

## ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ХИМИЧЕСКОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ФЛЮИДА С ПОРОДОЙ НА МАСШТАБЕ ПОР

*Татьяна Станиславовна Хачкова*

Институт нефтегазовой геологии и геофизики им. А.А. Трофимука СО РАН, 630090, Россия, г. Новосибирск, пр. Коптюга, 3, научный сотрудник, e-mail: KhachkovaTS@ipgg.sbras.ru

*Вадим Викторович Лисица*

Институт нефтегазовой геологии и геофизики им. А.А. Трофимука СО РАН, 630090, Россия, г. Новосибирск, пр. Коптюга, 3, д.ф.-м.н., заведующий лабораторией, e-mail: lisitsavv@ipgg.sbras.ru

В статье представлен численный алгоритм моделирования потока химически активного вещества в пористой среде на масштабе пор. Целью исследования является изучение изменения геометрии порового пространства при химическом взаимодействии флюида с породой. Сначала в поровом пространстве моделируется течение жидкости и распространение химически активных компонентов. Затем для расчета их взаимодействия с породой используются гетерогенные реакции. После чего определяется изменение интерфейса между жидкостью и твердым телом с помощью метода установки уровня (level-set method в англ. литературе), позволяющего обрабатывать изменения топологии порового пространства. Алгоритм основан на методе конечных разностей и реализован на GP-GPU.

**Ключевые слова:** цифровая физика горных пород, химическое взаимодействие флюида с породой, пористые материалы, топология порового пространства

## NUMERICAL SIMULATING THE CHEMICAL INTERACTION OF FLUID WITH ROCK AT THE PORE SCALE

*Tatyana S. Khachkova*

Trofimuk Institute of Petroleum Geology and Geophysics SB RAS, 3, Akademika Koptyuga Ave., Novosibirsk, 630090, Russia, Researcher, e-mail: KhachkovaTS@ipgg.sbras.ru

*Vadim V. Lisitsa*

Trofimuk Institute of Petroleum Geology and Geophysics SB RAS, 3, Akademika Koptyuga Ave., Novosibirsk, 630090, Russia, DSc, Head of Laboratory, e-mail: lisitsavv@ipgg.sbras.ru

The article presents a numerical algorithm for modeling the chemically reactive transport in a porous medium at a pore scale. The aim of the study is to research the change in the geometry of the pore space during the chemical interaction of the fluid with the rock. First, fluid flow and transport of chemically active components are simulated in the pore space. Heterogeneous reactions are then used to calculate their interactions with the rock. After that, the change in the interface between the liquid and the solid is determined using the level-set method, which allows to handle changes in the topology of the pore space. The algorithm is based on the finite-difference method and is implemented on the GP-GPU.

**Keywords:** digital rock physics, chemical interaction of the fluid with rock, porous materials, topology of the pore space

Моделирование течения химически активного флюида в пористой среде и его химического взаимодействия с породой является эффективным средством для исследования самых разных процессов, происходящих в подземных толщах: секвестрации (геологического захоронения) углекислого газа в карбонатных коллекторах [1], биоцементации [2], осаждения солей [3], закачки неконденсируемых газов в геотермальные поля [4] и т. д. Основным механизмом, вызывающим изменения геометрии и морфологии порового пространства, являются гетерогенные реакции, происходящие на поверхности раздела жидкости и твердого тела, которые могут привести либо к растворению матрицы, либо к осаждению минералов, то есть к изменению порового пространства и структуры породы в масштабе пор, что в конечном итоге влияет на макроскопические свойства горных пород, включая пористость, гидравлическую проницаемость [5], [6], упругие модули [7], удельное электрическое сопротивление [8] и т.д. Поскольку численное моделирование позволяет изменять входные параметры, такие как входное давление потока, скорость реакции и т.д., то можно оценить их влияние как на изменение геометрии и морфологии порового пространства, так и на макроскопические параметры горных пород в масштабе коллектора.

При моделировании химического взаимодействия мы предполагаем, что при небольших изменениях геометрии порового пространства поток жидкости мгновенно становится устойчивым. В таком случае целесообразно использовать разбиение численного алгоритма по физическим процессам. Сначала можно смоделировать течение жидкости в масштабе пор, для этого необходимо решить уравнения Стокса или Навье-Стокса. Затем решением уравнения конвекции-диффузии можно получить распределение активных компонентов. Последний и наиболее интересный этап – это моделирование перемещения поверхности раздела между жидкостью и твердым телом [9]. Причем для решения этой задачи есть несколько известных подходов.

В методах первого типа для аппроксимации всех уравнений используются правильные прямоугольные сетки. Относительная масса флюида вводится для «граничных» ячеек сетки и изменяется по дополнительному закону, который связан с истинной скоростью реакции [10], [11]. Эти методы легко реализовать, но закон, определяющий скорость относительного изменения массы, является эмпирическим.

Метод второго типа – фронтальной трассировки – основан на явном представлении интерфейса между флюидом и матрицей. Этот подход обычно сочетается с методом конечных объемов с усеченными ячейками [9]. Однако его довольно сложно реализовать, если топология и геометрия порового пространства сложны, как в случае реальных горных пород, и особенно, если топология области постоянно меняется.

Методы третьего типа основаны на неявном представлении поверхности раздела, на которой указаны точные граничные условия. К ним относятся методы установки уровня (level-set method) [12] и фазового поля (phase-field method) [13]. Эти методы, с одной стороны, позволяют использовать оригинальные отношения химической кинетики на масштабе пор, с другой стороны, их легко

реализовать даже в случае непрерывного изменения топологии порового пространства. Кроме того, в них используются регулярные прямоугольные сетки для аппроксимации уравнений в поровом пространстве, а граничные условия аппроксимируются с использованием метода погруженных границ [14], [15].

### *Постановка задачи*

Чтобы смоделировать течение химически активного флюида в масштабе пор, мы предполагаем, что граница раздела движется с самой медленной скоростью, что обычно определяет временной масштаб задачи. Расход жидкости также невысок и мгновенно стабилизируется при небольшом изменении геометрии порового пространства. Таким образом, задача разделяется на три этапа: решение уравнения Стокса для определения потока в поровом пространстве, решение уравнения конвекции-диффузии для моделирования распространения химических веществ и корректировка геометрии порового пространства, изменившейся вследствие растворения.

Рассмотрим задачу, сформулированную в ограниченной области  $D \subset \mathbb{R}^3$ , которая представляет собой объединение двух непересекающихся, зависящих от времени подобластей  $D_p(t)$  и  $D_m(t)$ , соответствующих поровому пространству и матрице, соответственно. Граница этой области – объединение граней:  $\partial D = S_{outlet} \cup S_{inlet} \cup S_{nf}$  (Рисунок 1). Обозначим поверхность раздела между поровым пространством и матрицей как  $\bar{D}_p(t) \cap \bar{D}_m(t) = S(t)$ , которая представляет собой пересечение достаточно гладких поверхностей.

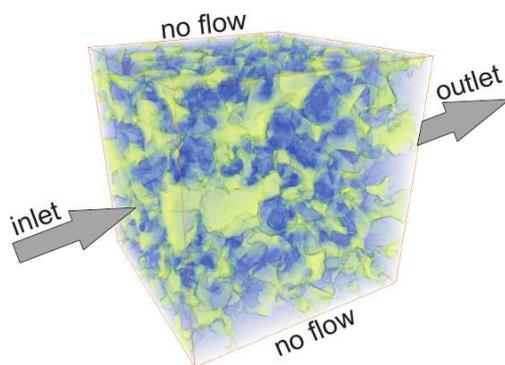


Рисунок 1. Пример модели с границей  $\partial D = S_{outlet} \cup S_{inlet} \cup S_{nf}$ .

Чтобы вычислить поток жидкости в поровом пространстве  $D_p(t)$ , решается стационарное уравнение Стокса:

$$\begin{aligned} \mu \nabla^2 \mathbf{u} - \nabla p &= 0, \\ \nabla \cdot \mathbf{u} &= 0 \end{aligned} \tag{1}$$

с граничными условиями:

$$\mathbf{u}(\mathbf{x}) = 0, \quad \mathbf{x} \in S(t) \cup S_{nf}, \tag{2}$$

$$p(\mathbf{x}) = p_{bc}(\mathbf{x}), \quad \mathbf{x} \in S_{inlet} \cup S_{outlet},$$

где  $\mu$  – динамическая вязкость,  $\mathbf{u} = (u_1, u_2, u_3)^T \in R^3$  – вектор скорости,  $p$  – давление,  $p_{bc}(\mathbf{x})$  – давление на входе и выходе,  $\mathbf{x} = (x_1, x_2, x_3)^T$  – вектор пространственных координат.

Чтобы смоделировать распространение химических веществ в поровом пространстве  $D_p(t)$ , решается уравнение конвекции-диффузии:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{u}C - D\nabla C) = 0 \quad (3)$$

с граничными условиями:

$$D \frac{\partial C}{\partial \mathbf{n}} = k_r(C - C_s), \quad \mathbf{x} \in S(t), \quad (4)$$

$$C = C_{in}, \quad \mathbf{x} \in S_{inlet},$$

$$\frac{\partial C}{\partial \mathbf{n}} = 0, \quad \mathbf{x} \in S_{outlet} \cup S_{nf},$$

где  $C$  – концентрация реагента,  $D$  – коэффициент диффузии,  $\mathbf{n}$  – внутренний нормальный вектор (по отношению к  $D_p(t)$ ),  $k_r$  – коэффициент скорости реакции. Мы рассматриваем только реакции первого порядка, один активный реагент и никаких других источников реагента внутри расчетной области, поэтому правая часть в формуле (3) равна нулю.

Наконец, чтобы учесть перемещение поверхности раздела между флюидом и породой в результате химической реакции, необходимо удовлетворить уравнению:

$$v_n(\mathbf{x}, t) = \frac{K_c k}{\rho} (C - C_s), \quad \mathbf{x} \in S(t), \quad (5)$$

где  $v_n$  – нормальная составляющая скорости поверхности раздела,  $\rho$  – массовая плотность минерала, составляющего скелет породы,  $K_c$  – стехиометрический коэффициент и  $C_s$  – концентрация реагента в состоянии равновесия.

### ***Метод установки уровня***

Для решения уравнений (1) и (3) используется метод конечных разностей, при этом поверхность раздела  $S(t)$  изменяется и в конкретный момент времени может не совпадать с линиями сетки. Чтобы справиться с такой нерегулярной

геометрией интерфейса, используется метод установки уровня, в котором интерфейс  $S(t)$  неявно определяется как линия постоянного уровня функции  $\varphi(\mathbf{x}, t)$ :

$$S(t) = \{\mathbf{x} \mid \varphi(\mathbf{x}, t) = 0\}.$$

Тогда подобласти  $D_p$  и  $D_m$  определяются как

$$D_p(\mathbf{x}, t) = \{\mathbf{x} \mid \varphi(\mathbf{x}, t) > 0\}, \quad D_m(\mathbf{x}, t) = \{\mathbf{x} \mid \varphi(\mathbf{x}, t) < 0\}.$$

Кроме того, функция установки уровня  $\varphi(\mathbf{x}, t)$  строится как расстояние со знаком до поверхности раздела, т.е.  $\|\nabla_{\mathbf{x}}\varphi(\mathbf{x}, t)\| = 1$ . Это приводит к естественному определению вектора нормали

$$\mathbf{n} = \nabla_{\mathbf{x}}\varphi(\mathbf{x}, t).$$

Используя функцию установки уровня, можно переписать уравнение для перемещения интерфейса следующим образом [12], [16]:

$$\frac{\partial\varphi(\mathbf{x}, t)}{\partial t} + v_n(\mathbf{x}, t) = 0, \quad (6)$$

$$\varphi(\mathbf{x}, 0) = \varphi_0,$$

где  $v_n$  – нормальная скорость интерфейса, определяемая уравнением (5).

### **Численные эксперименты**

Применимость алгоритма к моделям реальных горных пород мы демонстрируем на примере данных компьютерной томографии образцов карбоната из Ближнего Востока, представленных в [5]. В данной работе четыре различных образца подвергнуты насыщению  $\text{CO}_2$ , которое привело к растворению их карбонатной матрицы. Различия между образцами заключались в структуре исходного порового пространства и скорости насыщения. Во время этого процесса, чтобы проследить изменение порового пространства, для каждого образца получены по десять томографических изображений, которые предоставлены в базе данных [18]. В своей работе мы используем образец под названием АН из набора. Чтобы смоделировать химическое взаимодействие потока флюида с карбонатом, используется объем образца в  $200^3$  вокселей, физический размер которого при разрешении КТ-сканов в 5,2 мкм на воксель составляет около  $1 \text{ мм}^3$ .

При моделировании используются параметры матрицы и жидкости, указанные в работе [5]. Так, основная матрица представляет собой кальцит с массовой плотностью  $\rho = 2710 \text{ кг/м}^3$  и стехиометрическим коэффициентом реакции, равным единице, т.е.  $K = 1$ . Флюид представляет собой пластовую воду в предположении, что изменения концентрации реагента не влияют на физические свойства

флюида. Таким образом, динамическая вязкость фиксируется как  $\mu = 0,00028$  Па·с, коэффициент диффузии равен  $7,5 \cdot 10^{-9}$  м<sup>2</sup> / с, скорость реакции  $k_r = 0,08$ , а перепад давления 4 Па. Активным компонентом являются катионы Н<sup>+</sup> с равновесной концентрацией  $pH = 7$ , а кислотность на входящей грани  $pH = 3$  в соответствии с лабораторными экспериментами, представленными в работе [7].

На рис. 2 представлены линии тока в три разных момента времени. Видно, что в процессе растворения матрицы формируется основной путь потока, что приводит к образованию червоточки. Чтобы показать, как изменение порового пространства влияет на гидродинамические свойства породы, мы представляем графики пористости и проницаемости в зависимости от времени моделирования (Рисунок 3). И пористость, и проницаемость со временем увеличиваются, но относительно небольшое увеличение пористости приводит к значительному увеличению проницаемости из-за образования червоточин. При этом извилистость немного уменьшается, поскольку предпочтительный путь потока уже существовал в исходной модели. На графике проницаемости в зависимости от пористости (Рисунок 4) видно ее быстрое увеличение с увеличением пористости.

Численное моделирование химического взаимодействия потока флюида с карбонатом с использованием GeForce RTX 2080 Ti заняло 5,3 часа.

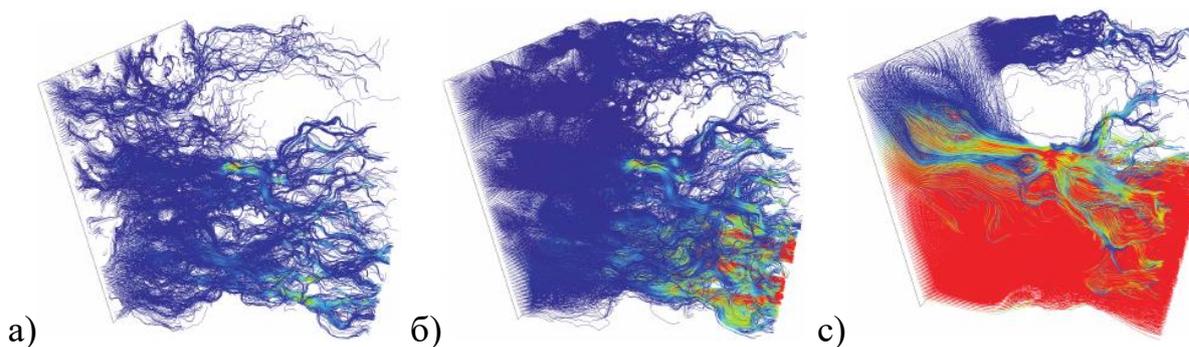


Рис. 2. Линии тока в цифровой модели породы в разные моменты времени при растворении карбонатной матрицы

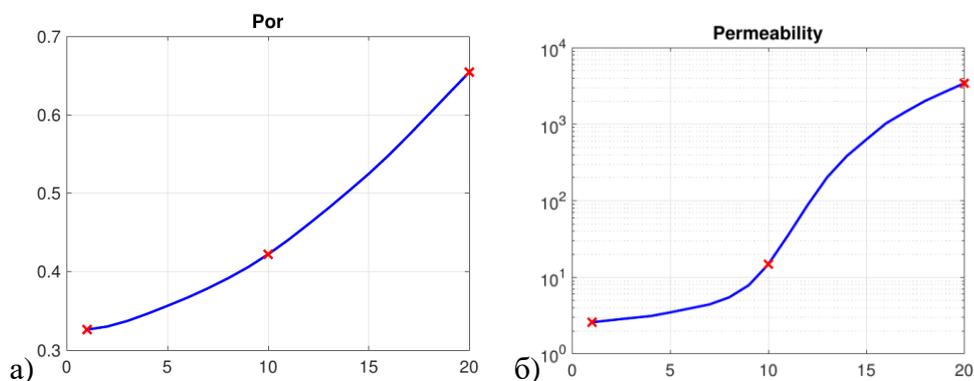


Рис. 3. Зависимость пористости (а) и проницаемости (б) от времени моделирования.

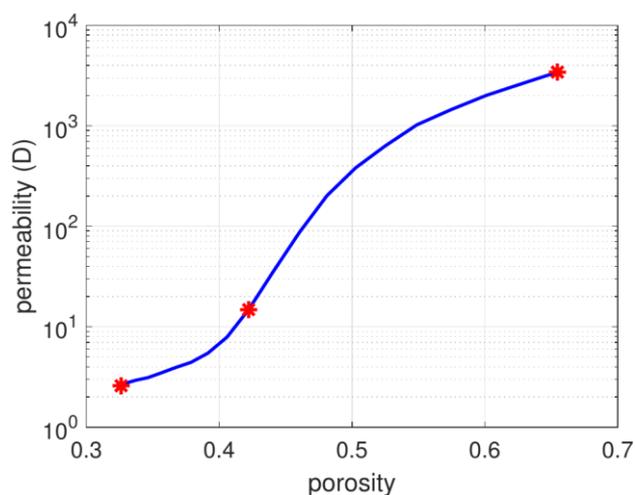


Рис. 4. Зависимость проницаемости от пористости при моделировании взаимодействия химически активного реагента с карбонатом.

### Заключение

В работе представлен численный алгоритм для моделирования химического взаимодействия потока флюида с матрицей породы на масштабе пор в трехмерной постановке. Мы предполагаем, что при небольших изменениях геометрии порового пространства поток жидкости мгновенно становится устойчивым. В этом случае алгоритм можно реализовать с использованием разбиения по физическим процессам. Сначала, поскольку скорость потока флюида мала, он моделируется решением стационарного уравнения Стокса. Затем для моделирования распространения химических веществ с использованием граничных условий Робина решается уравнение конвекции-диффузии. Наконец, для определения поверхности раздела между поровым пространством и матрицей, используется неявный метод установки уровня, а для аппроксимации граничных условий используется метод погруженных границ. Применимость алгоритма к моделям реальных горных пород проиллюстрирована численным экспериментом с моделями карбонатов, построенными на основе данных компьютерной томографии образцов горных пород. Алгоритм основан на методе конечных разностей и реализован на GP-GPU.

*Исследование выполнено при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований № 20-45-540004. Моделирование проводилось с использованием вычислительных ресурсов Сибирского суперкомпьютерного центра СО РАН.*

### БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Miller K, Vanorio T., Keehm Y. Evolution of permeability and microstructure of tight carbonates due to numerical simulation of calcite dissolution // Journal of Geophysical Research: Solid Earth. – 2017. – V. 122. – № 6. – P. 4460-4474.

2. Dadda, A., Geindreau, C. et al. Characterization of microstructural and physical properties changes in biocemented sand using 3D X-ray microtomography // *Acta Geotechnica*. – 2017. – V. 12. –I. 5. –P. 955–970.
3. Alizadeh A. H. et al. Salt precipitation in ultratight porous media and its impact on pore connectivity and hydraulic conductivity // *Water Resources Research*. – 2018. – T. 54. – № 4. – P. 2768-2780.
4. Kaya E., Zarrouk S. J. Reinjection of greenhouse gases into geothermal reservoirs // *International Journal of Greenhouse Gas Control*. – 2017. – V. 67. – P. 111-129.
5. Al-Khulaifi Y. et al. Pore-scale dissolution by CO<sub>2</sub> saturated brine in a multimineral carbonate at reservoir conditions: Impact of physical and chemical heterogeneity // *Water Resources Research*. – 2019. – V. 55. – № 4. – P. 3171-3193.
6. Lisitsa V., Bazaikin Y., Khachkova T. Computational topology-based characterization of pore space changes due to chemical dissolution of rocks // *Applied Mathematical Modelling*. – 2020. – V. 88. – P. 21-37.
7. Lebedev M. et al. Carbon geosequestration in limestone: Pore-scale dissolution and geomechanical weakening // *International Journal of Greenhouse Gas Control*. – 2017. – V. 66. – P. 106-119.
8. Khachkova T. et al. GPU-based algorithm for evaluating the electrical resistivity of digital rocks // *Computers & Mathematics with Applications*. – 2021. – V. 82. – P. 200-211.
9. Molins S. et al. Pore-scale controls on calcite dissolution rates from flow-through laboratory and numerical experiments // *Environmental science & technology*. – 2014. – V. 48. – № 13. – P. 7453-7460.
10. Kang Q. et al. Pore-scale study of dissolution-induced changes in permeability and porosity of porous media // *Journal of Hydrology*. – 2014. – V. 517. – P. 1049-1055.
11. Yoon H. et al. Pore-scale simulation of mixing-induced calcium carbonate precipitation and dissolution in a microfluidic pore network // *Water Resources Research*. – 2012. – V. 48. – № 2.
12. Osher S., Fedkiw R. P. Level set methods: an overview and some recent results // *Journal of Computational physics*. – 2001. – V. 169. – № 2. – P. 463-502.
13. Xu Z., Meakin P. Phase-field modeling of solute precipitation and dissolution // *The Journal of chemical physics*. – 2008. – V. 129. – № 1. – P. 014705.
14. Peskin C. S. Flow patterns around heart valves: a numerical method // *Journal of computational physics*. – 1972. – V. 10. – № 2. – P. 252-271.
15. Sotiropoulos F., Yang X. Immersed boundary methods for simulating fluid–structure interaction // *Progress in Aerospace Sciences*. – 2014. – V. 65. – P. 1-21.
16. Gibou F., Fedkiw R., Osher S. A review of level-set methods and some recent applications // *Journal of Computational Physics*. – 2018. – V. 353. – P. 82-109.
17. Bazaikin Y. et al. Effect of CT image size and resolution on the accuracy of rock property estimates // *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*. – 2017. – V. 122. – № 5. – P. 3635-3647.
18. Al-Khulaifi Y. et al. Pore-scale dissolution by CO<sub>2</sub> saturated brine in a multimineral carbonate at reservoir conditions: Impact of physical and chemical heterogeneity // <https://doi.org/10.5285/52b08e7f-9fba-40a1-b0b5-dda9a3c83be2>.

## REFERENCES

1. Miller K, Vanorio T., Keehm Y. Evolution of permeability and microstructure of tight carbonates due to numerical simulation of calcite dissolution // *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*. – 2017. – V. 122. – № 6. – P. 4460-4474.
2. Dadda, A., Geindreau, C. et al. Characterization of microstructural and physical properties changes in biocemented sand using 3D X-ray microtomography // *Acta Geotechnica*. – 2017. – V. 12. –I. 5. –P. 955–970.

3. Alizadeh A. H. et al. Salt precipitation in ultratight porous media and its impact on pore connectivity and hydraulic conductivity // *Water Resources Research*. – 2018. – T. 54. – № 4. – P. 2768-2780.
4. Kaya E., Zarrouk S. J. Reinjection of greenhouse gases into geothermal reservoirs // *International Journal of Greenhouse Gas Control*. – 2017. – V. 67. – P. 111-129.
5. Al-Khulaifi Y. et al. Pore-scale dissolution by CO<sub>2</sub> saturated brine in a multimineral carbonate at reservoir conditions: Impact of physical and chemical heterogeneity // *Water Resources Research*. – 2019. – V. 55. – № 4. – P. 3171-3193.
6. Lisitsa V., Bazaikin Y., Khachkova T. Computational topology-based characterization of pore space changes due to chemical dissolution of rocks // *Applied Mathematical Modelling*. – 2020. – V. 88. – P. 21-37.
7. Lebedev M. et al. Carbon geosequestration in limestone: Pore-scale dissolution and geomechanical weakening // *International Journal of Greenhouse Gas Control*. – 2017. – V. 66. – P. 106-119.
8. Khachkova T. et al. GPU-based algorithm for evaluating the electrical resistivity of digital rocks // *Computers & Mathematics with Applications*. – 2021. – V. 82. – P. 200-211.
9. Molins S. et al. Pore-scale controls on calcite dissolution rates from flow-through laboratory and numerical experiments // *Environmental science & technology*. – 2014. – V. 48. – № 13. – P. 7453-7460.
10. Kang Q. et al. Pore-scale study of dissolution-induced changes in permeability and porosity of porous media // *Journal of Hydrology*. – 2014. – V. 517. – P. 1049-1055.
11. Yoon H. et al. Pore-scale simulation of mixing-induced calcium carbonate precipitation and dissolution in a microfluidic pore network // *Water Resources Research*. – 2012. – V. 48. – № 2.
12. Osher S., Fedkiw R. P. Level set methods: an overview and some recent results // *Journal of Computational physics*. – 2001. – V. 169. – № 2. – P. 463-502.
13. Xu Z., Meakin P. Phase-field modeling of solute precipitation and dissolution // *The Journal of chemical physics*. – 2008. – V. 129. – № 1. – P. 014705.
14. Peskin C. S. Flow patterns around heart valves: a numerical method // *Journal of computational physics*. – 1972. – V. 10. – № 2. – P. 252-271.
15. Sotiropoulos F., Yang X. Immersed boundary methods for simulating fluid–structure interaction // *Progress in Aerospace Sciences*. – 2014. – V. 65. – P. 1-21.
16. Gibou F., Fedkiw R., Osher S. A review of level-set methods and some recent applications // *Journal of Computational Physics*. – 2018. – V. 353. – P. 82-109.
17. Bazaikin Y. et al. Effect of CT image size and resolution on the accuracy of rock property estimates // *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*. – 2017. – V. 122. – № 5. – P. 3635-3647.
18. Al-Khulaifi Y. et al. Pore-scale dissolution by CO<sub>2</sub> saturated brine in a multimineral carbonate at reservoir conditions: Impact of physical and chemical heterogeneity // <https://doi.org/10.5285/52b08e7f-9fba-40a1-b0b5-dda9a3c83be2>.

© Т. С Хачкова, В. В. Лисица, 2021