

Razvoj novog tipa neutronske probe za ispitivanje naftnih bušotina

Development of a new neutron probe for borehole research

Mag. phys. ^aJosip Batur, dr. sc. ^aVladivoj Valkovic, dr. sc. ^aKarlo Nađ, ^aŽeljko Orlić, dr. sc. ^aMilivoj Uroić, mag. geol. ^aAndrija Vinković, dr. sc. ^aZoran Ereš, mag. ing. petrol ^bMarko Gaćina, dr. sc. ^bAdaleta Perković, dr. sc. ^aMilorad Korolija, dr. sc. ^aDubravko Rendić, dr. sc. ^cIlker Meric, dr. sc. ^dH. E. S. Pettersen, dr. sc. ^aJasmina Obhodas

dr. sc. Davorin Sudac
Institut Ruđer Bošković
davorin.sudac@irb.hr



Ključne riječi: C/O logging, alfa detektor, neutroni, AAP

Keywords: C/O logging, alpha detector, neutrons, AAP



Sažetak

Neutronska proba za ispitivanje naftnih bušotina razvijena je na Institutu Ruđer Bošković u okviru HRZZ projekta IP-2018-01-4060 „Nove primjene 14 MeV neutrona“. U ovom istraživanju ispitane su daljnje mogućnosti redukcije šuma u mjerenju C/O omjera metodom pridružene alfa čestice. Mješavina kvarcnog pijeska i grafitnog praha korištena je kao materijal od interesa, dok su plastične bočice ispunjene dizel gorivom korištene kao šum (smetnja) i predstavljaju tekućinu unutar naftne bušotine (npr. nafta). Podjela alfa detektora na četiri jednaka segmenta, omogućila je podjelu volumena oko osi neutronske probe na četiri kvadranta. Materijal od interesa i dizel smješteni su u različite kvadrante i pokazano je da su C/O vrijednosti u slučajevima kad je smetnja prisutna unutar statističke greške u odnosu na slučaj kada smetnje nema.

^a Institut Ruđer Bošković

^b INA-Industrija nafte d.d.

^c Western Norway University of Applied Sciences

^d Haukeland University Hospital



Abstract

The neutron probe for testing oil wells was developed at the Ruđer Bošković Institute within the HRZZ project IP-2018-01-4060 „New applications of 14 MeV neutrons“. In this study, further possibilities of noise reduction in C/O ratio measurement by the associated alpha particle method were investigated. A mixture of quartz sand and graphite powder was used as the material of interest, while plastic bottles filled with diesel fuel were used as noise (interference) and represent the liquid inside the oil well (e.g. oil). Dividing the alpha detector into four equal segments, allowed portioning the volume around the neutron probe axis into four quadrants. The material of interest and diesel were located in different quadrants and it is shown that the C/O values in cases where interference is present are within statistical errors compared to the case where there is no interference.

1. Uvod

Upotreba neutrona u ispitivanju naftnih bušotina je dobro poznata metoda koja se koristi još od 40-tih godina prošlog stoljeća (Valkovic, 2016.; Ellis, 2007.). Neutroni su se prvo upotrebljavali za mjerenje saturacije vodom (water saturation) u bušotinama

obloženim metalnim cijevima, gdje nije bilo moguće upotrebljavati uobičajene električne metode mjerenja. Neutronske probe (NP) u današnjoj izvedbi su obično u obliku šupljeg metalnog cilindra unutar kojeg se nalazi neutronska generator i jedan ili dva neutronska i/ili gama detektora zajedno sa pripadajućom elektronikom i izvorima napajanja. NP se spušta u bušotinu, odgovarajućom brzinom, i tokom spuštanja prikuplja se podaci u ovisnosti o dubini, koji opisuju odziv okolne formacije na brze/termalne neutrone. Do sada je razvijeno nekoliko različitih tehnika upotrebe neutrona u ispitivanju naftnih bušotina. Najčešća je „die-away“ tehnika koja u principu mjeri „vrijeme života“ termalnih neutrona u absorbativnom mediju. „Die-away“ tehnika je pogodna za ispitivanje naftnih polja visokog saliniteta, ali ne i za slatkovodna naftna polja s obzirom da slatka voda i sirova nafta imaju sličnu sposobnost uhvata neutrona. Atom klora ima jaču sposobnost hvatanja termalnog neutrona od atoma ugljika, kisika ili čak vodika, što omogućuje razlikovanje slojeva nafte ili plina od slojeva u kojima su pore ispunjene slatkom vodom. U formacijama koje sadrže slatku vodu ili vodu nepoznate slanosti, koristi se tzv. „C/O logging“, prvenstveno za procjenu zasićenja naftom u bušotinama obloženim metalnim cijevima (Lock, 1973.; Shultz, 1973.; Eyvazzadeh, 2004.). Budući da formacija stijena također može sadržavati ugljik, usporedba relativnih količina kalcija i silicija koristi se za razlikovanje ugljika u fluidu od onog koji je sastavni dio stijena (Lawrence, 1979.).

C/O metoda kao svoj operativni princip koristi aktivaciju brzim neutronima (*engl. fast neutron activation analysis*, FNAA), proizvedenih u pulsevima. Neutroni pogađaju uzorak od interesa, pobuđujući pritom jezgre kemijskih elemenata koji čine uzorak. Jezgre, u procesu de-ekscitacije, emitiraju karakteristične gama-zrake koje su potom detektirane gama detektorom, spojenim sa prikladnom elektronikom. U konačnici, iz energetskeg spektra gama-zraka, možemo pronaći omjer količine kemijskih elemenata koji čine uzorak.

Osnovni nedostatak konvencionalne FNAA metode je značajan utjecaj pozadinskog šuma, koji dolazi od interakcije neutrona sa cijevima koje oblažu bušotinu, kućištem probe te naftom unutar same bušotine. Kao rješenje ovog problema razvijena je tehnika aktivacije brzim neutronima sa pridruženom alfa česticom (*engl. associated alpha particle*, AAP), koja je pokazala mogućnost značajnog smanjenja šuma u C/O ispitivanju (Sudac et al.: „C/O logging...“, 2021.). Konkretno, označavanje neutrona alfa česticom omo-

gućilo je detekciju samo onih formacija koje se nalaze u stošću označenih neutrona. Recentno, neutronska proba sa AAP metodom kao operativnim principom uspješno je testirana na visokim temperaturama (do 175 °C) gdje je ustanovljen obrnuto proporcionalan odnos temperature i amplitude signala (Sudac et al., „Development of...“, 2021.).

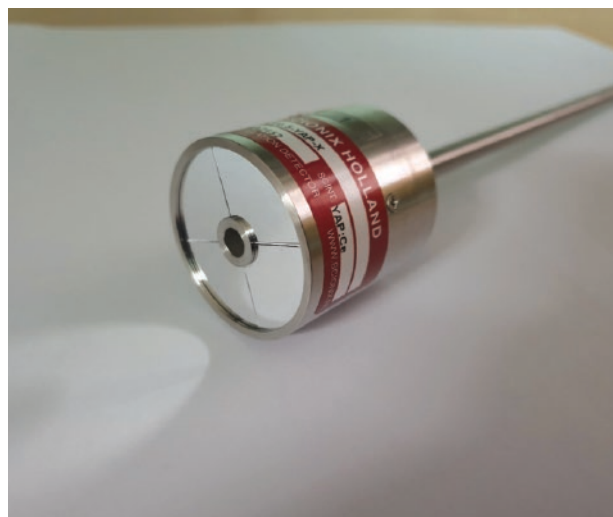
2. Mjerni uređaji i metode

2.1. Neutronska proba

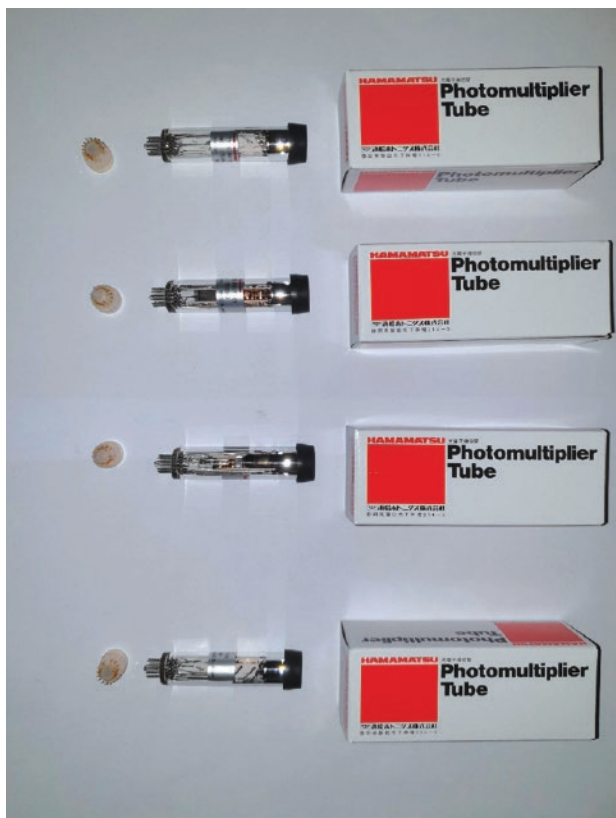
Neutronska proba (NP) za ispitivanje naftnih bušotina sastoji se od metalnih cilindara, promjera manjeg od bušotina, unutar kojih se nalazi izvor neutrona, gama i/ili neutronska detektori te pripadna elektronika i izvor napajanja, čija je radna temperatura obično iznad 100 °C (radna temperatura unutar bušotine). U našem slučaju kao izvor neutrona koristi se 300 keV Texas Nuclear Corporation neutronska generator, a NP je nadovezana na liniju za vođenje deuterijskog snopa.

Glavni dijelovi NP su visokotemperaturni (100-200 °C) alfa detektor, visokotemperaturni (100-200 °C) gama detektor i vanjsko kućište s držačem tricijeve mete i pripadajućim štitovima za alfa i gama detektore.

Slika 1. prikazuje fotografiju alfa detektora. Visokotemperaturni alfa detektor se sastoji od YAP: Ce kristala debljine 0.5 mm i promjera 38 mm, presvučenog 2000 nm svjetlo- nepropusnim aluminijem s jedne strane, i optički podijeljenog u 4 dijela. YAP: Ce segmenti su optički povezani sa svjetlosnim vodičem od kvarcnog stakla. Detektor je montiran u kućište od nehrđajućeg čelika.



Slika 1. Alfa detektor, optički podijeljen u 4 dijela.



Slika 2. Visokotemperaturne fotomultiplikatorske cijevi R4177-01 sa E678 13E adapterima.

Na alfa detektor nadovezani su fotomultiplikatori čija je funkcija da svjetlost proizvedenu u scintilatoru pretvore u električni signal. Slika 2. prikazuje visokotemperaturne fotomultiplikatorske cijevi Hamamatsu R4177-01 zajedno sa pripadajućim E678 13E adapterima. Radna temperatura alfa detektora zajedno s fotomultiplikatorima je specificirana do 175 °C.

Visokotemperaturni gama detektor (Slika 3.) je konstruirala i izradila tvrtka Saint-Gobain prema zadanim specifikacijama. Kao scintilacijski materijal



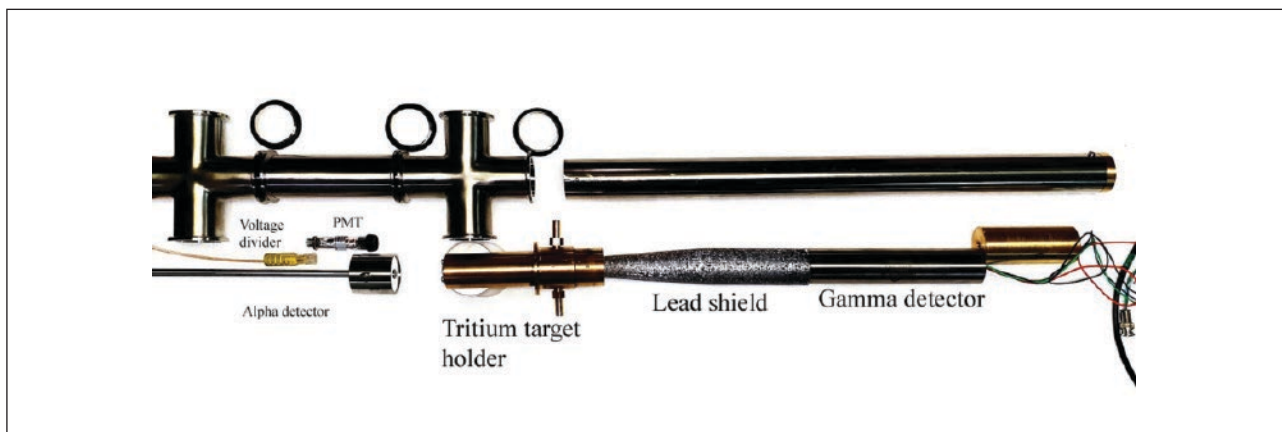
Slika 3. Gama detektor

izabran je 1.181"x3" LaBr₃:Ce kristal koji ima najbolja temperaturna svojstva i zadovoljavajuću efikasnost te *peak-to-total* vrijednost. Koristi se visokotemperaturni fotomultiplikator tvrtke Hamamatsu R6877A-07 promjera 28 mm s odgovarajućim djelatjeljem napona. Radna temperatura je do 175 °C.

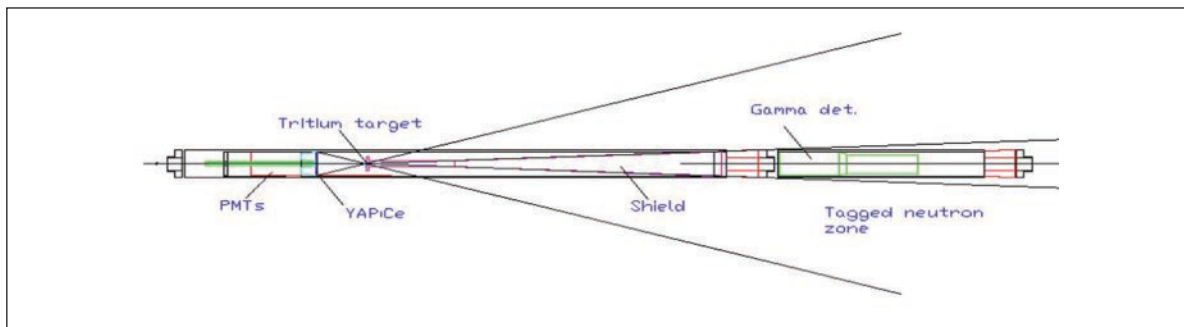
Vanjsko kućište NP sastoji se od metalnih cijevi promjera 43 mm, T-komada s prirubnicama u koje su ugrađeni lemo-konektori te brtvenih prstenova s visokotemperaturnom brtvom. Tricijeva meta nalazi se unutar nosača u koji su ugrađene kanalice za vodeno hlađenje mete. Aktivni dio tricijeve mete ima promjer od 6 mm i sastoji se od titana (0.95 mg/cm²) naparenog na bakrenoj pozadini (7 mm u promjeru i 0.3 mm debljine). Aktivnost mete iznosi 29.6 GBq/cm² (0.8 Ci/cm²). Olovni štiti stožastog oblika služi za zaštitu detektora od neutrona i promptnog gama zračenja. Slika 4. prikazuje kompletan postav neutronske probe.

2.2. Metoda pridružene alfa čestice

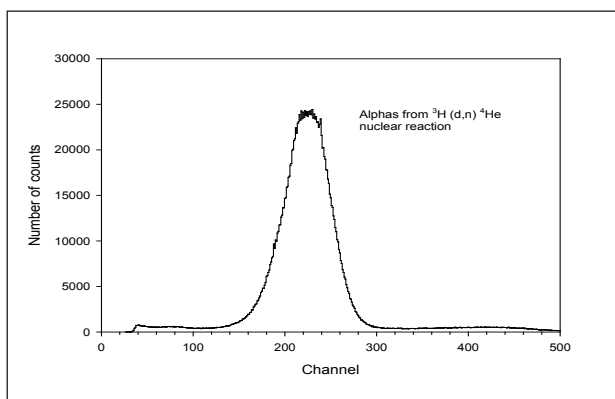
Metoda pridružene alfa čestice (AAP) se temelji na elektronički kolimiranom neutronsom snopu (Slika 5.) dobivenom mjerenjem vremena proleta neutrona (*engl. time-of-flight, (ToF)* (Viest et al., 2005; Sudac



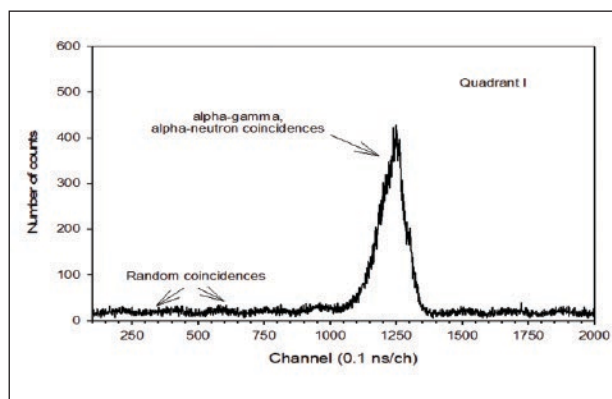
Slika 4. Dijelovi neutronske probe: vanjsko kućište, djelatelj napona (voltage divider), fotomultiplikator (PMT), alfa detektor (alpha detector), nosač tricijeve mete (tritium target holder), olovni štiti (lead shield), gama detektor (gamma detector).



Slika 5. Neutronska sonda s ugrađenim alfa detektorima. Prikazani su stošci alfa čestica i označenih neutrona (tagged neutron zone), na suprotnoj strani tricijske mete (tritium target).



Slika 6. Tipičan spektar alfa čestica iz jednog segmenta alfa detektora. Broj događaja (number of counts) po kanalu (channel).



Slika 7. Tipičan vremenski (ToF) spektar alfa-gama i alfa-neutrona koinkidencija zajedno sa slučajnim koinkidencijama (random coincidences).

et al., 2005.). Vrijeme proleta neutrona mjeri se pomoću alfa čestica koje nastaju zajedno s neutronima u nuklearnoj reakciji ${}^3\text{H} (d,n) {}^4\text{He}$. U koinkidenciji se mjere alfa čestice i karakteristične gama zrake nastale inelastičnim raspršenjem brzih 14 MeV neutrona na jezgrama atoma koji čine formaciju. Puls iz gama detektora služi kao startni signal, dok se kao zaustavni signal koristi puls iz alfa detektora.

Slika 6. prikazuje tipičan spektar alfa čestica mjenen pomoću jednog segmenta alfa detektora. Dominantni vrh pripada alfa česticama energije 3 MeV. Vremenski spektar (ToF) prikazan je na slici 7. Spektrom dominira vrh na ravnoj pozadini slučajnih koinkidencija. Vrh uglavnom odgovara karakterističnim gama zrakama koje dolaze iz ozračenog objekta.

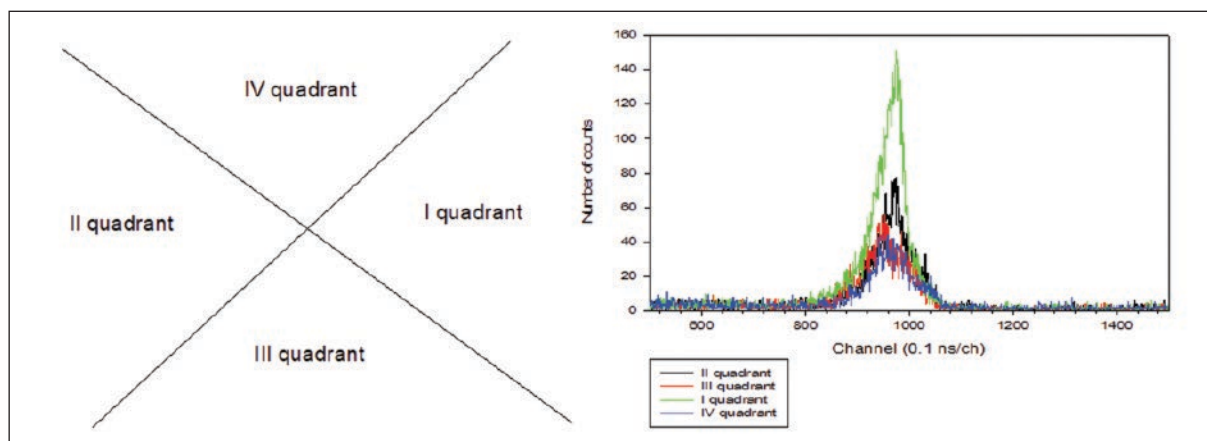
Primjenom AAP metode ograničava se volumen formacije od kuda dolaze karakteristične gama zrake. Promatrani volumen je određen širinom vremenskog prozora i prostornim kutem alfa detektora. Na taj način izbjegavaju se područja koja nisu od interesa, a inače prave smetnju (fluid u bušotini, cementna i metalna obloga). Tako je, npr, u radu (Sudac et al.: „C/O logging...“, 2021.) materijal od interesa (kvarcni

pijesak SiO_2 pomiješan s grafitnim prahom) stavljen unutar stošca označenih neutrona dok je smetnja (bočice dizel goriva) bila smještena izvan stošca te je utvrđena znatna redukcija šuma prilikom određivanja C/O omjera u odnosu na vrijednost dobivenu konvencionalnom FNAA tehnikom.

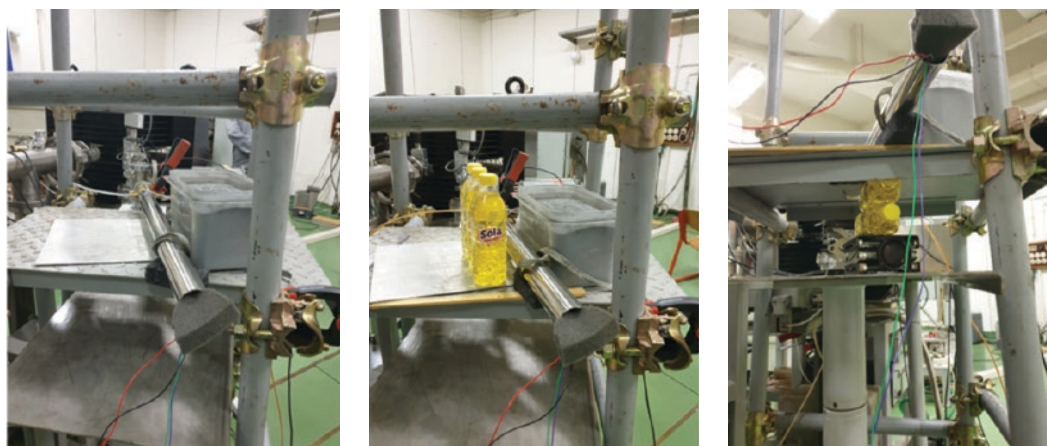
3. Mjerenja i rezultati

S obzirom da je alfa detektor u obliku kružnog diska podjeljena u 4 segmenta, moguće je promatrati sastav formacije po kvadrantima oko osi NP tako da se razdvoje signali iz različitih segmenata. Na primjer, ukoliko se formacija od interesa nalazi u I kvadrantu, koinkidencije signala iz segmenta alfa detektora u I kvadrantu sa signalima iz gama detektora bit će izraženije. Ta karakteristika nudi nam mogućnost redukcije šuma u mjerenju C/O omjera čak i slučaju kad se i formacija koju proučavamo i smetnja nalaze unutar stošca označenih neutrona.

Kao materijal od interesa (meta) u eksperimentu korištena je mješavina kvarcnog pijeska SiO_2 sa grafitnim prahom, čiji je maseni udio u mješavini 10 %.



Slika 8. Lijevo: Shema podjele prostora oko osi neutronske probe po kvadrantima (quadrants). Desno: Vremenski spektri po kvadrantima za metu postavljenu u I kvadrantu.



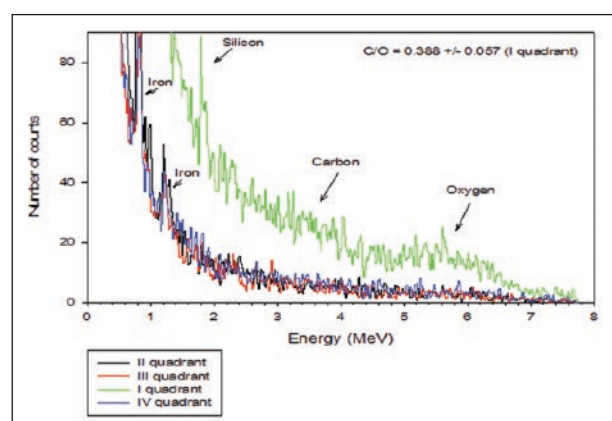
Slika 9. Meta od kvarcnog pijeska i grafitnog praha smještena je u I kvadrantu, dok je dizel odsutan (lijevo), u II kvadrantu (sredina) i u III kvadrantu (desno).

Stvarni C/O omjer ovakve mješavine je 0.28 (Sudac et al.: „C/O logging...“, 2021.). Smetnju predstavljaju tri 0.5 l plastične bočice ispunjene dizel gorivom.

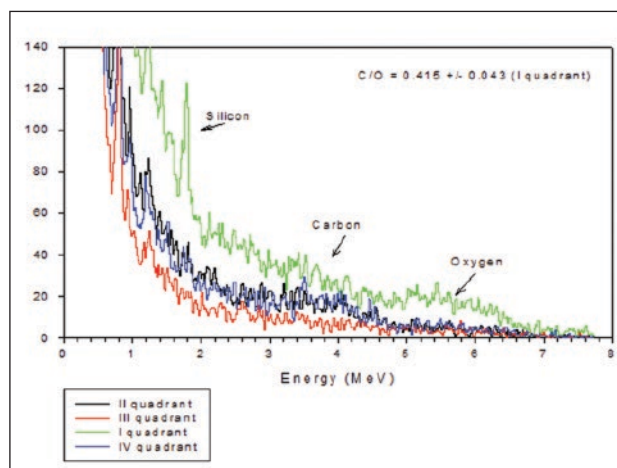
Izvršena su tri mjerenja (Slika 9.) i u sva tri meta je smještena u prvom kvadrantu, dok je dizel u prvom slučaju odsutan, u drugom slučaju u II kvadrantu, a u trećem slučaju u III kvadrantu. U svakom mjerenju dobijen je energetski spektar gama zraka, razložen po kvadrantima. C/O omjer u sva tri slučaja dobijen je iz spektra prvog kvadranta, prebrojavanjem broja događaja u vrhovima ugljika i kisika. U prvom slučaju (Slika 9.) vidimo istaknuti signal iz prvog kvadranta, koji dolazi od mete. Budući da nije prisutna smetnja u vidu dizel goriva, signali iz preostalih kvadranta dolaze od pozadine i znatno su reducirani.

U drugom slučaju (Slika 10.), bočica je smještena u II kvadrant, no budući da zbog svoje visine značajno prelazi u IV kvadrant, u gama spektru vidimo vrhove ugljika u II i u IV kvadrantu. U trećem slučaju (Slika 11.) primjetan je vrh ugljika u III kvadrantu, shodno poziciji na koju su smještene bočice dizela. C/O vri-

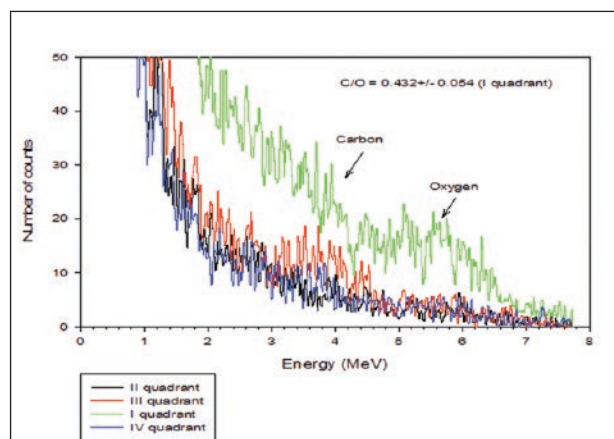
jednost u drugom slučaju iznosi 0.415 ± 0.043 , dok je u trećem slučaju 0.432 ± 0.054 . U odnosu na prvi slučaj ($C/O = 0.388 \pm 0.057$), vidljivo je izvesno povećanje C/O omjera kada je fluid prisutan, ali u okviru pogreške mjerenja.



Slika 10. Energetski spektar gama zraka za prvi slučaj (bez dizela). Uz vrhove silicija (silicon), ugljika (carbon) i kisika (oxygen), primjetni su i vrhovi željeza, koji dolaze od kućišta neutronske probe.



Slika 11. Energetski spektar gama zraka za drugi slučaj (bočice dizela u II kvadrantu).



Slika 12. Energetski spektar gama zraka za treći slučaj (dizel u III kvadrantu).

4. Zaključak

Neutronska proba bazirana na operativnom principu pridružene alfa čestice pokazuje značajne mogućnosti smanjenja šuma prilikom mjerenja C/O omjera, čak i kad su i materijal od interesa i smetnja smješteni unutar stošca neutrona označenih alfa česticom. Izmjerena C/O vrijednost u slučaju kad je šum prisutan nalazi se unutar statističke greške C/O vrijednosti u slučaju kad šuma nema. Dioba alfa detektora u četiri jednaka segmenta omogućuje razlikovanje signala koji dolaze iz različitih područja (kvadranta) oko osi neutronske

probe pa samim time pruža potencijalne mogućnosti ispitivanja različitih dijelova formacija unutar naftne bušotine. Daljnji rad bit će fokusiran na prilagodbu neutronske probe i neutronske generatora, kako bi isti bili prikladni za ispitivanje unutar samih naftnih bušotina.

5. Zahvale

Ovaj je rad financirala Hrvatska zaklada za znanost projektom IP-2018-01-4060 „Nove primjene 14 MeV neutrona“, te projektima razvoja karijere mladih istraživača (DOK-2020-01, ESF-DOK-1-2018).

Reference

- ELLIS, D. V. & SINGER, J. M.: Well Logging for Earth Scientists. Springer (2007), ISBN 978-1-4020-4602-5 (e-book)
- VALKOVIC, V.: 14 MeV Neutrons, Physics and Applications. CRC Press Taylor & Francis Group (2016), ISBN-13:978-1-4822-38006-6
- LOCK G. A & HOYER W. A: Carbon-Oxygen (C/O) Log: Use and Interpretation. SPE 4639, SPE-AIME 48th Annual Fall Meeting, Las Vegas, Nev., 1973
- SHULTZ W. E & H. D. Smith: Laboratory and Field Evaluation of Carbon/Oxygen (C/O)
- Well Logging System. SPE 4638, SPE-AIME 48th Annual Fall Meeting, Las Vegas, Nev., 1973
- EYVAZZADEH R. Y. & al.: Modern Carbon/Oxygen Logging Methodologies: Comparing Hydrocarbon Saturation Determination Techniques. SPE 90339, SPE Annual Technical Conference and Exhibition, Houston, Texas, 26-29 Sep. 2004
- LAWRENCE T. D.: Continuous Carbon/Oxygen Log Interpretation Techniques. SPE 8366, 54th Annual Technical Conference and Exhibition, Las Vegas, Nevada, Sept. 23-26, 1979.
- SUDAC D. & al.: C/O Logging by Using the Associated Alpha Particle Method: Proof of Principle. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, doi: 10.1109/TNS.2021.3127578
- SUDAC D., & al. Development of a neutron probe for carbon-to-oxygen (c/o) oil logging equipped with a high-temperature alpha particle detector. *Fuel* 2021;:122843doi: <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2021.122843>
- SUDAC D. & al. Inspections for contraband in a shipping container using fast neutrons and the associated alpha particle technique: Proof of principle. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, Volume 241, Issues 1–4, December 2005, Pages 798-803
- VIEST G. & al. Detection of hidden explosives by using tagged neutron beams: Status and perspectives. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, Volume 241, Issues 1–4, December 2005, Pages 748-752