

# شبیه‌سازی مقیاس حفره اسیدزنی سنگ کربناته با روش شبکه بولتزمان و پالایش گریدی محلی

صادق محمودی، سید شهاب‌الدین آیت‌اللهی و سعید جمشیدی\*  
دانشکده مهندسی شیمی و نفت، دانشگاه صنعتی شریف، تهران، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۰۲/۱۰ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۰/۰۹/۰۲

## چکیده

در فرآیند اسیدزنی مخازن نفت و گاز، اسید تزریق شده در اثر واکنش با ذرات سنگ و تغییر ساختار حفرات سنگ، بر کیفیت جریان سیالات تأثیر می‌گذارد. در مدل‌سازی این فرآیند با روش مقیاس پیوسته، به دلیل وجود گرادپان غلظت در مجاورت ذرات سنگ و تغییرات پیوسته محیط متخلخل، برقراری پیوستگی در ضریب انتقال جرم و رابطه تخلخل-تراوایی که وابسته به ساختار حفرات هستند محل اشکال و مناقشه بوده و نیاز به مدل‌سازی در مقیاس حفره مشهود است. روش نوین این مطالعه در ترکیب شرایط واکنشی با روش پالایش گریدی است که با استفاده از شبکه بولتزمان ضریب انتقال جرم محلی را در مقیاس حفره و در محیط متخلخل متغیر محاسبه می‌نماید. روش پالایش گریدی چهارگانه درختی یک تفکیک‌گر تراکم شبکه‌ای چندمقیاسی مبتنی بر تقسیمات برگشتی است که توانایی کاهش بار محاسباتی و در عین حال حفظ دقت مطلوب را داراست. نتایج شبیه‌سازی با یک و دو درجه تفکیک تراکم شبکه‌ای، افزایش دو تا سه برابری سرعت محاسبات را نسبت به مدل شبکه ریز یکنواخت نشان می‌دهد. این تحقیق با استفاده از مدل توسعه داده شده ضمن بازتولید نتایج آزمایشگاهی الگوی انحلال کرمچاله، تغییرات تخلخل-تراوایی و ضریب انتقال جرم را در اثر انحلال سنگ و در شرایط جریان متفاوت با استفاده از اعداد بی بعد دامکولر، پکلتو شرود مورد بحث قرار می‌دهد. نتایج این تحقیق نشان می‌دهد بین میزان انحلال و تغییرات عدد شرود رابطه وجود دارد. همچنین، می‌توان با تحلیل رابطه کوزنی-کارمن در شرایط جریان متفاوت، تغییرات تخلخل-تراوایی را دقیق‌تر بررسی نمود. بنابراین، روش پالایش گریدی ابزاری به‌دست می‌دهد تا با دستیابی به دامنه شبیه‌سازی بزرگتر در مقیاس حفره، رابطه بین مقیاس حفره و داری ایجاد نمود.

**کلمات کلیدی:** شبکه بولتزمان، پالایش گریدی، جریان کنشگر، ضریب انتقال جرم، تغییرات تخلخل-تراوایی.

## مقدمه

در مدل‌سازی جریان کنشگر در محیط متخلخل در مقیاس دارسی که در زمینه‌های مختلفی مانند تزریق اسید در مخازن هیدروکربوری [۱]، جریان آبهای زیر سطحی، ذخیره سازی گاز کربن دی‌اکسید در آبد [۲] و غیره کاربرد دارد؛ عمده ابهام و ناتوانی روش پیوسته در تعریف پارامترهایی است که وابسته به ساختار حفرات سنگ بوده و در اندازه‌گیری‌های دقیق در ابعاد میکرو (مقیاس حفره) و ابعاد ماکرو (مقیاس پیوسته یا مغزه) ناهمخوانی مشاهده می‌شود و بنابراین بر اساس فرضیات پیوستگی دارای دقت نمی‌باشد. پارامترهایی مانند ضریب انتقال جرم محلی و رابطه تخلخل-تراوایی نیازمند مدل‌سازی در مقیاس حفره می‌باشد. با پیشرفت توان محاسباتی دینامیک سیالات در قرن حاضر، در نظر گرفتن واکنش اسید در مقیاس حفره در دستور کار محققان بسیاری قرار دارد.

محیط متخلخل در رویکرد مقیاس حفره برخلاف رویکرد پیوسته به صورت کامل و دقیق وارد مدل شده و از توده سیال جدا می‌شود. سپس معادلات اساسی جریان (ناویر استوکس و پیوستگی) انتقال جرم و واکنش از طریق روش‌های مناسب حل می‌گردد. از جمله این روش‌ها می‌توان روش‌های اولیری مانند دینامیک سیالات محاسباتی [۳ و ۴] که از روش‌های عددی معروف تفاضل محدود و حجم محدود بهره می‌گیرد و روش‌های لاگرانژی مانند شبکه بولتزمان [۵ و ۶] هیدرودینامیک ذرات هموار<sup>۱</sup> [۷] و ردیابی ذرات<sup>۲</sup> [۸ و ۹] را نام برد. روش هیدرودینامیک ذرات هموار در اعمال شرایط جریان موفق نبوده و روش ردیابی ذرات برای جریان‌های ذره محور و کلوئیدی مناسب است [۱۰]. از جمله اولین کارهای مرتبط با شبیه‌سازی واکنش (رسوب و انحلال) در محیط متخلخل در حضور اسید با روش شبکه بولتزمان به تلاش‌های گروه کانگ برمی‌گردد. گروه کانگ در مراجع [۵ و ۶] به صورت

تخصصی مدل واکنشی خود را برای مطالعه اثر اعداد بی بعد دامکولر و پکلت در تولید الگوهای انحلال و تغییرات تخلخل-تراوایی به کار گرفتند. در مرجع [۹] از ترکیب شبکه بولتزمان و ردیابی ذرات برای مطالعه جریان واکنشگر تک‌فازی و چندفازی در محیط متخلخل استفاده شده است و در قسمتی از مطالعه به عنوان خروجی مدل به صورت کیفی و موردی به بررسی الگوهای انحلال سنگ آهک در اثر جریان اسید پرداخته شده است. در مطالعه [۱۱] نفوذ مولکولی در محیط متخلخل با کمک مشخصه‌سازی ضریب پیچاپیچی<sup>۳</sup> به صورت تابعی از تخلخل و ساختار حفره بررسی شده است. اثر ناهمگونی در توزیع کانی و سرعت واکنش در مطالعه [۱۲] بررسی شده و تغییرات تخلخل-تراوایی و سطح ویژه ذرات سنگ رصد شده است. همچنین، مراجع [۱۳-۱۵] از روش شبکه بولتزمان برای شبیه‌سازی جریان و از روش حجم محدود برای حل معادلات انتقال جرم بهره گرفته و به مطالعه پارامترهای مؤثر بر تشکیل و رشد الگوهای انحلال در ماسه سنگ و کرم‌چاله در سنگ کربناته پرداخته‌اند. آنها کار خود را بر روی تصاویر سه بعدی از سنگ توسعه داده (با ابعاد تقریبی میلی متر)، اثر ناهمگونی ساختار حفره را (که در روش دینامیک سیالات محاسباتی به صورت ضریب پیچاپیچی و توزیع سرعت جریان منظور می‌شود) با تعریف طول همبستگی در تصاویر دیجیتالی در نظر گرفته و اثر اعداد بی بعد پکلت و دامکولر و رابطه تغییرات تخلخل تراوایی برای الگوهای انحلال متفاوت را مورد بررسی قرار داده‌اند. در نتایج کار آنها به بستگی قاطع الگوی انحلال به مسیرهای جریانی در سنگ (هندسه جریان) و رژیم جریانی بر اساس عدد پکلت اشاره شده است. همچنین، می‌توان به مطالعه [۱۶] اشاره کرد که با استفاده از مطالعه مقیاس حفره

1. Smooth Particle Hydrodynamic  
2. Particle Tracking  
3. Tortuosity

در رابطه بالا بسته به میزان تفکیک اسید، واکنش به سمت کامل شدن و یک طرفه شدن پیش می‌رود. در واکنش اسید قوی هیدروکلریک با سنگ کربناته جهت معکوس ناچیز بوده و واکنش به سمت مصرف کامل واکنش دهنده‌ها پیش می‌رود. همچنین، تولید گاز کربنیک دی اکسید در شرایط مخزن عموماً در فاز محلول باقی می‌ماند و سرعت واکنش سیستم کلسیت/هیدروکلریک اسید معمولاً محدود به سرعت انتقال جرم اسید از توده سیال به سطح سنگ است زیرا در دماهای بالاتر از  $0^{\circ}\text{C}$  سرعت واکنش در مرز سیال-جامد بسیار بیشتر از نرخ انتقال جرم اسید از توده سیال به سطح سنگ باقی می‌ماند. بنابراین با فرض اولیه حضور سیال خالص (آب) در محیط متخلخل، از واکنش‌های توده سیال با اسید یا محصولات واکنش فوق صرف‌نظر می‌گردد. همچنین با فرض اینکه اسید ورودی و اسید مصرف شده تأثیر ناچیزی بر گرانی و چگالی سیال حاضر در محیط داشته و در نتیجه تأثیر کمی بر سرعت جریان داشته باشند، مدل‌سازی واکنش محدود به انتقال غلظت اسید و مصرف آن در مرز جامد-سیال خواهد بود.

با توجه به اینکه روش شبکه بولتزمان یک سیستم بی بعد است، آحاد سیستم‌های فیزیکی و شبکه بولتزمان باید به هم مرتبط گردند. این کار از طریق فاکتورهای تبدیل انجام می‌شود که از واحد طولی، واحد زمانی و واحد جرم در دو سیستم برای محاسبه سایر فاکتورها استفاده می‌کند. در گام نخست باید تعداد نقاط شبکه در یک جهت خاص، طول مشخصه واقعی و چگالی مرجع در هر دو سیستم مشخص شوند. اصولاً در شبیه‌سازی‌های به کمک روش شبکه بولتزمان به دلیل محدودیتهای پایداری، مقدار  $\tau$  را از ابتدا مشخص می‌کنیم  $\tau / \Delta t > 0.5$  با انجام این کار، از طریق لزجت سیستم فیزیکی و لزجت حاصل از اختصاص زمان استراحت در سیستم شبکه بولتزمان می‌توان ضریب تبدیل زمانی را محاسبه نمود. در دامنه غلظت ضریب نفوذ مولکولی تعیین کننده زمان استراحت خواهد بود.

شبکه بولتزمان به جستجوی استراتژی ارتقای مقیاس روابط متخلخل تراوایی در حضور جریان واکنشی در محیط متخلخل پرداخته است.

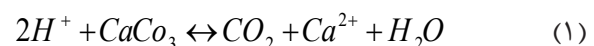
بنابراین، شبیه‌سازی جریان اسید با روش شبکه بولتزمان بسیار نوپا بوده و از جمله زمینه‌های مستعد و جذاب محسوب می‌شود. در این پژوهش برای محاسبه ضریب انتقال جرم، از روش مقیاس حفره شبکه بولتزمان بهره گرفته شده و با اعمال شرایط واکنشی بر روی شبکه چندمقیاسی چهارگانه درختی به عنوان اولین تلاش برای شبیه‌سازی جریان واکنشی و محیط متخلخل متغیر با این روش محسوب می‌شود. شبکه چند مقیاسی چهارگانه درختی در تحقیقات [۱۹-۱۷] نشان داده شده که کاهش قابل ملاحظه‌ای در زمان شبیه‌سازی جریان تک‌فاز و چندفاز در روش شبکه بولتزمان به دست می‌دهد. قابلیت اعمال شرایط دینامیک برای شبکه چندمقیاسی که برای مثال در کارهای [۲۰ و ۲۱] در شبیه‌سازی جریان چندفازی به کار گرفته شده است از نقاط جذاب این روش می‌باشد.

راستی‌آزمایی مدل با سنجش توانایی مدل پالایش‌گریدی در شبیه‌سازی انتشار انتقال و واکنش در یک مسیر لوله‌ای مؤین در مقایسه با مدل شبکه‌ریز و همچنین، بازتولید نتایج آزمایشگاهی [۲۲] در ایجاد کرمچاله در یک محیط متخلخل ساده انجام می‌شود. بخش اصلی مقاله شامل بررسی ضریب انتقال جرم و تغییرات تخلخل تراوایی در شرایط محیط متخلخل پیچیده و با شرایط متفاوتی از جریان (اعداد بی بعد پکلت و دامکولر متفاوت بوده) رفتار تغییرات آنها را نشان می‌دهد.

### شبیه‌سازی مدل‌سازی

#### شیمی واکنش اسید در محیط متخلخل

معادله واکنش اسید با کلسیت به صورت زیر تعریف می‌شود:



$$f_i(x + e_i \Delta t, t + \Delta t) - f_i(x, t) = -\Delta t / \tau (f_i(x, t) - f_i^{eq}(\rho, u^{eq})) \quad (2)$$

در رابطه  $f^2$  تابع توزیع چگالی است که در هر گره از شبکه  $(x)$  در جهت  $i$  محاسبه می‌شود.  $\Delta t$  گام زمانی و  $\tau$  زمان آسایش یا استراحت<sup>۱</sup> ذرات نامیده می‌شود و تعیین کننده لزجت سیال خواهد بود.  $e_i$  سرعت ذرات و  $f^{eq}$  توزیع تعادلی تابع چگالی در جهت  $i$  است که از تابع مکسول-بولتزمن به صورت رابطه ۳ محاسبه می‌شود. در این تابع توزیع تعادلی،  $C = \Delta x / \Delta t$  سرعت واحد شبکه برابر با یک و  $w_i$  ضرایب وزنی شبکه  $D2Q9$  است که برای ذرات متحرک در جهت  $i$  برابر با  $\{w_i = 1/9 \rightarrow i = 1, 2, 3, 4 \text{ و } w_i = 1/36 \rightarrow i = 5, 6, 7, 8\}$  می‌باشند.

$$f_i^{eq}(x) = w_i \rho \left[ 1 + 3 \frac{e_i u^x}{c^2} + \frac{9 (e_i u^x)^2}{2 c^4} - \frac{3 (u^x)^2}{2 c^2} \right] \quad (3)$$

چگالی سیال  $\rho = \sum f_i$  و سرعت تعادلی توده سیال  $u^{eq}$  از تأثیر نیروهای وارد بر سیال بر سرعت کلی محلی به صورت رابطه ۴ محاسبه می‌شود:

$$u^{eq} = 1 / \rho \sum e_i f_i + \frac{F \Delta t}{2 \rho} \quad (4)$$

$F$  نیروی وارد بر توده سیال بوده که در اینجا از روش [۲۴] محاسبه می‌شود. گرانیروی سینماتیک از رابطه ۵ محاسبه می‌شود که در آن  $C_s$  سرعت صوت شبکه بولتزمن برابر با  $c / \sqrt{3}$  است.

$$v = c_s^2 \left( \tau - \frac{\Delta t}{2} \right) \quad (5)$$

آنالیز ابعادی با استفاده از جدول ۱ زیر کمیت‌های روش شبکه بولتزمن و کمیت‌های فیزیکی را به هم مرتبط می‌نماید.

### روش شبکه بولتزمن

روش شبکه بولتزمن مبتنی بر حل معادلات گسسته بولتزمن است و یکی دیگر از روش‌های شبیه‌سازی در دینامیک سیالات محاسباتی و جایگزین مناسبی برای معادلات ناویر استوکس، انتقال جرم و انتقال حرارت به شمار می‌رود. از مزایای این روش، امکان به‌کارگیری آن در شبیه‌سازی جریان سیال در هندسه‌های بسیار پیچیده است. در مدل‌سازی جریان واکنشی در روش شبکه بولتزمن با فرض عدم تأثیر اسید ورودی و اسید مصرف شده بر گرانیروی و چگالی سیال حاضر در محیط و در نتیجه بر سرعت جریان، می‌توان حل معادلات جریان و انتقال جرم-واکنش را به صورت مجزا مدل‌سازی نمود [۲۳]. همچنین فرض می‌شود که تغییر مرز سیال-جامد در اثر انحلال، بسیار آهسته‌تر از سرعت جریان است و حالتی شبه ایستا برای محیط متخلخل در هر گام زمانی انجام محاسبات خواهیم داشت. معادله بولتزمن در اینجا برای شبکه دوبعدی  $D2Q9$  با ۸ جهت به صورت زیر نوشته می‌شود:

جدول ۱ آنالیز ابعادی کمیت‌های فیزیکی و روش شبکه بولتزمن

واحد سنجش شبکه بولتزمن		واحد سنجش واقعی		کمیت
lu	۱۲۸	cm	۰/۱	طول
lu <sup>2</sup> /ts	۰/۳۵	cm <sup>2</sup> /s	۰/۰۱	گرانیروی سینماتیک
lu/ts	۰/۰۰۳	cm/s	۰/۱	سرعت
lu/ts	۰/۰۰۳	cm/s	۰/۱	ثابت واکنش
lu <sup>2</sup> /ts	۰/۱	cm <sup>2</sup> /s	۰/۰۰۳	نفوذ مولکولی
%wt	۱	%wt	۱	غلظت
lu/lu <sup>2</sup>	۰/۰۴۴	cm <sup>2</sup> /cm <sup>3</sup>	۴۴	سطح ویژه
mu/lu <sup>2</sup>	۱	g/cc	۱	چگالی

## پالایش‌گریدی با شبکه چهارگانه درختی

روش معمول شبکه بولتزمان از شبکه‌های منظم و یکنواخت دو و سه بعدی برای شبیه‌سازی بهره می‌گیرد. این ویژگی باعث محدودیت روش برای مسائلی می‌شود که به جهت نواحی جریان با گرادیان بالا، سطوح جامد منحنی شکل و یا زمانی که شرایط مرزی دور در دامنه جریان وجود دارد نیاز به شبکه‌بندی با وضوح<sup>۲</sup> متفاوت احساس می‌شود. روش پالایش‌گریدی چهارگانه درختی به عنوان یک شبکه غیر یکنواخت یک ساختار داده درختی شکل مبتنی بر قاعده تجزیه بازگشتی است [۲۶]. واحدهای اصلی در یک شبکه چهارگانه، سلول‌های چهارگانه بوده که متشکل از سلول ولی و سلول فرزند هستند. هر سلول ولی به چهار زیرسلول یکسان تقسیم شده و فرزند یا برگ نامیده می‌شود. سلول برگ فاقد فرزند است [۱۷]. در این روش تجزیه، ابتدا کل هندسه ی جریان یک سلول در نظر گرفته می‌شود. برای کنترل تراکم سلولی در شبکه چهارگانه یک عملگر مقیاس ( $\beta$ ) و یک مقدار آستانه‌ای ( $\alpha$ ) تعریف می‌شود. در اینجا به جهت اهمیت مرز جامد در جریان اسید و نیاز به وضوح بیشتر در کنار مرزهای جامد، عملگر مقیاس با شمارش تعداد پیکسل‌های جامد نسبت به کل پیکسل‌ها محاسبه می‌شود. زمانی که رابطه  $1 - \alpha < \beta < \alpha$  برای سلول مورد نظر صادق بود آن سلول به چهار سلول یکسان تقسیم شده و این عمل برای سلول‌های تولید شده تکرار می‌شود. در کاربرد عملی شبکه چهارگانه، برای اطمینان از انتقال هموار متغیرهای محلی در مرزهای نواحی با تراکم سلولی متفاوت تنها یک درجه تفکیک در تراکم سلولی چهارگانه و سلول‌های همجوار اتخاذ می‌شود [۱۸]. شکل ۱ شبکه تولید شده با روش پالایش‌گریدی با یک و دو درجه تفکیک تراکم سلولی را نشان می‌دهد. گریدهای ریز بر روی ذرات جامد و گریدهای درشت در حفره اعمال شده‌است.

انتقال اسید را همچین می‌توان با روش شبکه بولتزمان برای حل معادله انتشار-انتقال<sup>۱</sup> مدل‌سازی نمود. تغییرات غلظت را می‌توان با معادله ۶ توصیف نمود:

$$g_i(x + e_i \Delta t, t + \Delta t) - g_i(x, t) = -\Delta t / \tau_s (g_i(x, t) - g_i^{eq}(C, u^{eq})) + \Delta t S_i \quad (6)$$

تابع توزیع تعادلی برای دامنه غلظت همانند دامنه جریان از طریق رابطه ۳ تعریف می‌شود که در آن به جای جمله چگالی از غلظت محلی اسید از طریق  $C = \sum g_i$  استفاده می‌شود. زمان استراحت  $\tau_s$  از طریق رابطه ۵ تعیین کننده ضریب نفوذ مولکولی خواهد بود.  $S_i$  جمله عامل برای واکنش شیمیایی است که در اینجا در توده سیال از آن صرف نظر می‌شود و تنها در مرز جامد از طریق روش [۲۵] اعمال می‌شود. بنابراین با در نظر گرفتن معادله واکنش اسید با کلسیت با سنیتیک درجه یک، جمله عامل واکنش به صورت زیر نوشته می‌شود:

$$S_i = (1 - \frac{1}{2\tau_s}) w_i \kappa (C_s - C) \quad (7)$$

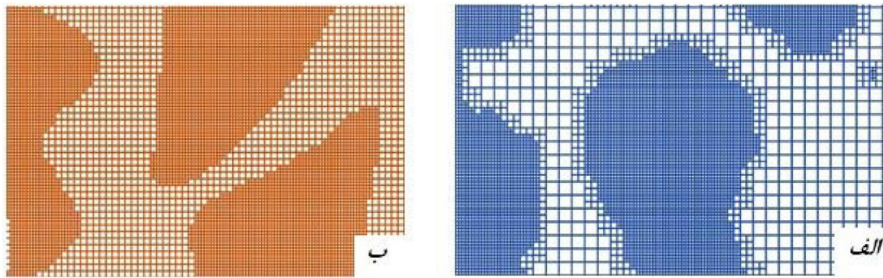
که در آن  $K$  ثابت سرعت واکنش و  $C_s$  غلظت اشباع یا تعادلی است که برای واکنش اسید با کلسیت صفر خواهد بود. برای بروزرسانی مرز جامد مطابق با روش [۶] به هر پیکسل فاز جامد یک کسر حجمی اختصاص داده می‌شود که با حل شدن کانی در محلول کاهش پیدا می‌کند. مرز جامد نسبت به زمان به صورت رابطه ۸ تغییر می‌کند:

$$\frac{\partial \phi_s}{\partial t} = -V_m a_v \kappa (C - C_s) \quad (8)$$

که در آن  $\phi_s$  کسر حجمی کانی،  $V_m$  حجم مولی کانی حل شده و  $a_v$  سطح ویژه کانی در واحد حجم می‌باشد. در اینجا مطابق با چگالی کانی تعیین می‌گردد و برای تمام نقاط جامد مقداری برابر خواهد داشت (در حالت کانی خالص). از آنجا که در حالت انحلال ساختار حفره سطح ویژه به طور پیوسته تغییر می‌نماید، این پارامتر در هر گام زمانی از طریق محاسبه نسبت تعداد گریدهای جامد مرزی به کل گریدها بروزرسانی می‌گردد.

1. Convection-Diffusion

2. Resolution



شکل ۱ الف) پالایش گریدی با دو درجه تفکیک و ب) پالایش گریدی با یک درجه تفکیک

قابل اعمال است. شروط مرزی دیگر به نام شرط مرزی نیومن یا سرعت ثابت و دیریکله یا فشار ثابت شناخته می‌شود. در اینجا این حالت‌ها به ترتیب برای تزریق سیال به درون دامنه جریان و خروج آن از لبه دیگر استفاده می‌شود.

شرایط مرزی در دامنه غلظت شامل سه نوع واکنش در مرز جامد، غلظت ثابت (یا شار ثابت) در مرز ورودی و شار گرادیان غلظت صفر در مرز خروجی است. معمولاً به جای شرط مرزی غلظت ثابت، استفاده از شرط مرز شار ثابت می‌تواند شرایط واقعی تری ایجاد نماید. دلیل این امر این است که در عمل، ایجاد غلظت ثابت چندان میسر نیست و اغلب محلول با غلظت اولیه با دبی مشخص در نمونه آزمایش تزریق می‌شود. در این حالت اگر ضریب نفوذ مولکولی بزرگ باشد، سرعت تزریق پایین باشد و یا گرادیان غلظت در ورودی نمونه بزرگ باشد آنگاه جمله نفوذ در شار ورودی باید لحاظ گردد. شرط مرزی شار بدون نفوذ مولکولی از طریق حذف گرادیان غلظت در مرز خروجی تنها حالت انتقال اسید توسط توده جریان سیال را حفظ می‌نماید.

**شکل ۲** نمودار اجرایی مدل پالایش گریدی را به منظور نمایش تفکیک فیزیک‌ها، رابطه بین آنها و تقدم و تأخر در اجرای هر کدام نشان می‌دهد.

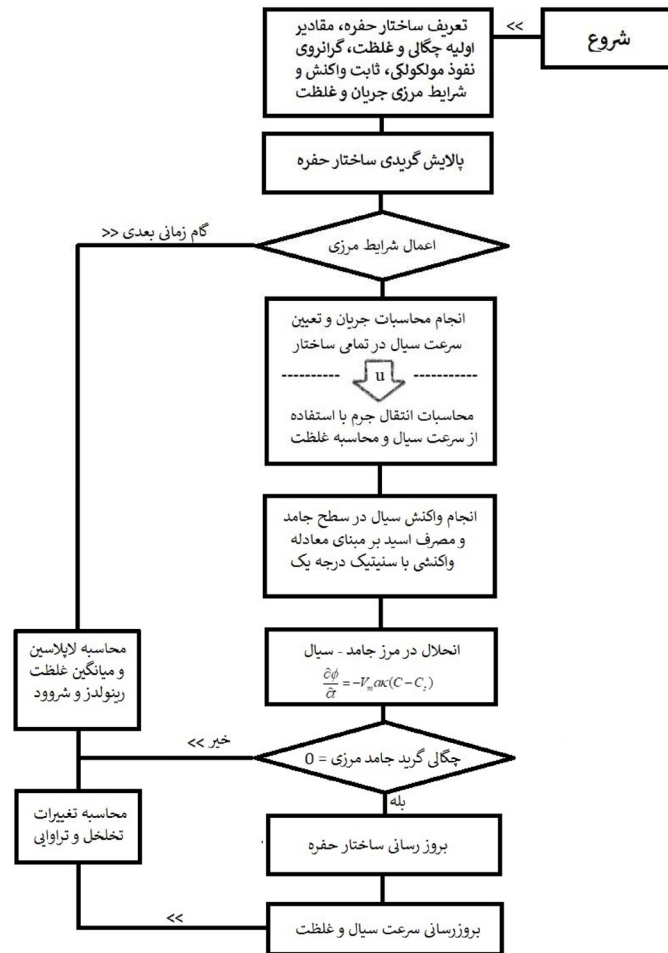
برای سنجش میزان کارایی روش پالایش گریدی در کاهش زمان محاسبات، بسترهای جریانی متفاوتی از محیط متخلخل در نظر گرفته شد.

به جهت اینکه سرعت صوت در روش شبکه بولتزمان متغیری است که به اندازه سلول‌ها وابسته بوده و همچنین، ضروری است که تنها یک سرعت صوت در تمام دامنه تعریف گردد، گام زمانی در نواحی با تراکم متفاوت باید متناظر با اندازه سلول‌ها اتخاذ شود. بدین ترتیب برای مثال در شبکه‌ای با یک درجه تفکیک، گام زمانی شبکه ریز نصف شبکه درشت بوده و به ازای دو نوبت برخورد و انتشار ذرات در دامنه ریز تنها یک مرتبه در دامنه درشت انجام می‌شود. همچنین با توجه به یکسان بودن لزجت سیال و ضریب نفوذ مولکولی اجزا در تمام دامنه، زمان آسایش در شبکه ریز  $\tau_f$  و در شبکه درشت  $\tau_c$  از رابطه ۹ به هم مربوط می‌شوند [۷]:

$$\tau_f = (\tau_c - \Delta t_c / 2) + \Delta t_f / 2 \quad (9)$$

### شرایط مرزی

در این تحقیق برای شبیه‌سازی دامنه جریان از چهار نوع شرط مرزی بهره گرفته می‌شود. شرط دامنه باز، دوره‌ای و یا تکراری نامیده می‌شود. این شرط مرزی برای ایجاد دامنه جریان تکراری یا بی‌نهایت به کار می‌رود. در واقع، جریان ذراتی که از یک لبه دامنه خارج می‌شوند از لبه مخالف دوباره وارد محیط جریان می‌گردند. این نوع شرط مرزی در این تحقیق در جهت عمود بر جریان اعمال می‌گردد. برای مدل‌سازی جریان بدون لغزش سیال روی مرز جامد، برهم‌کنش سیال با مرز جامد در روش شبکه بولتزمان به دلیل ماهیت ذره‌ای این روش، به صورت برخورد و برگشت ذرات



شکل ۲ نحوه عملکرد مدل پالایش گریدی و تقدم و تاخر اجرای فیزیک‌های مختلف در شبیه‌سازی تزریق اسید.

ارائه دهد که تعداد قابل توجهی از گریدهای درشت ایجاد کند. در ادامه این مطالعه از روش پالایش گریدی با یک درجه تفکیک استفاده شده است.

### نتایج و بحث راستی آزمایی

به منظور راستی آزمایی مدل توسعه یافته با روش پالایش گریدی، پاسخ مدل با حالت شبکه یکنواخت ریز و درشت و جواب تحلیلی مقایسه شده است. در مرحله نخست به کمک جریان پویزله به راستی آزمایی فیزیک جریان پرداخته می‌شود. در گام بعدی، انتشار غلظت از مرز ورودی یک حفره به دیواره و واکنش با دیواره فوقانی با پاسخ معادله لاپلاس مقایسه می‌گردد و فیزیک انتقال جرم سنجیده می‌شود.

در جدول ۲ نسبت تعداد گریدهای ریز به درشت در پالایش گریدی، زمان محاسبات برای ۱۰/۰۰۰ گام زمانی و همچنین، نسبت زمان محاسبات روش شبکه یکنواخت ریز به روش پالایش گریدی گزارش شده است. همان‌طور که در جدول ۲ مشاهده می‌شود در پالایش گریدی با یک درجه تفکیک، تعداد گریدهای ریز و درشت برابر بوده و نسبت زمان محاسبات برابر با ۴۰٪ به دست آمده است. این به معنای سرعت محاسبات حدود دو و نیم برابری روش پالایش گریدی نسبت به روش شبکه یکنواخت است. در واقع، افزایش تعداد گریدهای درشت می‌تواند زمان محاسبات کمتری نتیجه دهد. بنابراین، استفاده از پالایش گریدی با تفکیک تراکم بالاتر در صورتی می‌تواند زمان محاسبات بهتری

جدول ۲ زمان محاسبات برای شبکه یکنواخت ریز و حالت پالایش گریدی با یک و دو درجه تفکیک در ۱۰۰۰۰ گام زمانی

ابعاد	
۵۱۲×۵۱۲	۲۵۶×۲۵۶
زمان محاسبات شبکه یکنواخت ریز (ثانیه)	۲۶۸۹۰
زمان محاسبات پالایش گریدی با یک درجه تفکیک (ثانیه)	۱۱۵۵۰
نسبت گرید ریز به درشت	۱
نسبت زمان محاسبات پالایش گریدی به مدل ریز	۰/۴۳
زمان محاسبات پالایش گریدی با دو درجه تفکیک (ثانیه)	۱۰۷۵۰
نسبت گرید ریز به درشت	۴
نسبت زمان پالایش گریدی به مدل ریز	۰/۴

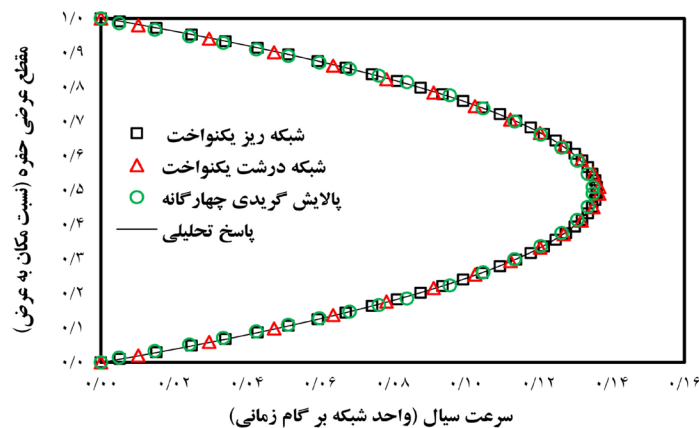
مرزی شامل شار صفر در دیواره جامد و دامنه باز یا تکراری در ورودی و خروجی است. نیروی وارده بر توده سیال برابر با نسبت اختلاف فشار ورودی و خروجی دامنه بر طول دامنه با استفاده از روش مطالعه [۲۴] اعمال شده است. در واقع این محک ساده برای سنجش درستی الگوریتم پالایش چهارگانه در شبیه‌سازی جریان نایر استوکس در ساده‌ترین حالت و همچنین، مقایسه با پاسخ شبکه یکنواخت مفید است. ابعاد شبکه ریز یکنواخت در این مثال  $128 \times 128$  بوده و در حالت پالایش گریدی ۴۸ لایه گرید ریز در کنار دیواره‌های کانال تفکیک شده است. شکل ۳ همخوانی خوبی را برای روش پالایش گریدی با جواب تحلیلی و پاسخ شبکه یکنواخت نشان می‌دهد.

انتشار - انتقال - واکنش (جریان واکنشی) در یک حفره لوله‌ای مویین نیز با بررسی همخوانی مدل‌های ریز دانه و پالایش گریدی عملکرد صحیح مدل را مورد آزمون قرار می‌دهد. در مرحله بعد به بررسی توانایی مدل در شبیه‌سازی انحلال در مقایسه با نتایج آزمایشگاهی می‌پردازیم.

در گام نخست، جریان بدون واکنش را در نظر می‌گیریم. در یک کانال یا حفره دو بعدی پروفایل توزیع سرعت در عرض حفره به صورت جریان پویزله است و به صورت زیر محاسبه می‌شود:

$$u = \frac{\Delta P}{2\rho\nu L} a(h-a) \quad (10)$$

در رابطه بالا  $u$  برابر با سرعت، اختلاف فشار  $\Delta P$  طول دامنه  $L$ ، حاصلضرب چگالی در گرانشی سینماتیک و فاصله از دیواره کانال با عرض  $h$  است. شرایط



شکل ۳ پروفایل توزیع سرعت در مقطع عرضی حفره در جریان پویزله در روش شبکه بولتزمان



$$\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} = 0 \rightarrow \begin{cases} 0 < x < a \\ 0 < y < b \end{cases} \quad (11)$$

$$-D \frac{\partial C}{\partial y} \Big|_{y=b} = k_r (C \Big|_{y=b} - C_{eq}) \quad (12)$$

$$\frac{\partial C}{\partial y} \Big|_{y=0} = 0 \rightarrow \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{x=a} = 0 \rightarrow C(0, y) = C_0 \quad (13)$$

$$C(x, y) = (C_0 - C_{eq}) \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\sin(\beta_n b) \cosh[\beta_n (x-a)]}{N_n^2 \beta_n \cosh[\beta_n a]} \cos(\beta_n y) + C_{eq} \quad (14)$$

$$N_n^2 = \frac{b}{2} \left( 1 + \frac{\sin(2\beta_n b)}{2\beta_n b} \right) \quad (15)$$

$$(\beta_n b) \tan(\beta_n b) = \frac{kb}{D_m} = Da \quad (16)$$

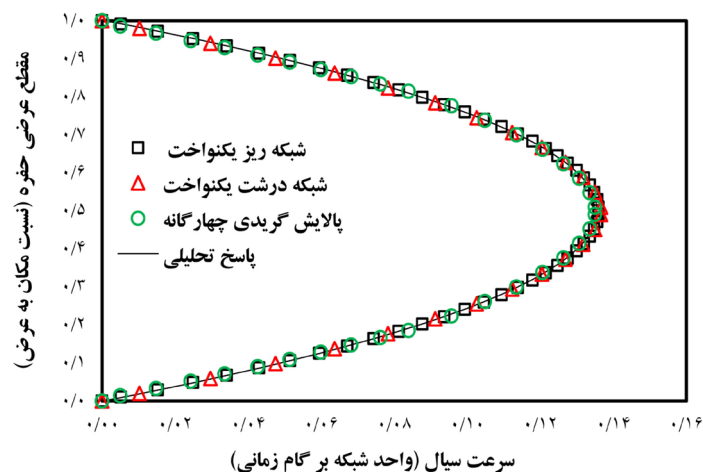
در رابطه‌های ۱۶-۱۱،  $C$  بیانگر غلظت،  $x$  و  $y$  مختصات مکانی،  $a$  و  $b$  ابعاد دامنه،  $D_m$  ضریب نفوذ مولکولی،  $C_{eq}$  و  $C_0$  غلظت تعادلی و غلظت اولیه و  $Da$  عدد دامکولر است. ابعاد دامنه در شبکه ریز به  $80 \times 100$  گرید و در حالت پالایش گریدی ۱۴ لایه گرید ریز در کنار دیواره فوقانی تفکیک شده است. عدد دامکولر به صورت نسبت قدرت واکنش به نفوذ مولکولی که تنها مکانیسم انتقال حاضر در این مثال است به صورت رابطه  $Da = \frac{kb}{D_m}$  بیان می‌شود و مقداری برابر با ۴۸ دارد. توزیع غلظت در دامنه به صورت قیاسی و پروفایل محاسباتی به همراه جواب تحلیلی در شکل ۴ نشان داده شده است. همچنین برای سنجش میزان دقت پاسخ‌ها و خطای موجود در محاسبات در جدول ۴ خطا به صورت خطای مطلق و جذر میانگین مربعات خطا RMSE گزارش شده است. از مقایسه مقادیر جدول ۴ مشخص می‌شود پاسخ پالایش گریدی بین دو حالت شبکه ریز و شبکه درشت قرار دارد و این به معنای دقت بهتر نسبت به شبکه درشت و خطای قابل قبول در قیاس با شبکه ریز است. بنابراین روش پالایش گریدی به خوبی رفتار توزیع غلظت در حفره باز را مدل کرده است. در ارزیابی بعدی، یک حفره لوله‌ای مویین به ابعاد  $128 \times 256$  در نظر گرفته شده است. با پالایش گریدی در کنار دیواره مش ریز و در مرکز حفره مش درشت تفکیک می‌شود.

برای سنجش میزان دقت پاسخ‌ها و خطای موجود در محاسبات، در جدول ۳ خطا به صورت خطای مطلق و جذر میانگین مربعات خطا RMSE گزارش شده است. همان‌طور که از مقایسه مقادیر خطا مشخص می‌شود پاسخ پالایش گریدی بین دو حالت شبکه ریز و شبکه درشت قرار می‌گیرد، با وجود اینکه هر سه روش دقت کافی را در محاسبه سرعت جریان در این مثال ساده دارند و برتری هیچ کدام در شکل قابل مشاهده نیست اما این مثال به خوبی صحت عملکرد شبکه بولتزمان بر روی شبکه پالایش شده را نشان می‌دهد.

جدول ۳ خطای محاسبه شده در پاسخ شبکه‌های متفاوت با جواب تحلیلی جریان پویزله

نوع شبکه	میانگین خطای مطلق	RMSE = $\sqrt{1/n \sum (u_i - u)^2}$
شبکه چهارگانه با یک درجه تفکیک	۰/۰۰۰۳۴	۰/۰۰۰۳۸۹
شبکه ریز	۰/۰۰۰۳	۰/۰۰۰۳۴۶
شبکه درشت	۰/۰۰۰۴۱	۰/۰۰۰۴۹۶

محک تحلیلی بعدی، توانایی مدل در رصد تغییرات غلظت در یک حفره و عملکرد مدل در شبیه‌سازی انتشار-واکنش را می‌سنجد. این مثال بر مبنای مرجع [۵] که از این مسئله برای راستی آزمایی مدل واکنشی خود بهره گرفته، تنظیم شده است. بدین ترتیب در یک دامنه مستطیلی با اندازه  $a \times b$  سیال حاضر در لحظه اولیه با سطح جامد واکنشی ندارد. با نفوذ سیال از مرز چپ  $x=0$  با غلظت اولیه  $C_0=1$  و انتشار آن به سطح جامد در مرز فوقانی  $y=b$  واکنش (بدون انحلال) آغاز و غلظت ورودی مصرف می‌شود. در مرز تحتانی  $y=0$  و مرز راست  $a=x$  شار صفر و در مرز چپ غلظت ثابت برقرار است. مسئله انتشار-واکنش در حالت پایدار در این سیستم توسط معادله لاپلاس توصیف می‌شود. برای شرایط مرزی داده شده جواب تحلیلی به صورت رابطه ۱۱ نوشته می‌شود [۵].



شکل ۴ پروفایل توزیع غلظت در حل معادله لاپلاس در مسئله انتشار-واکنش در یک حفره باز

جدول ۴ خطای محاسبه شده در پاسخ شبکه‌های متفاوت با جواب تحلیلی معادله لاپلاس.

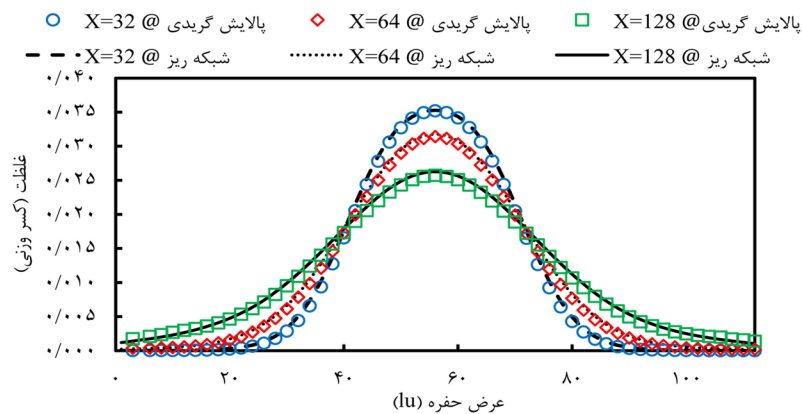
نوع شبکه	میانگین خطای مطلق	$RMSE = \sqrt{1/n \sum (y_i - y)^2}$
شبکه چهارگانه با یک درجه تفکیک	۱/۵۸	۱/۹
شبکه ریز	۱/۰۶۸	۱/۵۱
شبکه درشت	۲/۱۷۴	۲/۱۸

ورودی حفره، انتشار سیال ورودی در عرض حفره کاملاً مشهود است. همچنین، شکل ۶ پروفایل غلظت در طول حفره را در مرکز عرضی حفره و همچنین، در فاصله کمتری از دیواره‌ها نشان می‌دهد. برای سنجش میزان دقت تخمین پروفایل غلظت توسط مدل پالایش گریدی از معیار  $RMSE = \sqrt{1/n \sum (y_i - y)^2}$  استفاده شده و میانگین خطا برابر با ۰/۰۰۰۴ (خطای نسبی ۰/۱) محاسبه شده است. همخوانی مدل پالایش گریدی با مدل شبکه ریز گواهِ بر عملکرد صحیح مدل است.

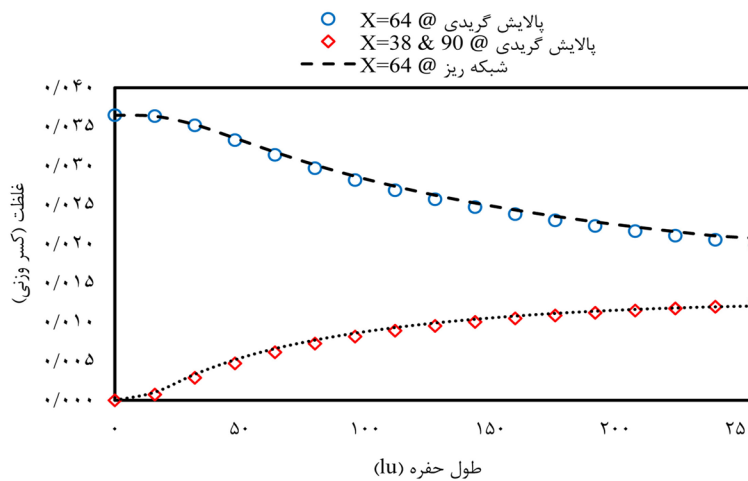
#### بررسی انحلال در محیط متخلخل دوبعدی نتایج آزمایشگاهی

به دلیل انحلال سریع بلورهای کلسیت و تولید حجم زیادی گاز در واکنش با اسید هیدروکلریدریک معمولاً مطالعه انحلال کربناته در مقیاس حفره به سادگی قابل انجام نیست و نتایج آزمایشگاهی در این زمینه اندک هستند.

سیال در حالت اولیه خالص فرض شده و دارای غلظت صفر می‌باشد. یک منبع خطی از سیالی با غلظت  $M$  برابر با ۳/۶ درصد وزنی به طول ۳۲ گرید ریز (۱۶ گرید درشت در مدل پالایش گریدی) در مرکز ورودی حفره (عرض حفره ۱۲۸ گرید) قرار داده شده است. اسید با ورود به دامنه و انتقال به مرز جامد در کنار دیواره‌ها واکنش داده ولی در اینجا از انحلال دیواره صرف نظر می‌شود. در خروجی دامنه غلظت، شرط مرزی گرادیان غلظت صفر اعمال شده و به معنی خروج سیال به وسیله توده جریان است. شرایط مرزی در دامنه جریان شامل شرط مرزی تکراری در ورودی و خروجی و شار صفر در مرز جامد می‌باشد. مقدار حاصل ضرب اعداد پکلت و دامکولر ( $Da = K/u$  و  $Pe = uL/D$ ) و عدد پکلت در این ارزیابی به ترتیب برابر با ۵۰ و ۲۰۰ منظور شده است. شکل ۵ توزیع غلظت در عرض حفره مویین را در سه نقطه متفاوت از طول حفره پس از ۵۰/۰۰۰ گام زمانی نشان می‌دهد. در واقع با فاصله گرفتن از



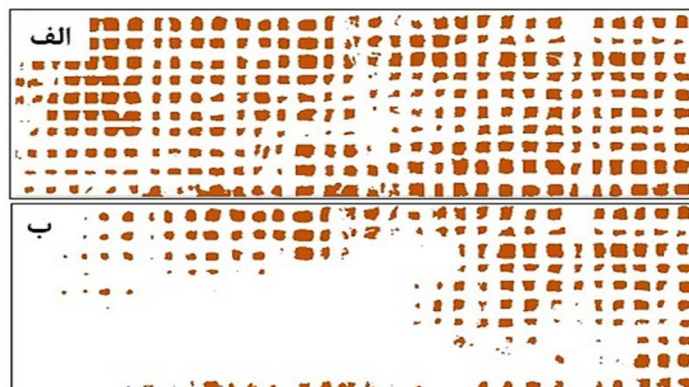
شکل ۵ پروفایل توزیع غلظت در عرض حفره پس از ۵۰ هزار گام زمانی در سه مقطع از طول حفره



شکل ۶ پروفایل توزیع غلظت در طول حفره پس از ۵۰ هزار گام زمانی در سه مقطع از عرض حفره

شده است. محیط متخلخل دوبعدی در مطالعه [۲۲] به همراه نتایج انحلال پس از تزریق اسید با سرعت  $0.115 \text{ cm/s}$  معادل با دامکولر ۱۰ به مدت یک ساعت در شکل ۷ نشان داده شده است.

از جمله می‌توان به مطالعه [۲۲] اشاره کرد که یک میکرو چیپ از ذرات مربعی شکل کلسیت با اندازه  $500 \mu\text{m}$  با فاصله ذرات کمتر از  $300 \mu\text{m}$  تهیه کرد. از این میکرومدل برای تزریق اسید رقیق HCl با غلظت ۱٪ وزنی استفاده گردید و مشاهدات ثبت



شکل ۷ (الف) میکرو مدل تولید شده در مطالعه [۲۲] با ذرات مربعی کلسیتی و (ب) نتایج انحلال پس از تزریق اسید با سرعت  $0.115 \text{ cm/s}$  معادل با دامکولر ۱۰ به مدت یک ساعت

واکنش بر الگوی انحلال دارد. با این وجود، بر اساس این شبیه‌سازی می‌توان نتیجه‌گیری کرد که مدل توسعه داده شده بر پایه پالایش‌گریدی توانایی شبیه‌سازی رفتار انحلال سنگ در اسید را دارا است و می‌توان برای مطالعه مکانیزمی جریان اسید در محیط متخلخل از آن بهره گرفت.

در ادامه با استفاده از ساختار حفرات با پیچیدگی بیشتر و در شرایط مختلف جریان به بررسی تغییرات ضریب انتقال جرم و تخلخل-تراوایی می‌پردازیم. برای محاسبه و بررسی تراوایی از رابطه داری و کوزنی کارمن استفاده شده است.

$$K = U \mu L / \Delta P = U v \rho / F = u_{ib} \phi v \rho / F \quad (17)$$

در رابطه ۱۷،  $K$  نماینده تراوایی داری،  $\phi$  تخلخل،  $\mu$  گرانروی دینامیک و  $\Delta P$  برابر با اختلاف فشار ورودی و خروجی دامنه است. در اینجا نسبت اختلاف فشار به طول دامنه برابر با نیروی وارد بر توده سیال بوده و با  $F$  جایگزین شده، سرعت داری نیز به صورت حاصل ضرب سرعت شبکه بولتزمان در تخلخل جایگذاری شده است.

$$K = \frac{\phi^3 D_p^2}{180(1-\phi)^2} \quad (18)$$

رابطه ۱۸ که به رابطه کوزنی کارمن معروف است برای بستر دانه ای کروی، تراوایی را به تخلخل و قطر ذرات سنگ مربوط می‌کند. این رابطه برای یک محیط متخلخل کاملاً اشباع شده و برای شرایط جریان کاملاً توسعه یافته و پایدار و بدون تغییرات ساختار حفرات برقرار است.

با وجود اینکه هدف از شبیه‌سازی‌های مقیاس حفره مطالعه مکانیزمی پدیده‌ها در این مقیاس بوده و تاکنون هیچ سابقه‌ای در تحقیقات برای تولید نتایج کمی آزمایشگاهی با استفاده از روش شبکه بولتزمان وجود نداشته است، به عنوان یک آزمون کیفی برای مدل پالایش‌گریدی، از محیط متخلخل همراه با شرایط مشابه آزمایش مطالعه [۲۲] بهره گرفته شد. شرایط مرزی در ورودی و خروجی دامنه جریان به ترتیب سرعت و فشار ثابت و در بالا و پایین دامنه و همچنین در مرز جامد، شرط مرزی شار صفر اعمال شده است. استوکیومتری واکنش در اینجا بر پایه واکنش HCl و کلسیت تنظیم شده است. همچنین در ورودی دامنه غلظت، شرط مرزی غلظت ثابت و در خروجی، شرط مرزی گرادیان غلظت صفر اعمال شده است. شکل ۸ نتیجه مدل با ابعاد  $768 \times 256$  گرید پس از  $100/000$  گام زمانی را نشان می‌دهد. همان‌طور که مشاهده می‌شود با تقریب خوبی انحلال کلسیت به صورت کرمچاله در مسیری نزدیک به مشاهدات آزمایشگاهی تولید شده است. نسبت تخلخل به تخلخل اولیه در کار [۲۲] و نتایج شبیه‌سازی به ترتیب  $1/24$  و  $1/13$  محاسبه شده است. این اختلاف به دلیل عدم تأمین زمان شبیه‌سازی مورد نیاز بوده که با توجه به ابعاد دامنه مورد استفاده در مدل به درستی قابل تعیین نیست. همچنین، انحراف جزئی مشاهده شده در الگوی انحلال، ریشه در ساده‌سازی صورت گرفته در مدل واکنشی و عدم در نظر گرفتن تأثیر تولیدات



شکل ۸ خروجی مدل پالایش‌گریدی پس از ۱۰۰ هزار گام زمانی و تولید مسیر انحلال نزدیک به نتایج آزمایشگاهی

$L$  بُعد عمود بر جریان (ورودی دامنه) بوده و  $S_{total}$  مجموع سطوح واکنش پذیر ذرات سنگ موجود در ساختار است که به جهت دوبعدی بودن ساختار در واحد طول تعریف می‌شود.  $\Delta C_\sigma$  اختلاف غلظت اسید در ورودی و خروجی دامنه بوده که به وسیله کوچکترین و بزرگترین مقدار خود در مخرج کسر تعمیم یافته می‌شود.  $Re$  نماد عدد رینولدز،  $Sc$  بیانگر عدد اشمیت و  $Sh$  همان عدد شروود است. ابعاد مورد استفاده در این بررسی  $512 \times 1024$  بوده تأثیر ساختار حفره و سرعت تزریق را بیان می‌کند. برای تحقیق اثر ساختار حفره، بسترهای جریان با تخلخل یکسان انتخاب شده اند (شکل ۹). در حالتی که انحلال در ساختار حفرات وجود ندارد، مقدار ضریب انتقال جرم (عدد شروود) برای هر بستر جریان مقداری ثابت خواهد بود. بنابراین در این بررسی به جهت تغییر ساختار حفره در اثر انحلال، تغییرات عدد شروود در حالت عدد پکلت پایین و تغییرات آرام در ساختار حفره در نظر گرفته شده است. شرایط مرزی در این بررسی همان شرایط مرزی شبیه سازی انحلال کرمچاله در مطالعه [۲۲] می‌باشد به جز اینکه در بالا و پایین دامنه از شرط مرزی تکراری جهت ایجاد حالت دامنه نامحدود استفاده شده است. حاصلضرب عدد دامکولر در عدد پکلت، عدد اشمیت و عدد پکلت به ترتیب برابر با ۴۰۰، ۴ و ۱۰ قرار داده شد. شکل ۱۰ با رسم نسبت تراوایی به تراوایی اولیه بر حسب نسبت تخلخل به تخلخل اولیه نشان دهنده تغییرات مشابه ساختار یک و دو است.

شکل ۱۱ مقدار  $RQI$  را بر حسب تغییرات تخلخل تعمیم یافته نشان می‌دهد. بر اساس نمودار شکل ۱۱ تغییرات  $RQI$  برای هر دو ساختار مشابه و مؤید وجود رابطه خطی به دست آمده از کوزنی کارمن می‌باشد. تفاوت موجود در عرض از مبدأ برای دو ساختار متأثر از تفاوت ضریب پیچاپیچی برای دو ساختار تفسیر می‌شود.

همچنین به دلیل فرض اولیه کوزنی کارمن از تقریب محیط متخلخل با دسته لوله موین غیر مرتبط باهم، بین نتایج آزمایشگاهی با این رابطه ناهمخوانی مشاهده می‌شود. در شبیه‌سازی مقیاس پیوسته انحلال سنگ در اسید معمولاً از روابط نیمه تجربی مانند کوزنی کارمن برای بیان تغییرات تخلخل- تراوایی استفاده می‌شود. این در حالی است که به علت تغییرات در سطح ویژه ذرات سنگ و ساختار حفرات و همچنین تغییر توان تخلخل در رابطه ۱۸، درستی این رویکرد محل اشکال است. در اینجا برای تحلیل تغییرات تخلخل-تراوایی، بر مبنای رابطه کوزنی کارمن از جذر نسبت تراوایی به تخلخل ( $RQI = \sqrt{K/\phi}$ ) بر حسب تخلخل تعمیم یافته ( $\phi_z = \phi(1-\phi)$ ) استفاده شده ماهیت خطی این رابطه در معادله کوزنی کارمن رابطه ۱۹ بررسی می‌گردد.

$$\sqrt{K/\phi} = \frac{D_p^2}{180} \left( \frac{\phi}{1-\phi} \right) = b \cdot \phi_z \quad (19)$$

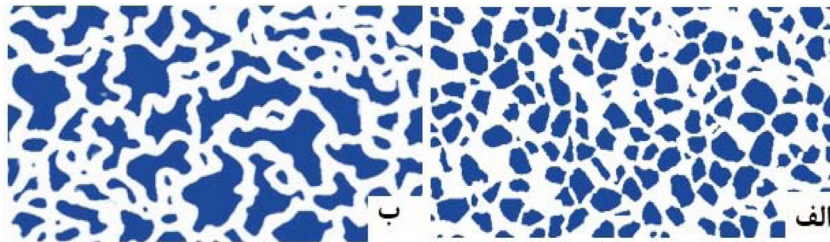
$$RQI = f(\phi_z) \quad (20)$$

### بررسی ضریب انتقال جرم

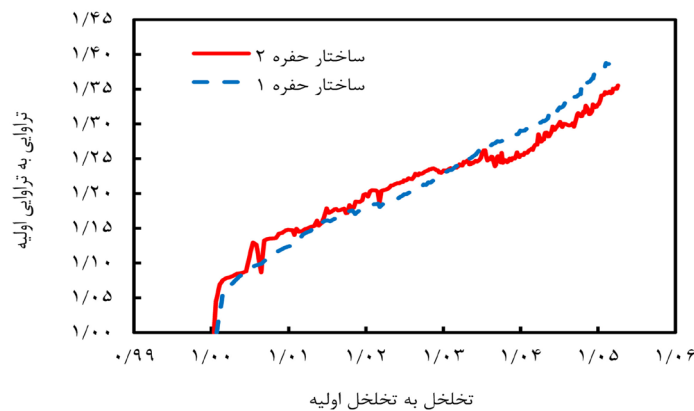
برای بررسی اثر جریان، واکنش و انحلال بر انتقال جرم در محیط متخلخل، لازم است تغییرات ضریب انتقال جرم به کمک عدد شروود و عدد اشمیت بیان گردد. عدد شروود به صورت نسبت انتقال جرم در اثر جریان به انتقال جرم در اثر نفوذ مولکولی تعریف می‌شود. عدد اشمیت نیز به صورت نسبت گرانی سینماتیک (انتشار مومنتوم) به ضریب نفوذ مولکولی (انتشار جرم) بیان می‌شود و از مشخصه‌های فرآیندهای انتشار-انتقال جرم/مومنتوم می‌باشد. برای محاسبه عدد شروود از رابطه ارائه شده در کار [۲۷] با اندکی تغییر به جهت شرایط مسئله به صورت زیر استفاده شده است:

$$Sh = \frac{\Delta C_\sigma}{(C_{\sigma b})_{in} - (C_{\sigma v})_{out}} Re Sc^{1/3} \frac{L}{S_{total}} \quad (21)$$

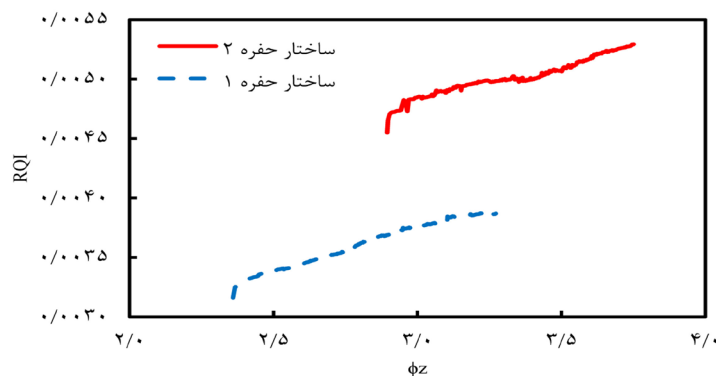
در رابطه ۲۱  $C_{\sigma v}$  و  $C_{\sigma b}$  غلظت جزء واکنش دهنده (اسید) به ترتیب در توده سیال و مرز جامد هستند.



شکل ۹ بستریهای جریان با ساختار حفره متفاوت و تخلخل یکسان با سایز دامنه  $۱۰۲۴ \times ۵۱۲$ .



شکل ۱۰ تغییرات تراوایی بر حسب تخلخل برای حالت انحلال سطحی در دو ساختار حفره متفاوت با تخلخل یکسان

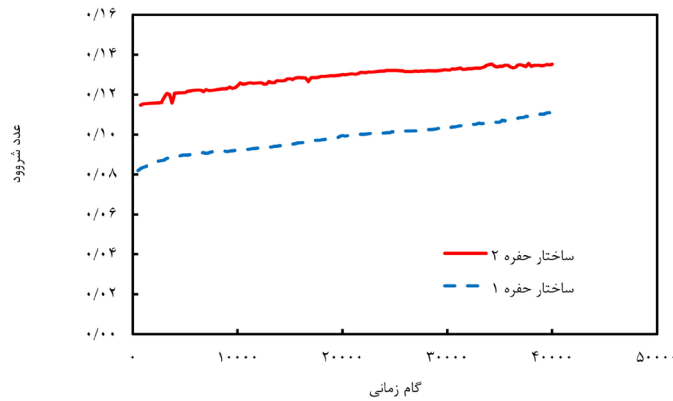


شکل ۱۱ تغییرات جذر نسبت تراوایی به تخلخل ( $RQI = \sqrt{K/\phi}$ ) بر حسب تخلخل تعمیم یافته ( $\phi_z = \frac{\phi}{1-\phi}$ ) برای حالت انحلال سطحی در دو ساختار حفره متفاوت با تخلخل یکسان

نکته دیگر اینکه در حالت تغییرات آرام ساختار حفرات، رابطه تغییرات عدد شروود با زمان به صورت خطی خواهد بود.

در ادامه به منظور تحقیق تغییر ضریب انتقال جرم در حالت‌های مختلف جریانی که در حقیقت منجر به تولید الگوهای متفاوتی از انحلال به صورت انحلال سطحی، کرمچاله و یکنواخت می‌گردد، سه عدد پکلت متفاوت ۱۰، ۵۰ و ۱۰۰ برای ساختار الف در شکل ۹ در نظر گرفته شده است.

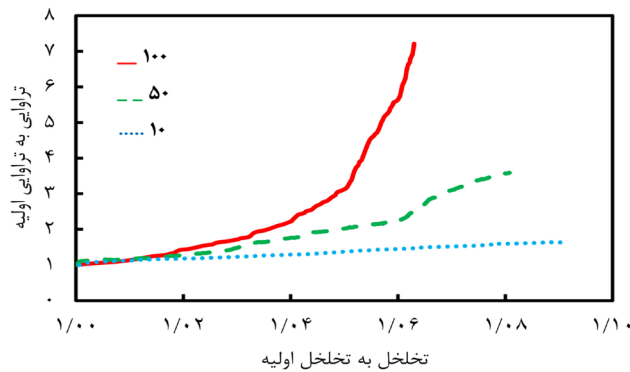
در واقع در الگوی انحلال سطحی (پکلت پایین) ساختار حفرات دچار تغییر چندانی نمی‌شود. شکل ۱۲ با رسم مقدار عدد شروود بر حسب زمان شبیه‌سازی دو نتیجه مهم را بیان می‌کند. اول اینکه انحلال ساختار سنگ انتقال جرم را تسهیل نموده باعث افزایش ضریب انتقال جرم می‌شود. دوم اینکه همانند شکل ۱۱ ساختاری که ضریب پیچاپیچی بزرگتری دارد به معنای نفوذپذیری کمتر و در نتیجه ضریب انتقال جرم کوچکتر می‌باشد.



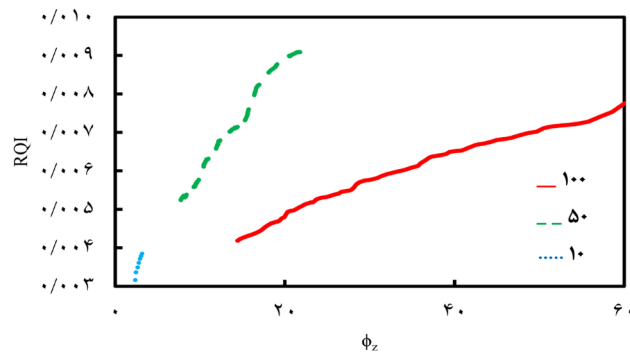
شکل ۱۲ تغییرات عدد شکستگی با زمان برای حالت انحلال سطحی در دو ساختار حفره متفاوت با تخلخل یکسان.

خطی خارج شده و با توان بزرگتری از تخلخل رابطه برقرار می‌نماید. این به معنای اثر متفاوت رژیم جریانی بر انحلال و روابط تخلخل-تراوایی است.

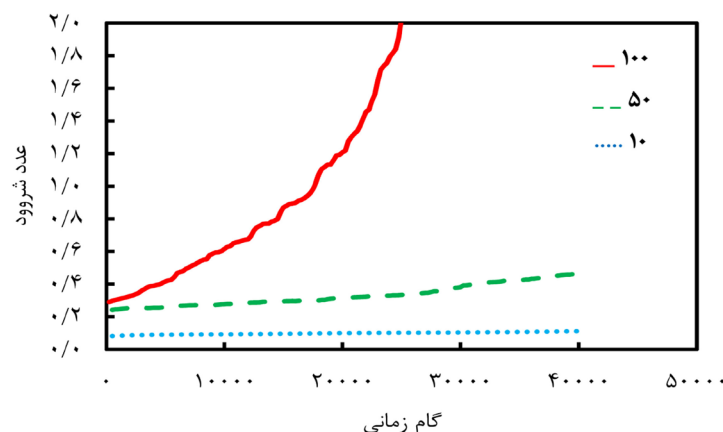
باقی شرایط مانند حالت قبل و ثابت هستند. نتایج شبیه‌سازی در شکل‌های ۱۳ تا ۱۵ نشان داده شده است. همانطور که در شکل ۱۳ مشاهده می‌شود تغییرات تراوایی برای پکلت بالاتر از ۱۰ از حالت



شکل ۱۳ تغییرات تراوایی بر حسب تخلخل برای سه حالت انحلال سطحی (پکلت ۱۰)، کرمچاله (پکلت ۵۰) و یکنواخت (پکلت ۱۰۰) در ساختار الف از شکل ۹



شکل ۱۴ تغییرات جذر نسبت تراوایی به تخلخل ( $RQI = \sqrt{K/\phi}$ ) بر حسب تخلخل تعمیم یافته ( $\phi_z = \frac{\phi}{1-\phi}$ ) برای سه حالت انحلال سطحی (پکلت ۱۰)، کرمچاله (پکلت ۵۰) و یکنواخت (پکلت ۱۰۰) در ساختار الف از شکل ۹



شکل ۱۵ تغییرات عدد شروود با زمان برای سه حالت انحلال سطحی  $Pe = (پکلت ۱۰)$ ، کرمچاله پکلت (۵۰) و یکنواخت پکلت (۱۰۰) در ساختار الف از شکل ۹

خوبی به دست می‌دهد.

### نتیجه‌گیری

این تحقیق با هدف شبیه‌سازی جریان کنشگر در مقیاس حفره، روش پالایش‌گریدی چهارگانه درختی را برای شرایط واکنشی تعمیم داده از آن برای شبیه‌سازی انتشار-انتقال و واکنش-انحلال در محیط متخلخل بهره گرفته است. در مطالعه حاضر روش D2Q9 شبکه بولتزمان برای هر دو دامنه جریان و غلظت به کار برده شده و برای شبیه‌سازی واکنش و انحلال از یک جمله عامل واکنش در معادله بولتزمان که در مرز سیال-جامد عمل می‌کند بهره گرفته شده است. با استفاده از مدل توسعه داده شده، نتایج اصلی این مطالعه به شرح زیر است:

- روش پالایش‌گریدی چهارگانه درختی از طریق درشت کردن گریدها در حفرات و تقسیمات چهارگانه در نزدیکی مرز سیال-جامد منجر به افزایش سرعت شبیه‌سازی جریان کنشگر در محیط متخلخل می‌شود. پالایش‌گریدی بدین صورت تنها با یک درجه تفکیک تراکم شبکه حدود  $2/5$  برابر سرعت شبیه‌سازی را افزایش می‌دهد.

- مدل توسعه یافته با روش پالایش‌گریدی چهارگانه با موفقیت راستی‌آزمایی شده، نتایج انتشار-انتقال-واکنش در یک حفره لوله‌ای موئین را با خطای  $1\%$  نسبت به حالت شبکه ریز یکنواخت شبیه‌سازی

همچنین بررسی RQI بر حسب تخلخل تعمیم یافته در شکل ۱۴ نیز نشان می‌دهد که علاوه بر تغییر شیب نمودار برای اعداد پکلت بزرگتر و رفتار غیرخطی، رابطه تغییرات RQI نیز متفاوت بوده به صورتی که بیشترین تأثیر در افزایش RQI را حالت انحلال به صورت کرمچاله با پکلت ۵۰ نشان می‌دهد. از طرف دیگر، حالت انحلال یکنواخت با پکلت ۱۰۰ بیشترین تغییرات تخلخل تعمیم یافته را نشان می‌دهد. در شکل ۱۵ تغییرات عدد شروود با زمان نیز افزایش شدید ضریب انتقال جرم با افزایش سرعت جریان را نشان می‌دهد. با مقایسه حالت‌های مختلف شبیه‌سازی به نظر می‌رسد که حالت انحلال یکنواخت با بیشترین تغییرات تخلخل تعمیم یافته تغییرات شدید ضریب انتقال جرم را رقم می‌زند و حالت‌های انحلال سطحی و انحلال کرمچاله را می‌توان با اندکی اصلاح در رابطه تغییرات ضریب انتقال جرم و همچنین، رابطه تخلخل-تراوایی به هم مرتبط کرد. این در حالی است که فرض وجود یک رابطه ثابت برای این پارامترها قطعاً شبیه‌سازی مقیاس پیوسته را دچار خطای محاسبات می‌نماید. بنابراین، شبیه‌سازی مقیاس حفره می‌تواند برای درک این تغییرات کمک شایانی به مقیاس پیوسته بنماید. روش پالایش‌گریدی با کاهش زمان محاسبات و امکان شبیه‌سازی دامنه‌های بزرگتر در این مسیر ابزار



نمود. همچنين، مقايسه نتايج توليد شده با مدل چهارگانه درختى با نتايج آزمايشگاهى، توانايى اين روش را در بازتوليد الگوى انحلال كرمچاله نشان مى‌دهد.

• اين تحقيق از مدل توسعه يافته براى مطالعه تأثير ساختار حفره و شرايط جريانى بر ضريب انتقال جرم (عدد شروود) و رابطه تغييرات تخلخل-تراوايى استفاده كرده است. در اين بررسى دو ساختار حفره با تخلخل يكسان و ضريب پيچاپيچى متفاوت و سه رژيم جريانى مولد انحلال سطحى، كرمچاله و يكنواخت در نظر گرفته شد. نتايج نشان مى‌دهد كه در نظر گرفتن تغييرات شروود در شبيه‌سازى جريان واكنشى در محيط متخلخل و متأثر از انحلال سنگ ضرورى است.

• تحليل نتايج بيانگر اين است كه در عين اينكه بزرگى ضريب پيچاپيچى نرخ انتقال جرم را کاهش مى‌دهد، انحلال ساختار باعث افزايش نرخ انتقال شده عدد شروود را بزرگتر مى‌كند. در نرخ‌هاى بالاي جريان تغييرات عدد شروود و RQI از حالت خطى خارج مى‌شود. بيشترين تأثير در افزايش RQI را حالت انحلال به صورت كرمچاله و حالت انحلال يكنواخت با بيشترين تغييرات تخلخل تعميم يافته تغييرات شديد ضريب انتقال جرم را رقم مى‌زند. همچنين، حالت‌هاى انحلال سطحى و انحلال كرمچاله را مى‌توان با اندكى اصلاح در رابطه تغييرات ضريب انتقال جرم و همچنين رابطه تخلخل-تراوايى به هم مرتبط كرد.

• بنابر اين فرض وجود يك رابطه ثابت براى اين پارامترها قطعا شبيه‌سازى مقياس پيوسته را دچار خطاى محاسبات مى‌نمايد. اعمال روش پالايش گريدى در مقياس حفره ابزارى به‌دست مى‌دهد تا با دستيابى به دامنه شبيه‌سازى بزرگتر در مقياس حفره، رابطه بين مقياس حفره و دارسى ايجاد نمود.

#### علائم و نشانه‌ها

$u^{eq}$ : سرعت تعادلى (lu/ts)

$\Delta P$ : اختلاف فشار (KPa)

$e_i$ : سرعت جهتى شبكه (lu/ts)

$S_c$ : اشميت (بى بعد)

$S_{total}$ : سطح واكنش پذير كل (lu)

$Pe$ : پكلت (بى بعد)

$\alpha_v$ : سطح ويژه در واحد حجم (1/cm)

$\phi$ : تخلخل (بى بعد)

$Sh$ : شروود (بى بعد)

$\phi_z$ : تخلخل تعميم يافته (بى بعد)

$W_i$ : ضريب وزنى جهتى (بى بعد)

$K$ : تراوايى (cm<sup>2</sup>)

$L$ : طول مشخصه (cm)

$f_i$ : توزيع جهتى چگالى (mu/lu<sup>2</sup>)

$D_p$ : قطر ذرات (cm)

$f_i^{eq}$ : توزيع جهتى تعادلى چگالى (mu/lu<sup>2</sup>)

$C$ : غلظت (wt%)

$g_i$ : توزيع جهتى غلظت (wt/lu<sup>2</sup>)

$C_s$ : غلظت تعادلى (wt%)

$g_i^{eq}$ : توزيع جهتى تعادلى غلظت (wt/lu<sup>2</sup>)

$C_o$ : غلظت واكنش دهنده (wt%)

$k$ : ثابت سرعت واكنش (cm/s)

$C_{\sigma w}$ : غلظت واكنش دهنده در مرز جامد (wt%)

$RQI$ : جذر نسبت تراوايى به تخلخل (cm)

$C_{\sigma b}$ : غلظت واكنش دهنده در توده سيال (wt%)

$S_i$ : جمله عامل واكنش (wt/lu<sup>2</sup>)

$\phi_s$ : كسر حجمى جامد (بى بعد)

$\rho$ : چگالى (g/cc)

$\Delta t_c$ : گام زمانى دامنه گريد درشت (ts)

$V_m$ : حجم مولى كانى (cm<sup>3</sup>/mol)

$\Delta t_f$ : گام زمانى دامنه گريد ريز (ts)

$Da$ : دامكولر (بى بعد)

$\Delta t$ : گام زمانى (ts)

Re: رينولدز (بى بعد)

$\Delta x$ : گام طولى شبكه (ts)

$\tau$ : زمان آسايش دامنه جريان (ts)

$v$ : گرانبوى سينماتيك (cm<sup>2</sup>/s)

$\tau_s$ : زمان آسایش دامنه غلظت (ts)	$\mu$ : گرانیروی دینامیک (cP)
$F$ : نیروی وارد بر توده سیال ( $N/cm^3$ )	$\tau_c$ : زمان آسایش دامنه گرید درشت (ts)
$C_s$ : سرعت صوت شبکه (lu/ts)	$c$ : مقدار سرعت واحد شبکه (1)

## مراجع

- [۱]. نظری صارم م و مرادی م (۱۴۰۰) شبیه‌سازی تزریق بهینه اسیدهای قوی و ضعیف در مخازن کربناته، مطالعه موردی، اسیدکاری در دو لایه هیدروکربوری مربوط به یکی از مخازن جنوب غرب ایران، پژوهش نفت، ۳۱، ۱۲۰: صفحات ۱۱۴-۱۲۶.
- [۲]. جعفری‌راد م، آذین ر، عصفوری ش و فاتحی ر (۱۳۹۳) شبیه‌سازی جابه‌جایی طبیعی در فرآیند دفع گازهای اسیدی به سازند آبد، پژوهش نفت، ۲۴، ۷۷: صفحات ۱۰۰-۱۰۹.
- [3]. Molins S (2012) An investigation of the effect of pore scale flow on average geochemical reaction rates using direct numerical simulation, *Water Resources Research*, 48.
- [4]. Molins S (2015) Reactive interfaces in direct numerical simulation of pore-scale processes, *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 80: 461-481,
- [5]. Kang Q, Lichtner P C, Zhang D (2007) An improved lattice Boltzmann model for multicomponent reactive transport in porous media at the pore scale, *Water Resources Research*, 43: 12.
- [6]. Kang Q, Chen L, Valocchi A J, Viswanathan H S (2014) Pore-scale study of dissolution-induced changes in permeability and porosity of porous media, *Journal of Hydrology*, 517: 1049-1055.
- [7]. Tartakovsky A M, Tartakovsky D M, Scheibe T D, Meakin (2008) Hybrid simulations of reaction-diffusion systems in porous media, *SIAM Journal on Scientific Computing*, 30, 6: 2799-2816.
- [8]. Nunes P, Blunt M J, Bijeljic B (2016) Pore-scale simulation of carbonate dissolution in micro-CT images, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 121, 2: 558-576.
- [9]. Boek E S, Zacharoudiou I, Gray F, Shah SMK, Crawshaw J, Yang J (2014) Multiphase flow and reactive transport at the pore scale using Lattice-Boltzmann computer simulations, *SPE journal*, 22, 3: 940-949,
- [10]. Meakin P, Tartakovsky A M (2009) Modeling and simulation of pore-scale multiphase fluid flow and reactive transport in fractured and porous media, *Reviews of Geophysics*, 47: 3.
- [11]. Yang J, Boek E S (2013) A comparison study of multi-component Lattice Boltzmann models for flow in porous media applications, *Computers and Mathematics with Applications*, 65: 882-890.
- [12]. Min T, Gao Y, Chen L, Kang Q, Tao W Q (2016) Changes in porosity, permeability and surface area during rock dissolution: Effects of mineralogical heterogeneity, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 103 900-913.
- [13]. Mostaghimi P, Liu M, Arns C H (2016) Numerical simulation of reactive transport on micro-ct images, *Math Geosci, Springer*, 48, 8: 963-983.
- [14]. Liu M, Mostaghimi P (2017) Characterization of reactive transport in pore-scale correlated porous media, *Chemical Engineering Science*, 173: 121-130.
- [15]. Liu M, Mostaghimi P (2017) High-resolution pore-scale simulation of dissolution in porous media, *Chemical Engineering Science*, 161: 360-369.
- [16]. Prasianakis N I, Gatschet M, Abbasi A, Churakov S V (2018) Upscaling strategies of porosity-permeability correlations in reacting environments from pore-scale simulations, *Hindawi Geofluids*.
- [17]. Chen Y, Kang Q, Cai Q, Zhang D (2011) Lattice boltzmann method on quadtree grids, *Physical Review e* 83: 2.
- [18]. Foroughi S, Jamshidi S, Masihi M (2013) Lattice Boltzmann method on Quadtree grids for simulating fluid flow through porous media: A new automatic algorithm, *Physica A* 392: 4772-4786.
- [19]. Zhang L, Kang Q, Chen L, Yao J (2016) Simulation of flow in multi-scale porous media using the lattice boltzmann method on quadtree grids, *Communications in Computational Physics*, 19, 4: 998-1014.
- [20]. Neumann P, Neckel T (2013) A dynamic mesh refinement technique for Lattice Boltzmann simulations on octree-like grids, *Computational Mechanics*, 51, 2: 237-253.
- [21]. Yu Z, Fan L S (2009) An interaction potential based lattice Boltzmann method with adaptive mesh refine-

- ment (AMR) for two-phase flow simulation, *Journal of Computational Physics*, 228 6456–6478.
- [22]. Song W (2014) Microfluidic visualization of phase and flow phenomena related to carbon dioxide transport and usage, Thesis for Master of Applied Sciences, University of Toronto, Canada.
- [23]. Dawson S P, Chen S, Doolen G D (1993) Lattice boltzmann computations for reaction-diffusion equations, *The Journal of Chemical Physics*, 98: 1514 – 1523.
- [24]. Guo Z, Zheng C, Shi B (2002) Discrete lattice effects on the forcing term in the lattice Boltzmann method, *Physical Review*, E 65, 4: 046308.
- [25]. Krüger T, (2017) the Lattice Boltzmann method, Springer Book, 297-311.
- [26]. Samet H (1984) The quadtree and related hierarchical data structures, *Computing Surveys*, 16: 2.
- [27]. Yoshino M, Inamuro T (2003) Lattice Boltzmann simulations for flow and heat/mass transfer problems in a three-dimensional porous structure, *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, 43:183–198.



# Pore Scale Simulation of Carbonate Acidizing Using Lattice Boltzmann and Local Grid Refinement Method

Sadegh Mahmoudi, Shahab Ayatollahi and Saeid Jamshidi\*

Department of Chemical and Petroleum Engineering, Sharif University of Technology, Tehran, Iran

Jamshidi@sharif.edu

DOI:10.22078/PR.2021.4471.3022

Received: April/30/2021

Accepted: November/23/2021

## Introduction

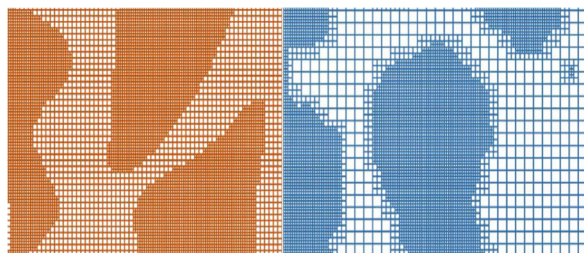
Carbonate acidizing is frequently used in petroleum reservoirs. The simulation studies for optimum acidizing usually use the Darcy scale formulations. However, the continuum assumption for properties like the local mass transport coefficient in porous media, and the porosity-permeability relation is not appropriate in case of the dissolution created by reactive flows. Regarding the pore-scale origin of such properties, therefore, lots of researchers have been attracted to pore scale modeling to investigate reactive fluid flow through porous media [1-7]. A review of modeling and simulation of pore-scale multiphase fluid flow and reactive transport in fractured and porous media can be found in [8]. Lattice Boltzmann method has also been used in many studies to investigate: the effect of Damkohler and Peclet numbers on the creation of the different dissolution pattern [3,4], the relation between the tortuosity, porosity and pore structure [9], the effect of heterogeneity in mineral distribution on the reaction rate and reactive surface area [11-13] and the porosity-permeability relation [3, 4, 13, 14]. The present work empowers the Lattice Boltzmann method by the novel Quadtree grid refinement to adjust the grid resolution at the vicinity of the solid surfaces where reaction and dissolution occur. This method helps to speed up the simulations and attain larger domain sizes needed to incorporate the effect of the underlying micro-scale processes in representative behavior of the reactive flows. Review of the Literature on Quadtree method shows the previous studies in exploring the flow

domains [15-19]. We step forward to explore the reactive flow in porous media and to investigate the discontinuity in the local mass transport coefficient in terms of the variation in Sherwood number and porosity-permeability relation in different dissolution pattern created by carbonate acidizing process.

## Materials and Methods

Quadtree is a multiscale mesh refiner that uses recursive subdivisions to adjust the grid resolution based on a predefined criterion. Quadtree method speeds up the simulation by refining the grids near the solid phase and letting the grids to be coarser at the pore bodies. The adaption of quadtree on LBM is performed based on the procedure presented in [15-17]. Figure 1 shows the reconstructed sample porous media by one and two level quadtree grid refinement. On the other hand, the Lattice Boltzmann model uses D2Q9 lattice type for both flow and concentration domains. The concentration domain uses a reaction source term in the Boltzmann equation to account for the reaction of the acid at the solid surfaces. The dissolution algorithm obeys the procedure of [4]. Validation of the developed model is conducted in two steps through the comparison of the quadtree model results to that of uniform fine grid model for convection-diffusion-reaction in a single pore problem and the experimental observation of carbonate dissolution in [20]. The experimental data in [20] provide a 2D pore structure generated by square calcite grains and

flooded by dilute HCL acid at a rate of 0.115 cm/s and Damkohler equal to 10. The validated model was then used to investigate the effect of pore structure on Sherwood value in reactive mass transport problems and the variation encountered during rock dissolution by different flow regimes. For both cases, the porosity-permeability relation is analyzed through the alteration of the linear form of Kozeny-Carmann equation.



**Fig. 1** reconstructed porous media by one and two level quadtree grid refinement.

**Results and Discussion**

Table 1 compares the computational time of fine grid model with that of quadtree method. The results show about 60% reduction in the time cost for equal number of the decomposed fine and coarse grids for one level quadtree refinement. In addition, the results suggest that as the number of coarser grids decomposed from the image increases, the time cost decreases.

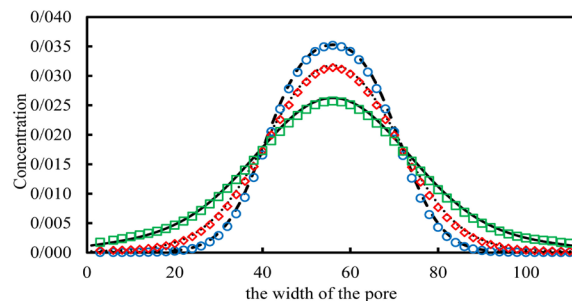
**Table 1** The computational time of fine grid and quadtree model.

Dimension	512×512	256×256
Computational time of fine grid model	26890	7900
Computational time of quadtree grid model with one level refinement	11550	3170
Ratio of fine to coarse grids	1	0.84
Time ratio of quadtree to fine model	0.43	0.4
Computational time of quadtree grid model with two level refinement	10750	2750
Ratio of fine to coarse grids	4	3.2
Time ratio of fine to quadtree model	0.4	0.35

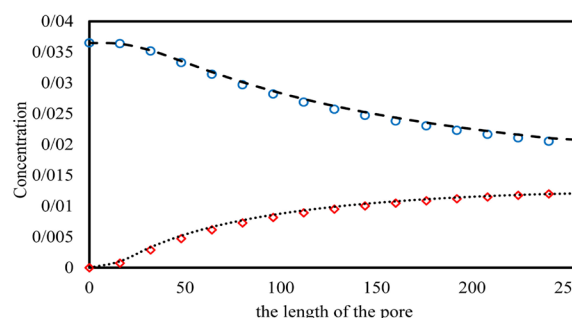
Two cases are used as benchmarks for validation of the model:

1- Reactive flow in a single pore: a channel with a dimension of 128×256 initially filled with a pure fluid of a density equal to 1. A constant concentration of 1 molar (equal to 3.6 wt.%) source acid is placed at the inlet. The outlet is at zero gradient boundary which means the concentration is transported out of the domain with the bulk flow. The top and bottom of the pore channel is at zero flux boundary. By the transport of the acid from the

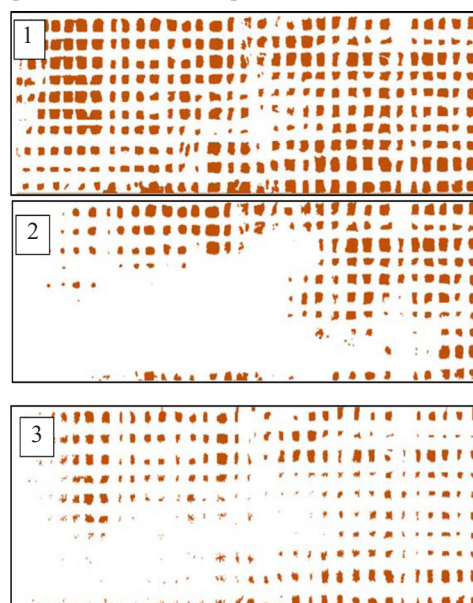
inlet to the channel walls, the reaction takes place but no dissolution is allowed. The concentration distribution profile generated by the quadtree model is compared with the uniform fine grid model. The results show good agreement with the RMSE equal to 0.0004 which corresponds to 1% relative error. The results are presented in Figures 2 and 3.



**Fig. 2** The concentration distribution profile generated by the quadtree model (markers) is compared with the uniform fine grid model (lines). The profiles correspond to three different positions along the pore.



**Fig. 3** The concentration distribution profile generated by the quadtree model (markers) is compared with the uniform fine grid model (lines). The dashed profile corresponds to the center-line positions along the pore, and the dotted profile corresponds to the near wall positions.



**Fig. 4** (1) is the pore structure generated by [20], (2) is the experimental dissolution result and (3) is the dissolution behavior estimated by quadtree model.

The quadtree model is then implemented to study the alteration of Sherwood number and porosity-permeability relation by the reactive flow. The implemented pore structures with equal porosity and the dimension of  $512 \times 1024$  are presented in Figure 5.

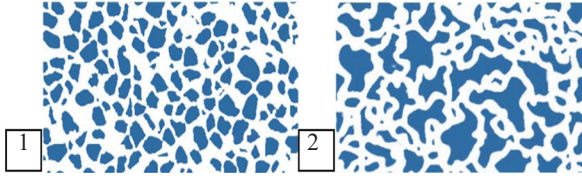


Fig. 5 pore structures with equal porosity and the dimension of  $512 \times 1024$ .

The simulation results in Figure 6 for Peclet= 10 show that facial dissolution increases the Sherwood number for both structures in the same way. However, the more tortuous structure results in smaller Sherwood value.

It is the same for the porosity-permeability relation in Figure 7 and the Kozeny-Carman equation in form of  $RQI = \sqrt{K/\phi}$  and  $\phi_z = \phi / (1 - \phi)$  in Figure 8. Furthermore, higher Peclet numbers of 50 and 100 are also considered to investigate wormhole and uniform dissolution respectively. The results for structure 1 show that higher flow rates can cause major difference on the Sherwood number variation and the porosity-permeability relation. While higher Peclet flows show more increase in RQI in case of wormhole and major increase in in case of uniform dissolution, both cases show non-linear Sherwood increase. The results for the three Peclet numbers of 10, 50 and 100 using structure 1 in Figure 5 are illustrated in Figures 9 to 11.

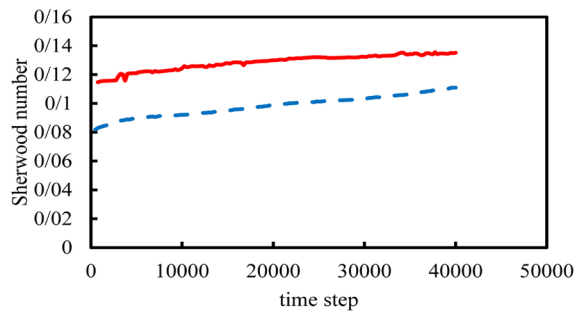


Fig. 6 dissolution increases the Sherwood number for both structures in the same way. The dashed line shows the result for pore structure 1 and the solid line is the result for pore structure 2.

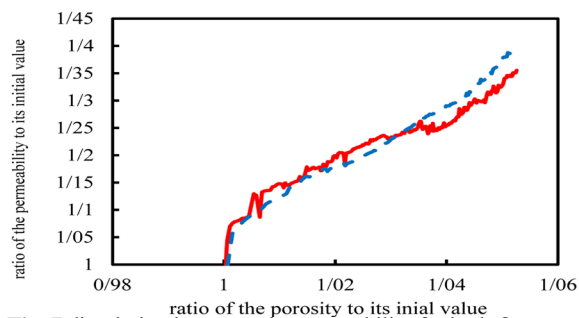


Fig. 7 dissolution increases the permeability for both structures in the same way. The dashed line shows the result for pore structure 1 and the solid line is the result for pore structure 2.

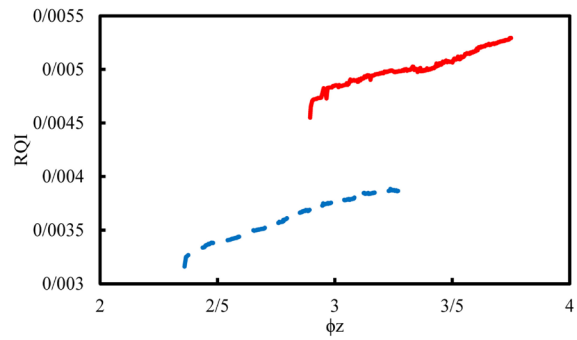


Fig. 8 dissolution increases the RQI for both structures in the same way. The dashed line shows the result for pore structure 1 and the solid line is the result for pore structure 2.

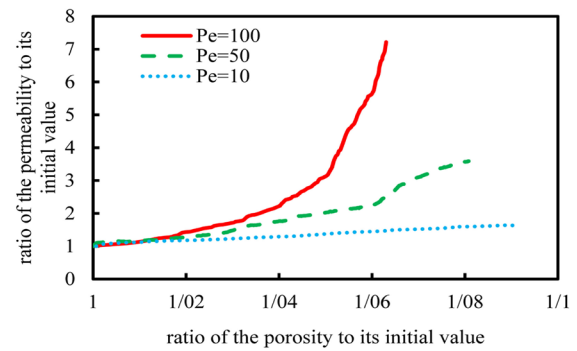


Fig. 9 the variation in permeability simulated by quadtree model for different Peclet numbers using the pore structure 1.

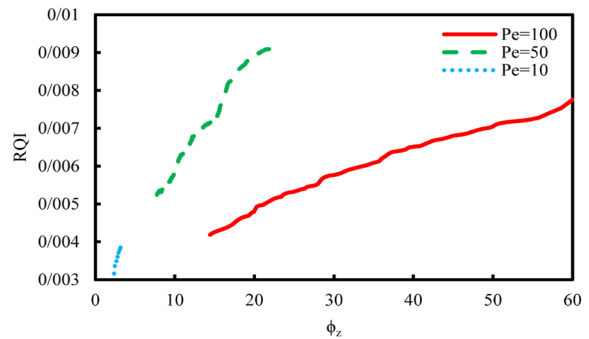


Fig. 10 Kozeny-Carman equation in form of RQI simulated by quadtree model for different Peclet numbers using the pore structure 1.

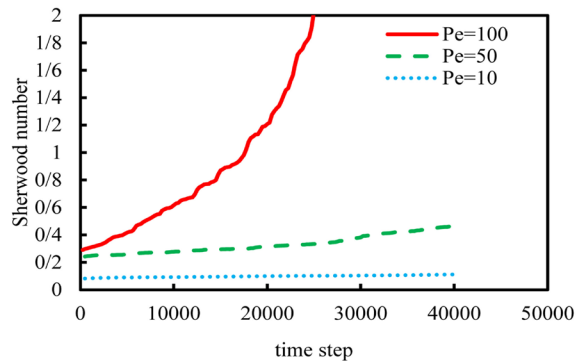


Fig. 11 the variation in Sherwood number simulated by quadtree model for different Peclet numbers using the pore structure 1.

## Conclusions

The present work combined the quadtree grid refinement method and reactive Lattice Boltzmann modeling to investigate the variation of Sherwood number and porosity-permeability relation in different dissolution pattern in carbonate acidizing process. The D2Q9 lattice was adopted for both flow, and concentration domains with a reaction source term implemented in the Boltzmann equation for the nodes at the solid interfaces to account for the reaction of the acid with the rock grains.

The Quadtree method resulted in speed up of the simulations for reactive transport through porous media by using coarser grids in the bulk pore spaces and refining the grids close to the solid interfaces. The results for one level quadtree refinement showed about 60% reduction in the time cost. Furthermore, the developed Quadtree model was able to accurately simulate validation tests including reaction-diffusion-convection simulation in a single pore and experimental observation for calcite dissolution patterns.

The analyses indicated that more tortuous structure resulted in smaller Sherwood number. However, the evolution of pore structure in the dissolution process enhanced the mass transfer rate. As Sherwood number increased with the increase in Peclet number, structure dissolution caused non-linear changes in Sherwood and porosity-permeability relation. Higher Peclet flows also showed major increase in RQI in case of wormhole dissolution and major increase in  $\lambda$  in case of uniform dissolution.

The results show that it is necessary to account for the variation of Sherwood number in reactive flow simulations where the porous medium is modified by dissolution. Quadtree has the ability to estimate the challenging macroscopic properties by large-size pore scale simulation needed to incorporate the effect of the underlying micro-scale processes and play a Pore-Darcy scale bridging role for continuum models.

## References

- Molins S (2012) An investigation of the effect of pore scale flow on average geochemical reaction rates using direct numerical simulation, *Water Resources Research*, 48.
- Molins S (2015) Reactive Interfaces in Direct Numerical Simulation of Pore-Scale Processes, *Reviews in Mineralogy & Geochemistry*, 80: 461-481.
- Kang Q, Lichtner PC, Zhang D (2007) An improved lattice Boltzmann model for multicomponent reactive transport in porous media at the pore scale, *water resources research*, 43.
- Kang Q, Chen L, Valocchi A J, Viswanathan H S (2014) Pore-scale study of dissolution-induced changes in permeability and porosity of porous media, *Journal of Hydrology*, 517, 1049–1055.
- Tartakovsky A M, Tartakovsky D M, Scheibe T D, Meakin (2008) Hybrid simulations of reaction-diffusion systems in porous media, *SIAM Journal on Scientific Computing*, 30, 6: 2799–2816.
- Nunes P, Blunt M J, Bijeljic B (2016) Pore-scale simulation of carbonate dissolution in micro-CT images, *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 21, 2: 558-576.
- Boek E S, Zacharoudiou I, Gray F, Shah SMK, Crawshaw J, Yang J (2014) Multiphase flow and reactive transport at the pore scale using Lattice-Boltzmann computer simulations. In *SPE Annual Technical Conference and Exhibition*. OnePetro.
- Meakin P, Tartakovsky A M (2009) Modeling and simulation of pore-scale multiphase fluid flow and reactive transport in fractured and porous media, *Reviews of Geophysics*, 47: 3.
- Yang J, Boek E S (2013) A comparison study of multi-component Lattice Boltzmann models for flow in porous media applications, *Computers and Mathematics with Applications*, 65, 882–890.
- Min T, Gao Y, Chen L, Kang Q, Tao W Q (2016) Changes in porosity, permeability and surface area during rock dissolution: Effects of mineralogical heterogeneity, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 103: 900–913.
- Moštaghimi P, Liu M, Arns C H (2016) Numerical simulation of reactive transport on micro-ct images, *Mathematical Geosciences*, 48, 8: 963-983.
- Liu M, Moštaghimi P (2017) Characterization of reactive transport in pore-scale correlated porous media, *Chemical Engineering Science*, 173 121–130.
- Liu M, Moštaghimi P (2017) High-resolution pore-scale simulation of dissolution in porous media, *Chemical Engineering Science*, 161: 360-369
- Prasianakis N I, Gatschet M, Abbasi A, Churakov S V (2018) Upscaling strategies of porosity-permeability correlations in reacting environments from pore-scale simulations, *Hindawi Geofluids*.
- Chen Y, Kang Q, Cai Q, Zhang D (2011) Lattice Boltzmann method on Quadtree grids, *physical review*, E 83: 026707
- Foroughi S, Jamshidi S, Masihi M (2013) Lattice Boltzmann method on Quadtree grids for simulating fluid flow through porous media: A new automatic algorithm, *Physica A* 392, 4772–4786.
- Zhang L, Kang Q, Chen L, Yao J (2016) Simulation of Flow in Multi-Scale Porous Media Using the Lattice Boltzmann Method on Quadtree Grids, *Communications in Computational Physics*, 19, 4: 998-1014.
- Neumann P, Neckel T (2013) A dynamic mesh refinement technique for Lattice Boltzmann

- simulations on octree-like grids, *Comput Mech* 51: 237–253
19. Yu Z, Fan L S (2009) An interaction potential based lattice Boltzmann method with adaptive mesh refinement (AMR) for two-phase flow simulation, *Journal of Computational Physics*, 228: 6456–6478.
  20. Song W (2014) Microfluidic visualization of phase and flow phenomena related to carbon dioxide transport and usage, Thesis for Master of Applied Sciences, University of Toronto, Canada.