



Experimental Study of the Effect of Gum Arabic Surfactant on Nano-Composite of Gamma-Alumina and Silica in Low Salinity Water Flooding for Enhanced Oil Recovery

Azin Khajeh kulaki¹, Seyed Mojtaba Hosseini-Nasab^{2*}, and Faramarz Hormozi³

1. Faculty of Petroleum Engineering, University of Semnan Iran.

2. School of Chemical, Petroleum and Gas Engineering, Department of Chemistry, Iran University of Science and Technology (IUST), Tehran, Iran

3. Department of Chemical Engineering, Faculty of Chemical & Petroleum and Gas Engineering, University of Semnan Iran

hosseininasab@iust.ac.ir

DOI:10.22078/PR.2023.4909.3200

Received: September/24/2022

Accepted: April/18/2023

Introduction

The popularity of low-saline water injection in enhanced oil recovery is due to its unique advantages, some of them are: increased efficiency in the production of light and medium crude oils, simplicity of injection into hydrocarbon formations, water availability, environmental friendliness, the low risk of injection and the reasonable price of low-salt water injection, especially in large fields [1]. There has been a lot of research that changing water salinity along with dilution can lead to enhancing oil recovery. Zhang et al. [2] investigated the role of magnesium, calcium and sulfate ions in changing the wettability of carbonate reservoirs. They also stated that increasing the temperature will improve the oil recovery factor. Lager et al. [3] introduced multiple ion exchange as the main mechanism that causes oil separation in carbonate reservoirs on an operational scale. In another research, wettability change was introduced as the main mechanism that improves the oil recovery factor [4]. In another research, it was stated that increasing the concentration of sulfate ions and decreasing the concentration of calcium ions improves the oil recovery factor [5]. Tete et al. [6] stated that injection of less saline water compared to seawater improves the recovery of oil. The results of Wang et al experiments showed that the injection of 100 times diluted formation water reduces the saturation of the remaining oil. They also introduced the optimal salinity for low salt water

injection between 3200-1400 mg/liter [7].

Experimental

Materials and Equipment

SiO₂ nanoparticles with 99.5 % purity, 15-20 nm in diameter and γ - Al₂O₃ nanoparticles with 99% purity, 20 nm in diameter were purchased from US Research Nano-Materials. The mass fraction ratio of γ -Al₂O₃ to SiO₂ NPs was set at 10:90, 30:70 and 50:50. The brine was prepared by dissolving different salts (NaCl, NaHCO₃, Na₂SO₄, CaCl₂. 2 H₂O and MgCl₂. 6H₂O). The brine concentrations were prepared by dissolving in water with total dissolved solids (TDS) nearby 4071, 8142, 20400 and 40710 ppm. Gum Arabic was applied as a surfactant to aid disperse the nanoparticles and improve the stability of the nanofluids.

Designing Experiments

The experimental design was applied by the Taguchi method nanofluids stability as response and low salinity water (ppm), the mass fraction γ -Al₂O₃/SiO₂ (wt%) and surfactant concentration (ppm) as operating variables. Taguchi method, based on three factor five levels and three factors, was applied to design experiments.

Preparation of Nanofluids

A concentration of 0.1 Wt% was used to prepare nanofluids. In the first step, salts were added, then nanoparticles and surfactant were added to the solution at the same time. Next, homogenized by a magnetic stirrer for 15 minutes. Finally, to ensure the complete dispersion of nanoparticles in base fluids were sonicated for one hour.

Stability Test

All stability tests were performed at ambient temperature and pressure. After preparing the nanofluids, they were placed in test tubes with caps and away from sunlight and heat. The stability test was done visually similar to the work of some researchers [8, 9, 10]. The period of time when the deposit of nanoparticles was formed at the end of the test tube was considered to mean the instability of nanofluids [11, 12].

Alteration the wettability of micromodel:

Micromodel was washed with sodium hydroxide solution and saturated for 30 minutes. Next, the vacuum pump evacuated the micromodel from any trapped fluid or air.

To ensure no fluid was trapped in the micromodel, it was washed with deionized water and dried in an oven at 200 °C. The micromodel was saturated with 2% hexamethyldisilane and 98% toluene for 30 minutes

[12].

Flooding of the micromodel took place in three steps:

1. The micromodel was saturated with formation water.
2. The micromodel was saturated with oil.
3. The micromodel was flooded with injected fluid [13].

Results and Discussion

According to the DELVO theory, two forces cause the dispersion of particles, these two forces include the van der Waals force of attraction and the electrostatic repulsion force of the double layer. The presence of monovalent cations such as sodium in salts reduces the negative surface charges on silica nanoparticles, because nanoparticles absorb monovalent cations such as sodium present in salts, and therefore the stability of the solution decreases [14]. The results obtained by the Taguchi method are shown in Figure 1 clearly shows that the lowest stability period is related to nanofluids whose base fluid is water with a salinity similar to seawater. Increasing the concentration of divalent ion such as calcium in water causes calcium ions to be absorbed by negatively charged nanoparticles. This means that divalent cations such as calcium can be effective in neutralizing the negative charge of nanoparticles.

Therefore, the van der Waals force of attraction between particles becomes greater than the electrostatic

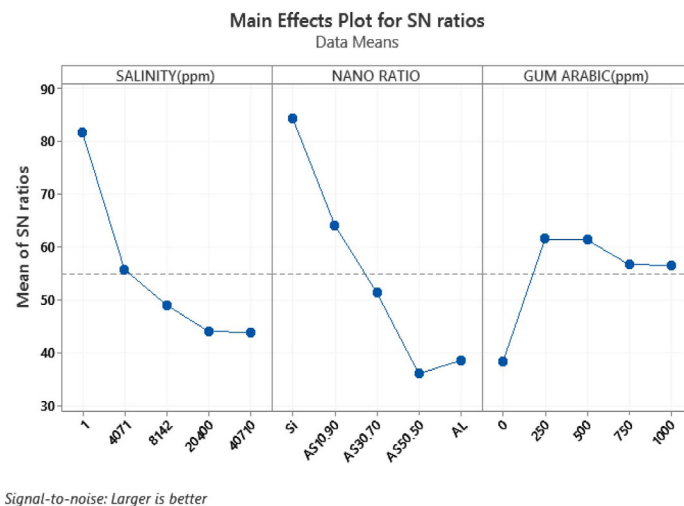


Fig. 1 The data obtained from the taguchi method and the quality characteristic was selected large-the better.

repulsion force and finally causes the accumulation and instability of solutions [15].

The presence of nanoparticles modified with gum arabic can reduce the interfacial tension between crude oil and transfer nanofluids, which is one of the most effective factors for the success of enhanced oil recovery.

Adsorption of nanoparticles modified with gum arabic at the interface between oil and salt water is due to the hydrophilic and hydrophobic functional groups of

the modified nanoparticles and causes the modified nanoparticles to act as amphiphilic surfactant. Finally, functional groups of modified nanoparticles create an additional layer at the interface of salt water and oil to reduce the interfacial tension [16]. Gum arabic and salt water dilution are effective in delaying breakthrough time with synergistic effect. Figure 2 shows the images of the injection of different nanofluids, after injection of 1 pore volume, into the treated to oil-wet micromodel.

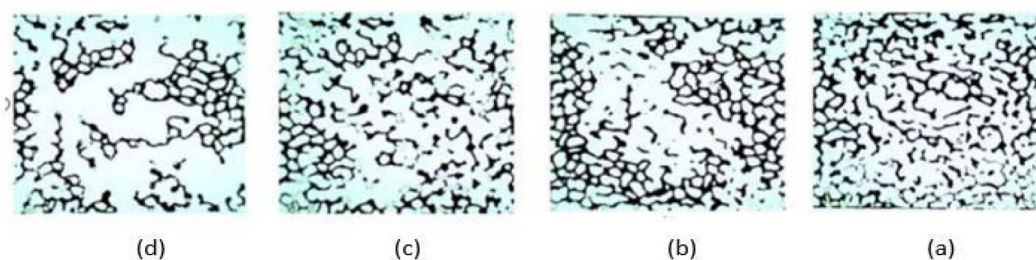


Fig. 2 Oil recovery for different nanofluids after 1 pore volume the injection. (a). Silica nanoparticles dispersed in deionized water without gum arabic. (b). Gamma-alumina nanoparticles dispersed in deionized water with 1000 ppm gum arabic. (c). combination of hybrid nanofluid $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ with a mass fraction of 30:70 dispersed in 5-times diluted samples of synthetic seawater with 1000 ppm gum arabic. (d). combination of hybrid nanofluid $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ with a mass fraction of 10:90 dispersed in 2- times diluted samples of synthetic seawater with 1000 ppm gum arabic.

The images in Figure 2 clearly show that the lowest oil recovery factor in part (a) is related to silica nanoparticles dispersed in distilled water without gum arabic and the highest recovery factor in part (d) is related to the gamma-alumina-silica nanohybrid with a mass fraction of 10:90 in 2 times diluted sea water with 1000 ppm gum arabic. In part (d), the synergistic effect of nanohybrids modified with gum arabic in the presence of salt water can be clearly seen, which has caused more oil to be swept.

Conclusion

In this article, an attempt was made to address the two issues of stability of nanofluids with aid of gum arabic and the effect of nanofluids on enhanced oil recovery in low salinity water. Some of the results obtained from this research are as follows:

- Gamma-alumina and silica nanohybrid with a mass fraction of 10:90, twice diluted seawater salinity (ppm 20,400), together with 1,000 ppm of gum arabic equal to 60.36% have the highest final reconery factor. The lowest recovery factor of silica nanoparticles without using gum arabic when the base fluid is distilled water equal to 34.5%.
- Increasing the salinity of the base fluid delays the breakthrough time and increases the oil recovery, which can be due to the presence of polyvalent ions that cause more nanoparticles to be absorbed into the pore walls.

References

1. RezaeiDoust, A., Puntervold, T., Strand, S., & Austad, T. (2009). Smart water as wettability modifier in carbonate and sandstone: A discussion of similarities/differences in the chemical mechanisms, *Energy & fuels*, 23(9), 4479-4485, doi.org/10.1021/ef900185q.
2. Zhang, P., Tweheyo, M. T., & Austad, T. (2007). Wettability alteration and improved oil recovery by spontaneous imbibition of seawater into chalk: Impact of the potential determining ions Ca^{2+} , Mg^{2+} , and SO_4^{2-} . *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 301(1-3), 199-208, doi.org/10.1016/j.colsurfa.2006.12.058.
3. Lager, A., Webb, K. J., Collins, I. R., & Richmond, D. M. (2008, April). LoSal™ enhanced oil recovery: evidence of enhanced oil recovery at the reservoir scale, In *SPE Improved Oil Recovery Conference?*, SPE-113976, doi.org/10.2118/113976-MS.
4. Austad, T., RezaeiDoust, A., & Puntervold, T. (2010). Chemical mechanism of low salinity water flooding in sandstone reservoirs, In *SPE Improved Oil Recovery Conference?*, SPE-129767, doi.org/10.2118/129767-MS.
5. Al-Attar, H. H., Mahmoud, M. Y., Zekri, A. Y., Almehaideb, R. A., & Ghannam, M. T. (2013, June). Low salinity flooding in a selected carbonate reservoir: experimental approach. In *SPE Europepec featured at EAGE Conference and Exhibition?*, SPE-164788, doi.org/10.2118/164788-MS.
6. Tetteh, J. T., Rankey, E., & Barati, R. (2017). Low salinity waterflooding effect: Crude oil/brine interactions as a recovery mechanism in carbonate rocks, In *Offshore Technology Conference Brasil D031S019R002*, doi.org/10.4043/28023-MS.
7. Wang, J., Song, H., & Wang, Y. (2020). Investigation on the micro-flow mechanism of enhanced oil recovery by low-salinity water flooding in carbonate reservoir. *Fuel*, 266, 117156, doi.org/10.1016/j.fuel.2020.117156.
8. Bahari, N. M., Che Mohamed Hussein, S. N., & Othman, N. H. (2021). Synthesis of $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ /water hybrid nanofluids and effects of surfactant toward dispersion and stability, *Particulate Science and Technology*, 39(7), 844-858, doi.org/10.1080/02726351.2020.1838015.
9. Ismail, H., Sulaiman, M. Z., & Aizzat, M. A. H. (2020, April). Qualitative investigations on the stability of $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ hybrid water-based nanofluids. In *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* 788(1), 012091, IOP Publishing, doi: 10.1088/1757-899X/788/1/012091.
10. Hendraningrat, L., & Torsaeter, O. (2014,

- March). Unlocking the potential of metal oxides nanoparticles to enhance the oil recovery. In Offshore Technology Conference Asia, OTC-24696, OTC, doi.org/10.4043/24696-MS.
11. Rostami, P., Sharifi, M., Aminshahidy, B., & Fahimpour, J. (2019). Enhanced oil recovery using silica nanoparticles in the presence of salts for wettability alteration, *Journal of Dispersion Science and Technology*, doi.org/10.1080/01932691.2019.1583575.
 12. Dehaghani, A. H. S., & Daneshfar, R. (2019). How much would silica nanoparticles enhance the performance of low-salinity water flooding?, *Petroleum Science*, 16, 591-605.
 13. Mofrad, S. K., & Dehaghani, A. H. S. (2020). An experimental investigation into enhancing oil recovery using smart water combined with anionic and cationic surfactants in carbonate reservoir, *Energy Reports*, 6, 543-549, doi.org/10.1016/j.egy.2020.02.034.
 14. Zhang, H., Shan, G., Liu, H., & Xing, J. (2007). Surface modification of $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ nano-particles with gum arabic and its applications in adsorption and biodesulfurization, *Surface and Coatings Technology*, 201(16-17), 6917-6921, doi.org/10.1016/j.surfcoat.2006.11.043.
 15. Bornace, A. H., Manteghian, M., Rashidi, A., Alaei, M., & Ershadi, M. (2014). Oil-in-water Pickering emulsions stabilized with functionalized multi-walled carbon nanotube/silica nanohybrids in the presence of high concentrations of cations in water, *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 20(4), 1720-1726, doi.org/10.1016/j.jiec.2013.08.022.
 16. Bornace, A. H., Manteghian, M., Rashidi, A., Alaei, M., & Ershadi, M. (2014). Oil-in-water Pickering emulsions stabilized with functionalized multi-walled carbon nanotube/silica nanohybrids in the presence of high concentrations of cations in water. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 20(4), 1720-1726, doi.org/10.1016/j.jiec.2013.08.022.

بررسی آزمایشگاهی اثر سورفکتانت صمغ عربی بر نانوهیبریدی گاما-آلومینا و سیلیکا در روش آب کم شور بر ازدیاد برداشت نفت

آذین خواجه کولکی^۱، سید مجتبی حسینی نسب^{۲*} و فرامرز هرمزی^۳

۱- گروه مهندسی نفت، دانشکده مهندسی شیمی، نفت و گاز، دانشگاه سمنان، ایران

۲- گروه مهندسی نفت، دانشکده مهندسی شیمی، نفت و گاز، دانشگاه علم و صنعت ایران، تهران، ایران

۳- گروه مهندسی شیمی، دانشکده مهندسی شیمی، نفت و گاز، دانشگاه سمنان، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۱/۰۷/۰۲ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۲/۰۱/۲۹

چکیده

روش آب کم شور با نانوذرات می تواند به عنوان یکی از روش های ترکیبی ازدیاد برداشت در نظر گرفته شود. هدف این مقاله، بررسی اثر شوری بر نانوذرات همراه با یک ماده فعال سطحی سبز در ازدیاد برداشت نفت است. تلاش شد تا ترکیب مناسب نانوهیبرید و غلظت بهینه شوری برای نانوسیالات در آزمون سیلاب زنی میکرومدل مشخص شود. در این پژوهش، از نانوذرات اکسید فلزی گاما-آلومینا و سیلیکا در سیالات پایه با شوری های متفاوت به کار برده شد. نانوذرات باعث بهبود باز یافت نهایی نفت می شوند اما مهم ترین چالش استفاده از نانوذرات هنگام قرار گیری آنان در کنار یون های دو ظرفیتی موجود در آب نمک است که به شدت ناپایدار می شوند. از این رو تلاش شد تا پایداری نانوذرات گاما-آلومینا، سیلیکا و هیبریدهای شان (در نسبت های جرمی مختلف) با شوری متفاوت مورد مطالعه قرار گیرد. برای افزایش مدت زمان پایداری نانوذرات در آب هایی با شوری مختلف از ماده فعال سطحی سازگار با محیط زیست و سبز به نام صمغ عربی استفاده شد. طراحی آزمایش ها با کمک نرم افزار و با روش تاگوچی صورت گرفت. پس از آماده سازی نانوسیالات پایداری آنان مورد بررسی قرار گرفت و بر روی نانوسیالاتی که پایداری مناسبی داشتند تست سیلاب زنی انجام شد. بر طبق نتایج آزمایشگاهی کمترین مدت زمان پایداری مربوط به نانوسیالاتی است که سیال پایه آن ها شوری برابر با ۴۰۷۱۰ ppm را دارد. بیشترین باز یافت نهایی نفت مربوط به نانوهیبرید گاما-آلومینا و سیلیکا با نسبت جرمی ۱۰:۹۰ در آب با شوری ۲۰۴۰۰ ppm، همراه با ۱۰۰۰ ppm صمغ عربی برابر با ۶۰/۳۴٪ و کمترین باز یافت نهایی نفت برای نانوذره سیلیکا با آب مقطر بدون صمغ عربی برابر با ۳۴/۵٪ گزارش شد.

کلمات کلیدی: آب کم شور، نانوهیبرید گاما-آلومینا و سیلیکا، صمغ عربی، پایداری نانوسیال، ازدیاد برداشت نفت

*مسئول مکاتبات

hosseininasab@iust.ac.ir

آدرس الکترونیکی

شناسه دیجیتال: (DOI:10.22078/PR.2023.4909.3200)

مقدمه

محبوبیت تزریق آب کم شور در ازدیاد برداشت نفت به خاطر مزایایی منحصربه فرد آن چون افزایش بازده در تولید نفت های خام سبک و متوسط، سادگی تزریق به سازندهای هیدروکربنی، در دسترس بودن آب، دوست دار محیط زیست بودن، کم خطر بودن تزریق و قیمت مناسب تزریق آب کم شور مخصوصاً در میدین بزرگ است [۱]. تحقیقات زیادی مبنی بر این که تغییر شوری آب همراه با رقیق سازی می تواند منجر به افزایش بازیافت نفت شود صورت گرفته است. ژانگ و همکاران [۲] نقش یون های منیزیم، کلسیم و سولفات را در تغییر ترشوندگی مخازن کربناته بررسی کردند. همچنین بیان کردند افزایش دما باعث بهبودی بازیافت نهایی نفت می شود. لاگر و همکاران [۳] ساز و کار اصلی که باعث جدا شدن نفت در مخازن کربناته در مقیاس عملیاتی می گردد را تبادل یونی چندگانه معرفی کردند. در پژوهشی دیگر ساز و کار اصلی که باعث بهبودی بازیافت نهایی نفت می شود تغییر ترشوندگی معرفی شد [۴]. در کار تحقیقاتی دیگری بیان شد که افزایش غلظت یون سولفات و کاهش غلظت یون کلسیم باعث بهبودی بازیافت نهایی نفت می شود [۵]. تته و همکاران [۶] بیان کردند که تزریق آب کم شور نسبت به آب دریا باعث بهبودی بازیافت نهایی نفت می شود. نتایج آزمایش وانگ و همکاران نشان داد تزریق آب سازندی ۱۰۰ بار رقیق شده باعث کاهش اشباع نفت باقی مانده می شود. آنان همچنین شوری بهینه برای تزریق آب کم شور را بین ۳۲۰۰-۱۴۰۰ mg/L معرفی کردند [۷]. نانوذرات می توانند اکسید فلز، اکسید سرامیک، فلز کاربید، نیتريد فلزی یا کربن باشند و سیال پایه می تواند آب، سیالات آلی، نفت ها و روغن ها در نظر گرفته شود. از نظر تئوری نانوسیالات هدایت حرارتی بهتری نسبت به سیال پایه خود دارند. حرکت براونی که در نانوذرات مشاهده می شود، باعث معلق شدن نانوذرات در سیال پایه می شود

تا وقوع تجمع در نانوسیالات را به حداقل برساند [۸]. در پارامتر بازیافت نهایی نفت از نانوذرات اکسید فلزی استفاده می گردد زیرا این نانوذرات خواص فیزیکی و شیمیایی منحصربه فردی دارند [۹]. مواد فعال سطحی یکی از روش های شیمیایی ازدیاد برداشت هستند که به مخازن نفتی تزریق می شوند. آنان باعث کاهش کشش بین سطحی آب و نفت می شوند و می توانند ترشوندگی مخزن را تغییر دهند. همچنین مواد فعال سطحی باعث افزایش عدد موینگی می شوند و نیروهای موینگی را که مسئول به دام افتادن قطرات نفت هستند، کاهش می دهند [۱۰]. از طرفی دیگر مواد فعال سطحی باعث افزایش پایداری نانوذرات در سیالات پایه می شوند [۱۱-۱۳]. افزودن مواد فعال سطحی به نانوسیال یک روش کاملاً مقرون به صرفه است که در نهایت منجر به پایداری نانوسیال ها می شود [۱۱]. ساختار متفاوت مواد فعال سطحی که دارای یک بخش آب گریز و یک بخش آب دوست هستند، این قابلیت را به آنها می دهد تا به عنوان پلی رابط بین نانوذرات و سیال پایه باشند [۱۱]. جراحیان و همکاران بیان کردند ماده فعال سطحی کاتیونی CTAB باعث بهبود تغییر ترشوندگی در سنگ های کربناته می شود [۱۴]. در پژوهشی دیگر نقش یون منیزیم و یون سولفات در حضور ماده فعال سطحی کاتیونی CTAB مورد بررسی قرار داده شد. نتایج نشان داد ترکیب ماده فعال سطحی CTAB به همراه این یون ها می تواند باعث افزایش بازیافت نفت در طی آزمایش آشام خودبه خودی نفت شود [۱۵]. احمدی و همکاران اثر آب هوشمند و مواد فعال سطحی مختلف را بر روی نمونه های مغزه کربناته مورد بررسی قرار دادند. نتایج احمدی و همکاران نشان داد آب هوشمند دارای یون سولفات و ماده فعال سطحی CTAB بیشترین بازیافت نهایی نفت را دارند. آنان همچنین بیان کردند، افزایش دما تا ۹۰ °C به بهبودی بازیافت نهایی نفت منجر می شود [۱۶].

فعال سطحی آنیونی SDS، کاتیونی CTAB و غیریونی PVP استفاده کردند. بر طبق نتایج آنان بیشترین مدت زمان پایداری ۷ روز و با ماده فعال سطحی آنیونی برای نانو هیبریدها به دست آمد. بر طبق گزارش های آنان نانو هیبرید با کسر جرمی ۳۰:۷۰ بیشترین میزان رسانایی الکتریکی را داراست [۱۳]. ریاضی و همکاران از نانوذره آلفا-آلومینا به منظور بررسی تغییر ترشوندگی سنگ های کربناته استفاده کردند. نتایج آنان نشان داد نانوذره آلفا-آلومینا قادر است ترشوندگی سنگ مخزن کربناته را از حالت نفت دوست به حالت آب دوست سوق دهد [۲۱]. سیلاب زنی آب کم شور همراه با دیگر روش های ازدیاد برداشت می تواند یک رویکرد ترکیبی جدید برای بهبود تعاملات نفت خام/آب کم شور و سنگ در نظر گرفته شود. این رویکرد جدید می تواند برخی از جنبه های منفی سیلاب زنی آب کم شور که شامل به دام افتادن نفت و مهاجرت ذرات دانه ریز است، را برطرف کند. روش های ترکیبی می توانند بازیافت نفت را نسبت به هر روش ترکیبی مستقلی بهبود بخشند. این روش ها می توانند تا ۳۰٪ بازیافت نفت را نسبت به نفت در جای اولیه افزایش دهند [۲۲]. بیشتر مطالعات انجام شده در زمینه نانومواد شامل نانوذرات تک مؤلفه ای مثل نانوذره سیلیکا، تیتانیوم، آلومینا و... در آب نمک یا آب مقطر انجام شده است. اگر مطالعاتی بر روی هیبرید گاما-آلومینا و سیلیکا صورت گرفته باشد بیشتر در آب مقطر انجام شده است. مطالعات ما نشان می دهد که کارهای تحقیقاتی زیادی در ارتباط با تأثیرات شوری بر روی هیبرید گاما-آلومینا و سیلیکا با استفاده از یک ماده فعال سطحی طبیعی انجام نشده است. همچنین استفاده از صمغ عربی به عنوان یک ماده فعال سطحی طبیعی و سبز کنار این عوامل بخشی از نوآوری کار محسوب می شود. مهم ترین دلیل انتخاب صمغ عربی نسبت به سایر مواد فعال سطحی رایج آلودگی های زیستی کمتر آن است و یکی از مهم ترین تلاش ها بر این اساس

در کار تحقیقاتی دیگر از نانوذره سیلیکا با غلظت های مختلف (۰/۱، ۰/۵، ۱، ۲، ۵/۲، ۳، ۴ و wt.٪) در آب مقطر استفاده شد. نتایج به دست آمده از آزمایش سیلاب زنی نشان داد، بازیافت نهایی هنگام استفاده از نانوسیال ۰/۱ wt.٪ نسبت به آب مقطر تا ۸/۷٪ بهبود می یابد. همچنین مشاهده شد غلظت ۳ wt.٪ نانوسیال منجر به بهبودی بازیافت نهایی نفت می شود اما با افزایش غلظت نانوذرات بیشتر از ۳ wt.٪ بازیافت نهایی نفت کاهش خواهد یافت [۱۷]. سالم راغب و همکاران از غلظت های مختلف (۰/۱، ۰/۵ و ۱ wt.٪) نانوذرات آلومینا و سیلیکا استفاده کردند. هنگام سیلاب زنی نانوذره آلومینا مشاهده شد که با افزایش غلظت نانوذره آلومینا بهبودی در بازیافت نهایی به دست می آید. بیشترین بازیافت نهایی هنگام سیلاب زنی سیلیکا در غلظت ۰/۵ wt.٪ و برابر با ۸۰/۸۸٪ گزارش شد. آنان بازیافت نهایی آب را کمتر از تمام آزمایش های مربوط به سیلاب زنی سیلیکا و بیشتر از تمام آزمایش های مربوط به سیلاب زنی آلومینا گزارش دادند [۱۸]. در کار تحقیقاتی دیگر از نانوذره سیلیکا با غلظت ۰/۲ wt.٪ در حضور آب شور و بدون آب نمک برای تغییرات ترشوندگی استفاده شد. نتایج نشان داد که به کار بردن نانوذرات در کنار آب کم شور باعث تغییرات ترشوندگی می شود و همچنین باعث بهبودی بازیافت نهایی نفت نسبت به زمانی می شود که فقط از نانوذره استفاده شد [۱۹]. اسماعیل و همکاران از نانو هیبرید آلومینا و سیلیکا با نسبت های حجمی ۵۰:۵۰ و در غلظت های (۰/۰۱، ۰/۰۱ و ۰/۱ Vol.٪) همراه آب مقطر برای بررسی آزمون پایداری استفاده کردند. آنان مناسب ترین روش برای ایجاد بیشترین مدت زمان پایداری نانو هیبرید را استفاده h ۱ از دستگاه هموژنایزر اولتراسونیک و ۱۵ min همزن مغناطیسی گزارش دادند [۲۰]. باهاری و همکاران از نانو هیبرید آلومینا و سیلیکا هنگامی که سیال پایه آب مقطر است در نسبت های جرمی ۹۰:۱۰، ۳۰:۷۰ و ۵۰:۵۰ در غلظت ۰/۱ wt.٪ همراه با مواد

بود تا علاوه بر پایداری سازی نانوهیبریدها از ماده فعال سطحی استفاده شود که زیست تخریب پذیر باشد، لذا مطالعات گسترده‌ای در زمینه انتخاب ماده فعال سطحی صورت پذیرفت. کارآیی نانوهیبریدها در غلظت‌های بسیار کم جهت بهبود عملکرد آب شور در تغییر ترشوندگی میکرومدل شیشه‌ای مورد ارزیابی قرار گرفت. هم‌چنین تلاش شد تا نسبت جرمی بهینه برای نانوهیبرید گاما-آلومینا و سیلیکا در آزمون پایداری و سیلاب‌زنی معرفی گردد. غلظت بهینه ماده فعال سطحی در آزمون پایداری و غلظت بهینه شوری در آزمون سیلاب‌زنی برای نانوسیالات به دست آمد. پس از طراحی آزمایش‌ها و تخمین تعداد آزمایش‌ها با کمک روش تاگوچی، نانوسیالات تهیه شدند. پس از بررسی چشمی پایداری نانوسیالات، غربال‌گری شدند. غربال‌گری نانوسیالات به منظور جلوگیری از تشکیل رسوب کلوخه‌ای صورت پذیرفت. نانوسیالاتی که مدت طولانی پایدار بودند در آزمون سیلاب‌زنی با میکرومدل شیشه‌ای دو بعدی مورد آزمایش قرار گرفتند. چون این پژوهش ترکیبی از روش‌های آب‌کم شور، نانوذرات و ماده فعال سطحی است برآیندی از این سه ترکیب بر روی بازیافت نهایی نفت قابل مشاهده است.

مواد و روش‌ها

مواد

از نانوذرات سیلیکا با اندازه ۱۵-۲۰ nm و درصد

خلوص ۹۹/۵٪ و نانوذره گاما-آلومینا با اندازه ۲۰ nm و درصد خلوص ۹۹٪ از شرکت یو-اس ریسرچ نانومتریالز^۱ استفاده شد. نانوذره سیلیکا ارزان قیمت و به راحتی قابل دسترسی است. نانوذره گاما-آلومینا به خاطر پایداری حرارتی بالا و مساحت سطح زیاد مورد توجه قرار گرفته است [۲۳]. برای آماده‌سازی نانوسیالات از نسبت جرمی گاما-آلومینا به سیلیکا برابر ۱۰:۹۰، ۳۰:۷۰ و ۵۰:۵۰ استفاده شد. فاز نفت به کار رفته، از میدان نفتی واقع در جنوب غربی ایران تهیه شده است. جدول ۱ خصوصیات فیزیکی نفت خام را نشان می‌دهد. از نمک‌های سدیم کلرید، سدیم سولفات، سدیم بی‌کربنات، منیزیم کلرید شش آب و کلسیم کلرید دو آب که از شرکت مرک آلمان خریداری شد، استفاده گردید. از آب دریا مصنوعی با شوری ۴۰۷۱۰ ppm، آب دریا دو بار رقیق شده با شوری ۲۰۴۰۰ ppm، آب دریا پنج بار رقیق شده با شوری ۸۱۴۲ ppm و آب دریا ده بار رقیق شده با شوری ۴۰۷۱ ppm و آب مقطر به عنوان سیالات پایه استفاده شد. ترکیب نمک‌ها برای تهیه سیال پایه در جدول ۲ آمده است. از متانول و تولوئن با درصد خلوص ۹۹٪ برای شست‌وشوی میکرومدل شیشه‌ای و از هگزا متیل دی سیلان برای نفت‌دوستی میکرومدل استفاده شد. میکرومدل شیشه‌ای به عنوان فضای متخلخل در نظر گرفته شد. از مزایایی میکرومدل شیشه‌ای می‌توان به بی‌اثر بودن آن از لحاظ شیمیایی و مشخص بودن بستر آن در هنگام تزریق سیالات اشاره کرد [۱۹].

جدول ۱ ویژگی‌های نفت خام مورد استفاده قرار گرفته

وزن مخصوص	در دمای ۶۰ °F	۰/۸۶۸۳
API	۶۰ °F/F	۳۱/۴۷
چگالی (lb/ft ³)	در دمای ۶۰ °C	۵۴/۱۸
	در دمای ۱۰ °C	۲۵/۹۳
ویسکوزیته (CST)	در دمای ۲۰ °C	۱۶/۵۳
	در دمای ۴۰ °C	۸/۴۸

جدول ۲ غلظت نمک‌های مختلف مورد استفاده (ppm)

نمک‌ها/آب نمک‌ها	آب سازندی	آب دریا	آب دریا دو بار رقیق شده	آب دریا پنج بار رقیق شده	آب دریا ده بار رقیق شده
سدیم کلرید	۷۰۰۰۰	۲۸۴۰۰	۱۴۲۰۰	۵۶۸۰	۲۸۴۰
منیزیم کلرید شش‌آبه	۱۴۲۵	۶۳۴۰	۳۲۱۵	۱۲۶۸	۶۳۴
کلسیم کلرید دوآبه	۲۰۱۰۰	۱۳۸۰	۶۹۰	۲۷۶	۱۳۸
سدیم سولفات	۱۲۲۹۰	۴۴۹۰	۲۲۴۵	۸۹۸	۴۴۹
سدیم بی‌کربنات	۱۰۰۰	۱۰۰	۵۰	۲۰	۱۰
کل نمک حل شده	۹۳۸۱۵	۴۰۷۱۰	۲۰۴۰۰	۸۱۴۲	۴۰۷۱

ویژگی‌های میکرومدل در **جدول ۳** نشان داده شده است. طرح و نمای کلی میکرومدل شیشه‌ای دو بعدی مورد استفاده قرار گرفته در **شکل ۱** آورده شده است، که یک برش افقی از مغزه با میکروسی‌تی اسکن است [۲۴]. قسمت مشکی رنگ در میکرومدل شیشه‌ای نشان‌دهنده فضای خالی حفرات است که با نفت اشباع شده است و قسمت سفید رنگ نشان‌دهنده سنگ است. از صمغ عربی شرکت مرک آلمان به‌عنوان ماده فعال‌سطحی و برای افزایش پایداری نانوذرات استفاده شد. صمغ عربی یک پلی‌ساکارید طبیعی است که از درختی به‌نام اقاقایای‌سنگالی به‌دست می‌آید. مشخص شده است که صمغ عربی یک ماده چندجزئی است که بخش عمده آن یک پلی‌ساکارید منشعب و قسمت کوچک‌تر آن یک پروتئین-پلی‌ساکارید پیچیده است [۲۵]. پتیدی‌ها بخش آب‌گریز و پلی‌ساکاریدها بخش آب‌دوست صمغ عربی را تشکیل می‌دهند. صمغ عربی یک عامل تقویت‌کننده ویسکوزیته پایین است و برخلاف سایر پلیمرهای زیستی دارای وزن مولکولی کم است [۲۶].

طراحی آزمایش‌ها

برای طراحی آزمایش‌ها از روش تاگوچی بر مبنای ۳ فاکتور و ۵ سطح استفاده شد. فاکتور اول مقدار شوری سیال پایه، فاکتور دوم نسبت جرمی گاما-آلومینا به سیلیکا و فاکتور سوم غلظت صمغ عربی در نظر گرفته شد. برای هر فاکتور ۵ سطح تعریف

گردید. برای فاکتور اول سطح اول آب مقطر، سطح دوم آب ده بار رقیق شده با شوری ۴۰۷۱ ppm، سطح سوم آب پنج بار رقیق شده با شوری ۸۱۴۲ ppm، سطح چهارم آب دریا دو بار رقیق شده با شوری ۲۰۴۰۰ ppm و سطح پنجم آب دریا در نظر گرفته شد. برای نسبت جرمی گاما-آلومینا به سیلیکا، در سطح اول فقط از نانو ذره سیلیکا استفاده شد. سطوح دوم، سوم و چهارم به ترتیب نانو هیبرید گاما-آلومینا به سیلیکا با نسبت جرمی ۱۰:۹۰، ۳۰:۷۰ و ۵۰:۵۰ استفاده شد. سطح پنجم فقط نانو ذره گاما-آلومینا در نظر گرفته شد. برای غلظت صمغ عربی از مقادیر ۰، ۲۵۰، ۵۰۰، ۷۵۰ و ۱۰۰۰ ppm به‌عنوان سطوح اول تا پنجم استفاده شد. روش تاگوچی قادر است با اطمینان بالایی تعداد آزمایش‌ها، مدت زمان انجام آزمایش، هزینه اجرا و احتمال خطا در رسیدن به پاسخ مطلوب را کاهش دهد و حتی می‌تواند پاسخ سیستم را در شرایط بهینه بدون انجام هیچ آزمایشی پیش‌بینی نماید. مطابق با فاکتورها و سطح‌هایشان در **جدول ۴** یک آرایش متعامد^۱ L-25 برای طراحی آزمایش‌ها مورد استفاده قرار گرفت. با استفاده از روش تاگوچی آزمایش‌ها از ۱۲۵ آزمایش به ۲۵ آزمایش کاهش یافت.

آماده‌سازی نانوسیالات

آماده‌سازی نانوسیالات هیبرید مراحل مختلفی دارد.

جدول ۳ ویژگی‌های میکرومدل شیشه‌ای شبه-دو بعدی

طول (cm)	عرض (cm)	عمق (mm)	حجم حفرات (cm ³)	تخلخل (%)
۵	۵	۴۶۰	۰/۵۱۴۱	۴۱/۱۳



شکل ۱ نمای کلی میکرومدل شیشه‌ای شبه دو بعدی که براساس از تصویر سی تی اسکن مغزه به‌دست آمده است [۲۴]

جدول ۴ فاکتورها و تعداد سطح‌هایشان با روش تاگوچی

فاکتور	واحد	سطح ۱	سطح ۲	سطح ۳	سطح ۴	سطح ۵
مقدار شوری سیال پایه	ppm	۱	۴۰۷۱	۸۱۴۲	۲۰۴۰۰	۴۰۷۱۰
نسبت جرمی نانو گاما-آلومینا به سیلیکا	درصد وزنی	فقط سیلیکا	AS _{10:90}	AS _{30:70}	AS _{50:50}	فقط آلومینا
غلظت صمغ عربی	ppm	۰	۲۵۰	۵۰۰	۷۵۰	۱۰۰۰

بررسی آزمون پایداری مشابه کار برخی از محققین به‌صورت چشمی انجام شد [۲۸، ۲۰، ۱۳]. مدت زمانی که رسوب نانوذرات در انتهای لوله آزمایشگاه تشکیل گردید به معنای ناپایداری نانوسیال‌ها در نظر گرفته شد [۲۹، ۱۹]. به‌دلیل تفاوت در مدت زمان پایداری نانوسیالات مدت زمان پایداری آنان برحسب min گزارش شد. آزمایش‌های مربوط به آزمون پایداری، ۲ مرتبه تکرار شدند و مقدار میانگین دو پاسخ ایجاد شده به‌عنوان پاسخ کلی در نظر گرفته شد.

روش تاگوچی برای بهینه‌سازی نانوسیالات

در این پژوهش بیشترین مدت زمان پایداری مد نظر بوده است، لذا مشخصه کیفی در تحلیل آزمون‌های پایداری، معیار هر چه بیشتر-بهرتر انتخاب شد و تحلیل نمودارها بر این اساس صورت گرفت. تحلیل نتایج به‌کمک نمودارهای سیگنال به اغتشاشات^۱ صورت گرفت. سیگنال به پارامترهایی گفته می‌شود که در طراحی لحاظ شده و تغییرات آن‌ها بر روی کیفیت اثرگذار است.

هر کدام از مراحل نتایج متفاوتی را به‌همراه دارد و اتفاق نظری در بین محققان راجع به پیش‌بینی رفتار نانوسیالات هیبرید وجود ندارد [۲۷]. برای آماده‌سازی نانوسیالات از غلظت ۰/۱ wt.% استفاده شد. این عدد قبلاً توسط عده‌ای از محققین به‌عنوان عدد مناسبی در پایداری بهتر نانوسیالات و افزایش هدایت حرارتی در نظر گرفته شده است [۱۳]. در این پژوهش ابتدا نمک‌ها اضافه شدند، سپس به‌صورت هم‌زمان نانوذرات و ماده فعال‌سطحی به محلول افزوده شدند. محلول‌های تهیه شده به‌مدت min ۱۵ بر روی همزن مغناطیسی و ۱ h با امواج فراصوت دستگاه هموژنایزر اولتراسونیک با توان ۷۰ W همگن شدند. دستگاه هموژنایزر التراسونیک با انتشار امواج فراصوت موجب افزایش حلالیت ماده فعال‌سطحی در محلول نانو هیبرید گاما-آلومینا و سیلیکا می‌شود.

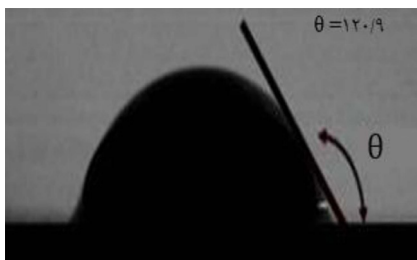
آزمون پایداری

تمامی آزمایش‌های آزمون پایداری در دما و فشار محیط انجام شد. پس از آماده‌سازی نانوسیالات، آن‌ها در لوله‌های آزمایشگاهی با درپوش و در جای دور از نور و گرمای خورشید قرار داده شدند.

میکرومدل شرکت داده شدند.

تغییر ترشوندگی میکرومدل شیشه‌ای

میکرومدل با محلول سدیم هیدروکسید شسته شد و به مدت ۳۰ min در آن اشباع گردید. سپس با کمک پمپ خلا از هر گونه سیال یا هوای بدام افتاده تخلیه شد. در مرحله بعد برای اطمینان از این که هیچ سیالی در میکرومدل به دام نیفتاده است میکرومدل با آب مقطر شسته و در آن تا دمای ۲۰۰ °C خشک شد. میکرومدل با محلول ۲٪ هگزا متیل دی سیلان و ۹۸٪ تولوئن به مدت ۳۰ min اشباع شد. در نهایت میکرومدل تا دمای ۱۰۰ °C در آن خشک شد [۲۹]. برای تمیز کردن میکرومدل از تولوئن و متانول استفاده شد. شکل ۲، قطره‌ای آب را نشان می‌دهد که بر روی سطح نفت دوست شده میکرومدل قرار گرفته است.



شکل ۲ تغییر ترشوندگی میکرومدل شیشه‌ای به سمت نفت دوستی

سیلاب‌زنی در میکرومدل

نرخ تزریق در سیلاب‌زنی میکرومدل با دبی ثابت ۰/۸ mL/h انجام شد. حجم سیال تزریقی ازدیاد برداشتی یک برابر حجم حفرات است. کلیه آزمایش‌های سیلاب‌زنی در فشار یک اتمسفر و دمای محیط انجام شد. میکرومدل به صورت افقی قرار گرفت تا اثرات گرانشی حذف شود [۲۸]. سیلاب‌زنی میکرومدل در چند مرحله انجام گرفت. در مرحله اول میکرومدل با آب سازندی اشباع شد. در مرحله دوم میکرومدل با نفت اشباع شد و در مرحله سوم میکرومدل با سیالات تزریقی مورد سیلاب‌زنی قرار گرفت [۳۲].

اغتشاشات به پارامترهایی گفته می‌شود که در طراحی در نظر گرفته نشده‌اند ولی بر روی کیفیت تاثیرگذار هستند. اگر مشخصه کیفی هر چه بیشتر بهتر باشد نسبت سیگنال به اغتشاشات (S/N) به صورت زیر محاسبه خواهد شد. مقادیر بالای سیگنال به اغتشاشات بیانگر این است که اثر پارامترهای قابل کنترل بیشتر از اثر پارامترهای غیرقابل کنترل است. نرخ سیگنال به اغتشاشات از روی میانگین مربعات از انحراف معیار (MSD) محاسبه می‌شود که در آن نتایج حاصل از N بار تکرار آزمایش‌ها است [۳۰].

$$MSD = \left(\frac{\frac{1}{Y_1^2} + \frac{1}{Y_2^2} + \frac{1}{Y_3^2} + \dots + \frac{1}{Y_N^2}}{N} \right) \quad (1)$$

$$\left(\frac{S}{N} \right) = -10 \log(MSD) \quad (2)$$

غربال‌گری نانوسیالات برای تست سیلاب‌زنی

از میان نانوسیالات تهیه شده نانوسیالاتی که مدت زمان پایداری آن‌ها کوتاه گزارش شد در آزمون سیلاب‌زنی شرکت داده نشدند. دلیل شرکت نکردن نانوسیالات در آزمون سیلاب‌زنی به خاطر تشکیل رسوب کلوخه‌ای است. علت ایجاد رسوب کلوخه‌ای نیروی جاذبه قوی بین نانوذرات است که در نتیجه آن نانوذرات ابتدا بهم می‌چسبند، سپس بر روی سطح سنگ به خاطر افزایش وزن رسوب می‌کنند. رسوب کلوخه‌ای نانوذرات در مقیاس عملیاتی سبب نشست نانوذرات در اطراف چاه تزریقی می‌شود که در نهایت سبب آسیب سازندی در نواحی اطراف چاه تزریقی می‌شود. از طرفی دیگر تجمع نانوذرات در محیط متخلخل باعث گرفتگی گلوگاه‌ها و مسیرهای جریان می‌گردد و با کاهش تراوایی محیط متخلخل، مقدار بهره‌دهی نفت کاهش می‌یابد [۳۱]. در این مقاله پس از آماده‌سازی نانوسیالات، غربال‌گری صورت پذیرفت و نانوسیالاتی که پایداری مناسبی داشتند به عنوان نانوسیالات بهینه در نظر گرفته شدند. نانوسیالات بهینه در آزمون سیلاب‌زنی

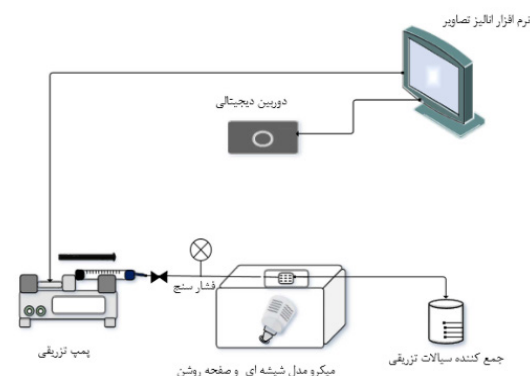
باشد علاوه بر نانوذره گاما-آلومینا، نانوهیبرید گاما-آلومینا و سیلیکا با نسبت جرمی ۵۰:۵۰ به شدت ناپایدار می‌شوند. با افزایش شوری سیال پایه و هنگام استفاده از آب شور دو بار رقیق شده علاوه بر نانوذره گاما-آلومینا، نانوهیبرید گاما-آلومینا و سیلیکا با نسبت‌های جرمی ۵۰:۵۰ و ۳۰:۷۰ به شدت ناپایدار می‌شوند. زمانی که سیال پایه آب دریا باشد علاوه بر نانوذره گاما-آلومینا تمامی نانوهیبریدها با نسبت‌های جرمی ۵۰:۵۰، ۳۰:۷۰ و ۱۰:۹۰ به شدت ناپایدار هستند و تنها نانوذره سیلیکا پایداری نسبتاً خوبی دارد. بر طبق تئوری^۱ DELVO دو نیرو باعث پراکندگی ذرات می‌شود. این دو نیرو شامل نیروی جاذبه واندروالسی و نیروی دافعه الکترواستاتیک لایه مضاعف^۲ است. وجود کاتیون‌های تک ظرفیتی مثل سدیم در نمک‌ها باعث کاهش بارهای سطحی منفی بر روی نانوذره سیلیکا می‌شود، زیرا نانوذرات کاتیون‌های تک ظرفیتی مثل سدیم موجود در نمک‌ها را جذب می‌کنند و بنابراین ثبات محلول کاهش می‌یابد [۳۳]. نتایج به دست آمده از روش تاگوچی در شکل ۴ به خوبی نشان می‌دهد، کم‌ترین مدت زمان پایداری مربوط به نانوسیالاتی است که سیال پایه آن‌ها آب با شوری مشابه به آب دریاست. افزایش غلظت یون‌های دو ظرفیتی مثل کلسیم در آب باعث می‌شود که یون کلسیم جذب نانوذرات با بار منفی شود.

شکل ۳ طرح کلی سیستم سیلاب‌زنی را نشان می‌دهد. از پمپ سرنگی برای سیلاب‌زنی سیالات استفاده شد و از دوربین میکروسکوپ دیجیتال (digimicro1/3) که دقیقاً در بالای میکرومدل قرار داشت برای عکس‌برداری استفاده شد. برای هر سیلاب‌زنی ۵ عکس گرفته شد. بعد از تزریق ۰/۲ برابر حجم فضای متخلخل سیال ازدیاد برداشتی یک عکس گرفته می‌شد. برای بهبود کیفیت عکس‌ها، میکرومدل بر روی صفحه‌روشن قرار گرفت. برای به دست آوردن میزان بازیافت نهایی نفت از نرم‌افزار آنالیز عکس Image-J استفاده شد. سرانجام، تصاویر با استفاده از نرم‌افزار پردازش تصویر، تجزیه و تحلیل شدند تا با شمارش پیکسل‌های تصویر میزان بازیابی نفت به دست آید.

بحث و نتایج

پایداری نانوسیالات

در جدول ۵ نانوسیالاتی که مدت زمان پایداری مناسبی داشتند با علامت ستاره (*) مشخص شدند که در آزمون سیلاب‌زنی شرکت داده شدند. تمام نانوسیالات تهیه شده زمانی که سیال پایه آب مقطر باشد پایدار هستند. نانوذره گاما-آلومینا زمانی که سیال پایه آب ده بار رقیق شده باشد به شدت ناپایدار می‌شود. زمانی که سیال پایه آب پنج بار رقیق شده



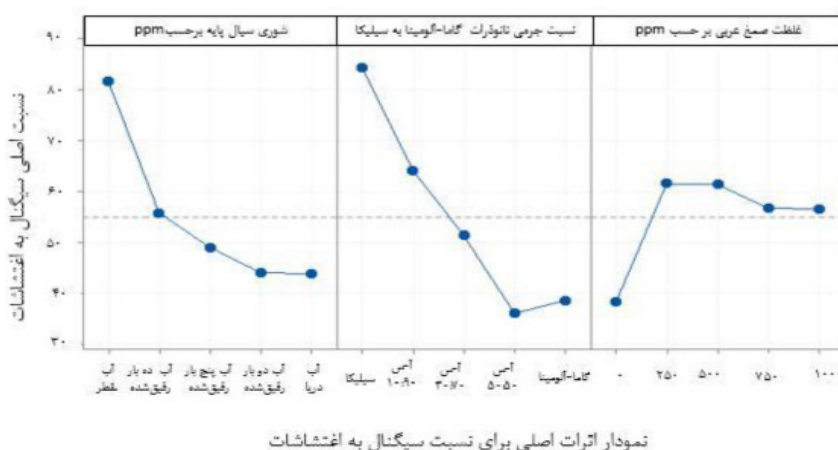
شکل ۳ طرح کلی سیستم سیلاب‌زنی با میکرومدل شیشه‌ای

1. Derjaguin, Landua, Verwey and Overbeek (DELVO) Theory

2. Repulsive Electrostatic Double Layer

جدول ۵ داده‌های به‌دست آمده از مدت زمان پایداری برحسب min به‌عنوان پاسخ روش تاگوچی

شماره آزمایش	غلظت شوری سیال پایه (ppm)	نسبت نانو ذره گاما-آلومینا به سیلیکا	غلظت صمغ عربی (ppm)	مدت زمان پایداری برحسب min به‌عنوان پاسخ در نظر گرفته شد	غربال‌گری (انتخاب نانوسیالاتی که مدت زمان پایداری مناسبی داشتند)
۱	۱	سیلیکا	۰	۸۹۲۸۰	*
۲	۱	۱۰:۹۰	۲۵۰	۳۰۲۵	*
۳	۱	۳۰:۷۰	۵۰۰	۱۵۴۰	*
۴	۱	۵۰:۵۰	۷۵۰	۱۳۰۵	*
۵	۱	گاما-آلومینا	۱۰۰۰	۱۰۰۲	*
۶	۴۰۷۱	سیلیکا	۲۵۰	۴۰۵۷۴	*
۷	۴۰۷۱	۱۰:۹۰	۵۰۰	۲۱۳۰	*
۸	۴۰۷۱	۳۰:۷۰	۷۵۰	۳۷۷	*
۹	۴۰۷۱	۵۰:۵۰	۱۰۰۰	۲۹۰	*
۱۰	۴۰۷۱	گاما-آلومینا	۰	۱۰	
۱۱	۸۱۴۲	سیلیکا	۵۰۰	۲۱۲۶۷	*
۱۲	۸۱۴۲	۱۰:۹۰	۷۵۰	۱۲۳۵	*
۱۳	۸۱۴۲	۳۰:۷۰	۱۰۰۰	۲۷۰	*
۱۴	۸۱۴۲	۵۰:۵۰	۰	۲	
۱۵	۸۱۴۲	گاما-آلومینا	۲۵۰	۱۴۱	
۱۶	۲۰۴۰۰	سیلیکا	۷۵۰	۴۱۲۵	*
۱۷	۲۰۴۰۰	۱۰:۹۰	۱۰۰۰	۴۸۵	*
۱۸	۲۰۴۰۰	۳۰:۷۰	۰	۱۷	
۱۹	۲۰۴۰۰	۵۰:۵۰	۲۵۰	۶۰	
۲۰	۲۰۴۰۰	گاما-آلومینا	۵۰۰	۵۵	
۲۱	۴۰۷۱۰	سیلیکا	۱۰۰۰	۳۹۲۳	*
۲۲	۴۰۷۱۰	۱۰:۹۰	۰	۱۴۰	
۲۳	۴۰۷۱۰	۳۰:۷۰	۲۵۰	۱۱۷	
۲۴	۴۰۷۱۰	۵۰:۵۰	۵۰۰	۲۵	
۲۵	۴۰۷۱۰	گاما-آلومینا	۷۵۰	۶۳	



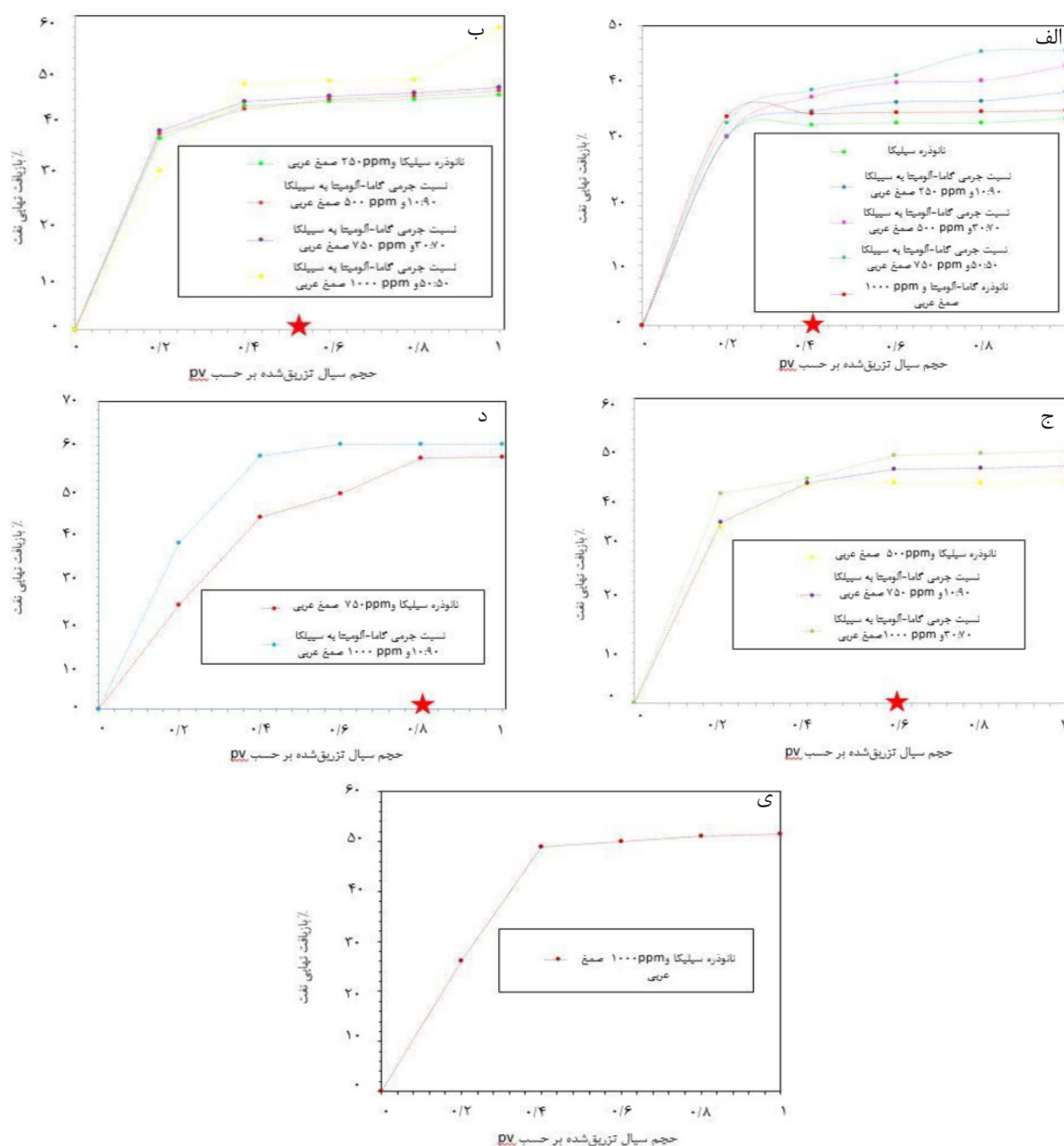
شکل ۴ نتایج به دست آمده از روش تاگوشی در بررسی پایداری نانوسیالات آماده شده

می‌دهند. آنها در آب مقطر کاملاً آب‌دوست هستند و پایداری مناسبی دارند. در این پژوهش نانوهیبریدها با نسبت جرمی مختلف مدت زمان پایداری بیشتری در آب مقطر نسبت به سایر آب‌ها با شوری متفاوت دارند در حالی که نانوهیبریدها در آب‌های حاوی نمک تمایل به ایجاد رسوب دارند و پراکندگی مناسب نانوذرات حتی با هموژنایزر اولتراسونیک هم فراهم نمی‌شود. وجود یون‌های دو ظرفیتی مثل کلسیم و منیزیم در آب‌های شور باعث می‌شود که خواص دوخصلتی^۱ در نانوهیبریدها ایجاد شود [۳۵]. در شکل ۴ مشاهده می‌شود در بین نانوهیبریدها با نسبت‌های جرمی مختلف بیشترین مدت زمان پایداری برای نانوهیبرید با نسبت جرمی ۱۰:۹۰ و کمترین مدت زمان پایداری برای نانوهیبرید گاما-آلومینا و سیلیکا با نسبت جرمی ۵۰:۵۰ گزارش شد. همچنین نتایج به دست آمده در شکل ۴ از غلظت صمغ عربی نشان داد که افزایش غلظت صمغ عربی به معنای افزایش پایداری نانوسیالات ناست و مناسب‌ترین غلظت برای صمغ عربی ۲۵۰ ppm به دست آمد.

سیلاب زنی در میکرومدل شیشه‌ای شبه دوبعدی

در قسمت‌های مختلف شکل ۵ نشان داده شده است، که افزایش غلظت نمک می‌تواند به بهبودی باز یافت نهایی نفت منجر شود. اما نتایج به دست آمده نشان می‌دهد.

این بدان معناست که کاتیون‌های دو ظرفیتی مثل کلسیم می‌توانند در خنثی‌سازی بار منفی نانوذرات مؤثر باشند. از این رو نیروی جاذبه واندروالسی بین ذرات بزرگتر از نیروی دافعه الکترواستاتیک می‌شود و در نهایت باعث تجمع و بی‌ثباتی محلول‌ها می‌شود [۳۴]. همان‌طور که به خوبی در شکل ۴ نشان داده شده است، بیش‌ترین مدت زمان پایداری مربوط به نانوسیالاتی است که سیال پایه‌ی آنها آب مقطر است. در میان نانوسیالات تهیه شده نانوذره سیلیکا بیش‌ترین مدت زمان پایداری را دارد. نانوذرات سیلیکا دارای بار سطحی منفی در آب هستند. همچنین به دلیل حضور اکسیژن‌های موجود در آب، نیروهای دافعه الکترواستاتیک تأثیر نیروهای جاذبه را کاهش می‌دهند. نانوذره آلومینا نسبت به سیلیکا پایداری کمتر دارد و سریع‌تر در محلول‌های آب شور کلوخه می‌شود. کلوخه شدن سبب ایجاد توده ذرات و منجر به بسته شدن حفرات خواهد شد. دلیل این امر می‌تواند به خاطر تمایل آلومینا به تجمع باشد [۳۵]. یکی از دلایل تجمع نانوذرات می‌تواند اندازه آنها باشد، نانوذرات با اندازه بزرگ‌تر سریع‌تر رسوب می‌کنند در حالی که نانوذرات با اندازه کوچک‌تر برای مدت طولانی‌تر در سیال پایه پراکنده باقی می‌مانند [۳۶]. نانوهیبریدها رفتار متفاوتی در آب‌های مقطر و آب‌های حاوی نمک از خود نشان



شکل ۵ (الف) بازیافت نهایی نفت برای نانوسیالاتی که در آب مقطر پایداری مناسبی دارند (ب) بازیافت نهایی نفت برای نانوسیالاتی که در آب ده بار رقیق شده دریا با شوری ۴۰۷۱ ppm پایداری مناسبی دارند (ج) بازیافت نهایی نفت برای نانوسیالاتی که در آب پنج بار رقیق شده دریا با شوری ۸۱۴۲ ppm پایداری مناسبی دارند (د) بازیافت نهایی نفت برای نانوسیالاتی که در آب دو بار رقیق شده دریا با شوری ۲۰۴۰۰ ppm پایداری مناسبی دارند (هـ) بازیافت نهایی نفت برای نانوسیالاتی که در آب دریا با شوری ۴۰۷۱۰ ppm پایداری مناسبی دارند

$$Recovery = \left(\frac{S_{oi} - S_{or}}{S_{oi}} \right) \quad (3)$$

که در آن S_{oi} اشباع اولیه نفت و S_{or} اشباع نفت باقی مانده است. سیلاب زنی صمغ عربی باعث بهبودی بازیافت نهایی نفت به طور میانگین تا ۴/۶٪ نسبت به سیلاب زنی با آب می شود.

بهبودی بازیافت نفت با افزایش غلظت نمک ها یک روند کاملاً صعودی نیست و بیشترین بازیافت نهایی نفت در آب دو بار رقیق شده برای نانوسیال هیبرید گزارش شد. بازیافت نهایی نفت از رابطه ۳ محاسبه می شود:

صمغ عربی دارای ظرفیت کاهش کشش بین سطحی آب نمک و نفت است که این توانایی به خاطر مهاجرت آن به سطح مشترک نفت و آب است که در آن زنجیره پلی پتیدی آب گریز صمغ عربی با نفت و واحد آرابینوگالاکتان^۱ آب دوست صمغ عربی با آب واکنش می دهد افزودن صمغ عربی به نانوذره سیلیکا و آلومینا به ترتیب باعث بهبودی بازیافت نهایی نفت ۱۴/۴٪ و ۲۰/۹٪ می شود [۲۶]. به طور کلی نانوذرات با کمک چهار ساز و کار اصلی در فرآیندهای ازدیاد برداشت نقش ایفا می کنند. این چهار ساز و کار شامل فشار جداسازی، تغییر ترشوندگی، کاهش کشش بین سطحی و کنترل ویسکوزیته هستند [۳۷، ۱۹]. در واقع پس از سیلاب زنی نانوذرات، فشار موئینگی به عنوان یک مانع در برابر جابه جایی نفت عمل می کند، اما اثر منفی آن به خاطر تأثیر نانوذرات بر ترشوندگی کاهش یافته است. در نتیجه نانوذرات توانایی خوبی جهت تغییر ترشوندگی سطوح نفت دوست به آب دوست دارند. علاوه بر این قرار گرفتن نانوذرات همراه با آب نمک رقیق شده باعث کاهش زاویه تماس می شود تا در نهایت منجر به تغییر ترشوندگی سطح سنگ شود [۲۹]. نانوذرات در حضور آب شور، سنگ و نفت تمایل دارند در یک منطقه فاز ناپیوسته ایجاد کنند و با تشکیل ساختاری مثلثی شکل^۲ بر سطح سنگ فشار وارد کنند. نانوذرات با اعمال فشار بیشتر در این ناحیه در نهایت باعث جداسازی مولکول نفت از سطح سنگ می شوند. از طرفی دیگر، نیروهای الکترواستاتیک در بین نانوذرات با اندازه های کوچک تر بیشتر است. علاوه بر این حرکات براونی نانوذرات به ایجاد شدن فشار جداسازی بزرگتر کمک می کند [۳۸-۳۹]. کاهش کشش بین سطحی از روش افزودن ماده فعال سطحی به نانوذرات امکان پذیر است. عملکرد مواد فعال سطحی به گونه ای است که به خاطر سر آب دوست و دم آب گریزشان در سطح مشترک جذب می شوند. از طرفی دیگر، حضور نانوذرات در کنار

آب نمک و نفت سبب می شود نانوذرات ساختاری را تشکیل دهند و با حذف بخش هایی از ناحیه مشترک سیال- سیال که از نظر انرژی نامطلوب است انرژی آزاد کلی سطح و سطح تماس آب و نفت را کاهش دهند، تا در نهایت کشش بین سطحی کاهش یابد [۳۹]. هنگامی که سیال پایه آب مقطر باشد همان طور که در شکل ۵ الف مشاهده می شود زمان رخنه^۳ پس از ۰/۴ برابر حجم حفرات (PV) رخ می دهد که با علامت ستاره (*) نشان داده شده است. نانوذره سیلیکا پس از تزریق یک برابر حجم حفرات کمترین مقدار بازیافت نهایی و برابر با ۳۴/۵٪ را دارد، بعد از آن نانوذره گاما-آلومینا بازیافت نهایی برابر با ۳۵/۸۹٪ را دارا است. در ادامه بازیافت نهایی برای نانوهیبریدهای گاما-آلومینا و سیلیکا با نسبت های جرمی ۱۰:۹۰، ۳۰:۷۰ و ۵۰:۵۰ همراه با غلظت های ۲۵۰، ۵۰۰ و ۷۵۰ ppm صمغ عربی به ترتیب برابر با ۳۸/۹۲٪، ۴۳/۲٪ و ۴۵/۸۵٪ گزارش شد. در آزمون های سیلاب زنی، اثر هم افزایی هنگام تزریق نانوسیالات هیبرید کاملاً مشهود است و بازیافت نهایی در نانوهیبریدها بیشتر از نانوسیالات واحد است. در واقع نانوهیبریدها با جابه جایی مقادیر بیشتری از نفت باقی مانده، برداشت نفت را به میزان مطلوبی افزایش می دهند. در شکل ۵- الف به خوبی دیده می شود که نانوذره گاما-آلومینا در مقایسه با نانوذره سیلیکا بازیافت نهایی را به میزان بیشتری افزایش می دهد. نانوذره گاما-آلومینا به دلیل کاهش نیروهای موئینه قادر است که ویسکوزیته نفت را در هر دمایی کاهش دهد. از همین جهت نانوذره آلومینا برای مخازن با نفت سنگین توصیه می شود [۴۰]. بر طبق نتایج نوروزی و همکاران نانوذره گاما-آلومینا به خاطر کاهش کشش بین سطحی و همچنین کاهش ویسکوزیته باعث بهبودی بازیافت نهایی نفت می شود [۴۱].

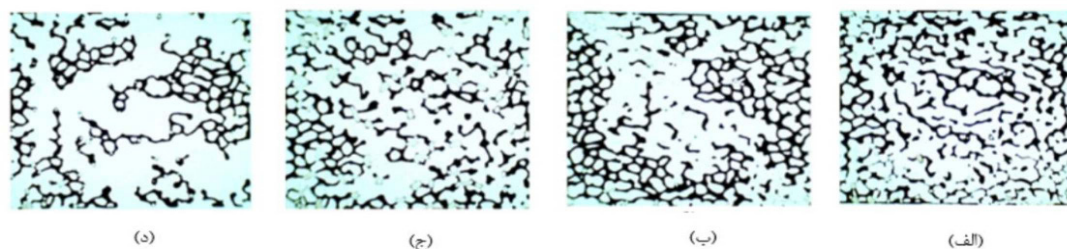
1. Arabinogalactan
2. Wedge-like Structure
3. Break Through

نتایج گویای این مطلب است که افزایش غلظت نمک‌ها منجر به تعویق افتادن زمان رخنه می‌شود. در **شکل ۵-ب** دیده می‌شود زمان رخنه هنگامی که سیال پایه آب با شوری ppm ۴۰۷۱ باشد، در ۰/۵ برابر حجم حفرات رخ می‌دهد که با علامت ستاره (*) نشان داده شده است. بازیافت نهایی برای نانوذره سیلیکا همراه با ppm ۲۵۰ صمغ عربی بعد از تزریق یک برابر حجم حفرات برابر با ۴۵٪ گزارش شد. بازیافت نهایی برای نانوهیبریدها با نسبت جرمی ۱۰:۹۰، ۳۰:۷۰ و ۵۰:۵۰ به همراه ۷۵۰ و ۱۰۰۰ ppm صمغ عربی به ترتیب ۴۵/۷۵٪، ۴۶/۲۸٪ و ۵۷/۷۵٪ گزارش شد. حضور نانوذرات اصلاح شده با صمغ عربی می‌تواند باعث کاهش کشش بین‌سطحی بین نفت خام و نانوسیالات جابه‌جا کننده شود، که یکی از مؤثرترین عوامل برای موفقیت ازدیاد برداشت نفت کاهش کشش بین‌سطحی است. جذب نانوذرات اصلاح شده با صمغ عربی در سطح مشترک نفت و آب نمک به‌خاطر گروه‌های عاملی آب‌دوست و آب‌گریز نانوذرات اصلاح شده صورت می‌گیرد و باعث می‌شود که نانوذرات اصلاح‌شده مانند یک ماده فعال سطحی دو خصلتی عمل کنند. در نهایت گروه‌های عاملی نانوذرات اصلاح‌شده یک لایه اضافی در سطح مشترک آب نمک و نفت ایجاد می‌کنند تا کشش بین‌سطحی کاهش یابد [۴۲].

صمغ عربی و رقیق‌سازی آب شور با اثر هم‌افزایی در به تعویق افتادن زمان رخنه تأثیرگذار هستند. از طرفی دیگر، افزایش ویسکوزیته منجر به کاهش تحرک سیال جابه‌جاکننده (نانوسیالات) نسبت به سیال جابه‌جاشونده (نفت) می‌شود که در نتیجه می‌تواند باعث جابه‌جایی یکنواختی در شبکه‌ای از حفرات گردد [۲۹]. بر طبق تئوری باکلی و لورت کاهش تحرک‌پذیری سیال جابه‌جاکننده منجر به تأخیر در زمان رخنه می‌شود [۴۳]. علاوه بر این، افزودن نانوذرات اصلاح شده با صمغ عربی به آب شور باعث افزایش ویسکوزیته سیال تزریقی می‌شود که باعث تأخیر در زمان رخنه می‌شود.

بر طبق نتایج حمیدی و همکاران سیلاب‌زنی نانو ذرات اصلاح شده با صمغ عربی توانایی زیادی در جاروب کردن نفت در مقایسه با سیلاب‌زنی آب دارد و با افزایش بازیافت نهایی همراه است. آنان افزایش بازیافت نهایی نفت را به‌خاطر توانایی نانوذرات اصلاح‌شده برای کاهش کشش بین سطحی بین نفت خام و محلول‌های نانوسیال بیان کردند که در نهایت باعث می‌شود فشارموینگی در داخل منافذ کاهش یابد. همچنین، نانوسیالات اصلاح شده که بر روی دیواره‌های منافذ قرار می‌گیرند این توانایی را دارند که در طول تزریقشان ترشوندگی سطح منافذ را به آب‌دوست قوی تغییر دهند [۴۲].

در **شکل ۵-ج** مشاهده می‌شود زمان رخنه، هنگامی که سیال پایه آب با شوری ppm ۸۱۴۲ باشد در ۰/۶ برابر حجم حفرات رخ می‌دهد که با علامت ستاره (*) نشان داده شده است. بازیافت نهایی برای نانوذره سیلیکا همراه با ppm ۵۰۰ صمغ عربی برابر با ۴۳/۸٪ و برای نانوهیبرید گاما-آلومینا و سیلیکا با نسبت جرمی ۱۰:۹۰ و ۳۰:۷۰ همراه با ۷۵۰ و ۱۰۰۰ ppm صمغ عربی به ترتیب برابر با ۴۶/۷۷٪ و ۴۹/۶۸٪ گزارش شد. در **شکل ۵-د** مشاهده می‌شود زمان رخنه وقتی که شوری سیال پایه برابر با ppm ۲۰۴۰۰ باشد، در ۰/۸ برابر حجم حفرات رخ می‌دهد که با علامت ستاره (*) نشان داده شده است. بازیافت نهایی برای نانوذره سیلیکا با ppm ۷۵۰ صمغ عربی برابر با ۵۷/۴٪ و برای نانوهیبرید گاما-آلومینا و سیلیکا با نسبت جرمی ۱۰:۹۰ همراه با ۱۰۰۰ ppm صمغ عربی برابر با ۶۰/۳۶٪ به دست آمد. در **شکل ۵-ی** مشاهده می‌شود که بازیافت نهایی برای نانوذره سیلیکا در آب شور دریا همراه با ۱۰۰۰ ppm صمغ عربی برابر با ۵۱/۵۳٪ گزارش شد. **شکل ۶** تصاویر تزریق نانوسیالات مختلف در میکرومدل شیشه‌ای نفت‌دوست شده، پس از تزریق یک برابر حجم حفرات را برای محاسبه بازیافت نهایی نفت نشان می‌دهد. تصاویر **شکل ۶** به‌خوبی نشان می‌دهد.



شکل ۶ تصاویر مربوط به بازیافت نهایی نانوسیالات مختلف پس از تزریق یک برابر حجم حفرات، الف) نانوذره سیلیکا پراکنده شده در آب مقطر بدون صمغ عربی، ب) نانوذره گاما-آلومینا پراکنده شده در آب مقطر با ۱۰۰۰ ppm صمغ عربی، ج) نانو هیبرید گاما-آلومینا و سیلیکا با نسبت جرمی ۳۰:۷۰ پراکنده شده در آب ۵ بار رقیق شده دریا با ۱۰۰۰ ppm صمغ عربی و د) نانو هیبرید گاما-آلومینا و سیلیکا با نسبت جرمی ۱۰:۹۰ پراکنده شده در آب ۲ بار رقیق شده دریا با ۱۰۰۰ ppm صمغ عربی

شد. کمترین پایداری مربوط به نانو هیبرید سیلیکا و آلومینا با نسبت جرمی ۵۰:۵۰ بدون استفاده از صمغ عربی، هنگامی که سیال پایه دارای شوری ۸۱۴۲ ppm باشد و مدت زمان پایداری آن ۲ min است.

• بیشترین مدت زمان پایداری برای نانو هیبریدهای گاما-آلومینا و سیلیکا به ترتیب برای نانو هیبرید با نسبت جرمی ۱۰:۹۰ سپس نانو هیبرید با نسبت جرمی ۳۰:۷۰ و در نهایت نانو هیبرید با نسبت جرمی ۵۰:۵۰ به دست آمد. نتایج به دست آمده نشان داد با افزایش غلظت نانوذره گاما-آلومینا به سیلیکا مدت زمان پایداری نانو هیبرید کمتر می شود.

• بیشترین میزان بازیافت نهایی را نانو هیبرید گاما-آلومینا و سیلیکا با نسبت جرمی ۱۰:۹۰، شوری دو بار رقیق شده آب دریا (۲۰۴۰۰ ppm)، همراه با ۱۰۰۰ ppm صمغ عربی برابر با ۶۰/۳۶٪ دارد. کمترین بازیافت نهایی مربوط به نانوذره سیلیکا بدون استفاده از صمغ عربی هنگامی که سیال پایه آب مقطر باشد برابر با ۳۴/۵٪ گزارش شد.

• افزایش شوری سیال پایه باعث به تعویق افتادن زمان رخنه شده و باعث افزایش بازیافت نهایی نفت می گردد که دلیل آن می تواند به خاطر حضور یون های چند ظرفیتی باشد که باعث می شوند نانوذرات بیشتر به دیواره های منافذ جذب شوند.

که کمترین بازیافت نهایی در قسمت (الف) مربوط به نانوذره سیلیکا پراکنده در آب مقطر بدون صمغ عربی و بیشترین بازیافت نهایی در قسمت (د) مربوط به نانو هیبرید گاما-آلومینا به سیلیکا با نسبت جرمی ۱۰:۹۰ در آب ۲ بار رقیق شده دریا با ۱۰۰۰ ppm صمغ عربی است. در قسمت (د) اثر هم افزایی نانو هیبریدهای اصلاح شده با صمغ عربی در حضور آب نمک به وضوح قابل رؤیت است که باعث جاروب شدن مقادیر نفت بیشتری شده است.

نتیجه گیری

در این مقاله تلاش شد تا به دو موضوع پایداری نانوسیالات به کمک صمغ عربی و تاثیر نانوسیالات بر ازدیاد برداشت نفت در آب کم شور پرداخته شود. مهم ترین نتایج به دست آمده از این تحقیق انجام شده به شرح زیر است:

- صمغ عربی در بهبودی پایداری نانوذرات واحد و نانو هیبریدها کاملاً موثر است، غلظت بهینه صمغ عربی برای نانوسیالات آماده شده ۲۵۰ ppm دست آمد.
- هرچه شوری سیال پایه افزایش یابد نانوسیال واحد و نانو هیبرید ناپایدارتر می شود. بیشترین پایداری مربوط به نانوذره واحد سیلیکا، هنگامی که سیال پایه آب مقطر و بدون استفاده از صمغ عربی است، مدت زمان پایداری آن ۶۲ روز و ۱۴ ساعت گزارش

مراجع

- [1]. Rashid, S., Mousapour, M. S., Ayatollahi, S., Vossoughi, M., & Beigy, A. H. (2015). Wettability alteration in carbonates during "Smart Waterflood": Underlying mechanisms and the effect of individual ions, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 487, 142-153, doi.org/10.1016/j.colsurfa.2015.09.067.

- [2]. Zhang, P., Tweheyo, M. T., & Austad, T. (2007). Wettability alteration and improved oil recovery by spontaneous imbibition of seawater into chalk: Impact of the potential determining ions Ca^{2+} , Mg^{2+} , and SO_4^{2-} , Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 301(1-3), 199-208, doi.org/10.1016/j.colsurfa.2006.12.058.
- [3]. Lager, A., Webb, K. J., Collins, I. R., & Richmond, D. M. (2008, April). LoSal™ enhanced oil recovery: evidence of enhanced oil recovery at the reservoir scale. In SPE Improved Oil Recovery Conference? (pp. SPE-113976). SPE, doi.org/10.2118/113976-MS.
- [4]. Austad, T., RezaeiDoust, A., & Puntervold, T. (2010). Chemical mechanism of low salinity water flooding in sandstone reservoirs. In SPE Improved Oil Recovery Conference?, SPE-129767, doi.org/10.2118/129767-MS.
- [5]. Al-Attar, H. H., Mahmoud, M. Y., Zekri, A. Y., Almehaideb, R. A., & Ghannam, M. T. (2013, June). Low salinity flooding in a selected carbonate reservoir: experimental approach. In SPE Europec featured at EAGE Conference and Exhibition?, SPE-164788, doi.org/10.2118/164788-MS.
- [6]. Tetteh, J. T., Rankey, E., & Barati, R. (2017, October). Low salinity waterflooding effect: Crude oil/brine interactions as a recovery mechanism in carbonate rocks, In Offshore Technology Conference Brasil, doi.org/10.4043/28023-MS.
- [7]. J. Wang, H. Song, and Y. Wang, (2020) Investigation on the micro-flow mechanism of enhanced oil recovery by low-salinity water flooding in carbonate reservoir,» Fuel, 266, 117156, doi.org/10.4043/28023-MS.
- [8]. Septiadi, W. N., Trisnadewi, I. A. N. T., Putra, N., & Setyawan, I. (2018). Synthesis of hybrid nanofluid with two-step method, (2018) E3S Web of Conferences, 67, doi: 10.1051/e3sconf/20186703057.
- [9]. Hendraningrat, L., & Torsæter, O. (2015). Metal oxide-based nanoparticles: revealing their potential to enhance oil recovery in different wettability systems, Applied Nanoscience, 5, 181-199, doi.org/10.1007/s13204-014-0305-6.
- [10]. Mahmoudi, S., Jafari, A., & Javadian, S. (2019). Temperature effect on performance of nanoparticle/surfactant flooding in enhanced heavy oil recovery, Petroleum Science, 16, 1387-1402, doi.org/10.1007/s12182-019-00364-6.
- [11]. Yu, W., & Xie, H. (2012). A review on nanofluids: preparation, stability mechanisms, and applications. Journal of nanomaterials, 1-17, doi.org/10.1155/2012/435873.
- [12]. Mukherjee, S., & Paria, S. (2013). Preparation and stability of nanofluids-a review, IOSR Journal of Mechanical and civil engineering, 9(2), 63-69, doi: 10.9790/1684-0926369.
- [13]. Bahari, N. M., Che Mohamed Hussein, S. N., & Othman, N. H. (2021). Synthesis of Al_2O_3 - SiO_2 /water hybrid nanofluids and effects of surfactant toward dispersion and stability, Particulate Science and Technology, 39(7), 844-858, doi.org/10.1080/02726351.2020.1838015.
- [14]. Jarrahian, K., Seiedi, O., Sheykhan, M., Sefti, M. V., & Ayatollahi, S. (2012). Wettability alteration of carbonate rocks by surfactants: a mechanistic study, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 410, 1-10, doi.org/10.1016/j.colsurfa.2012.06.007.
- [15]. Karimi, M., Al-Maamari, R. S., Ayatollahi, S., & Mehranbod, N. (2016). Wettability alteration and oil recovery by spontaneous imbibition of low salinity brine into carbonates: Impact of Mg^{2+} , SO_4^{2-} and cationic surfactant, Journal of Petroleum Science and Engineering, 147, 560-569, doi.org/10.1016/j.petrol.2016.09.015.
- [16]. Ahmadi, S., Hosseini, M., Tangestani, E., Mousavi, S. E., & Niazi, M. (2020). Wettability alteration and oil recovery by spontaneous imbibition of smart water and surfactants into carbonates. Petroleum Science, 17, 712-721, doi.org/10.1007/s12182-019-00412-1.
- [17]. Maghzi, A., Mohammadi, S., Ghazanfari, M. H., Kharrat, R., & Masihi, M. (2012). Monitoring wettability alteration by silica nanoparticles during water flooding to heavy oils in five-spot systems: A pore-level investigation, Experimental Thermal and Fluid Science, 40, 168-176, doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2012.03.004.
- [18]. Salem Ragab, A. M., & Hannora, A. E. (2015, October). A Comparative investigation of nano particle effects for improved oil recovery-experimental work, In SPE Kuwait oil and gas show and conference. OnePetro, doi.org/10.2118/175395-MS.
- [19]. Roostami, P., Sharifi, M., Aminshahidy, B., & Fahimpour, J. (2019). Enhanced oil recovery using silica nanoparticles in the presence of salts for wettability alteration. Journal of Dispersion Science and Technology, doi.org/10.1080/01932691.2019.1583575.
- [20]. Ismail, H., Sulaiman, M. Z., & Azzat, M. A. H. (2020, April). Qualitative investigations on the stability of Al_2O_3 - SiO_2 hybrid water-based nanofluids. In IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, 788, (1). 012091, IOP Publishing, doi: 10.1088/1757-899X/788/1/012091.
- [21]. Ansari, H., Riazi, M., & Sabbaghi, S. (2018). An Experimental Investigation of Wettability Alteration of Carbonated Rock Using Alpha-Alumina Nanofluid, Journal of Petroleum Research, 28(97-5), 47-58, DOI: 10.22078/pr.2018.3098.2460.
- [22]. Pourafshary, P., & Moradpour, N. (2019). Hybrid EOR methods utilizing low-salinity water, Enhanc. Oil Recovery Process, New Technol, 8, 25.

- [23] N. K. Renuka, A. V. Shijina, and A. K. Praveen, Mesoporous γ -alumina nanoparticles: Synthesis, characterization and dye removal efficiency, *Materials Letters*, Vol. 82, pp. 42-44, 2012, doi: 10.1016/j.matlet.2012.05.043.
- [24] F. Yu, H. Jiang, F. Xu, Zh. Fan, H. Su, J. Li, (2019) New insights into flow physics in the EOR process based on 2.5D reservoir micromodels, *Journal of Petroleum Science and Engineering*.
- [25] Dror, Y., Cohen, Y., & Yerushalmi-Rozen, R. (2006). Structure of gum arabic in aqueous solution, *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, 44(22), 3265-3271, doi.org/10.1002/polb.20970.
- [26] Sowunmi, A. O., Efeovbokhan, V. E., Orodu, O. D., & Oni, B. A. (2022). Polyelectrolyte–nanocomposite for enhanced oil recovery: influence of nanoparticle on rheology, oil recovery and formation damage, *Journal of Petroleum Exploration and Production Technology*, 12(2), 493-506., doi: 10.1007/s13202-021-01358-0.
- [27] Kshirsagar, D. P., & Venkatesh, M. A. (2021). A review on hybrid nanofluids for engineering applications, *Materials Today: Proceedings*, 44, 744-755, doi.org/10.1016/j.matpr.2020.10.637.
- [28] Hendraningrat, L., & Torsaeter, O. (2014, March). Unlocking the potential of metal oxides nanoparticles to enhance the oil recovery, In *Offshore Technology Conference Asia*, OTC-24696, OTC, doi.org/10.4043/24696-MS.
- [29] Dehaghani, A. H. S., & Daneshfar, R. (2019). How much would silica nanoparticles enhance the performance of low-salinity water flooding?, *Petroleum Science*, 16, 591-605, doi.org/10.1007/s12182-019-0304-z.
- [30] Daneshvar, N., Khataee, A. R., Rasoulifard, M. H., & Pourhassan, M. (2007). Biodegradation of dye solution containing Malachite Green: Optimization of effective parameters using Taguchi method, *Journal of Hazardous Materials*, 143(1-2), 214-219, doi.org/10.1016/j.jhazmat.2006.09.016.
- [31] Mahpishanian, A. M., Shahverdi, H., Simjoo, M., & Zaeri, M. R. (2021). Experimental Investigation of Nano Silica on Wettability Alteration and Enhanced Oil Recovery from Carbonate Reservoir Using Low Salinity Water. *Journal of Petroleum Research*, 30(99-6), 3-20, doi: 10.22078/pr.2020.4187.2897.
- [32] Mofrad, S. K., & Dehaghani, A. H. S. (2020). An experimental investigation into enhancing oil recovery using smart water combined with anionic and cationic surfactants in carbonate reservoir, *Energy Reports*, 6, 543-549, doi.org/10.1016/j.egyr.2020.02.034.
- [33] Zhang, H., Shan, G., Liu, H., & Xing, J. (2007). Surface modification of γ - Al_2O_3 nano-particles with gum arabic and its applications in adsorption and biodesulfurization. *Surface and Coatings Technology*, 201(16-17), 6917-6921, doi: 10.1016/j.surfcoat.2006.11.043.
- [34] Bornae, A. H., Manteghian, M., Rashidi, A., Alaei, M., & Ershadi, M. (2014). Oil-in-water Pickering emulsions stabilized with functionalized multi-walled carbon nanotube/silica nanohybrids in the presence of high concentrations of cations in water, *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 20(4), 1720-1726, doi: 10.1016/j.jiec.2013.08.022.
- [35] Habibi, S., Jafari, A., & Fakhroueian, Z. (2020). Wettability alteration analysis of smart water/novel functionalized nanocomposites for enhanced oil recovery. *Petroleum Science*, 17, 1318-1328, doi: 10.1007/s12182-020-00436-y.
- [36] Gallego, A., Cacia, K., Herrera, B., Cabaleiro, D., Piñeiro, M. M., & Lugo, L. (2020). Experimental evaluation of the effect in the stability and thermophysical properties of water- Al_2O_3 based nanofluids using SDBS as dispersant agent, *Advanced Powder Technology*, 31(2), 560-570, doi.org/10.1016/j.appt.2019.11.012.
- [37] Hou, B., Jia, R., Fu, M., Wang, Y., Jiang, C., Yang, B., & Huang, Y. (2019). Wettability alteration of oil-wet carbonate surface induced by self-dispersing silica nanoparticles: Mechanism and monovalent metal ion's effect, *Journal of Molecular Liquids*, 294, 111601, doi.org/10.1016/j.molliq.2019.111601.
- [38] Wasan, D., Nikolov, A., & Kondiparty, K. (2011). The wetting and spreading of nanofluids on solids: Role of the structural disjoining pressure, *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, 16(4), 344-349, doi.org/10.1016/j.cocis.2011.02.001.
- [39] Rashid, F. (2021). Experimental investigation of the effect of nanoparticles and polymer on interfacial tension between oil and water during Enhanced Oil Recovery (EOR) (Doctoral dissertation, University of Salford (United Kingdom)).
- [40] Arain, Z. U. A. (2020). Influence of silica nanoparticles on the surface properties of carbonate reservoirs (Doctoral dissertation, Curtin University), hdl.handle.net/20.500.11937/81266.
- [41] Nowrouzi, I., Manshad, A. K., & Mohammadi, A. H. (2020). Effects of TiO_2 , MgO and γ - Al_2O_3 nano-particles on wettability alteration and oil production under carbonated nano-fluid imbibition in carbonate oil reservoirs. *Fuel*, 259, 116110, doi: 10.1016/j.fuel.2019.116110.
- [42] Hamdi, S. S., Al-Kayiem, H. H., & Muhsan, A. S. (2020). Natural polymer non-covalently grafted graphene nanoplatelets for improved oil recovery process: A micromodel evaluation. *Journal of Molecular Liquids*, 310, 113076., doi: 10.1016/j.molliq.2020.113076.
- [43] Buckley, S. E., & Leverett, M. (1942). Mechanism of fluid displacement in sands. *Transactions of the AIME*, 146(01), 107-116, doi.org/10.2118/942107-G.