

اثر شوری آب و حضور ذرات ماسه بر ناپایداری آسفالتین در روش ازدیاد برداشت نفت با آب کم شور

امیرحسین سالاری، حسن ماهانی، سید شهاب الدین آیت‌اللهی*
دانشکده مهندسی شیمی و نفت، دانشگاه صنعتی شریف، تهران، ایران
shahab@sharif.edu

چکیده

تزریق آب کم شور یا مهندسی شده به‌عنوان یکی از روش‌های ازدیاد برداشت نفت از میداین کربناته ایران و جهان مورد توجه می‌باشد. در کنار مزایای متعدد آن، ارزیابی ریسک‌های جانبی مانند آسیب سازند در اثر احتمال ناپایداری و رسوب آسفالتین نیز حائز اهمیت است. تا کنون پژوهش‌های انجام شده در این خصوص، منحصرًا معطوف به بررسی تعامل نفت-آب بوده و تأثیر حضور سنگ به عنوان یکی از پارامترهای مهم بررسی نشده است. بنابراین در این پژوهش برای نزدیک تر کردن تست‌های آزمایشگاهی به شرایط مخزن، با ایجاد تماس بین آب/نفت/ماسه‌سنگ و اندازه‌گیری میزان جذب اشعه ماورای بنفش توسط نفت جدا شده از امولسیون‌ها، میزان رسوب آسفالتین در حضور شورآبه‌های مختلف اندازه‌گیری شد. برای اولین بار دستورالعمل انجام این گونه آزمایشات به روش "غیر مستقیم" توسعه داده شد. نتایج این آزمایش‌ها نشان می‌دهد که میزان رسوب آسفالتین رفتاری غیر یکنوا با شوری دارد و در شوری‌های پایین افزایش داشته و در شوری‌های بالا، کاهش می‌یابد. نتایج همچنین نشان می‌دهد که در حضور آب دریای دو بار رقیق شده رسوب آسفالتین بیشتری در مقایسه با سایر آب‌ها ایجاد می‌شود. با اضافه شدن ماسه‌سنگ به سیستم به دلیل ایجاد سطح فیزیکی جدید برای نشست آسفالتین و اثر نیروهای الکترواستاتیکی میزان رسوب آسفالتین افزایش می‌یابد. با بررسی ماسه‌سنگ‌های جدا شده از امولسیون مشاهده می‌شود که با افزایش شوری آب میزان رسوب آسفالتین بر روی ماسه سنگ نیز افزایش یافته و آب شور سازند باعث ایجاد بیشترین میزان رسوب بر روی ماسه‌سنگ (بیشتر از ۱/۴ میکروگرم بر گرم سنگ) می‌شود. نتایج این آزمایشات به درک نقش حضور ماسه سنگ در ناپایداری آسفالتین در تزریق آب کم شور در میداین نفتی می‌انجامد و امکان تعیین دقیقتر میزان چالش رسوب آسفالتین در شرایط واقعی تری را به دست می‌دهد.

کلمات کلیدی: ۱- رسوب آسفالتین، ۲- ذرات ماسه سنگ، ۳- ازدیاد برداشت نفت، ۴- تزریق آب کم شور، ۵- ناپایداری امولسیون، ۶- طیف سنجی اشعه ماورای بنفش

۱ مقدمه

سیلابزنی روشی پرکاربرد برای بهبود بازیافت نفت است. مطالعات آزمایشگاهی و میدانی مختلف نشان داده‌اند که تغییر نوع و محتوای یون‌ها در آب تزریقی که به عنوان تزریق آب با شوری کم (LSWF¹) شناخته می‌شود، می‌تواند منجر به بازیافت بیشتر نفت

¹ Low Salinity Waterflooding

شود. با وجود این مزیت، در این فرآیند مشکلاتی از جمله آسیب سازند ناشی از تشکیل امولسیون آب در نفت و رسوب های معدنی و آلی ناخواسته ناشی از تغییر تعادل شیمیایی به علت برهمکنش آب تزریقی با آب سازند و یا سنگ مخزن نیز گزارش شده است. [۱]— [۳] دلیل آسیب های آلی وجود ترکیبات قطبی نظیر آسفالتین، رزین و نفتنیک اسیدها در فاز نفت و تجمع آنها در سطح تماس آب و نفت به عنوان مواد فعال سطحی می باشد. تجمع این ترکیبات در سطح تماس آب و نفت منجر به تشکیل یک لایه نازک از مولکولها می شود که در نتیجه آن خصوصیتی نظیر IFT، پایداری آسفالتین، پایداری امولسیون و اندازه قطرات آب پخش شده در فاز نفت را دستخوش تغییر می کند. [۲]— [۷]

پایداری آسفالتین ارتباط مستقیمی با تعداد سطوح جذب موجود دارد. ذرات آسفالتین به عنوان سورفکتانت های طبیعی در فاز نفتی دارای بخش های قطبی هستند. بنابراین، در طول فرآیند سیلابزنی، آنها بیشتر به سطح مشترک نفت/آب جذب می شوند و یک فیلم سفت و سخت تشکیل می دهند که از ادغام قطرات آب جلوگیری می کند. این فرآیند می تواند منجر به تشکیل امولسیون پایدار، ناپایداری آسفالتین و رسوب گذاری شود. [۸]— [۱۷] علاوه بر این، ذرات آسفالتین می توانند بر روی سطح سنگ مخزن رسوب کنند و حالت آب دوست بودن سنگ مخزن را به نفت دوست تغییر دهند و باعث مسدود شدن منافذ و کاهش تزریق و بهره وری شوند. [۱۸]— [۲۲]

علاوه بر وجود اجزای قطبی مانند آسفالتین در سطح مشترک نفت/آب [۱۷]، [۱۹]— [۲۳]، پایداری امولسیون به شدت به حضور ذرات جامد در سطح مشترک نفت و آب نمک نیز بستگی دارد. [۲۴]— [۲۷] پایداری امولسیون (یعنی امولسیونها توسط ذرات جامد در سطح مشترک نفت و آب نمک تثبیت می شوند) به شدت به ترشوندگی ذرات و نوع امولسیون (امولسیون آب در نفت (W/O) یا نفت در آب (O/W)) بستگی دارد. [۲۸]— [۳۰]

برای داشتن یک طراحی موفق سیلابزنی، نقش آسفالتین ها (به عنوان موثرترین جزء قطبی در فاز نفت) در تعامل بین فازهای آب و نفت باید به خوبی درک شود. ترانیواسان و همکاران (۲۰۱۲) آب موجود در نمونه های امولسیون نفت را به کمک سانتریفیوژ جدا کرده و مواد رسوب شده را آنالیز کردند و نشان دادند که بالاتر از نقطه شروع رسوب آسفالتین، حضور آب تأثیر بسیار کمی بر پایداری آسفالتین دارد. [۳۱] وانگ و همکاران (۲۰۱۴) اثر آب مقطر (DW) و آب نمک بر پایداری آسفالتین دو نمونه نفت را بررسی کردند و نشان دادند که DW در تماس با نمونه نفت منجر به افزایش پایداری آسفالتین نسبت به آب نمک می شود و رسوب آسفالتین با آب نمک مصنوعی افزایش می یابد. [۳۲] توکلی و همکاران (۲۰۱۵، ۲۰۱۶) پایداری آسفالتین در یک سیستم امولسیون شده را با اندازه گیری طیف سنجی اسپکتروفوتومتر نفت قبل و بعد از تماس با آب نمک بررسی کردند. آنها با استفاده روش به اصطلاح "غیرمستقیم" نشان دادند که مقدار بیشتری از آسفالتین ها در یک سیستم امولسیون شده رسوب می کند. آنها همچنین نشان دادند که در شوری بالا، آسفالتین پایدارتر است. [۳۳]، [۳۴] شجاعتی و همکاران (۲۰۱۷) نیز از "روش غیر مستقیم" برای بررسی اثر نوع نمک بر پایداری آسفالتین استفاده کردند. نتایج آنها نشان می دهد که آسفالتین در شوری بالا پایدارتر از شوری کم تا متوسط است. بر اساس این مطالعه کاتیون های دو ظرفیتی در مقایسه با کاتیون های تک ظرفیتی بر تجمع آسفالتین مؤثرتر هستند. [۱۴] روشا و همکاران (۲۰۱۶) نشان دادند که کاهش شوری منجر به افزایش پایداری امولسیون و کاهش IFT می شود. آنها همچنین گزارش دادند که جرم آسفالتین در فصل مشترک به غلظت آسفالتین در فاز نفتی بستگی دارد. [۳۵] دمیر و همکاران (۲۰۱۶) از روش میکروسکوپی برای بررسی پایداری آسفالتین برای پنج نمونه امولسیون آب/نفت در حضور CaCl_2 و NaCl استفاده کردند. نتایج آنها نشان می دهد که تجمع آسفالتین با غلظت نمک افزایش می یابد و اثر CaCl_2 بیشتر از NaCl است. [۳۶] عامری و

همکاران (۲۰۱۸) IFT بین نفت و آب نمک در شوری های مختلف را برای ارزیابی رسوب آسفالتین در شرایط مخزن اندازه گیری کردند. آنها گزارش کردند که در شوری های کم، رسوب آسفالتین با شوری کاهش می یابد و پس از رسیدن به حداقل مقدار در یک شوری خاص، روند معکوس می شود. [۳۷] مختاری و آیت اللهی (۲۰۱۹) نشان دادند که در سیستم های امولسیون شده با آب/نفت، رقابت بین ذرات آسفالتین و ذرات نفتیک اسید برای جذب به سطح مشترک به شدت به شوری آب نمک بستگی دارد. [۳۸] جونکی و همکاران (۲۰۱۹) نشان دادند که تجمع های آسفالتین بیشتر در شوری بالاتر رخ می دهد. [۳۹]

در اکثر تحقیقات منتشر شده در مورد پایداری امولسیون و آسفالتین، فاز آبی با نفت خام یا نمونه نفت مدل در تماس بوده و سپس پایداری امولسیون و آسفالتین با اندازه گیری خواص حجمی فازهای نفتی و آبی و خواص سطحی بررسی شده اند. در این مطالعات از اثر سنگ بر روی رسوب آسفالتین چشم پوشی شده است. در مطالعه حاضر از سنگ برای نزدیک تر شدن شرایط آزمایش به شرایط مخزن و بررسی اثر سنگ در کنار شوری بر روی رسوب آسفالتین استفاده شده است. توجه به این نکته مهم است که ذرات سنگ و مولکول های آسفالتین دارای برهمکنش های الکترواستاتیکی هستند که می تواند منجر به جذب آسفالتین بر روی سطح سنگ شود. [۴۰]، [۴۱] این ویژگی قطبی باعث می شود که ذرات آسفالتین به میدان مغناطیسی پاسخ دهند. [۱۵]، [۴۲] از سوی دیگر، محققان مختلف دیگر نشان داده اند که بار سطحی سنگ در طی فرآیند سیلابزنی تغییر می کند. [۴۱]، [۴۳]–[۴۸] بنابراین، انتظار می رود که برهمکنش هایی وابسته به شوری بین مولکول های سنگ و آسفالتین وجود داشته باشد. علاوه بر این، برخی از نتایج تجربی نشان می دهند که تولید امولسیون می تواند عملکرد سیلابزنی را با افزایش راندمان تولید بهبود بخشد. بنابراین در صنعت نفت سورفکتانت های شیمیایی به طور گسترده ای برای تشکیل و تثبیت امولسیون استفاده می شود. [۴۹] با این حال، خطرات زیست محیطی مربوط به استفاده از سورفکتانت ها، باعث استفاده از امولسیون های پیکرینگ^۲ است که توسط نانوذرات جامد طبیعی تثبیت شده اند. [۲۹] اخیراً از کانی های رسی برای تهیه امولسیون پیکرینگ استفاده شده است. [۵۰]–[۵۲] تامبه و شارما (۱۹۹۴) بیان کردند که پایداری امولسیون پیکرینگ زمانی افزایش می یابد که ذرات کوچک تر و یکنواخت تری به امولسیون اضافه شوند. [۵۳] پوگمابو و همکاران (۲۰۱۴) از کائولینیت لایه ای و ساختار الیافی هالوویت برای تهیه امولسیون پیکرینگ نفت در آب استفاده کرد و نشان داد که امولسیون در هنگام استفاده از هالوویت فیبر لوله ای پایدارتر است. [۵۴] کای و همکاران (۲۰۱۹) از نانولوله کائولینیت برای تثبیت امولسیون های پیکرینگ استفاده کرد و نشان داد که جذب نانولوله کائولینیت در سطح مشترک آب/نفت منجر به کاهش IFT و افزایش پایداری امولسیون می شود. [۵۵]

بر اساس اطلاعات نویسندگان برای اولین بار در این مطالعه، اثر همزمان شوری آب و حضور ماسه سنگ بر پایداری آسفالتین در یک سیستم امولسیون شده نفت-آب بررسی شده است. در این راستا، یک روش تجربی غیرمستقیم برای در نظر گرفتن حضور واقعی سنگ در این روش آزمایشگاهی توسعه داده شد. برای بررسی کمی پایداری آسفالتین، از طیف سنجی اسپکتروفتومتر برای فاز نفت (قبل و بعد از تماس با فاز آبی) استفاده شد. علاوه بر این و برای صحت سنجی بیشتر، اندازه گیری IFT، حلالیت سنگ و اندازه گیری های پتانسیل زتا برای ذرات ماسه برای ارزیابی خواص سطحی آب/نفت و نفت/سنگ انجام گردید. در نهایت و برای بررسی پارامترهای مذکور بر پایداری آسفالتین سه دسته آزمایشات مختلف انجام شد. در دسته اول از این آزمایشات، تأثیر خواص آب نمک مانند شوری بر روی پایداری آسفالتین مورد بررسی قرار گرفت. دسته دوم آزمایش ها به تأثیر انحلال سنگ بر پایداری آسفالتین اختصاص داشت و در دسته سوم اثر ذرات ماسه معلق در فاز آبی بر روی این پدیده مورد ارزیابی قرار گرفت.

^۲ امولسیون های پیکرینگ امولسیون هایی هستند که از قرار گرفتن ذرات جامد در سطح تماس دو سیال ایجاد میشوند.

۲ مواد و روش ها

۲-۱ آب نمک های مختلف

برای بررسی اثر شوری بر پایداری آسفالتین، پنج نوع آب نمک مصنوعی (یعنی آب سازند (FW)، آب دریا (SW)، آب دریا ۲ برابر رقیق شده (2DSW)، آب دریا ۱۰ برابر رقیق شده (10DSW) و آب مقطر (DW)) استفاده شد. آب سازندی (FW) و آب دریا (SW) با افزودن مقدار مورد نظر نمک به آب مقطر و استفاده از همزن مغناطیسی (آلفا D-500 ساخت شرکت شیمی بیو) تهیه شد. شش نمک مختلف، همه با درجه خلوص آزمایشگاهی بیش از ۹۹ درصد از شرکت دکتر مجللی خریداری شد. غلظت نمک های مختلف برای تمام فازهای آبی در جدول ۱ ارائه شده است.

۲-۲ نمونه نفت خام

در انجام آزمایشات از نمونه نفت خام مرده میدان نفتی کوپال استفاده شد. این مخزن نفتی حاوی آسفالتین نسبتاً ناپایدار است و با مشکلات جدی رسوب آسفالتین در چاه و خطوط جریان مواجه است. جدول ۲ خواص نفت خام مورد استفاده را در شرایط محیطی نشان می دهد. قبل از استفاده در آزمایشات، نفت خام به طور همزمان تخلیه و فیلتر شد و سپس سانتریفیوژ شد تا هرگونه گاز محلول، ذرات جامد و محتوای آب حذف شود. به منظور جداسازی آسفالتین از نفت، نفت و نرمال پنتان با نسبت حجمی ۱:۲۰ مخلوط شده و به مدت ۲۴ ساعت استراحت داده شد. در مرحله بعد، مخلوط از کاغذ صافی (۰/۴۵ میکرومتر، کاغذ دایره ای ساخت گروه Microlab Scientific) عبور داده شدند. رسوب فیلتر شده ابتدا با نرمال پنتان برای حذف هرگونه ناخالصی و سپس با تولوئن حرارت داده شد تا آسفالتین رسوب شده حل شود. در نهایت، تولوئن تبخیر شد و رسوب برای تعیین کسر آسفالتین وزن شد.

۲-۳ نمونه سنگ

در این پژوهش از ماسه سنگ با خلوص ۹۹ درصد برای ایجاد بستری مشابه با مخازن استفاده گردید. همچنین برای یکسان بودن اندازه ذرات سنگ در تمامی آزمایشات از الک های با مش ۱۰۰ الی ۲۰۰ استفاده شد و ذرات با اندازه مش ۱۰۰ الی ۲۰۰ در آزمایشات مورد استفاده قرار گرفتند.

۲-۴ دیگر مواد مورد استفاده

در این مطالعه از نرمال پنتان درجه آزمایشگاهی (n-C5) با خلوص بیش از ۹۹ درصد و تولوئن با خلوص بیش از ۹۹ درصد عرضه شده توسط شرکت شیمی بیو برای رقیق سازی مایع رویی پس از مرحله سانتریفیوژ استفاده شد.

۲-۵ اندازه گیری کشش بین سطحی

با توجه به اهمیت خصوصیت کشش بین سطحی در پدیده تشکیل امولسیون و ناپایداری آسفالتین، در مراحل مختلفی از این مطالعه میزان IFT آب نمک و نفت از روش قطره آویزان اندازه گیری گردید. همانطور که قبلاً گفته شد، سه نوع آزمایش طراحی شد. در مورد اول (یعنی عدم وجود سنگ)؛ IFT اولیه بین نفت خام (بدون تماس با فاز آبی) و آب نمک اندازه گیری شد. سپس IFT نهایی پس از امولسیون سازی با استفاده از فاز نفت جدا شده با تکنیک سانتریفیوژ (یعنی با تماس نفت با آب نمک) اندازه

گیری شد. از آنجایی که محتوای آسفالتین در فاز نفت به شدت بر IFT تأثیر می‌گذارد، کاهش آسفالتین در نفت به دلیل جذب در سطح مشترک آب/نفت یا سطح ماسه سنگ به تغییر IFT منجر خواهد شد. به عبارت دیگر در صورت تفاوت IFT اولیه و نهایی می‌توان نتیجه گرفت که تغییراتی از لحاظ میزان آسفالتین موجود در مرز تماس بین دو سیال اتفاق افتاده است.

یک روش یکسان برای اندازه‌گیری IFT اولیه و نهایی در تمام آزمایش‌ها دنبال شد. اما در صورت وجود سنگ در آزمایش‌ها، ذرات ماسه با نمونه‌های مختلف آب نمک (با نسبت $1/0$ gt/cc) مخلوط شده و به مدت ۲۴ ساعت هم‌زده و به تعادل رسیدند. سپس مخلوط سنگ/آب نمک از کاغذ صافی (۱۲۵ میکرومتر، کاغذ دایره‌ای ساخته شده توسط گروه Chmlab) به همراه توری فلزی با مش ۴۰۰ که روی یکدیگر قرار می‌گرفتند (به منظور جلوگیری از پاره شدن کاغذ صافی و جلوگیری از عبور ذرات سنگ)، عبور داده شد و از فاز آبی فیلتر شده برای اندازه‌گیری IFT بین آب و فاز نفت استفاده شد. IFT حداقل دو بار و تمام اندازه‌گیری‌ها در شرایط محیطی انجام شد.

۲-۶ اندازه‌گیری پتانسیل زتا

در این پژوهش از روش ارائه شده توسط سراجی و همکاران (۲۰۱۳) [۴۰] و ماهانی و همکاران (۲۰۱۵) [۴۵]، [۴۶] برای اندازه‌گیری پتانسیل زتا دانه‌های ماسه سنگ معلق در نمونه‌های مختلف آب نمک استفاده گردید. به همین دلیل ۱۰ گرم پودر ماسه با عدد مش ۱۰۰ تا ۲۰۰ (بین ۷۵ تا ۱۵۰ میکرومتر) به ۲۵ سی سی آب نمک اضافه و به مدت ۳۰ دقیقه هم‌زده شد و سپس به مدت یک ساعت برای رسیدن به تعادل استراحت داده شد. برای انجام اندازه‌گیری پتانسیل زتا از روش الکتروفورز و از دستگاه Zetasizer Nano ساخت شرکت Malvern استفاده شد.

۲-۷ اندازه‌گیری میزان جذب

در این مطالعه از طیف‌سنج T80+ UV/Vis (PG instruments Ltd) برای اندازه‌گیری میزان جذب فاز نفت (قبل و بعد از تماس با آب) در طول موج ۸۰۰ nm استفاده شد. به عنوان نمونه مرجع از اندازه‌گیری میزان جذب سلول خالی (حاوی هوا) استفاده شد.

۲-۸ طراحی آزمایشات

سه نوع آزمایش استاتیک پایداری آسفالتین با استفاده از "روش غیر مستقیم" در این مطالعه توسعه یافت. نوع اول بر تأثیر ترکیب آب نمک و شوری بر پایداری آسفالتین متمرکز بود. نوع دوم بر تأثیر انحلال سنگ بر پایداری آسفالتین متمرکز بود. در نوع سوم، اثر ذرات ماسه معلق بررسی شد. در این مقاله، آزمایش‌های نوع اول، دوم و سوم به ترتیب «بدون ماسه سنگ»، «حضور غیر فیزیکی ماسه سنگ» و «حضور فیزیکی ماسه سنگ» نام‌گذاری شده‌اند. لازم به ذکر است که تمام آزمایش‌ها در شرایط محیطی انجام شده‌اند.

۲-۸-۱- دستور العمل بررسی اثر نوع آب نمک و شوری بر پایداری آسفالتین

برای تهیه امولسیون آب در نفت، ظرفی حاوی ۶۰ سی سی نمونه نفت روی همزن (آلفا D-500 ساخت شرکت شیمی بیو) قرار داده شد و در ۱۰۰۰ دور بر دقیقه شروع به هم زدن گردید. در حالی که نفت به طور مداوم هم زده می شد، ۴۰ سی سی آب/نمک با استفاده از پیپت به تدریج به آن اضافه شد. امولسیون به مدت ۲۴ ساعت مخلوط شد تا به خوبی همگن شود و به تعادل برسد.

پس از آن، فاز امولسیون به ده نمونه کوچکتر جهت اندازه گیری نقطه شروع رسوب آسفالتین تقسیم شد، سپس با نرمال پنتان در کسرهای حجمی مختلف (۰ تا ۹۰ درصد) برای بررسی نقطه شروع رسوب آسفالتین مخلوط شد. تمام ۱۰ نمونه به مدت ۱۵ دقیقه برای ایجاد یک محلول کاملاً همگن به شدت تکان داده شدند و سپس به مدت ۲۴ ساعت در یک مکان تاریک در فشار و دمای محیط به منظور ترسیب و ته نشست ذرات آسفالتین قرار گرفتند. در مرحله بعد، مخلوط نمونه های امولسیون/نرمال پنتان با سرعت ۱۰۰۰۰ در دقیقه به مدت ۱۲ دقیقه سانتریفیوژ شد. بر اساس مطالعات وارگاس و همکاران (۱۳۹۳) و توکلی و همکاران (۲۰۱۶)، در مرحله سانتریفیوژ، قطرات آب و آسفالتین های معلق توسط سانتریفیوژ و با نیرویی تعادلی برابر با ۹۱۶۸ برابر جاذبه از مخلوط خارج می شوند. [۵۷]، [۵۸] و مخلوط به دو قسمت تقسیم می شود: قسمت بالایی (روباره) که نفت، و قسمت پایینی که فاز آبی است. در نهایت برای اندازه گیری آسفالتین معلق در مایع رویی (نفت)، ۱ سی سی نفت با ۴ سی سی تولوئن برای طیف سنجی با اشعه ماورابنفش رقیق شد. رقیق سازی ضروری است زیرا فاز نفت بسیار تیره و برای طیف سنجی اسپکتروفوتومتر IS نامناسب است. اندازه گیری ABS در طول موج ۸۰۰ نانومتر انجام شد زیرا در این طول موج، میزان جذب اشعه برای نرمال پنتان و تولوئن تقریباً صفر است. روش فوق به صورت شماتیک در شکل ۱ ارائه شده است. هر آزمایش حداقل سه بار تکرار شد تا از نتایج تجربی اطمینان حاصل شود و درصد خطا بر اساس انحراف معیار تعیین شود.

۲-۸-۲- دستور العمل بررسی اثر انحلال ماسه بر پایداری آسفالتین

در این نوع آزمایش، اثر انحلال سنگ بر پایداری آسفالتین بررسی شد. بنابراین، یک پروتکل جدید بر اساس روش "غیر مستقیم" تدوین شد. به همین دلیل ذرات ماسه با عدد مش بین ۱۰۰ تا ۲۰۰ (بین ۷۵ تا ۱۵۰ میکرومتر) به نمونه های مختلف آب نمک (به نسبت ۰/۱ گرم بر سی سی) اضافه و به مدت ۲۴ ساعت به تعادل می رسند. قسمت رویی فاز آبی جمع آوری، فیلتر و برای مرحله آماده سازی امولسیون استفاده شد. pH فاز آبی پس از به تعادل رسیدن ثبت و در جدول ۱ ارائه شده است. برای آماده سازی امولسیون و اندازه گیری میزان جذب اشعه دستورالعمل مشابهی که بخش ۲-۷-۱ توضیح داده شد، استفاده گردید.

۲-۸-۳- دستور العمل بررسی اثر حضور ماسه سنگ به صورت ذرات معلق بر پایداری آسفالتین

در این نوع آزمایش، ذرات سنگ از سوسپانسیون سنگ/آب نمک به تعادل رسیده جدا نشدند و با اختلاط کل سنگ/آب نمک با نمونه نفت، امولسیونی تهیه شد. فرآیند آماده سازی امولسیون مشابه آنچه در بخش ۲-۷-۱ ارائه شد می باشد، با این تفاوت که پس از آماده سازی امولسیون، ابتدا ذرات سنگ با عبور دادن امولسیون از یک کاغذ صافی (قطر منافذ ۱۲۵ میکرومتر، توسط گروه Chmlab) به همراه توری فلزی با مش ۴۰۰ که روی یکدیگر قرار می گرفتند (به منظور جلوگیری از پاره شدن کاغذ صافی و جلوگیری از عبور ذرات سنگ)، از فاز امولسیون جدا شدند. تحت خلاء فیلتر شده و به دنبال همان روشی که در بخش ۲-۷-۱ انجام

شد، برای بررسی پایداری آسفالتین برای حجم‌های مختلف نرمال پنتان مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت. برای تجزیه و تحلیل مخلوط رسوب جامد، که شامل ذرات سنگ جدا شده با آسفالتین جذب شده و نفت و آب نمک محبوس شده در بین ذرات است، روش ارائه شده توسط کردستانی و همکاران (۲۰۱۹) استفاده شد. [۲۱] در مرحله اول، مخلوط رسوب با نرمال پنتان شسته شد تا هر گونه کسر غیر آسفالتین از مخلوط رسوب حذف شود. در مرحله دوم، قسمت جامد با آب دیونیزه شسته شد تا یون‌های نمک حل و حذف شوند. در مرحله سوم، مخلوط رسوب باقیمانده تا دمای ۸۰ درجه سانتیگراد به مدت ۲۴ ساعت حرارت داده شد تا آب باقیمانده خارج شود و رسوبات خشک شوند. مخلوط رسوب باقی مانده دوباره با تولوئن شسته شد تا آسفالتین جذب شده در سطح ماسه حل شود.

۲-۸-۴ دستورالعمل نحوه اندازه‌گیری میزان خطاها

در این پژوهش جهت بررسی دقیق نتایج، هر آزمایش حداقل سه بار تکرار گردید که در طی این تکرار پذیری یکی از اعداد که مقداری میانه را در بین همه نتایج دارا بود به عنوان داده اصلی گزارش شد و حد بالا و پایین خطاهای آزمایشات به کمک انحراف معیار آزمایشات تکرار شده تعیین گردیدند.

۳ نتایج و بحث

در این بخش، نتایج آزمایشات شرح داده شده در ۲-۷-۱ تا ۲-۷-۳ ارائه شده و مورد بحث قرار گرفته است.

۳-۱ تأثیر شوری آب نمک بر پایداری آسفالتین

۳-۱-۱ نتایج میزان جذب اشعه در صورت عدم حضور سنگ بصورت فیزیکی و غیر فیزیکی

شکل ۲ میزان میزان جذب اشعه را برای نفت جداسازی شده امولسیون‌های مختلف آب نمک-نفت به عنوان تابعی از درصد حجمی نرمال پنتان نشان می‌دهد. همانطور که گفته شد هر چه محتوای آسفالتین بیشتر باشد، میزان جذب اشعه بیشتر خواهد بود. [۱۷]، [۳۴]، [۵۹] نتایج ارائه شده در شکل ۲ نشان می‌دهد که برای همه موارد، با وجود روند مشابه، میزان جذب اشعه تابعی از درصد حجمی نرمال پنتان و نوع فاز آب است. برای هر مورد، در درصد حجمی نرمال پنتان کمتر از ۳۰ درصد حجمی (حجم هپتان تقسیم بر (حجم نفت + حجم هپتان) میزان جذب اشعه ثابت است. با این حال، بالاتر از این درصد حجمی خاص نرمال پنتان، میزان جذب اشعه با افزایش غلظت $n-C5$ شروع به کاهش می‌کند، زیرا این میزان مستقیماً با مقدار آسفالتین در نفت مرتبط است. بنابراین، می‌توان نتیجه گرفت که برای هر مورد، ذرات آسفالتین در درصد حجمی نرمال پنتان پایین پایدار هستند و با افزایش غلظت نرمال پنتان، پایداری آنها کاهش می‌یابد. غلظت آستانه‌ای که در آن میزان جذب اشعه شروع به کاهش می‌کند به عنوان نقطه شروع رسوب آسفالتین در نظر گرفته می‌شود. شایان ذکر است که بخش‌های آسفالتین ناپایدارتر قبل از نقطه شروع و بخش آسفالتین پایدارتر پس از نقطه شروع رسوب می‌کنند. [۸]، [۱۶] در نتیجه، در غلظت بالای نرمال پنتان، تمام بخش‌های آسفالتین (هم پایدار و هم ناپایدار) از نفت حذف می‌شوند و همانطور که در شکل ۲ نشان داده شده است، میزان جذب اشعه در همه موارد به یک مقدار همگرا می‌شوند.

شکل ۲ نشان می دهد که افزودن آب نمک به نمونه نفت باعث کاهش میزان جذب اشعه می شود که به این معنی است که برهمکنش نفت و آب نمک باعث انتقال بیشتر آسفالتین از نفت پس از امولسیون می شود. شایان ذکر است که اگرچه میزان جذب اشعه به شدت به غلظت نمک فاز آبی بستگی دارد، نقطه شروع تقریباً در حدود ۳۲ درصد حجمی نرمال پنتان برای تمام نمونه‌های آب نمک مورد استفاده در این مطالعه ثابت می ماند که دلیل این اتفاق کم بودن مقدار آسفالتین جدا شده از نفت می باشد به گونه ای که این مقدار آسفالتین کمتر از حدی است که توان ایجاد تغییر در نقطه شروع داشته باشد و تغییرات آن به کمک اندازه گیری ABS قابل اندازه گیری می باشد که دارای دقت بسیار بالایی است. همچنین همانطور که توضیح داده شد نوع آسفالتین و خصوصیات فاز آبی نیز می توانند در نقطه شروع تأثیر گذار باشد.

این یافته‌ها عموماً با یافته‌هایی که قبلاً منتشر شده بود مطابقت دارد. [۱۴]، [۱۷]، [۳۴] با این حال، در مورد شوری بالا، به عنوان مثال FW، نتایج متفاوت است. مطالعات قبلی هیچ ناپایداری آسفالتین را در شوری بالا نشان نمی دهد. اما در این مطالعه در حالی که آسفالتین در FW نسبتاً پایدارتر از سایر شوری ها است، اما رسوب آسفالتین همچنان مشاهده شد. این را می توان به این واقعیت نسبت داد که در مطالعات قبلی، آب نمک مصنوعی و از یک نمک ساخته شده بود، اما FW در این مطالعه آب سازند و چند جزئی است. برای بررسی تأثیر نوع آب نمک بر پایداری آسفالتین، از قسمت مسطح شکل ۲ (قبل از رسیدن به نقطه شروع) استفاده می شود.

همانطور که در شکل ۳ نشان داده شده است، آسفالتین زمانی که نفت با آب سازند با شوری بالا در تماس باشد پایدارتر است. پایداری آسفالتین با کاهش شوری آب نمک تا ۲DSW همچنان کاهش می یابد. رقت بیشتر از ۲DSW روند را معکوس می کند به طوری که برای فاز آبی با شوری کمتر از ۲DSW (یعنی ۱۰DSW و DW)، پایداری آسفالتین افزایش می یابد. بنابراین، پایداری آسفالتین در آب نمک های مختلف دارای روند غیریکنواخت (کاهش/افزایشی) و به صورت مقابل است: $FW > DW > 10DSW > SW > 2DSW$. دلیل این مورد آن است که در ابتدا (شوری صفر) امولسیون به صورت پایداری قرار دارد و با افزایش شوری (از شوری صفر تا ۲DSW) و ایجاد پدیده Salt In امولسیون ناپایدار شده و در نهایت باعث ایجاد رسوب آسفالتین می شود. با ادامه روند افزایش شوری و افزایش غلظت نمک (از ۲DSW تا FW) پدیده Salt Out نسبت به پدیده Salt In غالب شده و باعث ایجاد پایداری بیشتر در امولسیون و کاهش رسوب آسفالتین می شود.

این نتایج با نتایج شجاعتی و همکاران (۲۰۱۷) همخوانی دارد که در آن میزان جذب اشعه برای امولسیون ساخته شده با آب نمک با شوری ۱۵۰۰۰ ppm به حداقل مقدار رسید. [۱۴] مختاری و همکاران (۲۰۲۲) امولسیون های مختلف را از یک کاغذ صافی عبور داده و نتایج مشابهی را گزارش کرد که نشان می دهد وقتی 2DSW به عنوان یک فاز آبی در مرحله آماده سازی امولسیون استفاده می شود، میزان آسفالتین رسوب داده شده به حداقل خود می رسد. بنابراین، جذب بیشتر آسفالتین در سطح مشترک آب/نفت و عبور از کاغذ صافی منجر به حداقل میزان آسفالتین رسوب شده بر روی کاغذ صافی می شود. [۶۰] اخیراً طاهریان و همکاران (۲۰۲۲) روند مشابهی را برای سه نمونه نفت مختلف نشان دادند. [۱۷]

۳-۱-۲ نتایج IFT در صورت عدم حضور سنگ بصورت فیزیکی و غیر فیزیکی

IFT بین فاز نفت قبل و بعد از تماس با آب نمک (یعنی نفت خام و نفت به تعادل رسیده) و فازهای مختلف آبی اندازه گیری شد. دو اندازه گیری مختلف IFT برای مراحل اولیه و نهایی در اینجا انجام شد. نتایج اندازه گیری های اولیه و نهایی IFT برای سیستم های مختلف فاز آبی در شکل ۴ ارائه شده است.

همانطور که در شکل ۴ ارائه شده است، IFT اولیه و نهایی، هر دو به نوع فاز آبی بستگی دارد. برای IFT اولیه، نتایج نشان می‌دهد که IFT ابتدا با افزایش محتوای نمک (از DW به FW) کاهش می‌یابد و پس از رسیدن به حداقل مقدار در شوری SW، شروع به افزایش با محتوای نمک می‌کند. نتایج مشابهی توسط گروه‌های دیگر گزارش شده است که با تئوری‌های Sault in/out و شلاته^۳ شدن توجیه می‌شود. [۱۴]، [۶۱]–[۶۴] در این مطالعه، ذرات آسفالتینی که در سطح مشترک آب/نفت قرار می‌گیرند، در مرحله سانتریفیوژ جدا می‌شوند و در نتیجه مقدار آسفالتینی که در نفت باقی‌مانده کمتر می‌شود. در نتیجه، همانطور که در شکل ۴ ارائه شده است، برای همه موارد، IFT نهایی نسبت به IFT اولیه افزایش می‌یابد. مشابه مقادیر IFT اولیه، شکل ۴ نشان می‌دهد که IFT نهایی نیز با شوری افزایش می‌یابد و پس از رسیدن به حداکثر مقدار خود در 10DSW، سپس شروع به کاهش می‌کند. نتایج نشان می‌دهد که تفاوت دو مقدار IFT اولیه و نهایی در شوری‌های مختلف، متفاوت می‌باشد. دلیل اصلی این مشاهدات تغییر در ترکیب فاز نفت، به ویژه محتوای آسفالتین و ساختار آن است. محتوای آسفالتین در نفت خام را می‌توان به دو بخش تقسیم کرد: آسفالتین پایدار و ناپایدار. آسفالتین‌های ناپایدار (که دارای آروماتیکی کمتر، نسبت اتمی H/C، نسبت O/C بالاتر، عناصر فلزات سنگین بالاتر مانند غلظت آهن و طول زنجیره جانبی آلکیل کمتر و کاهش انشعاب هستند) قطبیت بالاتری از خود نشان می‌دهند و تمایل بیشتری به جذب دارند. [۸]، [۱۶]، [۳۱]، [۳۴] بنابراین، ذرات آسفالتین باقیمانده در نفت نهایی (یا نفت به تعادل رسیده) ساختار و مقادیر متفاوتی برای هر مورد دارند. برای اندازه‌گیری IFT اولیه، نمونه نفت مورد استفاده، نفت خام است و برای همه موارد یکسان است، در حالی که خواص آب نمک تغییر می‌کند. با این حال، هنگامی که IFT نهایی اندازه‌گیری می‌شود، خواص نفت و آب نمک متفاوت خواهد بود. به همین دلیل هنگامی که مقادیر میزان جذب اشعه و IFT نهایی در برابر شوری ترسیم می‌شود، تغییر در خواص نفت به تعادل رسیده منجر به اکستریم‌های مختلف می‌شود (شکل ۳ و ۴).

۲-۳ تأثیر وجود سنگ بر ناپایداری آسفالتین‌ها

۱-۲-۳ میزان جذب اشعه در صورت حضور سنگ بصورت فیزیکی و غیر فیزیکی

در این بخش، نتایج اثر همزمان حضور سنگ و شوری آب نمک بر پایداری آسفالتین ارائه شده است. اضافه شدن سنگ به سیستم منجر به ایجاد یک سطح جدید برای برهمکنش و جذب آسفالتین می‌شود. عامل فوق بر برهمکنش نفت/آب تأثیرگذار بوده و منجر به تغییر در میزان رسوب آسفالتین (میزان جذب اشعه) می‌گردد. شکل ۵ نتایج میزان جذب اشعه در مقابل درصد حجمی نرمال پنتان را برای فازهای آبی مختلف که قبلاً با پودر ماسه سنگ به تعادل رسیده اند نشان می‌دهد. نتایج نشان می‌دهد که در هر دو مورد، «حضور غیر فیزیکی ماسه سنگ» و «حضور فیزیکی ماسه سنگ» روندی مشابه با حالت «بدون ماسه سنگ» حاکم است. با این حال، میزان جذب اشعه بسته به نوع حضور ماسه سنگ (به صورت غیر فیزیکی یا فیزیکی) و همچنین خواص آب نمک متفاوت است. مشابه مورد "بدون ماسه سنگ"، در هر دو مورد "حضور غیر فیزیکی ماسه سنگ" و "حضور فیزیکی ماسه سنگ" میزان جذب اشعه در غلظت کم نرمال پنتان ثابت می‌ماند، به این معنی که آسفالتین

^۳ با تماس آب و نفت با یکدیگر و ایجاد پدیده پل یونی، آسفالتین موجود در نفت که در تماس با آب قرار گرفته در اثر حضور کاتیون‌های موجود در آب ناپایدار شده و میتواند باعث ایجاد پدیده شلات و تجمع آسفالتین گردد.

در مرحله سانتریفیوژ جدا نمی شود. با افزایش غلظت نرمال پنتان، محلول به نقطه شروع رسوب آسفالتین می رسد که با کاهش آشکار میزان جذب اشعه همراه است. همانطور که در شکل ۵ نشان داده شده است، تفاوت بین "حضور غیرفیزیکی ماسه سنگ" و "حضور فیزیکی ماسه سنگ" در شوری بالاتر ملموس تر است. این مشاهدات در بخش های ۲-۳ و ۳-۲-۳ بیشتر توضیح داده شده است. برای تجزیه و تحلیل بیشتر و مقایسه اثر حضور ماسه سنگ، مقادیر مربوط به قسمت های صاف منحنی ها در شکل ۵، در شکل ۶ نشان داده شده است. همانطور که در شکل ۶ مشاهده می شود، میزان جذب اشعه برای هر دو نوع حضور ماسه سنگ کاهش می یابد. این بدان معنی است که با وارد کردن ماسه سنگ به سیستم، آسفالتین بیشتری از نفت خارج می شود و به سطح مشترک آب/نفت یا سطح سنگ جذب می شود. لازم به ذکر است که این اثر برای آب نمک های کم شور (DW و 10DSW) به دلیل پدیده Salt in و Salt out که در بخش ۱-۳-۱ بیشتر توضیح داده خواهد شد، بیشتر است.

۲-۲-۳ مقدار آسفالتین ناپایدار در صورت حضور سنگ بصورت فیزیکی و غیر فیزیکی

روش تشریح شده در بخش ۲-۷-۳ برای تعیین میزان آسفالتین رسوب کرده روی سطح ماسه استفاده شد. همانطور که در جدول ۳ ارائه شده است، آسفالتین کمتری روی سطح سنگ در آب نمک های کم شور جذب می شود. هنگامی که ذرات سنگ به امولسیون اضافه می شوند، سطح سنگ به عنوان میزبان ذرات آسفالتین عمل می کند. جذب ذرات آسفالتین روی سطح سنگ به خوبی تحت تأثیر بار سطحی سنگ است.

همانطور که در شکل ۷ نشان داده شده است، پتانسیل زتا ذرات سنگ در تماس با آب نمک با افزایش شوری به مقداری مثبت تر تغییر می کند. علاوه بر این، از قبل مشخص شده است که وقتی عدد اسیدی کل (TAN) بالاتر از ۰.۵ میلی گرم KOH/g باشد، فاز نفتی اسیدی در نظر گرفته می شود و حاوی گروه های کربوکسیلیک بیشتری نسبت به گروه های آمین است. [۶۵] در نتیجه، در این مطالعه می توان بخش های نفت خام (مانند آسفالتین، رزین و ...) را دارای بار الکتریکی منفی در نظر گرفت که طی آن نیروی چسبندگی (الکترواستاتیک) بین سطح نفت و سنگ در شرایط شوری کم کاهش می یابد، زمانی که ذرات ماسه پتانسیل زتا منفی بیشتری را نشان می دهند، که میزان جذب آسفالتین را بر روی سطح سنگ محدود می کند. در نتیجه در آب نمک های کم شور بین دو حالت حضور سنگ بصورت فیزیکی و غیر فیزیکی تفاوت معنی داری وجود ندارد.

۳-۲-۳ نتایج IFT در صورت حضور سنگ بصورت فیزیکی و غیر فیزیکی

نتایج IFT بین نفت خام و آب نمک های مختلف (IFT اولیه) و IFT بین نفت به تعادل رسیده (نفت جدا شده پس از مرحله سانتریفیوژ) با آب نمک های مختلف (IFT نهایی) زمانی که ماسه به سیستم های امولسیون شده اضافه می شود در شکل ۸ ارائه شده است.

همانطور که در شکل ۸ ارائه شده است، با توجه به دلایلی که قبلاً ذکر شد، مشابه مورد "بدون ماسه سنگ"، IFT نهایی بالاتر از IFT اولیه است. نکته جالب در این مورد این است که IFT نهایی برای حالت بدون سنگ (نشان داده شده در شکل ۴) بیشتر از موارد با حضور ماسه سنگ است چراکه ذرات سنگ مشابه سورفکتانت عمل کرده و در سطح آب و نفت قرار می گیرند که در نتیجه باعث کاهش مقادیر کشش سطحی نسبت به حالت بدون سنگ می شوند.

نتیجه گیری

با توجه به اهمیت امکان آسیب سازندی در فرآیند سیلابزنی با آب کم شور و سایر روش های ازدیاد برداشتی مبتنی بر آب، هدف اصلی این پژوهش به بررسی اثر همزمان حضور سنگ و شوری آب نمک بر پایداری آسفالتین در سیستم های امولسیون شده اختصاص یافت. در این راستا مجموعه آزمایشهایی به صورت سیستماتیک با استفاده از نمونه های نفت خام و فازهای آبی مختلف (DW, 10DSW, 2DSW, SW و FW) انجام گرفت که با نام های مختلفی مانند "بدون ماسه سنگ"، "حضور غیرفیزیکی ماسه سنگ" و "حضور فیزیکی ماسه سنگ" در این گزارش آورده شده است. در این پژوهش یک دستورالعمل آزمایشی جدید بر اساس میزان جذب اشعه برای تحقق اهداف توسعه داده شد.

در مورد آزمایشات "بدون ماسه سنگ" که در آن فاز امولسیون بدون هیچ گونه اثر فاز جامد تولید شده است، نتایج زیر حاصل گردید:

✓ فاز نفت بدست آمده پس از سانتریفیوژ کردن نمونه های امولسیونی یا نفت نهایی دارای محتوای آسفالتین کمتری نسبت به نفت خام اولیه (بدون تماس با آب نمک)، بود و در نتیجه میزان جذب اشعه کمتر و مقدار IFT بالاتری را نشان داد.

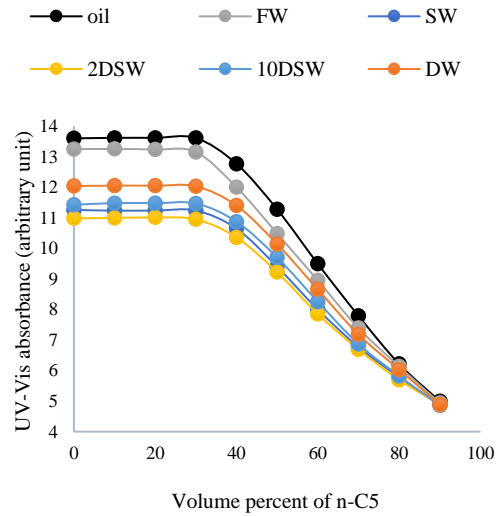
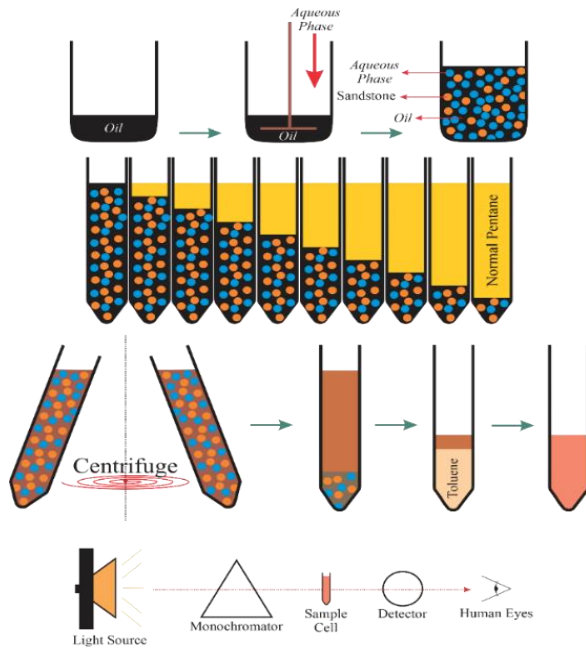
✓ در نمونه های نفت با محتوای آسفالتین بیشتر، میزان جذب اشعه بیشتری صورت گرفت و مقدار نهایی IFT پایین تر شد.

برای دو نمونه آزمایشات "حضور غیرفیزیکی ماسه سنگ" و "حضور فیزیکی ماسه سنگ" که در آن سنگ وجود داشت، نتایج زیر حاصل شد:

✓ انحلال ماسه سنگ منجر به افزایش pH و در نهایت به جذب بیشتر آسفالتین در سطح مشترک می انجامد که باعث کاهش میزان جذب اشعه توده نفت و کاهش IFT می گردد.

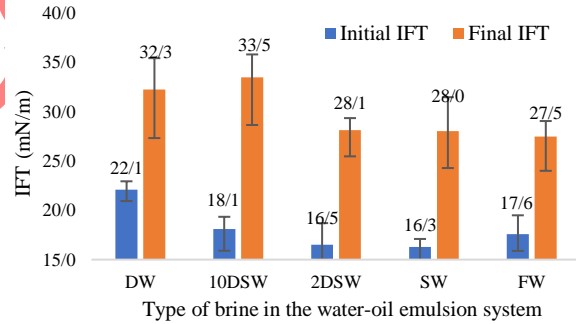
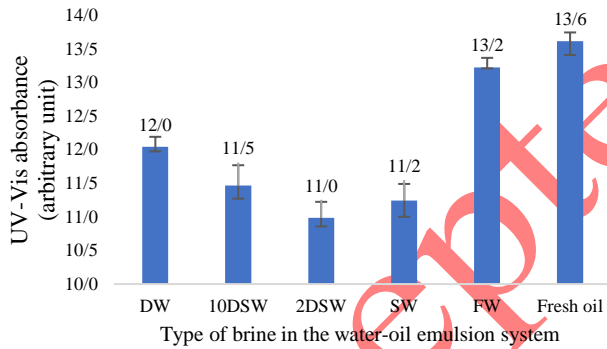
✓ وجود ماسه سنگ معلق به دلیل وجود سطوح جذب اضافی منجر به جدا شدن آسفالتین بیشتر از نفت می شود. نتایج نشان داد که اثر حضور سنگ در موارد شوری بالا ملموس تر است، زیرا در شوری بالا، نیروی چسبندگی، آسفالتین ها را به سطح ذرات ماسه پیوند داده در حالیکه در شوری های کمتر، بیشتر مولکول های آسفالتین در سطح مشترک آب نمک/نفت تجمع می یابند. نتایج این آزمایشات به درک بهتر نقش سنگ در ناپایداری آسفالتین در تزریق آب کم شور می انجامد و امکان تعیین میزان تاثیر این چالش در شرایط واقعی تری را به دست می دهد. این یافته های جدید همچنین می تواند به پیش بینی آسیب ارگانیک در سیلابزنی با آب کم شور در مخازن کربناته که دارای لایه های ماسه ای نیز می باشند کمک نماید. در مطالعات آتی و برای شبیه سازی بیشتر آزمایشگاهی این مجموعه از تست ها و بررسی اهمیت نقش وجود سنگ، تزریق در محیط های متخلخل ماسه سنگی در دستور کار قرار دارد.

اشکال و جداول



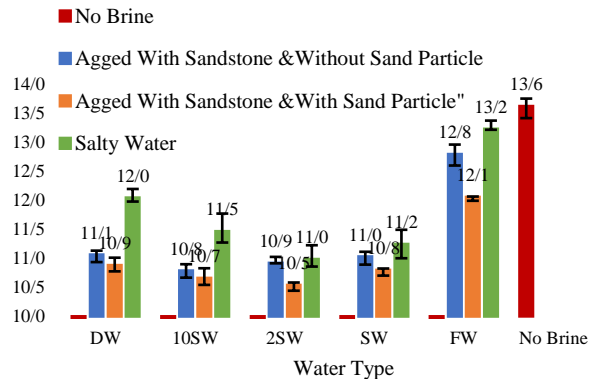
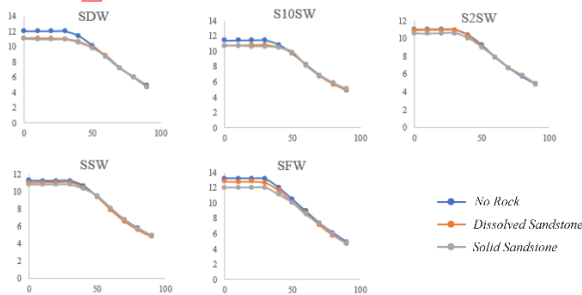
شکل ۱- شماتیک روش غیر مستقیم توسعه یافته برای بررسی پایداری آسفالتین در آب در سیستم های امولسیون شده نفت

شکل ۲ - میزان جذب اشعه برای امولسیون های مختلف آب نمک به عنوان تابعی از درصد حجمی نرمال پنتان

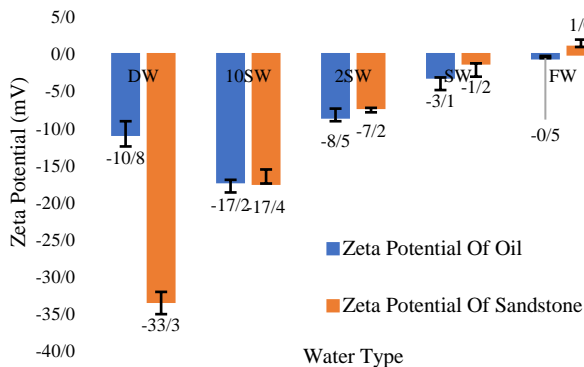


شکل ۳- میزان جذب اشعه برای سیستم های امولسیونی مختلف

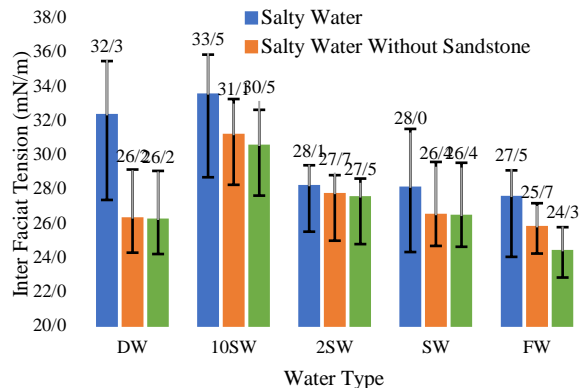
شکل ۴- IFT بین نفت خام و آب نمک های مختلف (IFT اولیه)، و IFT بین نفت به تعادل رسیده (نفت جدا شده پس از مرحله سانتریفیوژ) با آب نمک های مختلف (IFT نهایی)



شکل ۵- نتایج میزان جذب اشعه در مقابل درصد حجمی نرمال پنتان برای نفت جدا شده از سیستم های مختلف امولسیون نفت و آب نمک زمانی که ماسه سنگ در سیستم حضور دارد



شکل ۶- میزان جذب اشعه برای نفت جدا شده از سیستم های مختلف امولسیون نفت و آب نمک، همراه یا بدون سنگ



شکل ۷- پتانسیل زتا ماسه سنگ / آب نمک برای آب نمک های مختلف

شکل ۸- IFT بین نفت خام و آب نمک های مختلف (IFT اولیه) و IFT بین نفت به تعادل رسیده (نفت جدا شده پس از مرحله سانتریفیوژ) با آب نمک های متفاوت (IFT نهایی) همراه با حضور ماسه

جدول ۱- غلظت نمک برای فازهای آب متفاوت مورد استفاده در ساخت امولسیون

نوع نمک	NaCl	KCl	CaCl ₂ .2H ₂ O	MgCl ₂ .6H ₂ O	Na ₂ SO ₂	NaHCO ₃	شوری کل (ppm)	pH آب نمک	pH بعد از تعادل با ماسه
DW	-	-	-	-	-	-	۰	۶/۴	۱۰/۲
10DSW	۲/۵۵۸	۰/۱۱۲	۰/۱۷۶	۱/۱۹۹	۰/۶۸۲	۰/۰۳۴	۴۷۶۱	۶/۹	۸/۱
2DSW	۱۲/۷۸۸	۰/۵۵۹	۰/۸۸۲	۵/۹۹۷	۴/۴۰۹	۰/۱۶۸	۲۳۸۰۴	۷/۹۵	۸/۱
SW	۲۵/۵۷۶	۱/۱۱۸	۱/۷۶۴	۱۱/۹۹۵	۶/۸۱۸	۰/۳۳۶	۴۷۶۰۷	۷/۹۶	۷/۸
FW	۱۵۴/۰۳۱	۱/۱۹۳	۲۴/۱۱۰	۸/۹۳۳	۰/۴۲۶	۰/۶۷۲	۱۸۹۳۶۵	۶/۷	۶/۹

جدول ۲- خصوصیات نفت خام مورد استفاده در این پژوهش

عدد اسیدی کل (mg KOH/gr oil)	۰/۱۱	رزین (wt%)	۷/۵
دانسیته در ۲۵ °C (gr/cc)	۰/۸۴	آروماتیک (wt%)	۲۰/۵
ویسکوزیته در ۲۵ °C (cp)	۷/۵	آشباع (wt%)	۷۰/۵
آسفالتین (wt%)	۱/۵		

جدول ۳- میزان آسفالتین جذب شده روی سطح سنگ برای موارد مختلف

FW	SW	2DSW	10DSW	DW	نوع آب
۱/۴۳۷	۰/۰۳۶	۰/۰۱۲	۰	۰	میکرو گرم آسفالتین به ازای ۱۰۰ میلی بیتر تلون

- [1] M. Tavakkoli et al., "Indirect method: A novel technique for experimental determination of asphaltene precipitation," *Energy and Fuels*, vol. 29, no. 5, pp. 2890–2900, May 2015, doi: 10.1021/EF502188U.
- [2] F. Shojaati, S. H. Mousavi, M. Riazi, F. Torabi, and M. Osat, "Investigating the Effect of Salinity on the Behavior of Asphaltene Precipitation in the Presence of Emulsified Water," *Ind Eng Chem Res*, vol. 56, no. 48, pp. 14362–14368, Dec. 2017, doi: 10.1021/ACS.IECR.7B03331.
- [3] H. Farhadi, S. Ayatollahi, and M. Fatemi, "The effect of brine salinity and oil components on dynamic IFT behavior of oil-brine during low salinity water flooding: Diffusion coefficient, EDL establishment time, and IFT reduction rate," *J Pet Sci Eng*, vol. 196, p. 107862, Jan. 2021, doi: 10.1016/j.petrol.2020.107862.
- [4] M. Lashkarbolooki, S. Ayatollahi, and M. Riazi, "Effect of salinity, resin, and asphaltene on the surface properties of acidic crude oil/smart water/rock system," *Energy and Fuels*, vol. 28, no. 11, pp. 6820–6829, Nov. 2014, doi: 10.1021/EF5015692.
- [5] M. Lashkarbolooki, S. Ayatollahi, and M. Riazi, "The impacts of aqueous ions on interfacial tension and wettability of an asphaltenic-acidic crude oil reservoir during smart water injection," *J Chem Eng Data*, vol. 59, no. 11, pp. 3624–3634, Nov. 2014, doi: 10.1021/JE500730E.
- [6] M. Salehpour, Z. Sakhaei, R. Salehinezhad, H. Mahani, and M. Riazi, "Contribution of water-in-oil emulsion formation and pressure fluctuations to low salinity waterflooding of asphaltic oils: A pore-scale perspective," *J Pet Sci Eng*, vol. 203, p. 108597, Aug. 2021, doi: 10.1016/j.petrol.2021.108597.
- [7] E. Joonaki, A. Hassanpour Youzband, R. Burgass, and B. Tohidi, "Effect of water chemistry on asphaltene stabilised water in oil emulsions - A new search for low salinity water injection mechanism," 79th EAGE Conference and Exhibition 2017, vol. 2017, no. 1, pp. 1–5, Jun. 2017, doi: 10.3997/2214-4609.201701297/CITE/REFWORKS.
- [8] B. Shahsavani, M. Riazi, and M. R. Malayeri, "Asphaltene instability in the presence of emulsified aqueous phase," *Fuel*, vol. 305, p. 121528, Dec. 2021, doi: 10.1016/j.fuel.2021.121528.
- [9] X. Tan, H. Fenniri, and M. R. Gray, "Water enhances the aggregation of model asphaltenes in solution via hydrogen bonding," *Energy and Fuels*, vol. 23, no. 7, pp. 3687–3693, Jul. 2009, doi: 10.1021/EF900228S.
- [10] N. N. Nassar, A. Hassan, and P. Pereira-Almao, "Effect of surface acidity and basicity of aluminas on asphaltene adsorption and oxidation," *J Colloid Interface Sci*, vol. 360, no. 1, pp. 233–238, Aug. 2011, doi: 10.1016/j.jcis.2011.04.056.
- [11] S. Ashoori and A. Balavi, "An Investigation of Asphaltene Precipitation During Natural Production and the CO₂ Injection Process," <http://dx.doi.org/10.1080/10916466.2011.633590>, vol. 32, no. 11, pp. 1283–1290, Jun. 2014, doi: 10.1080/10916466.2011.633590.
- [12] C. Hu, J. C. Sabio, A. Yen, N. Joshi, and R. L. Hartman, "Role of water on the precipitation and deposition of asphaltenes in packed-bed microreactors," *Ind Eng Chem Res*, vol. 54, no. 16, pp. 4103–4112, Apr. 2015, doi: 10.1021/IE5038775.
- [13] C. Hu et al., "Interfacial Properties of Asphaltenes at the Heptol-Brine Interface," *Energy and Fuels*, vol. 30, no. 1, pp. 80–87, Jan. 2016, doi: 10.1021/ACS.ENERGYFUELS.5B01855.

- [14] F. Shojaati, S. H. Mousavi, M. Riazi, F. Torabi, and M. Osat, "Investigating the Effect of Salinity on the Behavior of Asphaltene Precipitation in the Presence of Emulsified Water," *Ind Eng Chem Res*, vol. 56, no. 48, pp. 14362–14368, Dec. 2017, doi: 10.1021/ACS.IECR.7B03331/SUPPL_FILE/IE7B03331_SI_001.PDF.
- [15] V. Azari, E. Abolghasemi, A. Hosseini, S. Ayatollahi, and F. Dehghani, "Electrokinetic properties of asphaltene colloidal particles: Determining the electric charge using micro electrophoresis technique," *Colloids Surf A Physicochem Eng Asp*, vol. 541, pp. 68–77, Mar. 2018, doi: 10.1016/J.COLSURFA.2018.01.029.
- [16] E. Joonaki, J. Buckman, R. Burgass, and B. Tohidi, "Water versus Asphaltenes; Liquid–Liquid and Solid–Liquid Molecular Interactions Unravel the Mechanisms behind an Improved Oil Recovery Methodology," *Scientific Reports* 2019 9:1, vol. 9, no. 1, pp. 1–13, Aug. 2019, doi: 10.1038/s41598-019-47782-5.
- [17] Z. Taherian, A. Saeedi Dehaghani, S. Ayatollahi, and R. Kharrat, "The mechanistic investigation on the effect of the crude oil /brine interaction on the interface properties: A study on asphaltene structure," *J Mol Liq*, vol. 360, p. 119495, Aug. 2022, doi: 10.1016/j.molliq.2022.119495.
- [18] J. Ghasemian, S. Riahi, S. Ayatollahi, and R. Mokhtari, "Effect of salinity and ion type on formation damage due to inorganic scale deposition and introducing optimum salinity," *J Pet Sci Eng*, vol. 177, pp. 270–281, Jun. 2019, doi: 10.1016/J.PETROL.2019.02.019.
- [19] M. A. Ali and M. R. Islam, "The Effect of Asphaltene Precipitation on Carbonate-Rock Permeability: An Experimental and Numerical Approach," *SPE Production & Facilities*, vol. 13, no. 03, pp. 178–183, Aug. 1998, doi: 10.2118/50963-PA.
- [20] T. Jafari Behbahani, C. Ghotbi, V. Taghikhani, and A. Shahrabadi, "Asphaltene deposition under dynamic conditions in porous media: Theoretical and experimental investigation," *Energy and Fuels*, vol. 27, no. 2, pp. 622–639, Feb. 2013, doi: 10.1021/EF3017255.
- [21] A. Kordestany, H. Hassanzadeh, and J. Abedi, "An experimental approach to investigating permeability reduction caused by solvent-induced asphaltene deposition in porous media," *Canadian Journal of Chemical Engineering*, vol. 97, no. 1, pp. 361–371, Jan. 2019, doi: 10.1002/CJCE.23238.
- [22] M. Mansouri, Y. Ahmadi, and E. Jafarbeigi, "Introducing a new method of using nanocomposites for preventing asphaltene aggregation during real static and dynamic natural depletion tests," *Energy Sources, Part A: Recovery, Utilization and Environmental Effects*, vol. 44, no. 3, pp. 7499–7513, 2022, doi: 10.1080/15567036.2022.2113937.
- [23] Y. Fan, S. Simon, J. S.-C. and S. A. P. and, and undefined 2010, "Interfacial shear rheology of asphaltenes at oil–water interface and its relation to emulsion stability: Influence of concentration, solvent aromaticity and nonionic," *Elsevier*, vol. 366, pp. 120–128, 2010, doi: 10.1016/j.colsurfa.2010.05.034.
- [24] S. U. Pickering, "CXCVI.—Emulsions," *Journal of the Chemical Society, Transactions*, vol. 91, no. 0, pp. 2001–2021, Jan. 1907, doi: 10.1039/CT9079102001.
- [25] D. D. Eley, M. J. Hey, and J. D. Symonds, "Emulsions of water in asphaltene-containing oils 1. Droplet size distribution and emulsification rates," *Colloids and Surfaces*, vol. 32, pp. 87–101, Jan. 1988, doi: 10.1016/0166-6622(88)80006-4.

- [26] Y. Chevalier and M.-A. Bolzinger, "Emulsions stabilized with solid nanoparticles: Pickering emulsions," *Colloids Surf A Physicochem Eng Asp*, vol. 439, pp. 23–34, Dec. 2013, doi: 10.1016/j.colsurfa.2013.02.054.
- [27] Z. Wang, T. Babadagli, and N. Maeda, "Generation of pickering emulsions by activating natural asphaltenes as nano materials: An experimental analysis for cost-effective heavy-oil recovery," *J Mol Liq*, vol. 339, p. 116759, Oct. 2021, doi: 10.1016/J.MOLLIQ.2021.116759.
- [28] R. Aveyard, B. P. Binks, and J. H. Clint, "Emulsions stabilised solely by colloidal particles," *Adv Colloid Interface Sci*, vol. 100–102, pp. 503–546, Feb. 2003, doi: 10.1016/S0001-8686(02)00069-6.
- [29] B. P. Binks and S. O. Lumsdon, "Stability of oil-in-water emulsions stabilised by silica particles," *Physical Chemistry Chemical Physics*, vol. 1, no. 12, pp. 3007–3016, 1999, doi: 10.1039/a902209k.
- [30] B. P. Binks, "Particles as surfactants—similarities and differences," *Curr Opin Colloid Interface Sci*, vol. 7, no. 1–2, pp. 21–41, Mar. 2002, doi: 10.1016/S1359-0294(02)00008-0.
- [31] A. K. Tharanivasan, H. W. Yarranton, and S. D. Taylor, "Asphaltene Precipitation from Crude Oils in the Presence of Emulsified Water," *Energy & Fuels*, vol. 26, no. 11, pp. 6869–6875, Nov. 2012, doi: 10.1021/ef301200v.
- [32] J. Wang, T. Fan, J. S. Buckley, and J. L. Creek, "Impact of Water Cut on Asphaltene Deposition Tendency," in *Day 2 Tue, May 06, 2014, OTC, May 2014*. doi: 10.4043/25411-MS.
- [33] M. Tavakkoli et al., "Indirect Method: A Novel Technique for Experimental Determination of Asphaltene Precipitation," *Energy & Fuels*, vol. 29, no. 5, pp. 2890–2900, May 2015, doi: 10.1021/ef502188u.
- [34] M. Tavakkoli et al., "Effect of Emulsified Water on Asphaltene Instability in Crude Oils," *Energy and Fuels*, vol. 30, no. 5, pp. 3676–3686, May 2016, doi: 10.1021/ACS.ENERGYFUELS.5B02180.
- [35] J. A. Rocha et al., "Role of Aqueous Phase Chemistry, Interfacial Film Properties, and Surface Coverage in Stabilizing Water-in-Bitumen Emulsions," *Energy & Fuels*, vol. 30, no. 7, pp. 5240–5252, Jul. 2016, doi: 10.1021/acs.energyfuels.6b00114.
- [36] A. B. Demir, H. I. Bilgesu, and B. Hascakir, "The Effect of Clay and Salinity on Asphaltene Stability," in *All Days, SPE, May 2016*. doi: 10.2118/180425-MS.
- [37] A. Ameri, F. Esmacilzadeh, and D. Mowla, "Effect of low-salinity water on asphaltene precipitation," *J Dispers Sci Technol*, vol. 39, no. 7, pp. 1031–1039, Jul. 2018, doi: 10.1080/01932691.2017.1381616.
- [38] R. Mokhtari and S. Ayatollahi, "Dissociation of polar oil components in low salinity water and its impact on crude oil–brine interfacial interactions and physical properties," *Pet Sci*, vol. 16, no. 2, pp. 328–343, Apr. 2019, doi: 10.1007/s12182-018-0275-5.
- [39] E. Joonaki, J. Buckman, R. Burgass, and B. Tohidi, "Water versus Asphaltenes; Liquid–Liquid and Solid–Liquid Molecular Interactions Unravel the Mechanisms behind an Improved Oil Recovery Methodology," *Sci Rep*, vol. 9, no. 1, p. 11369, Aug. 2019, doi: 10.1038/s41598-019-47782-5.
- [40] S. Saraji, L. Goual, and M. Piri, "Dynamic adsorption of asphaltenes on quartz and calcite packs in the presence of brine films," *Colloids Surf A Physicochem Eng Asp*, vol. 434, pp. 260–267, Oct. 2013, doi: 10.1016/j.colsurfa.2013.05.070.

- [41] R. Monjezi, C. Ghotbi, T. Jafari Behbahani, and P. Bakhshi, "Experimental investigation of dynamic asphaltene adsorption on calcite packs: The impact of single and mixed-salt brine films," *Can J Chem Eng*, vol. 97, no. 7, pp. 2028–2038, Jul. 2019, doi: 10.1002/cjce.23441.
- [42] A. Hosseini et al., "Electrokinetic behavior of asphaltene particles," *Fuel*, vol. 178, pp. 234–242, Aug. 2016, doi: 10.1016/j.fuel.2016.03.051.
- [43] M. B. Alotaibi, H. A. Nasr-El-Din, and J. J. Fletcher, "Electrokinetics of Limestone and Dolomite Rock Particles," *SPE Reservoir Evaluation & Engineering*, vol. 14, no. 05, pp. 594–603, Oct. 2011, doi: 10.2118/148701-PA.
- [44] M. B. . B. Alotaibi, R. A. . A. Nasralla, and H. A. . A. Nasr-El-Din, "Wettability Studies Using Low-Salinity Water in Sandstone Reservoirs," *SPE Reservoir Evaluation & Engineering*, vol. 14, no. 06, pp. 713–725, Dec. 2011, doi: 10.2118/149942-PA.
- [45] H. Mahani, A. L. Keya, S. Berg, W. B. Bartels, R. Nasralla, and W. R. Rossen, "Insights into the mechanism of wettability alteration by low-salinity flooding (LSF) in carbonates," *Energy and Fuels*, vol. 29, no. 3, pp. 1352–1367, Mar. 2015, doi: 10.1021/EF5023847.
- [46] H. . Mahani, S. . Berg, D. . Ilic, W.-B. .-B. Bartels, and V. . Joeekar-Niasar, "Kinetics of Low-Salinity-Flooding Effect," *SPE Journal*, vol. 20, no. 01, pp. 8–20, Feb. 2015, doi: 10.2118/165255-PA.
- [47] E. W. Al-Shalabi and B. Ghosh, "Effect of Pore-Scale Heterogeneity and Capillary-Viscous Fingering on Commingled Waterflood Oil Recovery in Stratified Porous Media," *Journal of Petroleum Engineering*, vol. 2016, pp. 1–14, May 2016, doi: 10.1155/2016/1708929.
- [48] P. Ahmadi, H. Asaadian, A. Khadivi, and S. Kord, "A new approach for determination of carbonate rock electrostatic double layer variation towards wettability alteration," *J Mol Liq*, vol. 275, pp. 682–698, Feb. 2019, doi: 10.1016/j.molliq.2018.11.106.
- [49] J.-W. Kim, D. Lee, H. C. Shum, and D. A. Weitz, "Colloid Surfactants for Emulsion Stabilization," *Advanced Materials*, vol. 20, no. 17, pp. 3239–3243, Sep. 2008, doi: 10.1002/adma.200800484.
- [50] D. Hirsemann et al., "Large-Scale, Low-Cost Fabrication of Janus-Type Emulsifiers by Selective Decoration of Natural Kaolinite Platelets," *Angewandte Chemie International Edition*, vol. 51, no. 6, pp. 1348–1352, Feb. 2012, doi: 10.1002/anie.201106710.
- [51] B. Diar-Bakerly, D. Hirsemann, H. Kalo, R. Schobert, and J. Breu, "Modification of kaolinite by Grafting of siderophilic ligands to the external octahedral surface," *Appl Clay Sci*, vol. 90, pp. 67–72, Mar. 2014, doi: 10.1016/j.clay.2013.12.020.
- [52] S. Liang et al., "Selective modification of kaolinite with vinyltrimethoxysilane for stabilization of Pickering emulsions," *Appl Clay Sci*, vol. 161, pp. 282–289, Sep. 2018, doi: 10.1016/j.clay.2018.04.038.
- [53] D. E. Tambe and M. M. Sharma, "The effect of colloidal particles on fluid-fluid interfacial properties and emulsion stability," *Adv Colloid Interface Sci*, vol. 52, pp. 1–63, Sep. 1994, doi: 10.1016/0001-8686(94)80039-1.
- [54] D. Kpogbemabou, G. Lecomte-Nana, A. Aimable, M. Bienia, V. Niknam, and C. Carrion, "Oil-in-water Pickering emulsions stabilized by phyllosilicates at high solid content," *Colloids Surf A Physicochem Eng Asp*, vol. 463, pp. 85–92, Dec. 2014, doi: 10.1016/j.colsurfa.2014.09.037.

- [55] X. Cai et al., "Assembling kaolinite nanotube at water/oil interface for enhancing Pickering emulsion stability," *Appl Clay Sci*, vol. 172, pp. 115–122, May 2019, doi: 10.1016/j.clay.2019.02.021.
- [56] "IP 143/84, 1989, 'Standard Methods for Analysis and Testing of Petroleum and Related Products'."
- [57] T. Mohammad, C. Andrew, S. Chi-An, and L. Jin, "Effect of Emulsified Water on Asphaltene Instability in Crude Oils," 2016, Accessed: Feb. 10, 2023. [Online]. Available: <https://pubag.nal.usda.gov/catalog/5343245>
- [58] F. M. Vargas et al., "On the Development of an Enhanced Method to Predict Asphaltene Precipitation," in *Day 2 Tue*, May 06, 2014, OTC, May 2014. doi: 10.4043/25294-MS.
- [59] M. Lashkarbolooki, M. Riazi, and S. Ayatollahi, "Investigation of effects of salinity, temperature, pressure, and crude oil type on the dynamic interfacial tensions," *Chemical Engineering Research and Design*, vol. 115, pp. 53–65, Nov. 2016, doi: 10.1016/j.cherd.2016.09.020.
- [60] R. Mokhtari, A. Hosseini, M. Fatemi, S. I. Andersen, and S. Ayatollahi, "Asphaltene destabilization in the presence of an aqueous phase: The effects of salinity, ion type, and contact time," *J Pet Sci Eng*, vol. 208, p. 109757, Jan. 2022, doi: 10.1016/j.petrol.2021.109757.
- [61] F. Moeini, A. Hemmati-Sarapardeh, M.-H. Ghazanfari, M. Masihi, and S. Ayatollahi, "Toward mechanistic understanding of heavy crude oil/brine interfacial tension: The roles of salinity, temperature and pressure," *Fluid Phase Equilib*, vol. 375, pp. 191–200, Aug. 2014, doi: 10.1016/j.fluid.2014.04.017.
- [62] M. Lashkarbolooki and S. Ayatollahi, "The effects of pH, acidity, asphaltene and resin fraction on crude oil/water interfacial tension," *J Pet Sci Eng*, vol. 162, pp. 341–347, Mar. 2018, doi: 10.1016/j.petrol.2017.12.061.
- [63] H. Farhadi, M. Fatemi, and S. Ayatollahi, "Experimental investigation on the dominating fluid-fluid and rock-fluid interactions during low salinity water flooding in water-wet and oil-wet calcites," *J Pet Sci Eng*, vol. 204, p. 108697, Sep. 2021, doi: 10.1016/j.petrol.2021.108697.
- [64] H. Farhadi, S. Ayatollahi, and M. Fatemi, "The effect of brine salinity and oil components on dynamic IFT behavior of oil-brine during low salinity water flooding: Diffusion coefficient, EDL establishment time, and IFT reduction rate," *J Pet Sci Eng*, vol. 196, p. 107862, Jan. 2021, doi: 10.1016/j.petrol.2020.107862.
- [65] M. Lashkarbolooki, M. Riazi, F. Hajibagheri, and S. Ayatollahi, "Low salinity injection into asphaltenic-carbonate oil reservoir, mechanistical study," *J Mol Liq*, vol. 216, pp. 377–386, Apr. 2016, doi: 10.1016/j.molliq.2016.01.051.

The Effect of Brine Salinity and sand particles on asphaltene instability during low-salinity waterflooding

Abstract

Low-salinity or engineered salinity waterflooding is one of the enhanced oil recovery methods, particularly for the carbonate fields in Iran and around the world. Alongside its numerous benefits, evaluating the side effects such as formation damage due to asphaltene instability and deposition is of paramount importance. Until now, research in this area has primarily focused on the investigation of oil-brine interactions, neglecting the influence of the presence of rock as an essential parameter. Therefore, in this paper, to bring the laboratory tests closer to reservoir conditions, the effect of rock presence was examined by creating contact between brine/fluid/sandstone grains and measuring the UV absorption of bulk oil before and after contact with rock and brine. In this regard a new “indirect” procedure was developed through which the amount of asphaltene deposition in the presence of various brines was determined. Our results indicate that asphaltene deposition follows a non-monotonic trend with salinity, such that it increases at low salinities and decreases at high salinities, and reaches a minimum value at a middle salinity. The results also show that in the presence of two times diluted seawater, more asphaltene deposition occurs compared to other brines. Adding sandstone particles to the oil-brine system increases the amount of asphaltene deposition due to the creation of a new physical surface for asphaltene adsorption due to the influence of electrostatic forces. Detailed examination of the sand particles reveals that the higher the brine salinity, the higher the asphaltene deposition occurs on the particles; with formation brine leading to the highest asphaltene deposition on the particles (over 1.4 micrograms per gram sand). These experimental results contribute to the understanding of the role of sandstone particles on asphaltene instability during low-salinity waterflooding and provide a more accurate way of evaluating asphaltene deposition at more realistic conditions.

Keywords: 1- Asphaltene precipitation, 2-Sandstone particles, 3-Enhanced Oil Recovery, 4- Low salinity waterflooding, 5- Emulsion instability, 6-UV spectroscopy