



Research Paper

Petroleum Research

Petroleum Research, 2026 (February-March), Vol. 35, No. 145, 44-46

DOI: 10.22078/pr.2024.5383.3395

Laboratory Investigation of the Effects of Surfactant Release in a Sandstone Reservoir on Increasing Oil Recovery in Tertiary Injection of Foam Stabilized with a Mixture of Surfactant and Nanoparticles

Mahdi Nazari Saram

Department of Petroleum, Mining and Materials, CT.C, Islamic Azad University, Tehran, Iran

mahdinazarisaram@iaui.ac.ir

DOI: 10.22078/pr.2024.5383.3395

Received: February 13, 2024

Modify Date: August 04, 2024

Accepted: September 07, 2024

Introduction

Miscible gas injection is a common Enhanced Oil Recovery (EOR) method [1]. The primary mechanisms for increasing oil production in this method are viscosity reduction and oil swelling through multi-contact mixing [2]. However, a major challenge associated with this injection technique is the high mobility of the injected gas relative to the reservoir oil, which leads to (1) fingering, (2) low sweep efficiency, and (3) early gas breakthrough [3-5]. One of the relatively cheaper ways to improve the viscosity of carbon dioxide is to foam it. Foam can improve the mobility of the injection phase by increasing the apparent viscosity of the gas or improving the wettability of the reservoir rock toward a more water wetness.

The literature state that in addition to the interaction between surfactant and nanoparticle, the hysteresis related to the injection sequence affects the foam recovery. Therefore, in the current study, injection of foam stabilized with different foam agents is performed in both secondary and tertiary modes. To investigate the reason for the observed hysteresis, the mentioned sequences were implemented in the sessile drop method to observe the wettability changes over

time. Wettability changes in the contact angle device will be representative of the convection and diffusion regime occurring in the real porous media.

Materials and Methods

Materials

Calcium carbonate nanoparticles with a diameter of 15 nm were purchased from NANO SHEL as a solid powder. Sodium dodecyl sulfate (SDS), an anionic surfactant, was also purchased in powder form from Merck. The critical concentration of this surfactant is equal to 0.04 wt.%. In this study, deionized water with conductivity less than 5 micro siemens was used as the solvent of surfactant and nanoparticle. The oil sample used in this study was sourced from an Iranian oil field. After filtration, we measured its viscosity and density as 6 cP and 0.81 g/cm³, respectively. Also, in this study, glass bids were used as a representative of the sandstone reservoir [3].

IFT Measurement

Pendant drop method was used for IFT measurement in this study. Each experiment repeated three times to ensure the repeatability of the IFT measurement.

Contact Angle Measurement

In this study, the sessile drop technique was used to determine the contact angle of the limestone/crude oil/brine system. To age the rock, a thin section was first immersed in water for 2 days and then in oil for 21 days at 70 °C. Core flooding Experiment

Nano fluid, surfactant solution, and the mixture surfactant and nanoparticle were injected in an oil-wet glass bid porous media in secondary and tertiary mode. The selection of solution samples was performed using the results of other experiments such as the IFT and the contact angle measurement.

Results and Discussion

Core flooding Results

Fig.1 shows the tertiary recover factor of 0.1 wt.% of the nanoparticle.

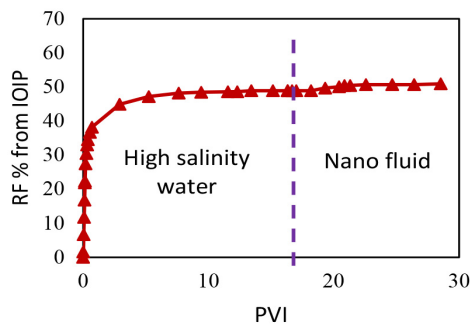


Fig. 1 Recovery factor versus injected pore volumes in tertiary mode for Nano fluid stabilized foam.

Fig. 2 shows the tertiary recover factor of 0.1 wt. % of nanoparticle + 1 CMC of surfactant.

Based on the results, the nanoparticle-surfactant stabilized foam with high adsorption recovers the most oil followed by nanoparticle-surfactant stabilized foam with low adsorption and Nano fluid, respectively. Moreover, in Fig. 3, recovery factor versus injected pore volumes in tertiary mode nanoparticle-surfactant stabilized foam with high adsorption is shown.

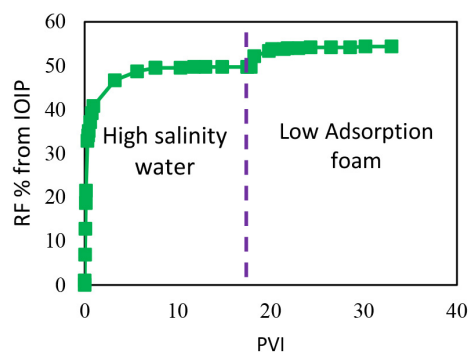


Fig. 2 Recovery factor versus injected pore volumes in tertiary mode nanoparticle-surfactant stabilized foam with low adsorption.

Based on the results, the nanoparticle-surfactant stabilized foam with high adsorption recovers the most oil followed by nanoparticle-surfactant stabilized foam with low adsorption and Nano fluid, respectively. Moreover, in Fig. 3, recovery factor versus injected pore volumes in tertiary mode nanoparticle-surfactant stabilized foam with high adsorption is shown.

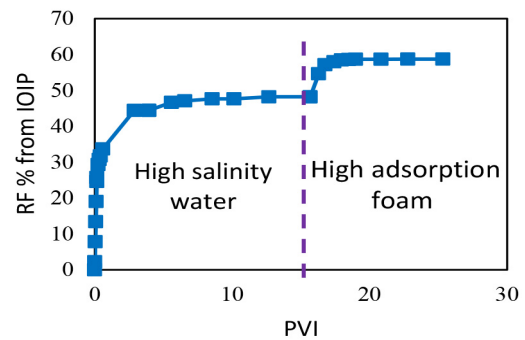


Fig. 3 Recovery factor versus injected pore volumes in tertiary mode nanoparticle-surfactant stabilized foam with high adsorption.

The Effect of Interfacial Tension

Based on the manuscript, the change in interfacial tension (IFT) by adding nanoparticle to the surfactant solution is due to the adsorption of surfactants on the surface of nanoparticles. The maximum adsorption occurred at 1 CMC of surfactant and 0.1 wt. % of nanoparticle. The low adsorption was observed at 0.5 and 1.5 CMC of surfactant.

The Effect of Wettability Alteration

As shown in Fig. 4, the most change in wettability also belongs to the high adsorption foam.



Fig. 4 The change in the contact angle from the initial state [left] to the equilibrium [right] for high adsorption foam.

Conclusions

This study provide insight into the interaction between nanoparticles and surfactants as well as the hysteresis of the foam injection sequence are investigated. For this purpose, secondary and tertiary core injection experiments were performed on synthetic glass core to investigate the oil recovery behavior of foam stabilized with calcium carbonate nanoparticles and SDS surfactant in sandstone reservoirs. According to the results, the secondary oil recovery by foam stabilized with a mixture of 0.04 wt.% of surfactant

and 0.1% w of nanoparticles is significantly higher than the foam stabilized with counterpart nanoparticle and surfactant. In all cases, tertiary oil recovery was significantly lower than the tertiary mode. This phenomenon was attributed to the diffusion regime governing tertiary recovery compared to the convective regime in the secondary injection. In order to prove this hypothesis, the aging process performed in the core injection experiments was repeated in the contact angle device. In the diffusion regime, the Nano fluid could not change the wettability of the glass to more water-wetness. The surfactant solution reduced the glass oil-wetness by only 5 degrees. The mixture of surfactant and nanoparticles brought this change in wettability to 16. The Nano fluid, surfactant solution, and mixture of surfactant and nanoparticles brought the initial wettability of about The values dropped from 150° to 76°, 45°, and 23°, respectively, which confirms a higher rate of the convective regime in the wettability alteration process.. Based on surface tension experiments, the superior behavior of the surfactant and nanoparticle mixture was attributed to the adsorption of surfactant molecules on the nanoparticles and the surface activation of the nanoparticles.

References

1. Luo P., Zhang Y., Wang X., and Huang S., (2012) Propane-enriched CO₂ immiscible flooding for improved heavy oil recovery,” *Energy & fuels*, 26, (4), 2124–2135.
2. Lake L. W., Johns R., Rossen W. R., and Pope G. A. (2014). *Fundamentals of enhanced oil recovery*.
3. Anazadehsayed A., Rezaee N., Naser J., and Nguyen A. V. (2018). A review of aqueous foam in microscale, *Advances in colloid and interface science*, 256, 203–229.
4. Fu C., Yu J. and Liu N. (2018). Nanoparticle-stabilized CO₂ foam for waterflooded residual oil recovery, *Fuel*, 234, 809–813.
5. Hurtado Y., Franco C. A., Riazi M. and Cortés F. B. (2020). Improving the stability of nitrogen foams using silica nanoparticles coated with polyethylene glycol, *Journal of Molecular Liquids*, 300, 112256.

واکاوی آزمایشگاهی تاثیر انتشار مواد فعال سطحی بر ازدیاد برداشت نفت در تزریق ثانویه فوم تثبیت شده با مخلوط سورفکتانت و نانوذره در یک شبیه‌سازی مخزن ماسه سنگی

مهدی نظری صارم

گروه مهندسی نفت، معدن و مواد، دانشکده عمران و منابع زمین، دانشگاه آزاد اسلامی واحد تهران مرکزی، تهران، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۲/۱۱/۲۴ تاریخ تغییر: ۱۴۰۳/۰۵/۱۴ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۳/۰۶/۱۷

چکیده

تزریق فوم تثبیت شده با نانوذرات به دلیل پایداری بالای آن مورد توجه صنعت نفت قرار گرفته است. در این مطالعه، برهمکنش میان نانوذرات و سورفکتانت و همچنین هیستریسیس توالی تزریق فوم مورد بررسی قرار می‌گیرد. به همین منظور، آزمایش تزریق مغزه ثانویه و ثالثیه در مغزه‌ی مصنوعی از جنس دانه‌های شیشه‌ای انجام می‌گیرد. محلول‌های مولد فوم تزریقی شامل نانوسیال ۰/۱ درصد وزنی کلسیم کربنات، سورفکتانت ۰/۰۴ درصد وزنی و مخلوط این دو می‌باشد که به صورت همزمان با گاز دی اکسید کربن به محیط متخلخل تزریق شده‌اند. بر اساس نتایج، بازیافت ثانویه نفت توسط فوم تثبیت شده با مخلوط سورفکتانت و نانوذره به صورت معنی‌داری بالاتر از سایر محلول‌های مولد فوم بود که به تغییر ترشوندگی سنگ به سمت آبدوستی نسبت داده شد. به گونه‌ای که طبق آزمایش‌های زاویه تماس، مخلوط سورفکتانت و نانوذره بیشترین قابلیت را در تغییر ترشوندگی از آبدوستی به سمت آب‌گریزی دارد. همچنین، در همه موارد، بازیافت نفت ثالثیه به صورت معنی‌داری کمتر از بازیافت ثالثیه بود. این پدیده به کند بودن رژیم انتشاری حاکم بر بازیافت ثالثیه نسبت به رژیم همرفتی موجود در تزریق ثانویه نسبت داده شد. به منظور اثبات این فرضیه، روند پیرسازی انجام شده در آزمایش‌های تزریق مغزه در دستگاه زاویه تماس پیاده سازی شد تا توانایی تغییر ترشوندگی شیشه نفت دوست توسط محلول‌های مولد فوم در دو رژیم انتشاری (حاکم بر تزریق ثالثیه) و همرفتی (حاکم بر تزریق ثانویه) مورد بررسی قرار گیرد. در رژیم انتشاری، نانوسیال قابلیت تغییر ترشوندگی شیشه را به سمت آبدوستی بیشتر نداشت. محلول سورفکتانتی تنها ۵° از نفت دوستی شیشه کاهش داد. مخلوط سورفکتانت و نانوذره این تغییر ترشوندگی را به ۱۶° رساند. در رژیم همرفتی، نانوسیال، محلول سورفکتانتی و مخلوط سورفکتانت و نانوذره به ترتیب ترشوندگی اولیه را از حدود ۱۵۰° به ۷۶°، ۴۵° و ۲۳° رساند که سرعت بیشتر رژیم همرفتی در تغییر ترشوندگی را تایید می‌کند. بر اساس آزمایش‌های کشش سطحی، رفتار برتر مخلوط سورفکتانت و نانوذره به جذب سطحی مولکول‌های سورفکتانت بر نانوذره و فعال سطحی شدن نانوذرات نسبت داد شد.

کلمات کلیدی: تزریق فوم، هیستریسیس، نانوذره، سورفکتانت، رژیم انتشاری و همرفتی.

*مسئول مکاتبات

mahdinazarisaram@iaua.ac.ir

آدرس الکترونیکی

شناسه دیجیتال: (DOI: 10.22078/pr.2024.5383.3395)

مقدمه

حدود API ۳۲/۶، نفت ایلام API ۲۹ و نفت سروک API ۲۶ درجه می‌باشد که در کلیه آزمایشات مد نظر قرار گرفته است.

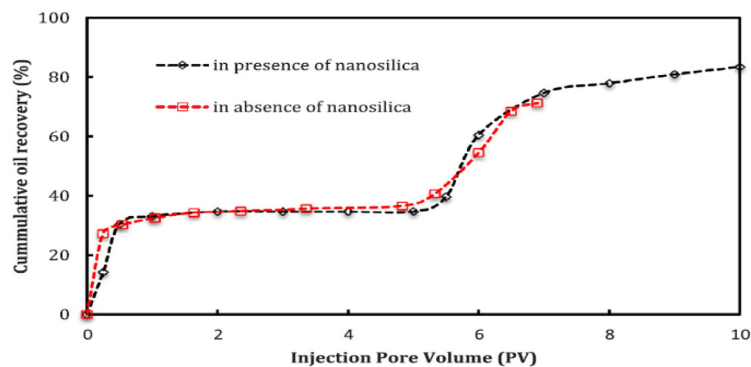
یکی دیگر از راه‌های بهبود تحرک پذیری سیال تزریقی، بهبود ترشوندگی سنگ به سمت آب‌دوستی بیشتر است. در مورد محلول مولد فوم، ترشوندگی سطح را فقط می‌توان توسط عوامل فعال سطحی مانند سورفکتانت‌ها اصلاح کرد [۱۱]. طبق مطالعات جدید، تغییر ترشوندگی سنگ کربناته توسط سورفکتانت کاتیونی [۱۲] و تغییر ترشوندگی ماسه سنگ توسط سورفکتانت آنیونی [۱۳] می‌تواند موثر باشد. تاثیر هم‌افزایی نانوذرات و سورفکتانت‌ها نیز برای دستیابی به کاهش موثر کشش سطحی، کشش بین سطحی سطحی شورآب/نفت و تغییر ترشوندگی سنگ‌های مخزن مورد بررسی قرار گرفته است [۱۴-۱۶]. جذب سطحی کمپلکس‌های فعال سطحی، تشکیل شده از نانوذرات و سورفکتانت‌ها، در سطح مشترک مایع-مایع و مایع-جامد باعث بهبود خواص سطحی بیشتر از سورفکتانت یا نانوذرات به تنهایی می‌شود. این نتایج به فعالیت سطحی بالای مولکول‌های سورفکتانت‌ها، پایداری نانوذرات در شرایط مخزن، و همچنین نسبت سطح به حجم بالای نانوذرات نسبت داده شده است [۱۷]. علی‌رغم این نتایج، اثرات هم‌افزایی نانوذرات و سورفکتانت‌ها بر کشش سطحی و همچنین تغییر ترشوندگی سنگ مخزن هنوز واضح نیست. فعل و انفعالات الکترواستاتیکی بین نانوذرات و سورفکتانت‌ها می‌تواند به شکل جاذبه‌ها یا دافعه‌های الکترواستاتیکی باشد و ممکن است فعالیت‌های سطحی را تقویت یا مهار کند. عامل دیگری که روی عملکرد فوم برای تغییر ترشوندگی تاثیر گذار است توالی تزریق آن در مغزه یا سازند است که تا به حال مورد بررسی قرار

تزریق گاز به صورت امتزاجی یکی از راه‌های متداول ازدیاد برداشت نفت است [۱]. در این نوع تزریق، مکانیزم اصلی تولید نفت اضافی پایین آوردن ویسکوزیته و تورم نفت به صورت امتزاج چند تماسی^۱ است [۲]. یکی از چالش‌های بزرگ این نوع تزریق تحرک‌پذیری بالای گاز تزریقی نسبت به نفت در جای مخزن است که موجب انگشتی شدن^۲، بازده جاروبی^۳ پایین و میان‌شکنی^۴ زودرس گاز تزریقی می‌شود [۳-۵]. یکی از راه‌های به نسبت ارزان‌تر برای بهبود ویسکوزیته دی‌اکسید کربن، فومی کردن آن است. فوم می‌تواند با افزایش ویسکوزیته ظاهری گاز با بهبود ترشوندگی سنگ مخزن نسبت به قسمت آبی خود منجر به بهبود تحرک پذیری فاز تزریقی شود. فوم‌ها به صورت معمول با سورفکتانت پایدار می‌شوند که دارای انعقاد شدید و ناپایداری بالا بخصوص در تماس با نفت هستند. پایدار کردن فوم/امولسیون با ذرات راه‌حلی است که اولین بار توسط پیکرینگ معرفی شد [۶]. پیکرینگ با استفاده از ذرات توانست امولسیون پایدارتری نسبت به امولسیون‌های معمول ایجاد کند. با این حال به دلیل بزرگ بودن اندازه ذرات نسبت به شعاع حفرات یک محیط متخلخل طبیعی و همچنین ته نشین شدن ذرات در اثر نیروهای گراویتی، این فوم مورد توجه صنعت نفت قرار نگرفت. با پیشرفت فناوری نانو در دو دهه اخیر، محققان زیادی پتانسیل بالای فوم دی‌اکسید کربن پایدار شده با نانوذره را برای بهبود رفتار بازیافت نفت نشان داده‌اند [۷ و ۸]. همچنین، مطالعات تایید کرده‌اند که فوم تثبیت شده با نانوذرات و سورفکتانت دارای پایداری بالاتری نسبت به فوم‌های سورفکتانتی می‌باشد بنابراین توانایی بیشتری در کنترل تحرک‌پذیری فوم دارند [۹ و ۱۰]. نانوذرات آبدوست در سطح غیر فعال هستند. به دلیل مطالعات انجام شده در میدان هیدروکربنی اهواز، مشخصات نفت این میدان در سازند آسماری

1. Multiple-Contact Miscible
2. Fingering
3. Sweep Efficiency
4. Breakthrough

آن‌ها علت این ازدیاد برداشت نفت را به بهبود شرایط پایداری فوم و افزایش فشار تزریق در حین تزریق فوم پایدار شده با نانوذرات نسبت داده اند. در نقطه مقابل تحقیقاتی نیز وجود دارد که نشان دهنده عدم تاثیر فوم دی اکسید کربن پایدار شده با نانوذره بر نفت باقی مانده می‌باشد. همچنین، **شکل ۱** بازیافت نفت بر حسب نفت درجای باقی مانده را نشان می‌دهد [۲۴]. همچنین اثر نوع گاز بکار رفته در پایداری فوم نیز دارای اهمیت می‌باشد. ژو و همکاران نشان دادند که فوم پایدار شده با گاز نیتروژن داری فوم زایی کمتر ولی پایداری بیشتر نسبت به فوم پایدار شده توسط گاز متان است [۲۵]. در غیاب نانوذره، هرچند توانایی گاز نیتروژن در پایداری فوم قوی تر بود ولی اثرات هر دو گاز بر میزان نفت باقی مانده مشابه بود. ولی با اضافه کردن ۱ درصد وزنی از نانوذره سیلیکا به محلول مولد فوم، بازیافت نفت هر دو گاز تا ۴۰٪ از نفت درجای باقی مانده بهبود یافت. **شکل ۲** نشان می‌دهد فوم پایدار شده با نانوذره و سورفکتانت چگونه نفتی را که فوم سورفکتانتی قادر به متحرک کردن آن نیست تولید می‌کند.

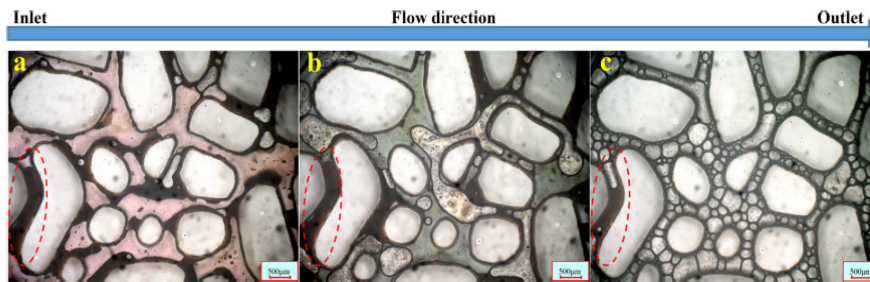
نگرفته است. شبیب-اصل و همکاران نشان دادند تزریق فوم در حالت ثالثیه دارای رفتار بسیار متفاوتی با حالت ثانویه دارد [۱۸]. هر چند آن‌ها دلیلی برای این رفتار ذکر نکردند ولی این رفتار را توالی تزریق نسبت دادند. عزیز و همکاران در مطالعه‌ی شبیه‌سازی در مقیاس حفره، رفتار متفاوت بازیافت نفت در حالت ثانویه و ثالثیه را به عدد پکلت نسبت دادند [۱۹]. آن‌ها نشان دادند که بازیافت نفت در مناطق کنترل شده توسط همرفتی^۱ (عدد پکلت بالاتر) بیشتر از مناطق تحت رژیم انتشار^۲ است. بر اساس دیگر مطالعات شبیه‌سازی در مقیاس حفره، جابه‌جایی سیال تزریقی با فیلم مایع بین نفت و سنگ تابعی از رژیم حاکم بر این جابه‌جایی است [۲۰ و ۲۱]. مطالعات دیگر شبیه‌سازی اخیر نیز نشان داد که در تزریق ثالثیه و همچنین در مواردی که مورفولوژی حفرات ناهمگن است، به دلیل ایجاد مناطق سکون، تغییر ترشوندگی به تاخیر می‌افتد [۲۲ و ۲۳]. قابل ذکر است تاکنون شواهد آزمایشگاهی مبنای رفتار تغییر ترشوندگی تحت رژیم‌های همرفتی و انتشاری ارائه نشده است. فو و همکاران یک سری مطالعات روی اثر تزریق فوم دی اکسید کربن پایدار شده با نانوذره بر نفت باقی مانده انجام دادند [۴].



شکل ۱ بازیافت نفت بر حسب نفت درجای باقی مانده [۴].

Fig. 1 Cumulative Oil Recovery based on oil in place, in presence of nano-silica and in absence of nano-silica [4].

1. Advection
2. Diffusion



شکل ۲ روند تغییرات از سمت چپ بعد از تزریق آب پر شور سپس بعد از تزریق فوم سورفکتانتی و در انتها بعد از تزریق فوم پایدار شده با نانوذره و سورفکتانت [۲۵].

Fig. 2 The trend of changes from left (inlet) to right (outlet) after the injection of salt water (a), after the injection of foam's surfactant, and finally, after the injection of stabilized foam with nano-particles and surfactant [25].

و گاز به صورت ثانویه می‌تواند باعث کاهش فشار مخزن و همچنین افزایش تراوایی و بازدهی مخزن شود. اما در روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثالثیه، تاثیر بر روی مخزن بستگی به نوع تزریق مواد و شرایط مخزن دارد.

۳- هزینه‌ها: روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثانویه ممکن است نیاز به هزینه بالایی برای تزریق آب و یا مواد شیمیایی داشته باشد، اما در روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثالثیه، ممکن است هزینه بالایی برای تولید گاز و یا بخار داشته باشد. ۴- محدودیت‌ها: در روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثانویه، ممکن است محدودیت‌هایی مانند محدودیت منابع آب و همچنین نیاز به دسترسی به منابع انرژی داشته باشد. اما در روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثالثیه، ممکن است نیاز به تامین منابع انرژی برای تولید گاز و یا بخار باشد. ۵- تاثیرات محیط زیستی: هر دو روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثانویه و ثالثیه می‌توانند تاثیرات محیط زیستی مانند آلودگی آب و هوا و همچنین آلودگی خاک داشته باشند. بنابراین، استفاده از روش‌های بهینه و مطابق با استانداردهای محیط زیستی برای کاهش تاثیرات منفی زیستی باید مدنظر قرار گیرد.

مواد

نانوذره و سورفکتانت: نانوذره کلسیم کربنات با قطر ۱۵ nm با فراوانی بزرگتر از ۹۸٪ از NANO SHEL

با توجه به تاریخچه ارائه شده، علاوه بر برهمکنش میان سورفکتانت و نانوذره، هیستریسیس مربوط به توالی تزریق نیز بر ازدیاد برداشت فوم موثر می‌باشد. بنابراین، در مطالعه کنونی، تزریق فوم پایدار شده با محلول‌های مولد فوم مختلف به دو صورت ثانویه و ثالثیه انجام می‌شود. به منظور بررسی دلیل هیستریسیس مشاهده شده، توالی‌های ذکر شده در روش قطره سیسیل پیاده سازی می‌شود تا تغییرات ترشوندگی در طول زمان مشاهده شود. تغییرات ترشوندگی در دستگاه زاویه تماس، نماینده‌ای از رژیم همرفتی و انتشاری خواهد بود.

روش آزمایشگاهی

ازدیاد برداشت نفت و گاز از مخازن معمولاً به چندین روش انجام می‌شود. این روش‌ها به ترتیب از زیاد برداشت اولیه، ثانویه و ثالثیه نامیده می‌شوند. روش‌های ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثانویه و ثالثیه تفاوت‌های مهمی با هم دارند. در ادامه به برخی از این تفاوت‌ها اشاره می‌کنم:

۱- مواد تزریقی: در روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثانویه، مواد تزریقی مانند آب، گاز و یا مواد شیمیایی به داخل مخزن تزریق می‌شوند در حالی که در روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثالثیه، تزریق گاز، تزریق بخار، تزریق مایعات شیمیایی و یا تزریق میکروکش انجام می‌شود. ۲- تاثیر بر روی مخزن: روش ازدیاد برداشت نفت

بالا رفتن pH منجر به کاهش بار نانوذره به سمت منفی می‌شود. بنابراین، به منظور حذف تاثیر بار نانوذره و شوری بر روی نتایج آزمایش ترشوندگی، این دو پارامتر باید ثابت بمانند. شوری در همه آزمایش‌ها به صورت یکسان است و صفر در نظر گرفته شد. در مورد خاصیت اسیدی و بازی محلول، از محلول باز سدیم هیدروکسید با غلظت ۰/۰۱ درصد وزنی جهت تغییر pH محلول مولد فوم به pH خنثی استفاده شد. پس از ساخت محلول مولد فوم، pH آن اندازه‌گیری شد که در اکثر موارد اندکی اسیدی بود. یک تا چند قطره از محلول بازی آماده شده داخل محلول مولد فوم ریخته شده و توسط همزن مغناطیسی هم زده می‌شود. همزمان توسط دستگاه pH سنج میزان pH محلول مولد فوم مورد بررسی قرار می‌گیرد. این فرآیند تا زمانی ادامه می‌یابد که pH محلول مولد فوم به pH خنثی رسیده باشد. قابل ذکر است، در فرآیند تیتراسیون، محلول مولد فوم بایستی در دور آرام همزده شود تا هیچ فومی در طول این فرآیند تشکیل نگردد. با توجه به حجم کم محلول بازی استفاده شده (معمولا کمتر از سه قطره)، تاثیر آن روی غلظت سورفکتانت و نانوذره ناچیز در نظر گرفته شد.

آزمایش تزریق مغزه مصنوعی

ساخت مغزه مصنوعی

ابتدا دانه‌های شیشه‌ای را با اندازه ذرات میان ۳۷ و ۷۵ μm که به رنگ سفید است به مقدار از پیش تعیین شده در بشر ریخته شدند و به آن نفت خام اضافه شد. سپس، مخلوط همزده شد. تا جایی که تمام دانه‌ها با نفت خام در تماس قرار گیرد. سپس به منظور پیرسازی دانه‌ها، مخلوط ذکر شده را به مدت ۲۱ روز در آن تحت دمای 70°C قرار داده شد. در طول این مدت، هر چند روز یک بار، مخلوط را بهم‌زده تا از جدایش دانه‌های شیشه‌ای و نفت جلوگیری شود و نفت کافی در دسترس دانه‌ها قرار بگیرد.

به صورت پودر جامد خریداری گردید که خواص پایداری این نانوذره در مطالعات مختلفی مورد بررسی قرار گرفته است و می‌توان تاثیرات آن را مشاهده نمود [۲۶ و ۲۷]. سورفکتانت آنیونی Sodium dodecyl sulfate (SDS) نیز به صورت پودر از شرکت مرک خریداری گردید که فرمول اصلی آن $\text{CH}_3(\text{CH}_2)_{11}\text{SO}_4\text{Na}$ می‌باشد. غلظت بحرانی این سورفکتانت برابر با ۰/۰۴ درصد وزنی می‌باشد که در این کار از آب دی‌یونیزه با رسانایی کمتر از ۵ میکروزیمنس به عنوان حلال سورفکتانت و نانوذره استفاده شده است.

نفت خام: نمونه نفت استفاده شده در این کار از یکی از چاه‌های میدان نفتی اهواز تهیه شده است. این نفت در شرایط محیط از کاغذ صافی با مشبک‌های $42\ \mu\text{m}$ عبور داده شد و پس از تصفیه، ویسکوزیته و دانسیته آن اندازه‌گیری گردید که به ترتیب برابر ۶ cP و $0.81\ \text{g/cm}^3$ بیان گردیده است.

تهیه محلول مولد فوم

مقدار از پیش تعیین شده نانوذره را در نانوسیال ریخته و توسط همزن مغناطیسی در دمای محیط همگن می‌کنیم. محلول در این مرحله مقداری غیر شفاف است که به تشکیل توده‌های نانوذره‌ای نسبت داده می‌شود. مخلوط جدید شیری رنگ را به مدت ۱۰ min توسط دستگاه فراصوت با توان ۹۰ W و فرکانس ۲۰ kHz همگن می‌کنیم تا شفاف شود. در صورت نیاز به اضافه کردن سورفکتانت، مقدار از پیش تعیین شده سورفکتانت را به نانوسیال شفاف اضافه می‌کنیم. مخلوط جدید دوباره با همزن مغناطیسی همگن می‌شود. به مخلوط نانوسیال، h ۲۴ استراحت داده می‌شود تا رسوب گذاری احتمالی انجام شود. سپس، مایع شفاف بالایی را به عنوان محلول مولد فوم جدا می‌کنیم.

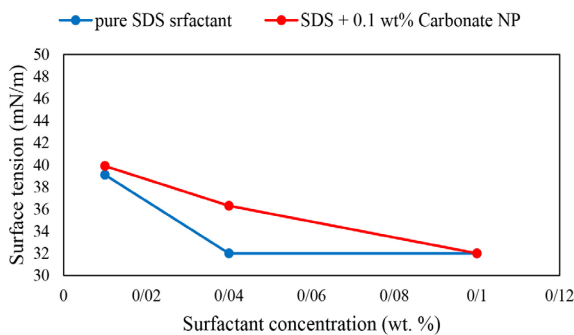
اندازه‌گیری pH و تیتراسیون

میزان شوری و pH روی بار نانوذره و در نتیجه رفتار جذب سطحی تاثیر دارد. نقطه ایزو الکترونیک برای نانوذره کلسیم کربنات دارای pH بین ۹ تا ۱۱ است.

شکل ۳ تا ۶ تصاویری از مراحل این فرآیند را به نمایش گذاشته است.

پودر شیشه آماده شده، به وسیله پیمانه‌های کوچک مساوی، داخل محفظه استوانه‌ای فلزی ریخته می‌شود. پس از ریختن هر پیمانه، با ضربه به بدنه سندپک، پودرها روی هم جای می‌گیرند و فضای خالی کم‌تر می‌شود. سپس توسط ضربه زدن با چوب مخصوص (که قطر خارجی آن تقریباً مساوی با قطر داخلی سندپک است) به داخل سندپک، پودر سنگ بهم فشرده‌تر می‌شود. برای پیمانه بعد نیز، این فرآیند تا زمان پرشدن کامل سندپک تکرار می‌شود. کلید تکرار پذیری این روش در شدت و زمان لرزندان و قدرت و تعداد ضربه‌های چوب مخصوص پک کردن می‌باشد. اگر شدت و زمان لرزندان و همچنین قدرت و تعداد ضربه‌های چوب مخصوص پک کردن در همه دفعات ساخت سندپک یکسان باشد، تکرارپذیری بالا می‌رود.

پس از گذشت این مدت زمان، باید نفت اضافی از پودر شیشه جدا شود و تنها پودر نفت دوست شده باقی بماند. بنابراین ابتدا نفتی که سر بشر را گرفته دور می‌ریزیم و سپس پودر شیشه همراه با نفت را درون بشری دیگر که حاوی استون و سیکلو هزان با نسبت حجمی یا وزنی ۱:۱ می‌باشد، ریخته می‌شود. مخلوط را بهم زده تا نفت اضافی درون حلال حل شود. حلال قدیمی که اکنون تیره شده است را تا جای ممکن خالی کرده و حلال تازه‌ای را با آن جایگزین می‌کنیم. پس از دو بار جایگزینی حلال قدیمی با حلال تازه، دیگر رنگ حلال تغییر چندانی نمی‌کند و شفاف می‌ماند. از این رو متوجه می‌شویم که دیگر تمام نفت‌های چسبیده به دانه‌های شیشه‌ای از آن جدا شده است. پودر باقی‌مانده را جهت خشک شدن دوباره داخل آن قرار می‌دهیم. حال از پودر خشک شده برای ساخت سندپک نفت دوست استفاده شد.



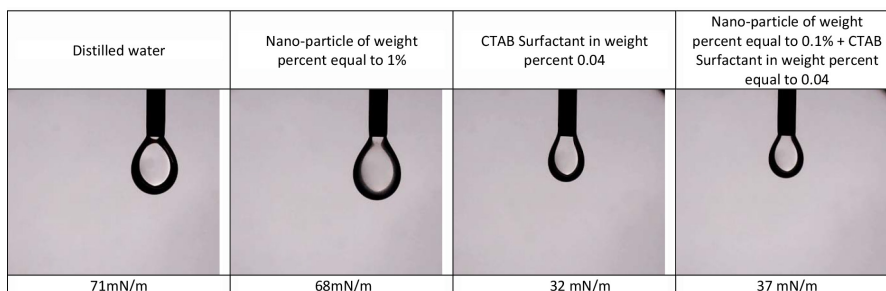
شکل ۴ کشش سطحی محلول مولد فوم و هوا در بازه غلظت سورفکتانت.

Fig. 4 The surface tension of the solution generating foam and weather in the values' change of surfactant concentration.



شکل ۳ الف: مخلوط نفت و پودر شیشه قبل از پیرسازی و ب: پودر شیشه پس از پیرسازی، شستشو و خشک شدن

Fig. 3 Left—a) mixture of oil and glass's powder before aging and b): glass's powder after aging, washing and being dried.



شکل ۵ تصویر قطره آویزان به همراه مقادیر کشش سطحی برای محلول‌های مولد فوم مختلف استفاده شده در این مطالعه.

Fig. 5 The image of a dangling drop with surface tension values which are printed in below row for the solutions generating various foams used in this study.

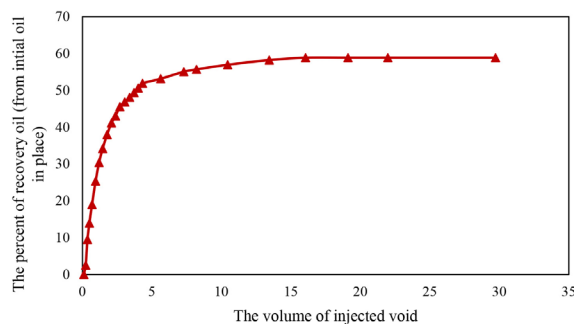
می‌گیرد. نرخ این تزریق با توجه به تخلخل، تراوایی مطلق و عدد موینگی تعیین می‌شود. عدد موینگی در مخزن واقعی نزدیک به 10^{-5} می‌باشد و به صورت زیر در معادله شماره ۱ تعریف می‌شود:

$$N_c = 0.01 \frac{K \Delta P}{\sigma \cos \theta} \quad (1)$$

که در آن K تراوایی مطلق بر حسب ΔP ، ΔP افت فشار دو سر مغزه در حالت پایدار بر حسب σ ، σ کشش بین سطحی آب و نفت و θ زاویه تماس سیستم آب/نفت/سنگ می‌باشد. اگر دبی تزریقی $1 \text{ mm}^3/\text{min}$ باشد میزان عدد موینگی برابر با 1×10^{-5} است. بنابراین، دبی کل تزریقی برابر با $1 \text{ cc}/\text{min}$ انتخاب شد. تزریق نفت تا جایی ادامه می‌یابد دیگر آب تولیدی نداشته باشیم. حجم این نفت تزریقی تقریباً نزدیک به 10 برابر فضای خالی مغزه بود. در این مرحله سیال خروجی جمع‌آوری و اندازه‌گیری می‌شود و افت فشار ثبت می‌شود. در نهایت اشباع اولیه آب به وسیله موازنه جرم بدست می‌آید. مشخصات پتروفیزیکی مغزه، نفت در جای اولیه و میزان اشباع آب همزاد در این مرحله بدست می‌آیند که در **جدول ۱** برای مغزه مورد آزمایش نمایش داده شده است.

(د) پس از این مرحله، مغزه پیرسازی^۱ می‌شود. برای پیرسازی مغزه‌ای که به اشباع آب همزاد رسیده، مغزه را داخل مغزه‌نگهدار در همان شرایط فشاری نگه داشته و آن را تحت دما 70°C داخل آون به مدت 30 روز نگه می‌داریم. برای پی بردن به اینکه آیا این زمان برای برگرداندن ترشوندگی به ترشوندگی مخلوط کافی بوده است یا نه از آزمایش زاویه تماس استفاده کنیم.

(ه) هدف اصلی پروژه بررسی رفتار بازیافت نفت ثالثیه یا ترشیری در سیلاب‌زنی به وسیله فوم پایدار شده با محلول‌های مولد فوم مختلف است. در مرحله ثانویه، آب پرشور یا با شوری بسیار بالا یا همان 100000 ppm NaCl با دبی $1 \text{ cc}/\text{min}$ به مغزه تزریق می‌شود.



شکل ۶ نمودار بازیافت نفت بر حسب حجم فضای خالی تزریقی در تزریق ثانویه فوم پایدار شده با نانوسیال در مغزه شماره ۱.
Fig. 6 The graph of recovery oil based on the volume of injected void during secondary injection of stabilized foam with nano-fluid solution in Core No. 1.

تزریق مغزه

آزمایش‌های تزریق مغزه در دمای محیط و فشار انتهایی 1500 psi جهت بررسی تاثیر محلول‌های مولد فوم مختلف بر ازدیاد برداشت نفت انجام شد. مراحل تزریق مغزه به صورت زیر می‌باشد:

(الف) مغزه مصنوعی تحت تزریق گاز دی اکسید کربن قرار می‌گیرد. سپس این مغزه تحت تزریق شورآب حاوی 100000 ppm NaCl قرار می‌گیرد تا تا به اشباع 10% از فاز آبی برسد. در صورتی که تزریق دی اکسید کربن قبل از تزریق شورآب انجام نشود؛ تزریق شورآب نمی‌تواند تمام هوای موجود در مغزه را بیرون کند و مغزه اشباع 10% از فاز آبی نمی‌شود. با این حال، در تزریق دی اکسید کربن در ابتدا همه هوا خارج شده و دی اکسید کربن جایگزین آن می‌شود. وقتی آب پس از دی اکسید کربن تزریق می‌شود بدلیل پایین بودن نیروهای موینه بین آب و دی اکسید کربن، گاز به دام افتاده تقریباً ناچیز می‌شود و می‌توان آن را در نظر نگرفت. (ب) پس از اشباع کامل مغزه مصنوعی با آب مورد نظر، مغزه تحت سیلاب‌زنی با آبی که توسط آن اشباع شده بود قرار می‌گیرد. تراوایی مطلق مغزه با اندازه‌گیری افت فشار دو سر مغزه در نرخ تزریق‌های متفاوت توسط معادله دارسی محاسبه می‌شود.

(ج) گام بعدی، رساندن اشباع آب مغزه به اشباع همزاد است. در این مرحله، مغزه تحت تزریق نفت قرار

جدول ۱ خواص مغزه‌های مصنوعی.
Table 1 Properties of synthetic cores.

Situation (or State)	Entrained Water(%)	Initial Oil in (mL) Place	Permeability (mD)	Porosity (%)	Void Volume (mL)	Bulk Volume (mL)	Pack Diameter (cm)	Core Length (cm)	Core Number
Secondary	22.8	54.1	68.4	23.8	70.1	294.4	5	15	1
Secondary	28.8	47.8	62.4	22.8	67.1	294.4	5	15	2
Secondary	32.3	42.2	58.9	21.2	62.4	294.4	5	15	3
Tertiary	34.6	39.5	56.3	20.5	60.4	294.4	5	15	4
Tertiary	27.2	49.3	63.3	23.0	67.8	294.4	5	15	5
Tertiary	36.7	35.8	50.5	19.2	56.6	294.4	5	15	6

سطحی با زمان می‌کند. اندازه‌گیری کشش بین سطحی تا زمانی ادامه می‌یابد که میزان کشش سطحی با زمان تغییر معنی داری نکند و سیستم به تعادل نسبی برسد.

اندازه‌گیری زاویه تماس

به منظور بررسی تغییرات ترشوندگی، روند تزریق فوم در دستگاه اندازه‌گیری زاویه تماس پیاده می‌شود. در این مطالعه، به منظور اندازه‌گیری زاویه تماس سیستم شیشه نفت دوست/نفت خام/شورآب از روش قطره سیسیل استفاده شد. در این مطالعه از شیشه به عنوان نماینده ماسه سنگ استفاده شده است. قطعه نازک شیشه‌ای داخل نفت غوطه ور شده است و در دمای 70°C به مدت ۲۱ روز در آن تحت فرآیند پیرسازی قرار می‌گیرد. سپس، قطعه نازک شیشه از نفت خارج و نفت روی آن به آرامی توسط دستمال خشک می‌شود. برای پاک کردن لایه نفتی اضافی از سطح کلسیت، قطعه نازک سنگ در محلول سیکلو هگزان و نرمال هپتان قرار می‌گیرد. زمانی که محلول در اثر انحلال نفت تیره شد، با محلول تازه و شفاف جایگزین می‌شود. بعد از دو تا سه تکرار، دیگر نفتی از روی سنگ داخل محلول حل نشد و محلول شفاف ماند. سپس شیشه را درون ظرف اندازه‌گیری زاویه تماس داخل آب پرشور که 100000 ppm NaCl می‌باشد را قرار داده و زاویه تماس با زمان ثبت شد. به منظور تعویض این آب با محلول مولد فوم، از بالای محفظه زاویه تماس

به منظور حذف اثر انتهایی مویینگی دبی به 2 min و 4 افزایش می‌یابد. تزریق آب پرشور تا زمانی ادامه می‌یابد که نفتی تولید نشود و افت فشار دو سر مغزه ثابت بماند. به منظور بررسی از دید برداشت فوم ثبت شده با نانوذره و سورفکتانت، مغزه تحت تزریق محلول مولد فوم و گاز به صورت همزمان قرار می‌گیرد. دبی کل تزریقی در این مرحله نیز برابر 1 mL/min می‌باشد. دبی تزریقی گاز برابر 0.5 mL/min و دبی تزریقی محلول مولد فوم برابر 0.5 mL/min می‌باشد. به منظور از بین بردن اثر انتهایی مویینگی، دبی کل به ترتیب 2 و 4 mL/min می‌شود. در طول زمان تزریق، میزان تولید نفت با زمان ثبت خواهد شد.

اندازه‌گیری کشش بین سطحی

برای اندازه‌گیری کشش سطحی محلول مولد فوم/هوا از روش قطره آویزان استفاده شد. محلول مولد فوم توسط پمپ سرنگی (JMS, SP-500) به آرامی از منبع به داخل نیدل تزریق می‌شود تا قطره محلول مولد فوم شکل بگیرد. عکس‌های قطره نفت آویزان توسط دوربین میکروسکوپی دیجیتال دینولایت^۱ ثبت و نظارت شدند. سپس این تصاویر توسط نرم افزار تحلیل شکل قطره^۲ آنالیز شدند. نور پشتی یکنواختی و شدیدی جهت بهبود کنتراست به منظور اندازه‌گیری دقیق تعبیه شد. به محض اینکه قطره نفت آویزان به حجم مناسبی برسد (که توسط نرم افزار ذکر شده تشخیص داده می‌شود) تزریق نگه داشته می‌شود. سپس نرم‌افزار شروع به اندازه‌گیری و ثبت داده‌های کشش

1. Dino-lite

2. Drop Shape Analysis (DSA)

معنی دار کشش سطحی می‌شود. حضور نانوذره در محلول سورفکتانتی منجر به کروی‌تر شدن قطره و در نتیجه افزایش کشش سطحی می‌شود که در تطابق با نتایج **شکل ۴** می‌باشد.

آزمایش تزریق مغزه

تزریق فوم پایداری شده با نانوسیال

این آزمایش به صورت ثانویه و ثالثیه به ترتیب در مغزه‌های شماره ۱ و ۴ انجام شد. در حالت ثانویه، محلول مولد فوم با ترکیب ۰/۱ درصد وزنی از نانوذره کلسیم کربنات با دبی ۰/۵ cc/min و گاز دی اکسید کربن با دبی ۰/۵ cc/min همزمان تزریق شدند. نمودار تولید نفت در این مرحله به صورت **شکل ۶** می‌باشد. بازیافت نهایی در این نمونه برابر ۵۸/۹٪ از نفت در جای اولیه بود. زمان میان‌شکنی روی نمودار در بازیافت ۹/۵ درصد از نفت در جای اولیه است.

در حالت ثالثیه، ابتدا آب پرشور در مغزه شماره ۴ تزریق می‌شود تا جایی که دیگر نفتی تولید نشود. سپس، محلول مولد فوم با ترکیب ۰/۱ درصد وزنی از نانوذره کلسیم کربنات با دبی ۰/۵ cc/min و همچنین گاز دی اکسید کربن با دبی ۰/۵ cc/min همزمان تزریق شدند. نمودار بازیافت نفت بر حسب حجم فضای خالی تزریقی در **شکل ۷** نمایش داده شده است. فوم پایدار شده با نانو سیال قادر است تنها ۱/۱٪ از نفت در جای اولیه را تولید کند. همچنین، براساس نتایج، تزریق فوم به صورت ثانویه دارای بازیافت بیشتری (۸٪ از نفت در جای اولیه) نسبت به تزریق ثالثیه می‌باشد.

تزریق فوم پایداری شده با سورفکتانت

این آزمایش به صورت ثانویه و ثالثیه به ترتیب در مغزه‌های شماره ۲ و ۵ انجام شد. در حالت ثانویه، محلول مولد فوم با ترکیب ۰/۰۴ درصد وزنی از سورفکتانت CTAB با دبی ۰/۵ cc/min و همچنین گاز دی اکسید کربن با دبی ۰/۵ cc/min به صورت همزمان تزریق شدند. نمودار بازیافت نفت بر حسب نفت در جای اولیه در این مرحله به صورت **شکل ۸** می‌باشد.

به آن محلول مولد فوم وارد می‌شود و از پایین و سمت مقابل مخلوط آب پرشور و محلول مولد فوم خارج می‌شود. این عمل تا جایی ادامه می‌یابد که تنها محلول مولد فوم در محفظه باقی بماند. زاویه تماس پس انداختن قطره یا پس از تعویض محلول‌های آبی به مدت ۲ روز پایش می‌شود.

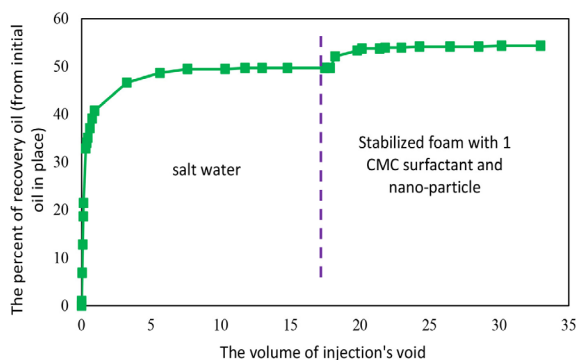
نتایج و بحث

اندازه‌گیری کشش سطحی

آزمایش کشش سطحی برای محلول سورفکتانتی و مخلوط سورفکتانت و نانوذره ۰/۱ درصد وزنی در غلظت‌های مختلفی از سورفکتانت انجام شد. همانطور که در **شکل ۴** نشان داده شده است، کشش سطحی مخلوط نانوذره و سورفکتانت، در بازه غلظت سورفکتانت استفاده شده در این مطالعه، بالاتر از کشش سطحی محلول سورفکتانتی است. اختلاف کشش سطحی مخلوط نانوذره و سورفکتانت با محلول سورفکتانتی در ۰/۰۴ درصد وزنی از سورفکتانت در بیشترین حالت خود قرار دارد. بنظر می‌رسد با جذب سطحی سورفکتانت آنیونی بر سطح نانوذره کربنات، از تعداد سورفکتانت‌های آزاد در محلول کاسته می‌شود. کاهش مقدار سورفکتانت‌های آزاد منجر به افزایش کشش سطحی خواهد شد. با توجه به **شکل ۴**، در غلظت‌های بالاتر (نزدیک به ۰/۱ درصد وزنی از سورفکتانت) به دلیل فراوانی سورفکتانت آزاد، کاهش تعدادی از سورفکتانت‌های آزاد بر اثر جذب سطحی تأثیری بر کشش سطحی تعادلی ندارد. با توجه به شکل ۴، میزان غلظت بحرانی سورفکتانت SDS برابر با ۰/۰۴ درصد وزنی است.

شکل ۵ تصاویر مربوط به کشش سطحی محلول‌های مولد فوم مختلف مورد استفاده در این مطالعه را نمایش می‌دهد. همان‌طور که در شکل ۵ نشان داده شده است اضافه کردن نانوذره به نانوسیال منجر به کاهش اندک کشش سطحی می‌شود. اضافه کردن سورفکتانت به نانوسیال منجر به آویزان‌تر شدن قطره نسبت به نانوسیال و در نتیجه کاهش

صورت **شکل ۹** است. فوم پایدار شده با سورفکتانت قادر است نفت اضافی به میزان حدود ۴/۶٪ از نفت در جای اولیه تولید کند. با این حال، تزریق ثانویه فوم ذکر شده به صورت معنی داری بازیافت نهایی را نسبت به تزریق ثالثیه افزایش می‌دهد.

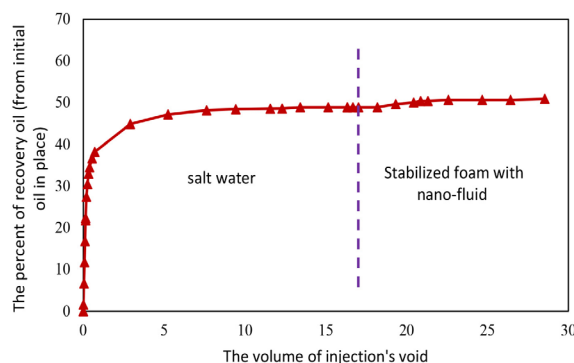


شکل ۹ نمودار بازیافت نفت بر حسب حجم فضای خالی تزریقی در تزریق ثالثیه فوم پایدار شده با محلول سورفکتانتی ۱/۵ CMC و نانوذره ۰/۱ درصد وزنی در مغزه شماره ۵.

Fig. 9 The graph of recovery oil based on the volume of injection's void during tertiary injection of stabilized foam with 1 CMS nano-fluid surfactant solution and nano-particle with percent wight equal to 0.1 in Core No. 5.

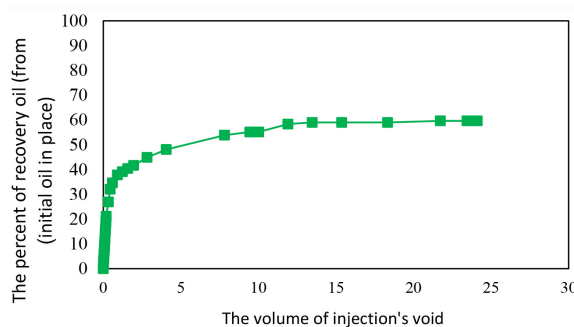
آزمایش تزریق فوم پایدار شده با مخلوط نانوذره و سورفکتانت

این آزمایش به صورت ثانویه و ثالثیه به ترتیب در مغزه‌های شماره ۳ و ۶ انجام شد. در حالت ثانویه، محلول مولد فوم با ترکیب ۰/۰۴ درصد وزنی از سورفکتانت و ۰/۱ درصد وزنی از نانوذره با دبی cc/min ۰/۵ و همچنین گاز دی اکسید کربن با دبی cc/min ۰/۵ همزمان تزریق شدند. نمودار تولید نفت بر حسب حجم حفره تزریقی در این مرحله به صورت **شکل ۱۰** می‌باشد. بازیافت نهایی در تزریق این محلول مولد فوم ۶/۶۸٪ از نفت در جای اولیه می‌باشد. میان‌شکنی در ۰/۳۲ برابر حجم حفره تزریقی انجام شده است که به صورت معنی‌داری نسبت به تزریق در حالات قبل عملکرد بهتری داشته است. به عبارت دیگر، فوم پایدار شده توسط سورفکتانت و نانوذره دارای ویسکوزیته بالاتری نسبت به حالت قبل است.



شکل ۷ نمودار بازیافت نفت بر حسب حجم فضای خالی تزریقی در تزریق ثالثیه فوم پایدار شده با محلول نانوسیال در مغزه شماره ۴.

Fig. 7 The graph of recovery oil based on the volume of injected void during tertiary injection of stabilized foam with nano-fluid solution in Core No. 4.



شکل ۸ نمودار بازیافت نفت بر حسب حجم فضای خالی تزریقی در تزریق ثانویه فوم پایدار شده با محلول سورفکتانتی ۱ CMC در مغزه شماره ۲.

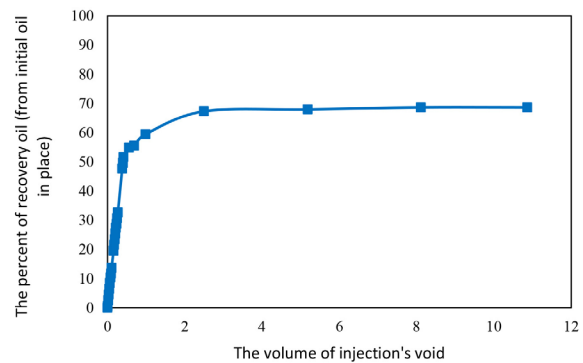
Fig. 8 The graph of recovery oil based on the volume of injection's void during tertiary injection of stabilized foam with 1 CMS nano-fluid surfactant solution in Core No. 2.

بازیافت نهایی در تزریق محلول مولد فوم با جذب سطحی پایین ۵۹/۶٪ از نفت در جای اولیه می‌باشد. میان‌شکنی در ۰/۱۹ برابر حجم حفره تزریقی انجام شده است که نسبت به تزریق نانوسیال به صورت معنی‌داری بیشتر است. بر اساس این مشاهده، فوم پایدار شده با سورفکتانت داری ویسکوزیته بیشتری نسبت به نانوسیال است.

در حالت ثالثیه، ابتدا آب پرشور در مغزه شماره ۵ تزریق می‌شود تا جایی که دیگر نفتی تولید نشود. سپس، محلول مولد فوم با ترکیب ۰/۰۴ درصد وزنی از سورفکتانت و ۰/۱ درصد وزنی از نانوذره با دبی cc/min ۰/۵ و همچنین گاز دی اکسید کربن با دبی cc/min ۰/۵ همزمان تزریق شدند. نمودار بازیافت به

خام به تعادل می‌رسد. سپس، بر اساس فعالیت‌های آزمایشگاهی، فاز آبی محفظه به تدریج با نانوسیال تعویض می‌شود. شکل ۱۲ نشان می‌دهد که در این حالت نانوسیال توانایی تغییر ترشوندگی شیشه نفت دوست را ندارد. شکل ۱۳ تصاویر مربوط به قطره اول نفت را در زمان‌های مختلف نشان می‌دهد. تغییرات ناچیز زاویه تماس بازیافت نفت کم را در طول تزریق ثانویه و ثالثیه نانوسیال توجیه می‌کند.

پس از ۲۴ h قطره دوم نفتی در کنار قطره اول نفت قرار گرفت و زاویه تماس آن با زمان پایش شد. از آنجا که سطحی که در حال حاضر توسط قطره دوم نفت اشغال شده است قبلاً در تماس آزاد با محلول مولد فوم بوده است رژیم حاکم بر این تغییر ترشوندگی همرفتی می‌باشد. به عبارت دیگر، در آزمون جدید اثر انتشار حذف شده است. همانطور که در شکل ۱۴ مشاهده می‌شود، نانوسیال در حالت همرفتی زاویه تماس را تا 76° کاهش داده است که به صوت معنی‌داری کمتر از زاویه تماس تعادلی در حالت انتشاری (قطره اول) می‌باشد. به عبارت دیگر، در قطره اول، نانوسیال توانایی انتشار در لایه آب پرشور تشکیل شده در مرحله قبلش را ندارد. پورا کابریان و همکاران نشان دادند که حضور آب پرشور در فیلم آبی، با افزایش بار سنگ و نفت به سمت مقادیر مثبت، موجب نازک شدن آن فیلم آبی می‌شود [۲۸]. آن‌ها بیان کردند انتقال یون در چنین لایه‌هایی سختتر از لایه‌های ضخیم‌تر است. بنابراین، هر چند نانوسیال توانایی بالقوه در تغییر ترشوندگی دارد، ولی عدم انتشار آب به لایه آب پرشور در قطره اول موجب عدم تاثیر گذاری آن می‌شود. در تزریق ثالثیه، رژیم انتشاری رژیم حاکم بر ازدیاد برداشت نفت است. در حالی که در تزریق ثانویه، سیال تزریقی در مسیرهای اصلی دارای حرکتی مشابه با رژیم همرفتی است. با حاکم شدن رژیم انتشاری بر رفتار بازیافت نفت، تغییر ترشوندگی کمتری به سمت آبدوستی رخ می‌دهد. بنابراین، میزان بازیافت نفت در تزریق ثالثیه نسبت به تزریق ثانویه کمتر خواهد بود.



شکل ۱۱ نمودار بازیافت نفت بر حسب حجم فضای خالی تزریقی در تزریق ثالثیه فوم پایدار شده با محلول سورفکتانتی 1 CMC و نانوذره ۰/۱ درصد وزنی در مغزه شماره ۶.

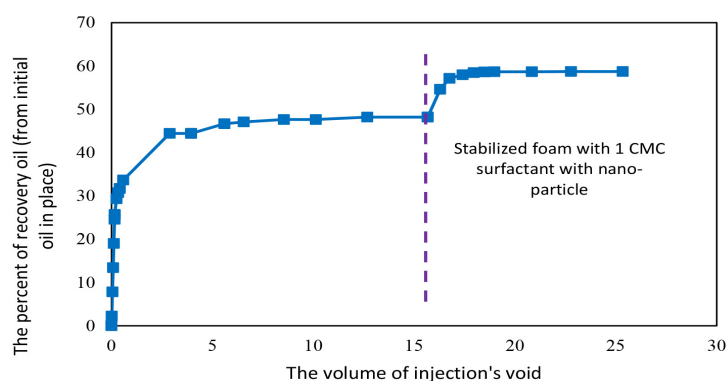
Fig. 10 The graph of recovery oil based on the volume of injection's void during tertiary injection of stabilized foam with 1 CMS nano-fluid surfactant solution and nano-particle with percent wight equal to 0.1 in Core No. 3.

در حالت ثالثیه، ابتدا آب پرشور در مغزه شماره ۶ تزریق می‌شود تا جایی که دیگر نفتی تولید نشود. سپس، محلول مولد فوم با ترکیب ۰/۰۴ درصد وزنی از سورفکتانت و ۰/۱ درصد وزنی از نانوذره با دبی cc/min و همچنین گاز دی اکسید کربن با دبی cc/min ۰/۵ همزمان تزریق شدند. نمودار بازیافت بر حسب حجم حفره تزریقی به صورت شکل ۱۱ است. فوم پایدار شده با مخلوط نانوذره و سورفکتانت قادر است نفت اضافی به میزان ۱۰/۴٪ از نفت در جای اولیه تولید کند. بنابراین، فوم پایدار شده با مخلوط سورفکتانت و نانوذره می‌تواند عملکرد ازدیاد برداشتی بهتری نسبت به دیگر فوم‌های مورد مطالعه داشته باشد. همانند حالات قبل، تزریق ثانویه فوم دارای عملکرد بهتری نسبت به تزریق ثالثیه می‌باشد. تفاوت در عملکرد تزریق ثالثیه و ثانویه در ادامه مورد بررسی قرار خواهد گرفت.

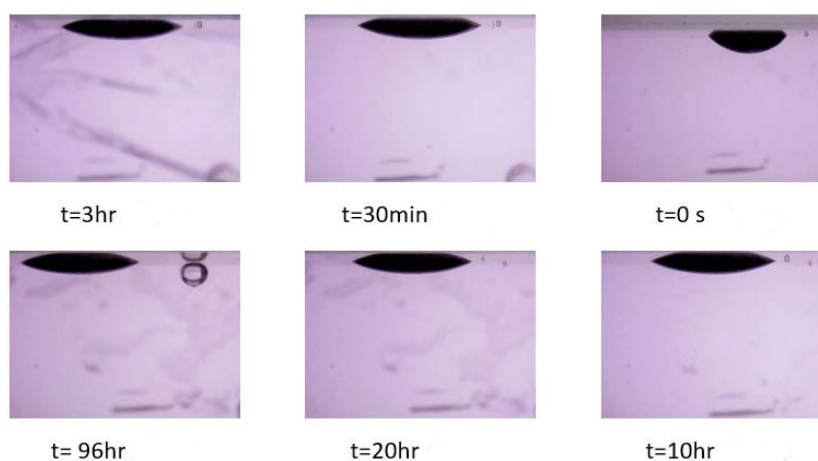
اندازه‌گیری زاویه تماس

هیترسیس در ترشوندگی شیشه نفت دوست توسط نانوسیال

تغییرات زاویه تماس شور آب/شیشه نفت دوست/نفت خام بر حسب زمان در شکل ۱۲ نمایش داده شده است. در ابتدا آب پر شور به مدت ۴۸ h در تماس مستقیم با سطح شیشه نفت دوست است. سپس، قطره اول نفت رها شده و به سطح زیرین شیشه می‌چسبد. پس از ۴۸ h، زاویه تماس آب پرشور/شیشه نفت دوست/نفت



شکل ۱۲ زاویه تماس بر حسب زمان (ساعت) برای سیستم نفت خام/شیشه نفت دوست/نانوسیال.
Fig. 12 Contact angle based on time (hour) for the crude oil/ hydrophilic glass/ nano-fluid system.



شکل ۱۳ عکس قطره نفت آزاد شده در ساعات مختلف در سیستم نفت خام/شیشه نفت دوست/نانوسیال.
Fig. 13 The image of released oil's drop during different times in the crude oil/ hydrophilic glass/ nano-fluid system.



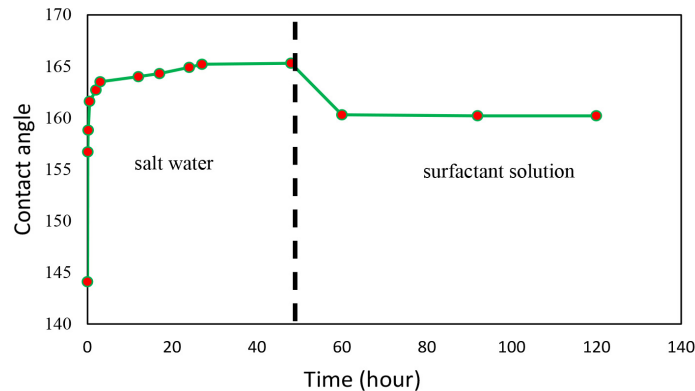
شکل ۱۴ مقایسه زاویه تماس قطره‌ی اول و دوم به ترتیب در حالت انتشار و همرفتی برای نانوسیال.
Fig. 14 Comparison of contact angle of first drop and second drop based on diffusion and advection states for nano-fluid respectively.

زاویه تماس آب پرشور/شیشه نفت دوست/نفت خام به تعادل می‌رسد. سپس، بر اساس قسمت فعالیت‌های آزمایشگاهی، فاز آبی محفظه به تدریج با محلول سورفکتانتی (۰/۰۴ درصد وزنی از SDS) تعویض می‌شود. شکل ۱۵ نشان می‌دهد که در این حالت محلول سورفکتانتی قادر به تغییر ترشوندگی

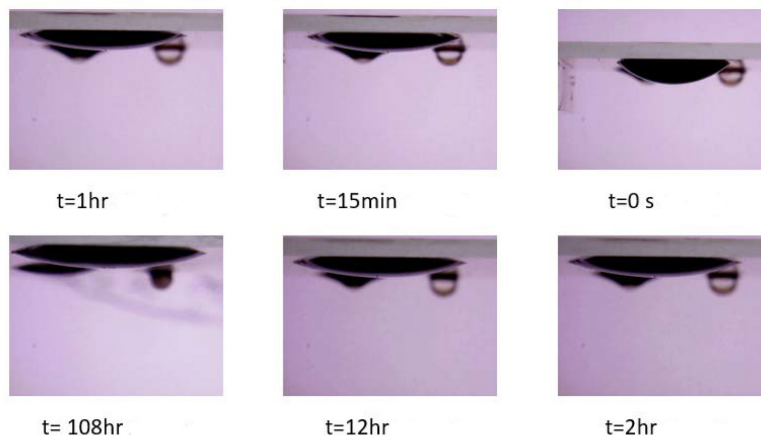
تغییرات زاویه تماس محلول آبی/شیشه نفت دوست/نفت خام بر حسب زمان در شکل ۱۵ نمایش داده شده است. همانند بخش قبلی، در ابتدا آب پر شور به مدت ۴۸ h در تماس مستقیم با سطح شیشه نفت دوست است. سپس، قطره اول نفت رها شده و به سطح زیرین شیشه می‌چسبند. پس از ۴۸ h،

بیشتر نفت در تزریق فوم پایدار شده با سورفکتانت نسبت به نانوسیال به تغییر ترشوندگی بیشتر توسط سورفکتانت نسبت داده می‌شود.

شیشه نفت دوست است و اما تنها 5° از میزان نفتی دوستی شیشه را کاسته است. شکل ۱۶ تصاویر مربوط به قطره اول نفت را در زمان‌های مختلف نشان می‌دهد. بر اساس نتایج، بازیافت



شکل ۱۵ زاویه تماس بر حسب زمان (ساعت) برای سیستم نفت خام/شیشه نفت دوست/محلول سورفکتانتی.
Fig. 15 Contact angle based on time (hour) for the crude oil/ hydrophilic glass/ surfactant solution system.

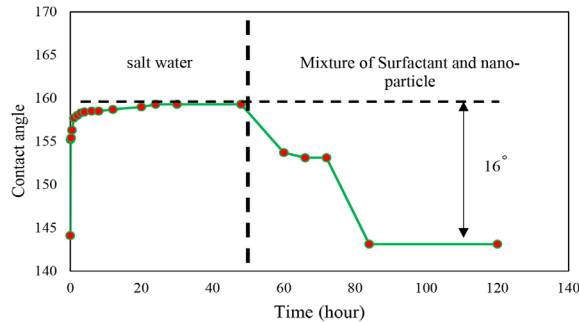


شکل ۱۶ عکس قطره نفت اول آزاد شده در ساعات مختلف در سیستم نفت خام/شیشه نفت دوست/محلول سورفکتانتی.
Fig. 16 The image of the released first oil's drop during different times for the crude oil/ hydrophilic glass/ surfactant solution system.

۱۷ مشاهده می‌شود، محلول سورفکتانتی در حالت همرفتی زاویه تماس را به 45° کاهش داده است که به صوت معنی‌داری کمتر از زاویه تماس تعادلی در حالت انتشاری (قطره اول) می‌باشد. از مقایسه شکل ۱۷ با شکل ۱۴ می‌توان پی برد که در رژیم همرفتی، توانایی سورفکتانت برای تغییر ترشوندگی به سمت آب‌دوستی بیشتر از نانوذده و نانوسیال می‌باشد.

پس از ۲۴ h قطره دوم نفتی در کنار قطره اول نفت قرار گرفت و زاویه تماس آن با زمان پایش شد. همان‌طور که ذکر شد، سطحی که در حال حاضر توسط قطره دوم نفت اشغال شده است قبلاً در تماس آزاد با محلول مولد فوم بوده است. بنابراین، رژیم حاکم بر این تغییر ترشوندگی همرفتی می‌باشد. به عبارت دیگر، زاویه تماس قطره جدید تحت تاثیر انتشار نمی‌باشد. همان‌طور که در شکل

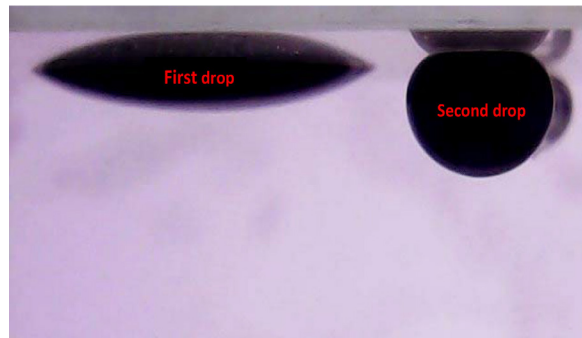
تماس شیشه را ۱۵۸ به ۱۴۳ (به میزان 16°) کاهش داده است. شکل ۱۳ تصاویر مربوط به قطره نفت را در این سیستم و در زمان‌های مختلف نشان می‌دهد.



شکل ۱۸ زاویه تماس بر حسب زمان (ساعت) برای سیستم نفت خام-شیشه نفت دوست-مخلوط سورفکتانت و نانوذره.

Fig. 18 Contact angle based on time (hour) for the crude oil/ hydrophilic glass/ mixture of surfactant and nano-particle system.

در مخلوط سورفکتانت و نانوذره، به دلیل جاذبه الکترواستاتیکی، مولکول‌های سورفکتانت با بار مخالف بر سطح نانوذره جذب می‌شوند [۲۹ و ۳۰]. همانطور که ذکر شد، نمود این پدیده را می‌توان در نتایج کشش سطحی این مطالعه نیز مشاهده کرد. بر اساس این پدیده، مخلوط سورفکتانت و نانوذره را می‌توان به سه بخش تقسیم‌بندی کرد. بخش اول، مولکول‌های سورفکتانتی می‌باشند که روی سطح نانوذره جذب نشده‌اند که آن‌ها را مولکول‌های سورفکتانت آزاد می‌نامیم. بخش دوم، ذرات نانو می‌باشند که مولکول‌های سورفکتانت به آن جذب شده است. بخش سوم، نانوذراتی می‌باشند که مولکول‌های سورفکتانت به صورت معنی داری روی آن‌ها جذب نشده و بار سطحی آن را تغییر نداده‌اند. دافعه الکتریکی میان سورفکتانت آزاد (دارای سرگروه با بار منفی) و شیشه (دارای سطحی بار منفی [۳۱]) موجب می‌شود تا سورفکتانت‌ها نتوانند به سطح نزدیک شوند. در نقطه مقابل، نانوذره دارای کلسیم کربنات (دارای سطحی بار مثبت [۳۱]) روی سطح شیشه جذب و بار سطحی شیشه را به سمت مثبت افزایش می‌دهد. این امر موجب کاهش بار دافعه میان سورفکتانت و شیشه می‌شود.



شکل ۱۷ مقایسه زاویه تماس قطره‌ی اول و دوم به ترتیب در حالت انتشار و همرفتی برای محلول سورفکتانتی.

Fig. 17 The comparison of contact angle of first and second drops in diffusion and advection states for surfactant solution respectively.

در رژیم همرفتی، به دلیل نبود انتشار، جابجایی آب پرشور با آب کم‌شور به سرعت انجام می‌گیرد. به عبارت دیگر، سرعت جابه‌جایی بیشتر رژیم همرفتی نسبت به رژیم انتشاری عامل تغییر ترشوندگی بیشتر به سمت آب دوستی در رژیم همرفتی می‌باشد. می‌توان گفت که با حاکم شدن رژیم انتشاری بر رفتار بازیافت نفت ثالثیه، تغییر ترشوندگی کمتری به سمت آب دوستی رخ می‌دهد. بنابراین، میزان بازیافت نفت در تزریق ثالثیه نسبت به تزریق ثانویه کمتر خواهد بود.

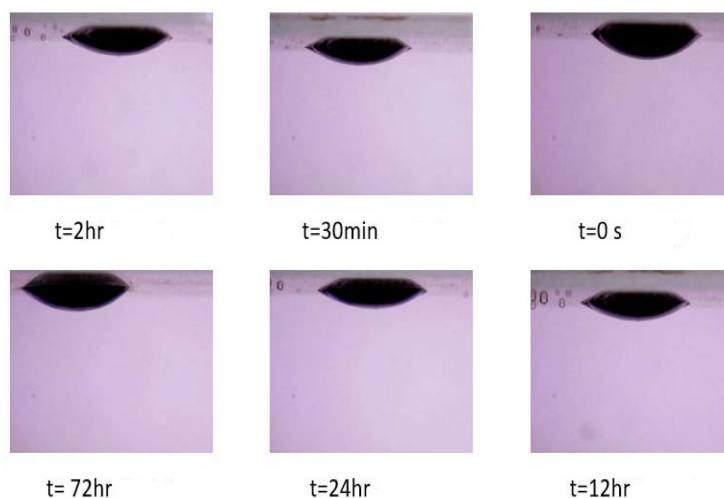
هیستریسیس در ترشوندگی شیشه نفت دوست توسط مخلوط سورفکتانت و نانوذره

تغییرات زاویه تماس محلول آبی/شیشه نفت دوست/ نفت خام بر حسب زمان در شکل ۱۸ نمایش داده شده است. همانند بخش‌های قبلی، در ابتدا آب پر شور به مدت ۴۸ h در تماس مستقیم با سطح شیشه نفت دوست است. سپس، قطره اول نفت رها شده و به سطح زیرین شیشه می‌چسبد. پس از ۴۸ h، زاویه تماس آب پرشور/شیشه نفت دوست/نفت خام به تعادل می‌رسد. سپس، بر اساس قسمت فعالتهای آزمایشگاهی، فاز آبی محفظه به تدریج با مخلوط سورفکتانت (CMC 1 از SDS) و نانوذره (۱/۰ درصد وزنی از کلسیم کربنات) تعویض می‌شود. شکل ۱۸ نشان می‌دهد که در این حالت مخلوط سورفکتانت و نانوذره توانسته است بعد از ۴۸ h زاویه

توسط قطره دوم نفت اشغال شده است قبلا در تماس آزاد با محلول مولد فوم بوده است. بنابراین، رژیم حاکم بر این تغییر ترشوندگی همرفتی می باشد. به عبارت دیگر، زاویه تماس قطره جدید تحت تاثیر انتشار نمی باشد. همان طور که در **شکل ۲۰** مشاهده می شود، مخلوط سورفکتانت و نانوذره در حالت همرفتی زاویه تماس را به 23° کاهش داده است که به صوت معنی داری کمتر از زاویه تماس تعادلی در حالت انتشاری (قطره اول) می باشد. از مقایسه **شکل ۲۰** با **شکل ۱۷** و **شکل ۱۴** می توان پی برد که در رژیم همرفتی، توانایی مخلوط سورفکتانت و نانوذره برای تغییر ترشوندگی به سمت آب دوستی بیشتر از دیگر محلول ها بالاتر می باشد. همان طور که ذکر شد، در رژیم همرفتی، به دلیل نبود انتشار، جابه جایی آب پرشور با آب کم شور به سرعت انجام می گیرد. به عبارت دیگر، سرعت جابجایی بیشتر رژیم همرفتی نسبت به رژیم انتشاری عامل تغییر ترشوندگی بیشتر به سمت آب دوستی در رژیم همرفتی می باشد. این امر نشان دهنده علت بازیافت نفت بیشتر تزریق ثانویه به تزریق ثالثیه می باشد.

لذا با حرکت سورفکتانت به سمت سطح شیشه و جذب زنجیر به زنجیر مولکول های سورفکتانت به مولکول های نفتی چسبیده به سطح شیشه، ترشوندگی به سمت آب دوستی بیشتر تغییر می یابد. با مقایسه نتایج **شکل ۱۵** و **شکل ۱۸** می توان دریافت که در غیاب نانوذره، پدیده جذب سطحی سورفکتانت [**۳۲** و **۳۳**] یا پدیده های دیگر نظیر جفت شدگی [**۳۴**] به صورت معنی داری کمتر اتفاق می افتد. تغییرات ترشوندگی بیشتر مخلوط نانوذره و سورفکتانت نسبت به سورفکتانت تنها تایید کننده تاثیر نانوذره در بهبود حرکت سورفکتانت به سطحی شیشه می باشد. همچنین بازیافت بیشتر نفت در تزریق فوم پایدار شده با مخلوط نانوذره و سورفکتانت نسبت به محلول سورفکتانتی و نانوسیال به تغییرات ترشوندگی بیشتر این مورد نسبت داده شد. همچنین، تغییرات قطره نفت آزاد شده در زمان برابر با صفر تا زمان برابر با ۷۲ h در **شکل ۱۹** نشان داده شده است.

پس از ۲۴ h قطره دوم نفتی در کنار قطره اول نفت قرار گرفت و زاویه تماس آن با زمان پایش شد. همان طور که ذکر شد، سطحی که در حال حاضر



شکل ۱۹ عکس قطره اول نفت آزاد شده در ساعات مختلف در سیستم نفت خام/شیشه نفت دوست/مخلوط سورفکتانت و نانوذره.
Fig. 19 The image of the released first oil's drop during different times for the crude oil/ hydrophilic glass/ surfactant solution system.

و سورفکتانت متناظر آن است. این رفتار به توانایی بالاتر مخلوط سورفکتانت و نانوذره نسبت به سورفکتانت و نانوذره به صورت جداگانه در تغییر ترشوندگی به سمت آبدوستی بیشتر نسبت داده شد. نانوسیال، محلول سورفکتانتی و مخلوط سورفکتانت و نانوذره به ترتیب زاویه تماس شیشه نفتدوست را، 5° و 16° کاستند.

- بازیافت نفت ثالثیه به صورت معنی داری کمتر از بازیافت ثانویه بود که به رژیم انتشاری حاکم در تزریق ثالثیه نسبت داده شد. در رژیم انتشاری، مخلوط سورفکتانت و نانوذره زاویه تماس شیشه نفتدوست 16° کاهش داد که نسبت به تغییر زاویه تماس در همرفتی 125° به صورت معنی داری کمتر بود.

- مقایسه کشش سطحی سورفکتانت و مخلوط سورفکتانت و نانوذره نشان داد که افزوده نانوذره به سورفکتانت موجب افزایش اندکی در کشش سطحی می شود. این مشاهده به جذب سطحی سورفکتانت های با بار مخالف روی نانوذره و کاهش سورفکتانت های آزاد نسبت داده شد. بیشترین جذب سطحی در مخلوط سورفکتانت 0.04 درصد وزنی و نانوذره 0.1 درصد وزنی رخ داد که در توافق با نتایج زاویه تماس و تزریق مغزه بود.



شکل ۲۰ مقایسه زاویه تماس قطره‌ی اول و دوم به ترتیب در حالت انتشار و همرفتی برای مخلوط سورفکتانت و نانوذره.
Fig. 20 The comparison of the contact angle of first and second drops in the states of diffusion and advection for the mixture of surfactant and nano-particle.

نتیجه گیری

در این مطالعه، آزمایش تزریق مغزه ثانویه و ثالثیه در مغزه‌ی مصنوعی از جنس دانه‌های شیشه‌ای به منظور بررسی رفتار بازیافت نفت فوم تثبیت شده با نانوذره کلسیم کربنات و سورفکتانت آنیونی SDS در مخازن ماسه سنگی انجام شد. به منظور تحلیل نتایج تزریق مغزه، روند پیرسازی انجام شده در آزمایشات تزریق مغزه در دستگاه زاویه تماس پیاده شد. همچنین، آزمایش اندازه گیری کشش سطحی نیز انجام شد. نتایج کلی به صورت زیر می باشد. - بازیافت ثانویه نفت توسط فوم تثبیت شده با مخلوط سورفکتانت 0.04 درصد وزنی و نانوذره 0.1 درصد وزنی بیشتر از فوم پایدار شده نانوذره

مراجع

- [1]. Luo, P., Zhang, Y., Wang, X., & Huang, S. (2012). Propane-enriched CO₂ immiscible flooding for improved heavy oil recovery. *Energy & fuels*, 26(4), 2124-2135. doi.org/10.1021/ef201653u.
- [2]. Lake, L. W., Johns, R., Rossen, B., & Pope, G. A. (2014). *Fundamentals of enhanced oil recovery* (Vol. 1, p. 1). Richardson, TX: Society of Petroleum Engineers. ISBN: 978-1-61399-328-6.
- [3]. Anazadehsayed, A., Rezaee, N., Naser, J., & Nguyen, A. V. (2018). A review of aqueous foam in microscale. *Advances in colloid and interface science*, 256, 203-229.
- [4]. Fu, C., Yu, J., & Liu, N. (2018). Nanoparticle-stabilized CO₂ foam for waterflooded residual oil recovery. *Fuel*, 234, 809-813.
- [5]. Hurtado, Y., Franco, C. A., Riazi, M., & Cortés, F. B. (2020). Improving the stability of nitrogen foams using silica nanoparticles coated with polyethylene glycol. *Journal of Molecular Liquids*, 300, 112256.
- [6]. Pickering, S. U. (1907). Cxevi.—emulsions. *Journal of the Chemical Society, Transactions*, 91, 2001-2021. doi.org/10.1039/CT9079102001.
- [7]. Worthen, A. J., Bagaria, H. G., Chen, Y., Bryant, S. L., Huh, C., & Johnston, K. P. (2013). Nanoparticle-stabilized carbon dioxide-in-water foams with fine texture. *Journal of colloid and interface science*, 391, 142-151. doi: 10.1016/j.jcis.2012.09.043.
- [8]. Aroonsri, A., Worthen, A., Hariz, T., Johnston, K., Huh, C., & Bryant, S. (2013, September). Conditions for generating nanoparticle-stabilized CO₂ foams in fracture and matrix flow. In *SPE Annual Technical Conference*

- and Exhibition? (p. D021S020R006). Spe. doi.org/10.2118/166319-MS.
- [9]. Yekeen, N., Kun, T. X., Al-Yaseri, A., Sagala, F., & Idris, A. K. (2021). Influence of critical parameters on nanoparticles-surfactant stabilized CO₂ foam stability at sub-critical and supercritical conditions. *Journal of Molecular Liquids*, 338, 116658. doi: 10.1016/j.molliq.2021.116658.
- [10]. Chaturvedi, K. R., Narukulla, R., & Sharma, T. (2021). Effect of single-step silica nanoparticle on rheological characterization of surfactant based CO₂ foam for effective carbon utilization in subsurface applications. *Journal of Molecular Liquids*, 341, 116905. doi: 10.1016/j.molliq.2021.116905.
- [11]. Xu, K., Zhu, P., Colon, T., Huh, C., & Balhoff, M. (2017). A microfluidic investigation of the synergistic effect of nanoparticles and surfactants in macro-emulsion-based enhanced oil recovery. *SPE Journal*, 22(02), 459-469. doi.org/10.2118/179691-PA.
- [12]. Ghosh, P., & Mohanty, K. K. (2018). Novel application of cationic surfactants for foams with wettability alteration in oil-wet low-permeability carbonate rocks. *SPE Journal*, 23(06), 2218-2231. doi.org/10.2118/179598-PA.
- [13]. Yekeen, N., Malik, A. A., Idris, A. K., Reepei, N. I., & Ganie, K. (2020). Foaming properties, wettability alteration and interfacial tension reduction by saponin extracted from soapnut (*Sapindus Mukorossi*) at room and reservoir conditions. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 195, 107591. doi: 10.1016/j.petrol.2020.107591.
- [14]. Kumar, A., & Dixit, C. K. (2017). Methods for characterization of nanoparticles. In *Advances in nanomedicine for the delivery of therapeutic nucleic acids* (pp. 43-58). Woodhead Publishing. doi.org/10.1016/B978-0-08-100557-6.00003-1.
- [15]. Kumar, N., & Mandal, A. (2018). Surfactant stabilized oil-in-water nanoemulsion: stability, interfacial tension, and rheology study for enhanced oil recovery application. *Energy & fuels*, 32(6), 6452-6466. https://doi.org/10.1021/acs.energyfuels.8b00043.
- [16]. Pal, N., Kumar, N., Saw, R. K., & Mandal, A. (2019). Gemini surfactant/polymer/silica stabilized oil-in-water nanoemulsions: Design and physicochemical characterization for enhanced oil recovery. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 183, 106464. doi: 10.1016/j.petrol.2019.106464.
- [17]. Kuang, W., Saraji, S., & Piri, M. (2018). A systematic experimental investigation on the synergistic effects of aqueous nanofluids on interfacial properties and their implications for enhanced oil recovery. *Fuel*, 220, 849-870. doi.org/10.1016/j.fuel.2018.01.102.
- [18]. Shabib-Asl, A., Ayoub, M. A., & Elraies, K. A. (2019). A new hybrid technique using low salinity water injection and foam flooding for enhanced oil recovery in sandstone rock. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 174, 716-728. doi:10.1016/j.petrol.2018.11.035.
- [19]. Aziz, R., Joekar-Niasar, V., Martínez-Ferrer, P. J., Godinez-Brizuela, O. E., Theodoropoulos, C., & Mahani, H. (2019). Novel insights into pore-scale dynamics of wettability alteration during low salinity waterflooding. *Scientific reports*, 9(1), 9257.
- [20]. Aziz, R., Joekar-Niasar, V., Martínez-Ferrer, P. J., Godinez-Brizuela, O. E., Theodoropoulos, C., & Mahani, H. (2019). Novel insights into pore-scale dynamics of wettability alteration during low salinity waterflooding. *Scientific reports*, 9(1), 9257.
- [21]. Alizadeh, M., & Fatemi, M. (2021). Mechanistic study of the effects of dynamic fluid/fluid and fluid/rock interactions during immiscible displacement of oil in porous media by low salinity water: Direct numerical simulation. *Journal of Molecular Liquids*, 322, 114544.
- [22]. Alizadeh, M., & Fatemi, M. (2021). Pore-doublet computational fluid dynamic simulation of the effects of dynamic contact angle and interfacial tension alterations on the displacement mechanisms of oil by low salinity water. *International Journal of Multiphase Flow*, 143, 103771.
- [23]. Alizadeh, M., & Fatemi, M. (2021). Pore-doublet computational fluid dynamic simulation of the effects of dynamic contact angle and interfacial tension alterations on the displacement mechanisms of oil by low salinity water. *International Journal of Multiphase Flow*, 143, 103771. doi: 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2021.103771.
- [24]. Guo, F., & Aryana, S. (2016). An experimental investigation of nanoparticle-stabilized CO₂ foam used in enhanced oil recovery. *Fuel*, 186, 430-442. doi.org/10.1016/j.fuel.2016.08.058.
- [25]. Xu, Z., Li, B., Zhao, H., He, L., Liu, Z., Chen, D., Yang, H. and Li, Z., (2020). Investigation of the effect of nanoparticle-stabilized foam on EOR: nitrogen foam and methane foam. *ACS omega*, 5(30), 19092-19103. doi.org/10.1021/acsomega.0c02434.
- [26]. Rashidi, M., Kalantariasl, A., Saboori, R., Haghani, A., & Keshavarz, A. (2021). Performance of environmental friendly water-based calcium carbonate nanofluid as enhanced recovery agent for sandstone oil reservoirs. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 196, 107644. doi: 10.1016/j.petrol.2020.107644.
- [27]. Selvan, P., Jebakani, D., Jeyasubramanian, K., & Jebaraj, D. J. J. (2022). Enhancement of thermal conductivity of water based individual and hybrid SiO₂/Ag nanofluids with the usage of calcium carbonate nano

- particles as stabilizing agent. *Journal of Molecular Liquids*, 345, 117846. doi: 10.1016/j.molliq.2021.117846.
- [28]. Pourakaberian, A., Mahani, H., & Niasar, V. (2021). The impact of the electrical behavior of oil-brine-rock interfaces on the ionic transport rate in a thin film, hydrodynamic pressure, and low salinity waterflooding effect. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 620, 126543. doi:10.1016/j.colsurfa.2021.126543.
- [29]. Farhadi, H., Riahi, S., Ayatollahi, S., & Ahmadi, H. (2016). Experimental study of nanoparticle-surfactant-stabilized CO₂ foam: Stability and mobility control. *Chemical Engineering Research and Design*, 111, 449-460. doi.org/10.1016/j.cherd.2016.05.024.
- [30]. Yazhgur, P. A., Noskov, B. A., Liggieri, L., Lin, S. Y., Loglio, G., Miller, R., & Ravera, F. (2013). Dynamic properties of mixed nanoparticle/surfactant adsorption layers. *Soft Matter*, 9(12), 3305-3314.
- [31]. Gu, Y., & Li, D. (2000). The ζ -potential of glass surface in contact with aqueous solutions. *Journal of colloid and interface science*, 226(2), 328-339. doi: 10.1006/jcis.2000.6827.
- [32]. Gu, Y., & Li, D. (2000). The ζ -potential of glass surface in contact with aqueous solutions. *Journal of colloid and interface science*, 226(2), 328-339. doi:10.1006/jcis.2000.6827.
- [33]. Kumar, K., Dao, E. K., & Mohanty, K. K. (2008). Atomic force microscopy study of wettability alteration by surfactants. *Spe Journal*, 13(02), 137-145. doi.org/10.2118/93009-PA.
- [34]. Hou, B., Wang, Y., Cao, X., Zhang, J., Song, X., Ding, M., & Chen, W. (2016). Surfactant-induced wettability alteration of oil-wet sandstone surface: mechanisms and its effect on oil recovery. *Journal of Surfactants and Detergents*, 19(2), 315-324.

واکاوی آزمایشگاهی تاثیر انتشار مواد فعال سطحی بر ازدیاد برداشت نفت در تزریق ثانویه فوم تثبیت شده با مخلوط سورفکتانت و نانوذره در یک شبیه‌سازی مخزن ماسه سنگی

مهدی نظری صارم

گروه مهندسی نفت، معدن و مواد، دانشکده عمران و منابع زمین، دانشگاه آزاد اسلامی واحد تهران مرکزی، تهران، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۲/۱۱/۲۴ تاریخ تغییر: ۱۴۰۳/۰۵/۱۴ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۳/۰۶/۱۷

چکیده

تزریق فوم تثبیت شده با نانوذرات به دلیل پایداری بالای آن مورد توجه صنعت نفت قرار گرفته است. در این مطالعه، برهمکنش میان نانوذرات و سورفکتانت و همچنین هیستریسیس توالی تزریق فوم مورد بررسی قرار می‌گیرد. به همین منظور، آزمایش تزریق مغزه ثانویه و ثالثیه در مغزه‌ی مصنوعی از جنس دانه‌های شیشه‌ای انجام می‌گیرد. محلول‌های مولد فوم تزریقی شامل نانوسیال ۰/۱ درصد وزنی کلسیم کربنات، سورفکتانت ۰/۰۴ درصد وزنی و مخلوط این دو می‌باشد که به صورت همزمان با گاز دی اکسید کربن به محیط متخلخل تزریق شده‌اند. بر اساس نتایج، بازیافت ثانویه نفت توسط فوم تثبیت شده با مخلوط سورفکتانت و نانوذره به صورت معنی‌داری بالاتر از سایر محلول‌های مولد فوم بود که به تغییر ترشوندگی سنگ به سمت آبدوستی نسبت داده شد. به گونه‌ای که طبق آزمایش‌های زاویه تماس، مخلوط سورفکتانت و نانوذره بیشترین قابلیت را در تغییر ترشوندگی از آبدوستی به سمت آب‌گریزی دارد. همچنین، در همه موارد، بازیافت نفت ثالثیه به صورت معنی‌داری کمتر از بازیافت ثالثیه بود. این پدیده به کند بودن رژیم انتشاری حاکم بر بازیافت ثالثیه نسبت به رژیم همرفتی موجود در تزریق ثانویه نسبت داده شد. به منظور اثبات این فرضیه، روند پیرسازی انجام شده در آزمایش‌های تزریق مغزه در دستگاه زاویه تماس پیاده سازی شد تا توانایی تغییر ترشوندگی شیشه نفت دوست توسط محلول‌های مولد فوم در دو رژیم انتشاری (حاکم بر تزریق ثالثیه) و همرفتی (حاکم بر تزریق ثانویه) مورد بررسی قرار گیرد. در رژیم انتشاری، نانوسیال قابلیت تغییر ترشوندگی شیشه را به سمت آبدوستی بیشتر نداشت. محلول سورفکتانتی تنها ۵° از نفت دوستی شیشه کاهش داد. مخلوط سورفکتانت و نانوذره این تغییر ترشوندگی را به ۱۶° رساند. در رژیم همرفتی، نانوسیال، محلول سورفکتانتی و مخلوط سورفکتانت و نانوذره به ترتیب ترشوندگی اولیه را از حدود ۱۵۰° به ۷۶°، ۴۵° و ۲۳° رساند که سرعت بیشتر رژیم همرفتی در تغییر ترشوندگی را تایید می‌کند. بر اساس آزمایش‌های کشش سطحی، رفتار برتر مخلوط سورفکتانت و نانوذره به جذب سطحی مولکول‌های سورفکتانت بر نانوذره و فعال سطحی شدن نانوذرات نسبت داد شد.

کلمات کلیدی: تزریق فوم، هیستریسیس، نانوذره، سورفکتانت، رژیم انتشاری و همرفتی.

*مسئول مکاتبات

mahdinazarisaram@iaua.ac.ir

آدرس الکترونیکی

شناسه دیجیتال: (DOI: 10.22078/pr.2024.5383.3395)

مقدمه

حدود API ۳۲/۶، نفت ایلام API ۲۹ و نفت سروک API ۲۶ درجه می‌باشد که در کلیه آزمایشات مد نظر قرار گرفته است.

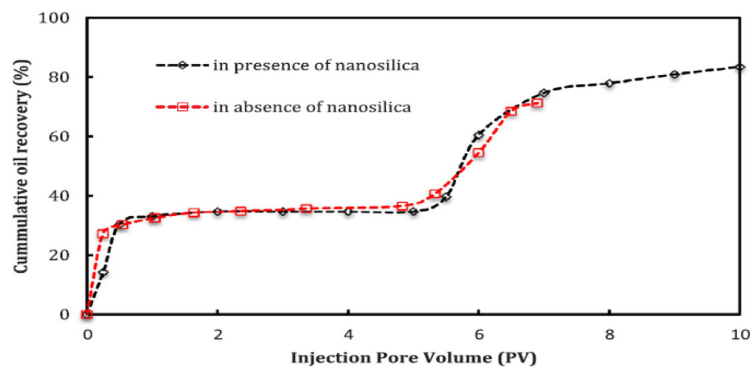
یکی دیگر از راه‌های بهبود تحرک پذیری سیال تزریقی، بهبود ترشوندگی سنگ به سمت آب‌دوستی بیشتر است. در مورد محلول مولد فوم، ترشوندگی سطح را فقط می‌توان توسط عوامل فعال سطحی مانند سورفکتانت‌ها اصلاح کرد [۱۱]. طبق مطالعات جدید، تغییر ترشوندگی سنگ کربناته توسط سورفکتانت کاتیونی [۱۲] و تغییر ترشوندگی ماسه سنگ توسط سورفکتانت آنیونی [۱۳] می‌تواند موثر باشد. تاثیر هم‌افزایی نانوذرات و سورفکتانت‌ها نیز برای دستیابی به کاهش موثر کشش سطحی، کشش بین سطحی سطحی شورآب/نفت و تغییر ترشوندگی سنگ‌های مخزن مورد بررسی قرار گرفته است [۱۴-۱۶]. جذب سطحی کمپلکس‌های فعال سطحی، تشکیل شده از نانوذرات و سورفکتانت‌ها، در سطح مشترک مایع-مایع و مایع-جامد باعث بهبود خواص سطحی بیشتر از سورفکتانت یا نانوذرات به تنهایی می‌شود. این نتایج به فعالیت سطحی بالای مولکول‌های سورفکتانت‌ها، پایداری نانوذرات در شرایط مخزن، و همچنین نسبت سطح به حجم بالای نانوذرات نسبت داده شده است [۱۷]. علی‌رغم این نتایج، اثرات هم‌افزایی نانوذرات و سورفکتانت‌ها بر کشش سطحی و همچنین تغییر ترشوندگی سنگ مخزن هنوز واضح نیست. فعل و انفعالات الکترواستاتیکی بین نانوذرات و سورفکتانت‌ها می‌تواند به شکل جاذبه‌ها یا دافعه‌های الکترواستاتیکی باشد و ممکن است فعالیت‌های سطحی را تقویت یا مهار کند. عامل دیگری که روی عملکرد فوم برای تغییر ترشوندگی تاثیر گذار است توالی تزریق آن در مغزه یا سازند است که تا به حال مورد بررسی قرار

تزریق گاز به صورت امتزاجی یکی از راه‌های متداول ازدیاد برداشت نفت است [۱]. در این نوع تزریق، مکانیزم اصلی تولید نفت اضافی پایین آوردن ویسکوزیته و تورم نفت به صورت امتزاج چند تماسی^۱ است [۲]. یکی از چالش‌های بزرگ این نوع تزریق تحرک‌پذیری بالای گاز تزریقی نسبت به نفت در جای مخزن است که موجب انگشتی شدن^۲، بازده جاروبی^۳ پایین و میان‌شکنی^۴ زودرس گاز تزریقی می‌شود [۳-۵]. یکی از راه‌های به نسبت ارزان‌تر برای بهبود ویسکوزیته دی‌اکسید کربن، فومی کردن آن است. فوم می‌تواند با افزایش ویسکوزیته ظاهری گاز با بهبود ترشوندگی سنگ مخزن نسبت به قسمت آبی خود منجر به بهبود تحرک پذیری فاز تزریقی شود. فوم‌ها به صورت معمول با سورفکتانت پایدار می‌شوند که دارای انعقاد شدید و ناپایداری بالا بخصوص در تماس با نفت هستند. پایدار کردن فوم/امولسیون با ذرات راه‌حلی است که اولین بار توسط پیکرینگ معرفی شد [۶]. پیکرینگ با استفاده از ذرات توانست امولسیون پایدارتری نسبت به امولسیون‌های معمول ایجاد کند. با این حال به دلیل بزرگ بودن اندازه ذرات نسبت به شعاع حفرات یک محیط متخلخل طبیعی و همچنین ته نشین شدن ذرات در اثر نیروهای گراویتی، این فوم مورد توجه صنعت نفت قرار نگرفت. با پیشرفت فناوری نانو در دو دهه اخیر، محققان زیادی پتانسیل بالای فوم دی‌اکسید کربن پایدار شده با نانوذره را برای بهبود رفتار بازیافت نفت نشان داده‌اند [۷ و ۸]. همچنین، مطالعات تایید کرده‌اند که فوم تثبیت شده با نانوذرات و سورفکتانت دارای پایداری بالاتری نسبت به فوم‌های سورفکتانتی می‌باشد بنابراین توانایی بیشتری در کنترل تحرک‌پذیری فوم دارند [۹ و ۱۰]. نانوذرات آبدوست در سطح غیر فعال هستند. به دلیل مطالعات انجام شده در میدان هیدروکربنی اهواز، مشخصات نفت این میدان در سازند آسماری

1. Multiple-Contact Miscible
2. Fingering
3. Sweep Efficiency
4. Breakthrough

آن‌ها علت این ازدیاد برداشت نفت را به بهبود شرایط پایداری فوم و افزایش فشار تزریق در حین تزریق فوم پایدار شده با نانوذرات نسبت داده اند. در نقطه مقابل تحقیقاتی نیز وجود دارد که نشان دهنده عدم تاثیر فوم دی اکسید کربن پایدار شده با نانوذره بر نفت باقی مانده می‌باشد. همچنین، **شکل ۱** بازیافت نفت بر حسب نفت درجای باقی مانده را نشان می‌دهد [۲۴]. همچنین اثر نوع گاز بکار رفته در پایدار کردن فوم نیز دارای اهمیت می‌باشد. ژو و همکاران نشان دادند که فوم پایدار شده با گاز نیتروژن داری فوم زایی کمتر ولی پایداری بیشتر نسبت به فوم پایدار شده توسط گاز متان است [۲۵]. در غیاب نانوذره، هرچند توانایی گاز نیتروژن در پایدار کردن فوم قوی تر بود ولی اثرات هر دو گاز بر میزان نفت باقی مانده مشابه بود. ولی با اضافه کردن ۱ درصد وزنی از نانوذره سیلیکا به محلول مولد فوم، بازیافت نفت هر دو گاز تا ۴۰٪ از نفت درجای باقی مانده بهبود یافت. **شکل ۲** نشان می‌دهد فوم پایدار شده با نانوذره و سورفکتانت چگونه نفتی را که فوم سورفکتانتی قادر به متحرک کردن آن نیست تولید می‌کند.

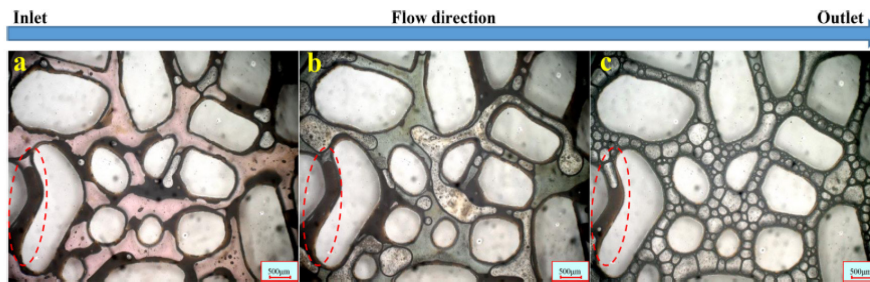
نگرفته است. شبیب-اصل و همکاران نشان دادند تزریق فوم در حالت ثالثیه دارای رفتار بسیار متفاوتی با حالت ثانویه دارد [۱۸]. هر چند آن‌ها دلیلی برای این رفتار ذکر نکردند ولی این رفتار را توالی تزریق نسبت دادند. عزیز و همکاران در مطالعه‌ی شبیه‌سازی در مقیاس حفره، رفتار متفاوت بازیافت نفت در حالت ثانویه و ثالثیه را به عدد پکلت نسبت دادند [۱۹]. آن‌ها نشان دادند که بازیافت نفت در مناطق کنترل شده توسط همرفتی^۱ (عدد پکلت بالاتر) بیشتر از مناطق تحت رژیم انتشار^۲ است. بر اساس دیگر مطالعات شبیه‌سازی در مقیاس حفره، جابه‌جایی سیال تزریقی با فیلم مایع بین نفت و سنگ تابعی از رژیم حاکم بر این جابه‌جایی است [۲۰ و ۲۱]. مطالعات دیگر شبیه‌سازی اخیر نیز نشان داد که در تزریق ثالثیه و همچنین در مواردی که مورفولوژی حفرات ناهمگن است، به دلیل ایجاد مناطق سکون، تغییر ترشوندگی به تاخیر می‌افتد [۲۲ و ۲۳]. قابل ذکر است تاکنون شواهد آزمایشگاهی مبنای رفتار تغییر ترشوندگی تحت رژیم‌های همرفتی و انتشاری ارائه نشده است. فو و همکاران یک سری مطالعات روی اثر تزریق فوم دی اکسید کربن پایدار شده با نانوذره بر نفت باقی مانده انجام دادند [۴].



شکل ۱ بازیافت نفت بر حسب نفت درجای باقی مانده [۴].

Fig. 1 Cumulative Oil Recovery based on oil in place, in presence of nano-silica and in absence of nano-silica [4].

1. Advection
2. Diffusion



شکل ۲ روند تغییرات از سمت چپ بعد از تزریق آب پر شور سپس بعد از تزریق فوم سورفکتانتی و در انتها بعد از تزریق فوم پایدار شده با نانوذره و سورفکتانت [۲۵].

Fig. 2 The trend of changes from left (inlet) to right (outlet) after the injection of salt water (a), after the injection of foam's surfactant, and finally, after the injection of stabilized foam with nano-particles and surfactant [25].

و گاز به صورت ثانویه می‌تواند باعث کاهش فشار مخزن و همچنین افزایش تراوایی و بازدهی مخزن شود. اما در روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثالثیه، تاثیر بر روی مخزن بستگی به نوع تزریق مواد و شرایط مخزن دارد.

۳- هزینه‌ها: روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثانویه ممکن است نیاز به هزینه بالایی برای تزریق آب و یا مواد شیمیایی داشته باشد، اما در روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثالثیه، ممکن است هزینه بالایی برای تولید گاز و یا بخار داشته باشد. ۴- محدودیت‌ها: در روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثانویه، ممکن است محدودیت‌هایی مانند محدودیت منابع آب و همچنین نیاز به دسترسی به منابع انرژی داشته باشد. اما در روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثالثیه، ممکن است نیاز به تامین منابع انرژی برای تولید گاز و یا بخار باشد. ۵- تاثیرات محیط زیستی: هر دو روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثانویه و ثالثیه می‌توانند تاثیرات محیط زیستی مانند آلودگی آب و هوا و همچنین آلودگی خاک داشته باشند. بنابراین، استفاده از روش‌های بهینه و مطابق با استانداردهای محیط زیستی برای کاهش تاثیرات منفی زیستی باید مدنظر قرار گیرد.

مواد

نانوذره و سورفکتانت: نانوذره کلسیم کربنات با قطر ۱۵ nm با فراوانی بزرگتر از ۹۸٪ از NANO SHEL

با توجه به تاریخچه ارائه شده، علاوه بر برهمکنش میان سورفکتانت و نانوذره، هیستریسیس مربوط به توالی تزریق نیز بر ازدیاد برداشت فوم موثر می‌باشد. بنابراین، در مطالعه کنونی، تزریق فوم پایدار شده با محلول‌های مولد فوم مختلف به دو صورت ثانویه و ثالثیه انجام می‌شود. به منظور بررسی دلیل هیستریسیس مشاهده شده، توالی‌های ذکر شده در روش قطره سیسیل پیاده سازی می‌شود تا تغییرات ترشوندگی در طول زمان مشاهده شود. تغییرات ترشوندگی در دستگاه زاویه تماس، نماینده‌ای از رژیم همرفتی و انتشاری خواهد بود.

روش آزمایشگاهی

ازدیاد برداشت نفت و گاز از مخازن معمولاً به چندین روش انجام می‌شود. این روش‌ها به ترتیب از زیاد برداشت اولیه، ثانویه و ثالثیه نامیده می‌شوند. روش‌های ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثانویه و ثالثیه تفاوت‌های مهمی با هم دارند. در ادامه به برخی از این تفاوت‌ها اشاره می‌کنم:

۱- مواد تزریقی: در روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثانویه، مواد تزریقی مانند آب، گاز و یا مواد شیمیایی به داخل مخزن تزریق می‌شوند در حالی که در روش ازدیاد برداشت نفت و گاز به صورت ثالثیه، تزریق گاز، تزریق بخار، تزریق مایعات شیمیایی و یا تزریق میکروبوکس انجام می‌شود. ۲- تاثیر بر روی مخزن: روش ازدیاد برداشت نفت

بالا رفتن pH منجر به کاهش بار نانوذره به سمت منفی می‌شود. بنابراین، به منظور حذف تاثیر بار نانوذره و شوری بر روی نتایج آزمایش ترشوندگی، این دو پارامتر باید ثابت بمانند. شوری در همه آزمایش‌ها به صورت یکسان است و صفر در نظر گرفته شد. در مورد خاصیت اسیدی و بازی محلول، از محلول باز سدیم هیدروکسید با غلظت ۰/۰۱ درصد وزنی جهت تغییر pH محلول مولد فوم به pH خنثی استفاده شد. پس از ساخت محلول مولد فوم، pH آن اندازه‌گیری شد که در اکثر موارد اندکی اسیدی بود. یک تا چند قطره از محلول بازی آماده شده داخل محلول مولد فوم ریخته شده و توسط همزن مغناطیسی هم زده می‌شود. همزمان توسط دستگاه pH سنج میزان pH محلول مولد فوم مورد بررسی قرار می‌گیرد. این فرآیند تا زمانی ادامه می‌یابد که pH محلول مولد فوم به pH خنثی رسیده باشد. قابل ذکر است، در فرآیند تیتراسیون، محلول مولد فوم بایستی در دور آرام همزده شود تا هیچ فومی در طول این فرآیند تشکیل نگردد. با توجه به حجم کم محلول بازی استفاده شده (معمولا کمتر از سه قطره)، تاثیر آن روی غلظت سورفکتانت و نانوذره ناچیز در نظر گرفته شد.

آزمایش تزریق مغزه مصنوعی

ساخت مغزه مصنوعی

ابتدا دانه‌های شیشه‌ای را با اندازه ذرات میان ۳۷ و ۷۵ μm که به رنگ سفید است به مقدار از پیش تعیین شده در بشر ریخته شدند و به آن نفت خام اضافه شد. سپس، مخلوط همزده شد. تا جایی که تمام دانه‌ها با نفت خام در تماس قرار گیرد. سپس به منظور پیرسازی دانه‌ها، مخلوط ذکر شده را به مدت ۲۱ روز در آن تحت دمای 70°C قرار داده شد. در طول این مدت، هر چند روز یک بار، مخلوط را بهم‌زده تا از جدایش دانه‌های شیشه‌ای و نفت جلوگیری شود و نفت کافی در دسترس دانه‌ها قرار بگیرد.

به صورت پودر جامد خریداری گردید که خواص پایداری این نانوذره در مطالعات مختلفی مورد بررسی قرار گرفته است و می‌توان تاثیرات آن را مشاهده نمود [۲۶ و ۲۷]. سورفکتانت آنیونی Sodium dodecyl sulfate (SDS) نیز به صورت پودر از شرکت مرک خریداری گردید که فرمول اصلی آن $\text{CH}_3(\text{CH}_2)_{11}\text{SO}_4\text{Na}$ می‌باشد. غلظت بحرانی این سورفکتانت برابر با ۰/۰۴ درصد وزنی می‌باشد که در این کار از آب دی‌یونیزه با رسانایی کمتر از ۵ میکروزیمنس به عنوان حلال سورفکتانت و نانوذره استفاده شده است.

نفت خام: نمونه نفت استفاده شده در این کار از یکی از چاه‌های میدان نفتی اهواز تهیه شده است. این نفت در شرایط محیط از کاغذ صافی با مشبک‌های $42\ \mu\text{m}$ عبور داده شد و پس از تصفیه، ویسکوزیته و دانسیته آن اندازه‌گیری گردید که به ترتیب برابر ۶ cP و $0.81\ \text{g/cm}^3$ بیان گردیده است.

تهیه محلول مولد فوم

مقدار از پیش تعیین شده نانوذره را در نانوسیال ریخته و توسط همزن مغناطیسی در دمای محیط همگن می‌کنیم. محلول در این مرحله مقداری غیر شفاف است که به تشکیل توده‌های نانوذره‌ای نسبت داده می‌شود. مخلوط جدید شیری رنگ را به مدت ۱۰ min توسط دستگاه فراصوت با توان ۹۰ W و فرکانس ۲۰ kHz همگن می‌کنیم تا شفاف شود. در صورت نیاز به اضافه کردن سورفکتانت، مقدار از پیش تعیین شده سورفکتانت را به نانوسیال شفاف اضافه می‌کنیم. مخلوط جدید دوباره با همزن مغناطیسی همگن می‌شود. به مخلوط نانوسیال، h ۲۴ استراحت داده می‌شود تا رسوب گذاری احتمالی انجام شود. سپس، مایع شفاف بالایی را به عنوان محلول مولد فوم جدا می‌کنیم.

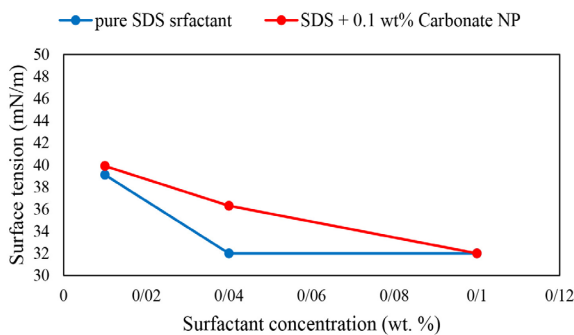
اندازه‌گیری pH و تیتراسیون

میزان شوری و pH روی بار نانوذره و در نتیجه رفتار جذب سطحی تاثیر دارد. نقطه ایزو الکترونیک برای نانوذره کلسیم کربنات دارای pH بین ۹ تا ۱۱ است.

شکل ۳ تا ۶ تصاویری از مراحل این فرآیند را به نمایش گذاشته است.

پودر شیشه آماده شده، به وسیله پیمانه‌های کوچک مساوی، داخل محفظه استوانه‌ای فلزی ریخته می‌شود. پس از ریختن هر پیمانه، با ضربه به بدنه سندپک، پودرها روی هم جای می‌گیرند و فضای خالی کم‌تر می‌شود. سپس توسط ضربه زدن با چوب مخصوص (که قطر خارجی آن تقریباً مساوی با قطر داخلی سندپک است) به داخل سندپک، پودر سنگ بهم فشرده‌تر می‌شود. برای پیمانه بعد نیز، این فرآیند تا زمان پرشدن کامل سندپک تکرار می‌شود. کلید تکرار پذیری این روش در شدت و زمان لرزاندن و قدرت و تعداد ضربه‌های چوب مخصوص پک کردن می‌باشد. اگر شدت و زمان لرزاندن و همچنین قدرت و تعداد ضربه‌های چوب مخصوص پک کردن در همه دفعات ساخت سندپک یکسان باشد، تکرارپذیری بالا می‌رود.

پس از گذشت این مدت زمان، باید نفت اضافی از پودر شیشه جدا شود و تنها پودر نفت دوست شده باقی بماند. بنابراین ابتدا نفتی که سر بشر را گرفته دور می‌ریزیم و سپس پودر شیشه همراه با نفت را درون بشری دیگر که حاوی استون و سیکلو هزان با نسبت حجمی یا وزنی ۱:۱ می‌باشد، ریخته می‌شود. مخلوط را بهم زده تا نفت اضافی درون حلال حل شود. حلال قدیمی که اکنون تیره شده است را تا جای ممکن خالی کرده و حلال تازه‌ای را با آن جایگزین می‌کنیم. پس از دو بار جایگزینی حلال قدیمی با حلال تازه، دیگر رنگ حلال تغییر چندانی نمی‌کند و شفاف می‌ماند. از این رو متوجه می‌شویم که دیگر تمام نفت‌های چسبیده به دانه‌های شیشه‌ای از آن جدا شده است. پودر باقی‌مانده را جهت خشک شدن دوباره داخل آن قرار می‌دهیم. حال از پودر خشک شده برای ساخت سندپک نفت دوست استفاده شد.



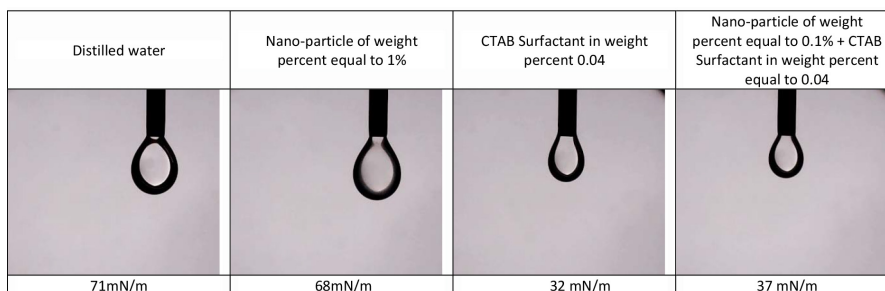
شکل ۴ کشش سطحی محلول مولد فوم و هوا در بازه غلظت سورفکتانت.

Fig. 4 The surface tension of the solution generating foam and weather in the values' change of surfactant concentration.



شکل ۳ الف: مخلوط نفت و پودر شیشه قبل از پیرسازی و ب: پودر شیشه پس از پیرسازی، شستشو و خشک شدن

Fig. 3 Left—a) mixture of oil and glass's powder before aging and b): glass's powder after aging, washing and being dried.



شکل ۵ تصویر قطره آویزان به همراه مقادیر کشش سطحی برای محلول‌های مولد فوم مختلف استفاده شده در این مطالعه.

Fig. 5 The image of a dangling drop with surface tension values which are printed in below row for the solutions generating various foams used in this study.

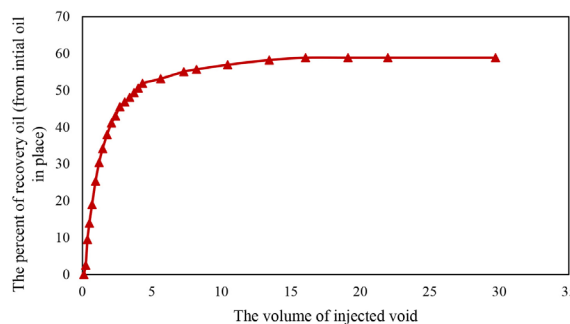
می‌گیرد. نرخ این تزریق با توجه به تخلخل، تراوایی مطلق و عدد موینگی تعیین می‌شود. عدد موینگی در مخزن واقعی نزدیک به 10^{-5} می‌باشد و به صورت زیر در معادله شماره ۱ تعریف می‌شود:

$$N_c = 0.01 \frac{K \Delta P}{\sigma \cos \theta} \quad (1)$$

که در آن K تراوایی مطلق بر حسب ΔP ، ΔP افت فشار دو سر مغزه در حالت پایدار بر حسب σ ، σ کشش بین سطحی آب و نفت و θ زاویه تماس سیستم آب/نفت/سنگ می‌باشد. اگر دبی تزریقی $1 \text{ mm}^3/\text{min}$ باشد میزان عدد موینگی برابر با 1×10^{-5} است. بنابراین، دبی کل تزریقی برابر با $1 \text{ cc}/\text{min}$ انتخاب شد. تزریق نفت تا جایی ادامه می‌یابد دیگر آب تولیدی نداشته باشیم. حجم این نفت تزریقی تقریباً نزدیک به 10 برابر فضای خالی مغزه بود. در این مرحله سیال خروجی جمع‌آوری و اندازه‌گیری می‌شود و افت فشار ثبت می‌شود. در نهایت اشباع اولیه آب به وسیله موازنه جرم بدست می‌آید. مشخصات پتروفیزیکی مغزه، نفت در جای اولیه و میزان اشباع آب همزاد در این مرحله بدست می‌آیند که در **جدول ۱** برای مغزه مورد آزمایش نمایش داده شده است.

(د) پس از این مرحله، مغزه پیرسازی^۱ می‌شود. برای پیرسازی مغزه‌ای که به اشباع آب همزاد رسیده، مغزه را داخل مغزه‌نگهدار در همان شرایط فشاری نگه داشته و آن را تحت دما 70°C داخل آون به مدت 30 روز نگه می‌داریم. برای پی بردن به اینکه آیا این زمان برای برگرداندن ترشوندگی به ترشوندگی مخلوط کافی بوده است یا نه از آزمایش زاویه تماس استفاده کنیم.

(ه) هدف اصلی پروژه بررسی رفتار بازیافت نفت ثالثیه یا ترشیری در سیلاب‌زنی به وسیله فوم پایدار شده با محلول‌های مولد فوم مختلف است. در مرحله ثانویه، آب پرشور یا با شوری بسیار بالا یا همان 100000 ppm NaCl با دبی $1 \text{ cc}/\text{min}$ به مغزه تزریق می‌شود.



شکل ۶ نمودار بازیافت نفت بر حسب حجم فضای خالی تزریقی در تزریق ثانویه فوم پایدار شده با نانوسیال در مغزه شماره ۱.
Fig. 6 The graph of recovery oil based on the volume of injected void during secondary injection of stabilized foam with nano-fluid solution in Core No. 1.

تزریق مغزه

آزمایش‌های تزریق مغزه در دمای محیط و فشار انتهایی 1500 psi جهت بررسی تاثیر محلول‌های مولد فوم مختلف بر ازدیاد برداشت نفت انجام شد. مراحل تزریق مغزه به صورت زیر می‌باشد:

(الف) مغزه مصنوعی تحت تزریق گاز دی اکسید کربن قرار می‌گیرد. سپس این مغزه تحت تزریق شورآب حاوی 100000 ppm NaCl قرار می‌گیرد تا تا به اشباع 10% از فاز آبی برسد. در صورتی که تزریق دی اکسید کربن قبل از تزریق شورآب انجام نشود؛ تزریق شورآب نمی‌تواند تمام هوای موجود در مغزه را بیرون کند و مغزه اشباع 10% از فاز آبی نمی‌شود. با این حال، در تزریق دی اکسید کربن در ابتدا همه هوا خارج شده و دی اکسید کربن جایگزین آن می‌شود. وقتی آب پس از دی اکسید کربن تزریق می‌شود بدلیل پایین بودن نیروهای موینه بین آب و دی اکسید کربن، گاز به دام افتاده تقریباً ناچیز می‌شود و می‌توان آن را در نظر نگرفت. (ب) پس از اشباع کامل مغزه مصنوعی با آب مورد نظر، مغزه تحت سیلاب‌زنی با آبی که توسط آن اشباع شده بود قرار می‌گیرد. تراوایی مطلق مغزه با اندازه‌گیری افت فشار دو سر مغزه در نرخ تزریق‌های متفاوت توسط معادله دارسی محاسبه می‌شود.

(ج) گام بعدی، رساندن اشباع آب مغزه به اشباع همزاد است. در این مرحله، مغزه تحت تزریق نفت قرار

جدول ۱ خواص مغزه‌های مصنوعی.
Table 1 Properties of synthetic cores.

Situation (or State)	Entrained Water(%)	Initial Oil in (mL) Place	Permeability (mD)	Porosity (%)	Void Volume (mL)	Bulk Volume (mL)	Pack Diameter (cm)	Core Length (cm)	Core Number
Secondary	22.8	54.1	68.4	23.8	70.1	294.4	5	15	1
Secondary	28.8	47.8	62.4	22.8	67.1	294.4	5	15	2
Secondary	32.3	42.2	58.9	21.2	62.4	294.4	5	15	3
Tertiary	34.6	39.5	56.3	20.5	60.4	294.4	5	15	4
Tertiary	27.2	49.3	63.3	23.0	67.8	294.4	5	15	5
Tertiary	36.7	35.8	50.5	19.2	56.6	294.4	5	15	6

سطحی با زمان می‌کند. اندازه‌گیری کشش بین سطحی تا زمانی ادامه می‌یابد که میزان کشش سطحی با زمان تغییر معنی داری نکند و سیستم به تعادل نسبی برسد.

اندازه‌گیری زاویه تماس

به منظور بررسی تغییرات ترشوندگی، روند تزریق فوم در دستگاه اندازه‌گیری زاویه تماس پیاده می‌شود. در این مطالعه، به منظور اندازه‌گیری زاویه تماس سیستم شیشه نفت دوست/نفت خام/شورآب از روش قطره سیسیل استفاده شد. در این مطالعه از شیشه به عنوان نماینده ماسه سنگ استفاده شده است. قطعه نازک شیشه‌ای داخل نفت غوطه ور شده است و در دمای 70°C به مدت ۲۱ روز در آن تحت فرآیند پیرسازی قرار می‌گیرد. سپس، قطعه نازک شیشه از نفت خارج و نفت روی آن به آرامی توسط دستمال خشک می‌شود. برای پاک کردن لایه نفتی اضافی از سطح کلسیت، قطعه نازک سنگ در محلول سیکلو هگزان و نرمال هپتان قرار می‌گیرد. زمانی که محلول در اثر انحلال نفت تیره شد، با محلول تازه و شفاف جایگزین می‌شود. بعد از دو تا سه تکرار، دیگر نفتی از روی سنگ داخل محلول حل نشد و محلول شفاف ماند. سپس شیشه را درون ظرف اندازه‌گیری زاویه تماس داخل آب پرشور که 100000 ppm NaCl می‌باشد را قرار داده و زاویه تماس با زمان ثبت شد. به منظور تعویض این آب با محلول مولد فوم، از بالای محفظه زاویه تماس

به منظور حذف اثر انتهایی مویینگی دبی به 2 min و 4 افزایش می‌یابد. تزریق آب پرشور تا زمانی ادامه می‌یابد که نفتی تولید نشود و افت فشار دو سر مغزه ثابت بماند. به منظور بررسی از دید برداشت فوم ثبت شده با نانوذره و سورفکتانت، مغزه تحت تزریق محلول مولد فوم و گاز به صورت همزمان قرار می‌گیرد. دبی کل تزریقی در این مرحله نیز برابر 1 mL/min می‌باشد. دبی تزریقی گاز برابر 0.5 mL/min و دبی تزریقی محلول مولد فوم برابر 0.5 mL/min می‌باشد. به منظور از بین بردن اثر انتهایی مویینگی، دبی کل به ترتیب 2 و 4 mL/min می‌شود. در طول زمان تزریق، میزان تولید نفت با زمان ثبت خواهد شد.

اندازه‌گیری کشش بین سطحی

برای اندازه‌گیری کشش سطحی محلول مولد فوم/هوا از روش قطره آویزان استفاده شد. محلول مولد فوم توسط پمپ سرنگی (JMS, SP-500) به آرامی از منبع به داخل نیدل تزریق می‌شود تا قطره محلول مولد فوم شکل بگیرد. عکس‌های قطره نفت آویزان توسط دوربین میکروسکوپی دیجیتال دینولایت^۱ ثبت و نظارت شدند. سپس این تصاویر توسط نرم افزار تحلیل شکل قطره^۲ آنالیز شدند. نور پشتی یکنواختی و شدیدی جهت بهبود کنتراست به منظور اندازه‌گیری دقیق تعبیه شد. به محض اینکه قطره نفت آویزان به حجم مناسبی برسد (که توسط نرم افزار ذکر شده تشخیص داده می‌شود) تزریق نگه داشته می‌شود. سپس نرم‌افزار شروع به اندازه‌گیری و ثبت داده‌های کشش

1. Dino-lite

2. Drop Shape Analysis (DSA)

معنی دار کشش سطحی می‌شود. حضور نانوذره در محلول سورفکتانتی منجر به کروی‌تر شدن قطره و در نتیجه افزایش کشش سطحی می‌شود که در تطابق با نتایج **شکل ۴** می‌باشد.

آزمایش تزریق مغزه

تزریق فوم پایداری شده با نانوسیال

این آزمایش به صورت ثانویه و ثالثیه به ترتیب در مغزه‌های شماره ۱ و ۴ انجام شد. در حالت ثانویه، محلول مولد فوم با ترکیب ۰/۱ درصد وزنی از نانوذره کلسیم کربنات با دبی ۰/۵ cc/min و گاز دی اکسید کربن با دبی ۰/۵ cc/min همزمان تزریق شدند. نمودار تولید نفت در این مرحله به صورت **شکل ۶** می‌باشد. بازیافت نهایی در این نمونه برابر ۵۸/۹٪ از نفت در جای اولیه بود. زمان میان‌شکنی روی نمودار در بازیافت ۹/۵ درصد از نفت در جای اولیه است.

در حالت ثالثیه، ابتدا آب پرشور در مغزه شماره ۴ تزریق می‌شود تا جایی که دیگر نفتی تولید نشود. سپس، محلول مولد فوم با ترکیب ۰/۱ درصد وزنی از نانوذره کلسیم کربنات با دبی ۰/۵ cc/min و همچنین گاز دی اکسید کربن با دبی ۰/۵ cc/min همزمان تزریق شدند. نمودار بازیافت نفت بر حسب حجم فضای خالی تزریقی در **شکل ۷** نمایش داده شده است. فوم پایدار شده با نانو سیال قادر است تنها ۱/۱٪ از نفت در جای اولیه را تولید کند. همچنین، براساس نتایج، تزریق فوم به صورت ثانویه دارای بازیافت بیشتری (۸٪ از نفت در جای اولیه) نسبت به تزریق ثالثیه می‌باشد.

تزریق فوم پایداری شده با سورفکتانت

این آزمایش به صورت ثانویه و ثالثیه به ترتیب در مغزه‌های شماره ۲ و ۵ انجام شد. در حالت ثانویه، محلول مولد فوم با ترکیب ۰/۰۴ درصد وزنی از سورفکتانت CTAB با دبی ۰/۵ cc/min و همچنین گاز دی اکسید کربن با دبی ۰/۵ cc/min به صورت همزمان تزریق شدند. نمودار بازیافت نفت بر حسب نفت در جای اولیه در این مرحله به صورت **شکل ۸** می‌باشد.

به آن محلول مولد فوم وارد می‌شود و از پایین و سمت مقابل مخلوط آب پرشور و محلول مولد فوم خارج می‌شود. این عمل تا جایی ادامه می‌یابد که تنها محلول مولد فوم در محفظه باقی بماند. زاویه تماس پس انداختن قطره یا پس از تعویض محلول‌های آبی به مدت ۲ روز پایش می‌شود.

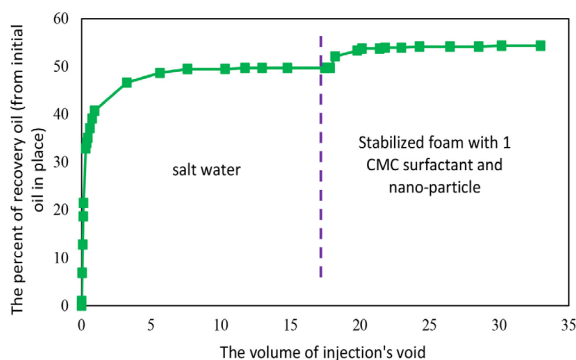
نتایج و بحث

اندازه‌گیری کشش سطحی

آزمایش کشش سطحی برای محلول سورفکتانتی و مخلوط سورفکتانت و نانوذره ۰/۱ درصد وزنی در غلظت‌های مختلفی از سورفکتانت انجام شد. همانطور که در **شکل ۴** نشان داده شده است، کشش سطحی مخلوط نانوذره و سورفکتانت، در بازه غلظت سورفکتانت استفاده شده در این مطالعه، بالاتر از کشش سطحی محلول سورفکتانتی است. اختلاف کشش سطحی مخلوط نانوذره و سورفکتانت با محلول سورفکتانتی در ۰/۰۴ درصد وزنی از سورفکتانت در بیشترین حالت خود قرار دارد. بنظر می‌رسد با جذب سطحی سورفکتانت آنیونی بر سطح نانوذره کربنات، از تعداد سورفکتانت‌های آزاد در محلول کاسته می‌شود. کاهش مقدار سورفکتانت‌های آزاد منجر به افزایش کشش سطحی خواهد شد. با توجه به **شکل ۴**، در غلظت‌های بالاتر (نزدیک به ۰/۱ درصد وزنی از سورفکتانت) به دلیل فراوانی سورفکتانت آزاد، کاهش تعدادی از سورفکتانت‌های آزاد بر اثر جذب سطحی تأثیری بر کشش سطحی تعادلی ندارد. با توجه به شکل ۴، میزان غلظت بحرانی سورفکتانت SDS برابر با ۰/۰۴ درصد وزنی است.

شکل ۵ تصاویر مربوط به کشش سطحی محلول‌های مولد فوم مختلف مورد استفاده در این مطالعه را نمایش می‌دهد. همان‌طور که در شکل ۵ نشان داده شده است اضافه کردن نانوذره به نانوسیال منجر به کاهش اندک کشش سطحی می‌شود. اضافه کردن سورفکتانت به نانوسیال منجر به آویزان‌تر شدن قطره نسبت به نانوسیال و در نتیجه کاهش

صورت **شکل ۹** است. فوم پایدار شده با سورفکتانت قادر است نفت اضافی به میزان حدود ۴/۶٪ از نفت در جای اولیه تولید کند. با این حال، تزریق ثانویه فوم ذکر شده به صورت معنی داری بازیافت نهایی را نسبت به تزریق ثالثیه افزایش می‌دهد.

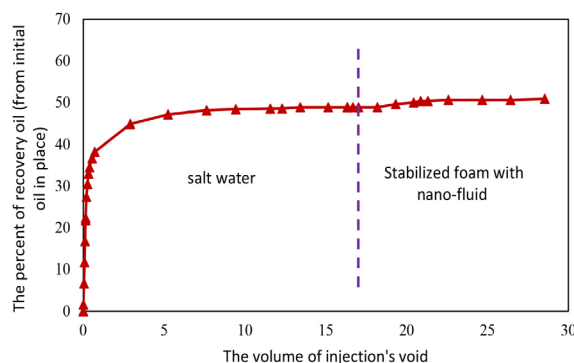


شکل ۹ نمودار بازیافت نفت بر حسب حجم فضای خالی تزریقی در تزریق ثالثیه فوم پایدار شده با محلول سورفکتانتی ۱/۵ CMC و نانوذره ۰/۱ درصد وزنی در مغزه شماره ۵.

Fig. 9 The graph of recovery oil based on the volume of injection's void during tertiary injection of stabilized foam with 1 CMS nano-fluid surfactant solution and nano-particle with percent wight equal to 0.1 in Core No. 5.

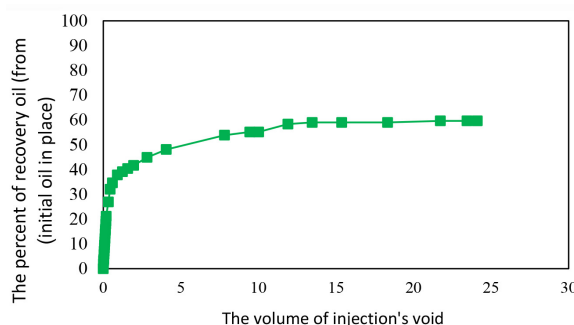
آزمایش تزریق فوم پایدار شده با مخلوط نانوذره و سورفکتانت

این آزمایش به صورت ثانویه و ثالثیه به ترتیب در مغزه‌های شماره ۳ و ۶ انجام شد. در حالت ثانویه، محلول مولد فوم با ترکیب ۰/۰۴ درصد وزنی از سورفکتانت و ۰/۱ درصد وزنی از نانوذره با دبی cc/min ۰/۵ و همچنین گاز دی اکسید کربن با دبی cc/min ۰/۵ همزمان تزریق شدند. نمودار تولید نفت بر حسب حجم حفره تزریقی در این مرحله به صورت **شکل ۱۰** می‌باشد. بازیافت نهایی در تزریق این محلول مولد فوم ۶/۶۸٪ از نفت در جای اولیه می‌باشد. میان‌شکنی در ۰/۳۲ برابر حجم حفره تزریقی انجام شده است که به صورت معنی‌داری نسبت به تزریق در حالات قبل عملکرد بهتری داشته است. به عبارت دیگر، فوم پایدار شده توسط سورفکتانت و نانوذره دارای ویسکوزیته بالاتری نسبت به حالت قبل است.



شکل ۷ نمودار بازیافت نفت بر حسب حجم فضای خالی تزریقی در تزریق ثالثیه فوم پایدار شده با محلول نانوسیال در مغزه شماره ۴.

Fig. 7 The graph of recovery oil based on the volume of injected void during tertiary injection of stabilized foam with nano-fluid solution in Core No. 4.



شکل ۸ نمودار بازیافت نفت بر حسب حجم فضای خالی تزریقی در تزریق ثانویه فوم پایدار شده با محلول سورفکتانتی ۱ CMC در مغزه شماره ۲.

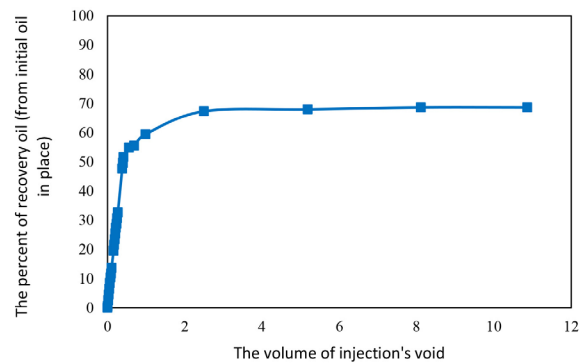
Fig. 8 The graph of recovery oil based on the volume of injection's void during tertiary injection of stabilized foam with 1 CMS nano-fluid surfactant solution in Core No. 2.

بازیافت نهایی در تزریق محلول مولد فوم با جذب سطحی پایین ۵۹/۶٪ از نفت در جای اولیه می‌باشد. میان‌شکنی در ۰/۱۹ برابر حجم حفره تزریقی انجام شده است که نسبت به تزریق نانوسیال به صورت معنی داری بیشتر است. بر اساس این مشاهده، فوم پایدار شده با سورفکتانت داری ویسکوزیته بیشتری نسبت به نانوسیال است.

در حالت ثالثیه، ابتدا آب پرشور در مغزه شماره ۵ تزریق می‌شود تا جایی که دیگر نفتی تولید نشود. سپس، محلول مولد فوم با ترکیب ۰/۰۴ درصد وزنی از سورفکتانت و ۰/۱ درصد وزنی از نانوذره با دبی cc/min ۰/۵ و همچنین گاز دی اکسید کربن با دبی cc/min ۰/۵ همزمان تزریق شدند. نمودار بازیافت به

خام به تعادل می‌رسد. سپس، بر اساس فعالیت‌های آزمایشگاهی، فاز آبی محفظه به تدریج با نانوسیال تعویض می‌شود. شکل ۱۲ نشان می‌دهد که در این حالت نانوسیال توانایی تغییر ترشوندگی شیشه نفت دوست را ندارد. شکل ۱۳ تصاویر مربوط به قطره اول نفت را در زمان‌های مختلف نشان می‌دهد. تغییرات ناچیز زاویه تماس بازیافت نفت کم را در طول تزریق ثانویه و ثالثیه نانوسیال توجیه می‌کند.

پس از ۲۴ h قطره دوم نفتی در کنار قطره اول نفت قرار گرفت و زاویه تماس آن با زمان پایش شد. از آنجا که سطحی که در حال حاضر توسط قطره دوم نفت اشغال شده است قبلاً در تماس آزاد با محلول مولد فوم بوده است رژیم حاکم بر این تغییر ترشوندگی همرفتی می‌باشد. به عبارت دیگر، در آزمون جدید اثر انتشار حذف شده است. همانطور که در شکل ۱۴ مشاهده می‌شود، نانوسیال در حالت همرفتی زاویه تماس را تا 76° کاهش داده است که به صوت معنی‌داری کمتر از زاویه تماس تعادلی در حالت انتشاری (قطره اول) می‌باشد. به عبارت دیگر، در قطره اول، نانوسیال توانایی انتشار در لایه آب پرشور تشکیل شده در مرحله قبلش را ندارد. پورا کابریان و همکاران نشان دادند که حضور آب پرشور در فیلم آبی، با افزایش بار سنگ و نفت به سمت مقادیر مثبت، موجب نازک شدن آن فیلم آبی می‌شود [۲۸]. آن‌ها بیان کردند انتقال یون در چنین لایه‌هایی سختتر از لایه‌های ضخیم‌تر است. بنابراین، هر چند نانوسیال توانایی بالقوه در تغییر ترشوندگی دارد، ولی عدم انتشار آب به لایه آب پرشور در قطره اول موجب عدم تاثیر گذاری آن می‌شود. در تزریق ثالثیه، رژیم انتشاری رژیم حاکم بر ازدیاد برداشت نفت است. در حالی که در تزریق ثانویه، سیال تزریقی در مسیرهای اصلی دارای حرکتی مشابه با رژیم همرفتی است. با حاکم شدن رژیم انتشاری بر رفتار بازیافت نفت، تغییر ترشوندگی کمتری به سمت آبدوستی رخ می‌دهد. بنابراین، میزان بازیافت نفت در تزریق ثالثیه نسبت به تزریق ثانویه کمتر خواهد بود.



شکل ۱۱ نمودار بازیافت نفت بر حسب حجم فضای خالی تزریقی در تزریق ثالثیه فوم پایدار شده با محلول سورفکتانتی 1 CMC و نانوذره ۰/۱ درصد وزنی در مغزه شماره ۶.

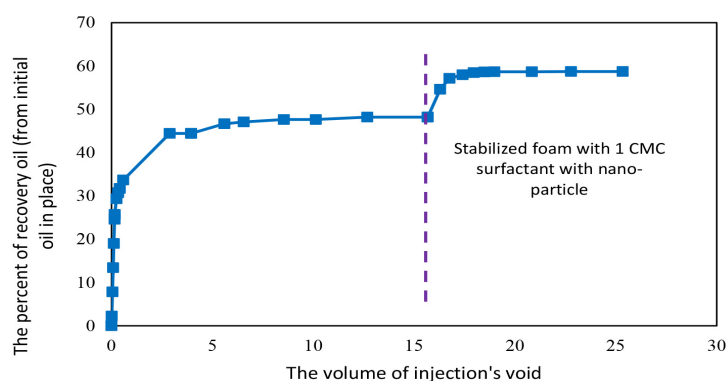
Fig. 10 The graph of recovery oil based on the volume of injection's void during tertiary injection of stabilized foam with 1 CMS nano-fluid surfactant solution and nano-particle with percent wight equal to 0.1 in Core No. 3.

در حالت ثالثیه، ابتدا آب پرشور در مغزه شماره ۶ تزریق می‌شود تا جایی که دیگر نفتی تولید نشود. سپس، محلول مولد فوم با ترکیب ۰/۰۴ درصد وزنی از سورفکتانت و ۰/۱ درصد وزنی از نانوذره با دبی cc/min و همچنین گاز دی اکسید کربن با دبی cc/min ۰/۵ همزمان تزریق شدند. نمودار بازیافت بر حسب حجم حفره تزریقی به صورت شکل ۱۱ است. فوم پایدار شده با مخلوط نانوذره و سورفکتانت قادر است نفت اضافی به میزان ۱۰/۴٪ از نفت در جای اولیه تولید کند. بنابراین، فوم پایدار شده با مخلوط سورفکتانت و نانوذره می‌تواند عملکرد ازدیاد برداشتی بهتری نسبت به دیگر فوم‌های مورد مطالعه داشته باشد. همانند حالات قبل، تزریق ثانویه فوم دارای عملکرد بهتری نسبت به تزریق ثالثیه می‌باشد. تفاوت در عملکرد تزریق ثالثیه و ثانویه در ادامه مورد بررسی قرار خواهد گرفت.

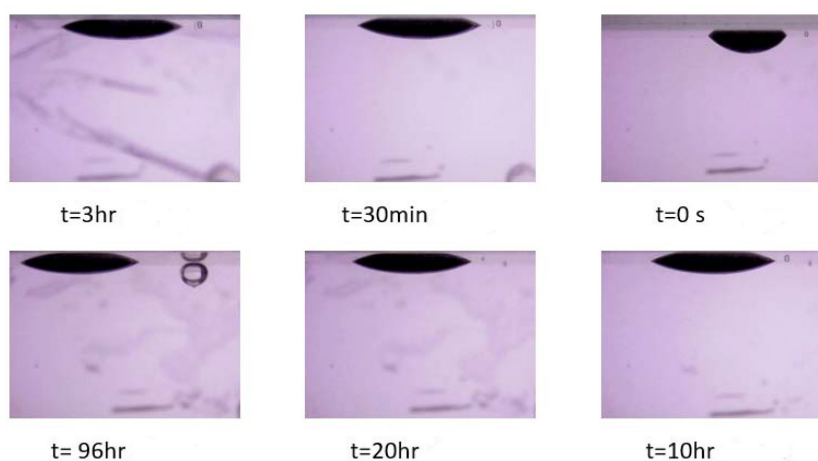
اندازه‌گیری زاویه تماس

هیترسیس در ترشوندگی شیشه نفت دوست توسط نانوسیال

تغییرات زاویه تماس شور آب/شیشه نفت دوست/نفت خام بر حسب زمان در شکل ۱۲ نمایش داده شده است. در ابتدا آب پر شور به مدت ۴۸ h در تماس مستقیم با سطح شیشه نفت دوست است. سپس، قطره اول نفت رها شده و به سطح زیرین شیشه می‌چسبد. پس از ۴۸ h، زاویه تماس آب پرشور/شیشه نفت دوست/نفت



شکل ۱۲ زاویه تماس بر حسب زمان (ساعت) برای سیستم نفت خام/شیشه نفت دوست/نانوسیال.
Fig. 12 Contact angle based on time (hour) for the crude oil/ hydrophilic glass/ nano-fluid system.



شکل ۱۳ عکس قطره نفت آزاد شده در ساعات مختلف در سیستم نفت خام/شیشه نفت دوست/نانوسیال.
Fig. 13 The image of released oil's drop during different times in the crude oil/ hydrophilic glass/ nano-fluid system.



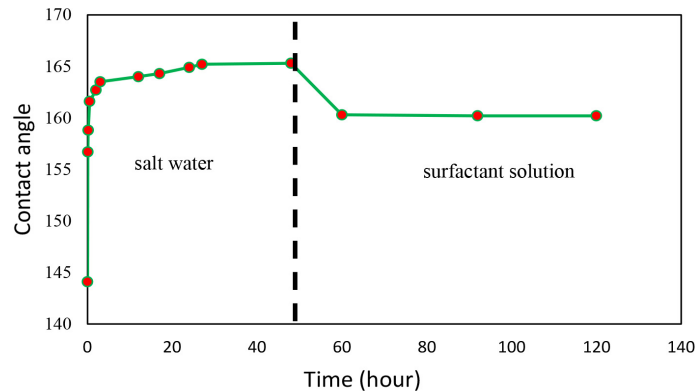
شکل ۱۴ مقایسه زاویه تماس قطره‌ی اول و دوم به ترتیب در حالت انتشار و همرفتی برای نانوسیال.
Fig. 14 Comparison of contact angle of first drop and second drop based on diffusion and advection states for nano-fluid respectively.

زاویه تماس آب پرشور/شیشه نفت دوست/نفت خام به تعادل می‌رسد. سپس، بر اساس قسمت فعالیت‌های آزمایشگاهی، فاز آبی محفظه به تدریج با محلول سورفکتانتی (۰/۰۴ درصد وزنی از SDS) تعویض می‌شود. شکل ۱۵ نشان می‌دهد که در این حالت محلول سورفکتانتی قادر به تغییر ترشوندگی

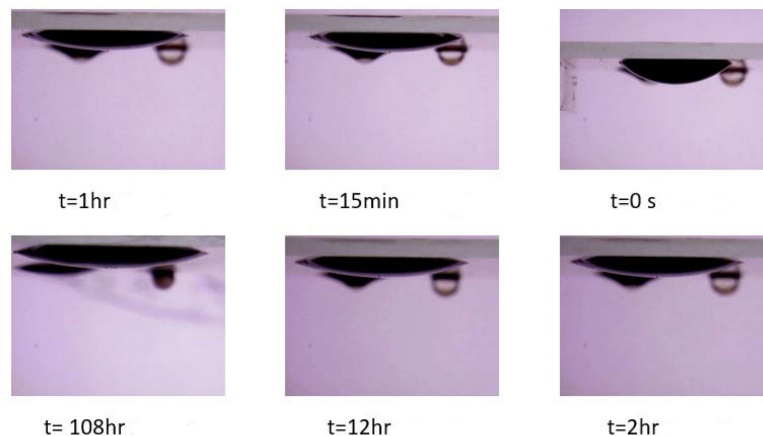
تغییرات زاویه تماس محلول آبی/شیشه نفت دوست/نفت خام بر حسب زمان در شکل ۱۵ نمایش داده شده است. همانند بخش قبلی، در ابتدا آب پر شور به مدت ۴۸ h در تماس مستقیم با سطح شیشه نفت دوست است. سپس، قطره اول نفت رها شده و به سطح زیرین شیشه می‌چسبند. پس از ۴۸ h،

بیشتر نفت در تزریق فوم پایدار شده با سورفکتانت نسبت به نانوسیال به تغییر ترشوندگی بیشتر توسط سورفکتانت نسبت داده می‌شود.

شیشه نفت دوست است و اما تنها 5° از میزان نفتی دوستی شیشه را کاسته است. شکل ۱۶ تصاویر مربوط به قطره اول نفت را در زمان‌های مختلف نشان می‌دهد. بر اساس نتایج، بازیافت



شکل ۱۵ زاویه تماس بر حسب زمان (ساعت) برای سیستم نفت خام/شیشه نفت دوست/محلول سورفکتانتی.
Fig. 15 Contact angle based on time (hour) for the crude oil/ hydrophilic glass/ surfactant solution system.

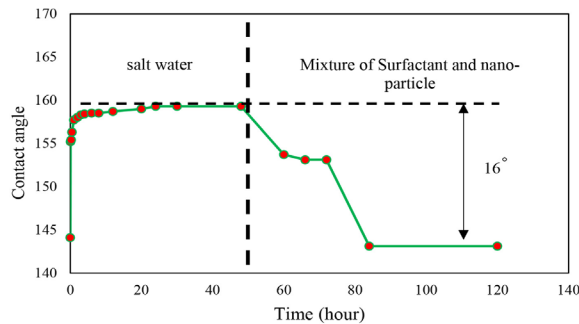


شکل ۱۶ عکس قطره نفت اول آزاد شده در ساعات مختلف در سیستم نفت خام/شیشه نفت دوست/محلول سورفکتانتی.
Fig. 16 The image of the released first oil's drop during different times for the crude oil/ hydrophilic glass/ surfactant solution system.

۱۷ مشاهده می‌شود، محلول سورفکتانتی در حالت همرفتی زاویه تماس را به 45° کاهش داده است که به صوت معنی‌داری کمتر از زاویه تماس تعادلی در حالت انتشاری (قطره اول) می‌باشد. از مقایسه شکل ۱۷ با شکل ۱۴ می‌توان پی برد که در رژیم همرفتی، توانایی سورفکتانت برای تغییر ترشوندگی به سمت آب‌دوستی بیشتر از نانوذده و نانوسیال می‌باشد.

پس از ۲۴ h قطره دوم نفتی در کنار قطره اول نفت قرار گرفت و زاویه تماس آن با زمان پایش شد. همان‌طور که ذکر شد، سطحی که در حال حاضر توسط قطره دوم نفت اشغال شده است قبلاً در تماس آزاد با محلول مولد فوم بوده است. بنابراین، رژیم حاکم بر این تغییر ترشوندگی همرفتی می‌باشد. به عبارت دیگر، زاویه تماس قطره جدید تحت تاثیر انتشار نمی‌باشد. همان‌طور که در شکل

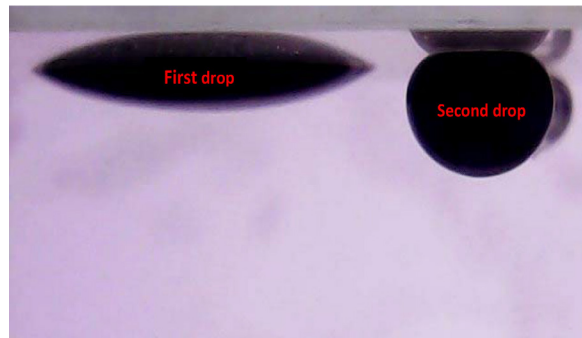
تماس شیشه را ۱۵۸ به ۱۴۳ (به میزان 16°) کاهش داده است. شکل ۱۳ تصاویر مربوط به قطره نفت را در این سیستم و در زمان‌های مختلف نشان می‌دهد.



شکل ۱۸ زاویه تماس بر حسب زمان (ساعت) برای سیستم نفت خام-شیشه نفت دوست-مخلوط سورفکتانت و نانوذره.

Fig. 18 Contact angle based on time (hour) for the crude oil/ hydrophilic glass/ mixture of surfactant and nano-particle system.

در مخلوط سورفکتانت و نانوذره، به دلیل جاذبه الکترواستاتیکی، مولکول‌های سورفکتانت با بار مخالف بر سطح نانوذره جذب می‌شوند [۲۹ و ۳۰]. همانطور که ذکر شد، نمود این پدیده را می‌توان در نتایج کشش سطحی این مطالعه نیز مشاهده کرد. بر اساس این پدیده، مخلوط سورفکتانت و نانوذره را می‌توان به سه بخش تقسیم‌بندی کرد. بخش اول، مولکول‌های سورفکتانتی می‌باشند که روی سطح نانوذره جذب نشده‌اند که آن‌ها را مولکول‌های سورفکتانت آزاد می‌نامیم. بخش دوم، ذرات نانو می‌باشند که مولکول‌های سورفکتانت به آن جذب شده است. بخش سوم، نانوذراتی می‌باشند که مولکول‌های سورفکتانت به صورت معنی داری روی آن‌ها جذب نشده و بار سطحی آن را تغییر نداده‌اند. دافعه الکتریکی میان سورفکتانت آزاد (دارای سرگروه با بار منفی) و شیشه (دارای سطحی بار منفی [۳۱]) موجب می‌شود تا سورفکتانت‌ها نتوانند به سطح نزدیک شوند. در نقطه مقابل، نانوذره داری کلسیم کربنات (دارای سطحی بار مثبت [۳۱]) روی سطح شیشه جذب و بار سطحی شیشه را به سمت مثبت افزایش می‌دهد. این امر موجب کاهش بار دافعه میان سورفکتانت و شیشه می‌شود.



شکل ۱۷ مقایسه زاویه تماس قطره‌ی اول و دوم به ترتیب در حالت انتشار و همرفتی برای محلول سورفکتانتی.

Fig. 17 The comparison of contact angle of first and second drops in diffusion and advection states for surfactant solution respectively.

در رژیم همرفتی، به دلیل نبود انتشار، جابجایی آب پرشور با آب کم‌شور به سرعت انجام می‌گیرد. به عبارت دیگر، سرعت جابه‌جایی بیشتر رژیم همرفتی نسبت به رژیم انتشاری عامل تغییر ترشوندگی بیشتر به سمت آب دوستی در رژیم همرفتی می‌باشد. می‌توان گفت که با حاکم شدن رژیم انتشاری بر رفتار بازیافت نفت ثالثیه، تغییر ترشوندگی کمتری به سمت آب دوستی رخ می‌دهد. بنابراین، میزان بازیافت نفت در تزریق ثالثیه نسبت به تزریق ثانویه کمتر خواهد بود.

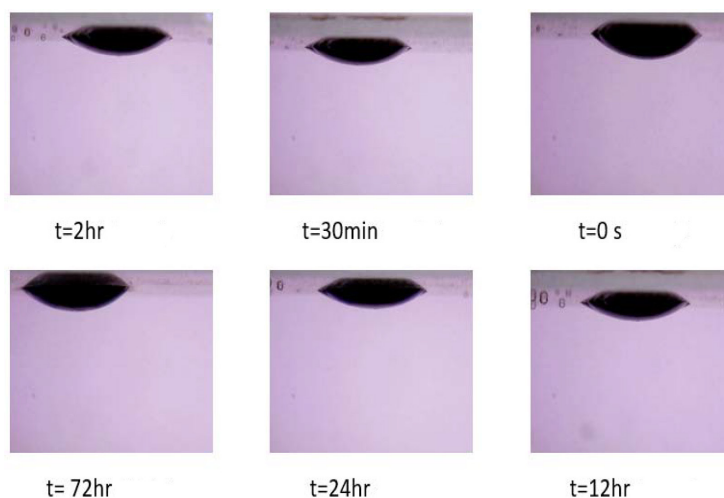
هیستریسیس در ترشوندگی شیشه نفت دوست توسط مخلوط سورفکتانت و نانوذره

تغییرات زاویه تماس محلول آبی/شیشه نفت دوست/ نفت خام بر حسب زمان در شکل ۱۸ نمایش داده شده است. همانند بخش‌های قبلی، در ابتدا آب پر شور به مدت ۴۸ h در تماس مستقیم با سطح شیشه نفت دوست است. سپس، قطره اول نفت رها شده و به سطح زیرین شیشه می‌چسبد. پس از ۴۸ h، زاویه تماس آب پرشور/شیشه نفت دوست/نفت خام به تعادل می‌رسد. سپس، بر اساس قسمت فعالتهای آزمایشگاهی، فاز آبی محفظه به تدریج با مخلوط سورفکتانت (۱ CMC از SDS) و نانوذره (۱/۰ درصد وزنی از کلسیم کربنات) تعویض می‌شود. شکل ۱۸ نشان می‌دهد که در این حالت مخلوط سورفکتانت و نانوذره توانسته است بعد از ۴۸ h زاویه

توسط قطره دوم نفت اشغال شده است قبلا در تماس آزاد با محلول مولد فوم بوده است. بنابراین، رژیم حاکم بر این تغییر ترشوندگی همرفتی می باشد. به عبارت دیگر، زاویه تماس قطره جدید تحت تاثیر انتشار نمی باشد. همان طور که در **شکل ۲۰** مشاهده می شود، مخلوط سورفکتانت و نانوذره در حالت همرفتی زاویه تماس را به 23° کاهش داده است که به صوت معنی داری کمتر از زاویه تماس تعادلی در حالت انتشاری (قطره اول) می باشد. از مقایسه **شکل ۲۰** با **شکل ۱۷** و **شکل ۱۴** می توان پی برد که در رژیم همرفتی، توانایی مخلوط سورفکتانت و نانوذره برای تغییر ترشوندگی به سمت آب دوستی بیشتر از دیگر محلول ها بالاتر می باشد. همان طور که ذکر شد، در رژیم همرفتی، به دلیل نبود انتشار، جابه جایی آب پرشور با آب کم شور به سرعت انجام می گیرد. به عبارت دیگر، سرعت جابجایی بیشتر رژیم همرفتی نسبت به رژیم انتشاری عامل تغییر ترشوندگی بیشتر به سمت آب دوستی در رژیم همرفتی می باشد. این امر نشان دهنده علت بازیافت نفت بیشتر تزریق ثانویه به تزریق ثالثیه می باشد.

لذا با حرکت سورفکتانت به سمت سطح شیشه و جذب زنجیر به زنجیر مولکول های سورفکتانت به مولکول های نفتی چسبیده به سطح شیشه، ترشوندگی به سمت آب دوستی بیشتر تغییر می یابد. با مقایسه نتایج **شکل ۱۵** و **شکل ۱۸** می توان دریافت که در غیاب نانوذره، پدیده جذب سطحی سورفکتانت [**۳۲** و **۳۳**] یا پدیده های دیگر نظیر جفت شدگی [**۳۴**] به صورت معنی داری کمتر اتفاق می افتد. تغییرات ترشوندگی بیشتر مخلوط نانوذره و سورفکتانت نسبت به سورفکتانت تنها تایید کننده تاثیر نانوذره در بهبود حرکت سورفکتانت به سطحی شیشه می باشد. همچنین بازیافت بیشتر نفت در تزریق فوم پایدار شده با مخلوط نانوذره و سورفکتانت نسبت به محلول سورفکتانتی و نانوسیال به تغییرات ترشوندگی بیشتر این مورد نسبت داده شد. همچنین، تغییرات قطره نفت آزاد شده در زمان برابر با صفر تا زمان برابر با ۷۲ h در **شکل ۱۹** نشان داده شده است.

پس از ۲۴ h قطره دوم نفتی در کنار قطره اول نفت قرار گرفت و زاویه تماس آن با زمان پایش شد. همان طور که ذکر شد، سطحی که در حال حاضر



شکل ۱۹ عکس قطره اول نفت آزاد شده در ساعات مختلف در سیستم نفت خام/شیشه نفت دوست/مخلوط سورفکتانت و نانوذره.
Fig. 19 The image of the released first oil's drop during different times for the crude oil/ hydrophilic glass/ surfactant solution system.

و سورفکتانت متناظر آن است. این رفتار به توانایی بالاتر مخلوط سورفکتانت و نانوذره نسبت به سورفکتانت و نانوذره به صورت جداگانه در تغییر ترشوندگی به سمت آبدوستی بیشتر نسبت داده شد. نانوسیال، محلول سورفکتانتی و مخلوط سورفکتانت و نانوذره به ترتیب زاویه تماس شیشه نفتدوست را، 5° و 16° کاستند.

- بازیافت نفت ثالثیه به صورت معنی داری کمتر از بازیافت ثانویه بود که به رژیم انتشاری حاکم در تزریق ثالثیه نسبت داده شد. در رژیم انتشاری، مخلوط سورفکتانت و نانوذره زاویه تماس شیشه نفتدوست 16° کاهش داد که نسبت به تغییر زاویه تماس در همرفتی 125° به صورت معنی داری کمتر بود.

- مقایسه کشش سطحی سورفکتانت و مخلوط سورفکتانت و نانوذره نشان داد که افزوده نانوذره به سورفکتانت موجب افزایش اندکی در کشش سطحی می شود. این مشاهده به جذب سطحی سورفکتانت های با بار مخالف روی نانوذره و کاهش سورفکتانت های آزاد نسبت داده شد. بیشترین جذب سطحی در مخلوط سورفکتانت 0.04 درصد وزنی و نانوذره 0.1 درصد وزنی رخ داد که در توافق با نتایج زاویه تماس و تزریق مغزه بود.



شکل ۲۰ مقایسه زاویه تماس قطره‌ی اول و دوم به ترتیب در حالت انتشار و همرفتی برای مخلوط سورفکتانت و نانوذره.
Fig. 20 The comparison of the contact angle of first and second drops in the states of diffusion and advection for the mixture of surfactant and nano-particle.

نتیجه گیری

در این مطالعه، آزمایش تزریق مغزه ثانویه و ثالثیه در مغزه‌ی مصنوعی از جنس دانه‌های شیشه‌ای به منظور بررسی رفتار بازیافت نفت فوم تثبیت شده با نانوذره کلسیم کربنات و سورفکتانت آنیونی SDS در مخازن ماسه سنگی انجام شد. به منظور تحلیل نتایج تزریق مغزه، روند پیرسازی انجام شده در آزمایشات تزریق مغزه در دستگاه زاویه تماس پیاده شد. همچنین، آزمایش اندازه گیری کشش سطحی نیز انجام شد. نتایج کلی به صورت زیر می باشد.
 - بازیافت ثانویه نفت توسط فوم تثبیت شده با مخلوط سورفکتانت 0.04 درصد وزنی و نانوذره 0.1 درصد وزنی بیشتر از فوم پایدار شده نانوذره

مراجع

- [1]. Luo, P., Zhang, Y., Wang, X., & Huang, S. (2012). Propane-enriched CO₂ immiscible flooding for improved heavy oil recovery. *Energy & fuels*, 26(4), 2124-2135. doi.org/10.1021/ef201653u.
- [2]. Lake, L. W., Johns, R., Rossen, B., & Pope, G. A. (2014). *Fundamentals of enhanced oil recovery* (Vol. 1, p. 1). Richardson, TX: Society of Petroleum Engineers. ISBN: 978-1-61399-328-6.
- [3]. Anazadehsayed, A., Rezaee, N., Naser, J., & Nguyen, A. V. (2018). A review of aqueous foam in microscale. *Advances in colloid and interface science*, 256, 203-229.
- [4]. Fu, C., Yu, J., & Liu, N. (2018). Nanoparticle-stabilized CO₂ foam for waterflooded residual oil recovery. *Fuel*, 234, 809-813.
- [5]. Hurtado, Y., Franco, C. A., Riazi, M., & Cortés, F. B. (2020). Improving the stability of nitrogen foams using silica nanoparticles coated with polyethylene glycol. *Journal of Molecular Liquids*, 300, 112256.
- [6]. Pickering, S. U. (1907). Cxevi.—emulsions. *Journal of the Chemical Society, Transactions*, 91, 2001-2021. doi.org/10.1039/CT9079102001.
- [7]. Worthen, A. J., Bagaria, H. G., Chen, Y., Bryant, S. L., Huh, C., & Johnston, K. P. (2013). Nanoparticle-stabilized carbon dioxide-in-water foams with fine texture. *Journal of colloid and interface science*, 391, 142-151. doi: 10.1016/j.jcis.2012.09.043.
- [8]. Aroonsri, A., Worthen, A., Hariz, T., Johnston, K., Huh, C., & Bryant, S. (2013, September). Conditions for generating nanoparticle-stabilized CO₂ foams in fracture and matrix flow. In *SPE Annual Technical Conference*

- and Exhibition? (p. D021S020R006). Spe. doi.org/10.2118/166319-MS.
- [9]. Yekeen, N., Kun, T. X., Al-Yaseri, A., Sagala, F., & Idris, A. K. (2021). Influence of critical parameters on nanoparticles-surfactant stabilized CO₂ foam stability at sub-critical and supercritical conditions. *Journal of Molecular Liquids*, 338, 116658. doi: 10.1016/j.molliq.2021.116658.
- [10]. Chaturvedi, K. R., Narukulla, R., & Sharma, T. (2021). Effect of single-step silica nanoparticle on rheological characterization of surfactant based CO₂ foam for effective carbon utilization in subsurface applications. *Journal of Molecular Liquids*, 341, 116905. doi: 10.1016/j.molliq.2021.116905.
- [11]. Xu, K., Zhu, P., Colon, T., Huh, C., & Balhoff, M. (2017). A microfluidic investigation of the synergistic effect of nanoparticles and surfactants in macro-emulsion-based enhanced oil recovery. *SPE Journal*, 22(02), 459-469. doi.org/10.2118/179691-PA.
- [12]. Ghosh, P., & Mohanty, K. K. (2018). Novel application of cationic surfactants for foams with wettability alteration in oil-wet low-permeability carbonate rocks. *SPE Journal*, 23(06), 2218-2231. doi.org/10.2118/179598-PA.
- [13]. Yekeen, N., Malik, A. A., Idris, A. K., Reepei, N. I., & Ganie, K. (2020). Foaming properties, wettability alteration and interfacial tension reduction by saponin extracted from soapnut (*Sapindus Mukorossi*) at room and reservoir conditions. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 195, 107591. doi: 10.1016/j.petrol.2020.107591.
- [14]. Kumar, A., & Dixit, C. K. (2017). Methods for characterization of nanoparticles. In *Advances in nanomedicine for the delivery of therapeutic nucleic acids* (pp. 43-58). Woodhead Publishing. doi.org/10.1016/B978-0-08-100557-6.00003-1.
- [15]. Kumar, N., & Mandal, A. (2018). Surfactant stabilized oil-in-water nanoemulsion: stability, interfacial tension, and rheology study for enhanced oil recovery application. *Energy & fuels*, 32(6), 6452-6466. https://doi.org/10.1021/acs.energyfuels.8b00043.
- [16]. Pal, N., Kumar, N., Saw, R. K., & Mandal, A. (2019). Gemini surfactant/polymer/silica stabilized oil-in-water nanoemulsions: Design and physicochemical characterization for enhanced oil recovery. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 183, 106464. doi: 10.1016/j.petrol.2019.106464.
- [17]. Kuang, W., Saraji, S., & Piri, M. (2018). A systematic experimental investigation on the synergistic effects of aqueous nanofluids on interfacial properties and their implications for enhanced oil recovery. *Fuel*, 220, 849-870. doi.org/10.1016/j.fuel.2018.01.102.
- [18]. Shabib-Asl, A., Ayoub, M. A., & Elraies, K. A. (2019). A new hybrid technique using low salinity water injection and foam flooding for enhanced oil recovery in sandstone rock. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 174, 716-728. doi:10.1016/j.petrol.2018.11.035.
- [19]. Aziz, R., Joekar-Niasar, V., Martínez-Ferrer, P. J., Godinez-Brizuela, O. E., Theodoropoulos, C., & Mahani, H. (2019). Novel insights into pore-scale dynamics of wettability alteration during low salinity waterflooding. *Scientific reports*, 9(1), 9257.
- [20]. Aziz, R., Joekar-Niasar, V., Martínez-Ferrer, P. J., Godinez-Brizuela, O. E., Theodoropoulos, C., & Mahani, H. (2019). Novel insights into pore-scale dynamics of wettability alteration during low salinity waterflooding. *Scientific reports*, 9(1), 9257.
- [21]. Alizadeh, M., & Fatemi, M. (2021). Mechanistic study of the effects of dynamic fluid/fluid and fluid/rock interactions during immiscible displacement of oil in porous media by low salinity water: Direct numerical simulation. *Journal of Molecular Liquids*, 322, 114544.
- [22]. Alizadeh, M., & Fatemi, M. (2021). Pore-doublet computational fluid dynamic simulation of the effects of dynamic contact angle and interfacial tension alterations on the displacement mechanisms of oil by low salinity water. *International Journal of Multiphase Flow*, 143, 103771.
- [23]. Alizadeh, M., & Fatemi, M. (2021). Pore-doublet computational fluid dynamic simulation of the effects of dynamic contact angle and interfacial tension alterations on the displacement mechanisms of oil by low salinity water. *International Journal of Multiphase Flow*, 143, 103771. doi: 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2021.103771.
- [24]. Guo, F., & Aryana, S. (2016). An experimental investigation of nanoparticle-stabilized CO₂ foam used in enhanced oil recovery. *Fuel*, 186, 430-442. doi.org/10.1016/j.fuel.2016.08.058.
- [25]. Xu, Z., Li, B., Zhao, H., He, L., Liu, Z., Chen, D., Yang, H. and Li, Z., (2020). Investigation of the effect of nanoparticle-stabilized foam on EOR: nitrogen foam and methane foam. *ACS omega*, 5(30), 19092-19103. doi.org/10.1021/acsomega.0c02434.
- [26]. Rashidi, M., Kalantariasl, A., Saboori, R., Haghani, A., & Keshavarz, A. (2021). Performance of environmental friendly water-based calcium carbonate nanofluid as enhanced recovery agent for sandstone oil reservoirs. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 196, 107644. doi: 10.1016/j.petrol.2020.107644.
- [27]. Selvan, P., Jebakani, D., Jeyasubramanian, K., & Jebaraj, D. J. J. (2022). Enhancement of thermal conductivity of water based individual and hybrid SiO₂/Ag nanofluids with the usage of calcium carbonate nano

- particles as stabilizing agent. *Journal of Molecular Liquids*, 345, 117846. doi: 10.1016/j.molliq.2021.117846.
- [28]. Pourakaberian, A., Mahani, H., & Niasar, V. (2021). The impact of the electrical behavior of oil-brine-rock interfaces on the ionic transport rate in a thin film, hydrodynamic pressure, and low salinity waterflooding effect. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 620, 126543. doi:10.1016/j.colsurfa.2021.126543.
- [29]. Farhadi, H., Riahi, S., Ayatollahi, S., & Ahmadi, H. (2016). Experimental study of nanoparticle-surfactant-stabilized CO₂ foam: Stability and mobility control. *Chemical Engineering Research and Design*, 111, 449-460. doi.org/10.1016/j.cherd.2016.05.024.
- [30]. Yazhgur, P. A., Noskov, B. A., Liggieri, L., Lin, S. Y., Loglio, G., Miller, R., & Ravera, F. (2013). Dynamic properties of mixed nanoparticle/surfactant adsorption layers. *Soft Matter*, 9(12), 3305-3314.
- [31]. Gu, Y., & Li, D. (2000). The ζ -potential of glass surface in contact with aqueous solutions. *Journal of colloid and interface science*, 226(2), 328-339. doi: 10.1006/jcis.2000.6827.
- [32]. Gu, Y., & Li, D. (2000). The ζ -potential of glass surface in contact with aqueous solutions. *Journal of colloid and interface science*, 226(2), 328-339. doi:10.1006/jcis.2000.6827.
- [33]. Kumar, K., Dao, E. K., & Mohanty, K. K. (2008). Atomic force microscopy study of wettability alteration by surfactants. *Spe Journal*, 13(02), 137-145. doi.org/10.2118/93009-PA.
- [34]. Hou, B., Wang, Y., Cao, X., Zhang, J., Song, X., Ding, M., & Chen, W. (2016). Surfactant-induced wettability alteration of oil-wet sandstone surface: mechanisms and its effect on oil recovery. *Journal of Surfactants and Detergents*, 19(2), 315-324.