

КОАЛЕСЦЕНЦИЯ КАПЕЛЬ НЕФТИ НА СКЕЛЕТЕ ПОРИСТОЙ СРЕДЫ ПРИ ФИЛЬТРОВАНИИ ВОДОНЕФТЯНОЙ СМЕСИ

В. И. Пеньковский

Институт гидродинамики им. М. А. Лаврентьева СО РАН, 630090 Новосибирск

Предложены две математические модели фильтрационной коалесценции капель нефти при движении водонефтяной смеси сквозь пористый материал. В первой модели процесс коалесценции интерпретируется как процесс сорбции, накопления нефтяной фазы на поверхности пор до определенной критической величины, с превышением которой происходит срыв более крупных капель, вовлекаемых фильтрационным потоком. Во второй модели предполагается, что движение сорбированной нефти и всей смеси подчиняется обобщенным законам Дарси.

Введение. Аварии на нефтепроводах часто приводят к нефтяному загрязнению водосборных бассейнов рек. В период паводков из загрязненных территорий в реки и их притоки попадают водонефтяные смеси (эмульсии), содержащие капли нефти различной крупности и гидрофобизованные нефтяной пленкой твердые частицы. В отличие от крупных капель, мелкие капли нефти, а также окруженные нефтяной пленкой твердые частицы могут длительное время находиться в погруженном (взвешенном) состоянии, что снижает эффективность существующих методов сбора нефти с поверхности водотоков. Задача укрупнения капель путем их слияния (коалесценции) и, следовательно, увеличения вероятности всплывания на поверхность может быть частично решена профильтровыванием смеси сквозь толщу гидрофобизованной пористой среды в виде хорошо проницаемых гравийных насыпок (дамб).

Ниже рассматриваются две математические модели фильтрационной коалесценции. Представляется, что эти модели и полученные на их основе результаты могут оказаться полезными при решении проблем в иных технологических процессах.

Основные уравнения. Обозначим через ρ , ρ_1 , ρ_e плотности нефти, воды и эмульсии (смеси вода — нефть) соответственно. Пусть C — массовая концентрация нефти в смеси. Поскольку в единице объема смеси его часть C/ρ занята нефтью, а часть $1 - C/\rho$ — водой, то для плотности смеси ρ_e получим

$$\rho_e = \rho_1(1 - \varepsilon C/\rho) \quad (\varepsilon = (\rho_1 - \rho)/\rho_1).$$

В свободном потоке малоконцентрированной смеси нефтяные частицы плавают обособленно, их столкновение и слияние друг с другом маловероятны (порядка $(C/\rho)^2$). Вероятность коалесценции значительно возрастает при фильтровании смеси сквозь гидрофобизованную пористую среду. В этом случае частицы нефти соприкасаются как со свободными гидрофобизованными участками внутренней поверхности пор, адсорбируясь на них, так и с осевшими частицами, увеличивая размеры последних вплоть до возможного образования связанных пленок. Скорость адсорбции j_1 частиц нефти пропорциональна вероятности их столкновения со свободными местами, которая в свою очередь пропорциональна произведению концентрации частиц в смеси и концентрации свободных мест на поверхности

пор. Если предположить, что свободное место, ранее занятое некоторой частицей, остается свободным для присоединения других частиц и, следовательно, концентрация мест остается постоянной, то получим $j_1 = k_1 C$, где k_1 — экспериментально определяемый коэффициент.

С течением времени насыщенность s пористого материала нефтью будет возрастать. При превышении некоторого значения $s = s_*$, характерного для данного материала, ранее неподвижно связанные с ним частицы нефти начнут перемещаться. При этом в зависимости от размеров зерен, геометрии порового пространства и других физико-химических свойств среды возможны два варианта перемещения: 1) образование на скелете среды гидродинамически связанных пленок нефти и их фильтрация под действием некоторого градиента давления, 2) срыв (десорбция) укрупненных частиц с поверхности зерен и возвращение их в общий поток смеси. Первый вариант перемещения реализуется при фильтрации смеси сквозь относительно мелкозернистые пористые среды типа песка, второй — при движении сквозь гравийно-щебеночные насыпки. В общем случае оба варианта перемещений не являются взаимоисключающими, однако они описываются несколько различными по форме уравнениями.

Совместная фильтрация смеси и пленочной нефти. Пусть h, h_1 — давления (в метрах столба воды) в пленках и водонефтяной смеси соответственно. Они отличаются друг от друга на величину капиллярного скачка $h_c(s)$ согласно соотношению

$$h = h_1 + h_c(s). \quad (1)$$

Давление h_r в плавающей капле нефти с радиусом r определяется по формуле Лапласа $h_r = h_1 + 2\sigma/r$, где σ — поверхностное натяжение на границе вода — нефть. Для гидрофобизованных пористых сред с $h_c \leq 0$ будет $h_r > h$, что способствует слиянию капли при соприкосновении ее с нефтяной пленкой на поверхности зерен среды.

В соответствии с теорией двухфазной фильтрации [1] скорости смеси v_1 и движения нефтяной связанной фазы v определяются согласно обобщенным законам Дарси

$$v_1 = -K_1 f_1(s, s^*) \frac{\partial h_1}{\partial x}, \quad v = -K f(s, s_*) \frac{\partial h}{\partial x}, \quad (2)$$

где K_1, K — коэффициенты фильтрации среды при полном насыщении пор смесью или нефтью соответственно; f_1, f — относительные фазовые проницаемости, удовлетворяющие условиям $f(s, s_*) \equiv 0$ при $s \leq s_*$, $f_1(0, s^*) = 1$; $f_1(s, s^*) \equiv 0$ при $s \geq s^*$, $f(1, s_*) = 1$.

Перенос частиц нефти в пористой среде общим потоком смеси сопровождается явлением фильтрационной дисперсии. Поэтому массовый поток j частиц в смеси в соответствии с законом Фика запишем в виде

$$j = -D \frac{\partial C}{\partial x} + v_1 C, \quad (3)$$

где $D = v_1 d/2$ — коэффициент дисперсии для зернистых сред [2], d — характерный размер зерен.

К определяющему уравнению (1) и законам движения (2), (3) необходимо добавить три закона сохранения: нефтяной и водной фаз в смеси соответственно

$$m \frac{\partial}{\partial t} [(1-s)C] + \frac{\partial j}{\partial x} = -k_1 C; \quad (4)$$

$$m \frac{\partial}{\partial t} [(1-s)\rho_1(1-C/\rho)] + \frac{\partial}{\partial x} [\rho_1(1-C/\rho)v_1] = 0, \quad (5)$$

а также нефтяной фазы в связанных пленках на поверхности зерен

$$m\rho \frac{\partial s}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (\rho v) = k_1 C. \quad (6)$$

Уравнения (1)–(6) представляют замкнутую нелинейную систему для искомых функций C, s, h_1, h, v_1, v, j . Она достаточно сложна, и получить для нее представления решений в явном виде не удастся. В общем случае ее приходится решать численно с учетом соответствующих начальных и краевых условий. Однако при дополнительных очевидных по физическому смыслу упрощающих предположениях явные решения можно построить. Рассмотрим два примера.

ПРИМЕР 1. Пусть сквозь образец высокопроницаемой среды профильтровывается водонефтяная смесь с заданной на входе $x = 0$ скоростью $v_1 = v_0$ и концентрацией $C = C_0$. Для высокопроницаемых сред, как известно [3], характерны малые скачки капиллярного давления на границе фаз вода — нефть, поэтому в уравнении (1) можно положить $h_c(s) = 0$, т. е. $h = h_1$. Предположим, что процесс установившийся и длина образца l такова, что число Пекле $Pe = v_1 l / D = 2l/d$ достаточно велико. В этом случае можно пренебречь дисперсионным разбросом частиц в смеси и задача сводится к интегрированию несложной системы обыкновенных дифференциальных уравнений

$$\frac{d}{dx}(v_1 C) = -k_1 C, \quad \frac{dv}{dx} = k_1 \frac{C}{\rho}, \quad \frac{d}{dx} \left[\left(1 - \frac{C}{\rho}\right) v_1 \right] = 0 \quad (7)$$

с краевыми условиями

$$v_1(0) = v_0, \quad C(0) = C_0, \quad v(0) = 0 \quad (8)$$

и конечным соотношением вида

$$v = \alpha v_1 f(s, s_*) / f_1(s, s^*) \quad (\alpha = K/K_1). \quad (9)$$

Последнее из условий (8) выражает отсутствие (неразрывность) потока связанных пленок во входном сечении образца.

Интегрированием системы (7) с учетом условий (8) найдем

$$v = \frac{v_0(u_0 - u)}{1 - u}, \quad v_1 = \frac{v_0(1 - u_0)}{1 - u}, \quad \frac{k_1}{a} x = \ln \frac{u_0(1 - u)}{u(1 - u_0)} + \frac{u_0 - u}{(1 - u_0)(1 - u)}$$

$$(a = (1 - u_0)v_0, \quad u = C/\rho, \quad u_0 = C_0/\rho, \quad 0 < u \leq u_0),$$

а распределение насыщенности порового пространства образца нефтью, осевшей на поверхности частиц, можно вычислить по формуле (9), в которую необходимо подставить найденные выражения для v и v_1 .

ПРИМЕР 2. Как показывают оценки, для малоконцентрированных смесей с концентрацией C_0 порядка 10^{-4} г/см³ (100 мг/л) в исходной системе уравнений (1)–(6) величиной C/ρ в сравнении с единицей можно пренебречь. Учитывая это, рассмотрим ту же задачу, что и в примере 1, сохранив, однако, в уравнении (3) дисперсионный член. В этом случае в дополнение к соотношению (9) получим $v_1 = v_0 = \text{const}$, и задача сводится к интегрированию системы уравнений

$$D \frac{d^2 C}{dx^2} - v_0 \frac{dC}{dx} - k_1 C = 0, \quad \frac{dv}{dx} = k_1 C / \rho \quad (10)$$

с краевыми условиями

$$x = 0: \quad v = 0, \quad -D \frac{dC}{dx} + v_0 C = v_0 C_0; \quad x = l: \quad \frac{dC}{dx} = 0. \quad (11)$$

Условия на функцию $C(x)$ выражают непрерывность потока капельной нефти на торцах образца.

Комбинация уравнений системы (10) с учетом краевых условий (11) приводит к первому интегралу вида

$$\rho v = D \frac{dC}{dx} + v_0(C_0 - C).$$

Подставляя сюда значение $D = v_0 d/2$ и вводя обозначение

$$\xi(x) = \frac{d}{2\rho\alpha} \frac{dC}{dx} + \frac{C_0 - C}{\rho\alpha}, \quad (12)$$

распределение насыщенности s порового пространства пленочной нефтью найдем как неявную функцию из соотношения (9): $f(s, s_*)/f_1(s, s^*) = \xi(x)$. В частности, если экспериментально определяемые относительные фазовые проницаемости аппроксимировать функциями вида

$$f(s, s_*) = ((s - s_*)/(1 - s_*))^n, \quad f_1(s, s^*) = ((s^* - s)/s^*)^n \quad (n \approx 3,5, \quad s^* \approx 1 - s_*),$$

то $s(x) = (s_* + \xi^{1/n}(x)s^*)/(1 + \xi^{1/n}(x))$.

Решением первого уравнения системы (10), удовлетворяющим краевым условиям (11), будет функция $C(x) = A_1 \exp(\alpha_1 x) + A_2 \exp(\alpha_2 x)$, где $\alpha_{1,2} = (1 \pm \sqrt{1 + 2k_1 d/v_0})/d$ — корни соответствующего характеристического уравнения (индекс 1 соответствует знаку +). Поскольку $d/l \ll 1$, то с хорошим приближением можно положить $\alpha_1 \approx 2/d$, $\alpha_2 \approx -k_1/v_0$. В этом случае $A_2 = C_0/(1 + \delta_1)$, $A_1 = C_0 \delta_1 \exp(-Pe + \delta)/(1 + \delta_1)$ ($\delta = v_k/v_0$, $\delta_1 = \delta/Pe$, $v_k = lk_1$ — интегральная скорость адсорбции) и функция $C(x)$ принимает вид

$$C/C_0 = (\exp(-\delta x_1) + \delta_1 \exp[-(\delta + Pe(1 - x_1))])/(1 + \delta_1),$$

где $x_1 = x/l$. Подставляя это в выражение (12), получим

$$\xi(x) = C_0[1 - \exp(-\delta x/l)]/(\rho\alpha),$$

откуда видно, что процесс фильтрационной дисперсии существенно не влияет ни на скорость движения пленочной нефти, ни на распределение последней по длине образца.

Модель сорбции — десорбции. Капельное перемещение нефти, связанное с десорбцией крупных частиц, сопровождается генерацией новой водонефтяной смеси, в которой радиусы укрупненных капель $r \geq r_*$. Характерный минимальный радиус r_* зависит от формы и размеров зерен пористой среды и, быть может, других физико-химических факторов.

Пусть C_1 и C_2 — концентрации мелких ($r < r_*$) и крупных ($r \geq r_*$) частиц нефти в смеси. Общая концентрация нефти равна сумме $C = C_1 + C_2$. Основным источником поступления укрупненных частиц в общий поток смеси является их десорбция с поверхности зерен, когда насыщенность s нефтью порового пространства среды превышает некоторое предельное значение s_* . Предположим, что скорость десорбции j_2 пропорциональна этому превышению, т. е.

$$j_2 = k_2(s - s_*)\eta(s - s_*),$$

где k_2 — коэффициент скорости десорбции, $\eta(x)$ — единичная функция Хевисайда. Тогда процесс осаждения — отрыва будет описываться уравнением кинетики

$$m\rho \frac{\partial s}{\partial t} = k_1 C - k_2(s - s_*)\eta(s - s_*), \quad (13)$$

что является аналогом уравнения (6). Соответственно закон сохранения общей массы капельной нефти в смеси примет вид

$$m \frac{\partial}{\partial t} [(1 - s)C] = \frac{\partial}{\partial x} \left(D \frac{\partial C}{\partial x} - v_1 C \right) - k_1 C + k_2(s - s_*)\eta(s - s_*). \quad (14)$$

К уравнениям (13) и (14) следует добавить аналог уравнения (4), записанного для функции C_1 , и уравнение (5). Для задач с заданным расходом смеси (скорости v_0 на входе) эти четыре уравнения составляют замкнутую систему для определения четырех неизвестных функций C_1 , C , s , v_1 .

Применительно к малоконцентрированным смесям ($C/\rho \ll 1$) система несколько упрощается. В этом случае из уравнений (5) и (13) можно заключить, что $v_1 \approx v_0$, и, пренебрегая незначительным уменьшением порового пространства среды из-за наличия сорбированной нефти (s мало в сравнении с единицей), получим систему трех квазилинейных уравнений:

$$\begin{aligned} m \frac{\partial C_1}{\partial t} &= D \frac{\partial^2 C_1}{\partial x^2} - v_0 \frac{\partial C_1}{\partial x} - k_1 C_1, \\ m \frac{\partial C}{\partial t} &= D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v_0 \frac{\partial C}{\partial x} - k_1 C + k_3(N - N_*)\eta(N - N_*), \\ \frac{\partial N}{\partial t} &= k_1 C - k_3(N - N_*)\eta(N - N_*). \end{aligned} \quad (15)$$

Здесь обозначено $N = m\rho s$, $N_* = m\rho s_*$, $k_3 = k_2/(m\rho)$. Краевые и начальные условия для системы (15) могут быть записаны в виде

$$\begin{aligned} x = 0: \quad C_1 &= C_1^0, \quad C = C_0, \quad x = l: \quad \frac{\partial C_1}{\partial x} = 0, \quad \frac{\partial C}{\partial x} = 0, \\ t = 0: \quad C_1 &= \varphi_1(x), \quad C = \varphi(x), \quad N = N_0(x). \end{aligned} \quad (16)$$

Заметим, что задача (15)–(16) частично расщепляется, поскольку первое уравнение может быть решено независимо от остальных двух. Кроме того, при нулевых начальных данных $N = \varphi = \varphi_1 = 0$ и всех $t < t_* = N_*/(k_1 C_0)$ функция $\eta(N - N_*)$ обращается в нуль, и второе уравнение системы (16) по виду совпадает с первым, а их решения — функции $C_1(x, t)$ и $C(x, t) = C_1 + C_2$ — будут на этом отрезке времени отличаться друг от друга только множителем, поскольку краевые условия для них идентичны. Найдем это решение методом преобразования Лапласа. Для сокращения записи заменим t/m на t и рассмотрим задачу

$$\begin{aligned} C_t &= DC_{xx} - v_0 C_x - k_1 C, \quad N_t = k_1 C, \\ x = 0: \quad C &= C_0, \quad x = l: \quad C_x = 0, \quad t = 0: \quad C = 0, \quad N = 0. \end{aligned}$$

Изображение по Лапласу $\bar{C}(x, p) = \int_0^\infty e^{-p\tau} C(x, \tau) d\tau$ искомой функции $C(x, t)$ находится интегрированием соответствующего обыкновенного дифференциального уравнения с учетом преобразованных краевых условий и имеет вид

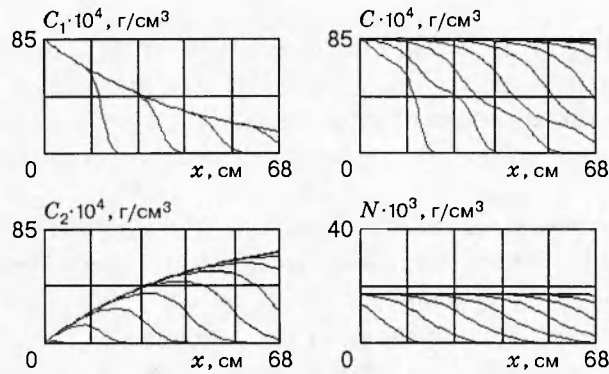
$$C(x, p) = C_0 \exp(v_0 x / (2D)) (\operatorname{ch} \alpha x - \operatorname{sh} \alpha x (v_0 / (2D) \operatorname{ch} \alpha l + \alpha \operatorname{sh} \alpha l) / (v_0 / (2D) \operatorname{sh} \alpha l + \alpha \operatorname{ch} \alpha l)) / p,$$

где $\alpha = \alpha(p) = \sqrt{v_0^2 + 4D(k_1 + p)} / (2D)$.

Изображение имеет счетное множество простых полюсов в точке $p = 0$ и точках $p = p_n = -D\mu_n^2/l^2 - v_0^2/(4D) - k_1$. Здесь μ_n — корни уравнения $\operatorname{tg} \mu_n = -2\mu_n/\operatorname{Pe}$ ($\operatorname{Pe} = v_0 l/D$). Возвращаясь к оригиналу путем подсчета вычетов в указанных особых точках, получим

$$\begin{aligned} C(x, t) &= C_\infty - \frac{2C_0 D}{l^2} \exp\left[-\frac{k_1 t}{m} + \frac{\operatorname{Pe}}{2l}(x - x_*(t))\right] \times \\ &\quad \times \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\exp(-D\mu_n^2 t / (ml^2))}{k_1 + v_0^2 / (4D) + D\mu_n^2 / l^2} \frac{\mu_n (\operatorname{Pe} + 4\mu_n^2) / \operatorname{Pe}}{\operatorname{Pe} + 2 + 4\mu_n^2 / \operatorname{Pe}} \sin \mu_n \frac{x}{l}, \end{aligned} \quad (17)$$

$$C_\infty = C_0 \exp\left(\frac{v_0 x}{2D}\right) \left(\operatorname{ch} \alpha_0 x - \frac{v_0 / (2D) \operatorname{ch} \alpha_0 l + \operatorname{sh} \alpha_0 l}{v_0 / (2D) \operatorname{sh} \alpha_0 l + \alpha_0 \operatorname{ch} \alpha_0 l} \operatorname{sh} \alpha_0 x\right), \quad \alpha_0 = \alpha(0), \quad x_* = vt/m.$$



Функция $N(x, t)$ для $t < t_*$ вычисляется простой квадратурой $N(x, t) = k_1 \int_0^t C(x, \tau) d\tau$.

Аналогичным образом можно получить аналитическое представление решения системы (15), если в начальный момент времени $t = 0$ $N(0, x) \geq N_*$. В этом случае $\eta(N - N_*) = 1$ и система (15) становится линейной. Не останавливаясь на относительно громоздких выкладках, приведем окончательный вид решения

$$\frac{C(x, t)}{C_0} = 1 - \frac{l^2}{D} \exp\left(\frac{v_0 x}{D}\right) \sum_{n=1}^{\infty} \left(\frac{(k_3 - p_n^+)^2 \exp(-p_n^+ t)}{p_n^+ (k_1 k_3 + m(k_3 - p_n^+)^2)} + \frac{(k_3 - p_n^-)^2 \exp(-p_n^- t)}{p_n^- (k_1 k_3 + (k_3 - p_n^-)^2)} \right) \frac{Pe^2 + 4\mu_n^2}{Pe(Pe + 2)4\mu_n^2} \mu_n \sin \mu_n \frac{x}{l},$$

$$N(x, t) = N_* + k_1 \int_0^t C(x, \tau) \exp(-k_3(t - \tau)) d\tau.$$

Здесь обозначено $p_n^{\pm} = (b_n \pm \sqrt{b_n^2 - 4c_n})/2$, $b_n = k_1 + k_3 + Dm_n^2/l^2$, $c_n = m_n^2 k_3 D/l^2$, $m_n^2 = \mu_n^2 + l^2 v_0^2/(4D)$. При этом функция $C_1(x, t)$ вычисляется по формуле (17), в которой C_0 следует заменить на C_1^0 . В общем случае задача (15)–(16) решается численно.

Отметим важный для практики и лабораторного определения параметров задачи случай установившегося режима. Полагая в уравнениях (15) $\partial N/\partial t = \partial C/\partial t = \partial C_1/\partial t \equiv 0$, $D = v_0 d/2$, с учетом краевых условий (16) при $x = 0$ и $x = l$ получим простое решение

$$C_1(x) = C_1^0 \exp(x/d) \left(\operatorname{ch} \mu x/l - \frac{l/d \operatorname{ch} \mu_0 + \operatorname{sh} \mu_0}{l/d \operatorname{sh} \mu_0 + \mu_0 \operatorname{ch} \mu_0} \operatorname{sh} \mu_0 x/l \right),$$

$$C = C_1 + C_2 \equiv C_0, \quad N = N_* + C_0 k_1/k_3 \quad (\mu_0 = l\alpha_0).$$

Поскольку число Пекле $Pe = 2l/d$, как правило, велико в сравнении с единицей, то, сохраняя в разложении функции $C_1(x)$ по малому параметру Pe^{-1} величины первого порядка малости, для концентрации $C_1(l)$ мелких частиц на выходе при $x = l$ получим

$$C_1(l) = C_1^0 (1 + \delta Pe^{-1}) \exp(-\delta),$$

где $\delta = k_1 l/v_0$ — отношение интегральной скорости сорбции к скорости фильтрации. Из этой полезной для обработки экспериментальных данных формулы видно, что эффективность работы фильтрующего слоя в основном зависит от величины безразмерного параметра задачи δ .

На рисунке представлены результаты численных расчетов задачи (16), (17) для исходных данных лабораторного эксперимента: $m = 0,45$, $v = 19$ см/ч, $C_0 = 85 \cdot 10^{-4}$ г/см³,

$C_1^0 = C_0$, $l = 68$ см, $\varphi(x) = \varphi_1(x) = N_0(x) = 0$, $d = 0,2$ см, $k_1 = 0,45$ ч⁻¹, $N_* = 10^{-3}$ г/см³, $k_3 = 5$ ч⁻¹. Кривые соответствуют последовательным моментам времени с интервалом 0,4 ч. Видно, что в принятых условиях процесс сорбции — десорбции выходит практически на стационарный режим через четыре часа непрерывного фильтрования водонефтяной смеси.

Предварительные результаты экспериментов, проведенных нами на фильтрующем элементе в виде наполненной стеклянной крошкой (коэффициент фильтрации $K_1 = 7,8$ м/ч) трубки с поперечным сечением $2 \cdot 10^{-4}$ м², длиной $l = 0,68$ м, качественно согласуются с полученными теоретическими результатами.

Для решения вопроса о границах применимости каждой из двух предложенных математических моделей процесса фильтрационной коалесценции необходимы дополнительные эксперименты на образцах пористых сред с различной степенью крупности частиц.

ЛИТЕРАТУРА

1. Развитие исследований по теории фильтрации в СССР (1917–1967). М.: Наука, 1969.
2. Левич В. Г., Маркин В. С., Чизмаджиев Ю. А. Исследование продольного гидродинамического перемешивания в пористых средах с застойными зонами с помощью гармонического анализа // Докл. АН СССР. 1966. Т. 168, № 6. С. 1902–1904.
3. Коллинз Р. Течение жидкости через пористые материалы. М.: Мир, 1964.

Поступила в редакцию 7/IV 1997 г.
