

## Применение микро- и нанофлюидных технологий в задачах увеличения нефтеотдачи\*

**А.В. Минаков<sup>1</sup>**, к.ф.-м.н., **М.И. Пряжников<sup>1</sup>**, **А.И. Пряжников<sup>1</sup>**,  
**А.С. Якимов<sup>1</sup>**, **И.А. Денисов<sup>1</sup>**, **А.С. Лобасов<sup>1</sup>**, к.ф.-м.н.,  
**И.В. Немцев<sup>2</sup>**, **В.Я. Рудяк<sup>1,3</sup>**, д.ф.-м.н., проф.

<sup>1</sup> Сибирский федеральный университет, г. Красноярск

<sup>2</sup> Федеральный исследовательский центр «Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук», г. Красноярск  
Aminakov@sfu-kras.ru

<sup>3</sup> Новосибирский государственный архитектурно-строительный университет (Сибстрин), г. Новосибирск

Проведено исследование процесса вытеснения нефти наносuspензией с использованием микрофлюидного чипа. Показано, что с ростом концентрации наночастиц коэффициент вытеснения нефти растет. Значительный эффект наблюдается при 0,125 мас. % концентрации наночастиц. Максимальное зафиксированное приращение коэффициента вытеснения по сравнению с водой составило около 60 %. Результаты лабораторных исследований на микрофлюидных чипах качественно согласуются с результатами лабораторных экспериментов по вытеснению нефти наносuspензиями на образцах кернa. Существенными преимуществами микрофлюидных исследований являются визуализация процессов вытеснения нефти из модели пористой среды, простая очистка и возможность многократного использования микрофлюидного чипа. Микрофлюидная технология имеет большой потенциал для лабораторных исследований эффективности разрабатываемых составов для увеличения нефтеотдачи.

\* Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда в рамках проекта № 17-79-20218П (исследование свойств наносuspензий), а также в рамках государственного задания ФГАОУ ВО Сибирский федеральный университет (номер FSRZ-2020-0012). Авторы также благодарны Красноярскому региональному центру коллективного пользования ФИЦ КНЦ СО РАН за характеризацию наночастиц и выполнение электронной микроскопии.

ENG

## Application of Micro- and Nano-Fluid Processes to Enhance Oil Recovery

A.V. Minakov<sup>1</sup>, PhD, M.I. Pryazhnikov<sup>1</sup>,  
A.I. Pryazhnikov<sup>1</sup>, A.S. Yakimov<sup>1</sup>, I.A. Denisov<sup>1</sup>,  
A.S. Lobasov<sup>1</sup>, I.V. Nemtsev<sup>2</sup>, V.Ya. Rudyak<sup>1,3</sup>

<sup>1</sup> Siberian Federal University, Krasnoyarsk

<sup>2</sup> - Federal Research Center "Krasnoyarsk Scientific Center at Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences", Krasnoyarsk

<sup>3</sup> Novosibirsk State University on Architecture and Civil Engineering (Sibstrin), Novosibirsk

The authors of the paper have conducted the study of oil displacement processes by nano-suspension using a micro-fluid chip. They have illustrated that with the growth in concentration of nanoparticles, the oil displacement factor is also increasing. A significant effect is observed at 0,125 % (wt.) concentration of nanoparticles. The maximum recorded increment in displacement factor when compared to water was about 60%. The results of lab studies using micro-fluid chips are qualitatively consistent with the results of lab experiments with oil displacement from core samples by nano-suspensions. The essential advantages of micro-fluid studies are the visualization of oil displacement processes from the model of porous medium, simple cleaning and the possibility to have repeated application of micro-fluid chip. Micro-fluid technology has great potential to study the efficiency of the developed formulations in enhancing oil recovery.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** микрофлюидная технология для увеличения нефтеотдачи, вытеснение нефти наносuspензией, использование микрофлюидных чипов в исследованиях процесса вытеснения нефти, коэффициент межфазного натяжения на границе «нефть – вытесняющая жидкость», краевой угол смачивания системы «вытесняющая жидкость – нефть – поверхность», влияние концентрации наночастиц на коэффициент вытеснения нефти

**KEY WORDS:** micro-fluid technology to increase oil recovery, oil displacement by nano-suspension, use of micro-fluid chips in studies of oil displacement process, interfacial tension coefficient at "oil – displacing liquid" boundary, the wetting angle of "displacing liquid – oil – surface" system, the effect of nano-particle concentration on oil displacement factor

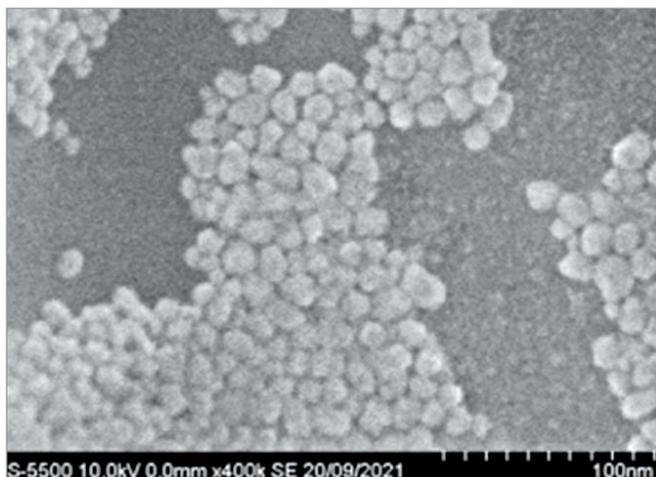
Традиционно методы увеличения нефтеотдачи разрабатываются путем проведения лабораторных фильтрационных экспериментов по заводнению кернов. Фильтрационные исследования на керне дают некоторую информацию о кинетике и количестве вытесненной нефти, однако имеют ряд недостатков, например, сложность и длительность проведения испытаний, отсутствие наблюдения за механизмом и явлениями, происходящими на микроуровне пор, а также воспроизводимость результатов. В качестве альтернативы исследованиям на керне в последние годы интенсивно развиваются микрофлюидные исследования. Развитие микрофлюидики связано со значительными успехами в уменьшении размеров устройств и в улучшении их технических характеристик. Современные микрофлюидные устройства, в которых характерный размер каналов составляет от единиц до сотен микрометров, используются в качестве микрореакторов для смешивания и синтеза, микросепараторов частиц, компонентнов охлаждения МЭМС, микросенсоров для контроля окружающей среды [1]. Микрофлюидные модели пористой среды (микрочипы) активно применяются в исследованиях по увеличению нефтеотдачи [2–3]. Преимуществами микрофлюидного исследования по сравнению с обычными методами лабораторного заводнения являются отличная визуализация процессов вытеснения нефти из модели пористой среды, простая очистка и возможность многократного использования микрофлюидного чипа, широкий диапазон температуры и давления при проведении исследований, отличная химическая совместимость. Поэтому применение микрофлюидных технологий для лабораторных исследований методов увеличения нефтеотдачи будет интенсивно развиваться.

Еще одной перспективной технологией, которая может дать значительный эффект от внедрения, является использование наносuspензий для увеличения нефтеотдачи при заводнении пласта. Об этом свидетельствуют появившиеся в последние годы работы, в основном зарубежные, в которых указывается, что применение наносuspензий может су-

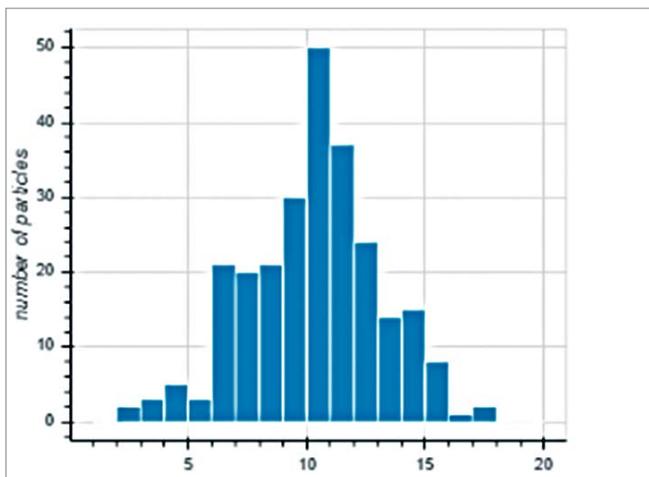
щественно повысить объемы извлечения нефти из пласта [4–5]. Несмотря на то, что этот вопрос в настоящее время интенсивно изучается в лабораторных исследованиях на керне, механизмы влияния добавки наночастиц на увеличение коэффициента вытеснения нефти еще до конца не изучены. Наш коллектив для изучения особенностей вытеснения нефти наносuspензиями на микроуровне апробировал микрофлюидную технологию «lab-on-chip».

Было рассмотрено около десятка суспензий наночастиц оксида кремния на водной основе. В отличие от исследований, проведенных нами ранее, в которых наносuspензии готовились из сухих нанопорошков, в данной работе впервые были рассмотрены разбавленные силиказолы, предоставленные для исследований компанией «РусСилика». Массовая концентрация наночастиц  $\varphi$  в суспензиях варьировалась от 0,125 до 2 мас. %. Электронно-микроскопические исследования показали, что наночастицы имеют сферическую форму, размер первичных частиц составляет 10 нм. Распределение наночастиц по размерам в рассматриваемой суспензии достаточно узкое (рис. 1). Анализ седиментационных экспериментов показал, что рассмотренные наносuspензии, полученные разбавлением силиказолой, обладают очень высокой коллоидной устойчивостью. Суспензии остаются устойчивыми в течение нескольких месяцев после их приготовления. Это выгодно отличает их от исследованных нами ранее наносuspензий, приготовленных из сухих порошков двухшаговым методом.

Вначале было изучено влияние силиказоля на межфазное натяжение  $\sigma$  на границе «нефть – вытесняющая жидкость» и краевой угол смачивания  $\theta$  системы «вытесняющая жидкость – нефть – поверхность» (рис. 2). Показано, что с увеличением концентрации наночастиц межфазное натяжение на границе «нефть – наносuspензия» снижается, и довольно значительно. Так, добавка 2 мас. % наночастиц снижает межфазное натяжение более чем в два раза. С увеличением концентрации наночастиц в воде краевой угол для капли нефти возрастает, при этом тоже весьма существенно – с 115° до 155°.



**а**



**б**

**Рис. 1.** Распределение наночастиц по размерам:

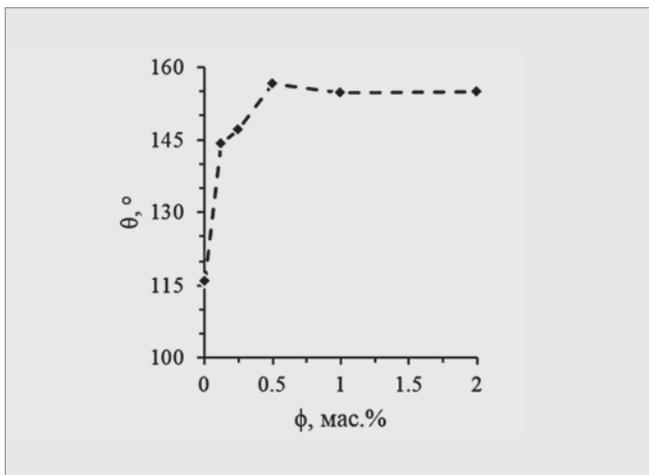
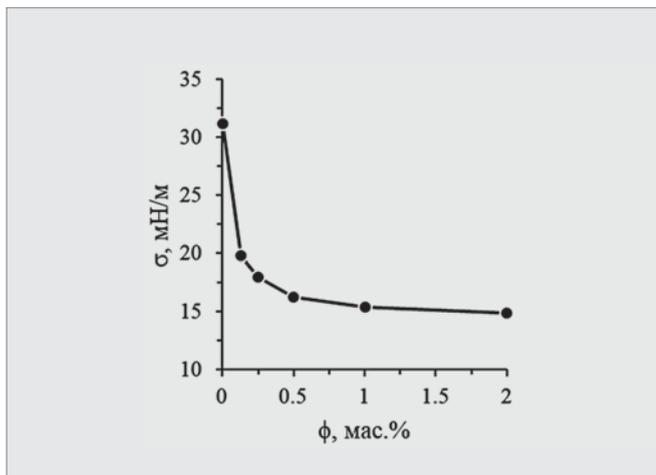
а – электронная микрофотография наночастиц. Увеличение x400k; б – гистограмма распределения наночастиц по размерам, нм

Таким образом, показано, что добавка наночастиц в жидкость ухудшает смачиваемость горной породы нефтью. Влияние добавки наночастиц на смачиваемость горной породы нефтью начинается уже при достаточно малых их концентрациях.

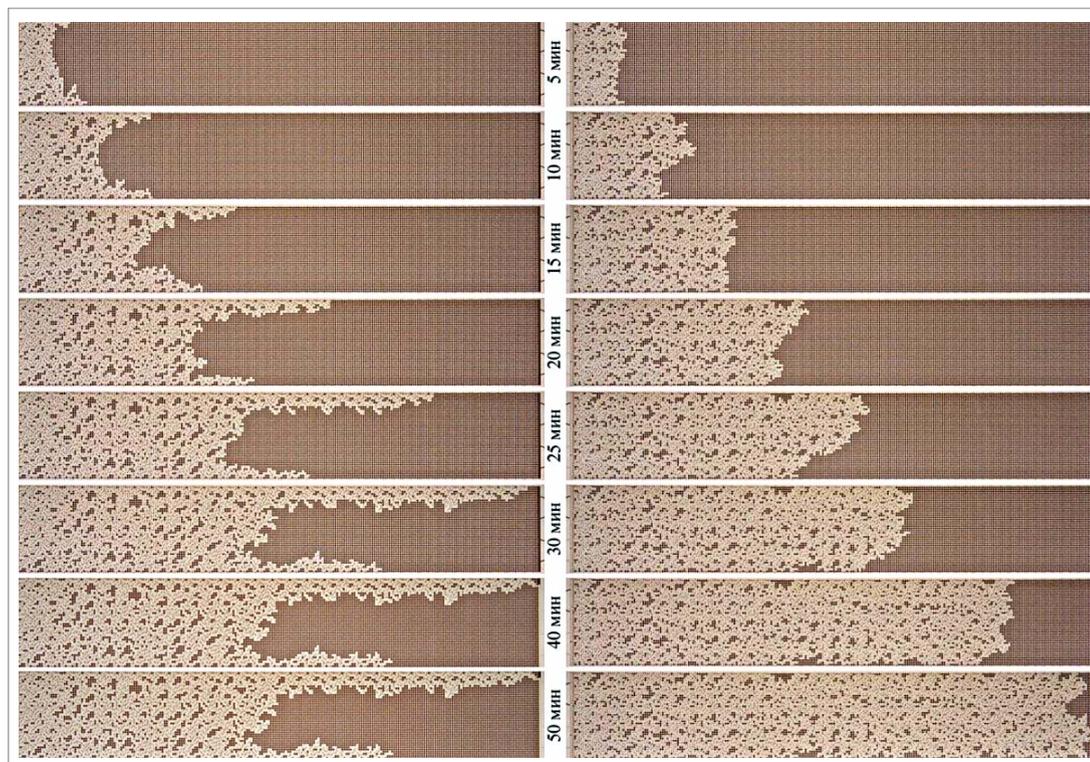
На микрофлюидной модели пористой среды из кварцевого стекла проведено систематическое исследование влияния добавки наночастиц на эффективность вытеснения нефти с помощью различных наносуспензий. В работе использовался микрофлюидный чип (Dolomite: 3200284), позволяющий моделировать сложную пористую структуру горной породы. Пористая область чипа имеет размер 10×60 мм×мм. Пористая область формируется сетью микроканалов. Каналы имеют сужения, или «поры», которые распределены случайным образом, чтобы имитировать естественную структуру породы. Сетка содер-

жит 38 пор с  $\varnothing 63$  мкм, 40 пор с  $\varnothing 85$  мкм и 50 прямых каналов. В работе использовалась нефть с плотностью  $851 \text{ кг}\cdot\text{м}^{-3}$  и вязкостью  $24,6 \text{ мПа}\cdot\text{с}$  при комнатной температуре.

Проведено исследование заводнения микрофлюидной модели рассматриваемыми наносуспensionями. Как видно из **рис. 3**, картины вытеснения водой и наносуспensionей существенно отличаются. Фронт вытеснения для воды движется в виде отдельных струй, преимущественно в пристеночной области, из-за этого вода достаточно быстро прорывается к выходу из микромодели. После прорыва воды течение устанавливается и коэффициент вытеснения нефти в дальнейшем практически не изменяется. При этом большая часть порового пространства микромодели остается не охваченной течением воды и заполнена нефтью. Фронт вытеснения для наносуспensionей



**Рис. 2.** Зависимость контактного угла смачивания и коэффициента межфазного натяжения от массовой концентрации наночастиц



**Рис. 3.** Фотографии вытеснения образца нефти водой (левые рисунки) и наносуспensionей 2 мас. %

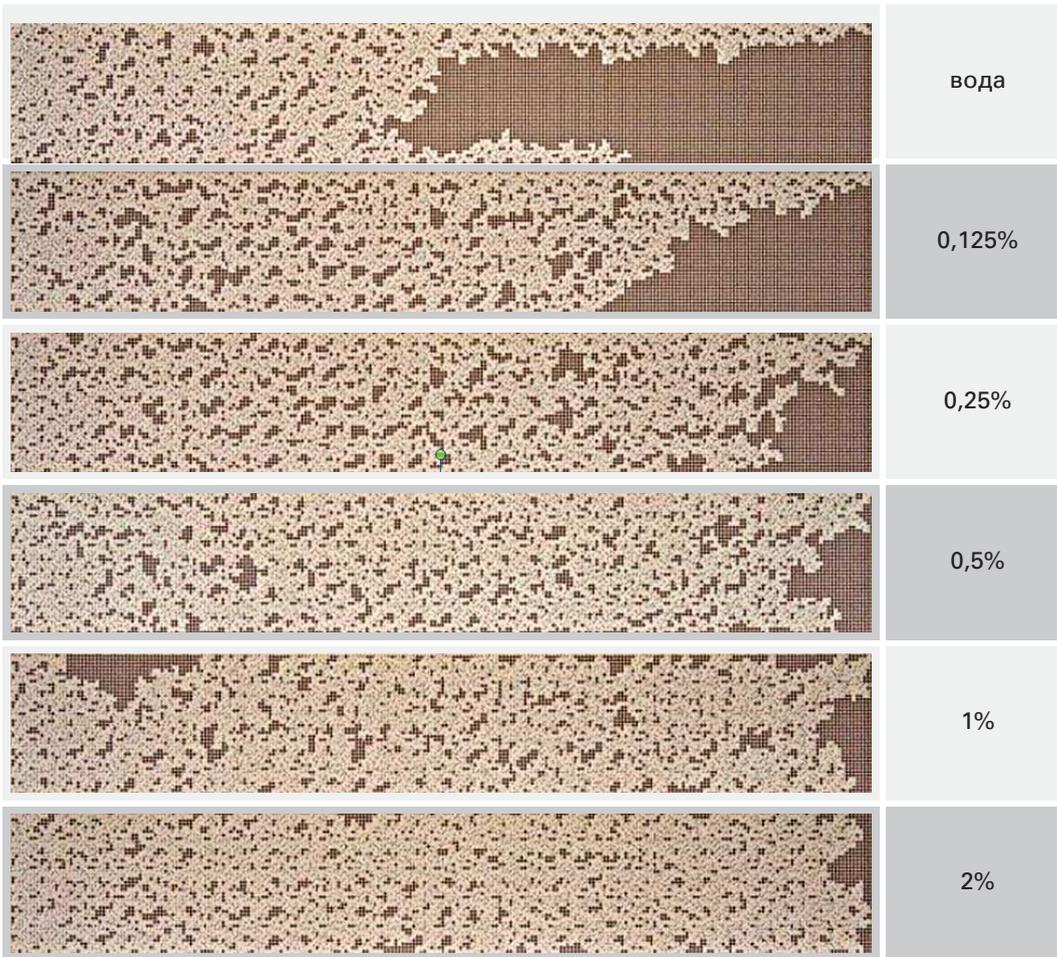
при увеличении концентрации частиц становится существенно более однородным. В результате прорыв вытесняющей жидкости к выходу из пористой среды микрофлюидного чипа происходит значительно позже. Время прорыва существенно возрастает с увеличением концентрации наночастиц (до полутора раз).

Охват порового пространства при течении наносуспensionей, как видно из рис. 3, гораздо выше. Это дает значительное увеличение коэффициента вытеснения. Было показано, что существенное увеличение нефтевытеснения наблюдается уже при низких концентрациях наночастиц (0,125–0,25 %). С ростом концентрации наночастиц коэффициент вытеснения возрастает (рис. 4), причем весьма значительно. Максимальное зафиксированное приращение коэффициента вытеснения по сравнению с водой составило около 60 %. Увеличение концентрации наночастиц выше 0,5 мас. % слабо сказывается на изменении коэффициента вытеснения нефти и нецелесообразно. Это показано на рис. 5.

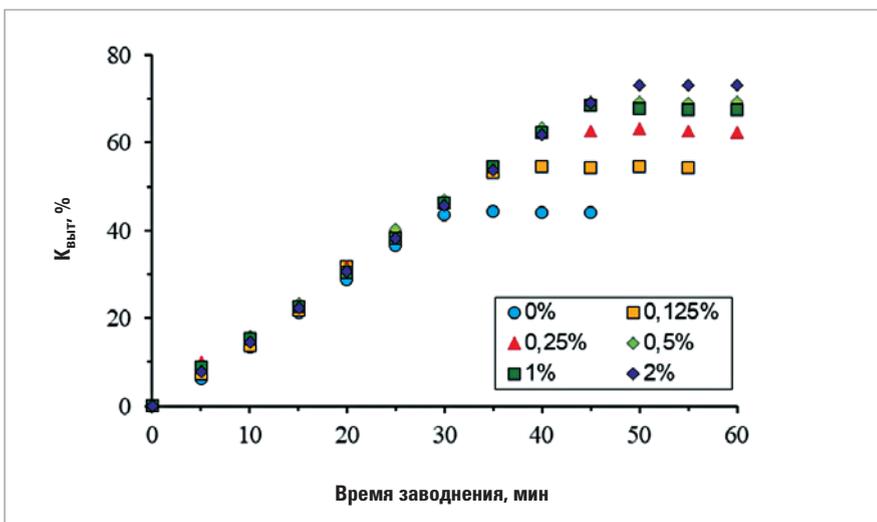
Дополнительно была проведена серия микрофлюидных экспериментов по вытеснению различных образцов нефти с помощью разбавленных наносуспensionей. Рассмотрено три образца нефти, отличающихся по элементному составу, а также по плотности и особенно – по коэффициенту вязкости.

В результате этой серии микрофлюидных экспериментов было показано, что добавка наночастиц в вытесняющую жидкость положительно сказывается на эффективности вытеснения для всех рассмотренных нефтей. При этом, что очень важно, добавка наночастиц для увеличения нефтевытеснения сильнее сказывается на образцах нефти, обладающих высокой плотностью и большим коэффициентом вязкости. В лабораторных экспериментах на микрофлюидных чипах было показано, что применение наносуспensionей для заводнения будет более эффективным в случае пластов с тяжелыми образцами нефти. Таким образом, еще раз было продемонстрировано, что закачка наносуспensionей в пласт с целью увеличения нефтеотдачи имеет значительный потенциал для использования.

Проведение микрофлюидных экспериментов по вытеснению нефти с помощью наносуспensionей позволило получить еще один важный для практики лабораторных исследований результат. Было показано, что на микрофлюидных моделях чипа качественно подтверждены результаты лабораторных экспериментов по вытеснению нефти с помощью наносуспensionей на образцах керна. Это подтверждает потенциал использования микрофлюидных чипов с целью быстрой оценки эффективности разрабатываемых составов для увеличения нефтеотдачи.



**Рис. 4.** Фотографии распределения остаточной нефти при вытеснении наносuspensionями с различными концентрациями частиц



**Рис. 5.** Динамика изменения коэффициента вытеснения образца нефти из микрофлюидной модели при использовании наносuspensionии

### ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ ИСТОЧНИКИ

- Convery N., Gadegaard N. (2019). 30 years of microfluidics. *Micro and Nano Engineering*, 2, 76 -91. – doi: 10.1016/j.mne. 2019.01.003.
- Gogoi S., Gogoi S.B. Review on microfluidic studies for EOR application, *J. Pet. Explor. Prod. Technol.*, 9 (2019) 2263–2277. – doi: /10.1007/s13202-019-0610-4.
- Pryazhnikov M.I., Minakov A.V., Pryazhnikov A.I., Denisov I.A., Yakimov A.S. Microfluidic study of the effect of nanosuspensions on enhanced oil recovery, *Nanomaterials*, 12(3) (2022) 520. – doi: 10.3390/nano12030520.
- Sun Y., Donghai Y., Shi L., Wu H., Cao Y., He Y. & Xie T. Properties of Nano-fluids and Their Applications in Enhanced Oil Recovery: a Comprehensive Review. *Energy & Fuels*. 2020. – doi:10.1021/acs.energyfuels.9b03501.
- Применение наносuspensionии для увеличения нефтеотдачи / А.В. Минаков, В.Я. Рудяк, М.И. Пряжников, Д.В. Гузей, В.А. Жигарев, Д.В. Платонов, Е.И. Михиенкова // *Нефть. Газ. Новации.* – 2021. – № 3 (244). – С. 17–20.