

ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИЙ МЕТОД КОЛИЧЕСТВЕННОЙ ОЦЕНКИ ГИДРАТОСОДЕРЖАНИЯ В ОБРАЗЦАХ, ИМИТИРУЮЩИХ ДОННЫЕ ОСАДКИ

И.И. Фадеева^{1,2}, А.А. Дучков^{2,3}, М.Е. Пермяков²

¹ Институт горного дела им. Н.А. Чинакала СО РАН, 630091, Новосибирск, Красный просп., 54, Россия

² Институт нефтегазовой геологии и геофизики им. А.А. Трофимука СО РАН, 630090, Новосибирск, просп. Академика Коптюга, 3, Россия

³ Новосибирский государственный университет, 630090, Новосибирск, ул. Пирогова, 2, Россия

Содержащиеся в осадках газовые гидраты могут диссоциировать при нагревании, что приводит к характерному изменению температуры со временем. Это можно использовать для обнаружения и оценки гидратосодержания. Геотермический метод поисков газовых гидратов заключается в получении термограмм и выявлении в них закономерностей, обусловленных наличием в среде газовых гидратов.

В статье рассмотрена задача количественной оценки гидратосодержания в осадках по данным повторных измерений температуры линейного источника тепла (игольчатого зонда). Мощность источника выбирается так, чтобы в первом измерении гидрат не разлагался, а во втором — разлагался. Затем решается оптимизационная обратная задача определения параметров модели, одним из которых является гидратосодержание. Проведена обработка экспериментальных данных по нагреванию лабораторных образцов и получены значения гидратосодержания с оценкой точности в 30 %. Эти значения согласуются с независимыми оценками. В качестве математической модели процесса нагрева и разложения гидрата в образце взято аналитическое решение осесимметричной задачи диссоциации газогидратов, основанное на решении задачи Стефана.

Гидрат метана, измерение тепло- и температуропроводности, количественная оценка.

THERMOPHYSICAL METHOD FOR QUANTITATIVE ESTIMATION OF HYDRATE CONTENT IN SAMPLES IMITATING BOTTOM SEDIMENTS

I.I. Fadeeva, A.A. Duchkov, and M.E. Permyakov

Gas hydrates in sediments can dissociate on heating, which causes a characteristic change in temperature over time. This can be used to detect hydrates and estimate their content. The geothermal method for gas hydrate prospecting consists in obtaining thermograms and defining regularities related to the presence of gas hydrates in the medium.

The aim of this study was a quantitative estimation of hydrate content in sediments, based on data from repeated measurements of the temperature of a linear heat source (needle probe). The power of the source is chosen so that hydrate does not decompose in the first measurement but decomposes in the second. Afterward, we solve the optimization inverse problem of determination of the model parameters, one of which is a hydrate content. Experimental data on heating of the laboratory samples are processed, and hydrate contents are obtained with an accuracy of 30%. These values agree with independent estimates. The analytical solution of the axially symmetric problem of gas hydrate dissociation, based on the solution of the Stefan problem, is applied as a mathematical model for hydrate heating and decomposition in the sample.

Methane hydrate, measurement of thermal conductivity and thermal diffusivity, quantitative evaluation

ВВЕДЕНИЕ

Газовые гидраты образуются и существуют при благоприятных термобарических и геохимических условиях и, как правило, приурочены к придонным слоям глубоких водоемов, а также к областям криолитозоны [Истомин, Якушев, 1992]. Поддонные скопления газовых гидратов широко распространены географически [Соловьев, 2003] и представляют интерес как резерв углеводородного сырья. Согласно некоторым оценкам, их энергетический потенциал на Земле превышает потенциал всех прочих горючих ископаемых [Макогон, 2001]. Для идентификации гидратопоявлений в поддонных осадках используются в основном геологические методы — подводное бурение, пробоотбор грунтовыми трубками [Гинсбург, Соловьев, 1994]. Представляет интерес применение с этой целью геофизических методов.

В.А. Голубев [1998] показал возможность использования измерений *in situ* теплопроводности донных осадков для выявления в них газовых гидратов. Для развития метода (далее теплофизический) в 2004—2009 гг. сотрудники ИНХ СО РАН и ИНГГ СО РАН (г. Новосибирск) выполнили комплекс лабораторных исследований, включающий создание установки для моделирования образцов гидратосодержащих осадков и измерения их теплопроводности с помощью игольчатого зонда постоянной мощности [Дучков и др., 2006, 2009; Пермяков, 2010]. На установке было проведено несколько десятков экспериментов по исследованию характера изменения температуры линейного источника (игольчатого зонда), помещенного в гидратосодержащую среду. В итоге было установлено, что усложнение графиков роста температуры при нагревании (термограмм) и одновременное увеличение эффективных значений теплопроводности являются несомненными признаками (индикаторами) наличия заметного количества гидратов в осадках. Позже А.Д. Дучков с соавторами [2012] показали, что количественная интерпретация термограмм позволяет оценить массу разложившегося газогидрата.

Изучением тепловых свойств гидратосодержащих пород, в том числе и с применением зондового метода, занимались многие исследователи [Гройсман, 1985; Waite et al., 2009; Чувилин, Буханов, 2013]. При этом обратная задача количественной оценки содержания газогидрата в среде в этих работах не ставилась.

В данной статье авторы более детально рассмотрели закономерности изменения температуры линейного источника тепла, размещенного в гидратосодержащей среде, и показали, что теплофизический метод позволяет определить тепловые свойства (теплопроводность, объемную теплоемкость) образца и оценить концентрацию газового гидрата в нем (количественное содержание).

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ДАННЫЕ

В работе рассмотрены экспериментальные данные измерения температуры игольчатого зонда (линейного источника), помещенного в образец, имитирующий гидратосодержащие донные осадки. Данный образец был смоделирован на лабораторной установке, состоящей из камеры высокого давления, показанной на рис. 1 (диаметр рабочего пространства 40 мм, высота 145 мм, давление до 40 МПа), и вспомогательного оборудования (жидкостный термостат, баллон с метаном, манометр, температурные датчики, игольчатый зонд и регистрирующая система) [Дучков и др., 2006, 2009; Пермяков, 2010]. Изготовление образца осуществлялось по методике 1, описанной в работах [Дучков и др., 2009; Пермяков, 2010]. Методика подразумевает тщательное механическое перемешивание песка и ледового порошка (до равномерного распределения льда) перед загрузкой в рабочую камеру (в нашем случае масса песка в образце составляет 239.6 г, масса льда — 8.8 г). Охлажденная камера с загруженной в нее смесью заполнялась метаном, и в благоприятных для гидратообразования *PT*-условиях ($T < 2\text{ }^{\circ}\text{C}$, $P \geq 5\text{ МПа}$) ледовый порошок превращался в метангидрат. Данная методика обеспечивает равномерное по объему распределение метангидрата, и в силу того, что характерный размер частиц песка (около 0.2 мм) много меньше размеров зонда, образец можно считать квазиоднородным. Пористость песка $\phi = 38\%$ определялась экспериментально с помощью весов, мерного цилиндра и дистиллированной воды.

Температура в камере поддерживалась с помощью жидкостного термостата (стабильность поддержания температуры составляет 0.1 °C). Давление создавалось посредством напуска метана из баллона и измерялось манометром Бурдона с классом точности 0.15 (точность измерений 0.015 МПа). Игольчатый зонд, установленный в центре камеры (см. рис. 1), представляет собой стальную трубку (диаметром $d = 2\text{ мм}$, длиной $l = 12\text{ см}$). Внутри трубки по всей ее длине размещен нагреватель (манганиновая проволока сопротивлением $R = 12\text{ Ом}$, на которую подается напряжение U), а в средней части зонда расположен температурный датчик (термистор СТЗ-18 номинальным сопротивлением 2.2 кОм). Остальной объем заполнен сплавом Розе. Точность измерения абсолютных значений температуры игольчатого зонда определялась возможностями градуировки температурного датчика, расположенного внутри линейного нагревателя, и составила 0.01—0.02 °C. Относительные изменения температуры регистрировались с разрешением до 0.003 °C. Частота записи температуры — 33 Гц. Взвешивание компонентов при изготовлении образца осуществлялось с помощью электронных весов. Точность взвешивания составляла 0.1 г при массе порядка 200—300 г.

После завершения формирования гидрата в порах образца устанавливался стационарный тепловой режим. В этом режиме гидратосодержащий образец находился в *PT*-условиях, соответствующих области стабильного существования метангидрата (давление 9.1 МПа, температура 1.5 °C). С помощью игольчатого зонда постоянной удельной мощности $Q = 9\text{ Вт/м}$ производился нагрев и запись изменения температуры зонда во времени, так называемая «стабильная» термограмма (*S*-термограмма), так как температура образца в процессе нагрева не превышает температуру фазового перехода. Эта термограмма обозначена на рис. 1 черной линией.

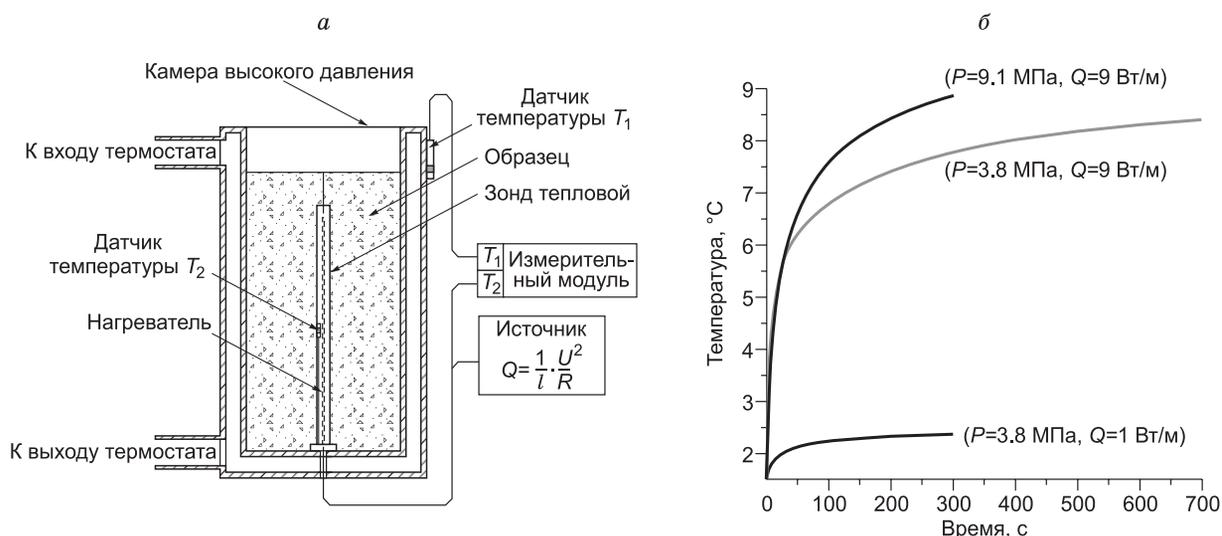


Рис. 1. Схема игольчатого зонда, установленного внутри камеры высокого давления с гидратосодержащим образцом (а); «стабильная» (S) и «нестабильная» (D) термограммы, полученные при нагревании образца с метангидратом в порах в разных *PT*-условиях при разной удельной мощности нагревателя *Q*, обозначены черным и серым цветом соответственно (б).

R и *l* — сопротивление и длина нагревателя, *U* — напряжение, подаваемое на нагреватель; *Q* — удельная тепловая мощность нагревателя.

Были рассмотрены другие начальные *PT*-условия: давление 3.8 МПа, температура 1.5 °С. Для этих условий была получена аналогичная «стабильная» термограмма при нагревании образца постоянным источником малой удельной мощности $Q = 1$ Вт/м (см. рис. 1). Также для упомянутых *PT*-условий была получена так называемая «нестабильная» термограмма (*D*-термограмма) при использовании нагревателя мощностью $Q = 9$ Вт/м, когда температура образца при нагревании в определенный момент превышает температуру разложения газогидрата при заданном давлении (3.6 °С при давлении 3.8 МПа). На рис. 1 серой линией показана *D*-термограмма, на которой заметно замедление скорости роста температуры по сравнению с *S*-термограммой ($P = 9.1$ МПа, $Q = 9$ Вт/м) через 10 с после включения нагревателя из-за расхода тепла на разложение гидрата. Давление во время всех экспериментов поддерживалось постоянным, равным начальному значению.

ПРЯМАЯ ЗАДАЧА. АНАЛИТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Для описания экспериментальных термограмм и постановки обратной задачи используется аналитическое решение одномерного уравнения теплопроводности в цилиндрических координатах с линейным источником тепла постоянной мощности в центре.

Прямая задача. Рассматривается безграничная среда, заполненная осадочной породой, в порах которой содержится газовый гидрат. В среду помещен игольчатый зонд, моделируемый как тонкая бесконечно длинная нить с удельной мощностью нагревателя Q . Пористость осадка вблизи источника равна ϕ . Температура среды до включения нагревателя и на бесконечности равна T_p , температура фазового перехода при известном постоянном в течение всего нагрева давлении равна T_{ph} . Предположив однородность осадков, получаем осесимметричную задачу, для которой изменение температуры в пространстве и времени можно описать с помощью уравнения теплопроводности в цилиндрических координатах [Карслоу, Егер, 1964]:

$$\frac{\partial T(r,t)}{\partial t} = a \cdot \left(\frac{\partial^2 T(r,t)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial T(r,t)}{\partial r} \right), \quad (1)$$

где $T(r, t)$ (К) — температура среды в момент времени t (с) на расстоянии r (м) от центра зонда, $a = \frac{\lambda}{\rho c}$ (м²/с) — температуропроводность среды, ρ (кг/м³) — плотность среды, c (Дж/(кг·К)) — удельная теплоемкость среды, λ (Вт/(м·К)) — теплопроводность среды.

Возможны две постановки краевой задачи. Для задачи без фазового перехода при рассмотрении изменения температуры вблизи линейного источника тепла (при $r \approx 0$) решалось уравнение теплопроводности (1) со следующими начальными (2) и граничными (3) условиями:

$$T(r, 0) = T_i, \quad (2)$$

$$Q = -2\pi\lambda_2 \cdot \lim_{r \rightarrow 0} \left(r \cdot \frac{\partial T}{\partial r} \right), \text{ при } r = 0, \text{ для } t \geq 0, \quad (3.1)$$

$$T(\infty, t) = T_i, \text{ при } r = \infty, \text{ для } t < \infty, \quad (3.2)$$

где Q (Вт/м) — мощность источника на единицу длины, T_i (К) — начальная температура, λ_2 (Вт/(м·К)) — теплопроводность среды с газовым гидратом в порах.

Задача Стефана. Для задачи с фазовым переходом в случае разложения газового гидрата в среде возникает движущийся фронт ($r = \zeta(t) = \alpha \cdot \sqrt{t}$) фазового перехода, на котором задаются два дополнительных условия [Гольмшток и др., 2005]:

1) непрерывность температуры на границе фазового перехода:

$$T(\zeta(t) - 0, t) = T(\zeta(t) + 0, t) = T_{ph}; \quad (4)$$

2) баланс тепла на фазовой границе (условие Стефана):

$$\lambda_1 \cdot \frac{\partial T}{\partial r} \Big|_{r=\zeta(t)-0} - \lambda_2 \cdot \frac{\partial T}{\partial r} \Big|_{r=\zeta(t)+0} = L \cdot \rho_0 \cdot \frac{d\zeta(t)}{dt}, \quad (5)$$

где α — коэффициент распространения фазового фронта во времени; T_{ph} (К) — температура фазового перехода; L (Дж/кг) — удельная теплота гидратообразования; $\rho_0 = \rho_h \cdot \varphi \cdot \delta$ (кг/м³) — гидратосодержание (масса диссоциирующего газогидрата в единичном объеме осадка); φ — пористость осадка; δ — относительный к пористости объем гидрата; ρ_h (кг/м³) — плотность сплошного гидрата; λ_2 , λ_1 (Вт/(м·К)) — теплопроводность среды до и после диссоциации гидрата соответственно.

Возникший в среде фронт фазового перехода (рис. 2) с течением времени t удаляется от нагревателя на расстояние $r = \zeta(t)$, так что в области 1 ($r \leq \zeta(t)$) гидрат уже отсутствует (среда с водой и газом в порах), а в области 2 ($r \geq \zeta(t)$), где температура еще не превысила температуру фазового перехода, гидрат сохраняется. Каждая из областей характеризуется своими тепловыми свойствами λ_2 , a_2 , λ_1 , a_1 — тепло- и температуропроводности среды до и после диссоциации гидрата соответственно (см. рис. 2).

Решение задачи без фазового перехода (1)—(3) имеет вид [Карслоу, Егер, 1964]:

$$T(r, t) = T_i + \frac{Q}{4\pi\lambda_2} \cdot E_1 \left(\frac{r^2}{4a_2 t} \right). \quad (6)$$

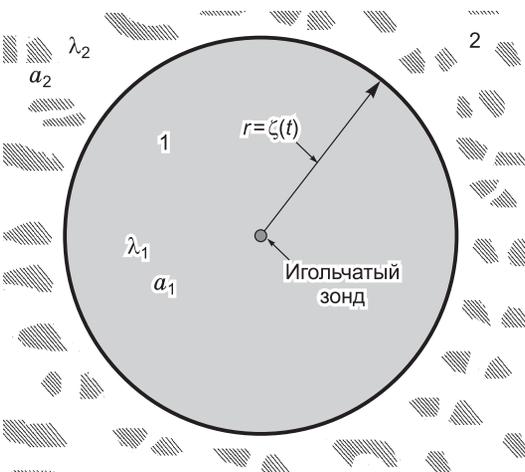


Рис. 2. Одномерная модель разложения газового гидрата в безграничной среде (нормальное к игле сечение).

$r = \zeta(t)$ — фронт фазового перехода (определенная функция времени); область 1 ($r \leq \zeta(t)$) — среда без гидрата (вода и газ в порах) с тепловыми свойствами: λ_1 и a_1 — коэффициенты тепло- и температуропроводности; область 2 ($r \geq \zeta(t)$) — среда с гидратом, λ_2 и a_2 — коэффициенты тепло- и температуропроводности среды с газовым гидратом в порах.

Для задачи с фазовым переходом (1)—(5) решение имеет вид [Гольмшток и др., 2005]:

$$T(r, t) = T_i + (T_{ph} - T_i) \cdot E_1\left(\frac{r^2}{4a_2 t}\right) / E_1\left(\frac{\alpha^2}{4a_2}\right), \quad r \geq \zeta(t), \quad (7.1)$$

$$T(r, t) = T_{ph} + \frac{Q}{4\pi\lambda_1} \cdot \left(E_1\left(\frac{r^2}{4a_1 t}\right) - E_1\left(\frac{\alpha^2}{4a_1}\right) \right), \quad r \leq \zeta(t), \quad (7.2)$$

где $E_1(s) = \int_s^\infty \frac{e^{-u}}{u} du$ — интегральная показательная функция, α — коэффициент пропорциональности распространения фазового фронта во времени $\zeta(t) = \alpha\sqrt{t}$.

Интересующий нас в первую очередь параметр гидратосодержания ρ_0 присутствует в условии Стефана (5):

$$\lambda_2(T_{ph} - T_i) \cdot \frac{\exp(-\alpha^2/4a_2)}{E_1(\alpha^2/4a_2)} - \frac{Q}{4\pi} \cdot \exp\left(-\frac{\alpha^2}{4a_1}\right) = L\rho_0 \frac{\alpha^2}{4}. \quad (8)$$

ПОСТАНОВКА ОБРАТНОЙ ЗАДАЧИ

Допустим, что изучаемая среда, содержащая гидрат, находится в таких PT -условиях, что при ее нагревании источниками разной мощности можно получить два типа термограмм: S -термограмму при малой мощности нагревателя и D -термограмму при большей мощности нагревателя. Рассмотрим задачу определения тепловых свойств образца и содержания в нем метангидрата ρ_0 , как было предложено в [Фадеева и др., 2013].

Как отмечалось ранее, теоретическая модель, с помощью которой мы хотим описать экспериментальные термограммы, в качестве источника рассматривает бесконечную тонкую нить в бесконечном пространстве, т. е. не учитывает размеры игольчатого зонда и влияние термостатированной стенки камеры высокого давления. Поэтому экспериментальные термограммы рассматривались только в интервале времени от 5 с (решение не учитывает размеры зонда) до 150 с после включения источника (решение не учитывает конечные размеры камеры с термостатированными стенками). Задача, в которой учитываются конечные размеры (радиус r_0) и тепловые свойства цилиндрического источника, помещенного в исследуемую среду, была рассмотрена в работе [Blackwell, 1954]. Автор показал, что термограммы для цилиндрического источника и бесконечно тонкой нити при постоянной мощности нагревателя на больших временах ($t \gg r_0^2/4a$) имеют одинаковую зависимость от времени. Но они могут быть сдвинуты друг относительно друга на постоянную величину, которой для наших экспериментальных данных можно пренебречь (см. Приложение).

При описании термограмм предполагается, что температура измеряется на расстоянии радиуса зонда $r = r_0$. Описание S -термограммы с помощью выражения (6) осуществлялось во всем промежутке времени от 5 до 150 с. D -термограмма имеет два интервала: начальный (когда $T < T_{ph}$, $r \geq \zeta(t)$) соответствует среде с метангидратом в порах и описывается выражением (7.1), последующий интервал (когда $T > T_{ph}$, $r \leq \zeta(t)$) соответствует среде с разложившимся метангидратом и описывается выражением (7.2). Для рассматриваемого эксперимента речь идет о начальном интервале 5—10 с и втором интервале 30—200 с.

Сравнивая выражения (6) и (7), видно, что их можно привести к одинаковой форме:

$$T(\mathbf{b}; t) = b_1 + b_2 \cdot E_1(b_3/t), \quad (9)$$

где \mathbf{b} — независимые параметры, описывающие модель; все решения рассматриваются на расстоянии r_0 ; решение $T(\mathbf{b}; t)$ для S -термограммы обозначим $T^{st}(\mathbf{b}^{st}; t)$ с параметрами $\mathbf{b}^{st} = (b_1^{st}, b_2^{st}, b_3^{st})$; решение для начального интервала D -термограммы (с гидратом) обозначим $T^{d2}(\mathbf{b}^{d2}; t)$, $\mathbf{b}^{d2} = (b_1^{d2}, b_2^{d2}, b_3^{d2})$; решение для последующего интервала D -термограммы (без гидрата) обозначим $T^{d1}(\mathbf{b}^{d1}; t)$, $\mathbf{b}^{d1} = (b_1^{d1}, b_2^{d1}, b_3^{d1})$. Выражение \mathbf{b}^{st} , \mathbf{b}^{d1} и \mathbf{b}^{d2} через тепловые свойства и модельные параметры (λ_2 , a_2 , λ_1 , T_i , T_{ph} , $x = \alpha^2/4a_1$) приведены в табл. 1. Там же указан диапазон типичного изменения модельных параметров с учетом диапазона теплофизических параметров для геологических сред (например, для теплопроводности это 0.3—5.0 Вт/(м·К), для температуропроводности — 10^{-5} — 10^{-8} м²/с).

Обратная задача. Из экспериментальных термограмм имеем набор данных $\mathbf{y}^{st} = \{y^{st}(t_k)\}$, $\mathbf{y}^{d2} = \{y^{d2}(t_k)\}$, $\mathbf{y}^{d1} = \{y^{d1}(t_k)\}$ (t_k — времена измерений). Также нам известны удельная теплота образования метангидрата $L = 4.3 \cdot 10^5$ Дж/кг, радиус зонда $r_0 = 10^{-3}$ м, мощность нагревателя Q (Вт/м), по-

Таблица 1. Выражение параметров модели \mathbf{b}^{st} , \mathbf{b}^{d1} и \mathbf{b}^{d2} через тепловые свойства и модельные параметры

Параметр модели \mathbf{b}	Стабильная обстановка, \mathbf{b}^{st}	Нестабильная обстановка, \mathbf{b}^{d1}	Нестабильная обстановка, \mathbf{b}^{d2}	Диапазон параметров \mathbf{b}
$b_1, ^\circ\text{C}$	T_i	$T_{ph} - \frac{Q}{4\pi\lambda_1} \cdot E_1(x)$	T_i	от 1 до 6
$b_2, ^\circ\text{C}$	$\frac{Q}{4\pi\lambda_2}$	$\frac{Q}{4\pi\lambda_1}$	$\frac{T_{ph} - T_i}{E_1(\alpha^2/4a_2)}$	от 0.15 до 2.4
b_3, c	$\frac{r_0^2}{4a_2}$	$\frac{r_0^2 \cdot x}{\alpha^2}$	$\frac{r_0^2}{4a_2}$	от 0 до 25

ристость образца $\varphi = 38\%$, T_i — начальная температура образца. Необходимо определить ρ_0 , λ_2 , a_2 , λ_1 , α^2 и x .

Определение гидратосодержания состоит в решении оптимизационной задачи:

1. По S -термограмме \mathbf{y}^{st} определяем параметры модели \mathbf{b}^{st} (учитывая, что первый параметр известен, $b_1^{st} = T_i$). Далее из табл. 1 находим λ_2 , a_2 .

2. По D -термограмме \mathbf{y}^{d1} , \mathbf{y}^{d2} определяем параметры \mathbf{b}^{d1} , \mathbf{b}^{d2} , рассчитываем λ_1 . Параметры α^2

и x определяются при решении системы:

$$\begin{cases} T_i + b_2^{d2} \cdot E_1(\alpha^2/4a_2) = b_1^{d1} + b_2^{d1} \cdot E_1(x), \\ r_0^2 \cdot x = b_3^{d1} \cdot \alpha^2. \end{cases} \quad (10)$$

3. Получив необходимые параметры b_2^{d2} , λ_2 , a_2 , α^2 и x , с помощью уравнения (8) рассчитываем гидратосодержание образца:

$$\rho_0 = \frac{4\lambda_2}{L} \cdot \frac{b_2^{d2}}{\alpha^2} \cdot \exp\left(-\frac{\alpha^2}{4a_2}\right) - \frac{Q}{L} \cdot \frac{1}{\alpha^2\pi} \cdot \exp(-x). \quad (11)$$

ИНВЕРСИЯ ТЕРМОГРАММ. ОЦЕНКА ПАРАМЕТРОВ МОДЕЛИ

Решение обратной задачи сводится к нахождению минимума функционала невязки $J(\mathbf{b})$ между измеренными термограммами $y(t_k)$ и теоретическим решением $T(\mathbf{b}; t_k)$ в заданном интервале времен t_k :

$$J(\mathbf{b}) = \sqrt{\frac{1}{n} \cdot \sum_{k=1}^n (y(t_k) - T(\mathbf{b}; t_k))^2}, \quad (12)$$

где $y(t_k) \equiv y^{st}(t_k)$ и $T(\mathbf{b}; t_k) \equiv T^{st}(\mathbf{b}^{st}; t_k)$ для S -термограммы; $y(t_k) \equiv y^{d1}(t_k)$ и $T(\mathbf{b}; t_k) \equiv T^{d1}(\mathbf{b}^{d1}; t_k)$, $y(t_k) \equiv y^{d2}(t_k)$ и $T(\mathbf{b}; t_k) \equiv T^{d2}(\mathbf{b}^{d2}; t_k)$ для D -термограммы. Минимизация функционалов $J(\mathbf{b}^{st})$, $J(\mathbf{b}^{d1})$ и $J(\mathbf{b}^{d2})$ (12) проводится независимо.

Самыми распространенными методами минимизации являются локальные методы — пошаговый спуск из начальной точки в пространстве параметров модели к ближайшему локальному минимуму функционала $J(\mathbf{b})$ [Яновская, 2004]. Благодаря малому количеству неизвестных параметров обратной задачи, в нашем случае мы можем воспользоваться методом прямого перебора для поиска глобального минимума. Для этого в пространстве модельных параметров \mathbf{b} задается регулярная сетка (интервал возможных изменений параметров приведен в табл. 1). Расчет на регулярной сетке показал, что функционалы $J(\mathbf{b}^{st})$ и $J(\mathbf{b}^{d2})$ имеют единственный минимум овальной формы. Сечения функционалов $J(\mathbf{b}^{st})$ и $J(\mathbf{b}^{d2})$ вблизи их минимума в градациях серого приведены на рис. 3.

На рис. 4 показано поведение функционала $J(\mathbf{b}^{d1})$ для D -термограммы (интервал описания 30—200 с). Кружками показаны его значения в проекциях на плоскости (J, b_1^{d1}) , (J, b_2^{d1}) , (J, b_3^{d1}) (см. рис. 4, а), а также приведено сечение $J(\mathbf{b}^{d1})$ при фиксированном значении $b_2^{d1} = 0.99$ (значения функционала показаны в оттенках серого цвета) (см. рис. 4, б). Видно, что функционал имеет единственный минимум овальной формы.

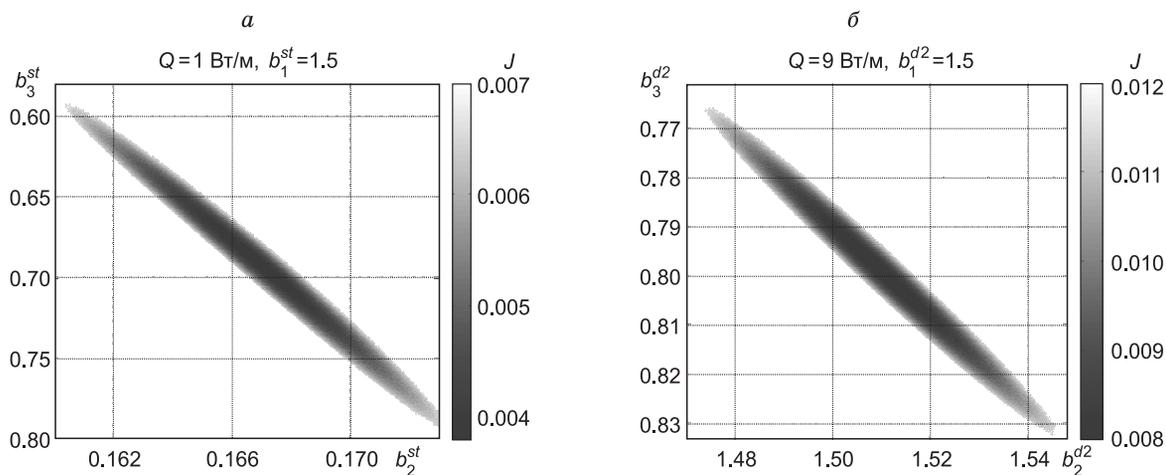


Рис. 3. Изображение функционала невязки $J(\mathbf{b}^{st})$ (а) и $J(\mathbf{b}^{d2})$ (б) в плоскости (b_2, b_3) вблизи минимума при фиксированном значении параметра $b_1^{st} = 1.5$ и $b_1^{d2} = 1.5$ (оттенки серого).

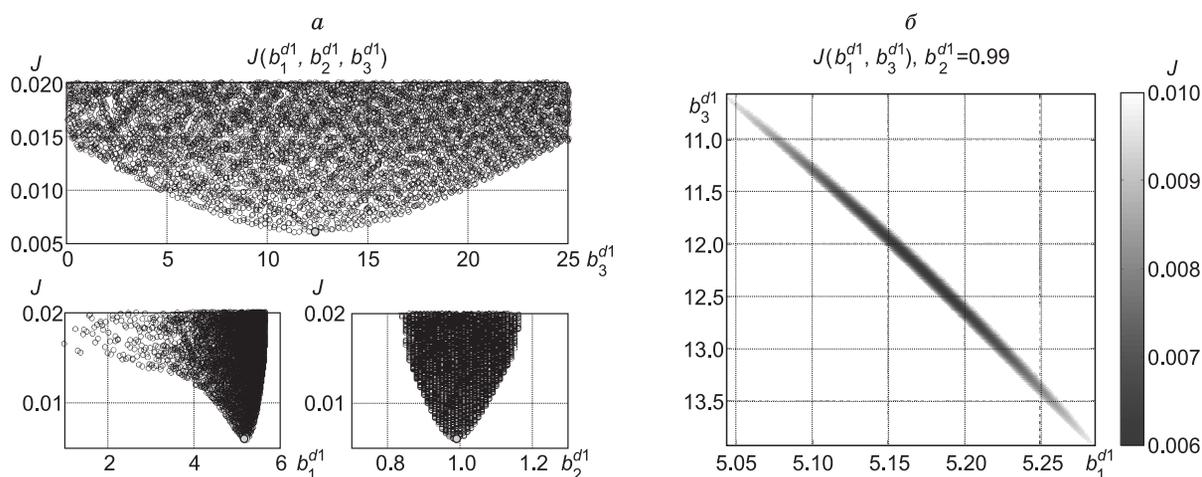


Рис. 4. Исследование функционала невязки $J(\mathbf{b}^{d1})$.

а — проекции значений функционала невязки $J(\mathbf{b}^{d1})$ в узлах сетки модельных параметров \mathbf{b}^{d1} на плоскости (J, b_1^{d1}) , (J, b_2^{d1}) , (J, b_3^{d1}) ; б — изображение $J(\mathbf{b}^{d1})$ в плоскости (b_1^{d1}, b_3^{d1}) при фиксированном $b_2^{d1} = 0.99$ (оттенки серого).

Таким образом, мы нашли глобальные минимумы функционалов невязки и смогли оценить все неизвестные модельные параметры: $(b_1^{st} = 1.50, b_2^{st} = 0.166, b_3^{st} = 0.69)$, $(b_1^{d2} = 1.50, b_2^{d2} = 1.51, b_3^{d2} = 0.79)$ и $(b_1^{d1} = 5.16, b_2^{d1} = 0.99, b_3^{d1} = 12.2)$. По этим параметрам были построены теоретические кривые и проведено их сравнение с экспериментальными термограммами (рис. 5).

Определив модельные параметры \mathbf{b} , с помощью формул из табл. 1 находим тепловые свойства: $\lambda_2 = 0.48$ Вт/(м·К), $\lambda_1 = 0.72$ Вт/(м·К), $a_2 = 3.6 \cdot 10^{-7}$ м²/с. Параметры $x = 0.72$ и $\alpha^2 = 5.9 \cdot 10^{-8}$ м²/с находим из решения системы (10). Затем по формуле (11) определяем $\rho_0 = 55$ кг/м³.

ОЦЕНКА ПОГРЕШНОСТИ

При решении обратной задачи требуется также дать оценку точности ее решения. В случае оптимизационной постановки для оценки точности определения модельных параметров \mathbf{b} можно использовать поведение функционала невязки в окрестности его минимума [Яновская, 2004]. В качестве такой характеристики будем использовать форму границы линии уровня функционала невязки J , превышающую значение в минимуме J_{\min} на 0.003. Это обусловлено чувствительностью измерения относительной температуры в эксперименте.

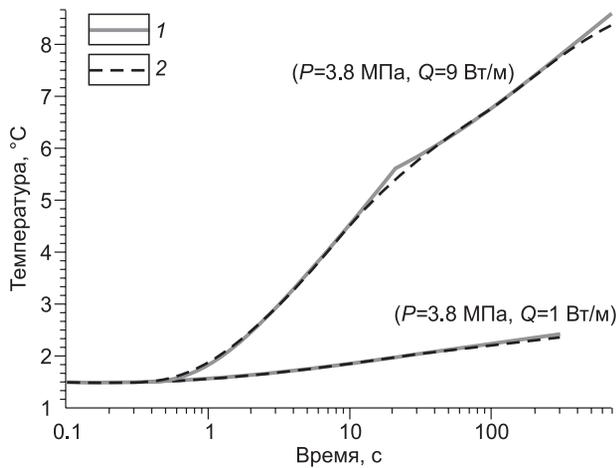


Рис. 5. Теоретические кривые (1) и экспериментальные термограммы (2) исследуемого гидратосодержащего образца.

Вычислительная погрешность. Используя интервальный метод, при подстановке граничных значений модельных параметров b_2^{st} , b_2^{d1} , b_3^{st} , в которых значения функционала не превышают заданный уровень ($J_{\min} + 0.003$), в соответствующие выражения в табл. 1 получаем разброс значений тепловых свойств и оцениваем погрешность их определения: $\Delta\lambda_2 = 0.02$ Вт/(м·К), $\Delta\lambda_1 = 0.03$ Вт/(м·К), $\Delta a_2 = 0.4 \cdot 10^{-7}$ м²/с. Погрешность $\Delta x = 0.09$ определялась подстановкой перебора модельных

параметров b_1^{d1} , b_2^{d1} , b_3^{d1} , b_3^{st} , b_2^{d2} от их минимального до максимального значения в выражение $T_i + b_2^{d2} \cdot E_1(x \cdot b_3^{st} / b_3^{d1}) = b_1^{d1} + b_2^{d1} \cdot E_1(x)$. Аналогично рассчитывалась погрешность вычисления $\Delta\alpha^2 = 1.7 \cdot 10^{-8}$ м²/с (из выражения $\alpha^2 = x \cdot r_0^2 / b_3^{d1}$) и $\Delta\rho_0 = 16$ кг/м³ (из выражения (11)).

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ ИНВЕРСИИ

Проведена обработка экспериментальных термограмм, полученных в описанном ранее эксперименте по нагреву гидратосодержащего образца игольчатым зондом в лабораторных условиях (см. рис. 1, б). Результаты решения обратной задачи представлены в табл. 2 в строке № 1. В строке № 2 (см. табл. 2) приведены независимые оценки полученных величин, которые далее обсуждаются подробнее.

Независимые измерения теплопроводности среды с метангидратом λ_2 были проведены по стандартному методу игольчатого зонда [Von Herzen, Maxwell, 1959] на том же образце, но в других стабильных *PT*-условиях ($T = 2$ °С, $P = 9$ МПа). Данные значения согласуются с результатами из работы [Waite et al., 2002], а также подтверждают зависимость теплопроводности от давления. Аналогично после полного разложения метангидрата методом игольчатого зонда были проведены независимые измерения теплопроводности среды без гидрата λ_1 , которые согласуются с результатами решения обратной задачи.

Независимые измерения температуропроводности среды с метангидратом и без него (a_2, a_1) проводились на том же образце с помощью двухигольчатого зонда [Chaudhary et al., 1991]. Один зонд генерирует тепловой импульс, который регистрируется вторым зондом. Тогда температуропроводность определяется по формуле $a = R^2 / (4\tau)$, где R — расстояние между осями зондов (в нашем случае 12 мм), τ — время запаздывания максимума тепловой волны в измерительном зонде (97.6 с в случае образца с метангидратом в порах и 54.1 с после полного разложения метангидрата в порах).

Оценка содержания метангидрата в порах была определена для того же образца по экспериментальным данным о его формировании, т. е. по начальному содержанию льда и расходу метана. При формировании метангидрата в порах образца было израсходовано 1.128 г метана (оценка по уравнению идеального газа при падении давления $P \approx 2.0$ МПа и $T = 268$ К для объема порового пространства в камере $V = 78.5$ см³). Исходя из состава метангидрата ($\text{CH}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$), массовое содержание в нем метана составляет 12.9 %, следовательно, масса образованного метангидрата в образце составит 8.7 г (почти весь лед перешел в метангидрат). Количественное содержание метангидрата в образце есть отношение массы образованного в образце метангидрата к объему образца ~ 58 кг/м³. Оно приведено в табл. 2.

Оценка скорости продвижения фазового фронта α^2 взята из работы [Дучков и др., 2012], где исследовался похожий образец и такая же методика формирования гидрата в порах (там используется обозначение b).

Таблица 2. Результаты инверсии термограмм

№ п/п	λ_2 , Вт/(м·К)	$a_2 \times 10^7$, м ² /с	λ_1 , Вт/(м·К)	$\alpha^2 \times 10^8$, м ² /с	ρ_0 , кг/м ³
Решение обратной задачи					
1	0.48 ± 0.02	3.6 ± 0.4	0.72 ± 0.03	5.9 ± 1.7	55 ± 16
Независимые оценки					
2	0.52 ± 0.02	3.7 ± 0.2	0.70 ± 0.02	3.8	58

Заметим, что при распаде гидратов выделяется довольно много газа. Газ имеет теплопроводность примерно на 2 порядка ниже теплопроводности метангидрата и воды. Его влияние на теплопроводность должно быть велико. Однако в рассмотренном эксперименте, как ранее указывалось в [Дучков и др., 2006], влияние газа не наблюдается. М.Е. Пермяков [2010] это объяснил тем, что в образце преобладает связанная пористость и низкое содержание воды, поэтому образующийся газ может беспрепятственно покидать образец. Скапливаясь в верхней части камеры высокого давления, газ тем самым может повысить общее давление в системе, но за время записи термограмм выделяется незначительное его количество. Поэтому для экспериментов, описанных в данной статье, увеличением давления в системе можно пренебречь, а выделившийся при этом газ не учитывать.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Решена задача количественной оценки гидратосодержания в осадках по данным повторных измерений температуры линейного источника тепла. Предложенный метод решения обратной задачи позволяет по двум термограммам (без разложения и с разложением гидрата) определить тепловые свойства среды, однозначно судить о наличии или отсутствии газогидратов, а также дает количественную оценку гидратосодержания в среде.

Предложенный метод был опробован на экспериментальных данных по нагреванию гидратосодержащего образца игольчатым зондом в лабораторных условиях (см. результаты в табл. 2). Получены значения гидратосодержания 55 кг/м^3 с оценкой точности в 30 %. Это значение хорошо согласуется с оценкой гидратосодержания по экспериментальным данным о формировании гидрата (объем камеры, содержание льда, расход метана).

Предложенный метод может быть применен для обнаружения и оценки содержания газогидратов *in situ* для осадков с большой проницаемостью (обеспечивает быстрый уход газа после разложения гидрата, иначе газ повысит давление в осадках и затормозит процесс разложения). Для этого необходимо подбирать мощность источника таким образом, чтобы в первом измерении гидрат не разлагался, а во втором — разлагался. Очевидно, что при практической реализации метода могут возникнуть проблемы, например, при интерпретации термограмм большую неопределенность может вносить неоднородность распределения скоплений газовых гидратов вокруг зонда. Для анализа влияния степени неравномерного распределения газового гидрата планируется проведение специальных экспериментов с неоднородным распределением гидрата.

Авторы выражают благодарность А.Д. Дучкову за многочисленные консультации и внимание к работе.

Работа была частично финансирована в рамках интеграционного проекта СО РАН № 14, МИП СО РАН № 19 и РФФИ (грант 12-05-31370-мол_a).

ПРИЛОЖЕНИЕ

КОНТАКТНОЕ СОПРОТИВЛЕНИЕ

Вопрос необходимости учета контактного сопротивления при проведении теплофизических экспериментов методом игольчатого зонда встает, например, при рассмотрении тепловых свойств твердых горных пород, когда зонд помещается в заранее высверленное отверстие. В случае рыхлых осадков в присутствии воды и при больших давлениях тепловой контакт зонда со средой оказывается хорошим, и тепловое контактное сопротивление можно не учитывать. Проведем экспериментальную проверку этого утверждения.

Изменение температуры цилиндрического источника (игольчатого зонда) на больших временах ($t \gg r_0^2/4a$) имеет вид, схожий с аналитическим решением (6) для бесконечной тонкой нити [Blackwell, 1954]:

$$T_1(t) \approx T_0 + \frac{Q}{2\pi r_0 H} + \frac{Q}{4\pi\lambda} \cdot \left[\ln\left(\frac{4at}{r_0^2}\right) - \gamma \right], \quad (13)$$

где $\gamma = 0.5772$ — постоянная Эйлера, H (Вт/(м²·К)) — коэффициент теплообмена между средой и зондом, или тепловое контактное сопротивление; здесь использована асимптотическая формула $E_1(r_0^2/4at) \approx -\gamma - \ln(r_0^2/4at)$.

Отличие формул (13) и (6) состоит в том, что температура цилиндрического зонда сдвинута относительно температуры в среде на постоянную величину $\Delta T = \frac{Q}{2\pi r_0 H}$, которая учитывает геометрические размеры (радиус игольчатого зонда r_0), мощность нагревателя Q и коэффициент теплообмена H .

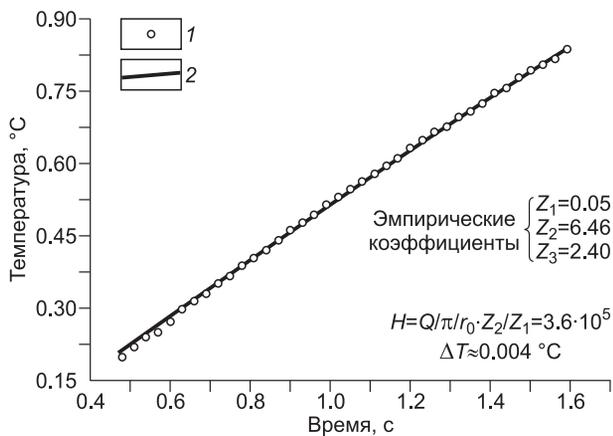


Рис. 6. Аппроксимация термограммы на малых временах (0.5—1.6 с).

1 — значения экспериментальной стабильной термограммы ($P = 90$ атм, $T = 1.5$ °С, $Q = 9$ Вт/м), 2 — теория из формулы (14).

В работе [Blackwell, 1954] было предложено оценивать коэффициент теплообмена $H = \frac{Q}{\pi r_0} \cdot \frac{Z_2}{Z_1}$ при аппроксимации экспериментальной термограммы решением задачи цилиндрического источника на малых временах:

$$T_1(t) \approx T_0 + Z_1 \cdot t - Z_1 \cdot Z_2 \cdot t^2 + Z_1 \cdot Z_2 \cdot Z_3 \cdot t^{2.5}, \quad r_0^2/a_1 \ll t \ll r_0^2/a_2, \quad (14)$$

где a_1 — собственная теплопроводность зонда, a_2 — теплопроводность исследуемой среды.

В наших экспериментах теплопроводность игольчатого зонда определялась теплопроводностью сплава Розе, который занимает свободное от нагревателя и датчика пространство в игле: $a_1 = \lambda_1 / \rho_1 C_1 \approx 1.2 \cdot 10^{-5}$ м²/с ($\lambda_1 = 16.3$ Вт/(м·К), $C_1 = 147$ Дж/(кг·К) [Григорьев, Мейлихов, 1991] — теплопроводность и удельная теплоемкость сплава Розе, плотность сплава определялась из его состава и составила $\rho_1 = 9260$ кг/м³). Таким образом, интервал времени определения коэффициента H ($\frac{r_0^2}{a_1} \ll t \ll \frac{r_0^2}{a_2}$) более 0.1 и менее 3 с.

Прибор измеряет температуру зонда со скоростью 33 Гц. В промежутке времени от 0.5 до 1.6 с находится 37 экспериментальных точек S-термограммы, которые аппроксимируются нелинейной зависимостью (14), как показано на рис. 6, с точностью 0.001. Из полученных эмпирических коэффициентов рассчитывается контактное сопротивление $H = 3.6 \cdot 10^5$ Вт/(м²·К). При этом скачок температуры на границе зонда со средой можно не учитывать в силу того, что величина этого скачка $\Delta T \approx 0.004$ °С меньше абсолютной погрешности определения температуры в среде 0.01 °С.

При аппроксимации термограмм на малых временах мы убедились, что в условиях присутствия воды и при больших давлениях коэффициент теплообмена зонда со средой достаточно сильный, такой, что разница температуры внутри и снаружи зонда меньше абсолютной погрешности измерения температуры. Таким образом, контактное сопротивление H можно не учитывать при описании экспериментальных термограмм (см. рис. 1).

ЛИТЕРАТУРА

- Гинсбург Г.Д., Соловьев В.А. Субмаринные газовые гидраты. СПб., ВНИИОкеангеология, 1994, 192 с.
- Голубев В.А. Свидетельства присутствия газогидратов в верхнем слое донных осадков озера Байкал: результаты измерений теплопроводности *in situ* // ДАН, 1998, т. 358, № 3, с. 384—388.
- Гольмшток А.Я., Дучков А.Д., Рощина Н.А. О возможности обнаружения донных скоплений газовых гидратов геотермическим методом // Вопросы геофизики. Вып. 38. СПб., Изд-во СПб. ун-та, 2005, с. 130—147.
- Григорьев И.С., Мейлихов Е.З. Физические величины. Справочник. М., Энергоатомиздат, 1991, 1232 с.
- Гройсман А.Г. Теплофизические свойства газовых гидратов. Новосибирск, Наука, 1985, 94 с.
- Дучков А.Д., Манаков А.Ю., Казанцев С.А., Пермяков М.Е., Огиенко А.Г. Экспериментальное моделирование и измерение теплопроводности пород, содержащих гидраты метана // ДАН, 2006, т. 408, № 5, с. 656—659.
- Дучков А.Д., Манаков А.Ю., Казанцев С.А., Пермяков М.Е., Огиенко А.Г. Измерение теплопроводности синтетических образцов донных осадков, содержащих гидраты метана // Физика Земли, 2009, № 8, с. 42—50.
- Дучков А.Д., Истомин В.Е., Соколова Л.С. Геотермический метод обнаружения газовых гидратов в донных осадках акваторий // Геология и геофизика, 2012, т. 53 (7), с. 920—929.
- Истомин В.А., Якушев В.С. Газовые гидраты в природных условиях. М., Недра, 1992, 236 с.
- Карслоу Г., Егер Д. Теплопроводность твердых тел. М., Наука, 1964, 488 с.

Макогон Ю.Ф. Природные газогидраты: открытие и перспективы // Газовая промышленность, 2001, № 5, с. 10—16.

Пермяков М.Е. Эффективная теплопроводность гидратосодержащих образцов по результатам лабораторных измерений при различных *P-T*-условиях: Автореф. дис. ... к.т.н. Новосибирск, НГУ, 2010, 16 с.

Соловьев В.А. Природные газовые гидраты как потенциальное полезное ископаемое // Российский химический журнал, 2003, т. 48, № 3, с. 59—69.

Фадеева И.И., Дучков А.А., Пермяков М.Е. Количественная оценка гидратосодержания в образце по данным измерения температурного поля от линейного источника тепла // Интерэкспо ГЕО-Сибирь-2013. IX Междунар. науч. конгр. (Новосибирск, 15—26 апреля 2013 г.): Междунар. науч. конф. «Недропользование. Горное дело. Новые направления и технологии поиска, разведки и разработки месторождений полезных ископаемых. Геоэкология»: Сб. материалов в 3 т. Новосибирск, СГГА, 2013, Т. 2, с. 46—51.

Чувиллин Е.М., Буханов Б.А. Экспериментальное изучение теплопроводности мерзлых гидратосодержащих грунтов при атмосферном давлении // Криосфера Земли, 2013, т. XVII, № 1, с. 69—79.

Яновская Т.Б. Обратные задачи геофизики. СПб., Изд-во СПб. ун-та, 2004, 216 с.

Blackwell J.H. A transient-flow method for determination of thermal constants of insulating materials in bulk // J. Appl. Phys., 1954, v. 25, № 4, p. 137—144.

Chaudhary D., Gori F., Grazzini G., Singh A.K. An *in situ* apparatus for determination of thermal conductivity and diffusivity of soils // High Temperatures-High Pressures, 1991, v. 23, p. 621—624.

Von Herzen R., Maxwell A.E. The measurement of thermal conductivity of deep sea sediments by a needle probe method // J. Geophys. Res., 1959, v. 64, № 10, p. 1557—1563.

Waite W.F., deMartin B.J., Kirby S.H., Pinkston J., Ruppel C.D. Thermal conductivity measurements in porous mixtures of methane hydrate and quartz sand // Geophys. Res. Lett., 2002, v. 29, № 24, p. 82-1—82-4.

Waite W.F., Santamarina J.C., Cortes D.D., Dugan B., Espinoza D.N., Germaine J., Jang J., Jung J.W., Kneafsey T.J., Shin H., Soga K., Winters W.J., Yun T.-S. Physical properties of hydrate-bearing sediments // Rev. Geophys., 2009, v. 47 (RG4003), p. 1—38.

Рекомендована к печати 24 сентября 2015 г.
А.Д. Дучковым

Поступила в редакцию 18 июня 2014 г.,
после доработки — 2 марта 2015 г.