

Плавник Ринат Александрович

**Лабораторное исследование условий появления вторичных волн
при фильтрации с выделением газовой фазы раствора кислоты
через химически-активный скелет**

Специальность: 1.1.9. Механика жидкости, газа и плазмы

АВТОРЕФЕРАТ

**диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук**

Работа прошла апробацию в федеральном государственном автономном образовательном учреждении высшего образования «Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет)»

Научный руководитель: **Завьялов Иван Николаевич – кандидат физико-математических наук, доцент**

Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физики Земли им. О.Ю. Шмидта Российской академии наук (ИФЗ РАН)

Защита состоится **29 декабря 2025 года в 12 часов 00 минут** на заседании диссертационного совета **ФАКТ.1.1.9.004**, созданного на базе федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет)» (МФТИ, Физтех)

по адресу: 141701, Московская область, г. Долгопрудный, Институтский переулок, д. 9.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке МФТИ, Физтех и на сайте организации <https://mipt.ru>

Автореферат разослан «__» _____ 2025 г.

**Ученый секретарь
диссертационного совета**

Быков Александр Андреевич

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования и степень ее разработанности

Уже не первый десяток лет ведутся обсуждения того, что истощается «лёгкая нефть», где под этим термином понимаются традиционные запасы нефти – ловушки жидких углеводородов, из которых добыча может быть осуществлена с помощью хорошо отработанных, известных технологий, а для последующей транспортировки и реализации углеводородов не нужна существенная обработка. На смену им приходят нетрадиционные запасы, разработка которых с применением имеющихся методик нерентабельна или вовсе невозможна. В связи с этим возникает сильная необходимость в развитии и внедрении новых технологий интенсификации добычи углеводородов.

По всему миру применяется широкий спектр технологий, который позволяет повысить нефтеотдачу пласта. Среди них наиболее распространёнными являются тепловые методы, методы гидроразрыва пласта, методы, связанные с закачкой в пласт химических реагентов и биологических массивов, и ряд других подходов. Эти технологии, несмотря на различия в механизмах действия, направлены на увеличение проницаемости пористой среды, снижение вязкости нефти.

Хотя многие из перечисленных методов уже давно внедрены в промышленную практику и активно используются для добычи нефти, полное понимание сложных физических процессов, сопровождающих их реализацию, остаётся не до конца ясным. Развитие этих технологий по-прежнему сталкивается с рядом научных и технических вызовов, связанных с многофазными и многокомпонентными потоками в пористой среде, химическими взаимодействиями между закачиваемыми реагентами и компонентами скелета и нефтяной фазы. В частности, актуально развитие технологии кислотной обработки пласта, основная цель которой заключается в создании высокопроницаемых каналов, которые очищают призабойную зону пласта и облегчают движение углеводородов к добывающим скважинам. Однако, помимо положительных эффектов, этот процесс сопровождается рядом сложных физических явлений, таких как образование и развитие локальных неустойчивостей. Одним из вопросов является поиск условий устойчивости распространяющегося фронта, что определяет актуальность изучения процессов фильтрации, в которых возможно возникновение режимов течения, сопровождающегося, к примеру, колебаниями.

Были проведены лабораторный эксперимент и численные расчёты, в которых моделировалось, как сквозь пористую среду, насыщенную высоковязким флюидом и содержащую химически активный компонент, фильтровался раствор кислоты, который реагировал с компонентом среды. В ходе фильтрации наблюдался автоколебательный процесс – газ, появляющийся как продукт химической реакции, выделялся с характерным периодом, в виде волн. Обнаруженное явление было названо «кислотными волнами». Особый интерес представляло исследование условий, при которых проявлялся данный режим течения.

Цель и задачи работы

Целью работы было изучить с экспериментальной и теоретической сторон условия возникновения автоколебательного процесса, происходящего при выделении газовой фазы в ходе химической реакции, возникающей между фильтрующимся раствором кислоты и компонентом пористой среды, насыщенной высоковязким флюидом.

Основные задачи исследования включают:

- Поставить серию экспериментов, для подтверждения возникновения автоколебательного процесса;
- Экспериментально исследовать наличие задержки реакции, возникающей в ходе фильтрации;
- Провести лабораторные опыты для определения условий возникновения автоколебаний при варьировании концентраций раствора кислоты и химически активного компонента в пористой среде;
- Построить математическую модель для подтверждения результатов, полученных в ходе проведения экспериментов;
- Провести численное моделирование поставленной задачи;
- Проанализировать результаты моделирования и сравнить с результатами, полученными в ходе экспериментальной работы.

Научная новизна

- В данной работе впервые обнаружен автоколебательный процесс, возникающий при выделении газовой фазы в ходе химической реакции, возникающей между фильтрующимся раствором кислоты и компонентом пористой среды, насыщенной высоковязким флюидом. По имеющимся данным ранее в научной литературе подобное явление не было описано.
- Собрана новая лабораторная установка и с помощью неё проведены лабораторные опыты для исследования обнаруженного явления: экспериментально определены условия возникновения автоколебательного процесса.
- Разработана новая математическая модель описанного явления. Проведён анализ полученных результатов в сравнении с экспериментальными.

Практическая и теоретическая значимость результатов

Практическая ценность результатов диссертации заключается в том, что построенные численные модели можно в дальнейшем применять для моделирования процессов многофазной фильтрации, сопровождающейся выделением газовой фазы, в частности для моделирования процесса кислотной обработки нефтяного пласта. Полученные результаты помогут глубже понять явления, происходящие при обработке горных пород растворами кислот, что в перспективе приведёт к увеличению нефтеотдачи – это обуславливает практическую значимость работы.

Теоретическая значимость работы заключается в том, что проведённое исследование вносит вклад в развитие теории многофазной фильтрации в химически активных пористых средах, расширяя представления о механизмах возникновения автоколебательных режимов. Впервые построена математическая модель, описывающая динамику таких процессов с учётом временной задержки химической реакции и фазовых переходов, что усиливает фундаментальную базу физико-химической гидромеханики.

Достоверность полученных результатов обеспечивается согласованностью полученных экспериментальных результатов с результатами математического моделирования, воспроизводимостью поставленных экспериментов, а также согласованностью со схожими результатами, полученными ранее.

Методология и методы исследования

Проведение экспериментов на построенной лабораторной установке. Построение математических моделей и численных моделей. Проведение численных расчётов с использованием вычислительных машин и ПО «Matlab».

Личный вклад автора заключается в непосредственном участии на всех этапах работы, в том числе в постановке и выполнении экспериментов; обработке и интерпретации результатов; построении математической модели и проведении численных расчётов; подготовке публикаций и представлении докладов на научных конференциях.

Апробация результатов

Основные положения и результаты диссертационной работы докладывались на международных и межрегиональных научно-практических и научно-технических конференциях:

- Плавник Р. А., Завьялов И. Н., Пляшков Е. В. Лабораторное исследование колебаний давления при фильтрации с выделением газовой фазы //Нелинейные задачи теории гидродинамической устойчивости и турбулентность. – 2018. – С. 223-223.
- Плавник Р. А., Пляшков Е. В. Лабораторное исследование причин возникновения колебаний давления при фильтрации с выделением газовой фазы //Тезисы докладов 73-й Международной молодежной научной конференции «Нефть и газ – 2019» (22-25 апреля 2019 г., Москва). – Т.2. – М.: Издательский центр РГУ нефти и газа (НИУ) имени И.М. Губкина, 2019. – С. 19.
- Ivan Zavialov, Rinat Plavnik, Egor Plyashkov Experimental modelling of the oscillating multiphase flow in porous medium with chemically active skeleton//Interpore-11th Annual Meeting. – 2019. – Valencia. – P. 496 6-10 May 2019 (8 May 2019 – Poster Session)
- Плавник Р. А., Завьялов И. Н. Исследование устойчивости фронта окисления в зависимости от перепада давления при фильтрации с выделением газовой фазы //Триггерные эффекты в геосистемах: Тезисы докладов V-й Международной конференции (г. Москва, 4-7 июня 2019 г.). – 2019. – С. 160-161.
- Плавник Р.А., Завьялов И.Н., Пляшков Е.В. Экспериментальный анализ устойчивости течения при фильтрации с выделением газовой фазы водного раствора кислоты сквозь химически-активный скелет // Тезисы докладов, представленных на XXIV Международную конференцию «Нелинейные задачи теории гидродинамической устойчивости и турбулентность» / отв. ред. Н.В. Никитин, Н.В. Попеленская. — Москва: Издательство Московского университета, 2020. — 131, [1] с. ISBN 978-5-19-011563-5
- Plavnik R. et al. On stability boundary of the flow of an acid solution through a chemically active porous medium //Journal of Physics: Conference Series. – IOP Publishing, 2021. – Т. 2090. – №. 1. – С. 012029. (10th Int'l Conference on Mathematical Modeling in the Physical Sciences, 6-9 сентября 2021)
- Плавник Р.А., Завьялов И.Н. Лабораторное и численное исследование условий появления кислотных волн при фильтрации с выделением газовой фазы раствора кислоты через химически активный скелет (67-я Всероссийская научная конференция МФТИ, 4 апреля 2025)

Полученные результаты были опубликованы в научных журналах и представлены в работах, из которых четыре работы [1-4] опубликованы в журналах, включенных в Перечень журналов МФТИ, и которым присвоена итоговая категория K1:

- [1] Zavialov I. N. et al. Laboratory study of oscillatory multiphase flow in porous medium with chemically active skeleton //Physica Scripta. – 2019. – Т. 94. – №. 4. – С. 044005.
- [2] Завьялов И. Н., Плавник Р. А., Пляшков Е. В. Экспериментальное моделирование осциллирующего режима трёхфазной фильтрации // ТРУДЫ МФТИ. – 2018. – Т. 10. – № 3. – С. 76-85
- [3] Плавник Р. А., Завьялов И. Н., Пляшков Е. В. Влияние концентраций реагирующих веществ на устойчивость режима течения при фильтрации сквозь химически-активный скелет с выделением газовой фазы // ТРУДЫ МФТИ. – 2019. – Т. 11. - № 4. – С. 102-108
- [4] Плавник Р.А., Завьялов И.Н., Конюхов А.В., Ветошкин Д.С. Определение кривой перехода между режимами течения при фильтрации раствора кислоты сквозь химически активную пористую среду // Вестник Санкт-Петербургского университета. Математика. Механика. Астрономия. 2021. Т. 8 (66). Вып. 2. С. 349–358.
- [5] Plavnik R. et al. On stability boundary of the flow of an acid solution through a chemically active porous medium //Journal of Physics: Conference Series. – IOP Publishing, 2021. – Т. 2090. – №. 1. – С. 012029.

Положения, выносимые на защиту

Экспериментально и с помощью численных расчетов показано, что:

- для возникновения колебательного процесса при фильтрации раствора кислоты через химически активный скелет, насыщенный высоковязким флюидом, с выделением газовой фазы необходимо наличие временной задержки химической реакции порядка 1 секунды для условий эксперимента.
- для возникновения колебательного процесса при фильтрации раствора кислоты через химически активный скелет, насыщенный высоковязким флюидом, с выделением газовой фазы концентрации реагирующих веществ должны быть не ниже определённого значения (3 % для окислителя и 1 % для восстановителя).
- для возникновения колебательного процесса необходимо, чтобы массовые концентрации кислоты (окислителя) в жидкой фазе и химически активного компонента (восстановителя) в скелете пористой среды превышали определённые пороговые значения, причём общая кривая зависимости была получена экспериментально и близка к гиперболе первого порядка.

Соответствие диссертации паспорту научной специальности

В соответствии с формулой специальности 1.1.9 «Механика жидкости, газа и плазмы», охватывающей теоретическое и экспериментальное исследования течений многофазных сред, фильтрацию жидкостей и газов в пористых средах в диссертационной работе:

- поставлены эксперименты по изучению фильтрации раствора кислоты сквозь пористую среду, содержащую химически активный компонент и насыщенную вязким флюидом;
- разработана математическая модель, описывающая явления, обнаруженные в проведённом эксперименте;

- реализована численная схема, полученной системы уравнений из математической модели.

Работа соответствует пунктам специальности:

- п. 7 – Течения многофазных сред (газожидкостные потоки, пузырьковые среды, газовзвеси, аэрозоли, суспензии и эмульсии).
- п. 8 – Течение жидкостей и газов в пористых средах.
- п. 9 – Физико-химическая гидромеханика (течения с химическими реакциями, горением, детонацией, фазовыми переходами, при наличии излучения и др.).
- п. 18 – Экспериментальные методы исследования динамических процессов в жидкостях и газах.

Структура и объём работы

Работа состоит из введения, обзора литературы, экспериментальной части исследования, теоретической части, заключения, списка сокращений и условных обозначений, списка литературы. Объём диссертации составляет 113 страниц, работа содержит 31 рисунок, список литературы содержит 73 наименования.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** обосновываются актуальность проведённой работы, научная и практическая значимость; формулируется цель исследования и ставятся задачи. Также представлены положения, выносимые на защиту.

Далее приводится **обзор литературы** по теме исследования. Вначале представлены работы, обосновывающие актуальность и необходимость разработки нетрадиционных запасов углеводородов. Одними из методов увеличения нефтеотдачи из сложных коллекторов является кислотная обработка призабойной зоны пласта и тепловые методы (внутрипластовое горение, закачка прогретого газа) – в обзоре представлены работы, демонстрирующие эффективность этих методов и важность их развития. Данные методы интенсификации добычи исследуются не только экспериментально, но и теоретически: строятся различные математические модели, описывающие процессы, происходящие при проведенных данных операций. В обзоре отмечены работы по данному направлению. Отдельного внимания удостоены процессы фильтрации флюидов сквозь пористые среды, а также различные неустойчивости, возникающие при этом. Стоит также учесть, что в случае наличия химического взаимодействия между фильтрующимся раствором и компонентами скелета, картина процесса усложняется и моделирование подобных процессов требует отдельного детального изучения. В обзоре представлены работы, направленные на экспериментальное и теоретическое исследование подобных явлений.

Далее раскрыты детали **экспериментальной части** работы: описаны конструкция лабораторной установки (**глава 3.1**) и методика проведения экспериментов (**глава 3.2**). Далее в **главе 3.3** представлены результаты проведённой работы, в **главе 3.4** – их анализ. Отдельно были проведены эксперименты, в которых варьировались массовые концентрации реагирующих компонентов – результаты этой работы описаны в **главе 3.5**. Дополнительно изучалась динамика химической реакции, возникающей при течении раствора кислоты сквозь пористую среду, содержащую реагент-восстановитель. Для исследования была сконструирована отдельная лабораторная установка и поставлена серия экспериментов.

Описание данных процессов, а также их результаты приведены в **главе 3.6**. Заключение по итогам проведённой экспериментальной работы представлено в **главе 3.7**.

Для проведения лабораторных опытов была собрана установка, схема которой представлена на рисунке 1. Основная её часть – это две прозрачные пластины, которые образуют вертикальную ячейку. Между пластинами имеется небольшой зазор, который перед началом эксперимента будет заполнен пористой средой. Наружные габариты ячейки составляют $350 \times 200 \times 45$ мм, тогда как внутреннее пространство, непосредственно служащее областью фильтрации, имеет размеры $350 \times 160 \times 15$ мм. Закачка флюидов осуществляется сверху через трубку, также вверху имеется отвод для избытков флюидов. В остальном верхняя часть ячейки загерметизирована. Снизу установка закрыта сеткой, не позволяющей высыпаться пористой среде, но позволяющая флюидом вытекать после фильтрации через скелет. Вдоль оси симметрии ячейки расположены выводы к датчикам давления.

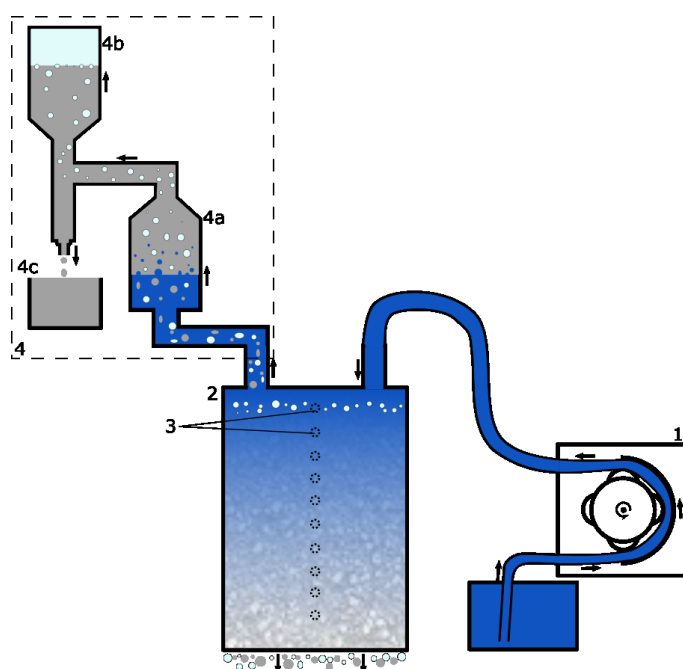


Рисунок 1 – Графическая схема лабораторной установки, где цветами обозначены различные флюиды: светло-голубой – газовая фаза, серый цвет – минеральное масло, синий цвет – раствор кислоты. Элементы установки: 1 - насос; 2 – ячейка; 3 – серия выходов к датчикам давления; 4 – набор сосудов для сбора излишков флюидов: 4a – сосуд, собирающий избыток раствора кислоты, 4b – сосуд, в котором собирается газовая фаза, 4c – ёмкость, в котором скапливаются излишки масла.

Модель скелета, содержащего химически активный компонент, представляет собой смешанные в определённом соотношении технический стеклосер и пищевую соду NaHCO_3 . Минеральное масло применяется как высоковязкая фракция, насыщающая скелет. В качестве фильтрующегося флюида используется раствор лимонной кислоты $\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7$. Для удобства наблюдения за фильтрацией раствор подкрашен чернилами, химически не реагирующими с другими веществами, участвующими в процессе. Флюиды в ячейку закачиваются с помощью перистальтического насоса.

При проведении первой серии опытов обнаружилось, что в начале эксперимента в верхней части ячейки, свободной от пористой среды, скапливается газ, получающийся в ходе химической реакции. По мере накопления газа давление в верхней области ячейки неконтролируемо увеличивается, что приводит к изменению общего распределения давления во всей ячейке и усложняет интерпретацию экспериментальных данных. Чтобы снизить

влияние этого эффекта была собрана система, схема которой представлена в левом верхнем углу рисунка 1. Через верхнее отверстие ячейки излишки смеси из раствора лимонной кислоты, минерального масла и образующейся газовой фазы попадают в первую ёмкость (4а на рисунке). Раствор осаждается в ней, а масло и газ поднимаются далее. Через тонкие медицинские иглы масло стекает в атмосферу и собирается в третьей ёмкости (4с), а газ скапливается в верхнем сосуде (4b). Такой многоступенчатый отвод позволяет эффективно нивелировать рост давления, вызванный газообразованием в верхней части ячейки, и обеспечивает возможность поддержания заданных параметров закачки, что повышает воспроизводимость экспериментальных результатов.

Для сравнения влияния системы регуляции были проведены два типа опытов. В одном случае система была отключена (течение масла через иглы было полностью перекрыто), и верх ячейки фактически оказывался «закупоренным». Во втором случае система работала, позволяя маслу выходить через иглы. На рисунке 2 представлены данные эксперимента без использования системы, а на рисунке 3 – с её применением. Из графиков очевидно, что в отсутствие оттока излишков флюидов распределение давления имеет сложную картину. Напротив, при включённой системе наблюдаются более ровные кривые изменений давления, хотя колебания, связанные с волнами, имеются как на первом, так и на втором графиках.

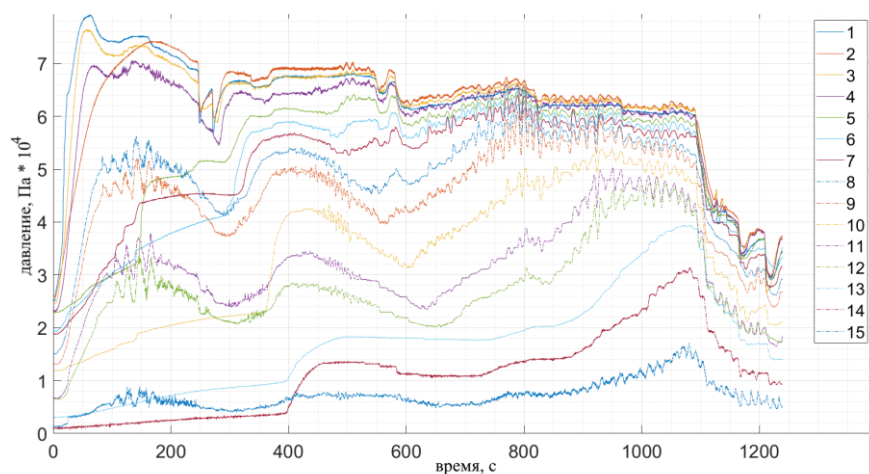


Рисунок 2 – Результаты измерений датчиков давления. Отсчёт времени стартует, когда в ячейку начинает поступать раствор кислоты. График под номером 1 соответствует датчику, расположенному в верхней части ячейки, далее нумерация датчиков идёт по порядку сверху вниз вдоль ячейки

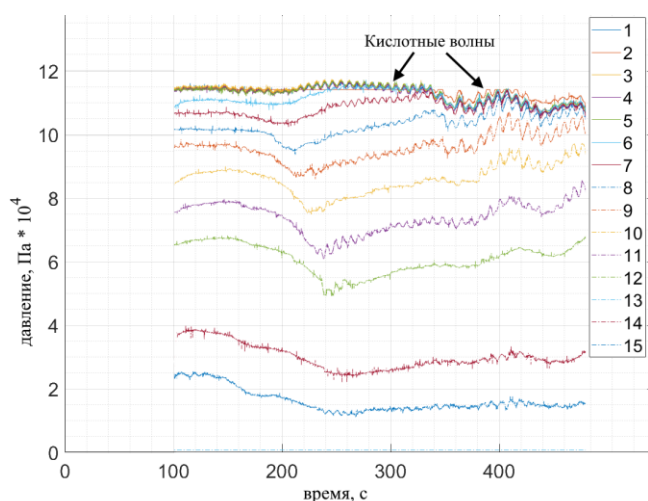


Рисунок 3 – Результаты измерений датчиков давления после подключения системы регуляции давления

Сам эксперимент по исследованию фильтрации раствора окислителя сквозь скелет, содержащий химически активный компонент, проходил следующим образом. В ячейку засыпалась смесь стеклосера и соды. После формирования скелета через него прокачивалось минеральное масло, которое должно было полностью вытеснить воздух в среде и насытить всю смесь для моделирования содержания высоковязкой фракции. После этого подача масла прекращалась, и в ячейку закачивался раствор кислоты. В процессе фильтрации записывались показания с датчиков давления, по которым впоследствии строились профили давления по высоте ячейки в различные моменты времени. Также эксперимент снимался на видеокамеру. На рисунке 4 представлены последовательные кадры, демонстрирующие «кислотные волны», формирующиеся в системе (обозначены красными стрелками на рисунке). В ходе эксперимента наблюдалось, как при взаимодействии раствора кислоты с химически активным компонентом скелета появлялась весьма чёткая контрастная граница, возникающая в области, где идёт химическая реакция – она продвигается сверху вниз по направлению потока. Так как раствор кислоты подкрашен чернилами, то области чёрного и серого цветов – области, где проходит фильтрация раствора кислоты через пористую среду.

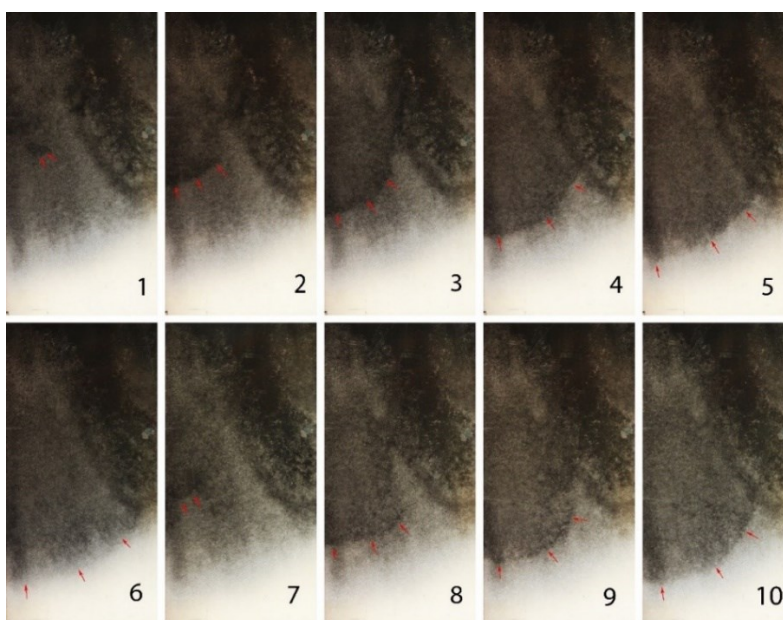


Рисунок 4 – Кадры эксперимента (идут друг за другом с разницей в 1 секунду)

Волны появлялись с одинаковой частотой, скорость продвижения данного фронта существенно превышала скорость фильтрации раствора кислоты, что может указывать на локальное накопление газовой фазы и скачкообразное перераспределение давления. Таким образом, уже на качественном уровне становится ясно, что в системе формируется особый колебательный режим, связанный с химической реакцией и многофазной фильтрацией.

На рисунке 3 показаны зависимости давления от времени, отражающие наличие ярко выраженного периодического процесса, который происходил ровно в те моменты времени, когда визуально наблюдалось продвижении фронта волны в эксперименте.

Был проведён спектральный анализ колебаний давления за весь период эксперимента, результаты которого представлены на рисунке 5. На спектре чётко выделяется пик с периодом

порядка десяти секунд. Данное значение совпадает с периодичностью визуально наблюдаемых «кислотных волн». Стоит отметить, что перистальтический насос, подающий флюиды в ячейку, в процессе эксперимента работал на значительно более высокой частоте (около 0.25 Гц), значит формирующиеся «кислотные волны» не являются прямым следствием механических пульсаций, создаваемых насосом. Это указывает на то, что возникновение колебаний связано именно с самоподдерживающимся (автоколебательным) режимом внутри пористой среды, и не является причиной воздействия каких-либо внешних факторов.

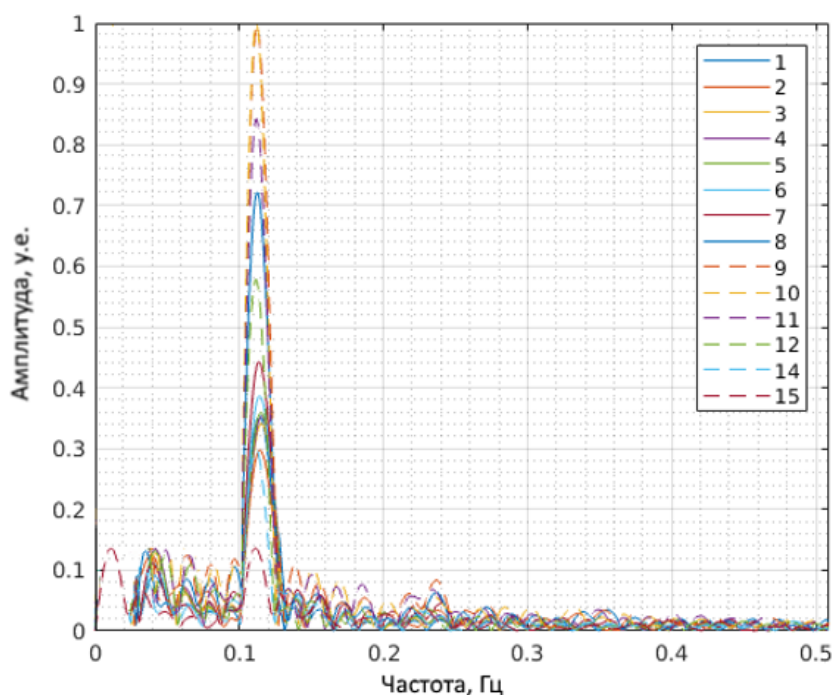


Рисунок 5 – Спектр колебаний давления в эксперименте

Дополнительно в серии экспериментов варьировались массовые концентрации химически активного компонента пористой среды и кислоты в растворе. Рисунок 6 отражает результаты проведённых опытов. Для интерпретации экспериментальных данных на ту же диаграмму нанесена пунктирная кривая, разделяющая эти два режима течения. Она характеризуется убывающим трендом с выпуклостью вниз и может быть описана зависимостью вида: ct^{-n} , где c – массовая концентрация кислоты, t – массовая концентрация восстановителя в пористой среде, n – показатель степени (эмпирический коэффициент).

Из результатов, полученных в эксперименте следует, что существует некая пороговая совокупность концентраций, при превышении которых система переходит в волновой режим. Попробуем объяснить наблюдаемое поведение системы. Локальный рост давления, вызванный обильным выделением газа при взаимодействии кислоты и восстановителя, является основной причиной возникновения «кислотных волн». Подъёмы давления не достигают критического уровня, способного существенно нарушить фильтрацию в случаях, когда суммарный выход газа столь мал, а концентрация одного из реагентов недостаточна. В результате, течение раствора кислоты и химическая реакция проходят относительно стационарно. Именно поэтому на рисунке наблюдается отчётливое разделение областей, где волновой процесс присутствует, и где он отсутствует. Убывающий характер кривой при этом

отражает взаимозаменяемость (в определённых пределах) концентраций кислоты и восстановителя.

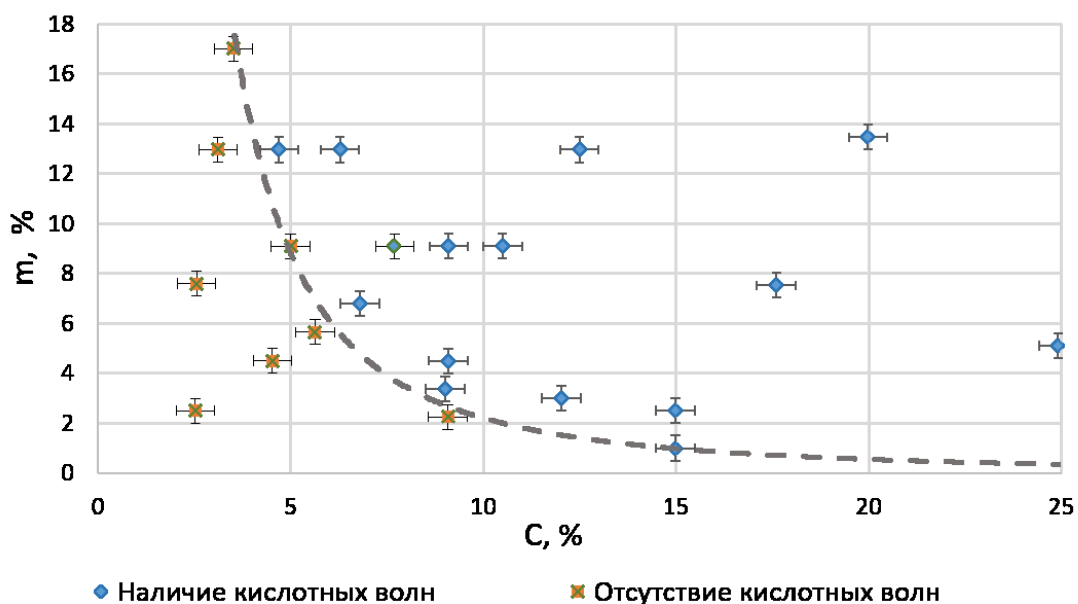


Рисунок 6 – Зависимости режимов течения от массовых концентраций реагирующих компонент в координатах: массовая доля восстановителя в пористой среде и массовая концентрация раствора кислоты.

Ещё один параметр, влияющий на режим течения в наблюдаемом явлении – это задержка реакции – временной промежуток, проходящий с начала контакта химических реагентов до момента, когда скорость химического взаимодействия не достигнет своего пика. С помощью простой математической модели, описывающей исследуемое явление, было показано, что задержка реакции играет важную роль в появлении «кислотных волн» и в случае нулевого значения времени задержки волновой процесс не возникает. Для определения наличия задержки реакции в натурном эксперименте была проведена серия дополнительных опытов, цель которых заключалась в оценке скорости химической реакции и определения временного промежутка между моментом контакта реагентов и достижением пика газовыделения. В процессе эксперимента регистрировалось суммарное количество выделившегося в ходе химической реакции газа, которое непосредственно связано со скоростью реакции. Для формального удобства и количественных сопоставлений рассчитывалась «средняя скорость» газообразования за короткие интервалы времени. На рисунке 7 приведены соответствующие данные для серии опытов. Анализ кривой скорости показал, что газовыделение быстро нарастает, достигая характерного пика, а затем постепенно спадает. Данные результаты подтверждают предположение о том, что в эксперименте существовала временная задержка, препятствующая мгновенному скачкообразному росту скорости реакции с нуля.

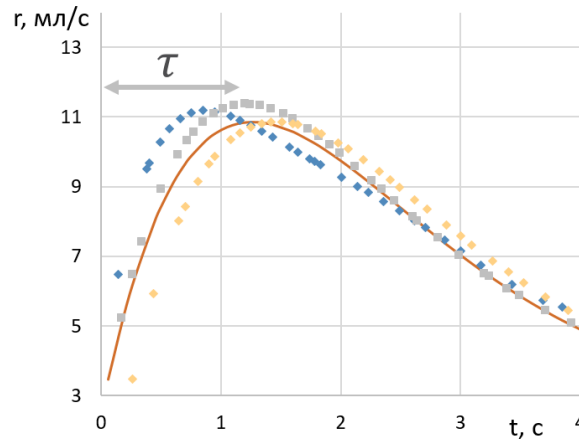


Рисунок 7 – Зависимость скорости увеличения объёма газа от времени. На рисунке отмечено время достижения пика скорости – τ

Далее приводятся детали **теоретической части** работы. В **главе 4.1** представлена простая математическая модель исследуемого явления, позволившая подтвердить форму кривой устойчивости течения, которая была получена в экспериментах из главы 3.5 (рисунок 6). В **главе 4.2** описана основная математическая модель, снимающая некоторые допущения, которые учитывались ранее. Также было проведено численное моделирование поставленной задачи, результаты которого представлены в **главе 4.3**. Результаты исследования кривой устойчивости течения в зависимости от массовых концентраций реагирующих компонентов, полученные на основе численного моделирования, описаны в **главе 4.4**. Дополнительно в процессе реализации поисковых научно-исследовательских работ для выполнения гранта от нефтяной компании была поставлена дополнительно расширенная математическая задача с условиями, приближенными к реальным. В рамках решения этой задачи было также проведено численное моделирование исследуемого автоколебательного процесса. Результаты этой работы описаны в **главе 4.5**. Заключение по итогам проведённой работы представлено в **главе 4.6**.

Во всех случаях рассматривалась одномерная модель течения, схема которого представлена на рисунке 8. Раствор окислителя с концентрацией c поступает через левую границу в ограниченное поровое пространство, массовая доля восстановителя в котором m . Также для всех моделей учитываются следующие допущения: пренебрежение гравитационными силами (градиенты давления, вызывающие фильтрацию, сильно больше градиентов, связанных с гравитацией); скелет недеформируем; компоненты пористой среды неподвижны и не мигрируют в ходе фильтрации раствора кислоты; пористость и проницаемость считаем константными.

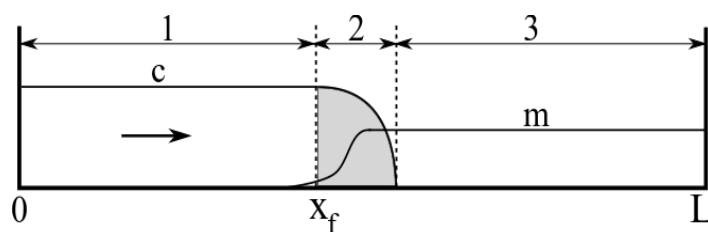


Рисунок 8 – Схема процесса фильтрации раствора кислоты сквозь скелет, содержащий химически активный компонент.

Химическая реакция в текущий момент времени идёт в области пространства $x = x_f$. m – концентрация восстановителя в пористой среде. c – концентрация раствора кислоты. 1 – зона, где реакция уже прошла, 2 – область, где идёт химическая реакция, 3 – зона, до которой раствор кислоты ещё не дошёл. Вначале была разработана модель, качественно подтверждающая форму кривой устойчивости, изображенной на рисунке 6. В рамках модели рассматривается трёхфазное течение, а именно масляной (высоковязкой), водной и газовой фаз, причём для упрощения все фазы считаются несжимаемыми. Используя закон сохранения массы, закон Дарси и определение скорости реакции как изменения концентрации веществ в единицу времени, получим дифференциальное уравнение для изменения концентрации кислоты в растворе:

$$\frac{dn_A}{dt} = \alpha(x) - \beta(x) n_A(t - \tau),$$

где $\alpha(x) = W(x)c_0$ и $\beta(x) = \frac{m^n}{\tau} \left(\xi_A + \left(N(x) + \frac{\zeta_B}{m} \varphi_1 \right) c_0 \right)$,

$$W(x) = \frac{\frac{k_1 p_1 - p_2}{\mu_A} x_f \left(S^2 \frac{k}{\mu_G} + (1-S)^2 \frac{k}{\mu_L} \right) \frac{x_f}{L-x_f}}{\left(S^2 \frac{k}{\mu_G} + (1-S)^2 \frac{k}{\mu_L} \right) \frac{x_f}{L-x_f} + 1}, \quad \widetilde{\mu}_G = \frac{\mu_G}{\mu_A}, \quad \widetilde{\mu}_L = \frac{\mu_L}{\mu_A}, \quad k = \frac{k_1}{k_2}, \quad \zeta_B = \frac{\rho_A}{\rho_B} \xi_B,$$

$$N(x) = \frac{-\frac{\rho_A}{\rho_A} \xi_A - \frac{\rho_A}{\rho_B} \xi_B + \frac{\rho_A}{\rho_C} \xi_C + \frac{\rho_A}{\rho_G} \xi_G}{\left(S^2 \frac{k}{\mu_G} + (1-S)^2 \frac{k}{\mu_L} \right) \frac{x_f}{L-x_f} + 1},$$

где φ_1 – пористость среды при $x < x_f$, k_1 и k_2 – абсолютные проницаемости среды перед и после зоны реакции; $\rho_A, \rho_B, \rho_C, \rho_G$ – соответственно молярные плотности компонентов A, B, C и G реакции; $\xi_A, \xi_B, \xi_C, \xi_G$ – молярные плотности компонентов; μ_A, μ_G, μ_L – вязкости раствора окислителя, газовой фазы и водной фазы; p_1 и p_2 – давление на входе и выходе ячейки; S – насыщенность газовой фазы; τ – задержка реакции.

Исследуем дифференциально-разностное уравнение на устойчивость, используя метод замороженных коэффициентов: $\dot{n}_A = \alpha - \beta n_A(t - \tau)$. Введём возмущение: $v(t) = n_A(t) - n^*$, тогда: $\dot{v} = -\beta(n(t - \tau) - n^*) = -\beta v(t - \tau)$. Подставим решение в виде: $v(t) = Qe^{\lambda t}$ и получим характеристическое уравнение: $\lambda + \beta e^{-\lambda \tau} = 0$. Найдём границы устойчивости, задав: $\Re \lambda = 0$ и $\lambda = i\omega$. После преобразований получим условие бифуркации Андронова-Хопфа:

$$\beta \tau = \mp \frac{\pi}{2} + \pi n, n \in \mathbb{Z}$$

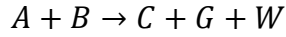
Получается, что при $\tau < \frac{\pi}{2\beta}$ (то есть $\Re \lambda < \Re \lambda_{\text{крит}}$) фазовый портрет системы будет представлять собой устойчивый фокус, $\tau > \frac{\pi}{2\beta}$ ($\Re \lambda > \Re \lambda_{\text{крит}}$) фокус станет неустойчивым. Однако в нашем случае из физических соображений имеется ограничение, что количество кислоты n_A в зоне реакции не может быть отрицательным. Соответственно, на фазовом портрете при $\Re \lambda > \Re \lambda_{\text{крит}}$ будет предельный цикл - возникнут автоколебания с постоянной амплитудой.

Рассмотрим подробнее полученное условие: $\beta(x)\tau > \frac{\pi}{2}$. Поскольку $\beta(x)$ – монотонно убывающая функция, то условие возникновения неустойчивости при перемещении фронта реакции от входной до выходной границы ячейки имеет вид: $\beta(0)\tau > \frac{\pi}{2}$. В функции $\beta(x)$ член, пропорциональный $\zeta_B \varphi_1 c_0$, мал по сравнению с остальными и поэтому слабо влияет на режим устойчивости. Тогда с учётом выражений: $\frac{\rho_A}{\rho_G} \xi_G \gg \left\{ \frac{\rho_A}{\rho_C} \xi_C, \frac{\rho_A}{\rho_B} \xi_B, \frac{\rho_A}{\rho_A} \xi_A \right\}$ получим приближенное условие перехода к неустойчивому режиму:

$$m^n c_0 > \frac{\pi}{2} \frac{\tau_{react}}{\tau} \frac{1}{\frac{\rho_A}{\rho_G} \xi_G} \quad \text{или} \quad m^n c_0 > const$$

Данный результат, полученный с применением простой математической модели, качественно согласуется с тем, что было определено в ходе экспериментальной работы.

Далее была построена более продвинутая математическая модель фильтрации раствора кислоты сквозь пористую среду. В ней относительно предыдущей задачи учитываются: сжимаемость газовой фазы; функциональная связь пористости и проницаемости. Химическая реакция, проходящая в ходе фильтрации, описывается схематически следующим уравнением:



где A – кислота, B – пищевая сода (восстановитель), C – соль (продукт химической реакции), G – газ, выделяющийся в ходе химической реакции, W – вода.

Запишем закон сохранения массы для следующих компонентов: раствор кислоты, высоковязкая фракция (масло), вода и газ:

$$\frac{\partial(\phi \rho_s S)}{\partial t} + \frac{\partial(W_s \rho_s)}{\partial x} = -\xi_A r + \xi_W r + \xi_C r$$

$$\frac{\partial(\phi \rho_o S_o)}{\partial t} + \frac{\partial(W_o \rho_o)}{\partial x} = 0$$

$$\frac{\partial(\phi \rho_g S_g)}{\partial t} + \frac{\partial(W_g \rho_g)}{\partial x} = \xi_g r$$

$$\frac{\partial(\phi \rho_s S_c)}{\partial t} + \frac{\partial(W_s \rho_s c)}{\partial x} = -\xi_A r$$

где t – время; ϕ – пористость среды; ρ_s – молярная плотность раствора кислоты; S – насыщенность раствора кислоты; x – координата вдоль оси, направленной в сторону течения раствора кислоты; W_s – скорость фильтрации раствора кислоты; ξ_A – стехиометрический коэффициент, связанный с кислотой (компонентом A в уравнении химической реакции); r – скорость реакции; ξ_W – стехиометрический коэффициент, связанный с водой (компонентом W в уравнении химической реакции); ξ_C – стехиометрический коэффициент, связанный с солью, получающейся в результате реакции (компонентом C в уравнении химической реакции); ρ_o – молярная плотность высоковязкой фракции; S_o – насыщенность высоковязкой

фракции; W_o – скорость фильтрации высоковязкой фракции; ρ_g – молярная плотность газа; S_g – насыщенность газа; W_g – скорость фильтрации газа; ξ_g – стехиометрический коэффициент, связанный с газом (компонентом G в уравнении химической реакции); c – массовая концентрация раствора кислоты.

Для раствора кислоты, масла и газа запишем также закон Дарси и уравнение состояния газа:

$$W_s = -k \frac{f_s}{\mu_s} \frac{\partial p}{\partial x}, W_g = -k \frac{f_g}{\mu_g} \frac{\partial p}{\partial x}, W_o = -k \frac{f_o}{\mu_o} \frac{\partial p}{\partial x}, \rho_g = \rho_{g0} + \alpha p.$$

Будем считать, что относительные фазовые проницаемости каждой из фаз квадратично зависят от соответствующей насыщенности: $f_\alpha = S_\alpha^2$, $\alpha = \{s, g, o\}$, а проницаемость кубически от пористости: $k(\phi) = k_0 \left(\frac{\phi}{\phi_0} \right)^3$.

Объём, доступный для заполнения флюидом, определяется как разность между общим объёмом пористой среды и объёмом, занятым твёрдым скелетом и химически активным компонентом. Последний, участвуя в химической реакции, высвобождает часть объёма, который становится доступным для флюида. Тогда можно предположить, что эффективная пористость скелета определяется её исходной пористостью (без учёта химически активного компонента) с добавлением поправки, зависящей от объёма химически активного компонента. В простом приближении эта зависимость может быть представлена в виде линейной функции: $\phi(m) = (\phi_0 \rho_s + m_0 - m) / \rho_s$, где m – молярная плотность химически активного компонента, ϕ_0 – пористость скелета без учёта химически активного компонента, ρ_s – молярная плотность скелета, m_0 – начальная молярная плотность химически активного компонента.

Введём характерные масштабы длины, времени, давления и молярной плотности восстановителя, обезразмерим соответствующие величины и преобразуем полученную систему уравнений к системе относительно неизвестных: давления, насыщенности раствора кислоты, насыщенности высоковязкой фракции и концентрации кислоты в растворе. После неявной аппроксимации получим систему дискретных уравнений относительно вектора указанных неизвестных. Для более точного вычисления значений величин на границах ячеек также применим противопоточную аппроксимацию. Полученную систему уравнений будем решать методом прогонки (алгоритмом Томаса) по схеме, представленной на рисунке 9.

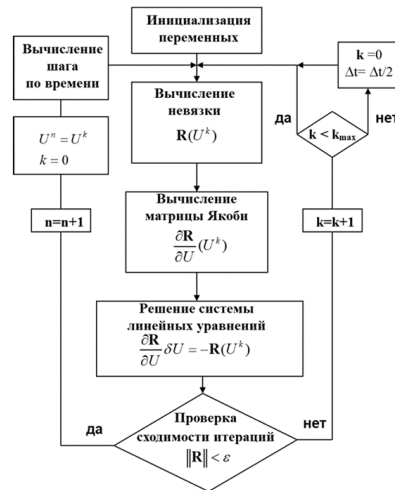


Рисунок 9 – Схема применения метода прогонки в моделировании задачи фильтрации, где k отвечает за индексацию итераций расчёта, n – индекс по времени

В первую очередь фиксировались начальные шаги по времени и пространству. В ходе выполнения алгоритма временной шаг адаптировался: при необходимости он итерационно уменьшался до тех пор, пока невязка не достигала заданного критерия точности ϵ , иначе расчёты переходили на следующий временной слой.

Для проверки сходимости решения были проведены расчёты для разных значений количества узлов в расчётной сетке: $NL = 125, 250, 500$. Результаты представлены на рисунке 10 и подтвердили сходимость решения.

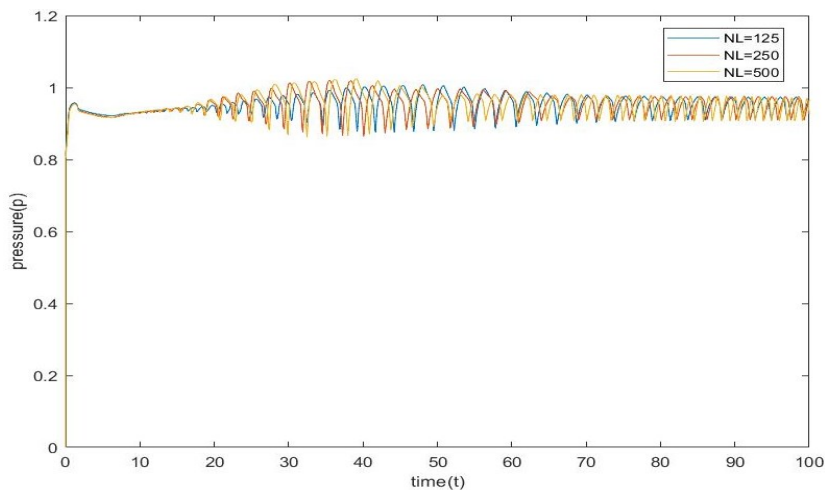


Рисунок 10 – Зависимость давления от времени в середине расчётной области для разного количества узлов в расчётной сетке NL

Далее для 500 узлов в сетке было проведено полное моделирование задачи. На рисунке 11 представлены зависимости давления от времени в разных точках расчётной области. Данные зависимости подтверждают наличие автоколебательного процесса и согласуются с наблюдениями, полученными в ходе экспериментальной работы. Координата $x=0$ отвечает левой границе области, откуда начинается фильтрация раствора кислоты. Время отсчитывается с момента начала фильтрации раствора кислоты

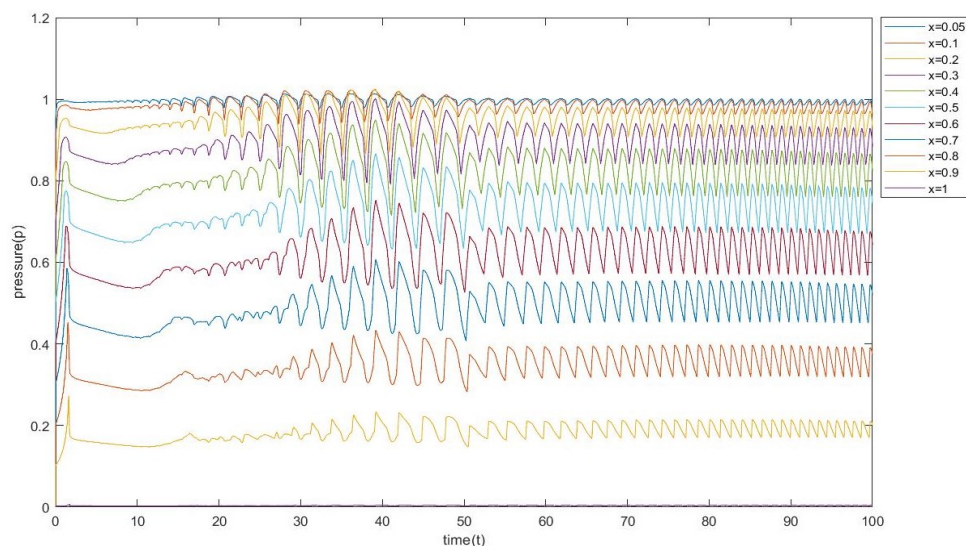


Рисунок 11 – Зависимость давления от времени в разных точках расчётной области.

Ранее в главе, посвящённой экспериментальной работе, было отмечено, что наличие задержки реакции является важным условием возникновения автоколебательного процесса. Для проверки данного утверждения дополнительно были проведены расчёты для различных сценариев: при нулевом времени задержки и при его постоянном (ненулевом) значении. Результаты представлены на рисунках 12, 13, соответственно. Данные результаты подтверждают выводы, сделанные ранее, что автоколебательный процесс возможен только при наличии ненулевой задержки реакции.

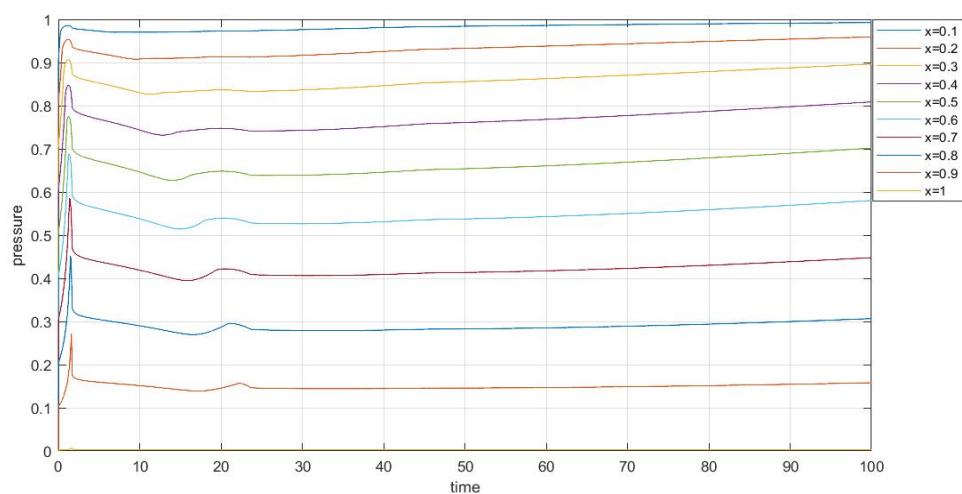


Рисунок 12 – Зависимость давления от времени в разных точках расчётной области при условии нулевой задержки реакции $\tau=0$

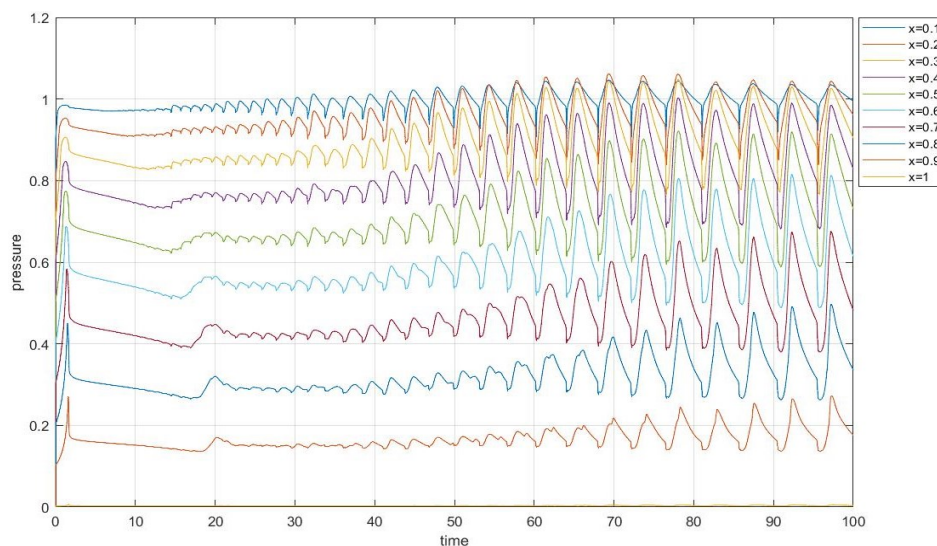


Рисунок 13 – Зависимость давления от времени в разных точках расчётной области при условии ненулевой константной задержки реакции

Также ранее в экспериментах было обнаружено, что автоколебательный процесс возникает только при определённых концентрациях реагирующих компонент. В рамках проведения численного моделирования была запущена серия расчётов для подтверждения наличия данной зависимости. Расчёты проводились с различными начальными концентрациями кислоты в растворе и массовой доли восстановителя в пористой среде. По результатам моделирования строилась зависимость давления от времени в середине расчётной области. В некоторых случаях в течение эксперимента наблюдались колебания давления, как например, на рисунке 13. В некоторых случаях получались зависимости без колебаний или с малым числом всплесков, как представлено на рисунке 12. Результаты всех проведённых расчётов отображены на рисунке 14.

Полученные результаты качественно согласуются с зависимостями, полученными ранее в экспериментальной работе (рисунок 6) и с помощью теоретической модели. Все описанные результаты позволяют сделать вывод, что автоколебательный процесс возникает только при определённых значениях концентраций реагирующих веществ.

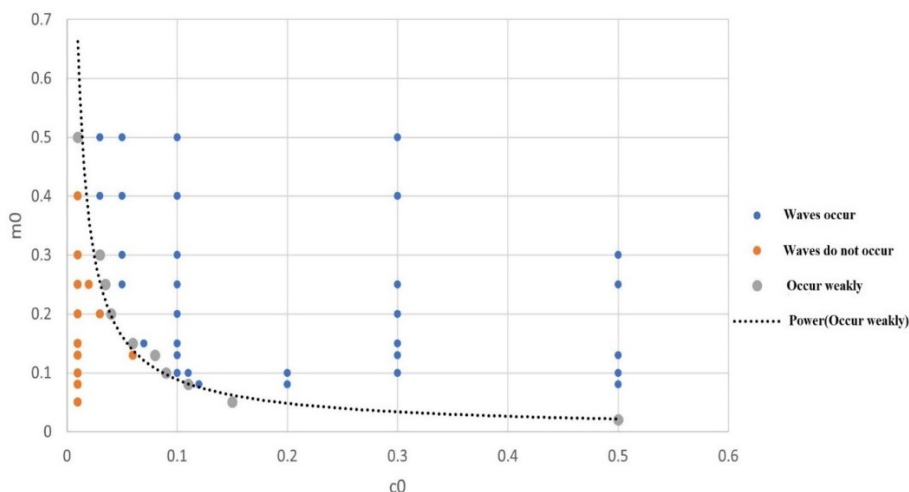


Рисунок 14 – Результаты расчётов по поиску границы перехода между режимами течения для различных концентраций раствора кислоты и доли химически активного компонента в скелете

В рамках выполнения поисковых научно-исследовательских работ, направленных на реализацию проекта по гранту, предоставленному нефтяной компанией, была

сформулирована расширенная математическая задача по моделированию фильтрации раствора окислителя сквозь пористую среду, насыщенную высоковязкой фракцией и содержащую химически активный компонент, способный реагировать с раствором окислителя. Эта задача разрабатывалась с учётом предположений, частично приближающих решение к реальным условиям физико-химических процессов, происходящих в пористых средах при фильтрации многокомпонентных флюидов. Для выполнения поставленных задач была сформулирована математическая модель, проведены численное решение и анализ полученных результатов.

При построении модели для описания рассматриваемого процесса были сделаны следующие предположения, которые обеспечивали баланс между физической достоверностью и вычислительной простотой задачи: учитывается тепловой эффект химической реакции; принимается во внимание сжимаемость флюидов; считается, что газ растворим в жидкостях. Для решения данной задачи к уравнениям, которые использовались при построении предыдущей модели, добавляются закон сохранения энергии для каждого вещества, уравнения состояния воды и высоковязкой фракции.

В конечном итоге получается система уравнений, в которой к неизвестным давлению, насыщенности раствора кислоты, насыщенности высоковязкой фракции и концентрации раствора кислоты добавляется ещё одна неизвестная – температура. Система уравнений также решалась методом прогонки. Расчёт на нескольких значениях количества ячеек показал сходимость численной схемы. Результаты расчёта для 200 ячеек по пространству представлены на рисунке 15. Моделирование показало, что при постановке задачи с условиями, более приближенными к реальным, автоколебательный также возникает. В дальнейшем планируется провести дополнительные исследования того, как автоколебания влияют на распределение температуры в области фильтрации.

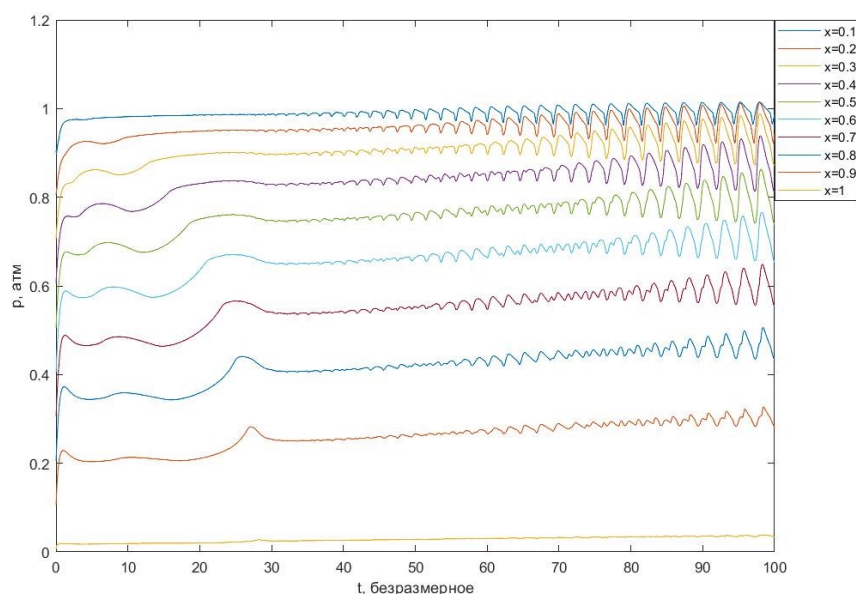


Рисунок 15 – Зависимость давления от времени в разных точках расчётной области. Координата $x=0$ отвечает левой границе области, откуда начинается фильтрация раствора кислоты. Время отсчитывается с момента начала фильтрации раствора кислоты

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе исследовалось явление возникновения автоколебаний в ходе химической реакции с выделением газа, возникающей между фильтрующимся раствором кислоты и химически активным компонентом пористой среды, насыщенной высоковязким флюидом.

Был проведён ряд лабораторных экспериментов, а также построены теоретические модели, описывающие исследуемое явление, и численно решены соответствующие математические задачи.

Для проведения лабораторного моделирования была собрана и впоследствии доработана экспериментальная установка, в которой проводилась фильтрация флюида сквозь пористую среду. Также отдельно была сконструирована установка по исследованию временной задержки реакции, оказывающей влияние на возникновение автоколебаний. На основании результатов лабораторного моделирования был сделан ряд выводов:

- Автоколебательный процесс возникает только при определённом соотношении концентраций раствора кислоты и химически активного компонента в пористой среде. Чем выше концентрация одного из реагентов, тем меньше требуется второго для сохранения условий, обеспечивающих автоколебательный процесс. Другими словами, существует некая пороговая (критическая) совокупность концентраций, при превышении которой система переходит в волновой режим.

- В исследуемом процессе фильтрации скорость химической реакции достигает своего пика спустя характерное время. Эта задержка является одним из условий возникновения автоколебаний.

Для теоретического анализа исследуемого процесса было построено несколько моделей, отличающихся набором допущений, призванных уменьшить вычислительную сложность задачи. Результаты моделирования подтвердили выводы, сделанные в ходе экспериментальной работы, а именно что автоколебательный процесс возникает при выполнении ряда ключевых условий, включая наличие временной задержки химической реакции и пороговых концентраций реагентов (кислоты и восстановителя).

В дальнейшем планируется провести лабораторные эксперименты для определения верхней границы параметров, при которых система сохраняет автоколебательный режим, а также выявить другие условия, влияющие на режим течения. Отдельное внимание будет уделено разработке более сложной математической модели с меньшим числом допущений, которая позволит учесть многокомпонентность высоковязкой фракции, деформацию пористой среды, а также нелинейные зависимости физических характеристик флюидов и скелета от концентрации и температуры. Такой подход позволит расширить область применения модели и повысить её точность при описании процессов в реальных системах.

ПУБЛИКАЦИИ

- Zavialov I. N. et al. Laboratory study of oscillatory multiphase flow in porous medium with chemically active skeleton //Physica Scripta. – 2019. – Т. 94. – №. 4. – С. 044005.
- Завьялов И. Н., Плавник Р. А., Пляшков Е. В. Экспериментальное моделирование осциллирующего режима трёхфазной фильтрации // ТРУДЫ МФТИ. – 2018. – Т. 10. – № 3. – С. 76-85
- Плавник Р. А., Завьялов И. Н., Пляшков Е. В. Влияние концентраций реагирующих веществ на устойчивость режима течения при фильтрации сквозь химически-активный скелет с выделением газовой фазы // ТРУДЫ МФТИ. – 2019. – Т. 11. - № 4. – С. 102-108
- Плавник Р.А., Завьялов И.Н., Конюхов А.В., Ветошкин Д.С. Определение кривой перехода между режимами течения при фильтрации раствора кислоты сквозь химически активную пористую среду // Вестник Санкт-Петербургского университета. Математика. Механика. Астрономия. 2021. Т. 8 (66). Вып. 2. С. 349–358.

- Plavnik R. et al. On stability boundary of the flow of an acid solution through a chemically active porous medium //Journal of Physics: Conference Series. – IOP Publishing, 2021. – Т. 2090. – №. 1. – С. 012029.

БЛАГОДАРНОСТИ

Выражаю глубокие благодарности:

- Своему научному руководителю Завьялову И. Н. за поддержку, терпение и ценные наставления, которые оказали огромное влияние на мою научную работу.
- Научному консультанту Конюхову А. В. за помощь в работе над этой задачей.
- Коллективу лаборатории моделирования механических систем и процессов МФТИ за поддержку и помощь в написании этой работы.
- Пляшкову Е. В. за большой вклад в проведение экспериментальной работы: настройку лабораторной установки и обработку полученных данных;
- Арутюняну Д. А. за помощь в построении математической модели и проведении расчётов.
- Забелиной Ю. А. за помощь в редакции научной работы.