

刘乐乐, 刘昌岭, 孟庆国, 等. 分形理论在天然气水合物研究领域的应用[J]. 海洋地质前沿, 2020, 36(9): 11-22.

分形理论在天然气水合物研究领域的应用

刘乐乐^{1,2}, 刘昌岭^{1,2}, 孟庆国^{1,2}, 张永超^{1,2}

(1 自然资源部天然气水合物重点实验室, 中国地质调查局青岛海洋地质研究所, 青岛 266071;

2 青岛海洋科学与技术国家实验室海洋矿产资源评价与探测技术功能实验室, 青岛 266071)

摘要: 天然气水合物作为一种潜在的替代能源和环境扰动因素, 相关研究仍然面临着水合物储层微观结构量化表征不足的问题, 而分形理论为此提供了良好的思路与手段。首先介绍分形理论基础, 然后对分形理论在水合物研究领域的应用情况进行综述, 接着概述含水合物沉积物有效孔隙分形理论, 最后对研究进展进行总结并展望未来分形理论在水合物研究领域的可能方向。

关键词: 分形理论; 天然气水合物; 多孔介质; 物性参数; 渗透率

中图分类号: P744; P618.13

文献标识码: A

DOI: 10.16028/j.1009-2722.2020.064

0 引言

天然气水合物(简称水合物)是一种在较低温度和较高压力条件下稳定存在的似冰雪固体化合物, 它在自然界中广泛分布于近海陆坡区域和极地冻土地层, 形成了各式各样的水合物储层。我国南海北部海域的水合物储层发育, 大量的水合物中蕴含了非常丰富的天然气资源^[1], 海域水合物试采的成功^[2]证实了此类天然气资源的可采性, 促使水合物被列为新矿种。此外, 由于天然气的主要成分是强温室气体甲烷, 并且水合物分解后其储层强度明显降低, 水合物还被认为可能加剧全球温室效应^[3]和诱发工程地质灾害^[4]。

无论是水合物开采技术进步, 还是水合物相关的温室效应和地质灾害评估, 都需要建立在认识水合物储层物性的基础之上^[5]。水合物储层的宏观性质由其微观结构所决定, 大量的科学研究尝试从微观结构演化出发构建通往宏观性质响应的桥梁, 在

水合物储层力学和声学等多学科物性认识方面取得了良好的效果^[6-11]。然而, 由于水合物储层自身组分的多元性和结构的复杂性, 水合物储层岩心的微观结构模式多数通过唯象分析获得^[12-14], 基于此发展而来的宏观性质本构关系模型通常含有若干个经验参数, 虽然能够预测特定条件下的水合物储层岩心宏观性质变化, 但是其经验参数反映的内在物理机制及其取值依据缺乏合理解释, 比较典型的如渗透率预测采用的加权平均模型^[15]和康采尼-卡曼(Kozeny-Carman)模型^[16]等。水合物储层岩心是一种多相多组分的非线性系统, 随机性和复杂性是其主要特征, 它的微观结构受水合物相变、砂土骨架和水气性状等多种因素的影响, 造成了极其丰富的宏观物性演化现象。虽然近年来基于三维数字岩心技术的微观数值模拟方法促进了水合物储层岩心宏观渗透性质演化机制的理解^[17-19], 但是在水合物储层岩心复杂系统微观结构量化表征方面仍然缺乏行之有效的理论方法, 很大程度上限制了宏观物性本构关系理论模型的发展。

分形几何理论(简称分形理论)自诞生几十年来, 在描述非线性系统的非线性过程方面体现出了明显的优势, 它很好地揭示了非线性系统中有序与无序的统一以及确定性和随机性的统一, 为多孔介质研究提供了有力的理论支撑, 也为水合物储层物性和水合物相变特性等研究提供了新的思路。笔

收稿日期: 2020-05-30

资助项目: 国家自然科学基金(41872136, 41876051); 国家重点研发计划政府间国际科技创新合作重点专项(2018YFE0126400); 中国地质调查局项目(DD20190221)

作者简介: 刘乐乐(1986—), 男, 博士, 副研究员, 主要从事天然气水合物储层工程地质方面的研究工作。E-mail: lele.liu@qnlm.ac

者首先介绍分形理论基础, 然后对分形理论在水合物研究领域的应用情况进行综述, 接着概述近年来形成的水合物储层岩心有效孔隙分形理论, 最后对研究进展进行总结并展望未来分形理论在水合物研究领域的可能方向。

1 分形理论

1.1 分形理论的起源与发展

美国哈佛大学数学教授曼德勃罗特(Benoit B M)于1967年在《Science》期刊上发表了一篇名为“英国的海岸线有多长? 统计自相似与分维维数”的论文^[20], 指出曲折弯曲的海岸线具有统计自相似性, 它的长度是无法确定的, 但是可以用分数的维数进行描述, 自此开启了采用分形的思想探索自然界复杂形态的时代。然而, “分形”这个名词直到1977年才由曼德勃罗特教授在其著作《分形: 形态、偶然性和维数》^[21]中创造出来, 它字面上代表一种“不规则的、分数的、支离破碎的”物体或者体系, 这类物体或者体系无法采用传统的欧几里德几何学进行描述, 标志着分形理论的正式诞生。5年之后, 曼德勃罗特教授出版了一本著名的分形理论经典专著《自然界的分形几何学》^[22], 系统阐述了分形理论体系的核心内容, 标志着分形理论的初步形成以及分形独立学科的正式诞生。曼德勃罗特教授因此被称为“分形之父”。

分形理论以新的观念和新的手段探索隐藏在自然复杂非线性系统背后的规律、局部和整体之间的本质联系, 体现出了透过无序混乱现象和不规则形态抓住问题本质的能力, 几十年来在物理学、数学、化学、地质学和天文学等自然科学领域, 以及经济学、历史学和哲学等社会科学领域中进行了广泛而深入的应用, 现在仍是大量学科的前沿研究课题之一, 这些应用与研究又反过来促进了分形理论的发展与完善。已有专著对分形发展史上的重要事件进行了归纳总结^[23], 其中1991年诞生在英国的期刊《混沌, 孤子和分形》(Chaos, Solitons & Fractals)和1993年诞生在新加坡的期刊《分形》(Fractals)、国内外定期召开的分形学术会议、以及频繁出现的分形专著和分形论文, 都体现了分形理论广泛的应用前景和显著的国际影响。

1.2 分形理论的数学基础

在介绍分形理论的数学基础之前, 需要首先回答曼德勃罗特教授提出的问题“英国的海岸线有多长?” 假如使用长度为 r 的“尺子”作为单位去度量海岸线的长度, 如果度量的结果是 N , 那么海岸线的长度就是 N 尺。显然, 海岸线的长度与所用尺子的大小有关, 它们之间存在下列关系:

$$N(r) = \frac{L}{r} \sim r^{-1} \quad (1)$$

类似地, 如果使用边长为 r 的小正方形作为“尺子”去度量一个有限平面(面积为 A)的大小, 那么 N 值为

$$N(r) = \frac{A}{r^2} \sim r^{-2} \quad (2)$$

同样地, 将半径为 r 的小球填满一个体积 V , 所需要的小球数目 N 为

$$N(r) = \frac{V}{\frac{4}{3}\pi r^3} \sim r^{-3} \quad (3)$$

归纳上述3个式子, 容易得出以下数学表达式

$$N(r) \sim r^{-D_H} \quad (4)$$

式(4)说明了只有使用与被度量几何体具有相同维数的“尺子”去度量, 才可以得到一个确定的测量数值 N ; 若用低于被度量几何体维数的“尺子”去度量, 测量结果为无穷大; 如果使用高于被度量几何体维数的“尺子”去度量, 那么测量结果为零。将式(4)两边取自然对数并简单运算后可得:

$$D_H = -\frac{\ln[N(r)]}{\ln(r)} \quad (5)$$

式中: D_H 是豪斯道夫(Hausdorff)维数, 也称豪斯道夫-贝塞科维奇(Besicovitch)维数, 还可称为覆盖维数或者量规维数, 它既可以是整数, 也可以是分数。

如果某个几何体在欧氏空间中的豪斯道夫维数恒定大于其拓扑维数(不随几何体形状变化而变化的整数维数, 比如线、面和体的拓扑维数依次为1、2和3), 那么这个几何体就是分形^[22]。曼德勃罗特教授在此基础上还给出了分形更为通俗且直观的定义是“组成部分以某种方式与整体相似的形体”。除豪斯道夫维数之外, 还有其他一些常用的维数, 如信息维数 D_i 、关联维数 D_g 、相似维数 D_s 、容量维数 D_c 、谱维数 \bar{D} 、填充维数 D_p 、分配维数 D_d 和

Lyapunov 维数 D_1 等^[24]。分形维数的测定方法包括改变观察尺度求维数、根据测量关系求维数、根据相关函数求维数、根据分布函数求维数、根据频谱求维数等基本方法, 以及简便易行的盒计数法^[24]。

二维平面中的盒计数法就是通过构造等边长正方形(称为盒子)网格覆盖目标形状, 然后计算与目标形状相交的盒子数量, 接着改变覆盖网格中正方形的边长并计算新的相交盒子数量, 最后在双对数坐标系中绘制出盒子数量随盒子边长变化的直线, 该直线的斜率即为目标形状的计盒维数或者盒维数^[25]。盒维数可以被认为表示一个几何体能被相同形状的小几何体覆盖的效率, 而豪斯道夫维数涉及的可能是一个几何体被不同形状的小几何体覆盖的效率, 一般来说两者不相等, 但是对于许多“相当规则”的几何体来说, 通常认为两者是相等的^[24]。

1.3 分形理论在多孔介质中的应用

多孔介质是一种由多相多组物质构成的材料, 通常以固相为固体骨架, 气相或者液相弥散在固相之中, 形成纷繁复杂的微观结构, 表现为极其丰富的宏观性质。多孔介质材料按其成因可分为人造多孔介质和天然多孔介质 2 种。其中, 人造多孔介质常见的有陶瓷、活性炭、砖瓦、木材和玻璃纤维等; 常见的天然多孔介质有植物根茎、岩石和土体等。岩石和土体是地球科学、环境科学、能源科学和工程材料科学等学科领域重点关注的多孔介质, 它们的力学性质、热学性质、水力学性质和电学性质等相关研究一直都是国内外学术界和工业界先进思想和高新技术的试验场。

天然岩土材料通常具有很好的分形特征^[22]。分形理论在多孔介质中的应用, 实际上是采用分形的思想量化表征多孔介质的微观结构, 然后基于特定模型分析多孔介质宏观物性演化规律, 旨在为工程实际问题的解决提供有益的参考。已有文献^[26-32]对分形理论在多孔介质基础物性研究中的应用情况进行了较好的总结, 在此仅对 2 个最具影响力的多孔介质分形模型进行介绍。

1.3.1 分形毛细管束模型

分形毛细管束模型就是将多孔介质孔隙空间等效为迂曲毛细管束, 用来分析其传热传质等性状。这个毛细管束的特点是毛细管直径和毛细管长度均符合分形标度关系, 即直径越小的毛细管数量越

多, 并且毛细管的长度越长, 不同直径的毛细管长度是不一样的。

分形毛细管束模型的毛细管直径实际可取为多孔介质的孔隙直径。华中科技大学郁伯铭教授将多孔介质中的孔隙类比为广阔海洋中的岛群^[22]和材料表面接触点阵^[33], 独立提出了多孔介质孔隙的分形模型, 指出多孔介质中直径大于尺度 λ 的孔隙累计数量 N 服从以下分形标度关系^[34]:

$$N(\geq \lambda) = \left(\frac{\lambda_{\max}}{\lambda}\right)^{D_f} \quad (6)$$

式中: λ_{\max} 为孔隙最大尺寸;

D_f 是分形维数。

D_f 在二维空间中的取值范围是 $0 < D_f < 2$, 在三维空间中的取值范围是 $0 < D_f < 3$ ^[35]。

如果孔隙最小尺寸用 λ_{\min} 表示, 那么多孔介质的孔隙总数 N_{tot} 为:

$$N_{\text{tot}}(\geq \lambda_{\min}) = \left(\frac{\lambda_{\max}}{\lambda_{\min}}\right)^{D_f} \quad (7)$$

将式(6)微分并结合式(7)可以得出孔隙分布概率密度函数^[34]为:

$$f(\lambda) = D_f(\lambda_{\min})^{D_f} \lambda^{-(D_f+1)} \quad (8)$$

将式(8)在最小和最大孔隙尺寸范围内积分后应该等于 1, 进而获得多孔介质能否用分形理论和方法处理的一个判据:

$$\left(\frac{\lambda_{\min}}{\lambda_{\max}}\right)^{D_f} \cong 0 \quad (9)$$

即应满足 $\lambda_{\min} \ll \lambda_{\max}$ 。在实际应用时, 一般认为 $\frac{\lambda_{\min}}{\lambda_{\max}} < 1.0 \times 10^{-2}$ 时式(9)成立^[34]。

分形毛细管束模型的毛细管迂曲度 τ 和毛细管直径 λ 满足以下分形标度关系^[36]:

$$\tau = \left(\frac{L_0}{\lambda}\right)^{D_\tau} \quad (10)$$

式中: L_0 为多孔介质渗流方向的几何长度;

D_τ 是迂曲度分形维数。

D_τ 在二维空间中的取值范围是 $1 \leq D_\tau < 2$, 在三维空间中的取值范围是 $1 \leq D_\tau < 3$ 。

此外, 多孔介质的孔隙度 ϕ 、分形维数 D_f 、孔隙最大 λ_{\max} 和最小 λ_{\min} 直径还满足以下约束关系^[34]:

$$D_f = d_E - \frac{\ln(\phi)}{\ln\left(\frac{\lambda_{\min}}{\lambda_{\max}}\right)} \quad (11)$$

式中: d_E 是欧氏几何维数,在二维空间 $d_E=2$,在三维空间 $d_E=3$ 。

需要说明的是,当多孔介质的孔隙空间等效为分形毛细管束时,应当采用二维的分形维数和迂曲度分形维数描述孔隙结构;当多孔介质的孔隙空间等效为球体集合时,应当采用三维的分形维数描述孔隙结构,此时的毛细管直径(也就是孔隙直径)转变为球体直径。可以想象,对于同一个多孔介质,相同的孔隙结构决定了二维的分形维数与三维的分形维数在取值上必然有着内在联系,有的学者^[37-38]指出二维分形维数的平均值与三维分形维数的大小相差1,也有的学者^[39]指出二维分形维数的平均值与三维分形维数的大小差别 <1 ,最近的研究^[40]表明最小二维分形维数与迂曲度分形维数两者之和能够较好地预测三维分形维数的大小。

1.3.2 孔隙-固体分形模型

孔隙-固体分形(pore-solid-fractal, PSF)模型^[41]是在20世纪90年代由法国科研与合作发展研究所(ORSTOM)的皮雷(Perrier)教授为土壤建立的一个多尺度模型,其构造过程如图1所示。图中,黑色区域代表固体相,白色区域代表孔隙相,而灰色代表迭代相,三者的面积比例满足归一化条件:

$$x + y + z = 1 \quad (12)$$

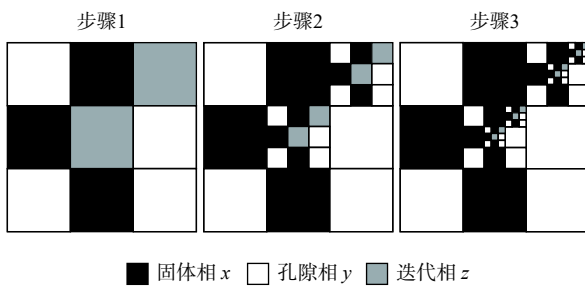


图1 孔隙-固体分形模型构造图

Fig.1 Illustration of the pore-solid-fractal(PSF)model

按照图1所示方法无穷次迭代以后,孔隙-固体分形模型的分形维数可表示为^[41]:

$$D_f = d_E + \frac{\ln(z)}{\ln(b)} \quad (13)$$

式中: b 表示多孔介质构造单元单边上的子区域个数(如图1中 $b=3$)。

在孔隙-固体分形模型构造迭代过程中,第 i 次迭代增加尺度为 $r_i = \frac{L_0}{b_i}$ 的子区域个数满足以下分形

标度关系^[41]:

$$n_{x,y,z}(r_i) \sim (r_i)^{-D_f} \quad (14)$$

按照式(14)简单累加以后可知,第 i 次迭代以后尺寸不小于尺度 r_i 的孔隙相的区域个数也满足类似于式(6)的标度关系:

$$n_y(\geq r_i) \sim (r_i)^{-D_f} \quad (15)$$

孔隙-固体分形模型迭代至第 i 次的孔隙度可以表示为^[41]:

$$\phi_i = \frac{y}{x+y} (1-z^i) \quad (16)$$

可见,只有当迭代次数 i 趋近于无穷大时,孔隙-固体分形模型的孔隙度才能趋近于多孔介质的真实孔隙度,即:

$$\phi = \lim_{i \rightarrow \infty} (\phi_i) \quad (17)$$

对比上述2个分形模型可知,分形毛细管束模型中只有孔隙相符合分形标度关系,而孔隙-固体分形模型的孔隙相和固体相均满足分形标度关系;前者要求孔隙尺寸分布必须达到一定的范围,如式(9)所示,而后者要求迭代的次数要趋近于无穷。

2 天然气水合物分形研究进展

2.1 含水合物沉积物渗透性分形研究进展

美国德州大学奥斯汀分校(University of Texas at Austin)的学者^[42]将孔隙-固体分形模型与关键路径分析法相结合,探讨了含水合物沉积物渗透率(孔隙中只有固体水合物相和单相流体)随水合物饱和度变化的规律,构建的渗透率理论模型不需要像其他模型^[43-45]那样假设特定的水合物赋存形式,预测结果能够与实验数据达到较好的一致性(图2),促进了含水合物沉积物微观孔隙结构与宏观渗透性质之间内在联系的理解与认识。此项研究工作建立在一个重要的假设之上,即水合物因奥斯瓦尔德成熟效应^[46](Ostwald ripening effect)只会聚集在尺寸最大的孔隙中,这是该研究不用假设颗粒表面型或孔隙中心型等水合物赋存形式的根源。但是这个假设在一些含水合物沉积物的计算机断层扫描图像中并不明显,反而是尺寸大于某个阈值的孔

隙均会生长水合物^[12-13, 47-48]。此外, 虽然提出的分形模型取得了很好的预测效果, 但分形维数等模型

参数取值是由反演计算确定的, 缺乏直接的实验数据支撑与验证。

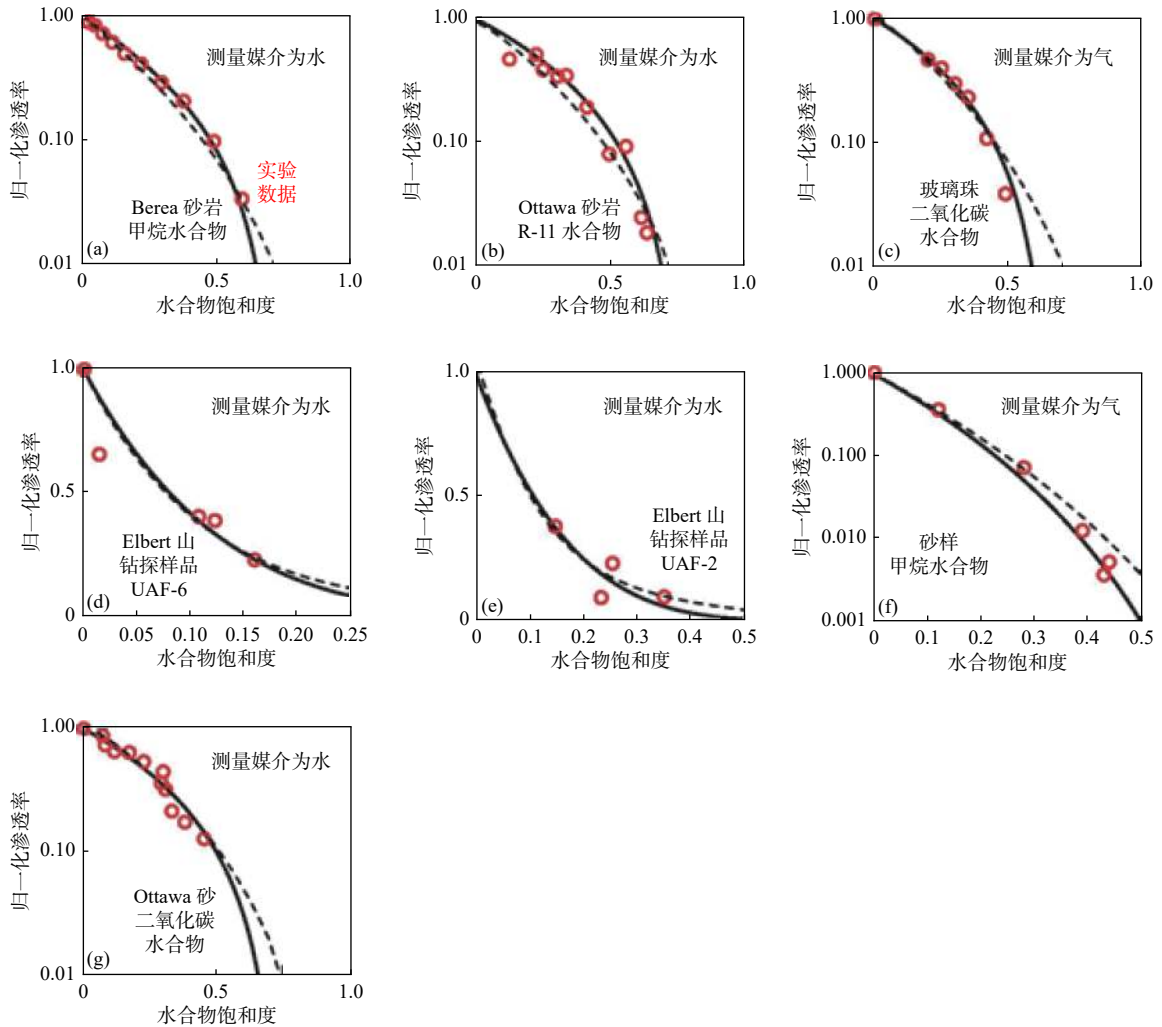


图 2 渗透率分形模型与实验数据对比情况 (据文献 [42] 修改)

Fig.2 Predicted relative permeability versus hydrate saturation for laboratory samples (modified from reference [42])

中国地质大学(武汉)的学者^[49]采用分形毛细管束模型提出了一个含水合物沉积物渗透率理论模型, 认为颗粒表面型水合物生长之后毛细管流仍为管道流, 而孔隙中心型水合物会将毛细管内初始的管道流变为环腔流, 模型参数均具有清晰的物理意义, 并且预测结果与实验数据符合良好。该模型采用了基于纤维材料和理想多孔介质获得的理论式和经验式计算渗透率模型参数, 这些式子是否适用于真实的含水合物沉积物有待进一步澄清。

青岛海洋地质研究所、美国佐治亚理工学院 (Georgia Institute of Technology) 和中国地质大学 (武汉) 三方合作, 采用分形的方法对非饱和石英砂

样品中水相和气相的空间分布进行了量化表征, 提出了迂曲度分形维数的求解方法, 发现了水气两相流体的分形维数和孔隙率存在以下半经验关系^[50]:

$$D_{fk} = 2 - \frac{2\ln(\phi_k)}{\ln(\phi_k) + a_{2D}\sqrt{\phi_k}}, k = w, g \quad (18)$$

$$D_{fk} + D_{Tk} = 3 - \frac{3\ln(\Phi_k)}{\ln(\Phi_k) + a_{3D}\sqrt{\Phi_k}}, k = w, g \quad (19)$$

式中: 下标w和g分别为水相和气相;

ϕ_k 为二维平面内多孔介质流体相的面积占比;

Φ_k 为三维空间内多孔介质流体相的体积占比。

此外, 该项工作提出了含水合物沉积物有效孔隙分形维数求解的一个理论模型:

$$D_{fe}(S_h \geq 0) = D_f(S_h = 0) - \frac{\ln(1 - S_h)}{\ln(\phi_e)} \quad (20)$$

$$[2 - D_f(S_h = 0)]$$

式中:下标e表示有效孔隙空间。在此基础上,结合式(18)和式(19)给出的水气两相分布量化特征,代入分形毛细管束渗透率模型^[36]后,获得了水合物饱和度变化情况下的水气两相流体相对渗透率曲线,如图3所示。可以看出,在孔隙水饱和度相同的条件下,水合物分解有利于气相渗流而抑制水相渗流,主要是由于水合物饱和度降低减小毛细作用力,进而含水合物沉积物对润湿水相的吸力减弱所引起的,这与孔隙网络模型的计算结果一致^[11,51]。基于提出的上述式(20)的理论模型,结合分形毛细管束渗透率模型,青岛海洋地质研究所和中国地质大学(武汉)合作构建了一个含水合物沉积物渗透率预测模型,该模型的预测效果与室内实验以及现场测井渗透率数据均具有良好的 consistency^[52]。

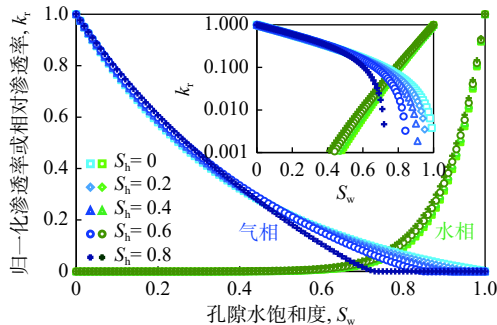


图3 含水合物沉积物水气两相流体相对渗透率曲线
(据文献[50]修改)

Fig.3 Calculated relative permeability versus water and gas in hydrate-bearing sediments with various hydrate saturations(modified from reference[50])

至此,上述2项研究工作均未对提出的含水合物沉积物有效孔隙分形维数理论模型的适用性进行验证。青岛海洋地质研究所和中国地质大学(武汉)合作开展了石英砂中随机生长孔隙中心型、颗粒表面型和团簇型水合物的数值模拟工作,在不同水合物饱和度条件下测量了含水合物石英砂有效孔隙的分形维数,证实了式(20)具有良好的适用性,发现了水合物赋存形态对有效孔隙分形维数演化过程的影响并不明显^[53],这也验证了式(20)建立时所采取假设条件的合理性。随后,该团队又基于计算机断层扫描图像,进一步论证了式(20)对于真实

的含水合物石英砂同样具有良好的适用性^[40]。

上述工作中采用的分形毛细管束渗透率模型^[36]具有以下形式:

$$K = \frac{\pi}{128} \frac{(L_0)^{1-D_T}}{A} \frac{D_f}{3 + D_T - D_f} (\lambda_{max})^{3+D_T} \quad (21)$$

式中:A表示多孔介质垂直于渗流方向的横截面的面积。可以看出,与分形维数 D_f 和 D_T 变化引起的渗透率变化相比,水合物生成或者分解导致有效孔隙最大尺寸 λ_{max} 的变化对渗透率的变化影响更为明显。因此,青岛海洋地质研究所和中国地质大学(武汉)针对最大孔隙尺寸的变化合作开展了数值模拟与实验测试研究^[40,53],发现了含水合物沉积物有效孔隙的最大尺寸不仅受水合物饱和度的影响,还受到水合物赋存形式的显著影响;提出了一个半经验公式用来描述最大有效孔隙尺寸的演化过程,其形式如下:

$$\lambda_{max}^* = \frac{\lambda_{max}(S_h \geq 0)}{\lambda_{max}(S_h = 0)} = 1 - (1 - b) \sqrt{S_h} - b(S_h)^c \quad (22)$$

式中:b和c是拟合经验参数。描述孔隙最大尺寸的参数有等效面积直径^[54]、内切直径^[55]和水力直径^[56]等。与最大内切直径和最大水力直径相比,有效孔隙的最大等效面积直径受水合物赋存形式的影响更小,并且孔隙中心型水合物生长时会迅速减小有效孔隙最大内切直径和最大水力直径,而颗粒表面型水合物生长对此影响相对较小^[57],这在宏观渗透性质方面表现为孔隙中心型水合物对其沉积物渗透率的影响较颗粒表面型水合物更为显著的现象。

中国石油大学(北京)与其合作机构开展了不同压差条件下含水合物泥质粉砂沉积物渗透性测量实验^[58],采用分形理论量化表征了压差增大对含水合物泥质粉砂沉积物孔隙结构的损伤效应,指出三维孔隙分形维数的大小与压差存在良好的负相关性,基于分形毛细管束模型构建了一个含水合物泥质粉砂沉积物渗透率分形模型,该模型的预测结果在较高压差水平下与实验数据符合良好,为含水合物细粒沉积物渗透率应力敏感性研究提供了一种可行的分形思路。

2.2 含水合物沉积物导热性和导电性分形研究进展

中国科学院广州能源研究所^[59]开展了气饱和和多孔甲烷水合物导热性测量实验与模拟分析工作,

采用经典的谢尔宾斯基(Sierpinski)地毯^[22]模拟含气的多孔甲烷水合物, 遵循热电类比法构建了一个多孔甲烷水合物有效热导率的分形模型, 该模型的预测结果与实验数据具有良好的一致性。结果表明, 多孔甲烷水合物的有效热导率随其孔隙度的增加而减小; 依据实验和模拟数据推断确定纯甲烷水合物(孔隙度为零)的热导率为 $0.7 \text{ Wm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ 。

同样采用经典的谢尔宾斯基地毯模拟实际的沉积物多孔介质(图 4), 中国科学院天然气水合物重点实验室与自然资源部天然气水合物重点实验室等机构合作, 开展了基于分形孔隙模型的含水合物沉积物电阻率数值模拟研究^[60]。基于等效电阻网络计算了水饱和和含水合物沉积物的电阻率, 采用 2 个经验参数修正真实沉积物无序、随机微观结构与谢尔宾斯基地毯结构的差别, 计算结果与室内实验和现场测井数据符合良好, 提出的分形模型能较好地描述含水合物沉积物电阻率变化的基本特征。在此项研究中, 沉积物颗粒被分为随机分布不相接触的颗粒和具有自相似分布相互接触的颗粒 2 种类型; 与之对应, 沉积物孔隙水也划分为环绕不相

接触颗粒周围的孔隙水和接触颗粒之间的孔隙水。此外, 模型 2 个重要经验参数的取值缺乏必要的实验数据支撑。

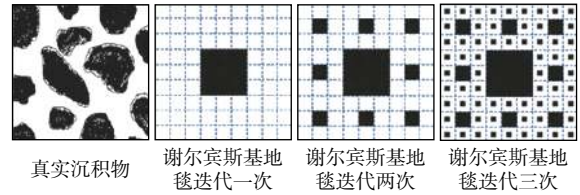


图 4 分形孔隙(白色部分)模型示意图(据文献[60]修改)
Fig.4 Natural porous media modeling using the Sierpinski carpet fractal model (modified from reference [60])

2.3 天然气水合物生成分解分形研究进展

中国科学院广州能源研究所和中国科学技术大学合作, 开展了制冷剂水合物成核与生长实验研究^[61], 依据实验图像量化了制冷剂水合物的分形维数, 构建的分形模型较好地重现了制冷剂水合物的成核与生长过程, 如图 5 所示。结果表明, 制冷剂水合物在生长初期呈现出良好的分形特征; 水合物的分形维数随着生长过程的推移而逐渐增大, 但总体位于 1.5 至 2.0 范围之内。

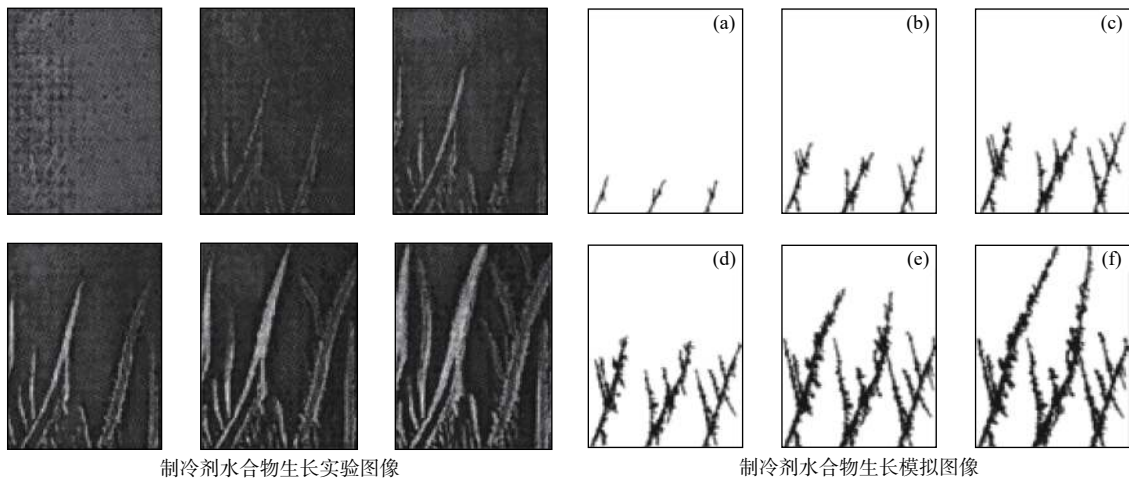


图 5 制冷剂水合物生长过程的实验图像与模拟结果(据文献[61]修改)

Fig.5 Experimental and simulated images of refrigerant hydrate growth (modified from reference [61])

中国科学院广州能源研究所假设多孔介质中水合物分解过程可被收缩核反应模型所描述, 结合水合物颗粒表面分形特征假设, 推导出了多孔介质内水合物分解的分数维收缩核理论模型, 为水合物颗粒表面分形维数的确定提供了一种新方法, 提出的分数维收缩核理论模型的预测结果与实验数据

符合较好^[62]。基于多孔介质中甲烷水合物降压分解实验数据回归分析, 确定的水合物颗粒表面分形维数为 2.25, 这种平面分形维数大于 2.0 的现象体现了孔径较小时多孔介质内表面传质和化学反应趋向于在三维多孔介质整体发生的本质。

中国石油大学(北京)和美国科罗拉多矿业大

学(Colorado School of Mines)合作,将分形理论应用到多孔介质内水合物相平衡曲线预测工作中^[63],采用经典的科氏(Koch)曲线^[22]模拟不规则的多孔介质孔隙形状,建立了修正的分数维拉普拉斯方程来描述多孔介质中水合物的相平衡曲线。结果表明,基于分形理论考虑孔隙不规则形状的影响之后,相平衡曲线的预测精度较假设圆形孔隙的情况有明显的改善。

上海交通大学的学者在孔隙-固体分形模型的基础上,发展了一个水合物-沉积物-孔隙分形模型来表征含水合物沉积物的微观结构(图6),基于该模型推导出了任意水合物单元分解速率和最大分解时间的理论解,探讨了纯水合物和多孔介质中的水合物分解速率的差异^[64]。此外,该研究还将水合物-沉积物-

孔隙分形模型进一步扩展为含任意组分数量的分形模型(图7),满足非饱和含水合物沉积物以及水合物赋存形式影响相关研究的需求。

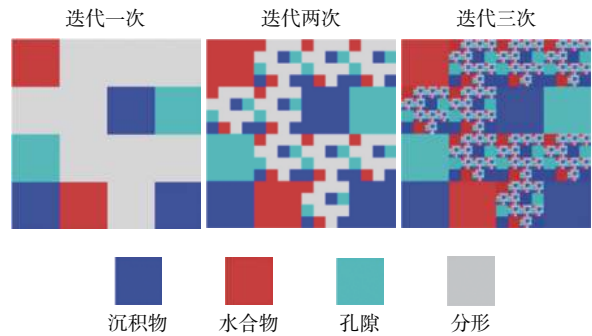


图6 含水合物沉积物的水合物-沉积物-孔隙分形模型 (据文献[64]修改)

Fig.6 Hydrate-sediment-pore fractal model for hydrate-bearing sediments (modified from reference [64])

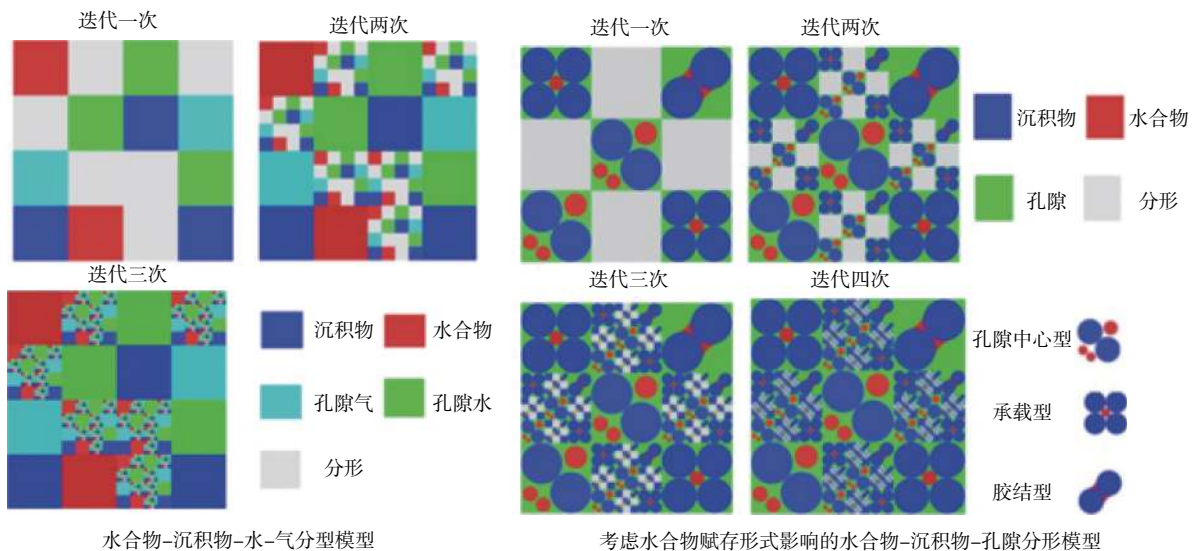


图7 含水合物沉积物分形模型 (据文献[64]修改)

Fig.7 Fractal models for different hydrate-bearing sediments (modified from reference [64])

2.4 天然气水合物其他分形研究进展

西安交通大学的学者^[65]假设海底沉积层中存在天然气分形扩散行为,并且水合物的形成由气体的分形扩散过程所主导,在常规水合物成藏地质模型的基础上提出了一个水合物生成动力学分形模型,分析了分形维数及气体扩散半径对水合物形成速率的影响,基于该模型预测了我国南海水合物储量,预测结果略小于常规方法获得估算数据。

中国科学院边缘海地质重点实验室的学者^[66]计算了南海北部陆坡断裂的平面分布分形维数,并

探讨了地质断裂与水合物的关系。结果表明,地质断裂在平面上分布的分形维数是断裂发育程度的一个定量指标,断裂越发育,分形维数越大;基于此认识到属被动陆缘的北部陆坡断裂越发育则水合物异常越少,而属主动陆缘的台西南断裂越发育反而水合物异常越多的地质规律。

中水北方勘测设计研究有限责任公司与福建省建筑科学研究院等机构合作,开展了水合物钻井液微观结构热传导分形模型研究^[67],探讨了水合物在多孔钻井液中的分解特性。该研究将传热过程假设为热量通过系列分形曲线路径,在钻井

液微观骨架结构及其中孔隙流体中进行传递的过程, 采用分形毛细管束模型构建了一维条件下钻井液有效导热系数的分形模型, 确定了影响有效导热系数的因素有孔隙度、分形维数和各种物质的导热系数等。

3 含水合物沉积物有效孔隙分形理论

青岛海洋地质研究所和中国地质大学(武汉)等机构合作, 在分形毛细管束模型的基础上考虑水合物的特点, 形成了含水合物沉积物有效孔隙分形理论, 其核心思想是将水合物和砂土颗粒共同视为固体骨架, 而将流体充填的孔隙空间视为有效孔隙, 含水合物沉积物渗透率演化过程实质上是有效孔隙微观结构演化过程的宏观反映。

含水合物沉积物有效孔隙分形理论的核心内容主要涉及微观和宏观 2 个层面: 在微观层面, 采用分形参数量化表征含水合物沉积物有效孔隙结构, 以及准确描述水合物形态与含量对岩心有效孔隙微观结构分形参数的影响规律^[40, 50, 53, 57]; 在宏观层面, 构建含水合物沉积物渗透率跨尺度分形模型, 比对实验结果和测井数据具有良好的适用性^[52-53]。含水合物沉积物有效孔隙分形理论的数学表达式主要包括水合物适用的式(18~20 和 22)以及通用的分形毛细管束模型有关公式。该理论不仅能够对含水合物沉积物水力学性质研究提供支撑, 还能够为含水合物沉积物电学性质的理解提供帮助^[53], 比如阐述阿奇公式经验参数的内在物理含义并确定水合物的影响等。

含水合物沉积物有效孔隙分形理论将固体水合物之外的孔隙空间均视为对渗流和导电有贡献的有效孔隙, 这对于含水合物细粒沉积物以及水合物饱和度较高(通常在 0.6~0.8 以上)的含水合物粗粒沉积物存在一定的应用局限性, 其主要原因在于“死”孔隙增多和水膜的存在, 使分形参数量化与宏观性质预测时存在一定的“研究对象”偏差^[40]。此外, 含水合物细粒沉积物中黏土矿物的存在, 将使其内部的渗流过程变得更加复杂, 黏土矿物表面的双电层结构以及黏土团簇的结构性差异^[68-69], 决定了此种情况下的有效孔隙不再是固相水合物之外的孔隙空间, 对渗流有贡献的有效孔隙还需要去除束缚水的影响, 而对导

电的影响除束缚水之外, 还需要考虑黏土骨架导电的影响。

4 结论与展望

分形理论自诞生五十多年来逐渐形成了较为成熟的理论框架体系, 它在非线性体系的非线性过程量化表征方面体现了良好的优势, 已经在自然科学和社会科学重多领域内获得了广泛应用。遵循钱学森先生的“工程科学思想”^[70], 分形相关研究从自然科学角度讲, 需要以追求严谨的数学推导和完美的数学表述为主要目标; 但是从工程科学角度讲, 则需要以解决实际工程问题为主要目标, 在掌握物理现象本质的前提下发展简便易用的半经验甚至经验性模型显得更为重要, 做到“从工程实践中来, 再回到实践中去”, 当然在给出此类模型的同时还需要对其结果误差给出合理估算。

含水合物沉积物是一种典型的非线性多孔介质体系, 水合物相态变化导致的固体骨架结构演化是其主要特征之一。含水合物沉积物有效孔隙分形理论能够较好地量化表征水合物相变过程中含水合物沉积物有效孔隙微观结构的演化特征, 进而能够从微观结构演化角度出发实现宏观性质响应的预测, 适用于含水合物砂质沉积物, 但是对于含水合物泥质沉积物则需要一定的修正。

分形理论在水合物研究领域已经取得了较好的应用效果, 建议将来继续开展以下几个方面的工作: 含水合物沉积物渗流各向异性分形研究、含水合物沉积物裂隙发展机理分形研究、含水合物沉积物非饱和力学性质分形研究、沉积物中多种赋存类型水合物降压分解机理分形研究、以及含水合物沉积物电学性质与渗流性质相关性分形研究等。这些研究对于深入揭示水合物储层物性参数演化与分解产出行为特征微观结构起源、不断夯实水合物勘查试采理论基础具有重要意义。

参考文献:

- [1] 苏丕波, 何家雄, 梁金强, 等. 南海北部陆坡深水区天然气水合物成藏系统及其控制因素[J]. 海洋地质前沿, 2017, 33(7): 1-10.
- [2] 刘昌岭, 李彦龙, 孙建业, 等. 天然气水合物试采: 从实验模拟到场地实施[J]. 海洋地质与第四纪地质, 2017, 37(5): 12-26.
- [3] Ruppel C D, Kessler J D. The interaction of climate change and methane hydrates[J]. *Reviews of Geophysics*, 2017, 55(1): 126-

- 168.
- [4] 鲁晓兵, 张旭辉, 王淑云. 天然气水合物开采相关的安全性研究进展[J]. 中国科学(物理学 力学 天文学), 2019, 49(3): 034602.
- [5] 吴能友, 黄丽, 胡高伟, 等. 海域天然气水合物开采的地质控制因素和科学挑战[J]. 海洋地质与第四纪地质, 2017, 37(5): 1-11.
- [6] 刘乐乐, 张旭辉, 刘昌岭, 等. 含水合物沉积物三轴剪切试验与损伤统计分析[J]. 力学学报, 2016, 48(3): 720-729.
- [7] Bu Q T, Hu G W, Ye Y G, et al. The elastic wave velocity response of methane gas hydrate formation in vertical gas migration systems[J]. *Journal of Geophysics and Engineering*, 2017, 14(3): 555-569.
- [8] Dai S, Seol Y. Water permeability in hydrate-bearing sediments: A pore-scale study[J]. *Geophysical Research Letters*, 2014, 41: 4176-4184.
- [9] Dai S, Santamarina J C, Waite W F, et al. Hydrate morphology: Physical properties of sands with patchy hydrate saturation[J]. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 2012, 117(B11): B11205.
- [10] 陈国旗, 李承峰, 刘昌岭, 等. 多孔介质中甲烷水合物的微观分布对电阻率的影响[J]. 新能源进展, 2019, 7(6): 493-499.
- [11] Mahabadi N, Dai S, Seol Y, et al. The water retention curve and relative permeability for gas production from hydrate-bearing sediments: pore-network model simulation[J]. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 2016, 17(8): 3099-3110.
- [12] 胡高伟, 李承峰, 业渝光, 等. 沉积物孔隙空间天然气水合物微观分布观测[J]. 地球物理学报, 2014, 57(5): 1675-1682.
- [13] Chaouachi M, Falenty A, Sell K, et al. Microstructural evolution of gas hydrates in sedimentary matrices observed with synchrotron X-ray computed tomographic microscopy[J]. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 2015, 16(6): 1711-1722.
- [14] Ta X H, Yun T S, Muhunthan B, et al. Observations of pore-scale growth patterns of carbon dioxide hydrate using X-ray computed microtomography[J]. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 2015, 16(3): 912-924.
- [15] Delli M L, Grozic J L H. Experimental determination of permeability of porous media in the presence of gas hydrates[J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2014, 120: 1-9.
- [16] Carman P C. Permeability of saturated sands, soils and clays[J]. *The Journal of Agricultural Science*, 1939, 29(2): 262-273.
- [17] Wang J Q, Zhao J F, Yang M J, et al. Permeability of laboratory-formed porous media containing methane hydrate: Observations using X-ray computed tomography and simulations with pore network models[J]. *Fuel*, 2015, 145: 170-179.
- [18] Wang D G, Wang C C, Li C F, et al. Effect of gas hydrate formation and decomposition on flow properties of fine-grained quartz sand sediments using X-ray CT based pore network model simulation[J]. *Fuel*, 2018, 226: 516-526.
- [19] Wang D G, Li Y, Liu C L, et al. Study of hydrate occupancy, morphology and microstructure evolution with hydrate dissociation in sediment matrices using X-ray micro-CT[J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2020, 113: 104138.
- [20] Mandelbrot B B. How long is the coast of Britain? Statistical self-similarity and fractional dimension[J]. *Science*, 1967, 156(3775): 636-638.
- [21] Mandelbrot B B. *Fractals: Form, Chance and Dimension*[M]. New York: W. H. Freeman and Company, 1977.
- [22] Mandelbrot B B. *The fractal geometry of nature*[M]. New York: W. H. Freeman and Company, 1982: 1-468.
- [23] 蔡建超, 胡祥云. 多孔介质分形理论与应用[M]. 北京: 科学出版社, 2015: 1-208.
- [24] 张济忠. 分形[M]. 北京: 清华大学出版社, 2011: 1-310.
- [25] Falconer K. *Fractal Geometry: Mathematical Foundations and Applications*[M]. New Jersey: Wiley, 2005: 1-398.
- [26] 郁伯铭. 多孔介质运输性质的分形分析研究进展[J]. *力学进展*, 2003, 33(3): 333-346.
- [27] Cai J C, Luo L, Ye R, et al. Recent advances on fractal modeling of permeability for fibrous porous media[J]. *Fractals*, 2015, 23(1): 1540006.
- [28] Yu B. Analysis of Flow in Fractal Porous Media[J]. *Applied Mechanics Reviews*, 2008, 61(5): 050801.
- [29] 张佳瑞, 王金满, 祝宇成, 等. 分形理论在土壤学应用中的研究进展[J]. 土壤通报, 2017, 48(1): 221-228.
- [30] 詹卫华, 黄冠华. 土壤水力特性分形特征的研究进展[J]. *水科学进展*, 2000, 11(4): 457-462.
- [31] 官庆, 李允. 具有分形特性的油藏渗流理论进展概述[J]. 西南石油大学学报, 2007, 29(2): 106-190.
- [32] Wei W, Xia Y X. Geometrical, fractal and hydraulic properties of fractured reservoirs: A mini-review[J]. *Advances in Geo-Energy Research*, 2017, 1(1): 31-38.
- [33] Majumdar A, Bhushan B. Role of Fractal Geometry in Roughness Characterization and Contact Mechanics of Surfaces[J]. *Journal of Tribology*, 1990, 112(2): 205-216.
- [34] Yu B M, Li J H. Some fractal characters of porous media[J]. *Fractals*, 2001, 9(3): 365-372.
- [35] Xu P, Qiu S X, Yu B M, et al. Prediction of relative permeability in unsaturated porous media with a fractal approach[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2013, 64: 829-837.
- [36] Yu B M, Cheng P. A fractal permeability model for bi-dispersed porous media[J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2002, 45(14): 2983-2993.
- [37] Xia Y X, Cai J C, Wei W, et al. A new method for calculating fractal dimensions of porous media based on pore size distribution[J]. *Fractals*, 2018, 26(1): 1850006.
- [38] Costa A. Permeability-porosity relationship: A reexamination of the Kozeny-Carman equation based on a fractal pore-space geometry assumption[J]. *Geophysical Research Letters*, 2006, 33: L02318.

- [39] Zhao Y X, Zhu G P, Dong Y H, et al. Comparison of low-field NMR and microfocus X-ray computed tomography in fractal characterization of pores in artificial cores[J]. *Fuel*, 2017, 210: 217-226.
- [40] Zhang Z, Li C F, Ning F L, et al. Pore fractal characteristics of hydrate-bearing sands and implications to the saturated water permeability[J]. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 2020, 125: e2019JB018721.
- [41] Perrier E, Bird N, Rieu M. Generalizing the fractal model of soil structure: the pore-solid fractal approach[J]. *Geoderma*, 1999, 88(3): 137-164.
- [42] Daigle H. Relative permeability to water or gas in the presence of hydrates in porous media from critical path analysis[J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2016, 146: 526-535.
- [43] Kleinberg R L, Flaum C, Griffin D D, et al. Deep sea NMR: Methane hydrate growth habit in porous media and its relationship to hydraulic permeability, deposit accumulation, and submarine slope stability[J]. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 2003, 108(B10): 2508.
- [44] Katagiri J, Konno Y, Yoneda J, et al. Pore-scale modeling of flow in particle packs containing grain-coating and pore-filling hydrates: Verification of a Kozeny-Carman-based permeability reduction model[J]. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 2017, 45: 537-551.
- [45] Singh H, Mahabadi N, Myshakin E M, et al. A mechanistic model for relative permeability of gas and water flow in hydrate-bearing porous media with capillarity[J]. *Water Resource Research*, 2019, 55(4): 3414-3432.
- [46] Chen X Y, Espinoza D N. Ostwald ripening changes the pore habit and spatial variability of clathrate hydrate[J]. *Fuel*, 2018, 214: 614-622.
- [47] Li C F, Liu C L, Hu G W, et al. Investigation on the multiparameter of hydrate-bearing sands using Nano-Focus X-Ray computed tomography[J]. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 2019, 124(3): 2286-2296.
- [48] Li C F, Hu G W, Zhang W, et al. Influence of foraminifera on formation and occurrence characteristics of natural gas hydrates in fine-grained sediments from Shenhu area, South China Sea[J]. *Science China Earth Sciences*, 2016, 59(11): 2223-2230.
- [49] Ning F L, Li C F, Cai J C, et al. Study on the relative permeability of hydrate-bearing sediments by a fractal parallel capillary model[C] //9th International Conference on Gas Hydrates, Denver, Colorado, USA 2017.
- [50] Liu L L, Dai S, Ning F L, et al. Fractal characteristics of unsaturated sands—implications to relative permeability in hydrate-bearing sediments[J]. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 2019, 66: 11-17.
- [51] Mahabadi N, Jang J. Relative water and gas permeability for gas production from hydrate-bearing sediments[J]. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 2014, 15(6): 2346-2353.
- [52] 刘乐乐, 张 准, 宁伏龙, 等. 含水合物沉积物渗透率分形模型[J]. *中国科学: 物理学力学天文学*, 2019, 49(3): 034614.
- [53] Liu L L, Zhang Z, Li C F, et al. Hydrate growth in quartzitic sands and implication of pore fractal characteristics to hydraulic, mechanical, and electrical properties of hydrate-bearing sediments[J]. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 2020, 75: 103-109.
- [54] Jiang S F, Kang Y H, Sun Z Q. A digital image method for analysis of soil pores[C] //Proceedings of the IFIP International Federation for Information Processing, Boston, Massachusetts, USA: Springer US, 2009.
- [55] Silin D, Patzek T. Pore space morphology analysis using maximal inscribed spheres[J]. *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*, 2006, 371(2): 336-360.
- [56] Breyiannis G, Varoutis S, Valougeorgis D. Rarefied gas flow in concentric annular tube: Estimation of the Poiseuille number and the exact hydraulic diameter[J]. *European Journal of Mechanics - B/Fluids*, 2008, 27(5): 609-622.
- [57] Liu L, Wu N, Liu C, et al. Maximum sizes of fluids occupied pores within hydrate-bearing porous media composed of different host particles[J]. *Geofluids*, 2020.
- [58] Cai J C, Xia Y X, Lu C, et al. Creeping microstructure and fractal permeability model of natural gas hydrate reservoir[J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2020, 115: 104282.
- [59] Li D L, Du J W, He S, et al. Measurement and modeling of the effective thermal conductivity for porous methane hydrate samples[J]. *Science China Chemistry*, 2012, 55(3): 373-379.
- [60] 陈玉凤, 吴能友, 梁德青, 等. 基于分形孔隙模型的含天然气水合物沉积物电阻率数值模拟[J]. *天然气工业*, 2018, 38(11): 128-134.
- [61] Zhao Y L, Guo K H, Liang D, et al. Formation process and fractal growth model of HCFC-141b refrigerant gas hydrate[J]. *Science in China Series B: Chemistry*, 2002, 45(2): 216-224.
- [62] 杨海健, 李小森, 陈朝阳, 等. 多孔介质中气体水合物降压分解的分形理论研究[J]. *化学学报*, 2009, 67(8): 808-812.
- [63] Li S L, Ma Q L, Sun C Y, et al. A fractal approach on modeling gas hydrate phase equilibria in porous media[J]. *Fluid Phase Equilibria*, 2013, 356: 277-283.
- [64] Zhang H T, Luo X Q, Bi J F, et al. Multi-component fractal representation of multi-scale structure of natural gas hydrate-bearing sediments[J]. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 2018, 60: 144-152.
- [65] 沈建东, 王胜杰, 何晓霞, 等. 分形扩散对海下沉积层中水合物生成过程的影响[J]. *天然气工业*, 2004, 24: 24-26, 126.
- [66] 姚衍桃, 詹文欢. 分形在南海北部陆坡断裂与天然气水合物关系研究中的应用[J]. *中山大学学报(自然科学版)*, 2009,

- 48(5): 131-136.
- [67] 韩博, 李承中, 范勇, 等. 水合物钻井液微观结构热传导分形模型研究[J]. 地质与勘探, 2012, 48(4): 829-834.
- [68] Jang J B, Cao S C, Stern L A, et al. Impact of pore-fluid chemistry on fine-grained sediment fabric and compressibility[J]. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 2018, 123: 5495-5514.
- [69] Santamarina J, Klein K, Palomino A, et al. Micro-scale aspects of chemical-mechanical coupling: Interparticle forces and fabric[C] //Dimaio C. Chemo-mechanical Coupling in Clays: From Nano-scale to Engineering Applications. Maratea, Italia, 2001.
- [70] 钱学森. 论技术科学[J]. 科学通报, 1957, 8(3): 97-104.

APPLICATION OF FRACTAL THEORY TO NATURAL GAS HYDRATE RESEARCHES

LIU Lele^{1,2}, LIU Changling^{1,2}, MENG Qingguo^{1,2}, ZHANG Yongchao^{1,2}

(1 Key Laboratory of Gas Hydrate of Ministry of Natural Resources, Qingdao Institute of Marine Geology, China Geological Survey, Qingdao 266071, China; 2 Laboratory for Marine Mineral Resources, Qingdao National Laboratory for Marine Science and Technology, Qingdao 266071, China)

Abstract: Natural gas hydrate is widely regarded as a potential new energy source and a possible trigger of environmental issues. However, the research community of gas hydrate are still faced with difficulties in quantifying pore-scale structures of the hydrate-bearing sediments. Based on our observation, the difficulties can be well solved by using fractal theory. In this paper, we firstly made an introduction to the basis of the fractal theory, followed by a review of fractal theory applications in the gas hydrate community. Then, a fractal theory for quantifications of the effective pore space in hydrate-bearing sediments is presented, and a summary and some suggestions for gas hydrate related fractal researches in the future are finally provided.

Key words: fractal theory; natural gas hydrate; porous medium; physical property; hydraulic permeability