究有一定的相似性,不过他们选择的基质材料为高岭土,试验低围压的范围仅为5 MPa以下。Masui等^[7]研究得到室内合成水合物 Toyoura 砂样的泊松比约为0.2,与本研究的覆膜砂水合物沉积物岩样接近,并且Masui研究发现水合物沉积物的泊松比与水合物饱和度关系不大,本研究也证明泊松比与围压没有明显相关趋势。

4 结论

(1) 尽管水合物沉积物中水合物对基质骨架颗粒存在胶结作用,但沉积物的力学性质仍主要取决于基质岩性、岩石颗粒大小等因素,覆膜砂基质水合物沉积物岩样强度和弹性模量明显高于膨润土岩样的,膨润土沉积物岩样表现为更明显的塑性。

(2) 水合物沉积物的强度和弹性模量随着围压的增加而增大,而泊松比与围压的关系不大。

参考文献:

- [1] KLAUDA J B, SANDLER S I. Global distribution of methane hydrate in ocean sediment[J]. *Energy and Fuels*, 2005, 19: 459-470.
- [2] BOSWELL R. Is gas hydrate energy within research? [J]. *Science*, 2009, 325(5943): 957-958.
- [3] 王淑云, 鲁晓兵. 水合物沉积物力学性质的研究现状[J]. *力学进展*, 2009, 39(2): 176-188.
WANG Shu-yun, LU Xiao-bing. Advances of research on mechanical properties of gas hydrate deposits [J]. *Advances in Mechanics*, 2009, 39(2): 176-188.
- [4] 王淑云, 鲁晓兵, 张旭辉. 水合物沉积物力学性质的实验装置和研究进展[J]. *实验力学*, 2009, 24(5): 413-420.
WANG Shu-yun, LU Xiao-bing, ZHANG Xu-hui. Advances in the laboratory apparatus and research on mechanical properties of gas hydrate sediment [J]. *Journal of Experimental Mechanics*, 2009, 24(5): 413-420.
- [5] 张卫东, 刘永军, 任韶然, 等. 水合物沉积层声波速度模型[J]. *中国石油大学学报: 自然科学版*, 2008, 32(4): 60-63.
ZHANG Wei-dong, LIU Yong-jun, REN Shao-ran, et al. Acoustic velocity model of hydrate bearing sediments [J]. *Journal of China University of Petroleum (Edition of Natural Science)*, 2008, 32(4): 60-63.
- [6] 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.
- [7] MASUI A, HANEDA H, OGATA Y, et al. Mechanical properties of sandy sediment containing marine gas hydrates in deep sea offshore Japan: Proceedings of the 17th International Offshore and Polar Engineering Conference [R]. The International Society of Offshore and Polar Engineers, 2007: 53-56.
- [8] HYODO M, NAKATA Y, YOSHIMOTO N, et al. Shear behaviour of methane hydrate-bearing sand: Proceedings of 17th International Offshore and Polar Engineering Conference [C]. The International Society of Offshore and Polar Engineers, 2007: 1326-1333.
- [9] HYODO M, NAKATA Y, YOSHIMOTO, et al. Basic research on the mechanical behavior of methane hydrate-sediments mixture [J]. *Soils and Foundations*, 2005, 45(1): 75-85.
- [10] CLAYTON C R I, PRIEST A, BEST A I. The effects of disseminated methane hydrate on the dynamic stiffness and damping of a sand [J]. *Geotechnique*, 2005, 55(6): 423-434.
- [11] 李洋辉, 宋永臣, 于锋, 等. 围压对含水合物沉积物力学特性的影响[J]. *石油勘探与开发*, 2011, 38(5): 637-640.
LI Yang-hui, SONG Yong-chen, YU Feng, et al. Effect of confining pressure on mechanical behavior of methane hydrate-bearing sediments [J]. *Petroleum Exploration and Development*, 2011, 38(5): 637-640.
- [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 Mechanics*, 2010, 31(10): 3069-3074.
- [13] MAKOGON, Y F. Hydrates of hydrocarbons [M]. Tulsa, OK: Pennwell Books, 1997.
- [14] JI C, AHMADI G, SMITH D H. Natural gas production from hydrate dissociation: an axisymmetric model [J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2007, 58(2): 245-258.

(编辑 李志芬)