

УДК: 544.77.052.5

МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССА БИНАРНОЙ КОАЛЕСЦЕНЦИИ КАПЕЛЬ ВОДОНЕФТЯНОЙ ЭМУЛЬСИИ

© 2025 г. С. А. Киселев^a *, Д. С. Полубоярцев^a, И. Р. Долгов^a, И. В. Литвинец^a,
А. А. Ящук^b, Н. С. Белинская^c

^aАО “ТомскНИПИнефть”, Томск, Россия

^bНациональный исследовательский Томский государственный университет, Томск, Россия

^cНациональный исследовательский Томский политехнический университет, Томск, Россия

*e-mail: kiselevsa@tomsknipe.ru

Поступила в редакцию 12.01.2024

После доработки 31.10.2024

Принята в печать 30.11.2024

В работе представлена попытка формирования общего подхода к математическому моделированию бинарной коалесценции, возникающей за счет осаждения капель в гравитационном поле, основанному на уравнении популяционного баланса, который в дальнейшем может быть применен для прогнозирования условий расслоения водонефтяных эмульсий. С использованием экспериментальных кривых изменения содержания воды во времени в водонефтяных эмульсиях, измеренных при разных температурах, произведено сравнение четырех разных способов расчета эффективности бинарной коалесценции.

Ключевые слова: бинарная коалесценция, уравнение популяционного баланса, водонефтяная эмульсия

DOI: 10.31857/S0040357125020091 **EDN:** ndsgts

ВВЕДЕНИЕ

В процессах добычи и сбора продукции нефтяных скважин возникают условия интенсивного перемешивания нефтегазоводяной смеси, что приводит к образованию обратных водонефтяных эмульсий (ВНЭ) [1-3]. Чтобы снизить затраты на транспортировку нефти на площадных объектах нефтегазодобычи, осуществляется промысловая подготовка нефти, включающая процесс обезвоживания. Для разделения ВНЭ применяют различные методы [4], однако, наиболее распространенным является гравитационное отстаивание, стимулируемое термохимическим воздействием. Движущей силой этого процесса является разность плотностей жидкостей, которая заставляет капли эмульсии осаждаться, при этом капли, отличающиеся в размере, двигаются с разной скоростью, что приводит к их столкновению.

Столкновение двух капель, приводящее к слиянию, называется бинарной коалесценцией. В результате бинарной коалесценции количество диспергированных капель уменьшается, а скорость их осаждения возрастает за счет увели-

чения размера. Из-за этого бинарная коалесценция играет ключевую роль в процессе расслоения ВНЭ.

Еще одним важным процессом является поверхностная коалесценция, характеризующая взаимодействие капли с плоской поверхностью водной фазы [5, 6]. При низкой скорости процесса поверхностной коалесценции может наблюдаться накопление капель пластовой воды на границе раздела фаз, что приводит к образованию отдельного слоя, который называется зоной плотной упаковки или промежуточным эмульсионным слоем.

Каждая ВНЭ может быть охарактеризована временем расслоения, зависящим от времени осаждения и скорости коалесценции капель. Скорость коалесценции зависит от свойств межфазной пленки, формирующейся за счет адсорбции компонентов жидкостей, таких как асфальтены [7-9], парафины, церезины, смолы [10], твердые неорганические частицы (частицы породы, продукты коррозии, минеральные соли) [11, 12], а также свойств жидкостей, таких как значение кислотного числа нефти [13],

[14], водородный показатель воды [15, 16] и минерализация пластовой воды [17], которые влияют на адсорбцию и структурообразующие свойства компонентов [18–22]. Для удаления межфазной пленки и дестабилизации эмульсии используют специальные обезвоживающие химические реагенты, которые называют деэмульгаторами.

Для корректной оценки производительности оборудования при проектировании новых площадных объектов или перераспределении потоков между действующими установками требуется установить время расслоения ВНЭ. Из-за множества факторов, влияющих на процесс расслоения ВНЭ, для определения требуемых параметров ведения технологического процесса на практике используются экспериментальные зависимости динамики формирования отдельного слоя пластовой воды, определяемые в лабораторных исследованиях. Чтобы выполнить исследования, необходимо осуществить отбор и доставку проб скважинной продукции в лабораторию или провести измерения непосредственно на месторождении, что существенно увеличивает время получения результатов, а в некоторых случаях не представляется возможным. В связи с этим необходимость оперативной оценки времени расслоения ВНЭ в заданных условиях представляет собой актуальную задачу.

Одним из способов оценки скорости расслоения ВНЭ является математическое моделирование. За последнее время большое распространение получили модели, основанные на уравнении популяционного баланса, которое лучше отражает поведение нефтяных дисперсий за счет представления ее в виде набора отличающихся размером частиц, взаимодействующих между собой. Такие модели предоставляют возможность учесть скорость бинарной коалесценции [23–27]. В сочетании с многофазными гидродинамическими расчетами могут быть получены модели для симулирования работы промысловых аппаратов, таких как отстойник [28] и трехфазный сепаратор [29]. Указанные преимущества открывают возможность для использования реальных характеристик дисперсий воды и нефти для выполнения расчетов.

Основной целью данной работы является подтверждение возможности расчета скорости расслоения ВНЭ, полученной из нефтей Западно-Сибирской нефтегазоносной провинции, в гравитационном поле и установление влияния температуры на процесс бинарной коалесценции с использованием модели, основанной на уравнении популяционного баланса.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Свойства жидкостей. Для выполнения исследований выбрана смесь близкая по составу и свойствам к наиболее распространенным нефтям Западной Сибири. При формировании искусственной ВНЭ использовалась модель пластовой воды. Свойства жидкостей представлены в табл. 1.

Таблица 1. Свойства пластовых жидкостей

Параметр	Ед. изм.	Значение
Нефть (безводная)		
Плотность нефти:	—	—
при плюс 20°C	кг/м ³	880.7
при плюс 50°C		860.7
при плюс 70°C		847.8
Кинематическая вязкость нефти:	—	—
при плюс 20°C	мм ² /с	27.75
при плюс 50°C		9.222
при плюс 70°C		6.003
Пластовая вода		
Плотность воды:	—	—
при плюс 20°C	кг/м ³	1012.0
при плюс 50°C		1003.0
при плюс 70°C		990.0

Получение экспериментальных результатов. Искусственная ВНЭ была получена путем смешения нефти (содержание воды менее 0.5 мас. %) и искусственно созданной пластовой воды при помощи верхнеприводной мешалки Labtech OS-20 LT с использованием якоря пропеллерного типа. Скорость перемешивания – 400 об/мин, время перемешивания – 7 минут, объем эмульсии – 400 мл. После приготовления часть эмульсии отбиралась для измерения распределения капель по размерам посредством оптического микроскопа “Микмед-5”. Обработку микрофотографий осуществляли с помощью программы MMC Multimeter (относительная погрешность 2%).

Для исследования процесса разрушения ВНЭ была использована установка, схема которой представлена на рис. 1.

В течение эксперимента с установленным времененным интервалом осуществлялось измерение содержания пластовой воды на разных высотных отметках емкости (1/2 и 3/4 от высоты емкости). Содержание воды определялось методом Карла-Фишера на титраторе Mettler Toledo V20 (относительная погрешность 10%).

Математическая модель. Для описания коллоидных процессов, протекающих при расслоении ВНЭ, была применена дискретная форма уравнения популяционного баланса:

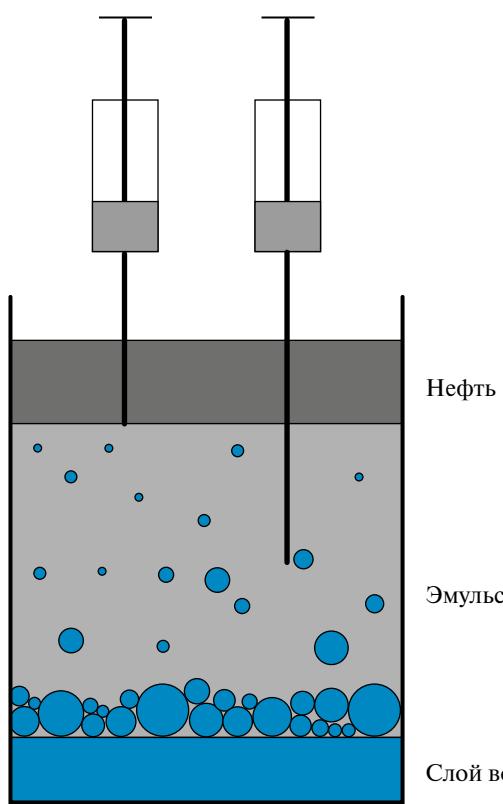


Рис. 1. Схема экспериментальной установки.

$$\frac{\partial N_k}{\partial t} = w_k \frac{\partial N_k}{\partial z} + Q_k. \quad (1)$$

Преобразование уравнения популяционного баланса популяций было выполнено при помощи метода *fixed pivot technique* [30]. Аналогичный подход был ранее успешно применен в работах [23, 25, 27]. Скорость бинарной коалесценции Q_k описывается уравнением (2):

$$Q_k = \frac{1}{2} \sum_{i,j=1}^{N_t} \eta_k \beta_{i,j} N_i N_j - N_k \sum_{i=1}^{N_t} \beta_{k,i} N_i, \quad (2)$$

$$\eta_k = \begin{cases} \frac{x_{k+1} - v}{x_{k+1} - x_k}, & \text{если: } x_k \leq v \leq x_{k+1}, \\ \frac{v - x_{k-1}}{x_k - x_{k-1}}, & \text{если: } x_{k-1} \leq v \leq x_k, \\ 0, & \text{если: } v < x_{k-1}, \\ 0, & \text{если: } x_{k+1} < v, \end{cases}$$

$$v = x_i + x_j.$$

Внутренней координатой является объем капли k -го типа (узла), полученный в соответствии с уравнением (3):

$$x_{k+1} = q x_k. \quad (3)$$

Необходимо отметить, что в уравнение (1), используемое в рамках данной работы, не включен процесс диффузии капель жидкости. Данное решение обусловлено незначительным влиянием диффузии на процесс расслоения ВНЭ в связи с достаточно большим минимальным диаметром капель пластовой воды (5 мкм).

Скорость осаждения капель w_k является одним из основных параметров, влияющих на процесс расслоения ВНЭ. При одновременном осаждении большого количества капель возникают восходящие потоки вытесняемой жидкости, вследствие чего процесс осаждения замедляется. Скорость стесненного осаждения рассчитывается по уравнению

$$w_k = w_{k\infty} (1-\varphi)^{n_k}. \quad (4)$$

Индекс стесненного осаждения n_k рассчитывается в соответствии с работой [31] по формуле:

$$n_k = 2.35 \frac{2 + 0.175 Re_{k\infty}^{\frac{3}{4}}}{1 + 0.175 Re_{k\infty}^{\frac{3}{4}}}. \quad (5)$$

Предельная скорость осаждения $w_{k\infty}$ для установившегося процесса осаждения может быть рассчитана с использованием уравнения

$$w_{k\infty} = \left(\frac{4 d_k g \Delta \rho}{3 p_o C_D} \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (6)$$

Коэффициент сопротивления C_D для чисел Рейнольдса до 2.6×10^5 может быть рассчитан по формуле [32]:

$$C_D = \frac{24}{Re_{k\infty}} \left(1 + 0.1806 Re_{k\infty}^{0.6459} \right) + \frac{0.4251}{1 + \frac{6880.95}{Re_{k\infty}}}. \quad (7)$$

Для оценки числа Рейнольдса $Re_{k\infty}$ используется уравнение [33-35]:

$$Re_{k\infty} = Ga_k^{\frac{1}{3}} \left(\left(\frac{18}{Ga_k^{\frac{2}{3}}} \right)^{0.824} + \left(\frac{0.21}{Ga_k^{\frac{1}{3}}} \right)^{0.412} \right)^{-1.214}, \quad (8)$$

$$Ga_k = \frac{p_o \Delta \rho g d_k^3}{\mu_o^2}.$$

Бинарная коалесценция. Увеличение размера капель дисперсной фазы зависит от частоты бинарной коалесценции $\beta_{k,i}$, которая численно

равна произведению частоты соударений капель $f_{k,i}$ и эффективности столкновений $\varepsilon_{k,i}$ [36].

Частота столкновений капель в процессе расслоения эмульсии представляет собой сумму частоты столкновений капель за счет седиментации $f_{S(k,i)}$ и в результате броуновского движения $f_{B(k,i)}$:

$$f_{k,i} = f_{S(k,i)} + f_{B(k,i)}, \quad (9)$$

$$f_{S(k,i)} = \frac{\pi}{4} (d_k + d_i)^2 |w_k - w_i|, \quad (10)$$

$$f_{B(k,i)} = \frac{2KT}{\mu_o} \left(\frac{1}{d_k} + \frac{1}{d_i} \right) (d_k + d_i). \quad (11)$$

Частота столкновений за счет седиментации (10) растет с увеличением разницы в скоростях осаждения. Исходя из этого, капли, значительно отличающиеся размерами, будут иметь высокую частоту столкновений. Однако крупные капли при осаждении создают восходящий поток вытесняемой жидкости, который будет отклонять мелкие капли, встречающиеся на пути крупной капли, в связи с этим при увеличении разницы размеров капель число столкновений должно снижаться. Для проверки этой гипотезы авторами статьи предложен коэффициент $S_{k,i} = d_i^3 / d_k^3$, если $k > i$ и d_k^3 / d_i^3 , если $i > k$. Произведение коэффициента и выражения (10) позволит снизить число столкновений для капель с большой разницей в размерах.

В рамках данной работы с целью оценки практической применимости были рассмотрены четыре различных подхода к расчету эффективности столкновений капель $\varepsilon_{k,i}$. Представленные модели отличаются только выражениями для расчета эффективности столкновений капель, определяющих скорость бинарной коалесценции, и, следовательно, скорость расслоения эмульсии. Ниже представлена более подробная информация о каждом выражении для расчета эффективности столкновений.

Модель № 1 сформирована на основании работы [37, 38]. Эффективность столкновения рассчитывается по формуле

$$\varepsilon_{k,i} = e^{-\frac{t_{d(k,i)}}{t_{c(k,i)}}}. \quad (12)$$

Время контакта $t_{c(k,i)}$, представляющее собой интервал времени между касанием капель и моментом, когда капли начинают отталкиваться друг от друга, рассчитывается по формуле

$$t_{c(k,i)} = \frac{\pi}{4} \left(\frac{\rho_o C_{CM} d_{eq}^3}{3\sigma} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (13)$$

$$d_{eq} = \frac{2d_k d_i}{d_k + d_i}.$$

Время дренажа $t_{d(k,i)}$ между двумя каплями рассчитывается по формуле

$$t_{d(k,i)} = \frac{\rho_o V_r d_{eq}^2}{8\sigma}. \quad (14)$$

Коэффициент k_I является безразмерным. Стоит отметить, что отношение $t_{d(k,i)} / t_{c(k,i)}$ зависит от свойств жидкостей и размера капель, характеризует свойства межфазной пленки. В зависимости от размера капли воды могут проявлять различные свойства при столкновении. Мелкие капли в отличие от крупных менее склонны к деформации. Это определяет различия капель разного размера в их способности противостоять воздействию сил, возникающих при столкновении и приводящих к слиянию капель. Межфазная пленка на поверхности капель, сформированная природными поверхностно-активными веществами, может обладать различными свойствами. В зависимости от состава межфазные пленки делятся на твердые и жидкые. При наличии на поверхности капель дисперсной фазы жестких пленок формируются устойчивые эмульсии, поскольку они имеют высокую вязкость, препятствующую слиянию капель [18, 21, 22, 39, 40]. Образование прочных пленок имеет много особенностей, но в основном они формируются асфальтенами [19–22, 40] в связи с их способностью образовывать межмолекулярные агрегаты [18, 37, 41].

Модель № 2. Расчет эффективности коалесценции описывается аналитически выражением из работы [26]

$$\varepsilon_{k,i} = e^{-\frac{t_{bc(k,i)}}{k_H}} \quad (15)$$

и определяется отношением времени истончения пленки $t_{bc(k,i)}$ к коэффициенту k_H , который характеризует время контакта любой пары капель и имеет размерность времени.

Время истончения пленки описывается уравнением

$$t_{bc(k,i)} = 1.046 \left(\frac{3}{4\pi} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{\mu_o (\rho_w - \rho_o) g}{\sigma^{\frac{3}{2}} B^{\frac{1}{2}}} \left(\frac{\frac{1}{v_k^3} \frac{1}{v_i^3}}{\frac{1}{v_k^3} + \frac{1}{v_i^3}} \right)^{\frac{9}{2}}. \quad (16)$$

Модель № 3. Авторами данной работы было сделано предположение о равенстве времени дренажа пленки всех пар сталкивающихся капель, время контакта было представлено как

отношение сумм диаметров капель к разности скоростей. Таким образом, эффективность столкновений определяется выражением

$$\varepsilon_{k,i} = e^{-k_{III} \frac{1,5|w_k - w_i|}{d_k + d_i}}. \quad (17)$$

Коэффициент k_{III} в данном случае отражает среднее время контакта капель и имеет размерность времени.

Модель № 4. Аналогично работе [25] эффективность бинарной коалесценции представляет собой эмпирический безразмерный коэффициент $\varepsilon_{k,i} = k_{IV}$.

Реализация моделей. Алгоритмы численного решения были реализована на языке Python 3.6 (дистрибутив Anaconda). Для решения системы дифференциальных уравнений относительно пространственной координаты использовался метод конечных разностей. Для решения уравнения относительно временной координаты применялся метод Рунге-Кутты 4-го порядка, реализованный в библиотеке SciPy (`scipy.integrate.solve_ivp`). С целью сокращения времени расчетов использовался Jit-компилятор из библиотеки Numba.

Выполнение расчетов. Для оценки отклонения результатов расчета от экспериментальных значений обводненности использовалась невязка в виде:

$$E = \sum_{z=\frac{1}{2}H, \frac{3}{4}H}^m \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m \frac{(X_i^c - X_i^e)^2}{X_i^{e2}}, \quad (18)$$

в которой отклонения рассматриваются в точках измерения на уровне $\frac{1}{2}$ и $\frac{3}{4}$ высоты емкости. Подбор коэффициентов всех моделей $k_I - k_{IV}$ осуществлялся путем минимизации невязки E методом Нелдера-Мида, реализованным в библиотеке SciPy. Для поиска решения, соответствующего глобальному минимуму невязки, начальные значения коэффициентов варьиро-

вались случайным образом в физически допустимом диапазоне значений.

На начальном этапе расчетов была выполнена оценка необходимого числа пространственных дискретизаций Z и внутренних узлов N_t . Увеличение каждого из параметров повышает точность, но требует больших вычислительных ресурсов и временных затрат. Таким образом, для получения надежных и практически применимых результатов расчетов необходимо определить оптимальные значения данных параметров.

Зависимости коэффициента бинарной коалесценции k_{II} и величины невязки E от числа пространственных дискретизаций Z представлены на рис. 2.

Количество типов капель N_t при помощи параметра q подбирали таким образом, чтобы максимальное значение диаметра капли составляло 1029 мкм, при этом минимальный диаметр оставался неизменным и равным 1 мкм (значения установлены в результате микроскопических исследований эмульсии). Зависимости коэффициента бинарной коалесценции k_{II} и величины невязки E от количества типов капель представлены в табл. 2.

Таблица 2. Влияние числа внутренних узлов N_t на коэффициент k_{II} и величину невязки E

N_t	q	k_{II} , с	E
30	1.7757	4.376	0.78
50	1.4047	4.158	0.58
70	1.2730	3.572	0.61
90	1.2058	3.381	0.67
100	1.1832	2.968	0.78

Из данных, представленных в табл. 2, видно, что величина k_{II} имеет обратную зависимость от числа типов капель. Этот факт свидетельствует о невозможности применения коэффициен-

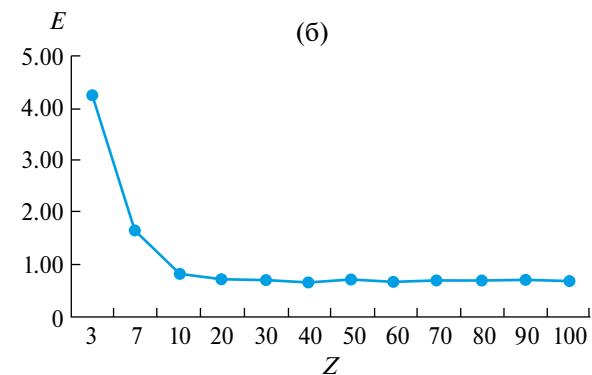
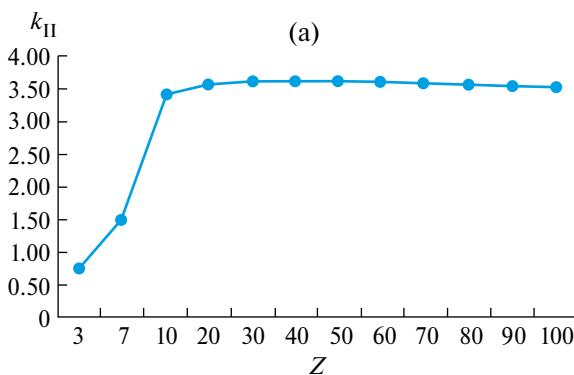


Рис. 2. Влияние числа пространственных дискретизаций Z на численное значение коэффициента k_{II} и величину невязки E : (а) – численное значение коэффициента k_{II} ; (б) – величина невязки E .

тов, полученных для одного числа типов капель, в расчетах с другим количеством типов капель.

На основании вышесказанного для расчетов использовались следующие параметры: $N_t = 35$, $q = 1.46$, $Z = 50$, $\Delta z = 0.00178$ м, $\Delta t = 0.25$ с, $t = 4000$ с.

Начальные и граничные условия. Начальная концентрация капель каждого типа во всем объеме задается начальным распределением $N_k|_{t=0} = N_k^0$, измеренным экспериментально. При $z = H$, что соответствует верхней точке, $N_k|_{z=H} = 0$ для $t > 0$.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 3 представлены совмещения зависимостей остаточного содержания воды от времени для $\frac{1}{2}$ и $\frac{3}{4}$ высоты емкости, полученных в эксперименте и посредством расчетов с использованием модели № 2.

Из данных, представленных на рис. 3, видно, что экспериментальные кривые, измеренные на разных высотах и при разных температурах, имеют аналогичную форму, однако кривая на $\frac{1}{2}$ высоты емкости имеет более поздний спад остаточной обводненности, что является следствием осаждения капель с вышележащих слоев эмуль-

сии. Важно отметить, что формы кривых не претерпевают значительных изменений при повышении температуры, наблюдается сокращение времени осаждения и увеличения частоты соударений капель за счет снижения вязкости нефти и увеличения разницы плотностей, а также изменения коэффициентов, характеризующих скорость бинарной коалесценции (подробнее результаты модели № 2 будут обсуждены ниже). Расчетные кривые имеют аналогичную форму, похожую на экспериментальные, и повторяют зависимости от высоты и температуры.

Выражения, описывающие процесс бинарной коалесценции, содержат только один коэффициент, позволяющий регулировать эффективность столкновений. С целью рассмотрения возможности повышения точности расчетов в каждую модель дополнительно был введен поправочный коэффициент $k^*(k_I^* - k_{IV}^*)$, регулирующий частоту столкновений капель дисперсной фазы, а также множитель S , ограничивающий столкновения капель, значительно отличающихся размером. Выражения, используемые для расчета скорости бинарной коалесценции, представлены в табл. 3.

В табл. 4 представлены значения коэффициентов, а также величина остаточной невязки, по-

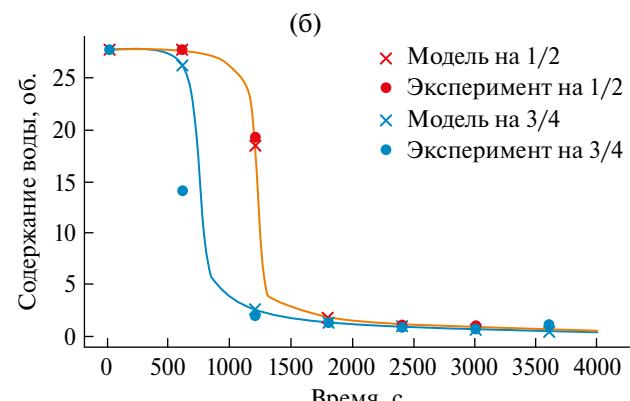
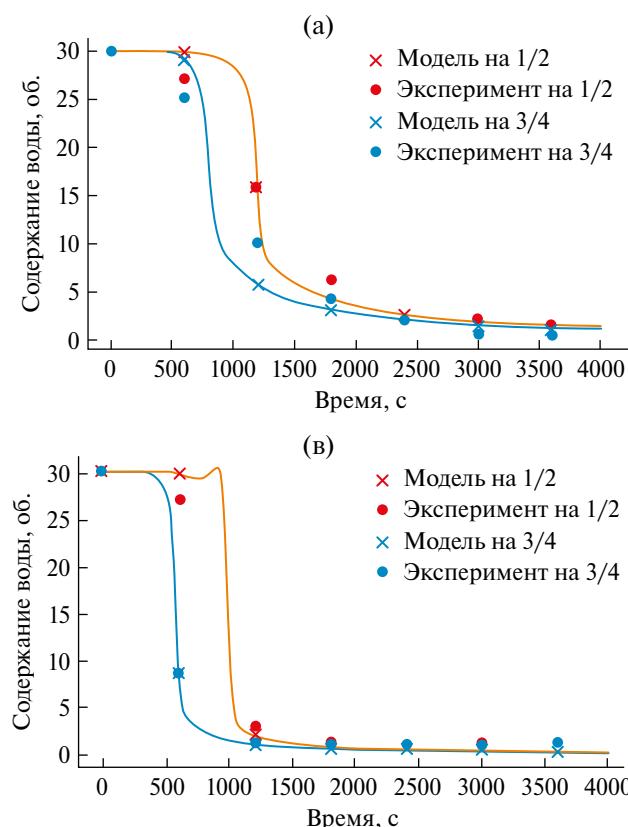


Рис. 3. Совмещение экспериментальных и расчетных зависимостей обводненности эмульсии от времени на $\frac{1}{2}$ и $\frac{3}{4}$ от высоты емкости при разных температурах для модели № 2: (а) 20°C; (б) 50°C; (в) 70°C.

Таблица 3. Выражения, используемые для вычисления скорости бинарной коалесценции

Модель	Количество параметров	S	Формула
№1	1	нет	$\beta_{k,i} = \left(f_{B_{k,i}} + f_{S_{k,i}} \right) e^{-\mathbf{k}_{I(1)} t_{k,i}^d / t_{k,i}^c} \quad (19)$
№1	1	да	$\beta_{k,i} = \left(f_{B_{k,i}} + f_{S_{k,i}} S_{k,i} \right) e^{-\mathbf{k}_{I(2)} t_{k,i}^d / t_{k,i}^c} \quad (20)$
№1	2	нет	$\beta_{k,i} = \mathbf{k}_{I(3)}^* \left(f_{B_{k,i}} + f_{S_{k,i}} \right) e^{-\mathbf{k}_{I(3)} t_{k,i}^d / t_{k,i}^c} \quad (21)$
№1	2	да	$\beta_{k,i} = \mathbf{k}_{I(4)}^* \left(f_{B_{k,i}} + f_{S_{k,i}} S_{k,i} \right) e^{-\mathbf{k}_{I(4)} t_{k,i}^d / t_{k,i}^c} \quad (22)$
№2	1	нет	$\beta_{k,i} = \left(f_{B_{k,i}} + f_{S_{k,i}} \right) e^{-t_{bc(k,i)} / \mathbf{k}_{H(1)}} \quad (23)$
№2	1	да	$\beta_{k,i} = \left(f_{B_{k,i}} + f_{D_{k,i}} S_{k,i} \right) e^{-t_{bc(k,i)} / \mathbf{k}_{H(2)}} \quad (24)$
№2	2	нет	$\beta_{k,i} = \mathbf{k}_{H(3)}^* \left(f_{B_{k,i}} + f_{S_{k,i}} \right) e^{-t_{bc(k,i)} / \mathbf{k}_{H(3)}} \quad (25)$
№2	2	да	$\beta_{k,i} = \mathbf{k}_{H(4)}^* \left(f_{B_{k,i}} + f_{S_{k,i}} S_{k,i} \right) e^{-t_{bc(k,i)} / \mathbf{k}_{H(4)}} \quad (26)$
№3	1	нет	$\beta_{k,i} = \left(f_{B_{k,i}} + f_{S_{k,i}} \right) e^{-\mathbf{k}_{III(1)} \frac{1.5 w_k - w_i }{(d_k + d_i)}} \quad (27)$
№3	1	да	$\beta_{k,i} = \left(f_{B_{k,i}} + f_{S_{k,i}} S_{k,i} \right) e^{-\mathbf{k}_{III(2)} \frac{1.5 w_k - w_i }{(d_k + d_i)}} \quad (28)$
№3	2	нет	$\beta_{k,i} = \mathbf{k}_{III(3)}^* \left(f_{B_{k,i}} + f_{DS_{k,i}} \right) e^{-\mathbf{k}_{III(3)} \frac{1.5 w_k - w_i }{(d_k + d_i)}} \quad (29)$
№3	2	да	$\beta_{k,i} = \mathbf{k}_{III(4)}^* \left(f_{B_{k,i}} + f_{DS_{k,i}} S_{k,i} \right) e^{-\mathbf{k}_{III(4)} \frac{1.5 w_k - w_i }{(d_k + d_i)}} \quad (30)$
№4	1	нет	$\beta_{k,i} = \mathbf{k}_{IV(1)} \left(f_{B_{k,i}} + f_{S_{k,i}} \right) \quad (31)$
№4	1	да	$\beta_{k,i} = \mathbf{k}_{IV(2)} \left(f_{B_{k,i}} + f_{S_{k,i}} S_{k,i} \right) \quad (32)$

лученные в результате поиска решений.

Из данных табл. 4 видно, что минимальные значения невязки соответствуют моделям № 1 и № 2 с применением множителя, ограничивающего столкновения. При этом отличия между моделями с одним и двумя коэффициентами незначительные, о чем дополнительно свидетельствуют значения коэффициентов k^* , близкие к единице. Существенное увеличение качества результатов наблюдается при использовании ограничивающего множителя в случае моделей № 1, № 2 и № 3, однако в случае модели № 4 та-

кой эффект является обратным. Интересным фактом является невысокое качество результатов модели № 4, в которой эффективность коалесценции пары капель любого размера является одинаковой. Это свидетельствует о том, что эффективность бинарной коалесценции является более сложной функцией и зависит от размера сталкивающихся капель.

Ождалось, что значение коэффициентов будет оставаться неизменным с ростом температуры, а прирост в скорости осаждения будет достигаться за счет значительного снижения

Таблица 4. Значения коэффициентов и величина остаточной невязки

№ модели	Temпература	<i>k</i>		<i>k</i> , <i>S</i>		<i>k</i> , <i>k</i> *			<i>k</i> , <i>k</i> *, <i>S</i>		
		<i>k</i>	<i>E</i>	<i>k</i>	<i>E</i>	<i>k</i>	<i>k</i> *	<i>E</i>	<i>k</i>	<i>k</i> *	<i>E</i>
1	20°C	0.781	1.27	0.202	0.75	0.782	0.999	1.27	0.202	1.061	0.63
	50°C	4.031	1.34	1.782	0.36	4.031	1.002	1.34	1.782	1.021	0.35
	70°C	3.919	1.41	1.155	0.55	3.919	0.996	1.41	1.155	0.971	0.53
	Среднее	—	1.34	—	0.55	—	—	1.34	—	—	0.50
2	20°C	81.91	1.17	3.617	0.70	81.91	0.964	1.17	3.617	0.997	0.70
	50°C	698.44	1.3	142.82	0.27	698.44	1.258	1.3	142.82	1.005	0.27
	70°C	1317.50	1.3	170.39	0.56	1317.50	0.969	1.3	170.39	0.975	0.55
	Среднее	—	1.26	—	0.51	—	—	1.26	—	—	0.51
3	20°C	0.045	0.39	22.83	1.87	0.045	0.041	0.47	22.83	1.013	1.79
	50°C	0.023	4.49	22.73	2.76	0.023	0.019	4.04	22.73	1.073	1.93
	70°C	0.039	0.62	14.61	0.42	0.039	0.028	0.76	14.61	1.006	0.41
	Среднее	—	1.83	—	1.68	—	—	1.76	—	—	1.38
4	20°C	0.040	0.48	0.574	2.99	—	—	—	—	—	—
	50°C	0.019	4.03	0.334	3.39	—	—	—	—	—	—
	70°C	0.026	0.80	0.262	1.27	—	—	—	—	—	—
	Среднее	—	1.77	—	2.55	—	—	—	—	—	—

вязкости и плотности нефти. Близкое значение коэффициентов наблюдается для моделей № 3 и № 4. Для модели № 2 наблюдается увеличение коэффициента k_{II} с ростом температуры. Возможно данный факт связан с особенностями самого коэффициента, который характеризует некоторое среднее время контакта капель. Увеличение времени контакта с ростом температуры невозможно объяснить изменением свойств жидкостей. Известно, что скорость дренажа жидких битумных пленок, покрывающих стекающиеся капли воды, хорошо описывается уравнением Рейнольдса для плоскопараллельного течения [19, 22], включающим такую характеристику, как вязкость межфазной пленки. Выражение для расчета эффективности столкновений в модели № 2 не содержит вязкость межфазной пленки, которая может снижаться при повышении температуры и сокращать время коалесценции. В таком случае значение коэффициента k_{II} может отражать изменение этой характеристики.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Для оценки перспектив дальнейшего применения произведено сравнение четырех математических моделей осаждения капель, отличающихся выражением расчета бинарной коалесценции в идентичных условиях с использованием экспериментальных данных, получен-

ных при отстаивании ВНЭ. На основании величины остаточной невязки показано, что для прогнозирования времени расслоения ВЭ лучше применять выражения, характеризующие скорость бинарной коалесценции, использованные в моделях № 1 и № 2.

Установлено, что коэффициенты, характеризующие скорость бинарной коалесценции, зависят от количества типов капель, этот факт ограничивает возможность применения коэффициентов как универсальной характеристики скорости процесса слияния капель и накладывает дополнительное требование на использование внутренней сетки с одинаковым количеством типов капель.

Применение множителя *S*, снижающего частоту столкновений, значительно отличающихся размерами капель, улучшает качество расчетов, а также подтверждает актуальность уточнения зависимости частоты бинарных столкновений от размера капель при гравитационном отстаивании. Включение дополнительных коэффициентов в модели не повышает качество результатов.

ОБОЗНАЧЕНИЯ

<i>B</i>	коэффициент межмолекулярной силы на межфазной границе, Н/м ² ;
<i>C_{CM}</i>	виртуальная масса (модель № 1), с;
<i>C_D</i>	коэффициент сопротивления;
<i>d_k</i>	диаметр капли <i>k</i> -го типа, м;

d_{eq}	эквивалентный диаметр капель k -го и i -го типов, м	Z	количество дискретизаций по пространственной координате;
E	величина невязки;	$\beta_{k,i}$	частота коалесценции пары капель k -го и i -го типов, $\text{м}^3/\text{с}$;
$f_{k,i}$	частота столкновений пары капель k -го и i -го типов, $\text{м}^3/\text{с}$;	$\varepsilon_{k,i}$	осаждения, $\text{м}^3/\text{с}$;
$f_{S(k,i)}$	частота столкновений пары капель k -го и i -го типов за счет;	Δz	эффективность столкновений пары капель k -го и i -го типов, $\text{м}^3/\text{с}$;
$f_{B(k,i)}$	частота столкновений пары капель k -го и i -го типов за счет броуновского движения, $\text{м}^3/\text{с}$;	Δt	шаг пространственной координаты, м;
g	ускорение свободного падения, $\text{м}/\text{с}^2$;	$\Delta \rho$	шаг времени, с;
Ga_k	число Галилея капли k -го типа;	μ_o	разность плотностей нефти и воды, $\text{кг}/\text{м}^3$;
H	высота емкости, м;	ρ_o	вязкость нефти, $\text{Па}\cdot\text{с}$;
k_I, k_I^*	коэффициенты для набора моделей № 1;	ρ_w	плотность нефти, $\text{кг}/\text{м}^3$;
k_{II}, k_{II}^*	коэффициент для набора моделей № 2, с;	σ	плотность воды, $\text{кг}/\text{м}^3$;
k_{III}, k_{III}^*	коэффициент для набора моделей № 3, с;	v	поверхностное натяжение, $\text{н}/\text{м}$;
k_{IV}, k_{IV}^*	коэффициент для набора моделей № 4;	Φ	объем капли, полученный в результате слияния двух капель, м^3 ;
K	постоянная Больцмана, $\text{Дж}/\text{К}$;		объемная доля воды; % об.
m	количество точек времени, в которых осуществляется поиск решения;		
n_k	коэффициент стесненного осаждения капли k -го типа;		
N_t	количество типов капель;		
N_k^0	концентрация капель k -го типа, $1/\text{м}^3$;		
N_k	начальное значение концентрации капель k -го типа, $1/\text{м}^3$;		
q	параметр для вычисления объема капель;		
Q_k	скорость бинарной коалесценции, $1/\text{м}^3\cdot\text{с}^{-1}$;		
$Re_{k\infty}$	пределное число Рейнольдса капли k -го типа;		
$S_{k,i}$	множитель для снижения числа столкновений между парами капель k -го и i -го типов;		
$t_{d(k,i)}$	время истончения пленки, сформированной каплями k -го и i -го типов (модель № 1), с;		
t	время, с;		
$t_{c(k,i)}$	время контакта капель k -го и i -го типов (модель № 1), с;		
$t_{bc(k,i)}$	время истончения пленки, образованной каплями k -го и i -го типов (модель № 2), с;		
V_r	относительная скорость движения двух сталкивающихся капель, $\text{м}/\text{с}$;		
w_k	скорость осаждения капли k -го типа, $\text{м}/\text{с}$;		
$w_{k\infty}$	пределная скорость осаждения капли k -го типа, $\text{м}/\text{с}$;		
x_k	объем k -го типа капли, м^3 ;		
X_i^c	расчетное значение водосодержания в момент времени t , % масс.;		
X_i^e	экспериментальное значение водосодержания в момент времени t , % масс.;		
z	положение пространственной координаты, м;		

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Дунюшкин И.И. Сбор и подготовка скважинной продукции нефтяных месторождений. М.: Изд-во Нефть и газ РГУ им. И.М. Губкина, 2006.
2. Байков Н.М., Позднышев Г.Н., Мансуров Р.И. Сбор и промысловая подготовка нефти, газа и воды. М.: Недра, 1981.
3. Зейгман Ю.В., Колонских А.В. Оптимизация работы УЭЦН для предотвращения образований осложнений // Нефтегазовое дело. 2005. № 2. С. 1.
4. Лутошкин Г.С. Сбор и подготовка нефти, газа и воды. М.: ТИД Альянс, 2005.
5. Politova N.I., Tcholakova S., Tsibranska S., Denkov N.D., Muelheims K. Coalescence stability of water-in-oil drops: effects of drop size and surfactant concentration // Colloids Surf., A: Physicochem. Eng. Asp. 2017. V. 531. № 20. P. 32.
6. Basheva E.S., Gurkov T.D., Ivanov I.B., Bantchev G.B., Campbell B., Borwankar R.P. Size Dependence of the stability of emulsion drops pressed against a large interface // Langmuir. 1999. V. 15. P. 6764.
7. Koots J.A., Speight J.G. Relation of petroleum resins to asphaltenes // Fuel. 1975 V. 54. № 3. P. 179.
8. Gafanova O., Yarranton H. The stabilization of water-in-hydrocarbon emulsions by asphaltenes and resins // J. Colloid Interface Sci. 2001 V. 241. № 2 P. 469.
9. Lixin X., Shiwei L., Guoying C. Stability and demulsification of emulsions stabilized by asphaltenes or resins // J. Colloid Interface Sci. 2004. V. 271. № 2. P. 504.
10. Czarnecki J. Stabilization of water in crude oil emulsions. Part 2 // Energy & Fuels. 2009. V. 23. № 3. P. 1253.
11. Pickering S. Emulsions // Journal of the chemical society. Transactions. 1907. V. 91 P. 2001.

12. Sztukowski D., Yarranton H. Oilfield solids and water-in-oil emulsion stability // *J. Colloid Interface Sci.* 2005. V. 285. № 2. P. 821.
13. Jennings H.I. A study of caustic solution crude oil interfacial tensions // *Soc. Petrol. Eng. J.* 1975 V. 15. № 3. P. 197.
14. Parker R.J., Chung E.S.N. Acid numbers of Saskatchewan heavy oils // *J. Can. Pet. Technol.* 1986. V. 25. № 4. P. 72.
15. Acevedo S., Gastón E., Luis G., Hercilio R. Isolation and characterization of natural surfactants from extra heavy crude oils, asphaltenes and maltenes. Interpretation of their interfacial tension-pH behaviour in terms of ion pair formation // *Fuel.* 1992. V. 71. № 6. P. 619.
16. Chan M., Yen T.A. Chemical equilibrium model for interfacial activity of crude oil in aqueous alkaline solution: the effects of pH, alkali and salt // *Can. J. Chem. Eng.* 1982 V. 60. № 2. P. 305.
17. Moeini F., Hemmati-Sarapardeh A., Ghazanfari M.H., Masihi M., Ayatollahi S. Toward mechanistic understanding of heavy crude oil/brine interfacial tension: the roles of salinity, temperature and pressure // *Fluid Phase Equilibr.* 2014. V. 375. P. 191.
18. Mohammed R., Bailey A., Luckham P., Taylor S. Dewatering of crude oil emulsions 1. Rheological behaviour of the crude oil-water interface // *Colloids Surf., A: Physicochem. Eng. Asp.* 1993. V. 80. № 2. P. 223.
19. Tchoukov P., Yang F., Xu Z., Dabros T., Czarnecki J. Role of asphaltenes in stabilizing thin liquid emulsion films // *Langmuir.* 2014. V. 30 P. 3024.
20. Tchoukov P., Czarnecki J., Dabros T. Study of water-in-oil thin liquid films: Implications for the stability of petroleum emulsions // *Colloids Surf., A: Physicochem. Eng. Asp.* 2010. V. 372. P. 15.
21. Wu X. Investigating the stability mechanism of water-in-diluted bitumen emulsions through isolation and characterization of the stabilizing materials at the interface // *Energy & Fuels.* 2003 V. 17. P. 179.
22. Czarnecki J., Tchoukov P., Dabros T., Xu Z. Role of asphaltenes in stabilisation of water in crude oil emulsions // *Jan. Can. J. Chem. Eng.* 2013. V. 91. P. 1365.
23. Tourbin M., Frances C. Experimental characterization and population balance modelling of the dense silica suspensions aggregation process // *Chem. Eng. Sci.* 2008. V. 63. P. 5239.
24. Kralova I., Sjöblom J., Øye G., Simon S., Grimes B.A., Paso K. Heavy crude oils/particle stabilized emulsions // *Adv. Colloid Interface Sci.* 2011. V. 169. P. 106.
25. Cunha R.E.P., Fortuny M., Dariva C., Santos A.F. Mathematical modeling of the destabilization of crude oil emulsions using population balance equation, *Ind. Eng. Chem. Res.* 2008. V. 47. P. 7094.
26. Grimes B.A. Population balance model for batch gravity separation of crude oil and water emulsions. Part I: Model Formulation // *J. Dispers. Sci. Technol.* 2012. V. 33 P. 578.
27. Attarakih M.M., Bart H.J., Faqir N.M. Numerical solution of the spatially distributed population balance equation describing the hydrodynamics of interacting liquid-liquid dispersion // *Chem. Eng. Sci.* 2004. V. 59 P. 256.
28. Misra A., de Souza L.G.M., Illner M., Hohl L., Kraume M., Repke J.-U., Thévenin D. Simulating separation of a multiphase liquid-liquid system in a horizontal settler by CFD // *Chem. Eng. Sci.* 2017. V. 167. P. 242.
29. Oshinowo L. M., Vilagines R. D. Modeling of oil–water separation efficiency in three-phase separators: Effect of emulsion rheology and droplet size distribution // *Chem. Eng. Res. Des.* 2020. V. 159. P. 278.
30. Kuma S., Ramkrishna D. On the solution of population balance equations by discretization I. A fixed pivot technique // *Chem. Eng. Sci.* 1996. V. 51. P. 1311.
31. Rowe P.N. A convenient empirical equation for estimation of the Richardson-Zaki exponent // *Chem. Eng. Sc.* 1987. V. 42. № 11. P. 2795.
32. Turton R., Levenspiel O. A short note on the drag correlation for spheres // *Powder Technol.* 1986. V. 47. № 1. P. 83.
33. Hartman M. Predicting the free-fall velocities of spheres // *Chem. Eng. Sci.* 1989. V. 44. № 8. P. 1743.
34. Turton R., Clark N.N. An explicit relationship to predict spherical particle terminal velocity // *Powder Technol.* 1987. V. 53. P. 127.
35. Handbook on Theory and Practice of Bitumen Recovery from Athabasca Oil Sands, Volume 1: Theoretical Basis/ Eds. Masliyah, J.H., Czarnecki, J., Xu, Z., Kingsley Knowledge Publishing, 2011.
36. Liao Y., Lucas D. A Literature review on mechanisms and models for the coalescence process of fluid particles// *Chem. Eng. Sci.* 2010. V. 65. P. 2851.
37. Kamp A.M., Chesters A.K. Bubble coalescence in turbulent flows: A mechanistic model for turbulence-induced coalescence applied to microgravity bubbly pipe flow // *Int. J. Multiph. Flow.* 2010. V. 27. P. 1363.
38. Coulaloglou C.A. Dispersed phase interactions in an agitated flow vessel. Ph.D. Diss. Chicago, 1975.
39. Yanru S., Sjöblom J. Interfacial shear rheology of asphaltenes at oil–water interface and its relation to emulsion stability: Influence of concentration, solvent aromaticity and nonionic surfactant // *Colloids Surf., A: Physicochem. Eng. Asp.* 2010. V. 366. № 1. P. 120.
40. Dabros T., Yeung A., Masliyah J., Czarnecki J. Emulsification through area contraction // *J. Colloid Interface Sci.* 1999. V. 210. P. 222.
41. McLean J., Kilpatrick P. Effects of asphaltene aggregation in model heptane toluene mixtures on stability of water-in-oil emulsions. // *J. Colloid Interface Sci.* 1997. V. 196. № 1. P. 23.

MATHEMATICAL MODELING OF BINARY COALESCENCE PROCESS OF OIL-WATER EMULSION DROPLETS

S. A. Kiselev^{a,*}, D. S. Poluboyartsev^a, I. R. Dolgov^a, I. V. Litvinets^a, A. A. Yashchuk^b, N. S. Belinskaya^c

^aJSC TomskNIPIneft, Tomsk, Russia

^bNational Research Tomsk State University, Tomsk, Russia

^cNational Research Tomsk Polytechnic University, Tomsk, Russia

*e-mail: kiselevsa@tomsknipe.ru

Abstract. The paper presents an attempt to form a general approach to mathematical modeling of binary coalescence arising due to droplet deposition in a gravitational field based on the population balance equation, which can be further applied to predict the conditions of oil-water emulsion stratification. Using experimental curves of water content change over time in water-in-oil emulsions measured at different temperatures, four different ways of calculating the efficiency of binary coalescence are compared.

Keywords: *binary coalescence, population balance equation, oil-water emulsion*