

Юрий Вавилович ПАХАРУКОВ¹
Фарид Канафеевич ШАБИЕВ²
Руслан Фаридович САФАРГАЛИЕВ³
Борис Семёнович ЕЗДИН⁴
Валерий Владимирович КАЛЯДА⁵

УДК 532.2, 621.6

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ НАНОФЛЮИДОВ НА ОСНОВЕ УГЛЕРОДНЫХ НАНОЧАСТИЦ ДЛЯ ВЫТЕСНЕНИЯ НЕФТИ ИЗ МОДЕЛИ ПОРИСТОЙ СРЕДЫ

- ¹ доктор физико-математических наук, профессор,
Тюменский государственный университет
pacharukovyu@yandex.ru
- ² кандидат физико-математических наук, доцент,
Тюменский государственный университет
faridshab@mail.ru
- ³ аспирант, Тюменский государственный университет
ruslan.safargaliev@mail.ru
- ⁴ кандидат физико-математических наук, доцент,
Новосибирский государственный университет
bse@nsu.ru
- ⁵ ведущий электроник
отдела прикладной физики физического факультета,
Новосибирский государственный университет
v.kalyada@nsu.ru

Цитирование: Пахаруков Ю. В. Использование нанофлюидов на основе углеродных наночастиц для вытеснения нефти из модели пористой среды / Ю. В. Пахаруков, Ф. К. Шабиев, Р. Ф. Сафаргалиев, Б. С. Ездин, В. В. Каляда // Вестник Тюменского государственного университета. Физико-математическое моделирование. Нефть, газ, энергетика. 2020. Том 6. № 4 (24). С. 141-157.
DOI: 10.21684/2411-7978-2020-6-4-141-157

Аннотация

Графен, благодаря своей двумерной структуре, обладает уникальными свойствами. Так, например, теплопроводность и электропроводность графена на порядок превышает теплопроводность и электропроводность меди. По этой причине нанофлюиды на основе графена уже сейчас используются во многих отраслях промышленности. Благодаря эффекту самоорганизации графеновых наночастиц с углеводородными молекулами использование графена стало возможным и в нефтедобывающей промышленности. Наножидкости на основе графена применяются в качестве вытесняющей жидкости, увеличивающие коэффициент нефтеотдачи. Вытесняющие способности наножидкостей на основе графена зависят от концентраций. Увеличения концентрации наночастиц, влечет за собой увеличение вязкости, что негативно сказывается на эксплуатационных характеристиках нанофлюида. Частично эта проблема решается благодаря синергетическому эффекту, гибридные нанофлюиды, состоящие из наночастиц графена и металлов или карбидов усиливают вытесняющую способность.

В данной работе, используя методы атомно-силовой микроскопии, сканирующей электронной микроскопии и методы молекулярного моделирования, исследовано образование надмолекулярных структур, формирующих переходную область на границе раздела нефть-нанофлюид с низким поверхностным натяжением, как результат синергетического эффекта при взаимодействии планарных наночастиц графена и наночастиц карбида кремния покрытых слоями графена (Core-shell). В модельных экспериментах на ячейке Хеле-Шоу показано, что в пористой среде такие гибридные нанофлюиды обладают высокой вытесняющей способностью остаточной нефти. При этом граница раздела нефть — нанофлюид остается устойчивой без образования вязких пальцев.

В процессе исследования установлено, что наблюдается переходная область, в структурировании которой непосредственно участвовали наночастицы. Эффективность вытеснения нанофлюидами зависит от концентрации наночастиц и их взаимодействия.

Ключевые слова

Графен, наночастицы Core-shell, нанофлюиды на основе графена и Core-shell, ячейка Хеле-Шоу.

DOI: 10.21684/2411-7978-2020-6-4-141-157

Введение

Нанофлюиды обладают уникальными характеристиками, которые за последние два десятилетия нашли применения в различных областях науки и техники, отраженных в обзорах [4, 8, 10, 22, 26, 28, 30]. Особый интерес вызывают флюиды на основе графеноподобных наноструктур (ГПНФ): однослойный графен; оксид графена; восстановленный графен; многослойный графен; графен с квантовыми точками. Так, оптические свойства ГПНФ получили широкое применение в солнечной энергетике. Благодаря высокой теплопроводности ГПНФ активно используются в системах теплоотведения. Высокая электропроводность ГПНФ нашла применение в электронике [22].

Однако, использование ГПНФ наталкивает на ряд трудностей. Например, изменение реологических свойств базового флюида приводит к быстрому увеличению вязкости ГПНФ, что негативно сказывается на эксплуатационных характеристиках нанофлюидов. Использование комбинации различных наноструктур позволяет частично решить возникшие трудности. Так, в обзоре [22] рассматриваются нанофлюиды с сочетанием наноструктур. Наночастицами, которые очень часто используются совместно с графеном в наножидкостях, являются: металлы Ag, Cu, [29, 32]; оксиды металлов Al_2O_3 , Fe_3O_4 , CuO [13, 24]; карбиды TiC, SiC, [9]; углерод в различных формах (наноалмаз, графит), одно-, двух- и многослойные углеродные нанотрубки, композиты из фуллеренов [15, 27, 33].

В последние годы ГПНФ широко стали использоваться в нефтегазовой промышленности [21, 30]. Использование однослойного графена в качестве вытесняющего агента [11] показало высокую эффективность при увеличении нефтеотдачи. В работе [21] в качестве такого агента использован оксид графена, а в работе [23] — сульфонированный графен (Sulfonated graphene). В [18] для увеличения нефтеотдачи использованы флюиды на основе многослойного графена. Создание на межфазной границе нефть — вода переходной области с низким поверхностным натяжением, которая не является микроэмульсией — это актуальная задача в нефтедобыче. Решение этой задачи позволяет разработать технологии, повышающие нефтеотдачу из нефтяного пласта призабойной зоны [2]. Известно, что низкое поверхностное натяжение на границе раздела нефть — вода является результатом образования структуры из жидкокристаллических монослоев макромолекул [14]. Такие слои могут быть образованы из планарных наночастиц графена [17]. В данном исследовании изучаются вытесняющие свойства гибридных нанофлюидов на основе многослойного графена и Core-shell структур — кристаллитов SiC, покрытых сверху несколькими слоями графена.

Материалы и методы

Планарные наночастицы графена были получены в водной графеновой суспензии при ультразвуковом диспергировании поликристаллического графита [16]. Форма и размер наночастиц многослойного графена в наножидкости определялись при помощи атомно-силового микроскопа (АСМ) Ntegra Aura (NT-MDT) и сканирующего электронного микроскопа (СЭМ) MIRA 3 (TESCAN). Для АСМ и СЭМ анализа наночастицы из флюидов высаживались на монокристалле кремния. Наночастицы Core-shell синтезированы с использованием высокопроизводительного процесса быстрого циклического сжатия в химическом реакторе [6]. Изображения частиц Core-shell получены методом просвечивающей электронной микроскопией высокого разрешения (ПЭМВР) на электронном микроскопе JEM-2010 (JEOL). Водные суспензии наночастиц Core-shell получены тем же способом, что и водные суспензии многослойного графена [5]. В работе использованы 12 различных образцов нанофлюидов, массовая концентрация наночастиц многослойного графена и Core-shell в базовом флюиде — дистиллированной воде (таблица 1).

Таблица 1

Нанофлюиды на основе графена (GNF), наночастиц Core-shell (C-sNF) и гибридных (GNF+ C-sNF)

Table 1

Graphene-based nanofluids (GNF), Core-shell (C-sNF) nanoparticles, and hybrid (GNF+ C-sNF)

GNF (%)	C-sNF (%)	GNF+ C-sNF (%)	
wt 0,0050	wt 0,0050	wt 0,0025+ wt 0,0025	Комбинированный нанофлюид № 1
wt 0,0100	wt 0,0100	wt 0,0050+ wt 0,0050	Комбинированный нанофлюид № 2
wt 0,0150	wt 0,0150	wt 0,0075+ wt 0,0075	Комбинированный нанофлюид № 3
wt 0,0200	wt 0,0200	wt 0,0100+ wt 0,0100	Комбинированный нанофлюид № 4

В качестве модели пористой среды, и для исследования поведения границы раздела в данном исследовании, использовалась радиальная ячейка Хеле-Шоу, параметры которой составляли: $R_0 = 2$ мм, $R_\infty = 120$ мм, $b = 0,6$ мм [30]. Все эксперименты на ячейке Хеле-Шоу проводились при комнатной температуре. В ячейку помещалась подготовленная, обезвоженная нефть месторождения Западной Сибири вязкостью $\mu_{20} = 4,08$ мПа·с и плотностью $\rho_{20} = 838$ кг/м³. При постоянном избыточном давлении в ячейку нагнетался нанофлюид. Далее величина p_{crit} увеличивалась, пока в ячейке граница раздела нефть — нанофлюид не вырождалась в неустойчивость. Параметром неустойчивого вытеснения рассматривалось отношение $\delta/R = 0,4$, где R — радиус невозмущенной поверхности, δ — амплитуда возмущения [12].

Для понимания механизмов самоорганизации на пограничной области нефть — нанофлюид было проведено моделирование взаимодействия графена с молекулами октана. На начальном этапе моделирования были построены геометрически оптимизированные структуры углеводородных молекул и графенового листа. Моделью графенового листа послужил графеновый фрагмент квадратной формы $1,4 \times 1,7$ нм, состоящий из 120 атомов углерода и 30 атомов водорода. Моделью углеводородной молекулы послужила молекула *n*-октана C_8H_{18} . Расчеты выполнялись методом *ab initio* с использованием базиса одноэлектронных волновых функций STO6-31G [3, 7]. Геометрическая оптимизация моделей молекул произведена аналитическим градиентным методом до величины градиента 10^{-3} ккал/моль. На втором этапе моделирования рассматривалось взаимодействие молекул C_8H_{18} с листами графена. В качестве модели многослойного графена рассматривался кластер из пяти листов графеновых фрагментов, указанных выше. Расчеты выполнялись молекулярно-механическим методом ММ+ [19] с использованием программного пакета HyperChem Pro6.0.

Результаты и обсуждения

В результате ультразвукового диспергирования графита в дистиллированной воде на протяжении 5 часов были получены частицы многослойного графена преимущественно одного размера (рис. 1а). АСМ анализ частиц показал, что наночастицы графена это цилиндрические частицы диаметром от 20 до 50 нм

(рис. 1b). Толщина наночастиц графена от 1 до 3 нм, т. е. это многослойный графен с числом слоев не более 10 (рис. 1b).

Анализ наночастиц Core-shell при помощи ПЭМВР показывает, что это сферические частицы диаметром 40-50 нм (рис. 2a). В центре наночастицы

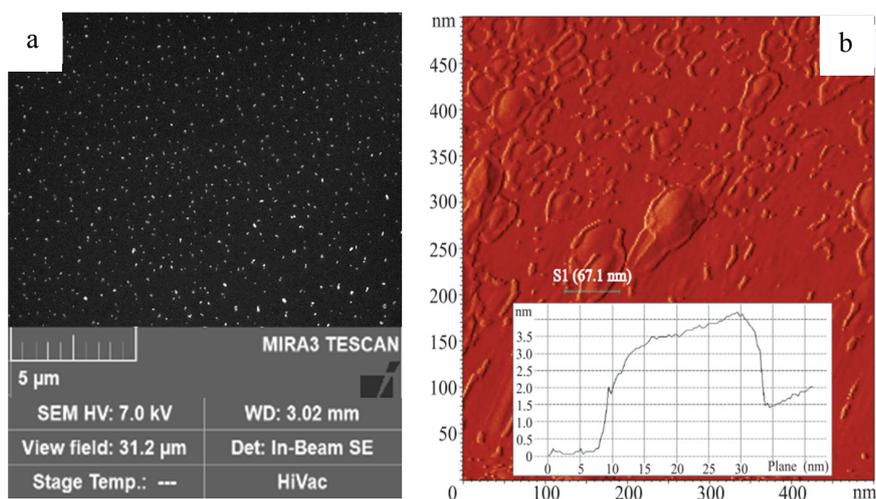


Рис. 1. Изображения наночастиц графена на кремневой подложке, полученные полуконтактным методом; а — СЭМ, б — АСМ; на вставке профиль высоты по выделенному направлению

Fig. 1. Images of graphene nanoparticles on a silicon substrate obtained by a semi-contact method; a — SEM, b — AFM; on the insert — the height profile in the selected direction

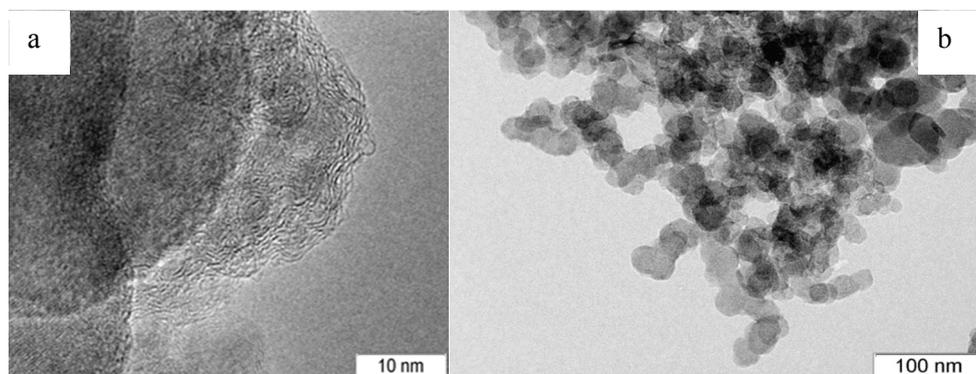


Рис. 2. Изображение наноразмерных кристаллитов SiC: а — покрытых 2-5 слоями графена — Core-shell структура; б — дендритные агрегаты, образованные частицами Core-shell (разрешение 100 нм)

Fig. 2. Image of nanosize SiC crystals: a — covered with 2-5 layers of graphene — Core-shell structure; b — dendritic aggregates formed by Core-shell particles (100 nm resolution)

Core-shell располагаются кристаллиты SiC размером 3-7 нм, покрытые несколькими слоями графена (рис. 2а). Наночастицы Core-shell, взаимодействуя друг с другом, образуют структуры: при меньшем увеличении видно, что частицы Core-shell образуют дендридные сцепки — агрегаты из многих частиц округлой формы (рис. 2б).

В результате моделирования движения в пористой среде на ячейке Хеле-Шоу можно наблюдать переход в возмущенное состояние, связанное с неустойчивостью Маллинза и Секерки (рис. 3).

При движении нанофлюидов в модели пористой среды при давлениях $p < p_{crit}$ наблюдается невозмущенная граница раздела (рис. 3а, с). Так, на рис. 3а, с можно видеть невозмущенное движение нанофлюидов GNF и C-sNF с равными массовыми концентрациями wt 0,005%, линия границы раздела нефть — нанофлюид имеет форму окружности. При достижении критического давления $p = p_{crit}$ граница раздела нефть — нанофлюид переходит в возмущенное состояние, и фронт вырождается с образованием «вязких пальцев» (рис. 3б, d). Для нанофлюида GNF с концентрацией wt 0,005% критическое отношение $\delta/R = 0,4$ формируется при $p_{crit} = 55 \pm 1$ кПа (рис. 3d). При той же массовой концентрации wt 0,005% для нанофлюида C-sNF критическое отношение $\delta/R = 0,4$ достигается уже при давлении $p_{crit} = 60 \pm 1$ кПа (рис. 3б).

Установлено, что пограничная область между нефтью и нанофлюидами является более устойчивой в отличие от движения дистиллированной воды. Возмущение границы раздела нефть — вода происходит при более низких значениях критического давления и образование вязких пальцев происходит более выражено, в отличие от границ раздела нефть — нанофлюид. Значение критического давления для вытеснения дистиллированной водой составляет $p_{crit} = 8$ кПа.

Известно, что многие свойства нанофлюидов зависят от концентрации наночастиц в базовой жидкости [1], и вытесняющие способности не являются, в этом отношении, исключением.

Так, с ростом концентраций наночастиц в базовом флюиде возрастает и значение критического давления p_{crit} . Однако, при достижении концентрации wt 0,015% для GNF и C-sNF значение критического давления перестает увеличиваться. Комбинированные нанофлюиды № 1 и 2 (таблица 2) показали большую устойчивость границы раздела. Для комбинации № 2 значение критического давления составило 92 ± 1 кПа, что превышает значения монофлюидов GNF и C-sNF при концентрациях wt 0,015% на $\Delta p = 12 \pm 1$ кПа. Для комбинации № 3 значение p_{crit} мало отличается от значений для монофлюидов GNF и C-sNF при концентрациях wt 0,015%, а для комбинированного нанофлюида № 4 становится меньшим по сравнению с монофлюидами (таблица 2).

Большую устойчивость границы раздела нефть — нанофлюиды, по сравнению с дистиллированной водой, можно объяснить появлением на межфазной границы структурированной пленки [16, 18]. Такая пленка является результатом самоорганизации углеродных наночастиц и углеводородных молекул нефти.

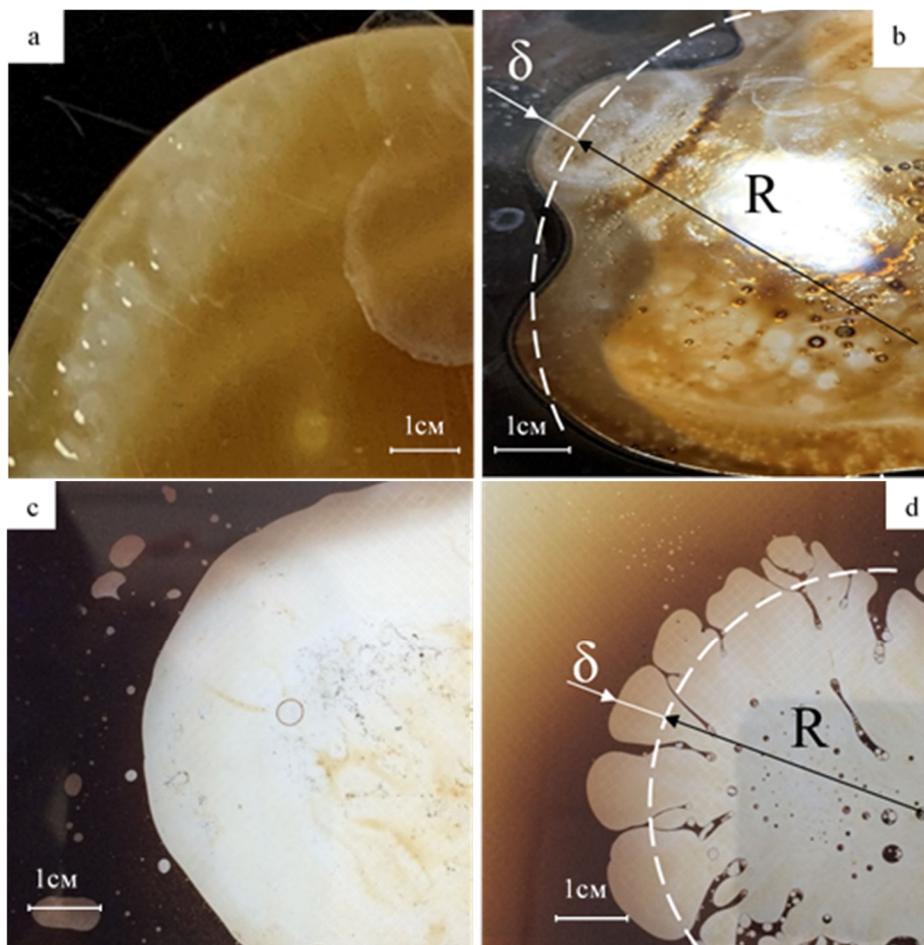


Рис. 3. Движение нанофлюидов в ячейке Хеле-Шоу:
 а — невозмущенное движение C-sNF с массовой концентрацией частиц wt 0,005%; б — возмущенное движение C-sNF с массовой концентрацией частиц wt 0,005% при достижении критического давления $p_{crit} = 60$ кПа;
 с — невозмущенное движение GNF с массовой концентрацией частиц wt 0,005%; д — возмущенное движение GNF с массовой концентрацией частиц wt 0,005% при достижении критического давления $p_{crit} = 55$ кПа

Fig. 3. Movement of nanofluids in the Hele-Shaw cell:
 (a) — undisturbed movement of C-sNF with mass concentration of wt 0,005%; (b) — indisturbed movement of C-sNF with mass concentration of wt 0,005% at achievement of critical pressure $p_{crit} = 60$ kPa; с — undisturbed movement of GNF with mass concentration of wt 0,005%; д — indisturbed movement of GNF with mass concentration of wt 0,005% at achievement of critical pressure $p_{crit} = 55$ kPa

Таблица 2

Значения критического давления p_{crit} для нанофлюидов на основе графена (GNF), наночастиц Core-shell (C-sNF) и гибридных (GNF+ C-sNF)

Концентрация, wt%	GNF p_{crit} , кПа	C-sNF p_{crit} , кПа	GNF+ C-sNF	p_{crit} , кПа
0 (dis.water)	8 ± 1	8 ± 1		
0,005	55 ± 1	60 ± 1	Комбинированный флюид № 1	85 ± 1
0,010	70 ± 1	75 ± 1	Комбинированный флюид № 2	92 ± 1
0,015	80 ± 1	81 ± 1	Комбинированный флюид № 3	79 ± 1
0,020	79 ± 1	80 ± 1	Комбинированный флюид № 4	60 ± 1

Table 2

Critical pressure p_{crit} values for graphene-based (GNF), Core-shell (C-sNF), and hybrid (GNF+ C-sNF) nanofluids

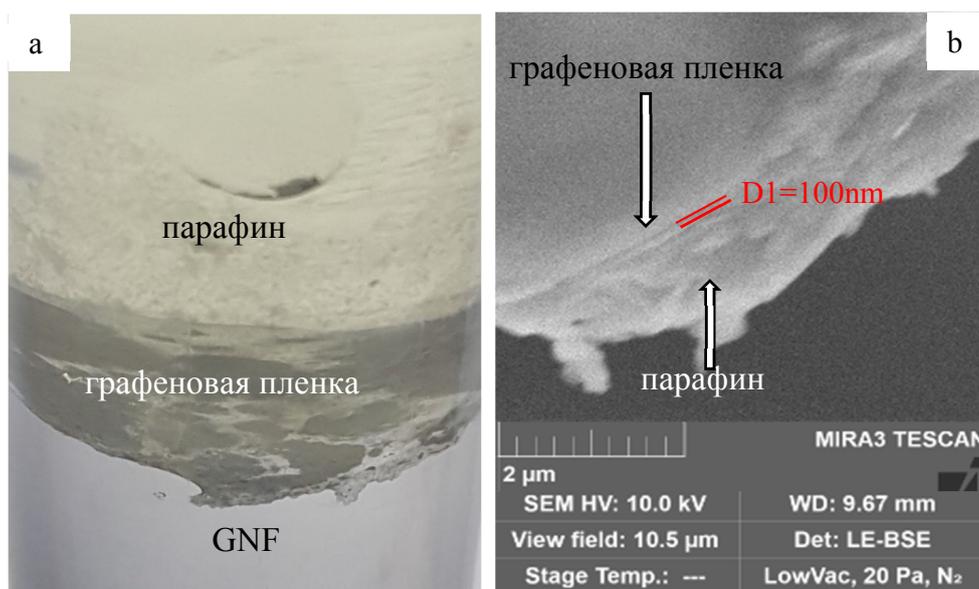


Рис. 4. Графеновая пленка: а — графеновая пленка, выращенная на границе углеводород (парафин) — GNF; б — СЭМ изображение графеновой пленки

Fig. 4. Graphene film: а — graphene film grown on the interface of hydrocarbon (paraffin) — GNF; б — SEM image of graphene film

Для проверки данного механизма упрочнения пограничной области была выращена пленка на границе GNF и расплавленный парафин (смесь предельных углеводородов) при температуре 60°C на протяжении 6 часов (рис. 5a). На выделенном участке с помощью СЭМ можно наблюдать переходную область из наночастиц графена (рис. 5b). Как можно видеть на рис. 5b, графеновая пленка формируется в виде слоистых образований. Толщина образовавшейся графеновой пленки составляет 100 нм.

Образование структурированной области на межфазной границе углеводород — наножид может указывать на низкое поверхностное натяжение. Тогда можно предположить, что наночастицы непосредственно участвуют в структурировании переходной области. Механизмы структурирования можно понять, рассмотрев результаты компьютерного моделирования. Молекулярно-механическое моделирование взаимодействия молекулы C_8H_{18} и многослойного графена показывает, что молекулы октана притягиваются преимущественно к боковым поверхностям. При увеличении количества многослойных графеновых частиц образуется упорядоченная структура. Так, для пятислойного графена с краевыми дефектами молекулы октана выстраиваются параллельно слоям, образуя упорядоченную структуру (рис. 6). Расстояние между молекулами октана составляет $3,4 \text{ \AA}$, между многослойными графеновыми частицами — $6,8 \text{ \AA}$ (рис. 6).

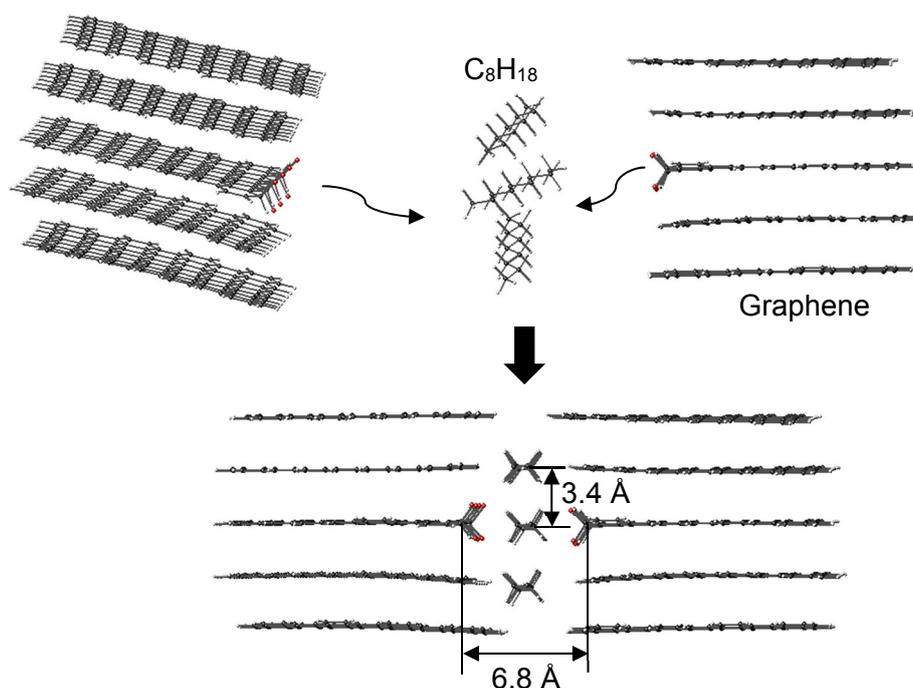


Рис. 5. Модель формирования упорядоченной структуры на границе углеводород — наножид

Fig. 5. Model of formation of the organized structure on the interface hydrocarbon — nanofluid

Итак, результат моделирования указывает, что механизм, по которому вытесняющий фронт является более устойчивым — самоорганизация наночастиц углерода и углеводородных молекул. Усиление эффекта вытеснения, при использовании комбинированных наножидкостей, может указывать на взаимодействие между собой наночастиц многослойного графена и Core-shell. Возможной причиной, по которой вытесняющие способности нанофлюидов уменьшаются, может быть увеличение вязкости базового флюида. Известно, что увеличение концентрации наночастиц в базовом флюиде приводит к квадратичному увеличению вязкости нанофлюида [25].

Выводы

При вытеснении из модели пористой среды (ячейки Хеле-Шоу) нанофлюиды проявляют большую стабильность межфазной границы нежели дистиллированная вода. С ростом концентрации наночастиц в базовом флюиде возрастает значение критического давления, т. е. осуществляется переход в возмущенное состояние. Сочетания наночастиц многослойного графена и Core-shell усиливают вытесняющую способность нанофлюидов, однако при достижении определенных концентраций наночастиц эффект ослабевает. Результаты исследований могут быть использованы при создании технологий, повышающих нефтеотдачу нефтяного пласта.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Рудяк В. Я. Современные проблемы микро- и нанофлюидики / В. Я. Рудяк, А. В. Минаков. Новосибирск: Наука, 2016. 296 с.
2. Altunina L. K. Physicochemical methods for enhancing oil recovery from oil fields / L. K. Altunina, V. A. Kuvshinov // Russian Chemical Reviews. 2007. Vol. 76. No. 10. Pp. 971-987. DOI: 10.1070/RC2007v076n10ABEH003723
3. Davidson E. R. Basis set selection for molecular calculations / E. R. Davidson, D. Feller // Chemical Reviews. 1986. Vol. 86. No. 4. Pp. 681-696. DOI: 10.1021/cr00074a002
4. Devendiran D. K. A review on preparation, characterization, properties and applications of nanofluids / D. K. Devendiran, V. A. Amirtham // Renewable and Sustainable Energy Reviews. 2016. Vol. 60. Pp. 21-40. DOI: 10.1016/j.rser.2016.01.055
5. Ezdin B. Data on the structure, chemical state of silicon carbide synthesized by adiabatic cyclic compression in a chemical reactor / B. Ezdin, D. Yatsenko, V. Kalyada, A. Zarvin, A. Ichshenko, A. Nikiforov, P. Snytnikov // Data in Brief. 2020. Vol. 28. Art. 104868. DOI: 10.1016/j.dib.2019.104868
6. Ezdin B. S. Pyrolysis of a mixture of monosilane and alkanes in a compression reactor to produce nanodispersed silicon carbide / B. S. Ezdin, D. A. Yatsenko, V. V. Kalyada, A. B. Ichshenko, A. E. Zarvin, A. A. Nikiforov, P. V. Snytnikov // Chemical Engineering Journal. 2020. Vol. 381. Art. 122642. DOI: 10.1016/j.cej.2019.122642
7. Hehre W. J. Self consistent molecular orbital methods. I. Use of Gaussian expansions of Slater-type atomic orbitals / W. J. Hehre, R. F. Stewart, J. A. Pople // The Journal of Chemical Physics. 1969. Vol. 51. No. 6. Pp. 2657-2664. DOI: 10.1063/1.1672392

8. Huminic G. Application of nanofluids in heat exchangers: a review / G. Huminic, A. Huminic // *Renewable and Sustainable Energy Reviews*. 2012. Vol. 16. No. 8. Pp. 5625-5638. DOI: 10.1016/j.rser.2012.05.023
9. Kazemi I. A novel comparative experimental study on rheological behavior of mono & hybrid nanofluids concerned graphene and silica nano-powders: characterization, stability and viscosity measurements / I. Kazemi, M. Sefid, M. Afrand // *Powder Technology*. 2020. Vol. 366. Pp. 216-229. DOI: 10.1016/j.powtec.2020.02.010
10. Leong K. Y. An overview on current application of nanofluids in solar thermal collector and its challenges / K. Y. Leong, H. C. Ong, N. H. Amer, M. J. Norazrina, M. S. Risby, K. Z. Ku Ahmad // *Renewable and Sustainable Energy Reviews*. 2016. Vol. 53. Pp. 1092-1105. DOI: 10.1016/j.rser.2015.09.060
11. Luo D. Nanofluid of graphene-based amphiphilic Janus nanosheets for tertiary or enhanced oil recovery: high performance at low concentration / D. Luo, F. Wang, J. Zhu, F. Cao, Y. Liu, X. Li, R. C. Willson, Z. Yang, C.-Wu Chu, Z. Ren // *Proceedings of the National Academy of Sciences of the USA*. 2016. Vol. 113. No. 28. Pp. 7711-7716. DOI: 10.1073/pnas.1608135113
12. Martyushev L. M. Metastability at the displacement of a fluid in a Hele-Shaw cell / L. M. Martyushev, A. I. Birzina // *JETP Letters*. 2014. Vol. 99. Pp. 446-451. DOI: 10.1134/S0021364014080104
13. Mehrali M. Heat transfer and entropy generation analysis of hybrid graphene/Fe₃O₄ ferro-nanofluid flow under the influence of a magnetic field / M. Mehrali, E. Sadeghinezhad, A. R. Akhiani, S. Tahan Latibari, H. Simon Cornelis Metselaar, A. Sh. Kherbeet, M. Mehrali // *Powder Technology*. 2017. Vol. 308. Pp. 149-157. DOI: 10.1016/j.powtec.2016.12.024
14. *Microemulsions: Structure and Dynamics* / edited by S. E. Friberg and P. Bothorel. United States: CRC Press, 1987.
15. Moghadam I. P. Curve-fitting on experimental data for predicting the thermal-conductivity of a new generated hybrid nanofluid of graphene oxide-titanium oxide/water / I. P. Moghadam, M. Afrand, S. M. Hamad, A. A. Barzinjy, P. Talebizadehsardari // *Physica A*. 2020. Vol. 548. Art. 122140. DOI: 10.1016/j.physa.2019.122140
16. Pakharukov Yu. V. Formation of a wave structure on the surface of a graphene film / Yu. V. Pakharukov, F. K. Shabiev, V. V. Mavrinskii, R. F. Safargaliev, V. V. Voronin // *JETP Letters*. 2019. Vol. 109. Pp. 615-619. DOI: 10.1134/S002136401909011X
17. Pakharukov Yu. V. Oil Displacement from a porous medium with the aid of a graphite suspension / Yu. V. Pakharukov, F. K. Shabiev, R. F. Safargaliev // *Technical Physics Letters*. 2018. Vol. 44. No. 2. Pp. 130-132. DOI: 10.1134/S1063785018020268
18. Pakharukov Yu. V. Oil filtration in a porous medium in the presence of graphene nanoparticles / Yu. V. Pakharukov, F. K. Shabiev, B. V. Grigoriev, R. F. Safargaliev, I. R. Potochnyak // *Journal of Applied Mechanics and Technical Physics*. 2019. Vol. 60. No. 1. Pp. 31-34. DOI: 10.1134/S002189441901005X
19. Parrinello R. Car M. Unified approach for molecular dynamics and density-functional theory / R. Car M. Parrinello // *Physical Review Letters*. 1986. Vol. 55. No. 22. Pp. 2471-2474. DOI: 10.1103/PhysRevLett.55.2471
20. Peng B. A review of nanomaterials for nanofluid enhanced oil recovery / B. Peng, L. Zhang, J. Luo, P. Wang, B. Ding, M. Zeng, Z. Cheng // *RSC Advances*. 2017. Vol. 10. No. 72. Pp. 32246-32254. DOI: 10.1039/C7RA05592G

21. Radnia H. Experimental assessment of graphene oxide adsorption onto sandstone reservoir rocks through response surface methodology / H. Radnia, A. Reza Solaimany Nazar, A. Rashidi // *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*. 2017. Vol. 80. Pp. 34-45. DOI: 10.1016/j.jtice.2017.07.033
22. Ranga Babu J. A. State-of-art review on hybrid nanofluids / J. A. Ranga Babu, K. Kiran Kumar, S. Srinivasa Rao // *Renewable and Sustainable Energy Reviews*. 2017. Vol. 77. Pp. 551-565. DOI: 10.1016/j.rser.2017.04.040
23. Rashidi A. Application of Nanoparticles for Chemical Enhanced Oil Recovery / A. Rashidi, A. Reza Solaimany Nazar, H. Radnia // *Iranian Journal of Oil & Gas Science and Technology*. 2018. Vol. 7. No. 1. Pp. 1-19.
24. Rostami S. The effect of hybrid nano-additive consists of graphene oxide and copper oxide on rheological behavior of a mixture of water and ethylene glycol / S. Rostami, A. Ahmadi Nadooshan, A. Raisi // *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*. 2020. Vol. 139. Pp. 2353-2364. DOI: 10.1007/s10973-019-08569-y
25. Rudyak V. Ya. Viscosity of nanofluids. Why it is not described by the classical theories / V. Ya. Rudyak // *Advances in Nanoparticles*. 2013. Vol. 2. No. 3. Pp. 266-276. DOI: 10.4236/anp.2013.23037
26. Sadeghinezhad E. A comprehensive review on graphene nanofluids: recent research, development and applications / E. Sadeghinezhad, M. Mehrali, R. Saidur, M. Mehrali, S. Tahan Latibari, A. R. Akhiani, H. S. C. Metselaar // *Energy Conversion and Management*. 2016. Vol. 111. Pp. 466-487. DOI: 10.1016/j.enconman.2016.01.004
27. Said Z. Stability, thermophysical and electrical properties of synthesized carbon nanofiber and reduced-graphene oxide-based nanofluids and their hybrid along with fuzzy modeling approach / Z. Said, M. Ali Abdelkareem, H. Rezk, A. M. Nassef, H. Zeyad Atwany // *Powder Technology*. 2020. Vol. 364. Pp. 795-809. DOI: 10.1016/j.powtec.2020.02.026
28. Saidur R. A review on applications and challenges of nanofluids / R. Saidur, K. Y. Leong, H. A. Mohamm // *Renewable and Sustainable Energy Reviews*. 2011. Vol. 15. No. 3. Pp. 1646-1668. DOI: 10.1016/j.rser.2010.11.035
29. Siddiqui F. R. Evaporation and wetting behavior of silver-graphene hybrid nanofluid droplet on its porous residue surface for various mixing ratios / F. R. Siddiqui, C. Y. Tso, S. C. Fu, H. H. Qiu, Christopher Y. H. Chao // *International Journal of Heat and Mass Transfer*. 2020. Vol. 153. Art. 119618. DOI: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2020.119618
30. Solangi K. H. A comprehensive review of thermo-physical properties and convective heat transfer to nanofluids / K. H. Solangi, S. N. Kazi, M. R. Luhur, A. Badarudin, A. Amiri, R. Sadri, M. N. M. Zubir, S. Gharahkhani, K. H. Teng // *Energy*. 2015. Vol. 89. Pp. 1065-1086. DOI: 10.1016/j.energy.2015.06.105
31. Sun X. Application of nanoparticles in enhanced oil recovery: a critical review of recent progress / X. Sun, Y. Zhang, G. Chen, Z. Gai // *Energies*. 2017. Vol. 10. No. 3. Art. 345. DOI: 10.3390/en10030345
32. Vallejo J. P. Tailored silver/graphene nanoplatelet hybrid nanofluids for solar applications / J. P. Vallejo, E. Sani, G. Zyla, L. Lugo // *Journal of Molecular Liquids*. 2019. Vol. 296. Art. 112007. DOI: 10.1016/j.molliq.2019.112007
33. Yarmand H. Nanofluid based on activated hybrid of biomass carbon/graphene oxide: synthesis, thermo-physical and electrical properties / H. Yarmand, S. Gharehkhani, S. Farid Seyed Shirazi, A. Amiri, E. Montazer, H. Khajeh Arzani, R. Sadri, M. Dahari, S. N. Kazi // *International Communications in Heat and Mass Transfer*. 2016. Vol. 72. Pp. 10-15. DOI: 10.1016/j.icheatmasstransfer.2016.01.004

Yuri V. PAKHARUKOV¹
Farid K. SHABIEV²
Ruslan F. SAFARGALIEV³
Boris S. YEZDIN⁴
Valery V. KALYADA⁵

UDC 532.2, 621.6

USE OF NANOFLUIDS BASED ON CARBON NANOPARTICLES TO DISPLACE OIL FROM THE POROUS MEDIUM MODEL

- ¹ Dr. Sci. (Phys.-Math.), Professor,
University of Tyumen
pacharukovyu@yandex.ru
- ² Cand. Sci. (Phys.-Math.), Associate Professor,
University of Tyumen
faridshab@mail.ru
- ³ Postgraduate Student,
University of Tyumen
ruslan.safargaliev@mail.ru
- ⁴ Cand. Sci. (Phys.-Math.), Associate Professor,
Novosibirsk State University
bse@nsu.ru
- ⁵ Leading Electrician, Department of Applied Physics,
Physical Faculty, Novosibirsk State University
v.kalyada@nsu.ru

Abstract

Graphene, due to its two-dimensional structure, has some unique properties. For example, the thermal conductivity and electrical conductivity of graphene are an order of magnitude higher

Citation: Pakharukov Yu. V., Shabiev F. K., Safargaliev R. F., Yezdin B. S., Kalyada V. V. 2020. "Use of nanofluids based on carbon nanoparticles to displace oil from the porous medium model". Tyumen State University Herald. Physical and Mathematical Modeling. Oil, Gas, Energy, vol. 6, no. 4 (24), pp. 141-157.

DOI: 10.21684/2411-7978-2020-6-4-141-157

than the thermal conductivity and electrical conductivity of copper. For this reason, graphene-based nanofluids are now used in many industries. Due to the effect of self-organization of graphene nanoparticles with hydrocarbon molecules, the use of graphene has become possible in the oil industry. Graphene-based nanofluids are used as a displacement fluid to increase the oil recovery coefficient. The displacing ability of graphene-based nanofluids is concentration dependent. An increase in the concentration of nanoparticles entails an increase in viscosity, which negatively affects the performance characteristics of the nanofluid. This problem is partially solved due to the synergistic effect, hybrid nanofluids consisting of nanoparticles of graphene and metals or carbides enhance the displacing ability.

Using atomic force microscopy, scanning electron microscopy and molecular modelling methods, this work has studied the formation of supramolecular structures that form a transition region at the oil-nanofluid interface with low surface tension as a result of a synergistic effect in the interaction of graphene planar nanoparticles and silicon carbide nanoparticles covered with graphene layers (Core-shell). The model experiments on a Hele-Shaw cell have shown that in a porous medium, such hybrid nanofluids have a high displacement ability of residual oil. At the same time, the oil — nanofluid interface remains stable, without the formation of viscous fingers.

During the study by scanning electron microscopy, a transition region was observed, in the structuring of which the nanoparticles were directly involved. The displacement efficiency of a hybrid nanofluid depends on the concentration of nanoparticles and their interaction.

Keywords

Graphene, Core-shell nanoparticles, graphene-based and Core-shell nanofluids, the Hele-shaw cell.

DOI: 10.21684/2411-7978-2020-6-4-141-157

REFERENCES

1. Rudyak V. Ya., Minakov A. V. 2016. Modern Problems of Micro- and Nanofluidics. Novosibirsk: Nauka. 296 pp. [In Russian]
2. Altunina L. K., Kuvshinov V. A. 2007. "Physicochemical methods for enhancing oil recovery from oil fields". Russian Chemical Reviews, vol. 76, no. 10, pp. 971-987. DOI: 10.1070/RC2007v076n10ABEH003723
3. Davidson E. R., Feller D. 1986. "Basis set selection for molecular calculations". Chemical Reviews, vol. 86, no. 4, pp. 681-696. DOI: 10.1021/cr00074a002
4. Devendiran D. K., Amirtham V. A. 2016. "A review on preparation, characterization, properties and applications of nanofluids". Renewable and Sustainable Energy Reviews, vol. 60, pp. 21-40. DOI: 10.1016/j.rser.2016.01.055
5. Ezdin B., Yatsenko D., Kalyada V., Zarvin A., Ichshenko A., Nikiforov A., Snytnikov P. 2020. "Data on the structure, chemical state of silicon carbide synthesized by adiabatic cyclic compression in a chemical reactor". Data in Brief, vol. 28, art. 104868. DOI: 10.1016/j.dib.2019.104868

6. Ezdin B. S., Yatsenko D. A., Kalyada V. V., Ichshenko A. B., Zarvin A. E., Nikiforov A. A., Snytnikov P. V. 2020. "Pyrolysis of a mixture of monosilane and alkanes in a compression reactor to produce nanodispersed silicon carbide". *Chemical Engineering Journal*, vol. 381, art. 122642. DOI: 10.1016/j.cej.2019.122642
7. Hehre W. J., Stewart R. F., Pople J. A. 1969. "Self consistent molecular orbital methods. I. Use of Gaussian expansions of Slater-type atomic orbitals". *The Journal of Chemical Physics*, vol. 51, no. 6, pp. 2657-2664. DOI: 10.1063/1.1672392
8. Humnic G., Humnic A. 2012. "Application of nanofluids in heat exchangers: a review". *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, vol. 16, no. 8, pp. 5625-5638. DOI: 10.1016/j.rser.2012.05.023
9. Kazemi I., Sefid M., Afrand M. 2020. "A novel comparative experimental study on rheological behavior of mono & hybrid nanofluids concerned graphene and silica nano-powders: characterization, stability and viscosity measurements". *Powder Technology*, vol. 366, pp. 216-229. DOI: 10.1016/j.powtec.2020.02.010
10. Leong K. Y., Ong H. C., Amer N. H., Norazrina M. J., Risby M. S., Ahmad K. Z. Ku. 2016. "An overview on current application of nanofluids in solar thermal collector and its challenges". *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, vol. 53, pp. 1092-1105. DOI: 10.1016/j.rser.2015.09.060
11. Luo D., Wang F., Zhu J., Cao F., Liu Y., Li X., Willson R. C., Yang Z., Chu C.-Wu, Ren Z. 2016. "Nanofluid of graphene-based amphiphilic Janus nanosheets for tertiary or enhanced oil recovery: high performance at low concentration". *Proceedings of the National Academy of Sciences of the USA*, vol. 113, no. 28, pp. 7711-7716. DOI: 10.1073/pnas.1608135113
12. Martyushev L. M., Birzina A. I. 2014. "Metastability at the displacement of a fluid in a Hele-Shaw cell". *JETP Letters*, vol. 99, pp. 446-451. DOI: 10.1134/S0021364014080104
13. Mehrali M., Sadeghinezhad E., Akhiani A. R., Latibari S. Tahan, Metselaar H. Simon Cornelis, Kherbeet A. Sh., Mehrali M. 2017. "Heat transfer and entropy generation analysis of hybrid graphene/Fe₃O₄ ferro-nanofluid flow under the influence of a magnetic field". *Powder Technology*, vol. 308, pp. 149-157. DOI: 10.1016/j.powtec.2016.12.024
14. Friberg S. E., Bothorel P. (eds.). 1987. *Microemulsions: Structure and Dynamics*. United States: CRC Press.
15. Moghadam I. P., Afrand M., Hamad S. M., Barzinjy A. A., Talebizadehsardari P. 2020. "Curve-fitting on experimental data for predicting the thermal-conductivity of a new generated hybrid nanofluid of graphene oxide-titanium oxide/water". *Physica A*, vol. 548, art. 122140. DOI: 10.1016/j.physa.2019.122140
16. Pakharukov Yu. V., Shabiev F. K., Mavrinskii V. V., Safargaliev R. F., Voronin V. V. 2019. "Formation of a wave structure on the surface of a graphene film". *JETP Letters*, vol. 109, pp. 615-619. DOI: 10.1134/S002136401909011X
17. Pakharukov Yu. V., Shabiev F. K., Safargaliev R. F. 2018. "Oil Displacement from a porous medium with the aid of a graphite suspension". *Technical Physics Letters*, vol. 44, no. 2, pp. 130-132. DOI: 10.1134/S1063785018020268
18. Pakharukov Yu. V., Shabiev F. K., Grigoriev B. V., Safargaliev R. F., Potochnyuk I. R. 2019. "Oil filtration in a porous medium in the presence of graphene nanoparticles". *Journal of Applied Mechanics and Technical Physics*, vol. 60, no. 1, pp. 31-34. DOI: 10.1134/S002189441901005X

19. Parrinello R. Car M. 1986. "Unified approach for molecular dynamics and density-functional theory". *Physical Review Letters*, vol. 55, no. 22, pp. 2471-2474.
DOI: 10.1103/PhysRevLett.55.2471
20. Peng B., Zhang L., Luo J., Wang P., Ding B., Zeng M., Cheng Z. 2017. "A review of nanomaterials for nanofluid enhanced oil recovery". *RSC Advances*, vol. 10, no. 72, pp. 32246-32254. DOI: 10.1039/C7RA05592G
21. Radnia H., Nazar A. Reza Solaimany, Rashidi A. 2017. "Experimental assessment of graphene oxide adsorption onto sandstone reservoir rocks through response surface methodology". *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, vol. 80, pp. 34-45.
DOI: 10.1016/j.jtice.2017.07.033
22. Ranga Babu J. A., Kumar K. Kiran, Rao S. Srinivasa 2017. "State-of-art review on hybrid nanofluids". *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, vol. 77, pp. 551-565.
DOI: 10.1016/j.rser.2017.04.040
23. Rashidi A., Nazar A. Reza Solaimany, Radnia H. 2018. "Application of Nanoparticles for Chemical Enhanced Oil Recovery". *Iranian Journal of Oil & Gas Science and Technology*, vol. 7, no. 1, pp. 1-19.
24. Rostami S., Nadooshan A. Ahmadi, Raisi A. 2020. "The effect of hybrid nano-additive consists of graphene oxide and copper oxide on rheological behavior of a mixture of water and ethylene glycol". *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, vol. 139, pp. 2353-2364. DOI: 10.1007/s10973-019-08569-y
25. Rudyak V. Ya. 2013. "Viscosity of nanofluids. Why it is not described by the classical theories". *Advances in Nanoparticles*, vol. 2, no. 3, pp. 266-276.
DOI: 10.4236/anp.2013.23037
26. Sadeghinezhad E., Mehrali M., Saidur R., Mehrali M., Latibari S. Tahan, Akhiani A. R., Metselaar H. S. C. 2016. "A comprehensive review on graphene nanofluids: recent research, development and applications". *Energy Conversion and Management*, vol. 111, pp. 466-487. DOI: 10.1016/j.enconman.2016.01.004
27. Said Z., Abdelkareem M. Ali, Rezk H., Nassef, Zeyad H. Atwany 2020. "Stability, thermophysical and electrical properties of synthesized carbon nanofiber and reduced-graphene oxide-based nanofluids and their hybrid along with fuzzy modeling approach". *Powder Technology*, vol. 364, pp. 795-809. DOI: 10.1016/j.powtec.2020.02.026
28. Saidur R., Leong K. Y., Mohamm H. A. 2011. "A review on applications and challenges of nanofluids". *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, vol. 15, no. 3, pp. 1646-1668. DOI: 10.1016/j.rser.2010.11.035
29. Siddiqui F. R., Tso C. Y., Fu S. C., Qiu H. H., Chao C. Y. H. 2020. "Evaporation and wetting behavior of silver-graphene hybrid nanofluid droplet on its porous residue surface for various mixing ratios". *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 153, art. 119618. DOI: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2020.119618
30. Solangi K. H., Kazi S. N., Luhur M. R., Badarudin A., Amiri A., Sadri R., Zubir M. N. M., Gharahkhani S., Teng K. H. 2015. "A comprehensive review of thermo-physical properties and convective heat transfer to nanofluids". *Energy*, vol. 89, pp. 1065-1086.
DOI: 10.1016/j.energy.2015.06.105
31. Sun X., Zhang Y., Chen G., Gai Z. 2017. "Application of nanoparticles in enhanced oil recovery: a critical review of recent progress". *Energies*, vol. 10, no. 3, art. 345.
DOI: 10.3390/en10030345

32. Vallejo J. P., Sani E., Zyla G., Lugo L. 2019. "Tailored silver/graphene nanoplatelet hybrid nanofluids for solar applications". *Journal of Molecular Liquids*, vol. 296, art. 112007. DOI: 10.1016/j.molliq.2019.112007
33. Yarmand H., Gharekhani S., Shirazi S. Farid Seyed, Amiri A., Montazer E., Arzani H. Khajeh, Sadri R., Dahari M., Kazi S. N. 2016. "Nanofluid based on activated hybrid of biomass carbon/graphene oxide: synthesis, thermo-physical and electrical properties". *International Communications in Heat and Mass Transfer*, vol. 72, pp. 10-15. DOI: 10.1016/j.icheatmasstransfer.2016.01.004