

Effect of In-Situ Synthesized Cerium Oxide Nanoparticles on Oil Recovery Factor in a Glass Micromodel

Nafiseh Mehrooz¹, Reza Gharibshahi¹, Arezou Jafari^{1,*} Hamid Delavari²,
Saeid Sadeghnejad¹

¹Faculty of Chemical Engineering, Tarbiat Modares University, Tehran, Iran.

²Department of Materials Engineering, Tarbiat Modares University, Tehran,
Iran.

Abstract

Research subject: In situ synthesis of nanoparticles due to greater impact on production mechanisms (such as reducing oil viscosity), uniform distribution of nanoparticles in reservoir fluids, no reduction in formation permeability due to no injection of nanofluids into the reservoir and also economic efficiency is more importance than other nanoparticle synthesis methods which are used in enhanced oil recovery (EOR) processes.

Research approach: In this study, the effect of in-situ synthesized of cerium oxide (CeO_2) nanoparticles at low temperature on the oil recovery factor was investigated. For this purpose, water was considered as the based fluid for dispersion of synthesized nanoparticles. Also, in order to study the effect of nanoparticles concentration in the base fluid on the final oil recovery factor, several nanofluids were prepared at different concentrations of 0.01, 0.1, 0.25 and 0.5 wt.%. Finally, the prepared nanofluids were injected at the injection rate of 0.07 ml/h up to 1 PV into the micromodel and the amount of produced oil and the movement of the injected fluid in the porous medium were analyzed.

Main results: The results showed that the synthesized CeO_2 nanoparticles in this study have appropriate performance to improve the oil recovery factor. The presence of small amounts of these nanoparticles (concentration of 0.01 wt. %), causes a significant increment in oil recovery factor (about 7%) compared to water injection alone. Also, the oil extraction coefficient increased by increasing the concentration of nanoparticles in the base fluid. So that for nanofluids with concentrations of 0.01, 0.1, 0.25 and 0.5 wt.%, the oil recovery factor were 25%, 38%, 43% and 45%, respectively. However, by increasing the concentration of nanoparticles in the base fluid, from an optimal amount onwards, the probability of particle deposition in the micromodel increased, the effect of nanoparticles on changing the hydrodynamic properties of the injected fluid and oil production mechanisms decreased.

key words

In-Situ Synthesis

Nanofluid

Cerium Oxide

Enhance Oil Recovery

Micromodel

*To whom correspondence should be addressed:
ajafari@modares.ac.ir

بررسی آزمایشگاهی اثر نانوذرات سرب اکسید سنتز شده به روش درجا بر ضریب برداشت نفت درون میکرومدل شیشه‌ای

نقیسه مهرزاد^۱، رضا غریب شاهی^۱، آرزو جعفری^۲، حمید دلاوری حسن کیاده^۲، سعید صادق نژاد^۱

۱ دانشکده مهندسی شیمی، دانشگاه تربیت مدرس، تهران، ایران.
۲ دانشکده فنی و مهندسی، بخش مواد، دانشگاه تربیت مدرس، تهران، ایران.

چکیده

موضوع تحقیق: سنتز نانوذرات به صورت درجا به خاطر اثرگذاری بیشتر بر سازوکارهای تولید (مانند کاهش گرانش نفت)، توزیع یکنواخت نانوذرات در سیالات مخزن، عدم کاهش تراوایی سازند به خاطر عدم تزریق نانوسیال به مخزن و همچنین صرفه اقتصادی از اهمیت بیشتری نسبت به دیگر روش‌های سنتز نانوذرات برای استفاده در فرایندهای ازدیاد برداشت نفت برخوردار است. **روش تحقیق:** در این مطالعه اثر نانوذرات سرب اکسید سنتز شده به صورت درجا در دمای پایین بر روی ضریب برداشت نفت مورد بررسی قرار گرفت. بدین منظور سیال پایه آب برای پخش شدن نانوذرات سنتز شده در نظر گرفته شد. همچنین به منظور بررسی اثر غلظت نانوذرات در سیال پایه بر روی ضریب برداشت نهایی نفت، نانوسیال‌ها با غلظت‌های ۰/۱، ۰/۰۱، ۰/۲۵ و ۰/۵ درصد وزنی تهیه شدند. در نهایت، نانوسیال‌های تهیه شده با نرخ تزریق ۰/۰۷ میلی‌لیتر در ساعت تا یک حجم منافذ به درون میکرومدل تزریق شد و میزان برداشت نفت و نحوه حرکت سیال درون محیط متخلخل مورد مطالعه قرار گرفت.

نتایج تحقیق: نتایج نشان دادند که نانوذرات سنتز شده در این پژوهش، کارایی مناسبی برای افزایش ضریب برداشت از مخازن نفتی دارند. حضور اندک این نانوذرات (غلظت ۰/۰۱ درصد وزنی)، باعث افزایش چشمگیر ضریب برداشت نفت (حدود ۷٪) در مقایسه با تزریق آب به تنهایی است. همچنین، با افزایش غلظت نانوذرات در سیال پایه، ضریب برداشت نفت هم افزایش یافت. به طوری که برای نانوسیال‌های با غلظت ۰/۰۱، ۰/۱، ۰/۲۵ و ۰/۵ درصد وزنی ضریب برداشت نفت به ترتیب برابر ۲۵٪، ۳۸٪، ۴۳٪ و ۴۵٪ شد. اما با افزایش غلظت نانوذرات در سیال پایه، از مقدار بهینه به بعد احتمال رسوب ذرات درون میکرومدل افزایش یافت، اثر نانوذرات بر تغییر خواص هیدرودینامیکی سیال تزریقی و سازوکارهای بهبود برداشت نفت کاهش یافت و لذا کارایی این نانوذرات نیز کم شد.

کلمات کلیدی

سنتز درجا

نانو سیال

سرب اکسید

ضریب برداشت نفت

میکرومدل

*مسئول مکاتبات:

ajafari@modares.ac.ir

مقدمه

نفت به عنوان یکی از نیازهای بشر به شمار آمده و فرایند تولید و استخراج بهینه سیال از مخازن هیدروکربنی یکی از دغدغه‌های جهان کنونی در زمینه تأمین سوخت است [۱]. حال آنکه با در نظر گرفتن محدودیت منابع نفتی در جهان و نیز توانایی محدود بشر در اکتشاف، تولید و بهره‌برداری از منابع هیدروکربنی، نیاز به توسعه فناوری‌های جدید در راستای توسعه علمی و عملی استخراج و تولید از مخازن نفتی احساس می‌شود. در این راستا پیدایش فناوری نانو نقش مهمی را در راستای توسعه و بهبود صنایع نفت و گاز داشته است [۲-۴]. تولید و برداشت نفت موجود در مخزن با روش‌های اولیه و ثانویه منجر به شرایط ضعیف و ناپایدار شده است. از این رو محققان زیادی برای حل مسائل صنعت نفت به این فناوری روی آورده‌اند [۵-۷]. نانوذرات می‌توانند از طریق چندین سازوکار مختلف از جمله تغییر نسبت پویایی سیال تزریقی، کاهش کشش بین سطحی، تشکیل امولسیون آبی و تغییر ترشوندگی محیط متخلخل منجر به افزایش برداشت نفت از مخازن شوند [۸-۱۱]. نانوذرات می‌توانند در سطح مشترک سیال تزریقی و نفت باعث کاهش کشش بین سطحی آن‌ها شوند یا با تغییر ترشوندگی سنگ مخزن از حالت نفت دوست به شدیداً آب‌دوست به تولید راحت‌تر و بهتر نفت از درون خلل و فرج سنگ مخزن کمک زیادی کنند [۱۲-۱۴]. این موضوع به این دلیل است که زمانی که ابعاد مواد در محدوده نانومتری قرار می‌گیرند، انرژی سطحی، خاصیت کاتالیزوری، مقاومت مکانیکی و توانایی آن‌ها برای نفوذ به درون حفرات سازند افزایش چشمگیری می‌یابد [۱۵-۱۷].

یکی از چالش‌های استفاده از این ذرات مسائل مربوط به نحوه چگونگی تزریق آن‌ها به درون مخزن، توزیع یکنواخت آن‌ها درون مخزن، کاهش تراوایی و مسائل مربوط به آسیب سازند، مسائل اقتصادی (کاهش هدرروی مواد، عدم نیاز به تجهیزات ویژه برای تزریق نانوسیالات به درون مخزن، استفاده از انرژی موجود در خود مخزن برای انجام واکنش، کاهش مراحل تولید و استفاده از نانوذرات و کاهش نگرانی‌های مربوط به حمل و انتقال نانوذرات) و ... است که بر روی استفاده از آن‌ها در میدان‌های نفتی تأثیر می‌گذارد. نانوذرات به روش‌های مختلفی سنتز و تولید می‌شوند که هر کدام مزایا و معایب خاص خود را دارند. سنتز نانوذرات به صورت درجا به دلیل اثرگذاری بیشتر بر سازوکارهای تولید مانند کاهش گرانیروی نفت، توزیع یکنواخت نانوذرات در سیالات مخزن، عدم کاهش تراوایی سازند به دلیل عدم تزریق نانوسیال به مخزن و صرفه اقتصادی از اهمیت بیشتری نسبت به دیگر روش‌های

سنتز نانوذرات برخوردار است که در صورت موفقیت در تولید بهینه ذرات می‌تواند بر بسیاری از مسائل موجود در عملیات میدانی استفاده از فناوری نانو در فرایندهای ازدیاد برداشت نفت غلبه کند. به نظر می‌رسد نوع سنگ مخزن، میزان بار سطوح، نوع یون‌ها و غیره می‌تواند بر روی سنتز نانوذرات تأثیرگذار باشد. با این حال، در سال‌های اخیر تعداد اندکی از محققین امکان تولید این ذرات درون خود مخزن نفتی را (در غیاب سنگ مخزن) مورد مطالعه قرار داده‌اند.

مطالعات گذشته نشان داده‌اند که نانوذرات سنتز شده به روش درجا و با استفاده از انرژی خود مخزن از بلورینگی و مورفولوژی مناسبی برخوردار هستند و به خاطر سطح پخش‌شوندگی بالا و بهتری که دارند باعث بهبود فعالیت کاتالیزوری می‌شوند [۱۸ و ۱۹]. همچنین نسبت به نانوذرات تجاری، نانوذرات سنتز شده به صورت درجا می‌توانند میزان آسفالتین بیشتری را بر سطح خود جذب کنند. به همین دلیل نانوذراتی که به صورت درجا سنتز می‌شوند کیفیت نفت خام و درجه API آن را نسبت به نانوذرات سنتز شده به صورت برون‌جا بیشتر افزایش می‌دهند و در نتیجه گرانیروی نفت کاهش بیشتری خواهد داشت و در نهایت میزان نفت بیشتری نیز از مخزن برداشت خواهد شد [۲۰-۲۳].

بسیاری از جوانب این فرایند تاکنون به صورت دقیق و کامل مشخص نشده است. مطالعات انجام شده در حوزه سنتز درجای نانوذرات به منظور افزایش برداشت نفت نشان می‌دهد که تاکنون نانوذرات محدودی شامل اکسید آهن، اکسید نیکل، اکسیدوانادیوم، آلومینا و اکسیدمس به کمک این روش سنتز شده‌اند. همچنین بیشترین روش سنتز انجام شده در این زمینه به صورت تشکیل میکروامولسیون پایدار (از نمک‌های پیش‌ساز) آب در نفت بوده است. عموماً به دلیل دمای بالای واکنش سنتز و همچنین تأمین فشار مورد نیاز از پار راکتور یا راکتورهای با فشار بالا استفاده شده است. نانوذرات سنتز شده در این مطالعات دارای اندازه‌ای بین ۵ تا ۳۵ نانومتر بودند و عموماً پارامترهایی مانند میزان جذب آسفالتین، تغییر گرانیروی و ضریب برداشت نفت مورد بررسی قرار گرفته است.

نانوذره سریم اکسید دارای انرژی سطحی بسیار بالا و خاصیت کاتالیزوری بسیار مناسبی برای جذب مواد آلی و شکست مولکول‌های آن‌ها دارد. این ویژگی کمک می‌کند که این نانوذرات پتانسیل و قابلیت مناسبی برای استفاده در فرایندهای ازدیاد برداشت نفت داشته باشند. کاهش سایز ذرات سریم اکسید و تولید آن‌ها در مقیاس نانو باعث افزایش مقدار سطح به حجم و تعداد محل‌های فعال برای انجام فعالیت‌های کاتالیزوری

سنتز و شناسایی نانوذرات سریم اکسید

در این مطالعه از روش میکرومولسیون به منظور سنتز درجای نانوذرات سریم اکسید در محیط نفتی در شرایط دمایی پایین استفاده شد که جزئیات این روش سنتز و همچنین آزمون‌های شناسایی انجام شده بر این نانوذرات در مطالعه قبلی انجام شده توسط نویسندگان این پژوهش گزارش شده است. طرحواره روش سنتز این نانوذرات به صورت خلاصه در شکل ۱ نشان داده شده است [۲۹]. همچنین نتایج آزمون‌های طیفسنجی پراش پرتو ایکس (XRD) نشان داد که روش سنتز پیشنهادی ارائه شده در این پژوهش قابلیت بسیار خوبی برای تولید نانوذرات سریم اکسید در مخزن نفتی دارد. اندازه بلور نانوذرات به کمک معادله شرر ۳ نانومتر اندازه‌گیری شد. همچنین آزمون میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی (FESEM) نانوذرات سنتز شده به کمک این روش دارای شکل کروی و میانگین سایز قطر $18/655 \pm 0/23$ نانومتر هستند.

سیلاب‌زنی درون میکرومدل شیشه‌ای

به منظور مطالعه و مشاهده مستقیم جریان سیال در محیط متخلخل از آزمایش‌های مربوط به میکرومدل شیشه‌ای استفاده شد تا اثر تزریق نانوسیال‌های

می‌شود. به عبارتی نانوذرات سریم اکسید ماده مهمی برای کاربردهای کاتالیزوری به دلیل قابلیت افزایش یافته در جذب و آزادسازی اکسیژن از طریق چرخه اکسایش-کاهش Ce^{3+}/Ce^{4+} است [۲۴-۲۸]. بنابراین هدف اصلی در این پژوهش بررسی اثر حضور نانوذرات سریم اکسید سنتز شده به روش درجا و همچنین درصد وزنی این نانوذرات در سیال پایه بر میزان برداشت نفت از محیط متخلخل است.

بخش تجربی

مواد و سیالات مورد استفاده

در این مطالعه از مواد مختلفی به منظور انجام آزمایش‌های تزریق درون محیط متخلخل استفاده شد که فهرست این مواد در جدول ۱ نشان داده شده است. از نمونه نفت خام (نمونه شماره ۱) از مخازن جنوب غربی ایران (گرانروی $0/1767 \text{ kg/m.s}$ و API برابر ۳۰) به منظور تأمین سیال محیط واکنش سنتز درجای نانوذره سریم اکسید استفاده شد. همچنین از نمونه نفت خام دیگری (نمونه شماره ۲) از یکی از مخازن جنوب غربی ایران (گرانروی $1/478 \text{ kg/m.s}$ و API برابر ۱۹) به منظور اشباع‌سازی محیط متخلخل استفاده شد. از سریک آمونیوم‌نیترات، آمونیوم کربنات و آب

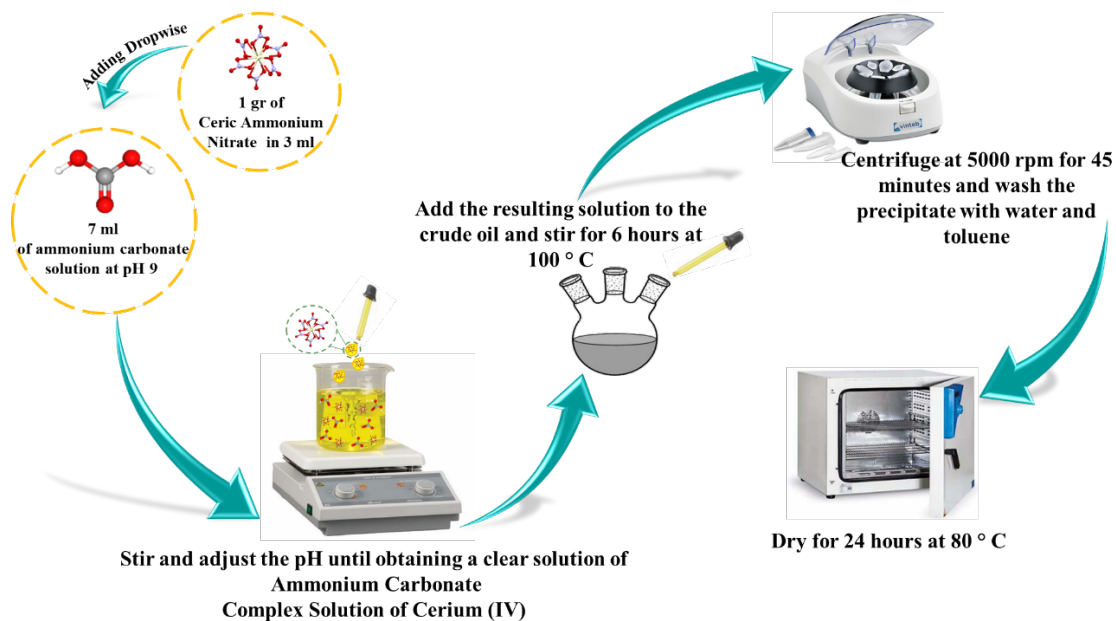
جدول ۱ خصوصیات نفت‌های مورد استفاده
Table 1. Characteristics of used oils

Material	Company	Application
Crude oil	Southwestern oil Reservoirs of Iran	Synthesis reaction medium, saturation of porous medium
Deionized (DI) water	Water Quality	Synthesis, washing and the dispersion medium of nanoparticles
Ceric Ammonium Nitrate	Merck	Synthesis nanoparticles
Ammonium Carbonate	Merck	Synthesis nanoparticles
Toluene	Merck	Oil-wetting micromodel and nanoparticle washing
Sodium Hydroxide (NaOH)	Titraheme	Oil-wetting micromodel
Trichloromethylsilane	Titraheme	Oil-wetting micromodel
Methanol	Titraheme	Oil-wetting micromodel

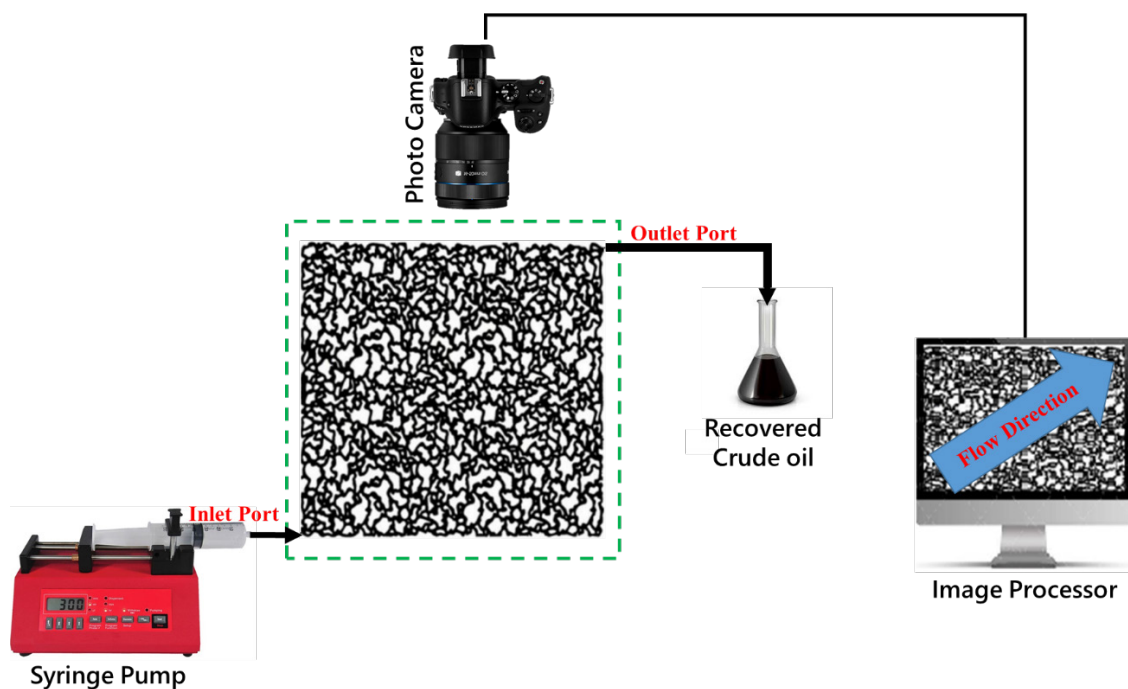
تهیه شده با استفاده از نانوذرات سریم اکسید سنتز شده به صورت درجا در فرایند ازدیاد برداشت نفت ارزیابی شود. طرح‌واره‌ای از تجهیزات استفاده شده در دستگاه سیلاب‌زنی درون میکرومدل شیشه‌ای در شکل ۲ نشان داده شده است.

در این تحقیق به منظور ایجاد محیطی شبیه به محیط واقعی مخزن از طرح نامنظمی که تا حدی بیانگر ناهمگنی توزیع حفرات و مسیرهای مخازن

دیونیزه به منظور سنتز درجای نانوذرات سریم اکسید استفاده شد. به منظور نفت دوست کردن میکرومدل از سدیم هیدروکسید، سیلان، تولوئن و متانول استفاده شد. در این پژوهش از سیال پایه آب به عنوان محیط پخش شدن نانوذره سریم اکسید به منظور تهیه نانوسیالات استفاده شده است.



شکل ۱ طرحواره فرایند سنتز نانوذرات
Figure 1. Schematic of in situ synthesis nanoparticle process



شکل ۲ طرحواره دستگاه تزریق سیال در میکرومدل
Figure 2. Schematic of a fluid injection device in a micro model

جدول ۲ مشخصات میکرومدل دوبعدی شیشه‌ای
Table 2. Specifications of two-dimensional glass micro model

Dimension (cm)	Thickness (μm)	Porosity (%)	Permeability (md)
6×6	60	38	890

بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد که این نانوذرات تا ۲۴ ساعت پایداری خود را حفظ خواهند کرد و پس از این زمان شروع به رسوب خواهند کرد. با توجه به اینکه تمامی آزمون‌های سیلاب‌زنی درون میکرومدل شیشه‌ای بلافاصله پس از تهیه نانوسیالات، انجام شده‌اند و این آزمون‌ها کمتر از ۶ ساعت به طول انجامیده‌اند، عدم پایداری این ذرات مشکلی در نتایج ضریب برداشت نهایی نفت درون میکرومدل شیشه‌ای به وجود نخواهد آورد. این نانوسیال‌ها با نرخ تزریق ۰/۰۷ میلی‌لیتر در ساعت با استفاده از پمپ سرنگی به درون میکرومدل تزریق می‌شود و این فرایند تزریق تا حجم منافذ نیز ادامه می‌یابد. این نکته حائز اهمیت است که نحوه قرارگیری میکرومدل باید به صورت افقی باشد تا نیروی گرانش بر نتایج ضریب برداشت نفت بی‌تأثیر باشد. پس از اتمام آزمون‌ها نتایج ضریب برداشت نفت با استفاده از آزمون عکس‌ها به کمک نرم‌افزار فتوشاپ مورد ارزیابی قرار گرفت.

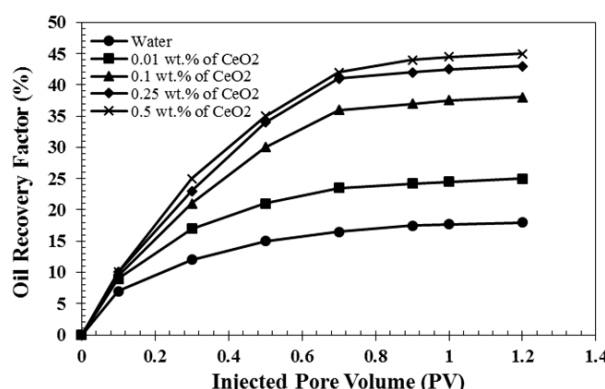
نتایج و بحث

اثر تزریق نانوذرات سریم اکسید بر ضریب برداشت نفت

به منظور مطالعه قابلیت نانوذرات سریم اکسید

کربناته است استفاده شد که مشخصات آن در جدول ۲ ارائه شده است. این مدل مزایای مختلفی از قبیل امکان مطالعه مشاهده‌ای، امکان ساخت و استفاده از محیط‌های متخلخل گوناگون و شبه‌واقعی، کوتاه بودن مدت زمان انجام آزمایش، استفاده کم‌تر از حجم سیال مخزن و سیال تزریقی، امکان تکرار آزمایش‌ها و امکان بررسی وقایع و سازوکار جابه‌جایی فازها در محیط‌های متخلخل گوناگون در مقیاس حفره دارد [۳۰].

با توجه به اینکه اکثر مخازن نفتی دارای سنگ مخزن نفت‌دوست هستند، قبل از انجام هر آزمون سیلاب‌زنی، میکرومدل شیشه‌ای باید نفت‌دوست شود. به منظور نفت‌دوست کردن میکرومدل در مرحله اول، میکرومدل با محلول سدیم هیدروکسید کاملاً اشباع شده و پس از گذشت ۱ ساعت توسط آب‌وهوا به منظور تمیز شدن خلل و فرج، شسته می‌شود. سپس میکرومدل به مدت ۳۰ دقیقه در دمای ۱۰۰ درجه سانتی‌گراد در آون قرار می‌گیرد تا کاملاً خشک شود. در مرحله بعد محلول تهیه‌شده ۲ درصد سیلان و ۹۸ درصد تولوئن را به میکرومدل تزریق و پس از گذشت ۵ دقیقه بلافاصله با متانول شسته و دوباره در آون قرار داده می‌شود. پس از اتمام این مراحل، میکرومدل برای تزریق سیال آماده است.



شکل ۳ نتایج ضریب برداشت نفت بر اساس حجم منافذ سیال تزریقی
Figure 3. Results of oil recovery coefficient based on the pore volume of the injected fluid

در فرایند ازدیاد برداشت نفت از سامانه سیلاب‌زنی میکرومدل استفاده شد. در این مرحله از پژوهش، تزریق آب به تنهایی صورت گرفت تا اثر اضافه‌کردن نانوذرات سریم اکسید به این سیال بر ضریب برداشت نفت مورد مطالعه قرار گیرد. همچنین نانوذرات سریم اکسید در چهار غلظت ۰/۰۱، ۰/۱، ۰/۲۵ و ۰/۵ درصد وزنی در سیال آب تهیه و به درون میکرومدل تزریق شدند. نتایج ضریب برداشت نفت در این ۵ آزمایش بر اساس حجم منافذ سیال تزریقی در شکل ۳ نشان داده شده است. همان‌طور که در شکل ۳ قابل مشاهده است، با تزریق آب درون میکرومدل شیشه‌ای، نقطه شکست

پس از اتمام فرایند نفت‌دوست کردن میکرومدل، ابتدا باید با استفاده از پمپ خلأ هوای موجود در میکرومدل را تخلیه کرد. با این کار می‌توان از به تله افتادن حباب‌های هوا درون محیط متخلخل جلوگیری کرد [۳۱]. در ادامه میکرومدل به‌طور کامل از نفت نمونه شماره ۲ اشباع می‌شود. سپس، سیال تزریقی از پخش شدن نانوذره سریم اکسید در آب دی‌یونیزه تهیه شده است که غلظت‌های در نظر گرفته شده برای این نانوسیال ۰/۰۱، ۰/۱، ۰/۲۵ و ۰/۵ درصد وزنی است. در این پژوهش، پایداری نانوذرات به صورت کیفی (مشاهده میزان رسوب نانوذرات در گذر زمان) مورد

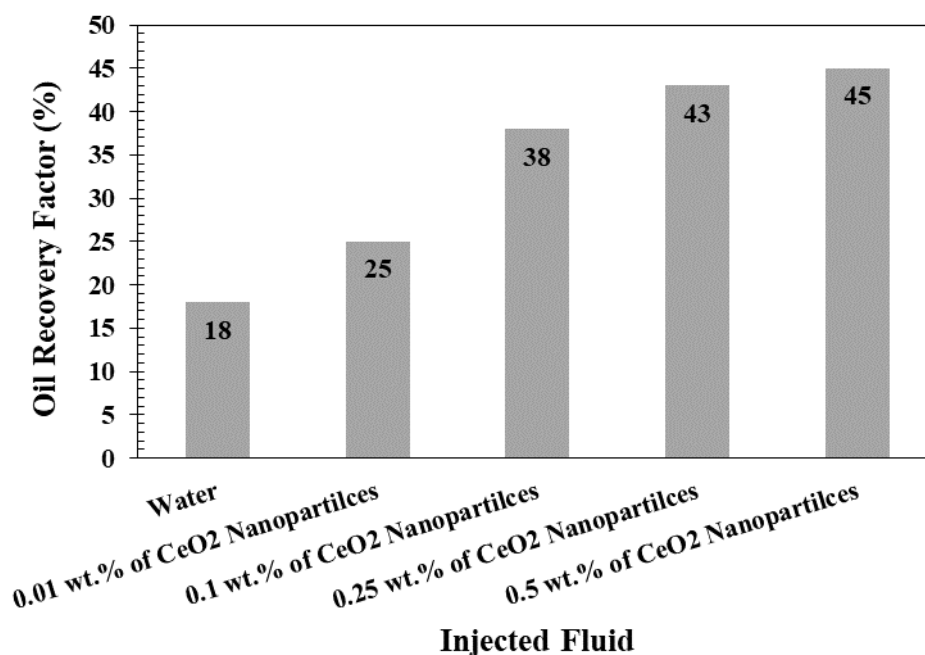
اما در غلظت‌های بالاتر از نانوذرات، احتمال رسوب ذرات و گرفتگی خلل و فرج درون میکرومدل افزایش می‌یابد که خود باعث کاهش توانایی سیال تزریقی برای برداشت نفت از مخازن می‌شود.

در غلظت ۰/۱ درصد وزنی به یکباره ضریب برداشت نفت مقدار زیادی افزایش می‌یابد. اما این موضوع را باید در نظر گرفت که در غلظت ۰/۵ درصد وزنی میزان درآمد به دست آمده ناشی از فروش نفت استخراج شده بسیار بیشتر از هزینه افزایش غلظت سیال پایه از ۰/۱ به ۰/۵ درصد وزنی است. ضریب نهایی برداشت نفت برای تمامی ۵ اجرای انجام شده در شکل ۴ نشان داده شده است.

بررسی نحوه حرکت سیال تزریقی در محیط متخلخل

یکی از مزایای استفاده از میکرومدل شیشه‌ای، امکان مشاهده نحوه حرکت سیال درون محیط متخلخل و مطالعه برهم کنش‌های سطحی مانند رسوب نانوذرات

سیال تزریقی بسیار زود اتفاق می‌افتد و تنها ۱۸ درصد از نفت درون میکرومدل برداشت می‌شود. در ادامه با اضافه کردن اندکی از نانوذرات سریم اکسید به آب در غلظت ۰/۰۱ درصد وزنی، ضریب برداشت نفت به میزان قابل توجهی افزایش می‌یابد و به ۲۵ درصد نفت در جای درون میکرومدل می‌رسد که افزایشی در حدود ۷ درصد بهبود ضریب برداشت نفت را نشان می‌دهد. نتایج نشان می‌دهد که با افزایش غلظت نانوذرات در سیال پایه، ضریب برداشت نفت هم افزایش می‌یابد. به طوری که برای نانوسیال‌های با غلظت ۰/۱، ۰/۲۵ و ۰/۵ درصد وزنی ضریب برداشت نفت به ترتیب برابر ۳۸٪، ۴۳٪ و ۴۵٪ شده است. همان‌طور که مشخص است با افزایش غلظت نانو ذرات از ۰/۰۱ درصد وزنی به ۰/۱ درصد وزنی، ضریب برداشت نفت در حدود ۱۳ درصد افزایش می‌یابد که میزان قابل توجهی است. این بهبود برداشت نفت تا غلظت ۰/۲۵ درصد وزنی نیز از روند خوبی پیروی می‌کند. اما با افزایش غلظت نانوذرات از ۰/۲۵ درصد وزنی به ۰/۵ درصد وزنی، ضریب

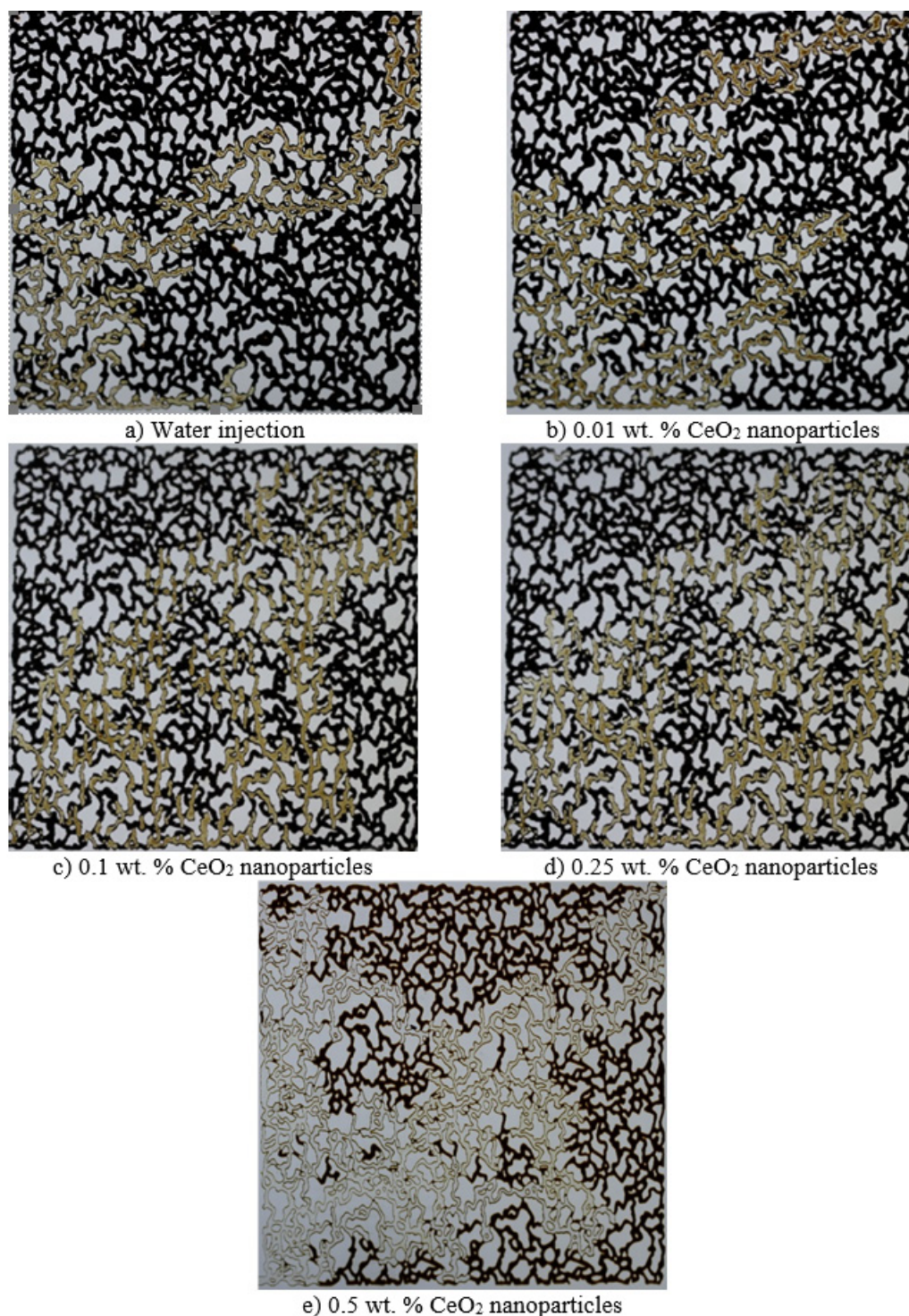


شکل ۴ نتایج ضریب نهایی برداشت نفت
Figure 4. Results of the final oil recovery coefficient

در خلل و فرج و توانایی سیال تزریقی برای حذف لایه نفتی چسبیده به خلل و فرج سنگ مخزن یا به عبارتی بررسی به تله افتادگی قطرات نفت درون محیط متخلخل است. بنابراین در شکل ۵ نحوه حرکت سیال تزریق درون میکرومدل، برای تمامی ۵ آزمایش انجام شده در حالت ضریب برداشت نهایی نفت نشان داده شده است.

همان‌طور که در شکل ۵ قابل مشاهده است، با اضافه کردن نانوذرات سریم اکسید به آب، خواص سیال تزریقی (آب) مانند چگالی و گرانیروی تغییر پیدا

برداشت نفت تنها در حدود ۲ درصد افزایش یافته است. این موضوع به این دلیل است که با افزایش غلظت نانوذرات در سیال پایه، از مقدار بهینه به بعد احتمال رسوب ذرات درون میکرومدل افزایش می‌یابد و در ضمن اثر نانوذرات بر تغییر خواص هیدرودینامیکی سیال تزریقی و سازوکارهای بهبود برداشت نفت کاهش می‌یابد. به عنوان مثال اثر غلظت‌های ۰/۲۵ و ۰/۵ درصد وزنی از نانوذرات سریم اکسید بر تغییر ترشوندگی نفت تفاوت زیادی با یکدیگر نخواهد کرد.



شکل ۵ نحوه حرکت سیال تزریقی درون میکرومدل شیشه‌ای در ۵ اجرای انجام شده
Figure 5. Movement of the injected fluid inside the glass micro model in 5 performances

نانوذرات سریم اکسید درون آب، پدیده انگشتی شدن کمتر اتفاق افتاده است و در نتیجه ضریب برداشت نفت هم افزایش یافته است. به عبارتی با توجه به تعریف رابطه (۱)، نسبت پویایی را می‌توان به عنوان حاصل ضرب نسبت‌های نفوذپذیری نسبی و گرانی دو سیال جابه‌جاشونده و جابه‌جاکننده بیان کرد.

می‌کند. بنابراین نسبت پویایی سیال تزریقی بر میزان بهینه تنظیم می‌شود. در نتیجه حرکت سیال تزریقی تهیه شده درون میکرومدل شیشه‌ای بهبود می‌یابد و به تبع آن سطح تماس بیشتری از میکرومدل در تماس با سیال تزریقی خواهد بود. در این شرایط نفت بیشتری را می‌توان از محیط متخلخل برداشت کرد. به همین خاطر ضریب برداشت نفت افزایش پیدا می‌کند. همچنین همان‌طور که مشخص است، با افزایش غلظت

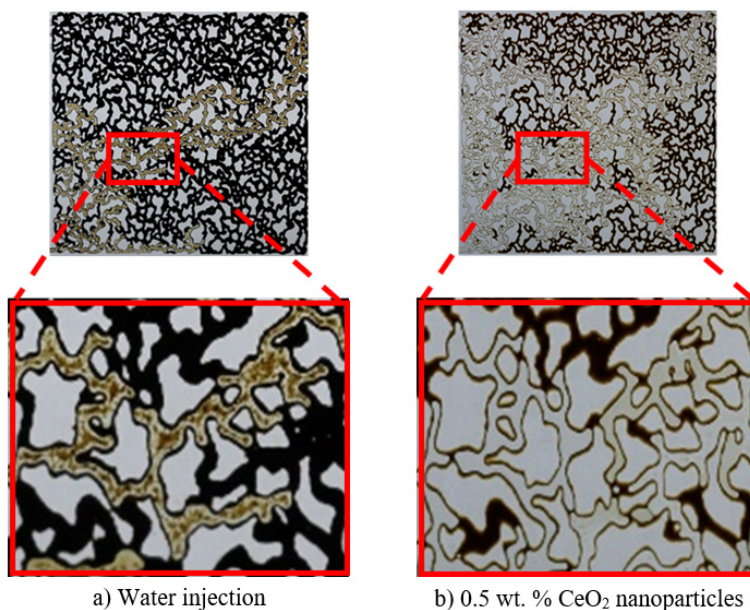


Figure 6. Microscopic images of a specific part of a glass micromodel
(شکل ۶ تصاویر میکروسکوپی از میکرومدل شیشه‌ای (بزرگنمایی ۵ برابر)

نفت به‌خوبی از دیواره خلل و فرج میکرومدل شیشه‌ای جدا شده است. این موضوع می‌تواند به توانایی بالای این نانوذرات برای تغییر ترشوندگی برگردد. زیرا در این حالت نانوذرات با ایجاد فشار جدایشی (Disjoining Pressure) پیرامون قطرات نفت چسبیده به دیواره، این قطرات را از دیواره جدا می‌کنند. در این حالت میزان به تله افتادن نفت کاهش می‌یابد و به تبع آن ضریب برداشت نفت افزایش خواهد یافت.

نتیجه‌گیری

در این پژوهش، هدف اصلی بررسی کارایی روش سنتز نانوذرات سریم اکسید به‌صورت درجا در فرایند ازدیاد برداشت نفت است. به همین منظور اثر تزریق آب به تنهایی و اثر نانوسیال‌های تهیه شده در غلظت‌های مختلف بر ضریب برداشت نفت مورد مطالعه قرار گرفت. نتایج نشان داد که با تزریق آب درون میکرومدل شیشه‌ای، نقطه شکست سیال تزریقی بسیار زود اتفاق می‌افتد و ضریب برداشت نفت افزایش چشمگیری ندارد؛ ولی با اضافه کردن نانوذرات سریم اکسید به آب ضریب برداشت نفت افزایش می‌یابد. همچنین با افزایش غلظت نانوذرات سریم اکسید درون آب، پدیده انگشتی شدن کمتر اتفاق می‌افتد و ضریب برداشت نفت نیز افزایش می‌یابد. این نکته حائز اهمیت است که با افزایش غلظت نانوذرات در سیال پایه از مقدار بهینه به بعد احتمال رسوب ذرات درون میکرومدل افزایش می‌یابد و در ضمن اثر نانوذرات بر تغییر خواص هیدرودینامیکی سیال تزریقی و سازوکارهای بهبود برداشت نفت کاهش می‌یابد. علاوه بر این نانوذرات سریم اکسید توانایی خوبی برای جدایش قطرات نفت چسبیده به دیواره محیط متخلخل و کاهش میزان

$$M = \left(\frac{\mu_o}{\mu_i} \right) \left(\frac{k_{ri}}{k_{ro}} \right) \quad (1)$$

که M معرف نسبت پویایی، μ_i برابر گرانیوی سیال تزریقی، μ_o برابر گرانیوی نفت، k_{ri} بیانگر نفوذپذیری نسبی سیال تزریقی و k_{ro} بیانگر نفوذپذیری نسبی نفت درون محیط متخلخل است. همان‌طور که در این معادله مشاهده می‌شود، با افزایش گرانیوی سیال تزریقی (μ_i) به دلیل افزودن نانوذرات به آب، نسبت پویایی کاهش می‌یابد. بنابراین، نسبت پویایی را می‌توان از مقدار نامطلوب ($M < 1$) به مقدار مطلوب ($M \geq 1$) تغییر داد. به این معنی که فاز جابه‌جاشده (نفت) تحرک بیشتری نسبت به فاز جابجاکننده (سیال تزریقی) دارد. بنابراین، مقدار نفت بیشتری می‌تواند از محیط متخلخل تولید شود.

به منظور مطالعه توانایی سیال تزریقی برای حذف لایه نفتی چسبیده به خلل و فرج سنگ مخزن یا به عبارتی به تله افتادگی قطرات نفت درون محیط متخلخل، تصاویر میکروسکوپی از میکرومدل شیشه‌ای از قسمت مشخص در حالت‌های تزریق آب و تزریق نانوسیال حاوی ۰/۵ درصد وزنی نانوذرات سریم اکسید در شکل ۶ نشان داده شده است.

همان‌طور که در شکل ۶ (الف) نشان داده شده است در حالت تزریق آب، سیال تزریقی نتوانسته است که نفت را از دیواره‌های میکرومدل شیشه‌ای به‌خوبی جدا کند. به عبارتی میزان به تله افتادن نفت در حالت تزریق آب بسیار زیاد است و ضریب برداشت نفت در این حالت بسیار اندک خواهد بود. اما در حالت تزریق نانوسیال حاوی نانوذرات سریم اکسید (شکل ۶ (ب))،

به تله افتادگی نفت خام حین فرایند سیلاب زنی دارند.

با وجود تلاش‌ها و مطالعات انجام شده در حوزه سنتز درجای نانوذرات، بسیاری از جوانب این موضوع تاکنون بررسی نشده است و چالش‌هایی پیش روی این روش است که به منظور عملیاتی کردن این روش در میادین واقعی باید مورد توجه و بررسی محققین قرار گیرند. اثر نانوذرات سنتز شده بر میزان جذب آسفالتین درون مخازن نفتی، کاهش کشش بین سطحی، تغییر ترشوندگی سنگ مخزن و گرانیروی نفت مطالعه نشده است. اثر مورفولوژی نانوذرات سریم اکسید بر ضریب برداشت نفت (مکعبی یا کروی) مورد توجه قرار نگرفته است. روش مناسبی برای بهبود پایداری ذرات سنتز شده ارائه نشده است و اثر نوع و میزان نمک حل شده درون

سیال تزریقی بر پایداری این نانوذرات نیازمند بررسی کاملی است. به منظور انجام مطالعه دقیق و نزدیک به شرایط واقعی مخزن نفتی، باید از محیط‌های واقعی تر نظیر سندپک و مغزه برای انجام واکنش سنتز نانوذرات سریم اکسید استفاده شود تا اثر حضور سنگ مخزن نیز بر نحوه سنتز درجای نانوذرات بررسی شود. این روش تاکنون برای نانوذرات اندکی مورد استفاده قرار گرفته است و روش سنتز درجای دیگر نانوذرات مانند سیلیکا یا خاک رسی و ارائه روش بهینه برای سنتز آنها مورد مطالعه قرار نگرفته است.

مراجع

- [1] Hashemi R., Nassar N.N. and Pereira Al-mao P., Nanoparticle Technology for Heavy Oil In-Situ Upgrading and Recovery Enhancement: Opportunities and Challenges, *Applied Energy*, 133, 374–387, 2014.
- [2] Liu H., Jin X. and Ding B., Application of Nanotechnology in Petroleum Exploration and Development, *Petroleum Exploration Development*, 43(6), 1107–1115, 2016.
- [3] Agista M.N., Guo K. and Yu Z., A State-of-The-Art Review of Nanoparticles Application in Petroleum With a Focus on Enhanced Oil Recovery, *Applied Sciences*, 8 (6), 871, 2018.
- [4] Panchal H., Patel H., Patel J. and Shah M., A Systematic Review on Nanotechnology in Enhanced Oil Recovery, *Petroleum Research*, 2021.
- [5] Kazemzadeh Y., Shojaei S., Riazi M. and Sharifi M., Review on Application of Nanoparticles for EOR Purposes: A Critical Review of The Opportunities and Challenges, *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 27, 237–246, 2019.
- [6] Tohidi Z., Teimouri A., Jafari A., Gharibshahi R. and Omidkhah M.R., Application of Janus Nanoparticles in Enhanced Oil Recovery Processes: Current Status and Future Opportunities, *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 208, 109602, 2022.
- [7] Khoramian R., Kharrat R. and Golshokoh S., The Development of Novel Nanofluid for Enhanced Oil Recovery Application, *Fuel*, 311, 122558, 2022.
- [8] Chaudhuri R.G. and Paria S., The Wettability of PTFE and Glass Surfaces by Nanofluids, *Journal of Colloid and Interface Science*, 434, 141–151, 2014.
- [9] Bayat A.E., Junin R., Shamsirband S. and Chong W.T., Transport and Retention of Engineered Al₂O₃, TiO₂ and SiO₂ Nanoparticles Through Various Sedimentary Rocks, *Scientific Reports*, 5(1), 1–12, 2015.
- [10] Soleimani H., Yahya N., Baig M.K., Khdapanah L., Catalytic Effect of Zinc Oxide Nanoparticles on Oil-Water Interfacial Tension, *Digest Journal of Nanomaterials and Biostructures*, 11(1), 263–269, 2016.
- [11] Babayekhorasani F., Dunstan D.E., Krishnamoorti R. and Conrad J.C., Nanoparticle Dispersion in Disordered Porous Media With and Without Polymer Additives, *Soft Matter*, 12(26), 5676–5683, 2016.
- [12] Ju B. and Fan T., Experimental Study and Mathematical Model of Nanoparticle Transport in Porous Media, *Powder Technology*, 192(2), 195–202, 2009.
- [13] Chen M., Li C., Li G.R., Chen Y.L. and Zhou C.G., In Situ Preparation of Well-Dispersed CuO Nanocatalysts in Heavy Oil for Catalytic Aquathermolysis, *Petroleum Science*, 16(2), 439–446, 2019.
- [14] Javad Nazarahari M., Khaksar A., Moradi S., Synthesis, Characterization, and Assessment of a CeO₂@ Nanoclay Nanocomposite for Enhanced Oil Recovery, *Nanomaterials*, 10(11), 2280, 2020.
- [15] Mai H.-X., Sun L., Zhang Y.-W., Shape-Selective Synthesis and Oxygen Storage Behavior of Ceria Nanopolyhedra, Nanorods, and Nanocubes, *The Journal of Physical Chemistry B*, 109(51), 24380–24385, 2005.
- [16] Giraldo J., Benjumea P., Lopera S., Cortés F.B. and Ruiz M.A., Wettability Alteration of Sandstone Cores by Alumina-Based Nanofluids, *Energy & Fuels*, 27(7), 3659–3665, 2013.
- [17] Hendraningrat L., Li S. and Torsæter O., A Coreflood Investigation of Nanofluid Enhanced Oil Recovery, *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 111, 128–138, 2013.
- [18] Hashemi R., Nassar N.N. and Pereira Al-mao P., Enhanced Heavy Oil Recovery by In Situ Prepared Ultradispersed Multimetallic Nanoparticles: A Study of Hot Fluid Flooding for Athabasca Bitumen Recovery, *Energy and Fuels*, 27(4), 2194–2201, 2013.
- [19] Abdrabo A.E. and Husein M.M., Method for Converting Demetallization Products into Dispersed Metal Oxide Nanoparticles in Heavy Oil, *Energy and Fuels*, 26(2), 810–815, 2012.
- [20] Amrollahi Biyouki A., Hosseinpour N., Bahramian A. and Vatani A., In-Situ Upgrading of Reservoir Oils by In-Situ Preparation of NiO Nanoparticles in Thermal Enhanced Oil Recovery Processes, *Colloids and Surfaces A Physicochemical Engineering and Aspects*, 520, 289–300, 2017.
- [21] Amrollahi Biyouki A., Hosseinpour N. and Nassar N.N., Pyrolysis and Oxidation of Asphaltene-Born Coke-Like Residue Formed onto In Situ Prepared NiO Nanoparticles Toward Advanced In Situ Combustion Enhanced Oil Recovery Processes, *Energy & Fuels*, 32(4), 5033–5044, 2018.

- [22] Tarboush B.J.A. and Husein M.M., Dispersed Fe₂O₃ Nanoparticles Preparation in Heavy Oil and Their Uptake of Asphaltenes, *Fuel Processing Technology*, 133, 120–127, 2015.
- [23] Abu Tarboush B.J. and Husein M.M., Adsorption of Asphaltenes from Heavy Oil onto In Situ Prepared NiO Nanoparticles, *Journal of Colloid and Interface Science*, 378(1), 64–69, 2012.
- [24] Zhang X. and Klabunde K.J., Superoxide (O₂⁻) on the Surface of Heat-Treated Ceria. Intermediates in The Reversible Oxygen to Oxide Transformation, *Inorganic Chemistry*, 31(9), 1706–1709, 1992.
- [25] Trovarelli A., Catalytic Properties of Ceria and CeO₂-Containing Materials, *Catalysis Reviews*, 38(4), 439–520, 1996.
- [26] Yao H.C. and Yao Y.F.Y., Ceria in Automotive Exhaust Catalysts: I. Oxygen Storage, *Journal of Catalysis*, 86(2), 254–265, 1984.
- [27] Zhou K., Wang X., Sun X., Peng Q. and Li Y., Enhanced Catalytic Activity of Ceria Nanorods from Well-Defined Reactive Crystal Planes, *Journal of Catalysis*, 229(1), 206–212, 2005.
- [28] Skorodumova N.V, Baudin M. and Hermansson K., Surface Properties of CeO₂ from First Principles, *Physical Review B*, 69(7), 75401, 2004.
- [29] Mehrooz N., Jafari A., Gharibshahi R., Delavari H.H. and Sadeghnejad S., In-Site Synthesis of Cerium Oxide Nanoparticles to Increase Oil Recovery Factor from Oil Reservoirs, 17th Iranian National Congress of Chemical Engineering, 2020.
- [30] Gharibshahi R., Omidkhah M.R., Jafari A., Hybridization of Superparamagnetic Fe₃O₄ Nanoparticles with MWCNTs and Effect of Surface Modification on Electromagnetic heating process efficiency, 282, 118603, 2020.
- [31] Cheraghian G., Kiani S., Nassar N.N., Alexander S. and Barron A.R., Silica Nanoparticle Enhancement in The Efficiency of Surfactant Flooding of Heavy Oil in a Glass Micromodel, *Industrial Engineering Chemistry Research*, 56(30), 8528–8534, 2017.