



**ИЗВЕСТИЯ  
ТОМСКОГО ПОЛИТЕХНИЧЕСКОГО УНИВЕРСИТЕТА  
ИНЖИНИРИНГ ГЕОРЕСУРСОВ**

**Том 333, № 10, 2022  
Издается с 1903 г.**

**BULLETIN OF THE TOMSK POLYTECHNIC UNIVERSITY  
GEO ASSETS ENGINEERING**

**Volume 333, № 10, 2022  
Published since 1903**

**ИЗВЕСТИЯ  
ТОМСКОГО ПОЛИТЕХНИЧЕСКОГО УНИВЕРСИТЕТА  
ИНЖИНИРИНГ ГЕОРЕСУРСОВ**

Том 333, № 10, 2022

## РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

Семилетов И.П., гл. редактор, д-р геогр. наук (Россия)  
Оствальд Р.В., канд. хим. наук (Россия)  
Савичев О.Г., д-р геогр. наук (Россия)  
Покровский О.С., канд. геол.-минерал. наук (Франция)  
Старостенко В.И., д-р физ.-мат. наук (Украина)  
Конторович А.Э., д-р геол.-минерал. наук (Россия)  
Белозеров В.Б., д-р геол.-минерал. наук (Россия)  
Никитенков Н.Н., д-р физ.-мат. наук (Россия)  
Силкин В.М., д-р физ.-мат. наук (Испания)  
Коротеев Ю.М., д-р физ.-мат. наук (Россия)  
Уленев О.Н., д-р физ.-мат. наук (Россия)  
Борисов А.М., д-р физ.-мат. наук (Россия)  
Коршунов А.В., д-р хим. наук (Россия)  
Пестряков А.Н., д-р хим. наук (Россия)  
Тойпель У., Dsc (Германия)  
Джин-Чун Ким, Dsc (Южная Корея)  
Заворин А.С., д-р техн. наук (Россия)  
Ханьялич К., Dsc (Нидерланды)  
Маркович Д.М., д-р физ.-мат. наук (Россия)  
Алексеев С.В., д-р физ.-мат. наук (Россия)  
Воропай Н.И., д-р техн. наук (Россия)  
Чогегуров А.И., канд. техн. наук (Россия)  
Руи Д., PhD (Португалия)  
Зиатдинов Р.А., канд. физ.-мат. наук (Южная Корея)  
Спицын В.Г., д-р техн. наук (Россия)  
Муравьев С.В., д-р техн. наук (Россия)  
Пойлов В.З., д-р техн. наук (Россия)  
Лотов В.А., д-р техн. наук (Россия)  
Софронов В.Л., д-р хим. наук (Россия)  
Бузник В.М., д-р хим. наук (Россия)  
Захаров Ю.А., д-р хим. наук (Россия)  
Антипенко В.Р., д-р хим. наук (Россия)  
Голик В.И., д-р техн. наук (Россия)  
Абуталипова Е.М., д-р техн. наук (Россия)  
Полищук В.И., д-р техн. наук (Россия)  
Хамитов Р.Н., д-р техн. наук (Россия)  
Зюев А.М., д-р техн. наук (Россия)  
Третьяк А.Я., д-р техн. наук (Россия)  
Арбузов С.И., д-р геол.-минерал. наук (Россия)  
Ковалев В.З., д-р техн. наук (Россия)  
Романенко С.В., д-р хим. наук (Россия)  
Кирьянова Л.Г., канд. филос. наук (Россия)  
Строкова Л.А., д-р геол.-минерал. наук (Россия)  
Мазуров А.К., д-р геол.-минерал. наук (Россия)  
Боярко Г.Ю., д-р экон. наук, канд. геол.-минерал. наук (Россия)  
Стрижак П.А., д-р физ.-мат. наук (Россия)  
Глазырин А.С., выпуск. редактор, д-р техн. наук (Россия)

Входит в Перечень ВАК РФ – ведущих рецензируемых научных журналов и изданий, в которых должны быть опубликованы основные научные результаты диссертаций на соискание ученых степеней доктора и кандидата наук.

Подписной индекс в объединённом каталоге «Пресса России» – 18054

© ФГАОУ ВО НИ ТПУ, 2022

## УВАЖАЕМЫЕ ЧИТАТЕЛИ!

Журнал «Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов» – рецензируемый научный журнал, издающийся с 1903 года.

Учредителем является Томский политехнический университет.

Журнал зарегистрирован Министерством Российской Федерации по делам печати, телерадиовещания и средств массовых коммуникаций – Свидетельство ПИ № ФС 77-65008 от 04.03.2016 г.

ISSN (print) – 2500-1019  
ISSN (on\_line) – 2413-1830

«Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов» публикует оригинальные работы, обзорные статьи, очерки и обсуждения, охватывающие последние достижения в области геологии, разведки и добычи полезных ископаемых, технологии транспортировки и глубокой переработки природных ресурсов, энергоэффективного производства и преобразования энергии на основе полезных ископаемых, а также безопасной утилизации геологических объектов.

Журнал представляет интерес для геологов, химиков, технологов, физиков, экологов, энергетиков, специалистов по хранению и транспортировке энергоресурсов, ИТ-специалистов, а также ученых других смежных областей.

Тематические направления журнала «Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов»:

- Прогнозирование и разведка георесурсов
- Добыча георесурсов
- Транспортировка георесурсов
- Глубокая переработка георесурсов
- Энергоэффективное производство и преобразование энергии на основе георесурсов
- Безопасная утилизация георесурсов и вопросы геоэкологии
- Инженерная геология Евразии и окраинных морей

К публикации принимаются статьи, ранее нигде не опубликованные и не представленные к печати в других изданиях.

Статьи, отбираемые для публикации в журнале, проходят закрытое (слепое) рецензирование.

Автор статьи имеет право предложить двух рецензентов по научному направлению своего исследования.

Окончательное решение по публикации статьи принимает главный редактор журнала.

Все материалы размещаются в журнале на бесплатной основе.

Журнал издается ежемесячно.

Полнотекстовый доступ к электронной версии журнала возможен на сайтах [www.elibrary.ru](http://www.elibrary.ru), [scholar.google.com](http://scholar.google.com)

**BULLETIN  
OF THE TOMSK POLYTECHNIC UNIVERSITY  
GEO ASSETS ENGINEERING**

Volume 333, № 10, 2022



## EDITORIAL BOARD

Semiletov I.P., editor in chief, Dr. Sc. (Russia)  
Ostvald R.V., Cand. Sc. (Russia)  
Savichev O.G., Dr. Sc. (Russia)  
Pokrovsky O.S., Cand. Sc. (France)  
Starostenko V.I., Dr. Sc. (Ukraine)  
Kontorovich A.E., Dr. Sc. (Russia)  
Belozherov V.B., Dr. Sc. (Russia)  
Nikitenkov N.N., Dr. Sc. (Russia)  
Silkin V.M., PhD (Spain)  
Koroteev Yu.M., Dr. Sc. (Russia)  
Ulenekov O.N., Dr. Sc. (Russia)  
Borisov A.M., Dr. Sc. (Russia)  
Korshunov A.V., Dr. Sc. (Russia)  
Pestryakov A.N., Dr. Sc. (Russia)  
Teipel U., Dsc (Germany)  
Jin-Chun Kim, Dsc (South Korea)  
Zavorin A.S., Dr. Sc. (Russia)  
Hanjalic K., Dsc (Netherlands)  
Markovich D.M., Dr. Sc. (Russia)  
Aleksenko S.V., Dr. Sc. (Russia)  
Voropai N.I., Dr. Sc. (Russia)  
Kochegurov A.I., Cand. Sc. (Russia)  
Rui D., PhD (Portugal)  
Ziatdinov R.A., Cand. Sc. (South Korea)  
Muravyov S.V., Dr. Sc. (Russia)  
Spitsyn V.G., Dr. Sc. (Russia)  
Poilov V.Z., Dr. Sc. (Russia)  
Lotov V.A., Dr. Sc. (Russia)  
Sofronov V.L., Dr. Sc. (Russia)  
Bouznik V.M., Dr. Sc. (Russia)  
Zakharov Yu.A., Dr. Sc. (Russia)  
Antipenko V.R., Dr. Sc. (Russia)  
Golik V.I., Dr. Sc. (Russia)  
Abutalipova E.M., Dr. Sc. (Russia)  
Polishchuk V.I., Dr. Sc. (Russia)  
Khamitov R.N., Dr. Sc. (Russia)  
Zyuzev A.M., Dr. Sc. (Russia)  
Tretiak A.Ya., Dr. Sc. (Russia)  
Arbuzov S.I., Dr. Sc. (Russia)  
Kovalev V.Z., Dr. Sc. (Russia)  
Romanenko S.V., Dr. Sc. (Russia)  
Kiryanova L.G., Cand. Sc. (Russia)  
Ludmila A. Strokova, Dr. Sc. (Russia)  
Alexey K. Mazurov, Dr. Sc. (Russia)  
Boyarko G.Yu., Dr. Sc., Cand. Sc. (Russia)  
Strizhak P.A., Dr. Sc. (Russia)  
Glazyrin A.S., managing editor, Dr. Sc. (Russia)

## AIMS AND SCOPES

Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering is peer-reviewed journal owned by Tomsk Polytechnic University.

The journal was founded in 1903.

The journal is registered internationally (ISSN 2413-1830) and nationally (Certificate PE no. FM 77-65008, March 04, 2016 from the RF Ministry of Press, Broadcasting and Mass Communications).

ISSN (print) – 2500-1019

ISSN (on-line) – 2413-1830

The journal publishes research papers in the field defined as "life cycle of georesources". It presents original papers, reviews articles, rapid communications and discussions covering recent advances in geology, exploration and extraction of mineral resources, transportation technologies and deep processing of natural resources, energy-efficient production and energy conversion based on mineral resources as well as on safe disposal of geo assets.

The journal will be of interest to geologists, chemists, engineers, physicists, ecologists, power engineers, specialists in storage and transportation of energy resources, IT specialists as well as to other specialists in the related fields.

Scope of the journal issue "Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering" in accordance with Geo Assets (GA) strategy includes:

- Geo Assets exploration and refining;
- Geo Assets mining and transportation;
- Geo Assets deep processing;
- Energy-efficient production and conversion of energy based on Geo Assets;
- Safe disposal of Geo Assets and Geoecology issues;
- Geo-engineering of Eurasia and marginal sea;
- Economic and social aspects of using Geo Assets.

Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering publishes only original research articles. All articles are peer reviewed by international experts. Both general and technical aspects of the submitted paper are reviewed before publication. Authors are advised to suggest two potential reviewers who are familiar with the research focus of the article. Final decision on any paper is made by the Editor in Chief.

Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering is published monthly.

The publication of manuscripts is free of charge.

## СОДЕРЖАНИЕ

## CONTENTS

- Районирование плотности аккумуляции нефти доюрских резервуаров восточно-пайдугинской впадины (с использованием расчетных термодинамических параметров материнской тогурской свиты)**  
Исаев В.И., Лобова Г., Меренкова А.С., Осипова Е.Н., Исаева О.С., Коржов Ю.В.
- Энергоэффективный алгоритм управления фотоэлектростанцией с электрохимическим и электротепловым аккумулированием энергии**  
Лукутин Б.В., Шандарова Е.Б., Аль-Мажди Каррар Хамид
- Анализ технологий промышленной подготовки природного газа**  
Китов Е.С., Ерофеев В.И., Джалилова С.Н.
- Результаты краткосрочного мониторинга содержания гелия и обобщенных показателей в подземных водах Горного Алтая**  
Дутова Е.М., Кац В.Е., Шитов А.В., Сурнин А.И., Драчев С.С.
- Влияние техногенных вод на реку Рудную Дальневосточного региона**  
Зверева В.П., Фролов К.Р., Лысенко А.И.
- Разработка интеллектуальных алгоритмов управления периферийным технологическим оборудованием куста скважин с помощью единой станции управления**  
Илюшин П.Ю., Вяткин К.А., Козлов А.В.
- Оценка пылеаэрозольного загрязнения в зоне влияния цементного завода на основе изучения снежного покрова (Новосибирская область)**  
Володина Д.А., Таловская А.В., Язиков Е.Г., Девятова А.Ю., Еделева А.В.
- Мо-содержащие гранулированные цеолиты ZSM-5 различной кислотности с иерархической пористой структурой в неокислительной конверсии метана**  
Степанов А.А., Коробицына Л.Л., Ишкильдина А.Х., Травкина О.С., Куватова Р.З., Восмериков А.В., Кутепов Б.И.
- О полноте выщелачивания урана в штабеле**  
Голлик В.И., Разоренов Ю.И., Мицик М.Ф.
- Влияние состава сырья газоконденсатных месторождений на процесс каталитического риформинга**  
Пчелинцева И.В., Чернякова Е.С., Красовская О.К., Кокшаров А.Г.
- К оценке опасности карстово-суффозионных процессов**  
Татаркин А.В., Красильников П.А., Мещерякова О.Ю., Ермаков Д.В.
- Об агрегировании изоморфной примеси азота в синтетических алмазах (система Fe-Ni-C)**  
Бабич Ю.В., Жимулев Е.И., Чепуров А.А.
- Подход к математическому моделированию процесса растворения пластовой соли, применяемый в гидродинамическом симуляторе TecScheme**  
Малюгин Р.В., Ходанович Д.А.
- Гидрохимическая изменчивость реки Ангары при создании Богучанского водохранилища (Россия)**  
Поletaeva В.И.
- Создание и эксплуатация интегрированной модели, учитывающей особенности газоконденсатной залежи**  
Зипир В.Г., Менгалиев А.Г., Рясный А.Г., Курбатова М.Н., Рудая О.М.
- Zoning of the oil accumulation density of the East-Paidugin depression Jurassic reservoirs (using calculated thermodynamic parameters of the oil source Togur suite)**  
Isaev V.I., Lobova G., Merenkova A.S., Osipova E.N., Isaeva O.S., Korzhov Yu.V.
- Energy efficient algorithm for controlling photovoltaic power plant with electrochemical and thermal energy storage**  
Lukutin B.V., Shandarova E.B., Karrar Hameed Kadhim
- Analysis of technologies of natural gas field preparation**  
Kitov E.S., Erofeev V.I., Dzhaililova S.N.
- Results of short-term monitoring of helium content and generalized indicators in the underground waters of the Altai mountains**  
Dutova E.M., Kats V.E., Shitov A.V., Surnin A.I., Drachev S.S.
- Impact of technogenic waters on the Rudnaya River of the Russian Far East**  
Zvereva V.P., Frolov K.R., Lysenko A.I.
- Development of intelligent algorithms for controlling peripheral technological equipment of the well cluster using a single control station**  
Ilyushin P.Yu., Vyatkin K.A., Kozlov A.V.
- Assessment of dust and aerosol pollution in the zone of influence of the cement plant based on the study of snow cover (Novosibirsk region)**  
Volodina D.A., Talovskaya A.V., Yazikov E.G., Devyatova A.Yu., Edelev A.V.
- Granular hierarchically porous Mo-containing ZSM-5 zeolites with different level of acidity in non-oxidative conversion of methane to aromatic hydrocarbons**  
Stepanov A.A., Korobitsyna L.L., Ishkildina A.Kh., Travkina O.S., Kuvatova R.Z., Vosmerikov A.V., Kutepov B.I.
- On the completeness of uranium leaching in the stack**  
Gollik V.I., Razorenov Yu.I., Mizik M.F.
- Impact of feedstock composition from gas condensate reservoirs on catalytic reforming**  
Pchelintseva I.V., Chernyakova E.S., Krasovskaya O.K., Koksharov A.G.
- To assess the danger of karst-suffusion processes**  
Tatarkin A.V., Krasilnikov P.A., Meshcheryakova O.Yu., Ermakov D.V.
- On aggregation of isomorphous nitrogen impurity in synthetic diamonds (system Fe-Ni-C)**  
Babich Yu.V., Zhimulov E.I., Chepurov A.A.
- Approach to mathematical modeling of reservoir salt dissolution used in the hydrodynamic simulator TecScheme**  
Malyugin R.V., Khodanovich D.A.
- Angara river hydrochemical variability when building the Boguchany reservoir (Russia)**  
Poletaeva V.I.
- Creation and exploitation of the integrated model, taking into account the features of the gas condensate reservoir**  
Zipir V.G., Mengaliev A.G., Ryasny A.G., Kurbatova M.N., Rudaya O.M.

- |  |     |  |
|--|-----|--|
| <b>Study of changes in hydrodynamic parameters patterns of viscous fluid flow in a flat diffuser</b><br>Sarukhanyan A.A., Vardanyan Y.V., Vermishyan G.B.  | 169 | <b>Исследование изменения закономерностей гидродинамических параметров течения вязкой жидкости в плоском диффузоре</b><br>Саруханян А.А., Варданян Е.В., Вермишян Г.Б.                                   |
| <b>Определение резонансных частот шаровой капли воды в масляной среде</b><br>Филипас А.А., Исаев Ю.Н., Кучман А.В.   | 178 | <b>Determination of a global water drop resonant frequencies in oil medium</b><br>Filipas A.A., Isaev Yu.N., Kuchman A.V.  |
| <b>Влияние акустического воздействия на проницаемость пористых сред (обзор)</b><br>Гатауллин Р.Н., Галимзянова А.Р., Марфин Е.А.   | 186 | <b>Acoustic influence effect on porous media permeability (review)</b><br>Gataullin R.N., Galimzyanova A.R., Marfin E.A.   |
| <b>Многорежимная частотная оптимизация для скважин с электроцентробежным насосом</b><br>Соловьев И.Г., Константинов И.В., Говорков Д.А.  | 203 | <b>Multi-mode optimization of electric submersible pump speed for oil wells</b><br>Solovyev I.G., Konstantinov I.V., Govorkov D.A.   |
| <b>Эмпирическое исследование несмешивающегося водогазового воздействия и прогнозирование третичных методов увеличения нефтеотдачи в условиях карбонатных коллекторов</b><br>Соромотин А.В., Бартов Д.О., Сюзёв А.В., Илюшин П.Ю. | 212 | <b>Empirical study of immiscible water-gas effects and prediction of tertiary methods for increasing oil recovery in carbonate reservoirs</b><br>Soromotin A.V., Bartov D.O., Suzev A.V., Ilyushin P.Yu. |

УДК 553.98:551.763:550.836

## РАЙОНИРОВАНИЕ ПЛОТНОСТИ АККУМУЛЯЦИИ НЕФТИ ДОЮРСКИХ РЕЗЕРВУАРОВ ВОСТОЧНО-ПАЙДУГИНСКОЙ ВПАДИНЫ (С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ РАСЧЕТНЫХ ТЕРМОДИНАМИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ МАТЕРИНСКОЙ ТОГУРСКОЙ СВИТЫ)

Исаев Валерий Иванович<sup>1</sup>,  
isaevvi@tpu.ru

Лобова Галина<sup>2</sup>,  
lobovaga@tpu.ru

Меренкова Анна Сергеевна<sup>1</sup>,  
a.merenkova@yandex.ru

Осипова Елизавета Николаевна<sup>1</sup>,  
osipovaen@tpu.ru

Исаева Ольга Степановна<sup>3</sup>,  
isaeva\_sah@mail.ru

Коржов Юрий Владимирович<sup>4</sup>,  
ykor1962@mail.ru

<sup>1</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет, Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

<sup>2</sup> Литва, 31102, Висагинас, ул. Висагино, 25-25.

<sup>3</sup> Томский филиал ФБУ «Территориальный фонд геологической информации по Сибирскому федеральному округу», Россия, 634034, г. Томск, ул. Мокрушина, 9, стр. 16.

<sup>4</sup> Югорский государственный университет, Россия, 628012, г. Ханты-Мансийск, ул. Чехова, 16.

**Актуальность.** Для стабилизации падающего уровня добычи нефти на юго-востоке Западной Сибири выполняется изучение и освоение востока Томской области, его нераспределенного фонда недр. Обоснованность выбора территории исследований определяется перспективностью и недоизученностью правобережья реки Оби.

**Цель:** восполнение ресурсной базы ТЭК Томской области на этапе определения перспективных районов и участков для проведения прогнозно-поисковых исследований.

**Объект:** нижнеюрская нефтематеринская тогурская свита, резервуары коры выветривания и палеозоя территории Восточно-Пайдугинской депрессии.

**Предмет:** термодинамический режим очагов генерации тогурской нефти, емкостные свойства коллекторов доюрских резервуаров.

**Задача:** выполнить зональное районирование доюрского комплекса Восточно-Пайдугинской мегавпадины и структур обрамления на основе комплексирования классификаций петротипов пород фундамента, термодинамических характеристик нефтематеринской тогурской свиты и распределения толщин коры выветривания.

**Методы.** Изучение плотности генерации углеводородов тогурской свитой основано на палеотемпературных реконструкциях осадочных пород в каждый момент времени развития бассейна при известных значениях температур на поверхности (палеоклимат) и значениях теплового потока, заданных в основании осадочного чехла. Районирование резервуаров коры выветривания и палеозоя выполнено на основе условной классификации петротипов пород фундамента, комплексирования трех цифровых параметров, а именно весовых коэффициентов потенциала формирования коллекторов различными петротипами, значений плотности генерации нефти и значений толщин коры выветривания. При ранжировании участков по плотности первичной аккумуляции нефти первым по важности признаком принят весовой коэффициент потенциала петротипов пород фундамента, вторым – плотность генерации тогурской нефти и третьим – толщина коры выветривания.

**Результаты.** К зоне с максимальной перспективностью резервуара палеозоя отнесен участок западного мыса Владимировского мегавыступа – северо-восточного борта Варгатского мезопрогиба. К зоне с высокой перспективностью отнесены участки Белоноговского мезоподнятия – северной части области сочленения Восточно-Пайдугинской мегавпадины и Владимировского мегавыступа, северо-восточный склон Белоярского мезовыступа. К зоне с максимальной перспективностью резервуара коры выветривания отнесены участки северо-восточного борта Варгатского мезопрогиба, западного мыса Владимировского мегавыступа, северной части области сочленения Восточно-Пайдугинской мегавпадины и Владимировского мегавыступа и области сочленения северо-западного склона Владимировского мегавыступа и северо-восточного борта Восточно-Пайдугинской мегавпадины. К зоне с высокой перспективностью отнесены участки северной части Варгатского мезопрогиба и юго-восточного склона Белоярского мезовыступа, восточного склона Белоярского мезовыступа и юго-западного склона Варгатского мезовыступа, западной и восточной частей Белоноговского мезоподнятия.

**Выводы.** Зоны максимальных и высоких прогнозных перспектив резервуаров коры выветривания и палеозоя рекомендуется учитывать при планировании поисков доюрских залежей нефти на северо-востоке Томской области. Вместе с тем результаты исследований способствуют развитию методологии и теории геотермического метода как метода разведочной геофизики.

### Ключевые слова:

палеотемпературные реконструкции нефтематеринской свиты, резервуары коры выветривания и палеозоя, условная классификация петротипов пород фундамента, цифровое районирование и ранжирование, северо-восток Томской области.



## Введение

Настоящие прогнозно-поисковые исследования на основе ранее выявленных и закартированных катагенетических очагов генерации УВ выполняются для Восточно-Пайдугинской мегавпадины и структур ее обрамления. Этот инициативный проект зонального изучения и оценки поисковых перспектив на углеводороды (УВ) нераспределенного фонда недр Правобережья Оби реализуется томской научной группой геотермиков. При этом делается акцент на доюрский нефтегазоносный комплекс (НГК), залежи в котором относятся к трудноизвлекаемой нефти [1, 2]. Здесь основной нефтематеринской формацией является имеющая широкое распространение тогурская свита [3]. Исследования опираются на тектонические схемы районирования и классификации структур палеозойского фундамента по В.С. Суркову (1981) и юрского структурного яруса по В.А. Конторовичу (2002).

Согласно тектоническому районированию доюрского фундамента Западно-Сибирской плиты [4], в пределах территории исследования выделяются структуры трех циклов тектоногенеза (рис. 1). Западную часть занимают структуры позднегерцинской складчатости – Нарымско-Колпашевская внутренняя впадина и Пыль-Караминский мегантиклинорий, с осью простираения с северо-запада на юго-восток. Восточнее этого блока располагаются структуры салаирского диастрофизма: на севере небольшой фрагмент Ажарминского прогиба, далее Алипский прогиб и, южнее, граничащий с ним Улулюйско-Среднечуйлимский выступ.

По юрскому структурному ярусу территория исследований приурочена [5] к структуре I порядка – Восточно-Пайдугинской мегавпадине, на востоке граничащей с Владимировским мегавыступом, на северо-западе – с Пайдугинским мегавалом, на юго-западе – со структурой II порядка – Зайкинской мезоседловиной, на юге – с переходной зоной к структуре внешнего пояса Западно-Сибирской плиты – Барабинско-Пихтовской моноклизе.

Для территории исследований выполнено палеотемпературное моделирование в разрезах 26 глубоких скважин [6]. Установлено, что величина плотности теплового потока в основании осадочного разреза – на кровле фундамента – изменяется в пределах 36–56 мВт/м<sup>2</sup>. В качестве инструмента исследований применяется хорошо апробированный метод, основанный на палеотемпературных реконструкциях осадочных пород в каждый момент времени развития бассейна при известных значениях температур на поверхности (палеоклимат) и значениях теплового потока, заданных в основании осадочного чехла [7]. Авторский метод палеотемпературного моделирования, в части тектоно-седиментационных и геотемпературных реконструкций, является аналогом известных зарубежных и российских систем бассейнового моделирования [8–12]. Выявлены и закартированы на 11 ключевых моментах геологического времени, начиная с покурского (114 млн лет назад), очаги генерации тогурской нефти. Максимальные палеотемпературы очагов достигают 130–145 °С, 62 и 24,0 млн лет

назад, очаги «работают» на протяжении последних 92 млн лет.

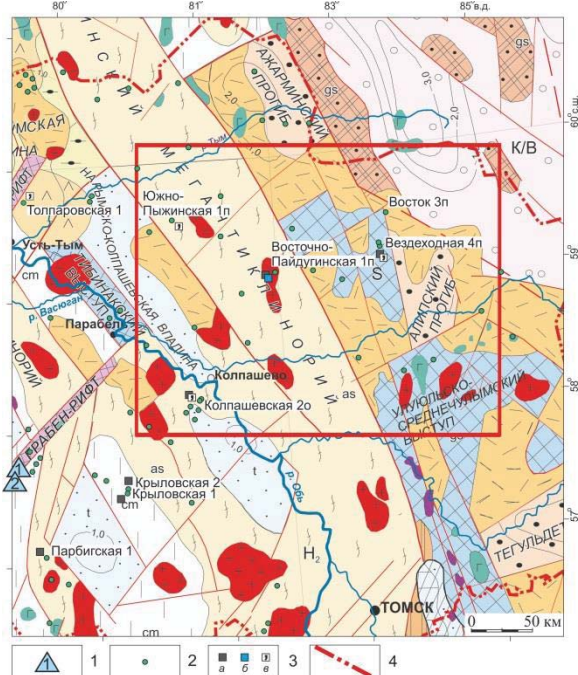
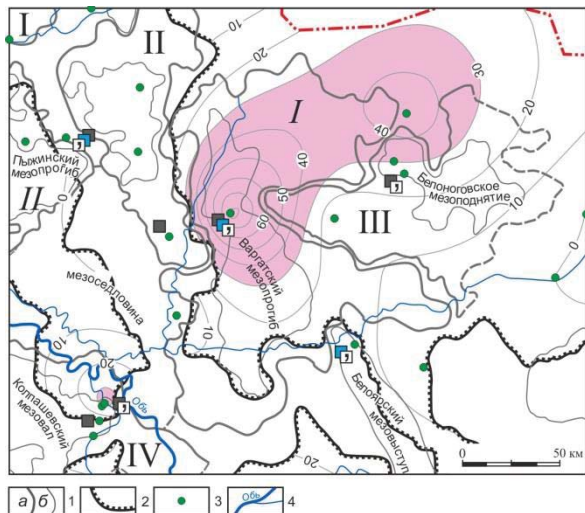


Рис. 1. Обзорная схема нефтегазоносности восточной части Томской области на фрагменте тектонической карты фундамента [4]: 1 – месторождение газа и газоконденсата с залежами в доюрском НГК и его условный номер; 2 – глубокая скважина за пределами месторождений; 3 – скважина за пределами месторождения с прямыми признаками нефтегазоносности в доюрском НГК: непромышленный приток нефти (а), газа (б); запах нефти в керне (в); 4 – административная граница Томской области. Месторождения: (1) – Восточно-Верхнекомбарское, (2) – Верхнекомбарское. Красным прямоугольным контуром ограничена территория настоящих исследований

Fig. 1. Overview scheme of oil and gas presence of the Tomsk region eastern part on the fragment of the foundation tectonic map [4]: 1 – gas and gas condensate field with deposits in the pre-Jurassic oil and gas complex and its conditional number; 2 – deep well outside the fields; 3 – well outside the field with direct signs of oil and gas potential in the pre-Jurassic oil and gas complex: non-commercial inflow of oil (a), gas (b); smell of oil in the core (v); 4 – administrative boundary of Tomsk region. Hydrocarbon fields: (1) – East Verkhnekombarskoe, (2) – Verkhnekombarskoe. The area of present study is limited by the red rectangular contour

Перспективные земли для поисков в доюрском разрезе закартированы экспресс-оценкой относительной плотности генерации тогурской нефти (рис. 2). Это практически вся собственно Восточно-Пайдугинская мегавпадина, включая Варгатский мезопрогиб, а также западная часть Владимировского мегавыступа (западный склон Белоноговского мезоподнятия) и восточная часть Парабельского мегавыступа (северо-восточный склон Колпашевского мезовала).

В настоящей статье ранее выделенные перспективные земли (только по критерию плотности генерации тогурской нефти, более 30 о. ед.) будут, с учетом прогноза коллекторов доюрского НГК (пласты М и М<sub>1</sub>), конкретизированы и рекомендованы к планированию поисковых геофизических работ.



**Рис. 2.** Территория исследований на тектонической схеме осадочного чехла [5]. Схематическая карта изолиний распределения интегрального температурно-временного показателя  $R$  (о. ед.), характеризующего плотность генерации тогурской нефти (с учетом мощности материнской свиты) [6]. Перспективные земли ( $R > 30$  о. ед.) показаны красно-розовой заливкой. 1 – границы тектонических структур I (а) и II (б) порядка; 2 – границы распространения тогурской свиты; 3 – скважина, вскрывшая доюрский комплекс, в том числе с прямыми признаками нефтегазоносности; 4 – речная сеть. Структуры I порядка: положительные: I – Пыль-Караминский мегавал, II – Пайдугинский мегавал; III – Владимировский мегавыступ; IV – Парабельский мегавыступ; отрицательные: I – Восточно-Пайдугинская мегавпадина, II – Усть-Тымская мегавпадина. Остальные обозначение – на рис. 1

**Fig. 2.** Study area on the sedimentary cover tectonic scheme [5]. Schematic map of isolines of the integral temperature-time indicator  $R$  (r.u.) distribution, characterizing the Togur oil generation density (taking into account the thickness of the oil source suite) [6]. Promising lands ( $R > 30$  r.u.) are shown with red-pink shading. 1 – boundaries of tectonic structures of the I (a) and II (b) orders; 2 – boundary of the Togur suite distribution; 3 – well penetrated the pre-Jurassic complex, including those with direct signs of oil and gas potential; 4 – river network. Structures of the first order: positive: I – Pyl-Karamen megaswell, II – Paidugin megaswell; III – Vladimirov megaprotrusion; IV – Parabel megaprotrusion; negative: I – East-Paidugin megadepression, II – Ust-Tym megadepression. See the rest of the designation in Fig. 1

Изучение и оценка перспектив нефтегазоносности осуществляется с использованием осадочно-миграционной теории нафтидогенеза. Проектом принята рабочая кон-

цепция о вертикальной миграции углеводородов как преимущественной [13–16].

#### Характеристика вещественного состава палеозойского фундамента

Согласно карте вещественного состава палеозойского фундамента восточной части Томской области [17] (рис. 3) проводим выделение основных групп петротипов и их приуроченности следующим образом:

Терригенные и терригенно-карбонатные породы осадочной формации преимущественно приурочены к структурам позднегерцинской складчатости – Нарымско-Колпашевской внутренней впадине, а также к структурам салаирского диастрофизма – Ажарминскому и Алипскому прогибам и их обрамлению.

Границы распространения карбонатных и доломитовых пород осадочной формации четко соотносятся с границами двух контуров салаирских и каледонских выступов-горстов (один расположен западнее Алипского прогиба, второй приурочен к Улюлюльско-Среднечулымскому выступу), а также в зонах распространения байкальских выступов-горстов, локализованных в северо-восточной части территории исследования. Сюда же относятся преимущественные по площади, эффузивно-карбонатные породы эффузивно-осадочной формации.

- Породы аспидной формации слагают Пыль-Караминский мегантиклинорий с осью простирания с северо-запада на юго-восток.
- Породы магматической формации условно можно разделить на две группы по западной границе Пыль-Караминского мегантиклинория – на востоке от нее преимущественно расположены интрузии кислого состава, представленные гранитоидами, на западе – разности основного и ультраосновного состава (базиты и ультрабазиты).

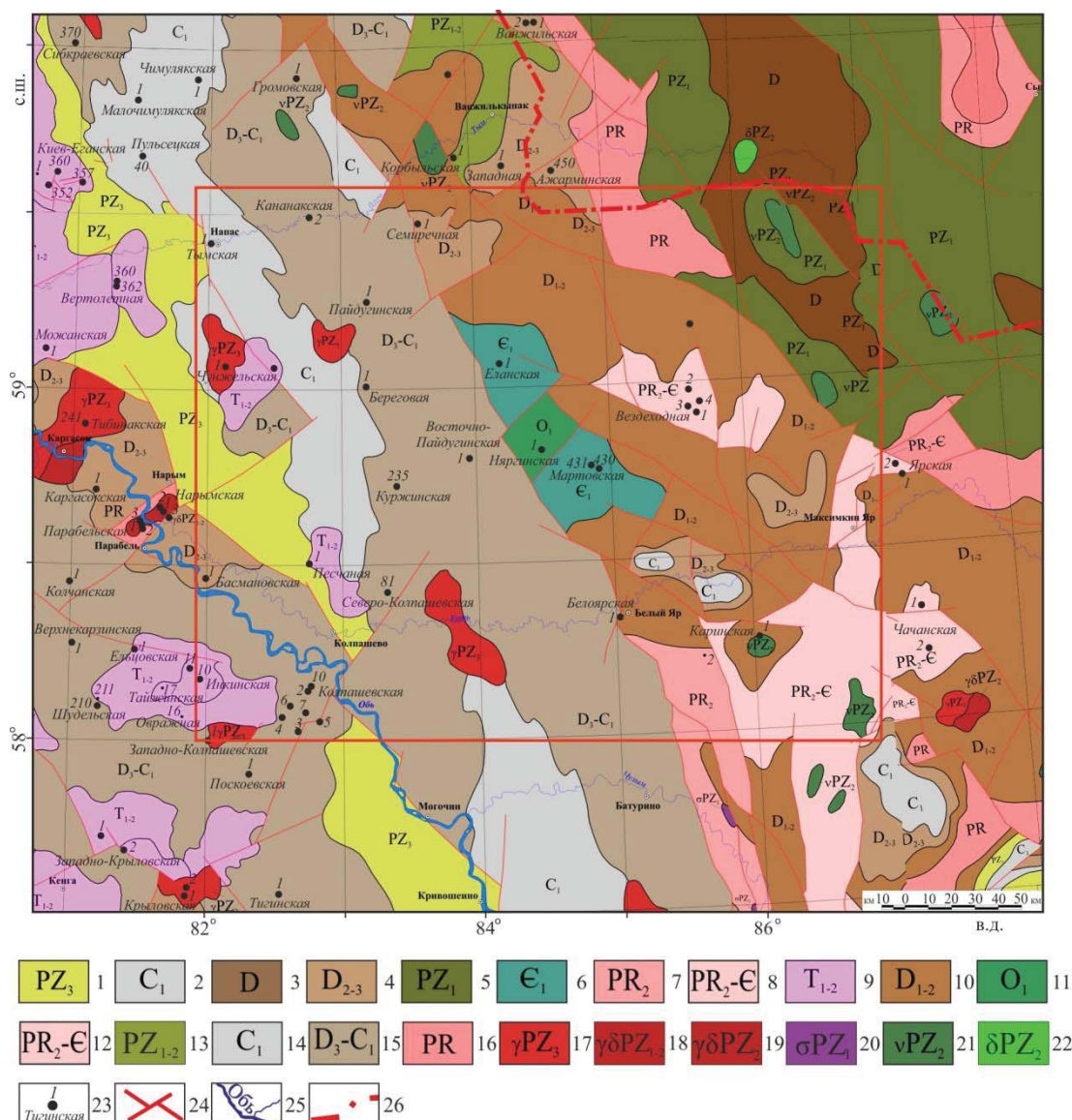
#### Классификация групп петротипов пород фундамента по потенциалу формирования коллекторов в верхних горизонтах палеозоя

Скопления УВ палеозойского НГК аккумулируются в пласте М<sub>1</sub>, который расположен в отложениях внутреннего палеозоя. На территории исследования нет месторождений, связанных с залежами в пласте М<sub>1</sub>.

Приуроченность пород, представленных тремя группами петротипов четырех типов формаций образования, к зонам с разной степенью вероятности образования коллектора в верхних горизонтах палеозоя и различными фильтрационно-емкостными характеристиками отражена в табл. 1.

Палеозойские образования представлены широким спектром петрографических разновидностей (рис. 3). С точки зрения возможности образования и качества коллектора [18–23] мы условно классифицировали отложения фундамента на три группы (табл. 1): первая группа петротипов образует пустотное пространство с «лучшими» фильтрационно-емкостными свойствами (ФЕС), вторая группа – с «хорошими» ФЕС, третья группа – с «плохими» ФЕС.





**Рис. 3.** Территория исследований Восточно-Пайдугинской мегавпадины и структур ее обрамления. Фрагмент карты вещественного состава палеозойского фундамента восточной части Томской области [17] с дополнениями: формации с указанием возраста формирования (1–17): 1–8 – осадочные (1–4 – терригенные, 5, 6 – терригенно-карбонатные, 7 – карбонатная, 8 – доломитовая); 9–13 – эффузивно-осадочные (9 – базальтовая, 10 – андезитово-базальтовая, 11–13 – эффузивно-карбонатные); 14–16 – метаморфические (14, 15 – аспидные, 16 – глинисто-кремнистая); 17–22 – магматические (17–19 – гранитоиды, 20 – ультрабазиты, 21 – базиты, 22 – диориты); 23 – скважина, вскрывшая палеозойские отложения, её номер, площадь бурения; 24 – разрывные нарушения; 25 – речная сеть; 26 – граница Томской области. Красным прямоугольным контуром показана территория исследований

**Fig. 3.** Study area of the East-Paidugun megadepression and its framing structures. Fragment of the map of the Paleozoic basement material composition of the Tomsk region eastern part [17] with additions: formations indicating the formation age (1–17): 1–8 – sedimentary (1–4 – terrigenous, 5, 6 – terrigenous-carbonate, 7 – carbonate, 8 – dolomitic); 9–13 – effusive-sedimentary (9 – basalt, 10 – andesite-basalt, 11–13 – effusive-carbonate); 14–16 – metamorphic (14, 15 – slate, 16 – clay-siliceous); 17–22 – igneous (17–19 – granitoids, 20 – ultrabasic, 21 – mafic, 22 – diorites); 23 – well penetrated the Paleozoic deposits, its number, drilling area; 24 – discontinuous violations; 25 – river network; 26 – boundary of the Tomsk region. The area of present study is shown by the red rectangular contour

Первая группа представлена карбонатными отложениями, а также интрузивными породами кислого состава, в которых протекают процессы формирования трещиноватости, эпигенетические минералогические процессы [21, 22, 24–27].

Вторая группа пород фундамента, в которых могут образоваться коллекторы с «хорошими» ФЕС,

представлена терригенно-карбонатными [22, 25, 28], а также метаморфическими породами [28, 29].

В третью группу включают плотные глинистые разности и магматические породы основного состава, образующие «плохие» коллекторы [21, 22, 29]. При выветривании породы этой группы петротипов могут стать покрывками для палеозойских залежей.

**Таблица 1.** Классификация областей распространения петротипов пород палеозойского фундамента по потенциалу формирования коллекторов в верхних горизонтах палеозоя, принятая при нефтегеологическом районировании

**Table 1.** Classification of the rock petrotypes distribution areas of the Paleozoic basement according to the potential for the formation of reservoirs in the Paleozoic upper horizons, adopted in the petrogeological zoning

Группа петротипов, объединенных в один класс Group of petrotypes combined into one class	Степень вероятности образования коллектора/общая характеристика ФЕС этой зоны Probability degree of reservoir formation/general characteristics of reservoir properties of this zone	Петротип формации осадочной/эффузивно-осадочной/метаморфической/интрузивной (рис. 3) Petrotype of sedimentary/effusive-sedimentary/metamorphic/intrusive formation (Fig. 3)	Весовой коэффициент при районировании палеозоя Weighting factor for Paleozoic zoning
1	Степень высокая/зона с «лучшими» ФЕС. High probability/zone with «best» reservoir properties	Карбонатные и доломитовые породы позднепротерозойского и позднепротерозойского-кембрийского возраста осадочной формации. Эффузивно-карбонатные породы реннеордовикского, ранне- и среднепалеозойского, позднепротерозойского-кембрийского возраста эффузивно-осадочной формации. Гранитоиды ранне-и среднепалеозойского, среднепалеозойского и позднепалеозойского возраста магматической формации. Carbonate and dolomite rocks of Late Proterozoic and Late Proterozoic-Cambrian age of sedimentary formation. Effusive-carbonate rocks of the Early Ordovician, Early and Middle Paleozoic, Late Proterozoic-Cambrian age of the effusive-sedimentary formation. Granitoids of Early and Middle Paleozoic, Middle Paleozoic and Late Paleozoic age of igneous formation	2
2	Степень средняя/зона с «хорошими» ФЕС. Medium probability/zone with «good» reservoir properties	Терригенные породы позднепалеозойского, раннекаменноугольного, девонского, средне- и позднедевонского возраста, терригенно-карбонатные породы раннекембрийского и раннепалеозойского возраста осадочной формации. Аспидные породы раннекаменноугольного и позднедевонского-раннекаменноугольного возраста, глинисто-кремнистые породы протерозойского возраста метаморфической формации. Ультрабазиты раннепалеозойского возраста магматической формации. Terrigenous rocks of Late Paleozoic, Early Carboniferous, Devonian, Middle and Late Devonian age, terrigenous-carbonate rocks of Early Cambrian and Early Paleozoic sedimentary formation. Slate rocks of the Early Carboniferous and Late Devonian-Early Carboniferous age, clay-siliceous rocks of the Proterozoic age of the metamorphic formation. Early Paleozoic ultramafic rocks of the igneous formation	1
3	Степень низкая/зона с «плохими» ФЕС. Low probability/zone with «bad» reservoir properties	Андезито-базальтовые породы ранне- и среднедевонского возраста, базальтовые породы ранне- и среднетриасового возраста эффузивно-осадочной формации. Базиты среднепалеозойского возраста, диориты среднепалеозойского возраста магматической формации Andesite-basalt rocks of Early and Middle Devonian age, basalt rocks of Early and Middle Triassic age of effusive-sedimentary formation. Basites of the Middle Paleozoic age, diorites of the Middle Paleozoic age of the igneous formation	0

На основе вышеописанного разделения петротипов на группы построена схема распределения областей весовых коэффициентов районирования со значениями 0, 1 и 2 (рис. 4).

#### Районирование и ранжирование резервуара палеозоя

Районирование резервуара палеозоя выполнено на основе комплексирования двух цифровых параметров – значений весовых коэффициентов потенциала формирования коллекторов различными петротипами и значений плотности генерации нефти.

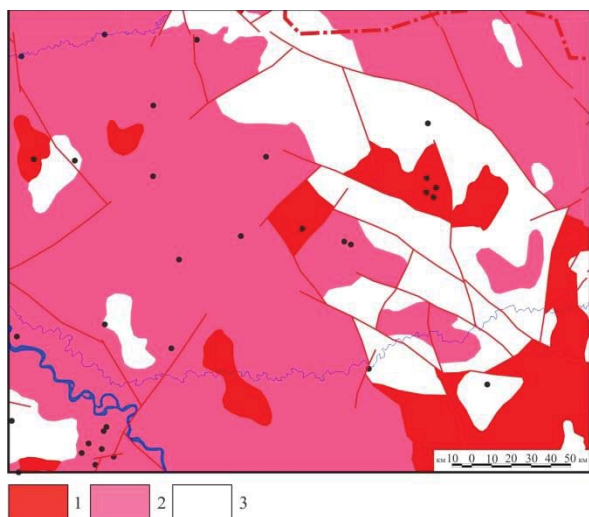
По результатам картировочного комплексирования – совмещения схемы распределения интегрального температурно-временного показателя R (рис. 2), характеризующего плотность генерации нефти, и схемы областей весовых коэффициентов петротипов палеозойского фундамента (рис. 4) выделены 4 пер-

спективные зоны (рис. 5), которые, в свою очередь, подразделяются на участки.

При районировании территории и ранжировании участков по плотности первичной аккумуляции нефти в палеозойском резервуаре первым по важности признаком принят номер группы петротипов пород фундамента, а вторым по важности признаком принята плотность генерации тогурской нефти.

К участку зоны с максимальной перспективностью (по ранжиру первой) относится участок западного мыса Владимировского мегавыступа – северо-восточного борта Варгатского мезопрогиба со значениями плотности генерации нефти более 30 о. ед. и распространением коллекторов, относящихся к первой группе петротипов. На этом участке палеозой скважинами не вскрыт.



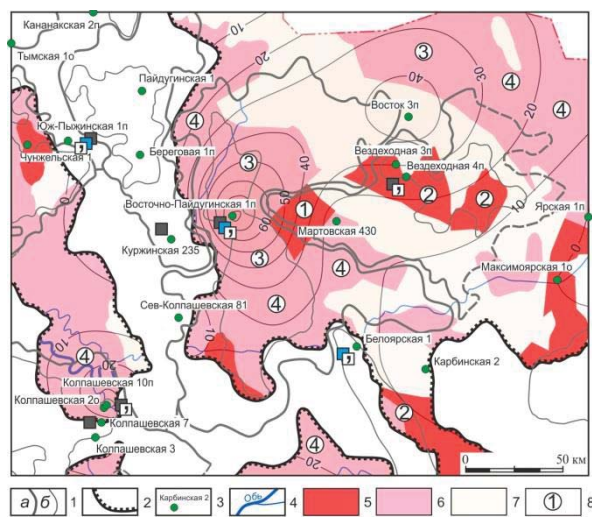


**Рис. 4.** Территория исследований Восточно-Пайдугинской мегавпадины и структур ее обрамления. Схема распределения групп петротипов палеозойского фундамента по потенциалу формирования коллекторов в верхних горизонтах палеозоя (областей весовых коэффициентов 0, 1 и 2): 1 – область распространения первой группы петротипов (весовой коэффициент 2); 2 – область распространения второй группы петротипов (весовой коэффициент 1); 3 – область распространения третьей группы петротипов (весовой коэффициент 0). Остальные обозначения – на рис. 3

**Fig. 4.** Study area of the East-Paidugin megadepression and its framing structures. Scheme of distribution of the Paleozoic basement petrotypes groups according to the potential for the reservoirs formation in the upper horizons of the Paleozoic (areas of weight coefficients 0, 1 and 2): 1 – distribution area of the first group of petrotypes (weight coefficient 2); 2 – distribution area of the second group of petrotypes (weight coefficient 1); 3 – distribution area of the third group of petrotypes (weight coefficient 0). See the rest of the designation in Fig. 3

К участкам зоны с высокой перспективностью (по ранжиру второй) относятся участки Белоноговского мезоподнятия, северной части области сочленения Восточно-Пайдугинской мегавпадины и Владимировского мегавыступа, северо-восточного склона Белоярского мезовыступа с плотностью генерации нефти от 10 до 30 о. ед. и с коллекторами первой группы петротипов. Здесь при бурении скважины Вездеходная 4п в интервале палеозоя получены прямые признаки нефтегазоносности (рис. 5).

К участкам зоны последующих перспектив (по ранжиру третьей) относятся участки северной части Варгатского мезопрогиба и сочленения северо-западного склона Владимировского мегавыступа и северо-восточного борта Восточно-Пайдугинской мегавпадины с плотностью генерации нефти от 10 до 30 о. ед. и распространением коллекторов, относящихся ко второй группе петротипов. Перспективность участков согласуется с наличием прямых признаков УВ при испытании фундамента в разрезе скважины Восточно-Пайдугинская 1п (рис. 5).



**Рис. 5.** Районирование и ранжирование перспектив нефтегазоносности резервуара палеозоя: 1 – границы тектонических структур I (а) и II (б) порядка [5]; 2 – граница распространения тогурской свиты; 3 – скважина, вскрывшая доюрский комплекс, в том числе с прямыми признаками нефтегазоносности; 4 – речная сеть; 5 – область распространения первой группы петротипов палеозоя; 6 – область распространения второй группы петротипов палеозоя; 7 – область распространения третьей группы петротипов палеозоя; 8 – перспективный участок, его номер в ранжировании. Ранжирование районов/участков в соответствии со степенью перспективности (номер группы петротипов пород фундамента/плотность генерации тогурской нефти, о. ед.): 1 – 1/более 30; 2 – 1/10–30; 3 – 2/более 30; 4 – 2/10–30

**Fig. 5.** Zoning and ranking of prospects for oil and gas potential of the Paleozoic reservoir: 1 – tectonic structures boundaries of the I (a) and II (b) order [5]; 2 – distribution boundary of the Togur suite; 3 – well penetrated the pre-Jurassic complex, including those with direct signs of oil and gas potential; 4 – river network; 5 – distribution area of the Paleozoic petrotypes first group; 6 – distribution area of the Paleozoic petrotypes second group; 7 – distribution area of the Paleozoic petrotypes third group; 8 – promising area, its number in the ranking. Ranking of areas/sites in accordance with the degree of prospects (number of the basement rocks petrotypes group/density of Togur oil generation, o.u.): 1 – 1/more than 30; 2 – 1/10–30; 3 – 2/more than 30; 4 – 2/10–30

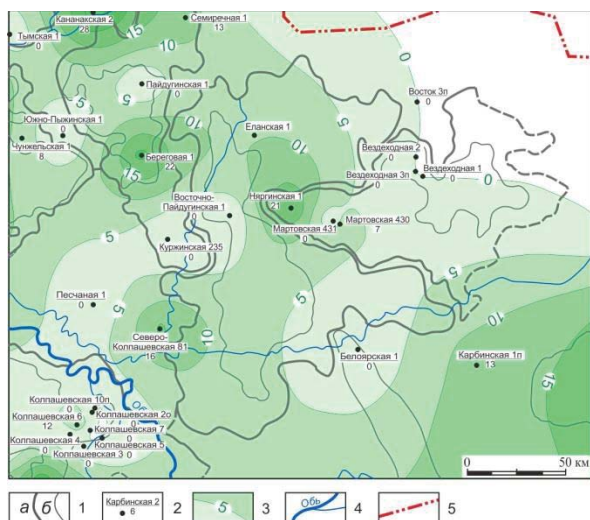
К участкам зоны пониженных перспектив (по ранжиру четвертой) относятся шесть участков, характеризующихся распространением петротипов второй группы и плотностью генерации тогурской нефти 10–30 о. ед. На большей части этих участков палеозой скважинами не вскрыт, в двух случаях получены «вода» и «сухо».

Участки зон, оцененных как неперспективные, характеризующиеся распространением петротипов третьей группы – с потенциально плохими ФЕС или с низкой плотностью генерации тогурской нефти – менее 10 о. ед. На этих участках палеозой в скважинах

либо не испытан, либо при испытаниях получен отрицательный результат.

#### Распределение толщин коры выветривания

Резервуар коры выветривания выделен [5] как нефтегазоносный горизонт зоны контакта (НГГЗК) или пласт М. Этот резервуар слагают перм-триасовые отложения, их изопахиты приведены на карте, построенной нами по разбивкам 68 глубоких скважин (рис. 6).



**Рис. 6.** Схема изопахит коры выветривания Восточно-Пайдугинской впадины и структур обрамления (по фондовым материалам Томского филиала ФБУ «Территориальный фонд геологической информации по Сибирскому федеральному округу»; с использованием [30]): 1 – границы тектонических структур I (а) и II (б) порядка [5]; 2 – скважина (в числителе – площадь, номер; в знаменателе – вскрытая толщина коры выветривания, м); 3 – изопахита, сечение 5 м; 4 – гидросеть; 5 – административная граница Томской области

**Fig. 6.** Weathering crust isopachs scheme of the East-Paidugin depression and its framing structures (according to the stock materials of the Tomsk branch of the FBI «Territorial fund of geological information for the Siberian Federal District»; using [30]): 1 – boundaries of tectonic structures of the I (a) and II (b) order [5]; 2 – well (in the numerator – area, number; in the denominator – the exposed thickness of the weathering crust, m); 3 – isopach, section 5 m; 4 – river network; 5 – administrative boundary of the Tomsk region

Максимальные значения толщин коры выветривания 20–30 м отмечаются:

- в зонах сочленения Восточно-Пайдугинской мегавпадины и Владимировского мегавыступа (скважина Няргинская 1), Зайкинской мезоседловины и Варгатского мезопрогиба (скважина Северо-Колпашевская 81), Пыль-Караминского и Пайдугинского мегавалов (скважина Кананакская 2);
- в южной части Колпашевского мезовала в пределах территории исследования (скважина Поскоевская 1);

- в центральной части Пайдугинского мегавала (скважина Береговая 1).

Выклинивание коры выветривания в основном приурочено к зоне, охватывающей северо-восточную часть территории исследований. Выделяются зоны выклинивания и в пределах Белоярского мезовыступа, Зайкинской мезоседловины, а также в северной и восточной частях Пайдугинского мегавала.

При построении карты изопахит не использовались данные по шести отдельно стоящим скважинам с аномальным значением мощности коры выветривания: Еланская 1 (толщина коры выветривания 68 м) – в пределах контура территории исследований; Верхнекарзинская 1 (39 м), Восток 1 (62 м), Инкинская 10 (41 м), Нарымская 3 (81 м), Крыловская 2 (159 м) – в обрамлении территории исследований. Приведенные аномальные значения мощности коры выветривания не подтверждены ни одной близкорасположенной скважиной.

#### Классификация групп петротипов пород фундамента по потенциалу формирования коллекторов в коре выветривания

Пласт М фрагментарно расположен на образованиях палеозоя, покрывками для его залежей являются нижнеюрские непроницаемые породы или среднеюрские глинистые отложения [31, 32].

С точки зрения возможности образования и качества коллектора мы условно классифицировали отложения фундамента также на три группы (табл. 2), которые с высокой, средней и низкой степенью вероятности образуют в коре коллекторы с «лучшими», «хорошими» и «плохими» ФЕС.

*Первая группа* петротипов фундамента представлена кремнисто-карбонатными, глинисто-кремнистыми породами [33–35], интрузиями кислого состава и их туфами [36, 37].

*Вторая группа* пород фундамента, в которых могут образоваться коллекторы с «хорошими» ФЕС, представлена породами аспидной и глинисто-сланцевой формаций [38–40]. Сюда относятся отложения коры выветривания, представленные брекчиями обломков глинистых сланцев и переслаиванием алевролита и песчаника с мелкими порами. Такие зоны считаются зонами распространения петротипов, образующих «хорошие» коллекторы в коре выветривания, со средней степенью вероятности их образования.

*К третьей группе* относятся магматические породы основного состава, по которым формируются коллекторы в коре выветривания с «плохими» ФЕС [22]. К ним можно отнести зоны контакта преимущественно песчаных пачек – базальных частей нижней юры или любых других грубозернистых образований с породами фундамента.

На основе вышеописанного разделения петротипов на группы построена схема распределения областей весовых коэффициентов районирования со значениями 0, 1 и 2 (рис. 7).

**Таблица 2.** Классификация областей распространения петротипов пород палеозойского фундамента по потенциалу формирования коллекторов в коре выветривания, принятая при нефтегеологическом районировании

**Table 2.** Classification of the rock petrotypes distribution areas of the Paleozoic basement according to the potential for the formation of reservoirs in the weathering crust, adopted in the petrogeological zoning

Группа петротипов, объединенных в один класс Group of petrotypes combined into one class	Степень вероятности образования коллектора/общая характеристика ФЕС этой зоны Probability degree of reservoir formation/general characteristics of reservoir properties of this zone	Петротип формации осадочной/эффузивно-осадочной/метаморфической/интрузивной (рис. 3) Petrotype of sedimentary/effusive-sedimentary/metamorphic/intrusive formation (Fig. 3)	Весовой коэффициент при районировании коры выветривания Weighting factor for weathering crust zoning
1	Степень высокая/зона с «лучшими» ФЕС. High probability/zone with «best» reservoir properties	Карбонатные и доломитовые породы позднепротерозойского и позднепротерозойского-кембрийского возраста осадочной формации. Эффузивно-карбонатные породы раннеордовикского, ранне- и среднепалеозойского, позднепротерозойского-кембрийского возраста эффузивно-осадочной формации Carbonate and dolomite rocks of Late Proterozoic and Late Proterozoic-Cambrian age of sedimentary formation. Effusive-carbonate rocks of the Early Ordovician, Early and Middle Paleozoic, Late Proterozoic-Cambrian age of the effusive-sedimentary formation	2
2	Степень средняя/зона с «хорошими» ФЕС. Medium probability/zone with «good» reservoir properties	Терригенные породы позднепалеозойского, раннекаменноугольного, девонского, средне- и позднедевонского возраста, терригенно-карбонатные породы раннекембрийского и раннепалеозойского возраста осадочной формации. Аспидные породы раннекаменноугольного и позднедевонского-раннекаменноугольного возраста метаморфической формации Terrigenous rocks of Late Paleozoic, Early Carboniferous, Devonian, Middle and Late Devonian age, terrigenous-carbonate rocks of Early Cambrian and Early Paleozoic sedimentary formation. Slate rocks of the Early Carboniferous and Late Devonian-Early Carboniferous age	1
3	Степень низкая/зона с «плохими» ФЕС Low probability/zone with «bad» reservoir properties	Андезит-базальтовые породы ранне- и среднедевонского возраста, базальтовые породы ранне- и среднетриасового возраста эффузивно-осадочной формации. Базиты магматической формации Andesite-basalt rocks of Early and Middle Devonian age, basalt rocks of Early and Middle Triassic age of effusive-sedimentary formation. Basites of the igneous formation	0

Схема распределения групп петротипов палеозойского фундамента по потенциалу формирования коллекторов в коре выветривания (рис. 7) почти аналогична схеме распределения групп петротипов палеозойского фундамента по потенциалу формирования коллекторов во внутреннем палеозое (рис. 4). Это свидетельствует о весьма близких потенциалах петротипов формировать коллекторы как в фундаменте, так и в коре выветривания. Конечно, на схожесть схем влияет и ограниченность перечня петротипов, представленных в пределах территории исследований.

#### Районирование и ранжирование резервуара коры выветривания

Районирование резервуара коры выветривания основывается на комплексировании значений трех параметров: весового коэффициента потенциала формирования коллекторов различными петротипами, плотности генерации тогурской нефти и толщины коры выветривания (рис. 8).

По результатам картировочного комплексирования – совмещения схемы распределения интегрального температурно-временного показателя  $R$  (рис. 2), характеризующего плотность генерации нефти, схемы распределения групп петротипов палеозойского фундамента по потенциалу формирования коллекторов в коре выветривания (рис. 7) и схемы изопахит

коры выветривания (рис. 6), выделены 9 перспективных зон (рис. 8), которые, в свою очередь, подразделяются на участки.

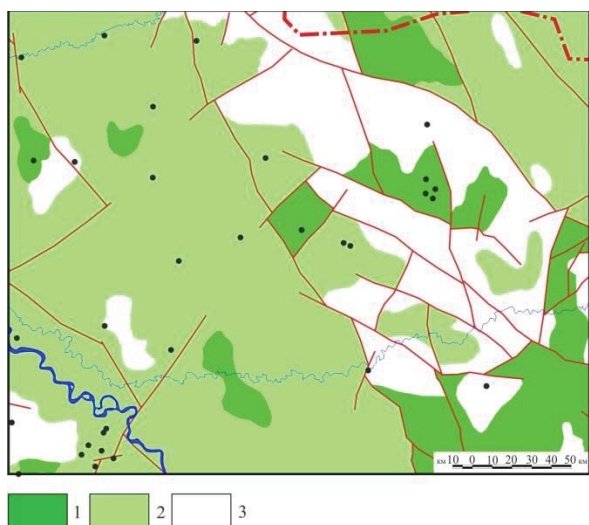
При районировании территории и ранжировании участков по плотности первичной аккумуляции нефти в резервуаре коры выветривания первым по важности признаком принят номер группы (весовой коэффициент) петротипов пород фундамента, вторым по важности признаком принята плотность генерации тогурской нефти и третьим (последним) по важности признаком принята толщина коры выветривания.

К участкам с максимальной перспективностью относятся участки с распространением коллекторов *первой группы петротипов* и со значениями *плотности генерации нефти более 30 о. ед.* Эти участки в свою очередь подразделяются на более или менее перспективные в соответствии с увеличением/уменьшением толщины коры выветривания, соответственно:

- к участкам с толщиной коры выветривания более 10 м (по ранжиру первой) относится участок северо-восточного борта Варгатского мезопрогиба;
- к участкам с толщиной коры выветривания от 5 до 10 м (по ранжиру второй) относится участок западного мыса Владимировского мегавыступа;
- к участкам с толщиной коры выветривания 0–5 м (по ранжиру третьей) относятся участки северной



части области сочленения Восточно-Пайдугинской мегавпадины и Владимировского мегавыступа, сочленения северо-западного склона Владимировского мегавыступа и северо-восточного борта Восточно-Пайдугинской мегавпадины.



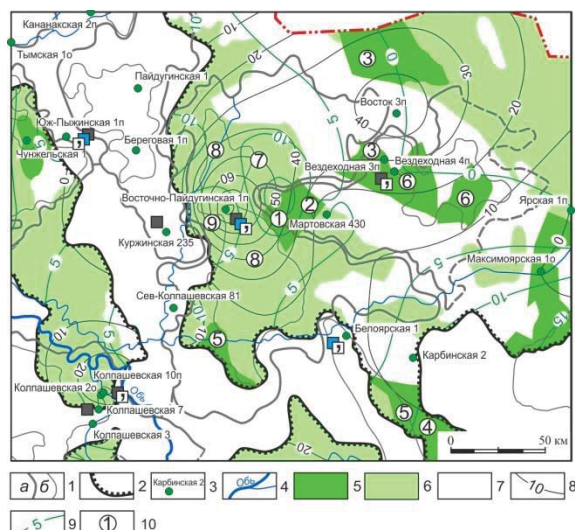
**Рис. 7.** Территория исследований Восточно-Пайдугинской мегавпадины и структур ее обрамления. Схема распределения групп петротипов палеозойского фундамента по потенциалу формирования коллекторов в коре выветривания (областей весовых коэффициентов 0, 1 и 2): 1 – область распространения первой группы петротипов (весовой коэффициент 2); 2 – область распространения второй группы петротипов (весовой коэффициент 1); 3 – область распространения третьей группы петротипов (весовой коэффициент 0). Остальные обозначения – на рис. 3

**Fig. 7.** Study area of the East-Paidugin megadepression and its framing structures. Scheme of distribution of the Paleozoic basement petrotypes groups according to the potential for the reservoirs formation in the weathering crust (areas of weight coefficients 0, 1 and 2): 1 – distribution area of the first group of petrotypes (weight coefficient 2); 2 – distribution area of the second group of petrotypes (weight coefficient 1); 3 – distribution area of the third group of petrotypes (weight coefficient 0). See the rest of the designation in Fig. 3

На участках 1 и 2 кора выветривания скважинами не вскрыта. На одном из участков ранжира 3 кора выветривания вскрыта скважинами Вездеходная 3п и Вездеходная 4, однако пласт М не был испытан [6].

К участкам зоны с высокой перспективностью относятся участки с распространением коллекторов первой группы петротипов и со значениями плотности генерации нефти от 10 до 30 о. ед. Эти участки в свою очередь также подразделяются на более или менее перспективные в соответствии с увеличением/уменьшением толщины коры выветривания:

- к участкам с толщиной коры выветривания более 10 м (по ранжиру четвертой) относятся участки северной части Варгатского мезопрогиба» и юго-восточного склона Белоярского мезовыступа;



**Рис. 8.** Районирование и ранжирование резервуара коры выветривания: 1 – границы тектонических структур I (а) и II (б) порядка [5]; 2 – граница распространения тогурской свиты; 3 – скважина, вскрывшая доюрский комплекс, в том числе с прямыми признаками нефтегазоносности; 4 – речная сеть; 5 – область распространения первой группы петротипов палеозоя; 6 – область распространения второй группы петротипов палеозоя; 7 – область распространения третьей группы петротипов палеозоя; 8 – изолиния значения плотности генерации тогурской нефти (о. ед.); 9 – изолиния толщины (изопахта) коры выветривания (м); 10 – перспективный участок, его номер в ранжировании. Ранжирование районов/участков в соответствии со степенью перспективности (группа петротипов пород фундамента/плотность генерации тогурской нефти, о. ед./толщина коры выветривания, м): 1 – 1/более 30/более 10; 2 – 1/более 30/5–10; 3 – 1/более 30/0–5; 4 – 1/10–30/более 10; 5 – 1/10–30/5–10; 6 – 1/10–30/0–5; 7 – 2/более 30/более 10; 8 – 2/более 30/5–10; 9 – 2/более 30/0–5

**Fig. 8.** Zoning and ranking of the weathering crust reservoir: 1 – tectonic structures boundaries of the I (a) and II (b) order [5]; 2 – distribution boundary of the Togur suite; 3 – well penetrated the pre-Jurassic complex, including those with direct signs of oil and gas potential; 4 – river network; 5 – distribution area of the Paleozoic petrotypes first group; 6 – distribution area of the Paleozoic petrotypes second group; 7 – distribution area of the Paleozoic petrotypes third group; 8 – promising area, its number in the ranking; 9 – isoline of the weathering crust thickness (isopach) (m); 10 – promising site, its number in the ranking. Ranking of areas/sites in accordance with the degree of prospects (group of basement rocks petrotypes/density of Togur oil generation, o.u./thickness of weathering crust, m): 1 – 1/more than 30/more than 10; 2 – 1/more than 30/5–10; 3 – 1/more than 30/0–5; 4 – 1/10–30/more than 10; 5 – 1/10–30/5–10; 6 – 1/10–30/0–5; 7 – 2/more than 30/more than 10; 8 – 2/more than 30/5–10; 9 – 2/more than 30/0–5

- к участкам с толщиной коры выветривания от 5 до 10 м (по ранжиру пятой) относятся участки восточного склона Белоярского мезовыступа и юго-западного склона Варгатского мезовыступа;



- к участкам с толщиной коры выветривания 0–5 м (по ранжиру шестой) относятся участки западной части Белоноговского мезоподнятия и восточной части Белоноговского мезоподнятия.

На всех участках зоны с высокой перспективностью коры выветривания скважинами не вскрыта.

К участкам зоны последующих перспектив относятся участки с распространением коллекторов *второй группы петротипов*. Эти участки в свою очередь также подразделяются на более или менее перспективные в соответствии с увеличением/уменьшением значения плотности генерации нефти и толщины коры выветривания, соответственно:

- к участкам со значением плотности генерации более 30 о. ед. и толщиной коры выветривания более 10 м (по ранжиру седьмой) относится участок северо-восточного борта Варгатского мезопрогиба;
- к участкам со значением плотности генерации от 10 до 30 о. ед. и толщиной коры выветривания 5–10 м (по ранжиру восьмой) относятся участки северного борта Варгатского мезопрогиба» и центральной части Варгатского мезопрогиба;
- к участкам со значением плотности генерации более 30 о. ед. и толщиной коры выветривания 0–5 м (по ранжиру девятой) относится участок западного борта Варгатского мезопрогиба.

Кора выветривания вскрыта лишь в пределах участка 9 в разрезе скважины Восточно-Пайдугинская 1п. В результате испытания получен приток бурового раствора со стружками нефти и выделением газа при испытании (рис. 8).

К зоне участков, расположенных в конце списка ранжирования, относятся остальные участки, которые характеризуются распространением петротипов фундамента второй группы петротипов. В пределах этой зоны коры выветривания вскрыта скважинами Колпашевская 10п и Колпашевская 7, но не испытана.

К зонам участков, оцененных как неперспективные, приурочены участки, характеризующиеся распространением петротипов фундамента третьей группы, потенциально формирующих кору выветривания с плохими ФЭС, а также участки с плотностью генерации тогурской нефти менее 10 о. ед. В пределах перечисленных зон находятся скважины Восток 3п и Карбинская 2, в которых пласт М не испытан, а также скважина Чунжельская 1, в которой при испытании пласта М совместно с тюменской свитой приток флюида получен не был [6].

### Заключение

Для новой территории, расположенной в северо-восточной части Томской области, и новых стратиграфических уровней Восточно-Пайдугинской мегавпадины и структур ее обрамления выполнены палеотектонические и палеотемпературные реконструкции осадочных разрезов 26 глубоких скважин. Проведено картирование очагов генерации тогурской нефти на 11 ключевых моментах геологического времени, начиная с покурского (114 млн лет назад). По результатам экспресс-оценки плотности генерации УВ выделены перспективные земли для поисков залежей в нижнеюрском и доюрском разрезе [6].

В настоящей работе для территории исследований выполнена условная классификация областей распространения петротипов пород палеозойского фундамента по потенциалу формирования коллекторов во внутренних горизонтах палеозоя и в коре выветривания.

Районирование и ранжирование территории по плотности первичной аккумуляции нефти в породах палеозоя основывается на комплексировании значений двух параметров – весового коэффициента потенциала формирования коллекторов различными петротипами пород и плотности генерации тогурской нефти. К зоне с *максимальной перспективностью* отнесен участок западного мыса Владимировского мегавыступа – северо-восточного борта Варгатского мезопрогиба. На этом участке палеозойский разрез скважинами не вскрыт. К зоне с *высокой перспективностью* отнесены участки Белоноговского мезоподнятия, северная часть области сочленения Восточно-Пайдугинской мегавпадины и Владимировского мегавыступа, северо-восточный склон Белоярского мезовыступа. Здесь при бурении скважины Вездеходная 4п в интервале палеозоя получены прямые признаки нефтегазоносности.

Районирование и ранжирование территории по плотности первичной аккумуляции нефти в резервуаре коры выветривания основываются на комплексировании значений трех параметров – весового коэффициента потенциала формирования коллекторов различными петротипами пород фундамента, плотности генерации тогурской нефти и толщине коры выветривания. К зоне с *максимальной перспективностью* отнесены участки северо-восточного борта Варгатского мезопрогиба, западного мыса Владимировского мегавыступа, северной части области сочленения Восточно-Пайдугинской мегавпадины и Владимировского мегавыступа» и области сочленения северо-западного склона Владимировского мегавыступа и северо-восточного борта Восточно-Пайдугинской мегавпадины. На этих участках коры выветривания скважинами не вскрыта. К зоне с *высокой перспективностью* относятся участки северной части Варгатского мезопрогиба и юго-восточного склона Белоярского мезовыступа, восточного склона Белоярского мезовыступа и юго-западного склона Варгатского мезовыступа, западной и восточной частей Белоноговского мезоподнятия. На участках зоны с высокой перспективностью коры выветривания скважинами не вскрыта.

При районировании территории и ранжировании участков по плотности первичной аккумуляции нефти в резервуарах палеозоя и коры выветривания первым по важности признаков принят весовой коэффициент потенциала петротипов пород фундамента, вторым – плотность генерации тогурской нефти и третьим – толщина коры выветривания.

Зоны *максимальных и высоких перспектив* рекомендуется учитывать при планировании поисков доюрских залежей нефти на северо-востоке Томской области.

Давно отмечено [41], что одним из перспективных направлений воспроизводства сырьевой базы нефтегазового комплекса Томской области является изучение и освоение нераспределенного фонда недр, к которому относится недоизученное правобережье Оби. Проведенные исследования определенно уменьшают недоизученность востока Томской области.

Нужно обратить внимание на еще один аспект значимости результатов наших исследований на северо-востоке Томской области. Геотермия давно стала неотъемлемой частью исследований при решении

фундаментальных вопросов строения, динамики литосферы и более глубоких оболочек Земли. Становление геотермии как прикладного метода (метода разведочной геофизики) происходит сравнительно недавно, особенно в части прогнозно-поисковых исследований на нефть и газ. В этом контексте результаты, приведенные в настоящей статье, в комплексе с ранее опубликованными результатами [6], способствуют развитию методологии и теории геотермического метода.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Blackbourn G. Petroleum geology of the Pre-Jurassic // *Russian Oil & Gas Technologies*. – 2012. – V. 28. – P. 58–69.
- Hard-to-recover reserves of Yugra oil (West Siberia) / V.I. Isaev, S.G. Kuzmenkov, R.Sh. Ayupov, Yu.A. Kuzmin, G.A. Lobova, P.A. Stulov // *Геофизический журнал* – 2019. – Т. 41. – № 1. – С. 33–43.
- Карта распределения плотности теплового потока восточной части Томской области / В.И. Исаев, Г. Лобова, А.С. Меренкова, Е.Н. Осипова, С.Г. Кузьменков, А.Н. Фомин // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2022. – Т. 333. – № 4. – С. 37–52.
- Сурков В.С., Жеро О.Г. Фундамент и развитие платформенного чехла Западно-Сибирской плиты. – М.: Недра, 1981. – 143 с.
- Конторович В.А. Тектоника и нефтегазоносность мезозойско-кайнозойских отложений юго-восточных районов Западной Сибири. – Новосибирск: Изд-во СО РАН, 2002. – 253 с.
- Тепловой поток, термическая история материнской нижнеюрской тогурской свиты и нефтегазоносность Восточно-Пайдугинской мегавпадины (юго-восток Западной Сибири) / А.С. Меренкова, В.И. Исаев, Г. Лобова, Е.Н. Осипова // *Нефтегазовая геология. Теория и практика*. – 2022. – Т. 17. – № 3. – С. 1–39. URL: [https://www.ngtp.ru/upload/iblock/69e/24\\_2022.pdf](https://www.ngtp.ru/upload/iblock/69e/24_2022.pdf) (дата обращения 17.08.2022).
- Мезозойско-кайнозойский климат и неотектонические события как факторы реконструкции термической истории нефтематеринской баженовской свиты арктического региона Западной Сибири (на примере п-ва Ямал) / В.И. Исаев, А.А. Искоркина, Г.А. Лобова, В.И. Старостенко, С.А. Тихоцкий, А.Н. Фомин // *Физика Земли*. – 2018. – № 2. – С. 124–144.
- Yalcin M.N., Littke R., Sachsenhofer R.F. Thermal history of sedimentary basins. – Berlin: Springer Verlag, 1997. – 167 p.
- Gas generation and accumulation in the West Siberian basin / R. Littke, B. Cramer, P. Gerling, N.V. Lopatin, H.S. Poelchau, R.G. Schaefer, D.H. Welte // *AAPG Bulletin*. – 1999. – V. 83. – № 10. – P. 1642–1665.
- Makhous M., Galushkin Y.I. Basin analysis and modeling of the burial, thermal and maturation histories in sedimentary basins. – Paris: Technip, 2005. – 380 p.
- Hantschel T., Kauerauf A.I. Fundamentals of basin and petroleum systems modeling. – Heidelberg: Springer, 2009. – 476 p.
- Terrestrial heat flow and crustal thermal structure in the northern slope of Tazhong uplift in Tarim Basin / Y. Liu, N. Qiu, H. Li, A. Ma, J. Chang, J. Jia // *Geothermics*. – 2020. – V. 83. – P. 1–14. URL: <https://doi.org/10.1016/j.geothermics.2019.101709> (дата обращения 29.08.2022).
- Mechanism of hydrocarbon migration of Paleozoic clastic rocks in Western Section of the Tabei Uplift, Tarim Basin: YM34 silurian accumulations as a case / W. Guan, M. Zha, T. Li, J. Qu, F. Li, L. Deng, Y. Tan, C. Zhang // *Proc. of the International Field Exploration and Development Conference*. – Singapore, 2018. – P. 782–797.
- Генезис углеводородов юрского и доюрского комплексов Чистинного месторождения (зона Колтогорско-Уренгойской палеорифта) / Ю.В. Коржов, Г.А. Лобова, В.И. Исаев, А.И. Стариков, М.Я. Кузина, С.А. Орлов // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2019. – Т. 330. – № 10. – С. 111–125.
- Handhal A.M., Al-Shahwan M.F., Chafeet H.A. Interpretation of hydrocarbon generation, migration and thermal history of Mesopotamian basin Southern Iraq based 1D Petromod software // *Iraqi Geological Journal*. – 2020. – V. 53. – № 1B. – P. 29–56.
- Мельник И.А., Недоливко Н.М., Зимица С.В. Вторичные карбонаты юрских песчаных отложений как показатели продуктивности палеозоя // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2020. – Т. 331. – № 3. – С. 32–38.
- Сурков В.С., Лотышев В.И. Отчет о НИР по проекту 2Н1-10 «Разработать геологическую модель мезозойского основания Западно-Сибирской плиты на базе комплексной интерпретации материалов бурения, сейсмических данных и потенциальных полей» (заключительный). Кн. 1, 2. – Новосибирск: ФГУП «СНИИГГиМС», 2007. – 125 с., 134 с.
- Niab D., Dinaldson E.C. *Petrophysics*. – Oxford: Elsevier, 2004. – 926 p.
- Duan S., Wojtanowicz A.K. Theoretical and experimental investigation of water in oil transverse dispersion in porous media // *SPE Annual Technical Conference and Exhibition*. – Denver, Colorado, 2008. – P. 1376–1401.
- Carstens H. Finding oil – using geochemistry // *Exploration worldwide*. – 2008. – V. 5. – № 5. URL: <https://www.geoexpro.com/articles/2008/05/finding-oil-using-geochemistry> (дата обращения 01.08.2022).
- Ковешников А.Е. Породы-коллекторы доюрских карбонатно-кремнисто-глинистых отложений Западно-Сибирской геосинклизы // *Известия Томского политехнического университета*. – 2012. – Т. 321. – № 1. – С. 138–142.
- Нефтегазоносность коллекторов коры выветривания и палеозоя юго-востока Западной Сибири (прогнозирование трудноизвлекаемых запасов) / Г.А. Лобова, В.И. Исаев, С.Г. Кузьменков, Т.Е. Лунёва, Е.Н. Осипова // *Геофизический журнал*. – 2018. – Т. 40. – № 4. – С. 73–106.
- Yabe S., Fukuchi R., Hamada Y. Simultaneous estimation of in situ porosity and thermal structure from core sample measurements and resistivity log data at Nankai accretionary prism // *Earth Planets Space*. – 2019. – V. 71. – P. 1–15.
- Paleozoic-sourced petroleum systems of the West Siberian Basin. What is the evidence? / E. Ablya, D. Nadezhkin, E. Bordyg, T. Korneva, E. Kodlaeva, R. Mukhutdinov, M.A. Sugden, P.F. van Bergen // *Organic Geochemistry*. – 2008. – V. 39. – № 8. – P. 1176–1184.
- Геологическое изучение и нефтегазоносность палеозойских отложений Западной Сибири / А.В. Ступакова, А.В. Соколов, Е.В. Соболева, Т.А. Кирюхина, И.А. Курасов, Е.В. Бордюг // *Георесурсы*. – 2015. – № 2. – С. 63–76.
- Краснощеква Л.А., Гарсия Бальса А.С., Белозеров В.Б. Условия образования вторичных доломитов в палеозойских карбонатных коллекторах Северо-Останинского месторождения (Западная Сибирь) по данным микрокриотермометрии // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2020. – Т. 331. – № 8. – С. 208–219.
- Porosity enhancement potential through dolomitization of carbonate reservoirs, a case of study from the Euphrates Graben fields, East Syria / Y. Ibrahim, V.P. Morozov, M.E. Kadi, A. Alaa // *Petroleum*. – 2021. URL: <https://doi.org/10.1016/j.petlm.2021.05.005> (дата обращения 08.08.2022).
- Koveshnikov A.E., Nesterova A.C., Dolgaya T.F. Fracture system influence on the reservoirs rock formation of Ordovician-Devonian carbonates in West Siberia tectonic depression // *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*. – 2016. – V. 43. – 7 p.

29. Геологическое строение и перспективы нефтегазоносности доюрских отложений центральной части Западно-Сибирской плиты / А.В. Тугарева, Г.А. Чернова, Н.П. Яковлева, Л.В. Мороз // Известия высших учебных заведений. Нефть и газ. – 2017. – № 5. – С. 58–66.
30. Волков В.И. Создание систематизированной оперативной геолого-геофизической информации для обеспечения тематических и научно-исследовательских работ на территории Томской области. – Томск: ОАО «Томскнефтегазгеология», 2001. – 199 с.
31. Абросимова О.О. Нефтегазоносность доюрских отложений юго-востока Западно-Сибирской плиты // Материалы региональной конференции геологов Сибири, Дальнего Востока и Северо-Востока России. Т. 1. – Томск: ГалаПресс, 2000. – С. 193–194.
32. Конторович В.А. Сейсмогеологические критерии нефтегазоносности зоны контакта палеозойских и мезозойских отложений Западной Сибири (на примере Чузикско-Чижапской зоны нефтегазоаккумуляции (Томская область) // Геология и геофизика. – 2007. – Т. 48. – № 5. – С. 538–547.
33. Ковешников А.Е., Недолишко Н.М. Коры выветривания доюрских отложений Западно-Сибирской геосинеклизы // Известия Томского политехнического университета. – 2012. – Т. 320. – № 1. – С. 77–81.
34. Михайлец Н.М. Формирование залежей углеводородов в породах коры выветривания фундамента Западной Сибири // Экспозиция Нефть Газ. – 2012. – № 5. – С. 54–56.
35. Immenhauser A. Towards a definition of the deep burial realm in carbonate diagenesis // 34th International Meeting of Sedimentologists: abstract book. – Rome, 2019. – 1170 p.
36. Effects of weathering and fracturing on the physical properties of different types of volcanic rock: Implications for oil reservoirs of the Zhongguai relief, Junggar Basin, NW China / K. Zhanga, Z. Wanga, Y. Jiang, A. Wanga, B. Xiang, N. Zhou, Y. Wang // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2020. – V. 193. URL: <https://doi.org/10.1016/j.petrol.2020.107351> (дата обращения 29.08.2022).
37. Structural division of granite weathering crusts and effective reservoir evaluation in the western segment of the northern belt of Dongying Sag, Bohai Bay Basin, NE China / M. Zhu, Z. Liu, H. Liu, X. Li, S. Liang, J. Gong, P. Zhang // Marine and Petroleum Geology. – 2020. – V. 121. URL: <https://doi.org/10.1016/j.marpetgeo.2020.104612> (дата обращения 29.08.2022).
38. The porosity in heterogeneous carbonate reservoir rocks: tectonic versus diagenetic imprint – a multi-scale study from the Hyblean Plateau (SE Sicily, Italy) / R. Maniscalco, E. Fazio, R. Punturo, R. Cirrincione, A.D. Stefano, S. Distefano, M. Forzese, G. Lanzafame, G.S. Leonardi, S. Montalbano, A.G. Pellegrino, A. Raelle, G. Palmeri // Geosciences. – 2022. – V. 12. – № 4. URL: <https://doi.org/10.3390/geosciences12040149> (дата обращения 08.08.2022).
39. Сынгаевский П.Е., Хафизов С.Ф. Формация коры выветривания в осадочном цикле Западно-Сибирского бассейна // Геология нефти и газа. – 1999. – № 11–12. – С. 22–30.
40. Diagenetic facies and reservoir porosity evaluation of deep high-quality clastic reservoirs: a case study of the Paleogene Shahejie Formation, Nanpu Sag, Bohai Bay Basin, China / J. Yang, T. Wang, Y. Ji, H. Wu, Z. He, J. Zhang, Y. Zhang, L. Meng, Y. Feng // Energy Exploration and Exploitation. – 2021. – V. 39. – № 4. – P. 1097–1122.
41. Ростовцев В.Н., Резник С.Н. Юрский комплекс Чулым-Тымского междуречья – перспективный объект для поисков нефти и газа в правобережье Оби Томской области. – Томск: Изд-во Том. Ун-та, 2004. – 164 с.

Поступила 03.09.2022 г.

Прошла рецензирование 17.09.2022 г.

#### Информация об авторах

**Исаев В.И.**, доктор геолого-минералогических наук, профессор отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

**Лобова Г.**, доктор геолого-минералогических наук, независимый эксперт по нефтегазовой геологии и геофизики.

**Меренкова А.С.**, аспирант отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

**Осипова Е.Н.**, кандидат геолого-минералогических наук, старший преподаватель отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

**Исаева О.С.**, руководитель Томского филиала ФБУ «Территориальный фонд геологической информации по Сибирскому федеральному округу».

**Коржов Ю.В.**, кандидат химических наук, доцент Института нефти и газа Югорского государственного университета.

UDC 553.98:551.763:550.836

## ZONING OF THE OIL ACCUMULATION DENSITY OF THE EAST-PAIDUGIN DEPRESSION JURASSIC RESERVOIRS (USING CALCULATED THERMODYNAMIC PARAMETERS OF THE OIL SOURCE TOGUR SUITE)

Valery I. Isaev<sup>1</sup>,  
isaevvi@tpu.ru

Galina Lobova<sup>2</sup>,  
lobovaga@tpu.ru

Anna S. Merenkova<sup>1</sup>,  
a.merenkova@yandex.ru

Elizaveta N. Osipova<sup>1</sup>,  
osipovaen@tpu.ru

Olga S. Isaeva<sup>3</sup>,  
isaeva\_sah@mail.ru

Yuri V. Korzhov<sup>4</sup>,  
ykor1962@mail.ru

<sup>1</sup> National Research Tomsk Polytechnic University  
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

<sup>2</sup> 25-25, Visagino street, Visaginas, 31102, Lithuania.

<sup>3</sup> Tomsk branch of the FBI «Territorial fund of geological information for the Siberian Federal District»,  
bld. 16, 9, Mokrushin street, Tomsk, 634034, Russia.

<sup>4</sup> Yugra State University,  
16, Chekhov street, Khanty-Mansiysk, 628012, Russia.

**The relevance of the study.** The study and development of the unallocated subsoil fund of the Tomsk region east is being carried out to stabilize the falling level of oil production in the southeast of Western Siberia. The choice validity of the study area is determined by the prospects and underexploration of the Ob River right bank.

**The main aim** of the research is to replenish the resource base of the Tomsk region fuel and energy complex at the stage of identifying promising areas and sites for predictive and exploratory research.

**The objects** of the research are the Lower Jurassic oil source Togur suite, weathering crust and Paleozoic reservoirs of the East-Paidugin depression territory.

**The subjects** of the research are the thermodynamic regime of Togur oil generation sources, the capacitive properties of pre-Jurassic reservoirs.

**The task** of the research is to perform zonal zoning of the pre-Jurassic complex of the East-Paidugin megadepression and framing structures based on the integration of basement rock petrotype classifications, thermodynamic characteristics of the oil source Togur suite and the distribution of weathering crust thicknesses.

**Research methods.** The study of the hydrocarbons generation density by the Togur suite is based on paleotemperature reconstructions of sedimentary rocks at each moment in the development of the basin at known temperatures on the surface (paleoclimate) and heat flow values given at the base of the sedimentary cover. The zoning of the weathering crust and Paleozoic reservoirs was carried out on the basis of a conditional classification of foundation rocks petrotypes, the integration of three digital parameters, namely, the weight coefficients of the potential for the formation of reservoirs by various petrotypes, the values of oil generation density and the values of weathering crust thicknesses. When ranking sites according to the density of primary oil accumulation, the weight coefficient of the basement rock petrotype potential was taken as the first important feature, the density of Togur oil generation was the second, and the thickness of the weathering crust was the third.

**Results.** Areas of the Vladimirov megaprotrusion western cape and the Vargat mesotrough northeastern side is assigned to the zone with the maximum prospects for the Paleozoic reservoir. Highly promising areas include areas of the Belonogov mesoplift, the northern part of the East-Paidugin junction megadepression and the Vladimirov megauplift, and the Beloyar mesoplift northeastern slope. The zone with the highest potential for the weathering crust reservoir includes areas of the Vargat mesotrough northeastern side, the Vladimirov megadepression western cape, the northern part of the junction of the East-Paidugin megadepression and the Vladimirov megadepression, and the area of the junction of the Vladimirov megadepression northwestern slope and the East-Paidugin megadepression northeastern edge. The zone with high prospects includes areas of the Vargat mesoprotrusion northern part and the Beloyar mesoprotrusion southeastern slope, the Beloyar mesoprotrusion eastern slope and the Vargat mesoprotrusion southwestern slope, the Belonogov mesoplift western and eastern parts.

**Conclusions.** The zones of maximum and high predictive prospects for weathering crust and Paleozoic reservoirs are recommended to be taken into account when planning the search for pre-Jurassic oil deposits in the Tomsk region northeast. Along with that, research results visibly promote development of the methodology and the theory of Geothermics as of Exploration Geophysics method.

### Key words:

oil source suite paleotemperature reconstruction, weathering crust and Paleozoic reservoirs, conditional classification of foundation rocks petrotypes, digital zoning and ranking, northeast of Tomsk region.

### REFERENCES

1. Blackburn G. Petroleum geology of the Pre-Jurassic. *Russian Oil & Gas Technologies*, 2012, vol. 28, pp. 58–69.
2. Isaev V.I., Kuzmenkov S.G., Ayupov R.Sh., Kuzmin Yu. A., Lobova G.A., Stulov P.A. Hard-to-recover reserves of Yugra oil (West Siberia). *Geofizicheskiy zhurnal*, 2019, vol. 41, no. 1, pp. 33–43.



3. Isaev V.I., Lobova G., Merenkova A.S., Osipova E.N., Kuzmenkov S.G., Fomin A.N. Heat flow density distribution map of the foundation roof in the Eastern part of the Tomsk Region. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2022, vol. 333, no. 4, pp. 37–52. In Rus.
4. Surkov V.S., Zherov O.G. *Fundament i razvitie platformennogo chekhla Zapadno-Sibirskoy plity* [The basement and platform development of Western Siberian Plate]. Moscow, Nedra Publ., 1981. 143 p.
5. Kontorovich V.A. *Tektonika i neftegazonosnost mezozoysko-kaynozoykskikh otlozheniy yugo-vostochnykh rayonov Zapadnoy Sibiri* [Tectonics and oil and gas potential of the Mesozoic and Cenozoic rocks in the south-eastern part of Western Siberia]. Novosibirsk, SO RAN Publ., 2002. 253 p.
6. Merenkova A.S., Isaev V.I., Lobova G., Osipova E.N. Heat flow and thermal history of the Togur formation (Lower Jurassic) sources rocks and data about petroleum bearing East-Paidugin megadepression (South-East of Western Siberia). *Neftegazovaya Geologiya. Teoriya i Praktika*, 2022, vol. 17, no. 3, pp. 1–39. In Rus. Available at: [https://www.ngtp.ru/upload/iblock/69e/24\\_2022.pdf](https://www.ngtp.ru/upload/iblock/69e/24_2022.pdf) (accessed 17 August 2022).
7. Isaev V.I., Iskorkina A.A., Lobova G.A., Starostenko V.I., Tikhotskii S.A., Fomin A.N. Mesozoic–Cenozoic climate and Neotectonic events as factors in reconstructing the thermal history of the source-rock Bazhenov formation, Arctic Region, West Siberia, by the example of the Yamal Peninsula. *Izvestiya. Physics of the Solid Earth*, 2018, vol. 54, no. 2, pp. 310–329. In Rus.
8. Yalcin M.N., Littke R., Sachsenhafer R.F. *Thermal history of sedimentary basins*. Berlin, Springer Verlag, 1997. 167 p.
9. Littke R., Cramer B., Gerling P., Lopatin N.V., Poelchau H.S., Schaefer R.G., Welte D.H. Gas generation and accumulation in the West Siberian basin. *AAPG Bulletin*, 1999, vol. 83, no. 10, pp. 1642–1665.
10. Makhous M., Galushkin Y.I. *Basin analysis and modeling of the burial, thermal and maturation histories in sedimentary basins*. Paris, Technip, 2005. 380 p.
11. Hantschel T., Kauerauf A.I. *Fundamentals of basin and petroleum systems modeling*. Heidelberg, Springer, 2009. 476 p.
12. Liu Y., Qiu N., Li H., Ma A., Chang J., Jia J. Terrestrial heat flow and crustal thermal structure in the northern slope of Tazhong uplift in Tarim Basin. *Geothermics*, 2020, vol. 83, pp. 1–14. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.geothermics.2019.101709> (accessed 29 August 2022).
13. Guan W., Zha M., Li T., Qu J., Li F., Deng L., Tan Y., Zhang C. Mechanism of hydrocarbon migration of Paleozoic clastic rocks in Western Section of the Tabei Uplift, Tarim Basin: YM34 silurian accumulations as a case. *Proc. of the International Field Exploration and Development Conference*. Singapore, 2018. pp. 782–797.
14. Korzhov Yu.V., Lobova G.A., Isaev V.I., Starikov A.I., Kuzmina M.Ya., Orlov S.A. Genesis of hydrocarbons of Jurassic and pre-Jurassic complexes of Chistinnoe field (Koltogorsk Urengoy paleorift area). *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2019, vol. 330, no. 10, pp. 111–125. In Rus.
15. Handhal A.M., Al-Shahwan M.F., Chafeet H.A. Interpretation of hydrocarbon generation, migration and thermal history of Mesopotamian basin Southern Iraq based 1D Petromod software. *Iraqi Geological Journal*, 2020, vol. 53, no. 1B, pp. 29–56.
16. Melnik I.A., Nedolivko N.M., Zimina S.V. Secondary carbonates of Jurassic sandy deposits as indicators of Paleozoic productivity. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 3, pp. 32–38. In Rus.
17. Surkov V.S., Lotyshev V.I. *Otchet o NIR po projektu 2N1-10 «Razrabotat geologicheskuyu model mezozojskogo osnovaniya Zapadno-Sibirskoy plity na baze kompleksnoy interpretatsii materialov bureniya, seismicheskikh dannyykh i potentsialnykh poley» (zaklyuchitelny)*. [Research report on the project 2N1-10 «To develop geological model of the pre-Mesozoic basement of Western Siberian Plate on the base of comprehensive interpretation of drilling, seismic and potential fields data» (final)]. Book 1, Book 2. Novosibirsk, FGUP «SNIIGGiMS» Publ., 2007. 125 p., 134 p.
18. Niab D., Dinaldson E.C. *Petrophysics*. Oxford, Elsevier, 2004. 926 p.
19. Duan S., Wojtanowicz A.K. Theoretical and experimental investigation of water in oil transverse dispersion in porous media. *SPE Annual Technical Conference and Exhibition*. Denver, Colorado, 2008. pp. 1376–1401.
20. Carstens H. Finding oil – using geochemistry. *Exploration worldwide*, 2008, vol. 5, no. 5. Available at: <https://www.geoexpro.com/articles/2008/05/finding-oil-using-geochemistry> (accessed 1 August 2022).
21. Koveshnikov A.E. The reservoirs in the pre-Jurassic calcareous, siliceous, argillaceous rocks of Western Siberian geosyncline. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University*, 2012, vol. 321, no. 1, pp. 138–142. In Rus.
22. Lobova G.A., Isaev V.I., Kuzmenkov S.G., Luneva T.E., Osipova E.N. Oil and gas reservoirs of weathering crusts and Paleozoic basement in the southeast of Western Siberia (forecasting of hard-to-recover reserves). *Geofizicheskiy zhurnal*, 2018, vol. 40, no. 4, pp. 73–106. In Rus.
23. Yabe S., Fukuchi R., Hamada Y. Simultaneous estimation of in situ porosity and thermal structure from core sample measurements and resistivity log data at Nankai accretionary prism. *Earth Planets Space*, 2019, vol. 71, pp. 1–15.
24. Ablya E., Nadezhkin D., Bordyug E., Korneva T., Kodlaeva E., Mukhutdinov R., Sugden M.A., Van Bergen P.F. Paleozoic-sourced petroleum systems of the Western Siberian Basin – What is the evidence? *Organic Geochemistry*, 2008, vol. 39, no. 8, pp. 1176–1184.
25. Stoupakova A.V., Sokolov A.V., Soboleva E.V., Kiryukhina T.A., Kurasov I.A., Bordyug E.V. Geological survey and petroleum potential of Paleozoic deposits in the Western Siberia. *Geosurvey*, 2015, vol. 61, no. 2, pp. 63–76. In Rus.
26. Krasnoschekova L.A., Garcia A.S., Belozero V.B. Conditions for formation of secondary dolomites in Paleozoic carbonate reservoirs of North-Ostaninsk field (Western Siberia) according to microcryothermometric data. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 8, pp. 208–219. In Rus.
27. Ibrahim Y., Morozov V.P., Kadi M.E., Alaa A. Porosity enhancement potential through dolomitization of carbonate reservoirs, a case of study from the Euphrates Graben fields, East Syria. *Petroleum*, 2021. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.petlm.2021.05.005> (accessed 8 August 2022).
28. Koveshnikov A.E., Nesterova A.C., Dolgaya T.F. Fracture system influence on the reservoirs rock formation of Ordovician-Devonian carbonates in West Siberia tectonic depression. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 2016, vol. 43, 7 p.
29. Tugareva A.V., Chernova G.A., Yakovleva N.P. Moroz M.L. Geological structure and oil and gas potential of the pre-Jurassic deposits of the central part of the West Siberian plate. *Oil and Gas Studies*, 2017, no. 5, pp. 58–66. In Rus.
30. Volkov V.I. *Sozdanie sistemativirovannoy operativnoy geologo-geofizicheskoy informatsii dlya obespecheniya tematicheskikh i nauchno-issledovatel'skikh rabot na territorii Tomskoy oblasti* [Creation of systematized operational geological and geophysical information for ensuring thematic and research works in Tomsk Region]. Tomsk, Tomskneftegasgeologiya Publ., 2001. 199 p.
31. Abrosimova O.O. Neftegazonosnost doyruskikh otlozheniy yugovostoka Zapadno-Sibirskoy plity [Oil and gas potential of the pre-Jurassic rocks in the southeastern of Western Siberian Plate]. *Materialy regionalnoy konferentsii geologov Sibiri, Dalnego Vostoka i Severo-Vostoka Rossii* [Proceedings of the Regional conference for geologists of Siberia, Far East and the northeast of Russia]. Tomsk, GalaPress, 2000. Vol. 1, pp. 193–194.
32. Kontorovich V.A. Petroleum potential of reservoirs at the Paleozoic-Mesozoic boundary in West Siberia: seismogeological criteria (example of the Chuzik-Chizhapka regional oil-gas accumulation). *Russian Geology and Geophysics*, 2007, vol. 48, no. 5, pp. 422–428. In Rus.
33. Koveshnikov A.E., Nedolivko N.M. Weathering crusts on the pre-Jurassic rocks of Western Siberian geosyncline. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University*, 2012, vol. 320, no. 1, pp. 77–81. In Rus.
34. Mikhaylets N.M. Formation of hydrocarbon deposits in weathering crust of basement rocks of West Siberia. *Russia, Exposition Oil Gas*, 2012, no. 5, pp. 54–56. In Rus.
35. Immenhauser A. Towards a definition of the deep burial realm in carbonate diagenesis. *34th International Meeting of Sedimentologists: abstract book*. Rome, 2019. 1170 p.

36. Zhanga K., Wanga Z., Jiang Y., Wanga A., Xiang B., Zhou N., Wang Y. Effects of weathering and fracturing on the physical properties of different types of volcanic rock: Implications for oil reservoirs of the Zhongguai relief, Junggar Basin, NW China. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2020, vol. 193. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.petrol.2020.107351> (accessed 29 August 2022).
37. Zhu M., Liu Z., Liu H., Li X., Liang S., Gong J., Zhang P. Structural division of granite weathering crusts and effective reservoir evaluation in the western segment of the northern belt of Dongying Sag, Bohai Bay Basin, NE China. *Marine and Petroleum Geology*, 2020, vol. 121. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.marpetgeo.2020.104612> (accessed 29 August 2022).
38. Maniscalco R., Fazio E., Punturo R., Cirrincione R., Stefano A.D., Distefano S., Forzese M., Lanzafame G., Leonardi G.S., Montalbano S., Pellegrino A.G., Racle A., Palmeri G. The porosity in heterogeneous carbonate reservoir rocks: tectonic versus diagenetic imprint – a multi-scale study from the Hyblean Plateau (SE Sicily, Italy). *Geosciences*, 2022, vol. 12, no. 4, pp. 1–28. Available at: <https://doi.org/10.3390/geosciences12040149> (accessed 8 August 2022).
39. Syngaevskiy P.E., Khafisov S.F. Formatsiya kory vyvetrivaniya v osadochnom tsikle Zapadno-Sibirskogo basseyna [The weathering crust formation in the sedimentary cycle in Western Siberian basin]. *Geologiya nefii i gaza*, 1999, no. 11–12, pp. 22–30.
40. Yang J., Wang T., Ji Y., Wu H., He Z., Zhang J., Zhang Y., Meng L., Feng Y. Diagenetic facies and reservoir porosity evaluation of deep high-quality clastic reservoirs: A case study of the Paleogene Shahejie Formation, Nanpu Sag, Bohai Bay Basin, China. *Energy Exploration and Exploitation*, 2021, vol. 39, no. 4, pp. 1097–1122.
41. Rostovtsev V.N., Reznik S.N. *Yurskiy kompleks Chulym-Tymskogo mezhdurechya – perspektivny obyekti dlya poiskov nefii i gaza v pravoberezhie Obi Tomskoy oblasti* [The Jurassic play of Chulym-Tym interfluvium – a prospective object for oil and gas searching in the right bank of the river Ob in the Tomsk Region]. Tomsk, Tomsk University Publ., 2004. 164 p.

*Received: 3 September 2022.  
Reviewed: 17 September 2022.*

#### Information about the authors

**Valery I. Isaev**, Dr. Sc., professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

**Galina Lobova**, Dr. Sc., independent expert in the field of oil and gas geology and geophysics.

**Anna S. Merenkova**, postgraduate student, National Research Tomsk Polytechnic University.

**Elizaveta N. Osipova**, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

**Olga S. Isaeva**, director, Tomsk branch of the FBI «Territorial fund of geological information for the Siberian Federal District».

**Yuri V. Korzhov**, Cand. Sc., associate professor, Yugra State University.

УДК 621.311.002

## ЭНЕРГОЭФФЕКТИВНЫЙ АЛГОРИТМ УПРАВЛЕНИЯ ФОТОЭЛЕКТРОСТАНЦИЕЙ С ЭЛЕКТРОХИМИЧЕСКИМ И ЭЛЕКТРОТЕПЛЫМ АККУМУЛИРОВАНИЕМ ЭНЕРГИИ

Лукутин Борис Владимирович<sup>1</sup>,  
lukutin48@mail.ru

Шандарова Елена Борисовна<sup>1</sup>,  
shandarovaelena@mail.ru

Аль-Мажди Каррар Хамид<sup>1</sup>,  
karrar.almussawi.87@gmail.com

<sup>1</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет,  
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

**Актуальность** работы определяется возрастающим спросом на энергию, особенно на экологически чистую. В настоящее время большое внимание уделяется исследованию и совершенствованию возобновляемых источников. Производство электроэнергии с использованием фотоэлектростанций весьма перспективно в районах с высокой инсоляцией, где централизованные энергетические системы недоступны, или в случае, когда доступная электроэнергия обходится дорого. Однако высокая стоимость оборудования фотоэлектростанций ограничивает возможности их широкого применения. Одним из способов снизить стоимость фотоэлектрической установки является аккумуляция электрической энергии не только в электрохимических батареях, но и в виде нагретой воды в менее дорогих водонагревательных установках, что позволит уменьшить стоимость фотоэлектрической установки за счет уменьшения ёмкости батарей при одновременном обеспечении потребителя горячей водой. Одной из актуальных задач является разработка алгоритмов управления фотоэлектростанцией с гибридной электрохимической и электротепловой системой аккумуляции фотоэлектричества.

**Цель:** разработка интеллектуального алгоритма управления энергетическим балансом автономной фотоэлектростанции с электрохимическим и электротермическим аккумулярованием фотоэлектричества.

**Методы:** аналитические методы исследования фотоэлектрических станций с агрегатным способом аккумуляции солнечной энергии: в электрохимических и электротермических батареях, методы компьютерного моделирования, метод сравнений с предыдущими научными исследованиями.

**Результаты.** Разработана структура системы управления энергетическим балансом фотоэлектростанции с электрохимическим и электротеплым аккумулярованием фотоэлектричества; предложен алгоритм функционирования системы управления с использованием МРРТ технологий; структура и алгоритм функционирования протестированы на примере оптимизации энергетического баланса социального объекта на территории Ирака путём моделирования в программном комплексе Matlab.

### Ключевые слова:

Возобновляемая энергия, солнечная радиация, фотоэлектростанция, электрохимические и электротермические накопители электроэнергии, алгоритм управления, баланс мощности, точка максимальной мощности.

### Введение

Охрана окружающей среды, в первую очередь путем борьбы с выбросами парниковых газов, стала серьезной мировой проблемой. Важное значение приобретает исследование и совершенствование альтернативных, в частности возобновляемых, источников. Прогнозируется, что к 2040 г. на производство возобновляемой энергии будет приходиться 50 % от объёма производимой электроэнергии в Европейском союзе, около 30 % в Китае и Японии и более 25 % в Соединенных Штатах и Индии [1–4].

Производство электроэнергии от возобновляемых источников, в частности от солнечного излучения, весьма перспективно в районах с высокой инсоляцией, где централизованные энергетические системы недоступны, или когда доступная электроэнергия обходится дорого [5–8]. Однако высокая стоимость оборудования фотоэлектростанций (ФЭС) ограничивает возможности их широкого применения, поэтому актуальными становятся вопросы создания гибридных комплексов, а также разработка интеллектуальных

алгоритмов управления их работой, позволяющих повысить энергоэффективность работы ФЭС, а также по возможности снизить ее стоимость [9–15]. Одним из наиболее дорогостоящих компонентов ФЭС является накопитель электроэнергии на основе электрохимических батарей. Батареи, к тому же, чувствительны к температуре и имеют короткий срок службы. Актуальной задачей является разработка алгоритмов управления ФЭС с гибридной электрохимической и электротепловой системой аккумуляции фотоэлектричества.

Электрическая энергия от ФЭС может храниться не только в электрохимических батареях, но и в виде нагретой воды в менее дорогих водонагревательных установках, что позволит снизить стоимость фотоэлектрической установки за счет уменьшения ёмкости батарей при одновременном обеспечении потребителя горячей водой. Прямые солнечные водонагреватели широко доступны и отличаются простотой конструкции и низкой стоимостью, однако их эффективность сильно зависит от солнечных и погодных

условий. На эффективность фотоэлектрического преобразования существенно не влияет широкий спектр изменений энергии солнечной радиации, что позволяет фотоэлектрическим станциям расширять свои возможности, в том числе путём обеспечения потребителя не только электроэнергией, но и горячим водоснабжением с использованием электронагревателей [16–18].

#### Описание алгоритмов управления

В работе авторов [19] рассматривалась возможность использования гибридного фотоэлектрического комплекса, в состав которого включены электронагреватели, питание которых осуществляется непосредственно от массива фотоэлектрических модулей (ФМ) через электротепловой контроллер. Применение таких комплексов эффективно для потребителей с высокой долей тепловых нагрузок, так как позволяет снижать установленную мощность энергетического оборудования, предназначенного для питания только электрической нагрузки. Структура предложенного комплекса представлена на рис. 1.

В предлагаемом варианте электрическая нагрузка через инвертор получает питание от батареи электрохимических аккумуляторов (АБ). Контроллер заряда обеспечивает требуемые режимы заряда–разряда для оптимизации эксплуатационных характеристик аккумуляторов

и режимов работы фотоэлектрического комплекса. Контроллер заряда работает в режиме широтно-импульсной модуляции, что позволяет существенно увеличить способность АБ принимать заряд, а также уменьшить нагрев и газовыделение.

Подключение дизель-генераторной установки (ДГУ) осуществляет блок автоматического включения резерва (АВР), если энергии АБ недостаточно для питания электрической нагрузки.

Алгоритм работы теплового канала основан на поддержании оптимального баланса мощности в системе. Тепловой контроллер на основании данных, поступающих с датчика электропотребления и определителя максимума мощности ФЭС, формирует сигнал, поступающий на ШИМ регулятор, позволяющий подключать в систему тепловую нагрузку такой мощности, чтобы суммарная потребляемая мощность равнялась максимально возможной мощности фотоэлектрических модулей с учетом температуры и текущей инсоляции.

Работа определителя максимума мощности ФЭС может быть основана на реализации алгоритмов поиска точки максимальной мощности (МРРТ). В частности, можно использовать известный метод возмущения и наблюдения, основанный на поиске точки экстремума мощностной характеристики массива фотоэлектрических модулей [20].

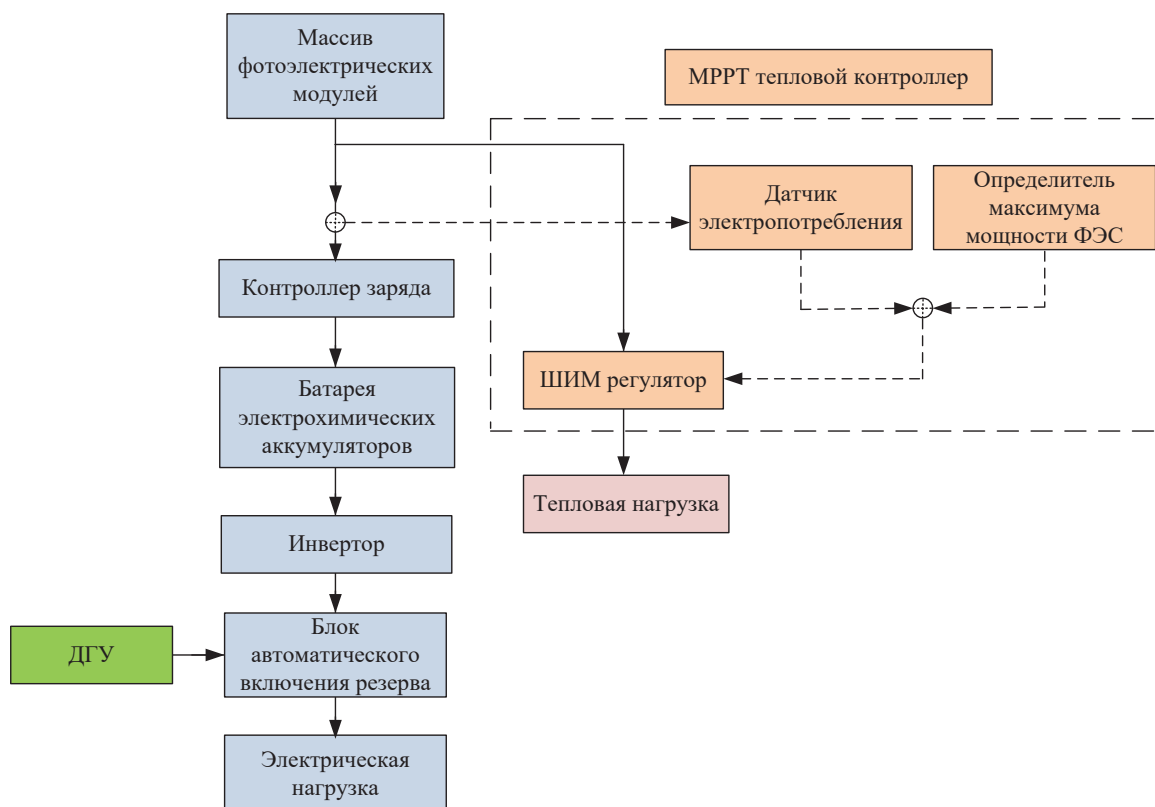


Рис. 1. Структурная схема гибридного фотоэлектрического комплекса  
 Fig. 1. Block diagram of a hybrid photovoltaic complex

Работа алгоритма «Возмущение и наблюдение» основана на периодическом сканировании выходных электрических параметров фотоэлектрического пре-

образователя  $U_{\phi}$ ,  $I_{\phi}$ , вычислении соответствующей мощности и сравнении её с мощностью на предыдущем временном интервале сканирования. Если  $\Delta P_{\phi}$



увеличивается, то необходимо увеличить напряжения задания  $U_3$  для ШИМ-регулятора мощности тепловой нагрузки (рис. 1). При уменьшении  $\Delta P_{\phi}$  необходимо уменьшить напряжение задания для регулирования мощности тепловой нагрузки. В результате в установившемся режиме алгоритм описывает колебания рабочей точки массива фотоэлектрических модулей во-

круг его точки максимальной мощности. Ток и напряжение, снимаемые с ФМ, измеряются через определенные промежутки времени, как и в распространенных солнечных MPPT контроллерах заряда аккумуляторных батарей. Логическая карта алгоритма «Возмущение и наблюдение» представлена на рис. 2.

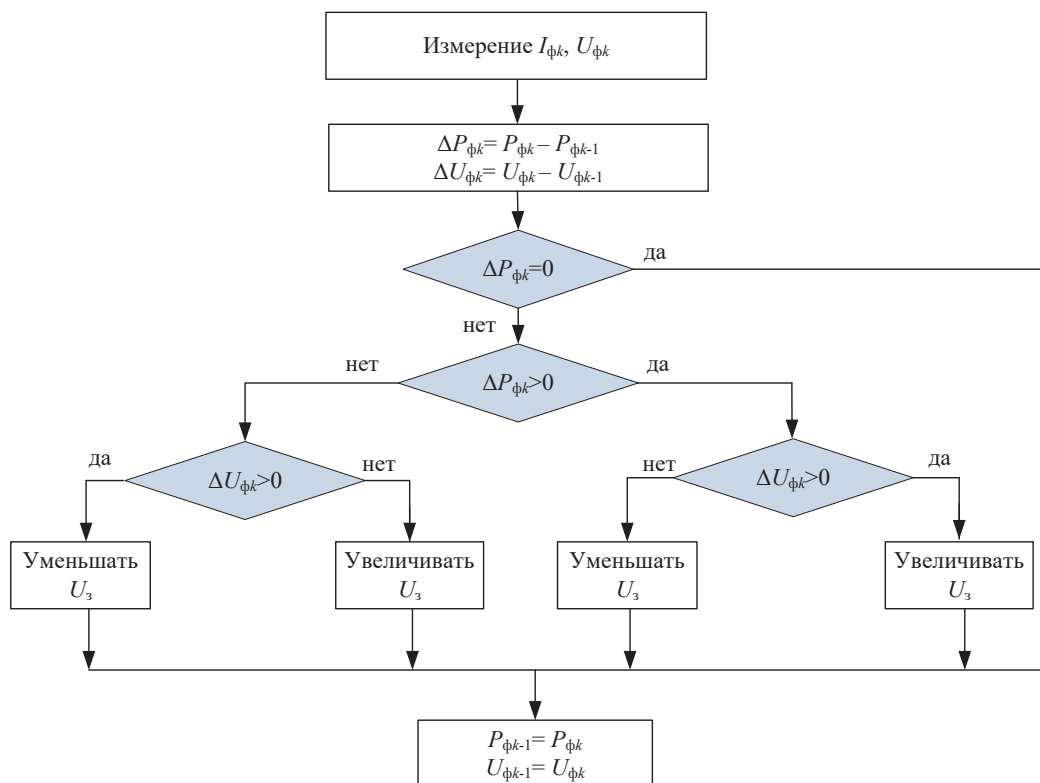


Рис. 2. Логическая карта алгоритма «Возмущение и наблюдение»  
 Fig. 2. Logical map of the «Perturbation and observation» algorithm

Логическая карта алгоритма функционирования гибридного фотоэлектрического комплекса представлена на рис. 3.

Режимы работы энергетического оборудования зависят от чередования светлого и тёмного времени суток, когда ФМ работают с избытком или недостатком полезной генерации. Подключение тепловой нагрузки определенной мощности позволяет фотоэлектрическим модулям работать в точке максимальной мощности. К примеру, если величина максимально возможной мощности ФМ  $P_{\phi \max}$  при текущей инсоляции превышает суммарную мощность, необходимую для питания электрической нагрузки  $P_{\text{эл}}$  и заряда батареи аккумуляторов  $P_{\text{зАБ}}$ , то подключается тепловая нагрузка, мощность которой определяется как

$$\Delta P = P_{\phi \max} - P_{\text{эл}} - P_{\text{зАБ}}$$

Если уровень заряда аккумуляторной батареи  $V_{\text{АБ}}$  достигает максимального значения  $V_{\max}$ , то мощность тепловой нагрузки будет равна разности  $P_{\phi \max}$  и  $P_{\text{эл}}$ . Если максимально возможная мощность меньше, чем  $P_{\text{эл}}$ , и уровень заряда  $V_{\text{АБ}}$  больше минимально возможного  $V_{\min}$ , то АБ отдает свою мощность электрической нагрузке. При достижении минимального

уровня заряда АБ отключается, и блок автоматического ввода резерва вводит в работу ДГУ, обеспечивая таким образом бесперебойное электроснабжение электрической нагрузки. Аккумуляторная батарея может при этом заряжаться от фотоэлектрических модулей при текущем уровне инсоляции.

В светлое время, при высоком уровне освещённости, электрическая нагрузка питается через инвертор, от батареи аккумуляторов, подключенной к ФМ, при этом ШИМ-регулятор подключает в схему тепловую нагрузку такой мощности, чтобы ФМ работали в точке максимальной возможной мощности; ДГУ при этом выключена. При недостаточном уровне освещённости на начальном этапе отключается тепловая нагрузка, недостаток мощности от ФМ электрическая нагрузка берет из АБ до момента падения энергии заряда аккумуляторов до минимально допустимого уровня. Далее отключается АБ, и в схему вводится ДГУ, работающая только на электрическую нагрузку.

В тёмное время суток ДГУ, при условии небольшой мощности электрических нагрузок, отключается, и питание осуществляется от батареи аккумуляторов.

Предложенный алгоритм проверен на примере энергообеспечения спортивного комплекса, располо-



женного в столице Ирака, Багдаде, в течение суток для зимнего и летнего периода. Город находится на высоте 40 м над уровнем моря и располагается на  $33^{\circ}20'19''$  северной широты и  $44^{\circ}23'38''$  восточной долготы. Удельная суточная инсоляция в районе Багдада

минимальна в зимний период (от 2,7 кВт·ч/м<sup>2</sup>/день в декабре до 3,8 кВт·ч/м<sup>2</sup>/день в феврале) и имеет наибольшие значения в летний период (от 7,3 кВт·ч/м<sup>2</sup>/день в июне до 6,6 кВт·ч/м<sup>2</sup>/день в августе) [21].

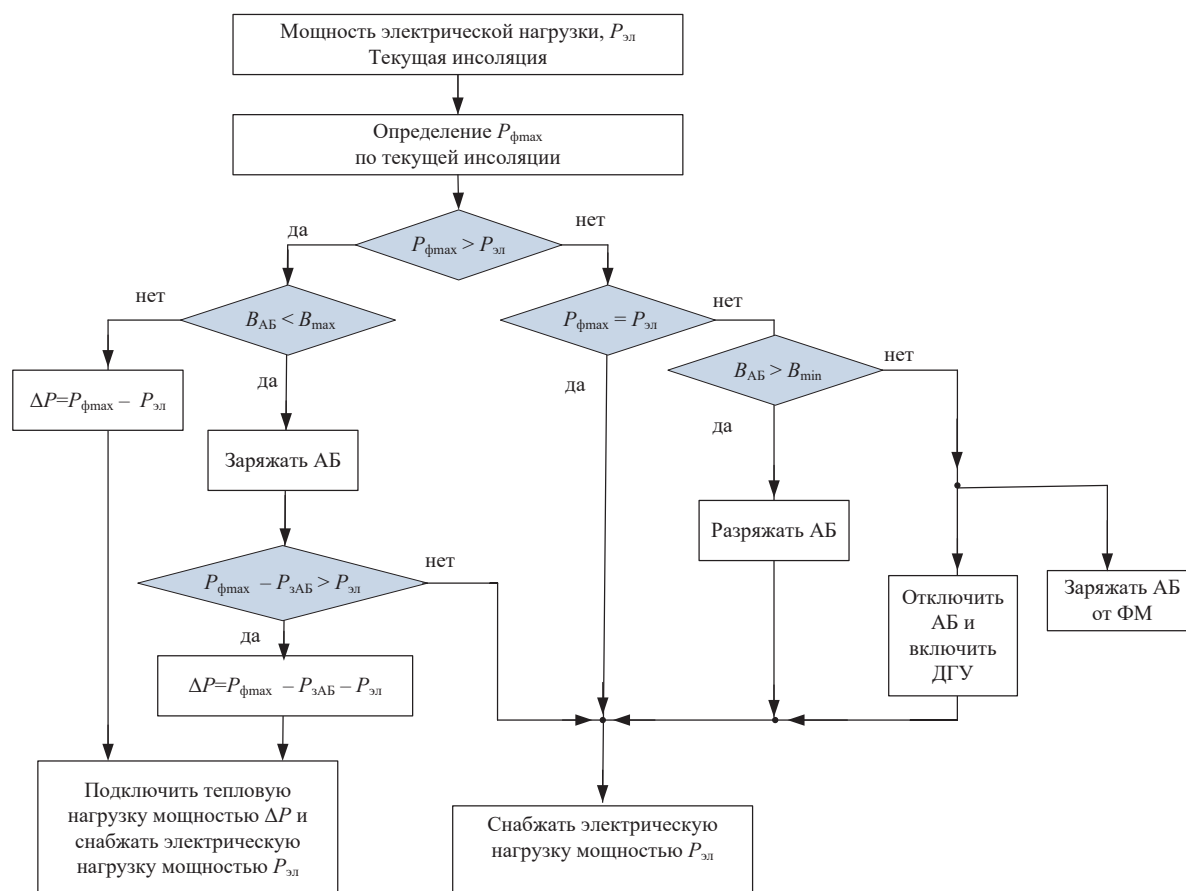


Рис. 3. Логическая карта алгоритма функционирования гибридного фотоэлектрического комплекса

Fig. 3. Logical map of the operation algorithm of the hybrid photovoltaic complex

Для обеспечения электроэнергией спортивного объекта предложено использование 300 фотоэлектрических модулей HH-MONO-200W [19], среднесуточная потенциальная генерация которых в районе Багдада рассчитана в специализированном программном

комплексе и представлена на рис. 4 [21]. Применительно к выбранным для анализа сезонам можно отметить, что количество электроэнергии, генерируемой фотоэлектрическими модулями, изменяется от 236 кВт·ч/сутки в декабре до 393 кВт·ч/сутки в июне.

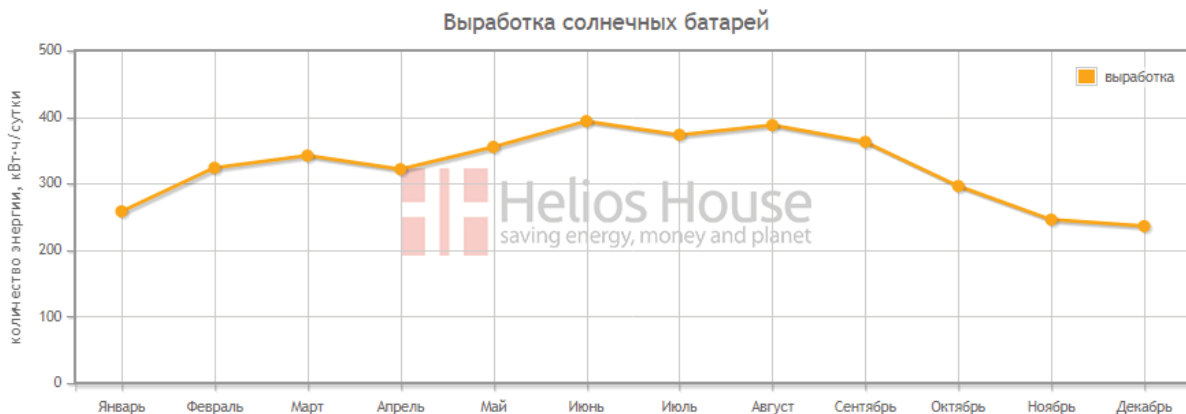


Рис. 4. График среднесуточной потенциальной генерации фотоэлектростанции

Fig. 4. Graph of the average daily potential generation of a photovoltaic power plant

Мощности и время работы электроприёмников (электрическая нагрузка) спортивного зала для летнего и зимнего сезонов приведены в таблице. Время работы зала – с 10 до 22 часов.

**Таблица.** Энергетические характеристики электроприёмников по сезонам

**Table.** Energy characteristics of electrical receivers by season

Электроприёмники Electrical receivers	Зима/Winter		Лето/Summer	
	Мощность, кВт Power, kW	Время, ч Time, hour	Мощность, кВт Power, kW	Время, ч Time, hour
Освещение зала Hall lighting	4	12	4	12
Тренажер Fitness machine	3	12	3	12
Отопление помещений Space heating	20	12	0	0
Вентиляция/Ventilation	0,6	12	0,6	12
Кондиционер Air-condition	0	0	6	12
Водоснабжение Water supply	0,5	3	0,5	6
Сауна/Sauna	2,6	5	2,6	5
Охранная сигнализация Security alarm	0,16	12	0,16	12
Стиральная машина Washing machine	0,5	4	0,5	4
Освещение автостоянки Car park lighting	1	14	1	10

Спортивный зал площадью 200 м<sup>2</sup> в среднем рассчитан на 30 посетителей в день. Время работы зала – с 10 до 22 часов. Кроме электрической энергии, душевые кабины тренажёрного зала нуждаются в горячем водоснабжении. В качестве тепловой нагрузки рассматривались ТЭНы суммарной мощностью 20 кВт.

Температура, до которой нагреется вода за определённый временной интервал от источника энергии известной мощности, рассчитывалась по формуле

$$Q_2 = \frac{\Delta Pt + cmQ_1}{cm},$$

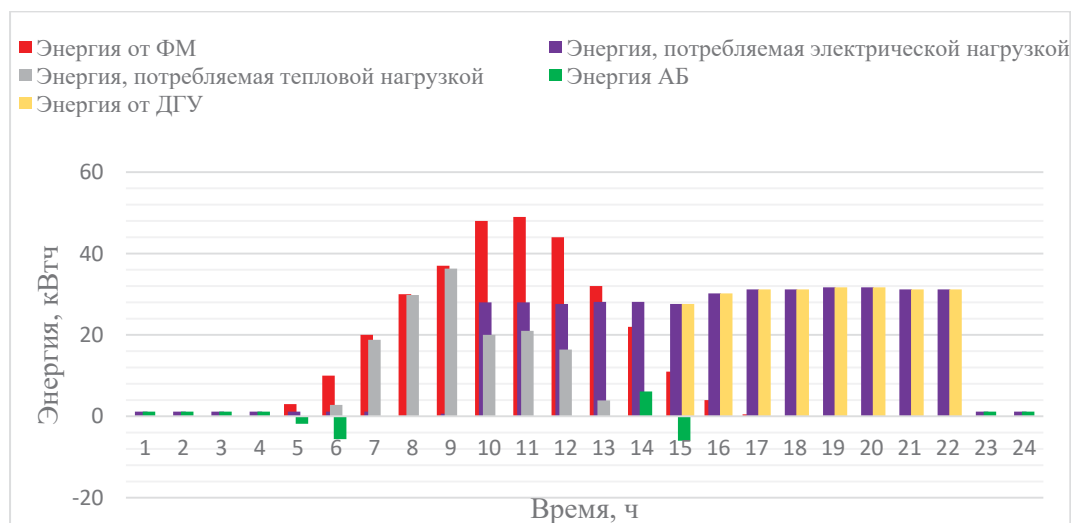
где  $t$  – время нагрева воды [с];  $\Delta P$  – мощность, отдаваемая тепловой нагрузке [Вт];  $m$  – масса воды [кг];  $c=4183$  [Дж/кг·К] – удельная теплоёмкость воды;  $Q_2$  и  $Q_1$  – конечная и начальная температура воды [К].

При расчетах принималось, что объем воды, который необходимо нагревать, равен 660 л. Также было учтено, что при пользовании душем каждый час в бак добавляется 60 л холодной воды с температурой 3,5 °С. Пересчет температуры воды в этом случае производился по формуле

$$Q = \frac{V_{гор} \cdot Q_{гор} + V_{хол} \cdot Q_{хол}}{V_{гор} + V_{хол}},$$

где  $V_{гор}$ ,  $V_{хол}$  – объем горячей и холодной воды;  $Q_{гор}$ ,  $Q_{хол}$  – температура горячей и поступающей холодной воды.

Диаграмма энергетического баланса в условиях зимней нагрузки представлена на рис. 5. Энергия фотоэлектрических модулей варьируется в зависимости от интенсивности поступающего солнечного излучения. В ночное время (23.00 до 04.00) спортивный объект потребляет небольшую мощность, идущую на обеспечение освещения стоянки и работу охранной сигнализации. Питание в это время можно осуществлять от АБ без подключения ДГУ. Когда выработка электроэнергии от ФМ начинает увеличиваться, АБ начинает заряжаться, что видно с 05:00 до 06:00 часов (на рис. 5 потенциально возможная мощность, идущая на заряд и разряд АБ, выделена зеленым цветом). В период времени с 06:00 до 13:00 ФМ работают в точке максимальной мощности, и избыточная энергия идёт на подогрев воды в душевых. В часы нехватки запасенной энергии и энергии ФМ с 15:00 до 22:00 АВР вводит в работу ДГУ. Электрическая нагрузка питается только от генератора, при этом АБ может подзаряжаться от ФМ.



**Рис. 5.** Диаграмма энергетического баланса в условиях зимней нагрузки

**Fig. 5.** Energy balance diagram under winter load conditions

На диаграмме, представленной на рис. 6, показано изменение температуры воды при работе нагревателей и ее остывания из-за смешивания с холодной водой днем и естественного остывания ночью, когда ДГУ отключена. Как видно из диаграммы, в часы работы спортзала температура воды изменяется от 100 градусов в утренний период активного солнца до 40 градусов ко времени его закрытия, при этом подогрев воды осуществляется только за счет использования энергии фотоэлектрических модулей, работающих в точке максимальной мощности.

Для анализа режима работы ФЭС в летние сутки необходимо изменить входные данные. Энергия ФМ

также варьируется в зависимости от количества поступающего солнечного излучения.

Алгоритм работы остается тем же, но время работы ДЭС существенно сокращается из-за повышенного уровня инсоляции и сокращения мощности электрической нагрузки. Диаграммы энергетического баланса и почасового изменения температуры представлены на рис. 7, 8 соответственно. Стоит отметить, что в течение летних суток энергия ФМ позволяет поддерживать температуру воды от 30 до 100 градусов, а в течение дня температура держится на уровне 100 градусов, что свидетельствует об энергоэффективности предложенного алгоритма.

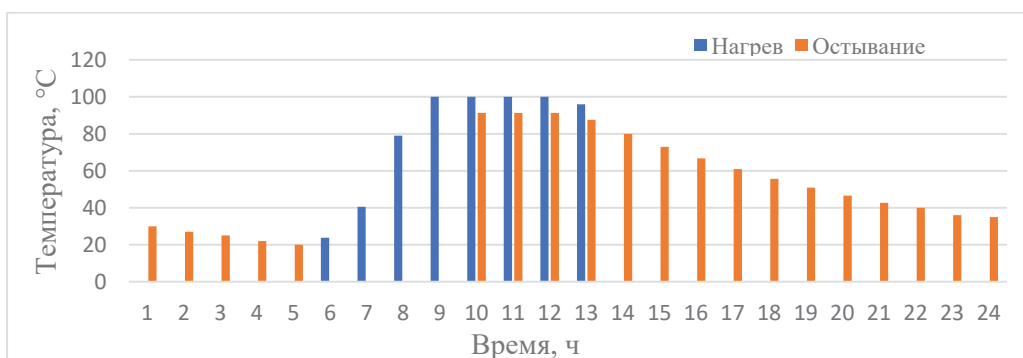


Рис. 6. Почасовое изменение температуры воды (зима)

Fig. 6. Hourly change in water temperature (winter)

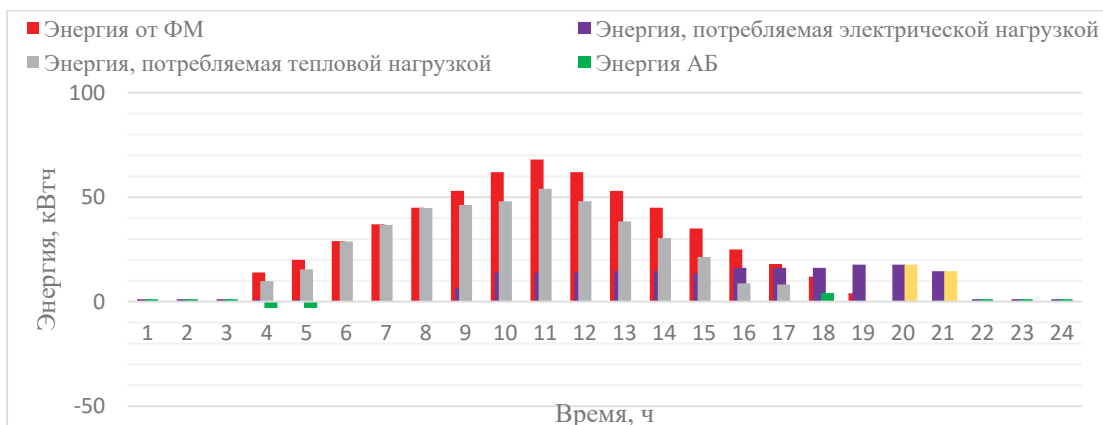


Рис. 7. Диаграмма энергетического баланса в условиях летней нагрузки

Fig. 7. Energy balance diagram under summer load conditions

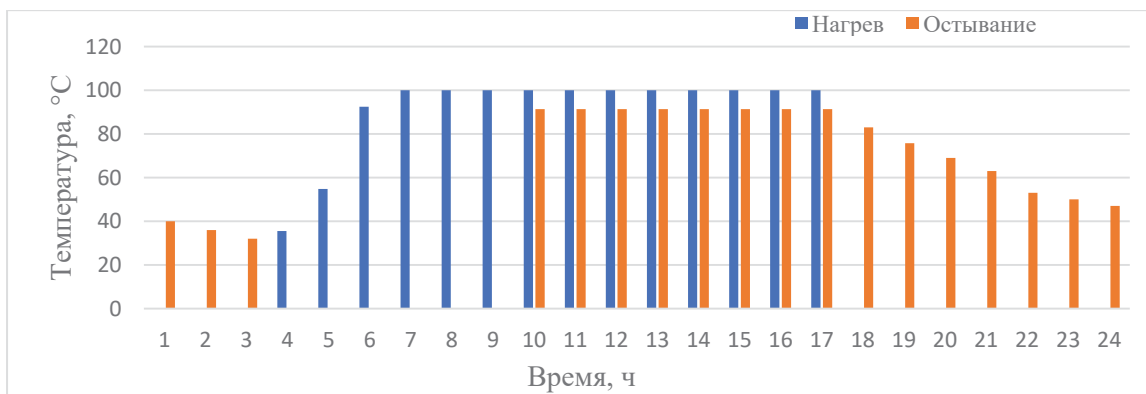


Рис. 8. Почасовое изменение температуры воды (лето)

Fig. 8. Hourly change in water temperature (summer)



## Заключение

Анализ энергетических балансов автономной ФЭС с комбинированным электрохимическим и электротепловым аккумулярованием генерируемой электроэнергии позволил установить целесообразность реализации режима работы массива фотоэлектрических модулей в точке максимальной мощности путём управления доступной мощностью электронагревателей системы горячего водоснабжения. Заряд электрохимических аккумуляторов, питающих электрические нагрузки автономного энергетического комплекса, осуществляется контроллером заряда, обеспечивающим оптимальные режимы заряда-разряда батареи аккумуляторов.

Основные результаты исследования:

1. Предложена структура построения и алгоритм работы электротеплового МРРТ контроллера, формирующего управляющее воздействие для регуля-

тора мощности тепловых нагрузок в виде напряжения задания с использованием известного метода поиска точки максимальной мощности фотоэлектрического преобразователя – метод «Возмущения и наблюдения».

2. Разработана структура и алгоритм функционирования системы управления энергетическим балансом автономной фотоэлектрической системы с электрохимическими и электротепловыми накопителями фотоэлектричества, обеспечивающая минимизацию электропотребления электроэнергии от дополнительного источника электропитания – дизельного генератора.
3. Материалы статьи могут быть полезны разработчикам автономных систем электроснабжения с использованием фотоэлектростанций для потребителей с существенной долей электротепловых нагрузок.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Statistical review of world energy. 2022. URL: <https://www.bp.com/en/global/corporate/energy-economics/statistical-review-of-world-energy/renewable-energy.html> (дата обращения 20.06.2022).
2. Sawe Y., Gopta S.C., Bohra A.V. Review of hybrid renewable energy systems with comparative analysis of off-grid system // *Renewable and Sustainable Energy Reviews*. – 2018. – V. 81 (2). – P. 2217–2235.
3. International Energy Agency. URL: <https://www.iea.org/fuels-and-technologies/renewables> (дата обращения 20.06.2022).
4. International Energy Agency (IEA) // *Renewables*, 2020. URL: <https://www.iea.org/reports/global-energy-review-2020/electricity> (дата обращения 20.06.2022).
5. Лаврик А.Ю., Жуковский Ю.Л., Максимов Н.А. Определение оптимального состава резервируемой гибридной ветро-солнечной электростанции // *Промышленная энергетика*. – 2019. – № 10. – С. 47–53.
6. Пашкевич Р.И., Павлов К.А. Математическое моделирование комбинированной дизель-солнечной электростанции для децентрализованного электроснабжения потребителей // *Электрические станции. Возобновляемая энергетика*. – 2019. – № 9 (1058). – С. 30–35.
7. Al-Nama M.A., Al-Hafid M.S., Al-Fahadi A.S. Estimation of the diversity factor for the Iraqi distribution system using intelligent methods // *Al-Rafidain Engineering*. – 2009. – V. 17 (1). – P. 14–21.
8. Lukutin B.V., Kiushkina V.R. Intellectual energy security monitoring of decentralized systems of electricity with renewable energy sources // *International Conference Green Energy and Smart Grids (GESG 2018)*. – Irkutsk, Cape Hadartha: EDP Sciences, 2018. – P. 02002.
9. Anwari M., Bouchekara H.R.E.H., Alghamdi A.S. Optimal sizing of PV/wind/diesel hybrid microgrid system using multi-objective self-adaptive differential evolution algorithm // *Renewable Energy*. – 2018. – V. 121. – P. 400–411.
10. Optimization and energy management of hybrid photovoltaic-diesel-battery system to pump and desalinate water at isolated regions / H. Rezk, M. Al-Dhaifallah, Y.B. Hassan et al. // *IEEE Access*. – 2020. – V. 8. – P. 102512–102529.
11. Обухов С.Г., Плотников И.А. Выбор параметров и анализ эффективности применения систем слежения за солнцем // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2018. – Т. 329. – № 10. – С. 95–106.
12. Non-radiation degradation of solar array energy performances for MEO satellites / V.G. Bukreev, M.V. Nesterishin, P.A. Kryuchkov et al. // *Russian Aeronautics*. – 2021. – V. 64. – № 1. – P. 122–131.
13. Двухконтурный накопитель энергии для гибридных энергетических систем с возобновляемыми источниками энергии / С.Г. Обухов, И.А. Плотников, А. Ибрагим, В.Г. Масолов // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2020. – Т. 331. – № 1. – С. 64–76.
14. Лукутин Б.В., Муравьев Д.И. Перспективы децентрализованных систем электроснабжения постоянного тока с распределённой солнечной генерацией // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2020. – Т. 331. – № 6. – С. 184–196.
15. An energy flow simulation tool for incorporating short-term PV forecasting in a diesel-PV-battery off-grid power supply system / J. Taskin, C. Carter, T. Schmidt et al. // *Applied Energy*. – 2019. – V. 254. – P. 113718.
16. Shneishil A.H. Design and fabrication of evacuated tube solar thermal collector for domestic hot water // *Journal of college education*. – 2016. – № 3. – P. 287–302.
17. Lukutin B.V., Orazbekova A.K. Technical and economic feasibility of thermal accumulation of energy at autonomous photovoltaic power stations // *International Eurasian Conference on future energy and IEEE international Siberian Conference on control and communications (SIBCON-2017)*. – Astana, 2017. – № 7998489.
18. Jaaz A.H., Sopian K., Gaaz T.S. Study of the electrical and thermal performances of photovoltaic thermal Collector-Compound parabolic concentrated // *Results in Physics*. – 2018. – V. 9. – P. 500–510.
19. Лукутин Б.В., Хамид К. Фотоэлектростанции с электрохимическим и тепловым накоплением энергии в Ираке // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2021. – Т. 332. – № 1. – С. 174–183.
20. Мухамбедьяров Б.Б., Лукичев Д.В., Полуго Н.Л. Исследование алгоритмов поиска точки максимальной мощности для повышения эффективности фотоэлектрических преобразователей // *Научно-технический вестник информационных технологий, механики и оптики*. – 2018. – Т. 18. – № 6. – С. 1099–1107.
21. Global solar atlas. URL: <https://globalsolaratlas.info/global-pv-potential-study> (дата обращения 25.06.2022).

Поступила 27.06.2022 г.

Прошла рецензирование 22.09.2022 г.

## Информация об авторах

**Лукутин Б.В.**, доктор технических наук, профессор отделения электроэнергетики и электротехники Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета.

**Шандарова Е.Б.**, кандидат технических наук, доцент отделения электроэнергетики и электротехники Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета.

**Аль-Мажди Каррар Хамид**, аспирант отделения электроэнергетики и электротехники Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета.

UDC 621.311.002

## ENERGY EFFICIENT ALGORITHM FOR CONTROLLING PHOTOVOLTAIC POWER PLANT WITH ELECTROCHEMICAL AND THERMAL ENERGY STORAGE

**Boris V. Lukutin**<sup>1</sup>,  
lukutin48@mail.ru

**Elena B. Shandarova**<sup>1</sup>,  
shandarovaelena@mail.ru

**Karrar Hameed Kadhim**<sup>1</sup>,  
karrar.almussawi.87@gmail.com

<sup>1</sup> National Research Tomsk Polytechnic University,  
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

**The relevance** of the work is determined by the growing demand for energy, especially for environmentally friendly. Photovoltaic power generation is very promising in areas with high insolation, where centralized power systems are not available or where available electricity is expensive. However, the high cost of photovoltaic power plant equipment limits its wide application. One way to reduce the cost of a photovoltaic installation is to store electrical energy not only in electrochemical batteries, but also in the form of heated water in less expensive water heating installations, which will reduce the cost of a photovoltaic installation by reducing the battery capacity while providing the consumer with hot water. One of the urgent tasks is the development of control algorithms for photovoltaic power plants with a hybrid electrochemical and thermal system for storing electricity.

**The main aim** of the work is to develop the algorithm for controlling the energy balance of an autonomous photovoltaic power plant with electrochemical and thermal energy storage.

**Methods:** analytical methods for studying photovoltaic power plants with an aggregate method of solar energy storage: in electrochemical and thermal batteries, computer simulation methods, method of comparison with previous scientific studies.

**Results.** The authors developed the structure of the control system for energy balance of a photovoltaic power plant with electrochemical and thermal storage of electricity and proposed the algorithm for functioning of the control system using MPPT technologies. The structure and functioning algorithm were tested on the example of optimizing the energy balance of a social facility in Iraq by modeling in the Matlab software package.

### Key words:

Renewable energy, solar radiation, photovoltaic power plant, electrochemical and thermal energy storage devices, control algorithm, power balance, maximum power point.

### REFERENCES

1. *Statistical review of world energy*. 2022. Available at: <https://www.bp.com/en/global/corporate/energy-economics/statistical-review-of-world-energy/renewable-energy.html> (accessed 20 June 2022).
2. Sawe Y., Gupta S.C., Bohra A.V. Review of hybrid renewable energy systems with comparative analysis of off-grid system. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2018, vol. 81 (2), pp. 2217–2235.
3. International Energy Agency. *Renewables*. Available at: <https://www.iea.org/fuels-and-technologies/renewables> (accessed 20 June 2022).
4. International Energy Agency (IEA). *Electricity: global electricity demand is expected to fall by 5 % in 2020*. Available at: <https://www.iea.org/reports/global-energy-review-2020/electricity> (accessed 20 June 2022).
5. Lavrik A.Yu., Zhukovskiy Yu.L., Maksimov N.A. Opredelenie optimalnogo sostava rezerviruemyy gibridnoy vetro-solnechnoy elektrostantsii [Determination of the optimal composition of a standby hybrid wind-solar power plant]. *Promyshlennaya energetika*, 2019, no. 10, pp. 47–53.
6. Pashkevich R.I., Pavlov K.A. Mathematical modeling of a combined diesel-solar power station for decentralized power supply to consumers. *Power Technology and Engineering*, 2019, no. 9 (1058), pp. 30–35. In Rus.
7. Al-Nama M.A., Al-Hafid M.S., Al-Fahadi A.S. Estimation of the diversity factor for the Iraqi distribution system using intelligent methods. *Al-Rafidain Engineering*, 2009, vol. 17 (1), pp. 14–21.
8. Lukutin B.V., Kiushkina V.R. Intellectual energy security monitoring of decentralized systems of electricity with renewable energy sources. *International Conference Green Energy and Smart Grids (GESG 2018)*. Irkutsk, Cape Hadartha, EDP Sciences, 2018. pp. 02002.
9. Anwari M., Bouchekara H.R.E.H., Alghamdi A.S. Optimal sizing of PV/wind/diesel hybrid microgrid system using multi-objective self-adaptive differential evolution algorithm. *Renewable Energy*, 2018, vol. 121, pp. 400–411.
10. Rezk H., Al-Dhaifallah M., Hassan Y.B. Optimization and energy management of hybrid photovoltaic-diesel-battery system to pump and desalinate water at isolated regions. *IEEE Access*, 2020, vol. 8, pp. 102512–102529.
11. Obukhov S.G., Plotnikov I.A. Choosing the parameters and analyzing the efficiency of solar tracking systems. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2018, vol. 329, no. 10, pp. 95–106. In Rus.
12. Bukreev V.G., Nesterishin M.V., Kryuchkov P.A., Zhuravlev A.V., Balashov S.V. Non-Radiation Degradation of Solar Array Energy Performances for MEO Satellites. *Russian Aeronautics*, 2021, vol. 64 (1), pp. 122–131. In Rus.
13. Obukhov S.G., Plotnikov I.A., Ibrahim Ahmed, Masolov V.G. Dual energy storage for hybrid energy systems with renewable energy sources. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 1, pp. 64–76. In Rus.
14. Lukutin B.V., Muravyov D.I. Prospects for decentralized DC power supply systems with distributed solar generation. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 6, pp. 184–196. In Rus.
15. Taskin J., Carter C., Schmidt T.. An energy flow simulation tool for incorporating short-term PV forecasting in a diesel-PV-battery off-grid power supply system. *Applied Energy*, 2019, vol. 254, pp. 113718.

16. Shneishil A.H. Design and fabrication of evacuated tube solar thermal collector for domestic hot water. *Journal of college education*, 2016, no. 3, pp. 287–302.
17. Lukutin B.V., Orazbekova A.K. Technical and economic feasibility of thermal accumulation of energy at autonomous photovoltaic power stations. *International Eurasian Conference on future energy and IEEE international Siberian Conference on control and communications (SIBCON-2017)*. Astana, Kazakhstan, 2017. pp. 7998489.
18. Jaaz A.H., Sopian K., Gaaz T.S. Study of the electrical and thermal performances of photovoltaic thermal Collector-Compound parabolic concentrated. *Results in Physics*, 2018, vol. 9, pp. 500–510.
19. Lukutin B.V., Hameed K. Photovoltaic power plants with electrochemical and thermal energy storage in Iraq. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2021, vol. 332, no. 1, pp. 174–183. In Rus.
20. Mukhambedyarov B.B., Lukichev D.V., Polyuga N.L. Study of maximum power point tracking algorithms for efficiency growth of photovoltaic cells. *Scientific and technical journal of information technologies, mechanics and optics*, 2018, vol. 18, no. 6, pp. 1099–1107.
21. *Global solar atlas*. Available at: <https://globalsolaratlas.info/global-pv-potential-study>. (accessed 25 June 2022).

Received: 27 June 2022.

Received: 22 September 2022.

#### Information about the authors

**Boris V. Lukutin**, Dr. Sc., professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

**Elena B. Shandarova**, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

**Karrar Hameed Kadhim**, postgraduate student, National Research Tomsk Polytechnic University.



УДК 66.074

## АНАЛИЗ ТЕХНОЛОГИЙ ПРОМЫСЛОВОЙ ПОДГОТОВКИ ПРИРОДНОГО ГАЗА

Китов Егор Сергеевич<sup>1</sup>,  
egorkitov3@gmail.com

Ерофеев Владимир Иванович<sup>1</sup>,  
erofeevi@mail.ru

Джалилова София Насибуллаевна<sup>1</sup>,  
dzhailiovasn@mail.ru

<sup>1</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет,  
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

**Актуальность.** В последние годы в связи с сильным истощением нефтяных и газовых месторождений возникла острая необходимость в создании новых высокоэффективных технологий по повышению добычи нефти и газа на эксплуатируемых объектах. Большинство нефтяных и газовых месторождений находится на последних стадиях разработки, для которых характерно падающее пластовое давление, высокая обводненность, большое количество механических примесей и влаги в добываемом углеводородном сырье. Вследствие этого возникает острая необходимость в разработке новых процессов и совершенствовании технологий промышленной подготовки природного газа.

**Цель:** анализ современных промышленных процессов подготовки природного газа: абсорбционная и адсорбционная очистка природного газа от воды, низкотемпературная сепарация, технология сверхзвуковой сепарации газа; выбор наиболее экономически рентабельного и надёжного процесса и технологии глубокой очистки природного газа от примесей воды в условиях промышленной эксплуатации газовых и нефтяных месторождений Российской Федерации на основе проведенного анализа технологий.

**Результаты.** Выполнен анализ промышленных процессов и способов осушки природного газа: абсорбционная и адсорбционная осушка, низкотемпературная сепарация и технология сверхзвуковой сепарации газа от содержания влаги и механических примесей. Проанализированы особенности этих процессов, их свойства, технологические схемы, решения, а также достоинства и недостатки. Установлено, что применение абсорбционного процесса осушки природного газа от примесей воды позволяет получать осушенный газ до температуры точки росы по воде до  $-20$  °С. Внедрение технологии адсорбционной осушки природного газа от примесей воды позволяет осушить газ до температуры точки росы по воде в интервале от  $-38$  до  $-99$  °С.

### Ключевые слова:

абсорбционная очистка, адсорбционная очистка, диэтиленгликоль, низкотемпературная сепарация, турбодетандер, сверхзвуковая сепарация, 3S-технология.

### Введение

Природный газ представляет собой углеводородную смесь, состоящую главным образом из  $\text{C}_n\text{H}_m$  и других соединений, выступающих основным сырьем в химической промышленности. Наиболее распространённым компонентом в природных газах является метан, содержание которого составляет более 90–95 %, и в небольших количествах содержатся высшие алканы  $\text{C}_{2+}$ . Также в природном газе содержатся неорганические и кислые компоненты: вода, гелий, азот, диоксид углерода и сероводород [1], которые сильно повышают коррозию оборудования. В результате реакции углеводородной группы  $\text{C}_{1+}$  с парами влаги на определенных участках трубопроводов происходит зарождение газогидратов, что ведет к локальным изменениям технологических параметров и к вероятным авариям. Вследствие этого возникает необходимость в разработке высокоэффективных способов и технологий по осушке и очистке газов [2].

Промысловая подготовка природного газа состоит из следующих технологических этапов: подготовки углеводородных газов, разделения и выделения целевых компонентов. В состав природного газа, не считая углеводородных соединений, также входят азот, диоксид углерода, сернистые смеси, гелий и другие компоненты. Промысловая подготовка газа дает необходимое товарное качество для придания газу необходимых параметров для

транспорта газа по трубопроводам. Для безопасной транспортировки газ должен соответствовать определенным физико-химическим характеристикам по содержанию сероводорода и точки росы по воде, и углеводородам для предотвращения образования газогидратов [3].

Наиболее эффективно зарекомендовали себя в процессе очистки газа от кристаллогидратов, а также удаления влаги и воды из газа до его поступления в технологическое оборудование и газопроводы следующие способы:

- 1) сорбционные – поглощение влаги жидкими и твердыми осушителями;
- 2) низкотемпературная сепарация с изохорным расширением газа – процесс подготовки газа при низких температурах за счет дроссель-эффекта и аппаратов воздушного охлаждения с введением ингибиторов образования гидратов.
- 3) технология сверхзвуковой сепарации газа (Super Sonic Separation) – охлаждение газа в сверхзвуковой закрученной среде природного газа.

### Сорбционные способы осушки газа

Абсорбция является наиболее распространенным способом осушки газа в РФ. В процессе абсорбции извлекаются определенные компоненты из газовой смеси жидким абсорбентом. В природном газе обычно содержится вода, которая имеет точку росы от 15

до 50 °С, и для ее удаления используют абсорбенты: диэтиленгликоль или триэтиленгликоль.

К абсорбенту применяются следующие требования:

- высокая селективность;
- большая поглотительная способность;
- низкая летучесть паров;
- устойчивость в работе;
- удобство в работе;
- легкая регенерируемость [4].

Абсорбционная осушка наиболее эффективна в процессе подготовки сухих газов, в которых содержание тяжелых углеводородов не превышает допустимого уровня для безаварийной транспортировки газов по газопроводам. Наиболее качественными осушителями являются гликоли (диэтиленгликоли и триэтиленгликоли – ДЭГ и ТЭГ). Относительно высокая их стабильность к нагреву, химическому разложению и невысокая цена в масштабах производства послужили лучшими критериями при выборе гликолей как абсорбентов.

Физико-химические свойства гликолей (ДЭГ и ТЭГ) широко изучены в научной литературе [5]. В табл. 1 представлены основные свойства ДЭГ и ТЭГ.

**Таблица 1.** Физико-химические свойства диэтиленгликоля и триэтиленгликоля

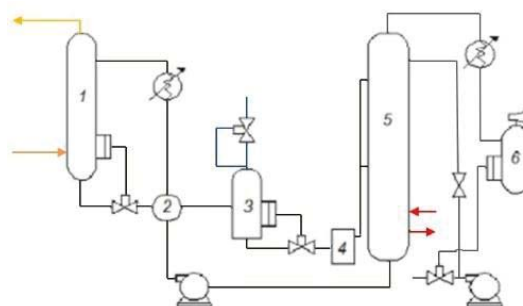
**Table 1.** Physical properties of diethylene glycol and triethylene glycol

Определение Definition	Диэтиленгликоль Diethyleneglycol	Триэтиленгликоль Triethyleneglycol
Химическая формула Chemical formula	$C_4H_{10}O_3$	$C_6H_{14}O_4$
Относительная плотность Relative density	1,118	1,126
Температура кипения Boiling point, °C	244,8	278,3
Давление насыщенных паров при 20 °С, Па Saturated vapor pressure at 20 °C, Pa	1,31	1,31
Вязкость при 20 °С, мПа·с Viscosity at 20 °C, mPa·s	35,7	47,8

Ключевые физико-химические свойства ДЭГ и ТЭГ в табл. 1 сходны. Главные различия ДЭГ и ТЭГ заключаются в вязкости и температуре кипения, которые играют основную роль в массообменных процессах в абсорбере и десорбере [6]. Принципиальная технологическая схема осушки природного газа ДЭГ изображена на рис. 1 [7].

Природный газ, поступая в кубовую часть абсорбера, контактирует с абсорбентом, и осушенный газ отводится через шлемовую часть абсорбера, при этом ДЭГ, насыщенный влагой, отводится через теплообменник в выветриватель для отдува поглощенных углеводородов. Далее ДЭГ поступает на регенерацию в десорбер, где происходит испарение и отвод поглощенной ДЭГ в абсорбере влаги из газа. В схему входят насосы, запорная арматура и некоторое другое оборудование.

Подобные установки осушки газа, применяя абсорбционный процесс, позволяют получать температуру точки росы по воде до –20 °С.



**Рис. 1.** Технологическая схема осушки газа диэтиленгликолем: 1 – абсорбер; 2 – теплообменник; 3 – выветриватель; 4 – фильтр; 5 – десорбер; 6 – сборник конденсата

**Fig. 1.** Absorption dehydration of natural gas with diethylene glycol: 1 – absorber; 2 – heat exchanger; 3 – weathering tank; 4 – filter; 5 – desorber; 6 – condensate collector

Абсорбционный метод наряду с другими методами осушки газа имеет свои достоинства и недостатки, которые указаны в табл. 2 [8].

**Таблица 2.** Достоинства и недостатки абсорбционного процесса

**Table 2.** Advantages and disadvantages of absorption

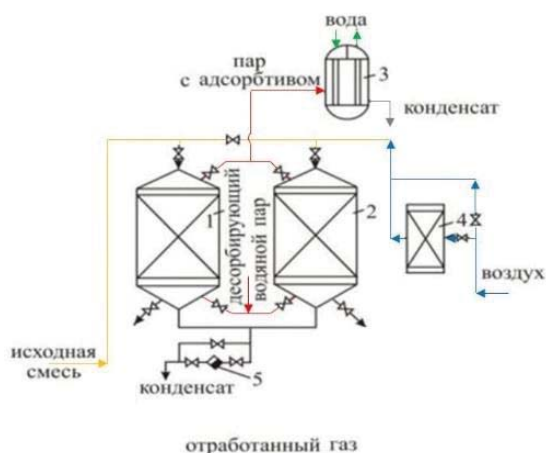
Достоинства Advantages	Недостатки Disadvantages
Низкие перепады давления Low pressure drops	Потери абсорбента Absorbent losses
Невысокие капитальные затраты Low capital costs	Относительная сложность регенерации Relative difficulty of regeneration
Осушка газов с веществами, разрушающими твердые сорбенты Drying of gases with substances that destroy solid sorbents	Средний уровень осушки Average drying level

В одном ряду с абсорбционным методом осушки газа массовое применение за рубежом получили установки адсорбционного типа, которые имеют преимущества в сравнении с абсорбционным методом.

Адсорбция – процесс поглощения целевых компонентов из газовой фазы или жидкости слоем твердого тела. Существует химическая и физическая адсорбция. Адсорбенты – это твердые поглотители, вступающие в массообменный процесс с молекулами газа или жидкости [9, 10].

Широкое применение получили следующие адсорбенты: силикагели, оксид алюминия, различные цеолиты. Конструктивная особенность адсорбентов, изготавливаемых в виде гранул и шариков, повышает их эффективность за счет снижения сопротивления в газе [11, 12].

Физическая адсорбция протекает при загрузке в адсорбер молекулярных сит. Загрузка цеолитов при эксплуатации сохраняет свои свойства по влагоемкости, это было подтверждено в работе [13]. При использовании адсорбционной осушки газа температура точки росы по воде достигает от –38 до –99 °С. Схема установки адсорбционной осушки природного газа изображена на рис. 2.



**Рис. 2.** Адсорбционная осушка природного газа: 1, 2 – адсорберы; 3 – конденсатор водяного пара; 4 – калорифер; 5 – конденсатоотводчик

**Fig. 2.** Adsorption drying of natural gas: 1, 2 – adsorbers; 3 – water vapor and vapor condenser; 4 – heater; 5 – condensate trap

Природный газ поступает в адсорбер – 1 и инициирует начало процесса. При завершении работы адсорбер – 1 переключается на стадию десорбции, исходный газ поступает в адсорбер – 2. Регенерация адсорбента происходит острым водяным паром, подаваемым в нижнюю часть колонны адсорбера. При этом пары адсорбата переходят в конденсатор – 3.

Конденсат в смеси с водой поступает на разделение, а адсорбент в адсорбере – 2 осушается под горячим воздухом, поступающим в адсорбер через калорифер – 4. Охлаждение адсорбента происходит атмосферным воздухом, подаваемым по байпасу.

На настоящий момент адсорбционная осушка газа в Российской Федерации еще не получила широкого применения, по сравнению с абсорбционной осушкой. Главным критерием сдерживания внедрения процесса адсорбционной осушки природного газа является увеличение капиталоемких затрат на техническое перевооружение абсорбционных установок газа.

Тем не менее адсорбционный процесс получил широкое распространение в Российской Федерации и ряде других зарубежных стран для осушки сжиженного природного газа для промышленного применения.

Адсорбционный процесс имеет также достоинства и недостатки в промышленном применении осушки природного газа (табл. 3).

**Таблица 3.** Достоинства и недостатки адсорбционного процесса

**Table 3.** Advantages and disadvantages of adsorption

Достоинства/Advantages	Недостатки/Disadvantages
Долгий срок эксплуатации Long service life	Довольно высокие экономические и капиталоемкие затраты Relatively high economic and capital-intensive costs
Получение низкой температуры точки росы Obtaining low dew point temperature	
Надежность эксплуатации Reliability of operation	

Основным критерием выбора технологии осушки газа является необходимая температура точки росы [14]. При использовании природного газа в промышленности учитывается ряд важных факторов, таких как параметры месторождения, необходимое оборудование средств измерения и автоматизации, климатические условия добычи и транспортировки газа и другие.

Для выбора и использования определенного метода подготовки газа необходимо рассчитать расход энергетических параметров: пар, электроэнергия и вода. На новых установках осушки газа они являются основными эксплуатируемыми затратами [15]. Эти параметры зависят как от термодинамических величин, так и от применяемого метода подготовки, глубины залегания компонентов, новизны оборудования и т. д. При расчете и моделировании установок осушки снижение энергозатрат достигается за счет:

- применения дифференциального ввода и отвода тепла;
- применения рекуперативных теплообменников с высоким коэффициентом теплоотдачи;
- выбора массообменного оборудования, работающего с распылением на тарелки. Здесь следует предусмотреть увеличенное количество тарелок, чтобы снизить количество среды, подаваемой на распыление. Важным критерием при проектировании является определение тарелки ввода сырья в колонну и подбор параметров теплоносителя;
- предварительной очистки сырья от механических примесей и обеспечения качества хладагента, как чистой, так и сухой поверхности оборудования;
- изменения температуры хладагентов в холодное время года, что помогает в технологическом цикле и приводит к уменьшению энергозатрат;
- изменения температуры точки росы ниже заданного параметра, что увеличивает энергозатраты на процесс.
- предотвращения потери тепла за счет качественной изоляции;
- использование тепла энергии отходящих дымовых газов;
- подбор давления в соответствии с параметрами компрессии на ступенчатых агрегатах.

Таким образом температура точки росы по влаге и углеводородам является основным требованием при подготовке газа.

При проектировании адсорбера решающее значение имеет рабочее давление аппарата, которое влияет на расчет количества металла, расход осушителя, подаваемого в абсорбер, а также энергоресурсы на работу циркуляционного насоса. Качество и количество адсорбента и параметры абсорбции газа зависят от качественных показателей: состав главного вещества в адсорбенте, расход вещества, вязкости, гигроскопичности. Качественные показатели влияют на температуру точки росы газа на выходе из адсорбера [16].

Получение точки росы до  $-25\text{ }^{\circ}\text{C}$  является результативным адсорбционным процессом с водным раствором гликолей и содержанием адсорбента до 99,5 %.

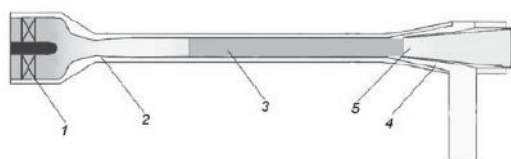




Двух- и трехступенчатые установки НТС нашли большее применение на газоконденсатных месторождениях. Одноступенчатые установки НТС увеличивают потери целевых компонентов газа  $C_{2+}$ , при том что природный газ преимущественно состоит из метана и, следовательно, число ступеней не оказывает основного влияния на результат осушки газа. Из этого следует, что решающим значением при осушке газа методом НТС являются температура и перепад давлений.

#### Сверхзвуковая сепарация газа

На рис. 5 представлен 3S-сепаратор для инициирования ускорения закрученной среды природного газа до скорости выше звуковой, образования конденсата, разделения целевых фракций газа и торможения потока.



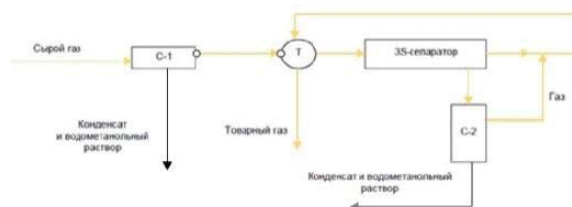
**Рис. 5.** Устройство 3S-сепаратора: 1 – лопатки неподвижного завихрителя; 2 – сопло Лавала; 3 – рабочая область; 4 – диффузор для торможения потока; 5 – диффузор

**Fig. 5.** 3S separator elements: 1 – fixed vortex tube blades; 2 – Laval nozzle; 3 – working area; 4 – diffuser for flow braking; 5 – diffuser

В 3S-сепараторе преобразование осевой скорости в тангенциальную происходит в дозвуковом режиме, поэтому после рабочей области аппарата не возникает косой ударной волны. В то же время газ расширяется до сверхзвуковой скорости в закрученном состоянии в расходящемся сечении сопла Лавала. Одновременное возникновение завихрения и конденсации может эффективно уменьшить негативные последствия по-

вторного испарения капель и повысить эффективность разделения сепаратора.

Закручивание потока газа выше скорости звука происходит в интервале от  $-50$  до  $-100$  °С, что ведет к глубокому извлечению заданных целевых углеводородов из природного газа в 3S-сепараторе. Слияние НТС с 3S-технологией применимо для получения фракции  $C_{5+}$ , воды, а также углеводородов  $C_{2+}$  (рис. 6).



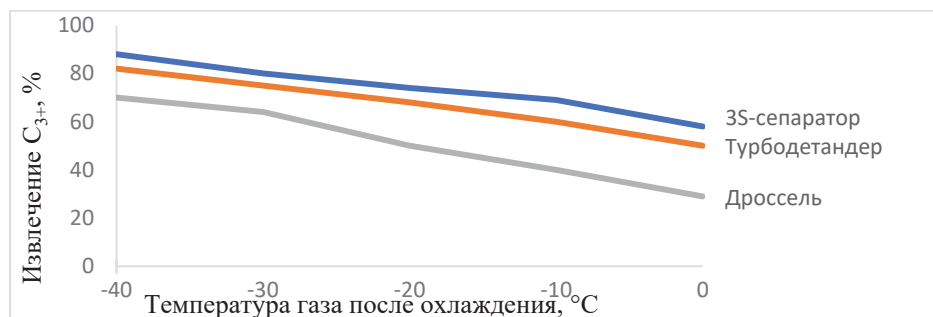
**Рис. 6.** НТС с 3S-сепаратором

**Fig. 6.** Low temperature separation with 3S separator

Устройство 3S-сепаратора с НТС состоит из блока охлаждения газа в сепараторе C-2, в который попадает частично поступивший газ – двухфазный поток из 3S-сепаратора. На основании этого при сверхзвуковом охлаждении газа в сверхзвуковом сепараторе происходит разделение на двухфазный поток, в первом потоке находятся образовавшиеся компоненты углеводородов, а во втором потоке – очищенный от углеводородов газ.

Применение схемы НТС с сверхзвуковым сепаратором конструктивно уменьшает размеры установки и влияет на металлоемкость всего оборудования при проектировании, что значительно сокращает эксплуатационные и обслуживающие затраты [19]. Отсутствие в сверхзвуковом сепараторе подвижных частей способствует высокой надежности.

Результаты исследования показывают, что тяжелые углеводороды  $C_{3+}$  в 3S-сепараторе разделяются качественнее, чем при эксплуатации схемы с дросселем и турбодетандером [20].



**Рис. 7.** Отделение  $C_{3+}$  в зависимости от температуры охлаждения различными методами

**Fig. 7.**  $C_{3+}$  separation depending on the cooling temperature by various methods

На основании зависимости из рис. 7 видно, что применение различных методов по извлечению компонентов  $C_{3+}$  из природного газа в зависимости от температуры показывают вариативные результаты [21, 22]. Исходный природный газ принят с температурой 20 °С и в пропорции: метан – 90 мол. %, этан – 2 мол. %, пропан – 4 мол. % и бутан – 4 мол. % [20].

Сверхзвуковой сепаратор исключает гидратообразование и процесс регенерации по причине короткого времени пребывания газа в устройстве, что удешевляет процесс подготовки природного газа и повышает экологическую безопасность производства. Однако сверхзвуковые сепараторы на сегодняшний день минимально представлены в полевых условиях, несмот-

ря на многочисленные преимущества по сравнению с другими методами обезвоживания газа. В основном это объясняется неизученным в полной мере конструктивом и рабочими параметрами, которые следует контролировать для обеспечения оптимального обезвоживания устройства для сверхзвуковой сепарации.

#### Заключение

В настоящей статье были подробно рассмотрены три различных процесса промышленной подготовки природного газа. Следует отметить, что каждый процесс имеет свои достоинства и недостатки.

Сорбционные процессы, а именно абсорбционный способ очистки газа, получили наибольшее распространение в России ввиду дешевизны абсорбента ДЭГ по сравнению с ТЭГ, хотя температура кипения у ТЭГ выше, чем у ДЭГ.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Wolany A. et al. Erdgas und erneuerbares Methan // Erdgas und erneuerbares Methan für den Fahrzeugantrieb. Der Fahrzeugantrieb / Ed. by R. van Basshuysen. – Wiesbaden: Springer Vieweg, 2015. – 182 p. URL: [https://doi.org/10.1007/978-3-658-07159-2\\_4](https://doi.org/10.1007/978-3-658-07159-2_4) (дата обращения 10.08.2022).
2. Джалилова С.Н., Ушева Н.В., Ерофеев В.И. Исследование и корректировка технологических режимов процессов подготовки нефтяного сырья // Успехи современного естествознания. – 2017. – № 4. – С. 19–23.
3. СТО Газпром 089-2010 «Газ горючий природный, поставляемый и транспортируемый по магистральным газопроводам. Технические условия». – М.: ОАО «Газпром», 2010. – 19 с.
4. Carroll J. Natural gas hydrates: a guide for engineer. – Burlington, Gulf Professional Publ., 2020. – 400 p.
5. Ланчаков Г.А., Кульков А.Н., Зиберт Г.К. Технологические процессы подготовки природного газа и методы расчета оборудования. – М.: Недр-Бизнесцентр, 2000. – 279 с.
6. Neagu M., Cursaru D. Technical and economic evaluations of the triethylene glycol regeneration processes in natural gas dehydration plants // Journal of Natural Gas Science and Engineering. – 2017. – V. 37. – P. 327–340.
7. Телешева К.С., Стародуб М.В. Абсорбционная осушка газа // Международный студенческий научный вестник. – 2018. – № 3–4. – С. 686–688. URL: <https://eduherald.ru/article/view?id=18396>
8. Процессы и аппараты нефтегазопереработки и нефтехимии / А.И. Владимирова, Ю.К. Молоканов, А.И. Скобло, В.А. Щелкунов. – М.: Недра, 2000. – 211 с.
9. Kidnay A.J., Parrish W.R., McCartney D.G. Fundamentals of natural gas processing. – Boca Raton, USA: CRC Press, 2012. – 574 p.
10. Garcia L., Poveda Y., Rodriguez G. Adsorption separation of oxidative coupling of methane effluent gases. Mini-plant scale experiments and modeling // Journal of natural gas science and engineering. – 2019. – V. 61. – P. 106–118.
11. Natural gas dehydration by desiccant materials / A.A. Farag Hassan, M.M. Ezzat, H. Amer, A.W. Nashed // Alexandria Engineering Journal. – 2011. – V. 50. – P. 431–439.

#### Информация об авторах

**Китов Е.С.**, аспирант отделения нефтегазового дела Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

**Ерофеев В.И.**, доктор технических наук, профессор отделения нефтегазового дела Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

**Джалилова С.Н.**, кандидат технических наук, ассистент отделения нефтегазового дела Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Адсорбционный способ очистки газа от влаги применим в случае получения более низких температур росы по воде.

Метод низкотемпературной сепарации применяется во избежание образования газогидратов и для получения низкой точки росы по воде, что позволяет транспортировать природный газ по магистральным газопроводам на дальние расстояния в условиях Крайнего Севера.

Применение 3S-технологии выгодно отличает от установок с эффектом Джоуля–Томсона и турбодетандера, так как позволяет на выходе из установки осушки газа сохранять давление до 10 МПа. Это позволяет вести транспортировку подготовленного газа с морских месторождений на большом расстоянии от берега. В настоящее время технологии подготовки природного газа совершенствуются во многих странах мира.

12. Northrop S., Sundaram N. Modified cycles, adsorbents improve gas treatment, increase molsieve life // Oil and Gas Journal. – 2008. – V. 106. – № 29. – P. 54–60.
13. Algeri C., Drioli E. Zeolite membranes: synthesis and applications // Separation and purification technology. – 2021. – V. 278. – P. 295–312.
14. Energy separation and condensation effects in pressure energy recovery process of natural gas supersonic dehydration / Yang Liu, Xuewen Cao, Jian Yang, Yuxuan Li, Jiang Bian // Energy Conversion and Management. – 2021. – V. 245. – P. 557–572.
15. Сбор и промышленная подготовка газа на северных месторождениях России / А.И. Гриценко, В.А. Истомин, А.Н. Кульков, Р.С. Сулейманов. – М.: Недра, 1999. – 473 с.
16. Тронов В.П. Сепарация газа и сокращение потерь нефти. – Казань: Фэн, 2002. – 408 с.
17. Габдулов И.Н. Анализ низкотемпературной сепарации с изотермальным расширением газа // Научные исследования. – 2019. – № 5 (31). – С. 10–13.
18. Efficient utilization of energy of natural gas pressure drop / N.V. Kholod, V.V. Kholod, V.A. Kirii, Y.P. Yas'yan // Chemistry and Technology of Fuels and Oils. – 2021. – V. 57. – № 2. – P. 209–215.
19. Корытников Р.В., Яхонтов Д.А., Багиров Л.А. Промышленные испытания технологии сверхзвуковой сепарации на установке НТС УПИМТ УКПП-1С Заполярного НГКМ / Нефтепромышленное дело. – 2012. – № 6. – С. 34–40.
20. Alfyorov V., Bagirov L., Dmitriev L. Supersonic nozzle efficiently separates natural gas components // Oil & Gas Journal. – 2005. – V. 103. – № 20. – P. 53–58.
21. Dzhaliilova S.N., Erofeev V.I. The study of technological mode options for production of oil of required quality // Key Engineering Materials. – 2017. – V. 743. – P. 394–397.
22. Лиинтин И.А., Ерофеев В.И., Джалилова С.Н. Особенности промышленной подготовки природного газа // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2022. – Т. 333. – № 6. – С. 96–102.

Поступила 13.08.2022 г.

Прошла рецензирование 14.09.2022 г.

UDC 66.074

## ANALYSIS OF TECHNOLOGIES OF NATURAL GAS FIELD PREPARATION

Egor S. Kitov<sup>1</sup>,  
egorkitov3@gmail.com

Vladimir I. Erofeev<sup>1</sup>,  
erofeevvi@mail.ru

Sofiya N. Dzhaliilova<sup>1</sup>,  
dzhaliilovasn@mail.ru

<sup>1</sup> National Research Tomsk Polytechnic University,  
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

**The relevance.** In recent years, due to the severe depletion of oil and gas fields, there is an urgent need to create new highly efficient technologies to increase oil and gas production both in oil and gas fields. Most of these fields are at the last stages of development, which are characterized by falling reservoir pressure, high water cut, a large amount of mechanical impurities and moisture in the produced hydrocarbon feedstock. As a result, there is an urgent need to develop new processes and improve technologies for field preparation of natural gas.

**Purpose:** analysis of modern industrial processes of natural gas preparation: absorption and adsorption purification of natural gas from water, low-temperature separation, supersonic gas separation technology; choice of the most cost-effective and reliable process and technology for natural gas deep purification from water impurities in the conditions of industrial operation of gas and oil fields of the Russian Federation based on the analysis of technologies.

**Results.** The analysis of industrial processes and methods of drying natural gas: absorption and adsorption drying, low-temperature separation and technology of supersonic separation of gas from moisture content and mechanical impurities, is carried out. The features of these processes, their properties, technological schemes, solutions, as well as advantages and disadvantages are analyzed. It was established that the use of natural gas absorption drying from water impurities makes it possible to obtain dried gas to a water dew point temperature of up to  $-20$  °C. The introduction of the technology of natural gas adsorption drying from water impurities makes it possible to dry gas to a water dew point temperature in the range from  $-38$  to  $-99$  °C.

**Key words:**

absorption purification, adsorption purification, diethylene glycol, low temperature separation, turbo expander, supersonic separation, 3S technology.

## REFERENCES

- Wolany A. Erdgas und erneuerbares Methan. Erdgas und erneuerbares Methan für den Fahrzeugantrieb [Natural gas and renewable methane for vehicle propulsion]. *Der Fahrzeugantrieb*. Ed. by R. van Basshuysen. Wiesbaden, Springer Vieweg, 2015. 182 p. Available at: [https://doi.org/10.1007/978-3-658-07159-2\\_4](https://doi.org/10.1007/978-3-658-07159-2_4) (accessed 10 August 2022).
- Dzhaliilova S.N., Usheva N.V., Erofeev V.I. Research and adjustment of technological regimes of the processes of preparation of petroleum raw materials. *Uspekhi sovremennogo estestvoznaniya*, 2017, no. 4, pp. 19–23. In Rus.
- STO Gazprom 089-2010. *Gaz goryuchiy prirodny, postavlyaemy i transportiruemyy po magistralnym gazoprovodam. Tekhnicheskie usloviya* [STO Gazprom 089-2010. Natural gas, supplied and transported through main gas pipelines. Technical conditions]. Moscow, OAO Gazprom Publ., 2010. 15 p.
- Carroll J. *Natural gas hydrates: a guide for engineer*. Burlington, Gulf Professional Publ., 2020. 400 p.
- Lanchakov G.A., Kulkov A.N., Zibert G.K. *Tekhnologicheskie protsessy podgotovki prirodnogo gaza i metody rascheta oborudovaniya* [Technological processes of natural gas preparation and methods of equipment calculation]. Moscow, Nedra Publ., 2000. 279 p.
- Neagu M., Cursaru D. Technical and economic evaluations of the triethylene glycol regeneration processes in natural gas dehydration plants. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 2017, vol. 37, pp. 327–340.
- Telishcheva K.S., Starodub M.W. Gas absorption drying. *International Student Scientific Bulletin*, 2018, no. 3–4, pp. 686–688. In Rus.
- Vladimirov A.I., Molokanov Yu.K., Skoblo A.I., Shchelkunov V.A. *Protsesy i apparaty neftegazopererabotki i neftekhimii* [Processes and apparatuses of oil and gas processing and petrochemistry]. Moscow, Nedra, 2000. 211 p.
- Kidnay A.J., Parrish W.R., McCartney D.G. *Fundamentals of natural gas processing*. Boca Raton, USA, CRC Press, 2012. 574 p.
- Garcia L., Poveda Y., Rodríguez G. Adsorption separation of oxidative coupling of methane effluent gases. Mini-plant scale experiments and modeling. *Journal of natural gas science and engineering*, 2019, vol. 61, pp. 106–118.
- Farag Hassan A.A., Ezzat M.M., Amer H., Nashed A.W. Natural gas dehydration by desiccant materials. *Alexandria Engineering Journal*, 2011, vol. 50, pp. 431–439.
- Northrop S., Sundaram N. Modified cycles, adsorbents improve gas treatment, increase molsieve life. *Oil and Gas Journal*, 2008, vol. 106, no. 29, pp. 54–60.
- Algieri C., Drioli E. Zeolite membranes: synthesis and applications. *Separation and purification technology*, 2021, vol. 278, pp. 295–312.
- Yang Liu, Xuewen Cao, Jian Yang, Yuxuan Li, Jiang Bian Energy separation and condensation effects in pressure energy recovery process of natural gas supersonic dehydration. *Energy Conversion and Management*, 2021, vol. 245, pp. 557–572.
- Gritsenko A.I., Istomin V.A., Kulkov A.N., Suleymanov R.S. *Sbor i promyslovaya podgotovka gaza na severnykh mestorozhdeniyakh Rossii* [Gathering and conditioning of gas on the northern gas fields of Russia]. Moscow, Nedra Publ., 1999. 472 p.
- Tronov V.P. *Separatsiya gaza i sokrashchenie poter nefti* [Gas separation and reduction of oil losses]. Kazan, Feng Publ., 2002. 408 p.
- Gabdulov I.N. Analis niskotemperaturnoy separatsii s isoentalpinym rasshireniem gaza [Analysis of low-temperature separation with isenthalpy gas expansion]. *Scientific research*, 2019, no. 5 (31), pp. 10–13.
- Kholod N.V., Kholod V.V., Kirii V.A., Yas'yan Y.P. Efficient utilization of energy of natural gas pressure drop. *Chemistry and Technology of Fuels and Oils*, 2021, vol. 57, no. 2, pp. 209–215.
- Korytnikov R.V., Yakhontov D.A., Bagirov L.A. Promishlennyye ispytaniya tekhnologii sverkhzvukovoy separatsii gaza na



- ustanovke NTS UPMT UKGP-1C Zapolyarnogo NGKM [Industrial tests of supersonic separation technology at the installation of NTS UPMT UKGP-1C Polar NGCM]. *Oilfield business*, 2012, no. 6, pp. 34–40.
20. Alfyorov V., Bagirov L., Dmitriev L. Supersonic nozzle efficiently separates natural gas components. *Oil & Gas Journal*, 2005, vol. 103, no. 20, pp. 53–58.
21. Dzhililova S.N., Erofeev V.I. The study of technological mode options for production of oil of required quality. *Key Engineering Materials*, 2017, vol. 743, pp. 394–397.
22. Liintin I.A., Erofeev V.I., Dzhililova S.N. Features of commercial treatment of natural gas. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2022, vol. 333, no. 6, pp. 96–102. In Rus.

*Received: 13 August 2022.*  
*Reviewed: 14 September 2022.*

#### **Information about the authors**

**Egor S. Kitov**, postgraduate student, National Research Tomsk Polytechnic University.

**Vladimir I. Erofeev**, Dr. Sc., academician of RANS, professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

**Sofia N. Dzhililova**, Cand. Sc., assistant, National Research Tomsk Polytechnic University.

УДК 55.504.624.131

## РЕЗУЛЬТАТЫ КРАТКОСРОЧНОГО МОНИТОРИНГА СОДЕРЖАНИЯ ГЕЛИЯ И ОБОБЩЕННЫХ ПОКАЗАТЕЛЕЙ В ПОДЗЕМНЫХ ВОДАХ ГОРНОГО АЛТАЯ

Дутова Екатерина Матвеевна<sup>1,2</sup>,  
dutova@tpu.ru

Кац Валентина Елизаровна<sup>3</sup>,  
altai.geo@yandex.ru

Шитов Александр Викторович<sup>4</sup>,  
sav103@yandex.ru

Сурнин Алексей Иванович<sup>5</sup>,  
ogec@sniiggims.ru

Драчев Сергей Сергеевич<sup>2</sup>,  
oldwolf07@yandex.ru

<sup>12</sup>Национальный исследовательский Томский политехнический университет,  
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

<sup>2</sup> Национальный исследовательский Томский государственный университет,  
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 36.

<sup>3</sup> Горно-Алтайское отделение «Сибирского регионального центра Государственного мониторинга состояния недр»  
ФГБУ «Гидроспецгеология»,  
Россия, 649100, с. Майма, ул. Заводская, 52.

<sup>4</sup> Горно-Алтайский государственный университет,  
Россия, 649000, г. Горно-Алтайск, ул. Ленкина, 1.

<sup>5</sup> Сибирский научно-исследовательский институт геологии, геофизики и минерального сырья,  
Россия, 630091, г. Новосибирск, Красный пр., 67.

**Актуальность** работы обусловлена необходимостью совершенствования методов мониторинга характеристик подземных вод и их изменений в сейсмоактивных районах Республики Алтай. Подземные воды являются индикатором сейсмических процессов и реагируют на изменения напряженно-деформированного состояния горных пород в зонах очагов предстоящих тектонических землетрясений.

**Целью:** выявления краткосрочных изменений содержания гелия и обобщенных гидрогеохимических показателей в высоко динамичных объектах мониторинга подземных вод Республики Алтай для поиска предвестников сильных сейсмических событий.

**Методы.** В основу работы положены результаты ежесуточного мониторинга подземных вод на территории Республики Алтай, который осуществлялся в январе–феврале 2021 г. на пунктах наблюдения за температурным режимом и качественным составом подземных вод – скважина и колонка – Горно-Алтайского отделения «Сибирского регионального центра Государственного мониторинга состояния недр».

**Результаты.** Впервые на территории Горного Алтая было проведено изучение динамики обобщенных геохимических характеристик и содержания гелия в подземных водах и показаны их кратковременные (1–3 суток) изменения в связи с землетрясениями. Для проведения данных исследований были взяты две точки мониторинга подземных вод, расположенные в г. Горно-Алтайске (колонка) и с. Старый Бельтир (скважина), удаленные друг от друга на расстояние более 200 км. Данные точки мониторинга были выбраны в связи с тем, что там было зафиксировано существенное изменение геохимических характеристик подземных вод при подготовке и протекании сейсмических событий в регионе. В работе дана характеристика сейсмического режима Алтае-Саянского региона в период мониторинга. Для выявления динамики содержания гелия и обобщенных геохимических показателей подземных вод в период 14.01–23.02.2021 г. нами было проведено опробование. Результаты опробования показали, что точка мониторинга Старый Бельтир, расположенная в разломной зоне вблизи эпицентральной зоны Чуйского землетрясения (2003 г.), характеризуется высокой чувствительностью изменений как обобщенных характеристик подземных вод, так и высокой степенью реагирования содержания гелия на землетрясения. В результате исследований было выявлено, что Монгольское землетрясение (2021 г.) не оказало влияния на геохимический состав подземных вод изучаемых пунктов мониторинга, расположенных на территории Горного Алтая. В то же время в представленных пунктах мониторинга подземных вод в большей степени отражаются ближайšie к ним сейсмические события. Выбранные пункты мониторинга в ряде случаев не перекрывают друг друга и реагируют в основном на ближайšie к ним землетрясения, в том числе и на слабые. Наиболее динамичная реакция на землетрясения отмечена у гелия, pH, Eh, температуры.

**Ключевые слова:**

подземные воды, мониторинг подземных вод, обобщенные геохимические показатели, гелий, зоны разрывных нарушений, землетрясения.

### Введение

Мониторинг гидрогеохимических характеристик при подготовке землетрясений всегда является актуальным и важным направлением совершенствования научных исследований. Известно, что подготовка крупных землетрясений занимает большое количество времени, при этом происходят постепенные изменения геодинамических характеристик в сейсмически опасных регионах, которые, как уже было доказано, можно отслеживать по динамике гидрогеохимических характеристик и газовых эманаций [1–9].

На территории Горного Алтая нами с 2000 г. и по настоящее время проводятся специализированные гидрогеологические и гидрогеохимические исследования с целью выявления отклика геологической среды на подготовку сильных сейсмических событий, происходящих и в Алтае-Саянском регионе в целом. По результатам этих исследований нами выявлено последствие Чуйского землетрясения и афтершоковых сейсмических событий, продолжающихся на Алтае до настоящего времени, на гидродинамический режим и химический состав подземных вод (микроэлементы и макрокомпоненты). Колебания показателей гидродинамического режима и химического состава вод носят как региональный, так и локальный характер, увязываясь с малоамплитудными сейсмическими событиями

(их магнитудой, глубиной эпицентра, гидрогеологической ситуацией). Аномальные значения индикаторных (косейсмических) показателей химического состава подземных вод (азотистые соединения, фтор, кремний, радон) прослеживаются в течение 1–2 недель, после чего фоновый состав вод восстанавливается [10, 11].

Роль газов гелия и радона в такого рода исследованиях бесспорна. Изучение динамики газов в подземных водах смежных территорий Прибайкалья показали, что в краткосрочной перспективе наблюдаются специфические особенности вариаций газов (гелия, радона) при подготовке землетрясений [12, 13]. Нами в 2014–2015 гг. были проведены площадные исследования распределения гелия в подземных водах Горного Алтая. Было выявлено, что высокое содержание гелия в подземных водах связано с разломными зонами на границах тектонических блоков, приуроченных к эпицентральной зоне Чуйского землетрясения, максимальные значения картографируются именно в этом артезианском бассейне (рис. 1). Повышенная концентрация гелия в подземных водах предполагает количественную связь между геохимическими и сейсмологическими параметрами, что представляет практический интерес для обнаружения возможного изменения деформации породного массива перед сильным землетрясением [14].

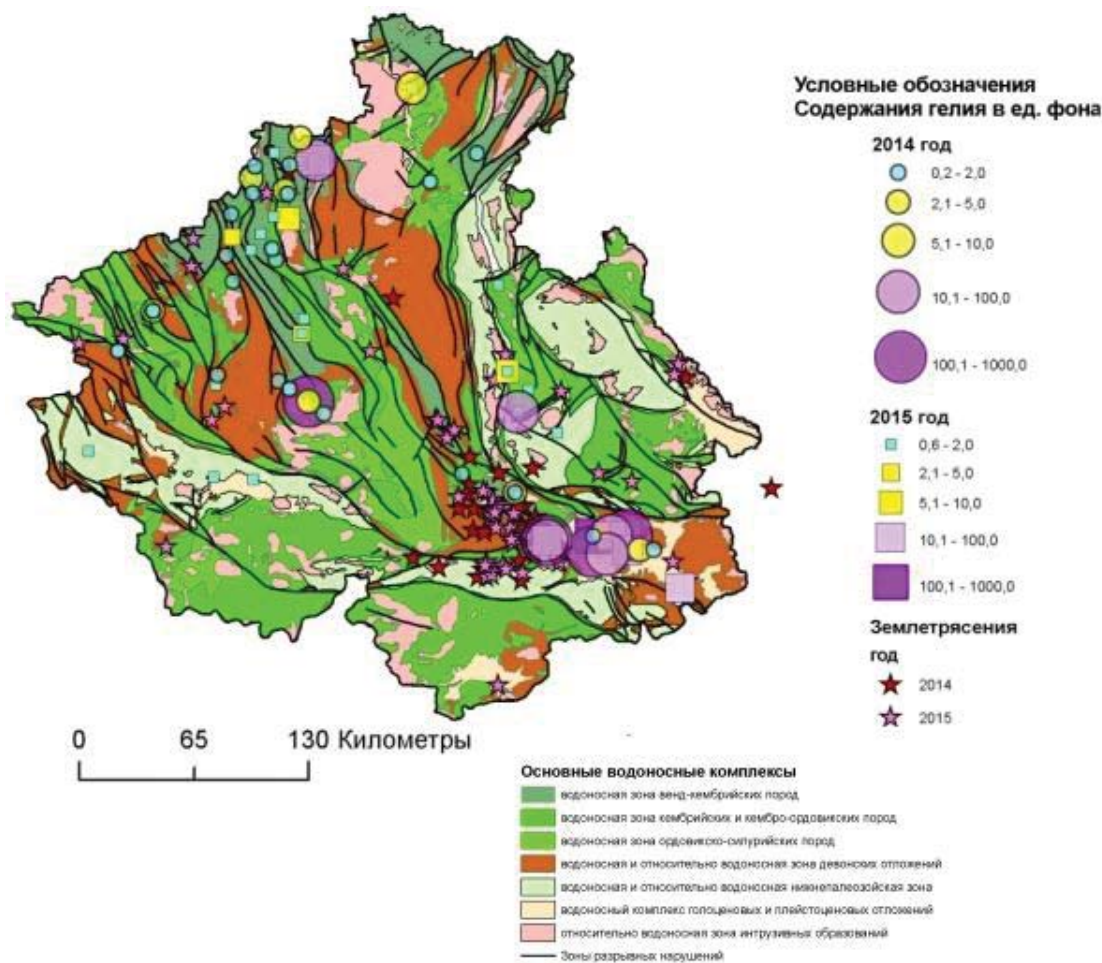


Рис. 1. Распределение гелия в подземных водах Республики Алтай [14]  
Fig. 1. Helium distribution in the Altai Republic underground waters

### Методика исследования

Краткосрочные мониторинговые исследования для выявления реагирования геохимических характеристик подземных вод на Монгольское землетрясение, а также другие сейсмические события проводились в период с 14.01.2021 по 24.03.2021 гг.

Для проведения данных исследований были определены два пункта мониторинга подземных вод, расположенные в г. Горно-Алтайске (колонка) и с. Старый Бельтир (скважина), удаленные друг от друга на расстояние более 200 км. Данные объекты мониторинга были выбраны в связи с тем, что там ранее нами было зафиксировано существенное изменение характеристик подземных вод при подготовке и протекании сейсмических событий в регионе.

Первый пункт наблюдений расположен в г. Горно-Алтайске и представляет собой колонку по ул. Северная. Выбор этого пункта мониторинга связан с тем, что с 2004 г. в данной колонке после землетрясения резко повысилась температура (до 40 °С) и изменился химический состав воды [15]. В дальнейшем было выявлено реагирование динамики изучаемых параметров на сейсмический процесс Горного Алтая.

Второй пункт наблюдения расположен в с. Ст. Бельтир и представляет собой скважину. Данный объект находится в эпицентральной зоне афтершокового процесса Чуйского землетрясения (2003 г.), и по результатам мониторинга здесь было выявлено, что химический состав меняется в результате землетрясений, происходящих на территории Горного Алтая.

Аналитические работы по определению гелия выполнялись по стандартной методике на приборе ИНГЕМ-1 [16, 17] в лаборатории гидрогеологии нефтегазовых провинций Сибирского научно-исследовательского института геологии, геофизики и минерального сырья (г. Новосибирск).

Измерения проводились при  $T=20\text{ }^{\circ}\text{C}$  и  $P=750\text{ мм р. с.}$

Расчет превышений содержания водорастворенного гелия в изученных пробах ( $\Delta\text{He}$ , % объемные) над атмосферным фоном поверхностных вод производился по формуле:

$$\Delta\text{He} = C * R * \Delta J,$$

где  $C=0,000409\%$  – цена деления индикатора ИНГЕМ (по газу);  $R=0,0088$  – растворимость He в воде при 20 °С;  $\Delta J$  – приращение сигнала индикатора при анализе пробы.

Абсолютные содержания водорастворенного гелия (% об.) в пробах с учетом атмосферного фона рассчитаны по формуле:

$$\text{He}_{\text{абс.}} = \Delta\text{He} + 0,00052 * R,$$

где 0,00052 % об. – фоновое содержание гелия в атмосферном воздухе;  $0,00052 * R = 0,000004576\%$  об. – фоновое (атмосферное) содержание растворенного гелия в поверхностных водах.

Для выявления быстрого реагирования изменений гидрогеохимических характеристик на землетрясения нами проводился ежесуточный отбор проб воды в 10 часов утра на исследование следующих характеристик: температура, pH, Eh, общая минерализация, содержание гелия.

Измерение температуры, pH, Eh, общей минерализации производилось при помощи портативных приборов производства HANNA Instruments, которые были сертифицированы в гидрогеохимических лабораториях Томского политехнического университета и Института водных и экологических проблем СО РАН.

### Сейсмический режим в период мониторинга

Сейсмический режим изучаемого периода времени характеризуется отсутствием сейсмических событий в эпицентральной зоне Чуйского землетрясения (2003 г.) высокого уровня. Наиболее крупные землетрясения в Алтае-Саянском регионе происходили в это время в эпицентральной зоне Монгольского землетрясения (2021 г.).

Отмечалась небольшая активизация отдельных сейсмических событий на территории соседних с Алтаем регионов – Казахстанского, Монгольского Алтая, Западной Тывы (рис. 2).

На территории Казахстанского Алтая 21.01.21 г. произошло землетрясение с магнитудой  $M=4,2$ . Вполне возможно, что Монгольское землетрясение инициировало ряд мелких сейсмических событий на территории Алтае-Саянской области. Слабое землетрясение с магнитудой 2,7 (по данным оперативной обработки Алтае-Саянского филиала Геофизической службы РАН) было зафиксировано 01.02.21 г. на расстоянии порядка 40 км на северо-запад от точки мониторинга в Горно-Алтайске.

Крупные землетрясения с магнитудой  $M=4,2$  произошли 11.02.21 и 15.02.21 на территории Западной части Монгольского Алтая, а 23.02.21 г. – с магнитудой 3,1.

### Характеристика пунктов мониторинга

*Пункт мониторинга 1.* Государственный наблюдательный пункт мониторинга (ГОНС) в г. Горно-Алтайске находится по ул. Северной, 16, и представляет собой трубчатую колонку, забитую на глубину около 10 м. Колонкой каптируется совместный водоносный комплекс четвертичных отложений и водоносная зона венд-нижнекембрийских пород.

Вмещающие породы до глубины 10 м – делювиальные отложения, сложенные щебнистыми отломками терригенно-карбонатных пород, залегающие на сланцах, известняках и силицитах. По имеющимся геологическим разрезам водозаборных скважин в районе пункта ГОНС водоносная зона устанавливается до глубины 50 м. По геофизическим данным есть вероятность наличия ниже 50 м гранитоидного массива типа Белокурихинского.

В районе расположения ГОНС Северный в разные годы функционировали многочисленные гидрогеологические скважины, каптирующие аналогичный водоносный комплекс. Дебиты скважин варьировали от 1,3 до 20 л/с, статический уровень колебался от 1,1 до 12 м.

По химическому составу воды на колонке гидрокарбонатные, сульфатно-гидрокарбонатные кальциево-натриевые пресные с общей минерализацией 0,2–0,8 г/л.





Рис. 2. Карта пунктов мониторинга и эпицентров землетрясений в период мониторинга

Fig. 2. Map of monitoring points and earthquake epicenters during the monitoring period

В результате крупного Чуйского землетрясения, произошедшего в 2003 г. в Чуйской межгорной впадине, изменился химический состав подземных вод как в целом по Республике Алтай, так и локально, и значимо на отдельных участках. Такие участки, как правило, приурочены к зонам тектонических нарушений. Одним из таких участков оказалась трубчатая колонка по ул. Северной. В изучаемом пункте мониторинга состояния вод устанавливаются существенные колебания химического состава и температуры вод. Сразу после землетрясения температура в колонке выросла до 48 °С, в настоящий момент она сохраняется на уровне 13–16 °С.

Как показали последующие исследования, химический состав вод в колонке за период наблюдений с 2004 по 2020 гг. весьма чутко реагирует как на малоамплитудные сейсмические события в эпицентральной части Чуйского (2003 г.) землетрясения, так и на сейсмические события в Алтае-Саянском регионе (на сопредельных территориях). Воды колонки можно рассматривать в качестве индикатора сейсмических событий [18].

**Пункт мониторинга 2.** Государственный наблюдательный пункт мониторинга (ГОНС) в с. Старый Бельтир Кош-Агачского района находится в долине р. Чаган-Узун, в правом борту реки.

Пунктом наблюдения является разведочно-эксплуатационная скважина Г22/79, пробуренная в 1979 г. для целей водоснабжения жителей села Бель-

тир. Скважина имеет глубину 200 м и каптирует среднедевонскую водоносную зону. Расход скважины 2,5 л/сек. Водовмещающими породами являются сланцы глинистые, метаморфизованные, трещиноватые. На скважине организован пункт ГОНС для наблюдения за режимом подземных вод в районе. Характеризуемая скважина одна из немногих наиболее приближенных к эпицентральной части Чуйского (Алтайского) землетрясения (находится в 11 км).

По химическому составу воды гидрокарбонатные, сульфатно-гидрокарбонатные кальциево-магниево-натриевые пресные с общей минерализацией 0,37–0,42 г/л.

В результате Чуйского землетрясения, произошедшего в 2003 г. в Чуйской межгорной впадине, на скважине резко понизился уровень воды: при бурении скважины статический уровень вод устанавливался на 5 м, после землетрясения опустился на 9 м и в последние годы колебался на уровне 13,89–14,23 м.

Опробование воды в скважине осуществляется эпизодически, поэтому какие-либо существенные изменения в составе вод не устанавливаются. Можно отметить значимые колебания мутности (0,9–9,4 мг/дм<sup>3</sup>) в воде скважины. Этот показатель вод является индикатором сейсмичности.

В результате опробования, которое было проведено в 2014–2015 гг. в воде данной скважины зафиксированы повышенные значения содержания гелия (таблица).

**Таблица.** Химический состав подземных вод (мг/л), пунктов мониторинга

**Table.** Chemical composition of groundwater (mg/l), monitoring points

Пункт мониторинга Monitoring point	Горно-Алтайск Gorno-Altaysk	Старый Бельтир Stary Beltir
Тип водопункта Water point type	Колонка water column	скважина borehole
Возраст/Age	QIV	D2
He абс., % /He abs., %	0,000005	0,00048
*He (Ka)	1,2	105,3
pH	7,8	8,1
HCO <sub>3</sub>	227	233
Cl	35,25	26,5
SO <sub>4</sub>	37,5	53,2
Ca	131,4	41,3
Na	24	27,2
Mg	12,76	18,4
K	2,6	2,9
SiO <sub>2</sub>	10	3,6
Общая минерализация General mineralization	200–800	370–416

Примечание: \*He (Ka) – контрастность превышения измеренного содержания гелия над атмосферным фоном.

Note: \*He (Ka) – the contrast of the excess of the measured helium content over the atmospheric background.

### Результаты исследования

Результаты проведенного мониторинга представлены на рис. 3, 4.

Динамика характеристик подземных вод в г. Горно-Алтайск.

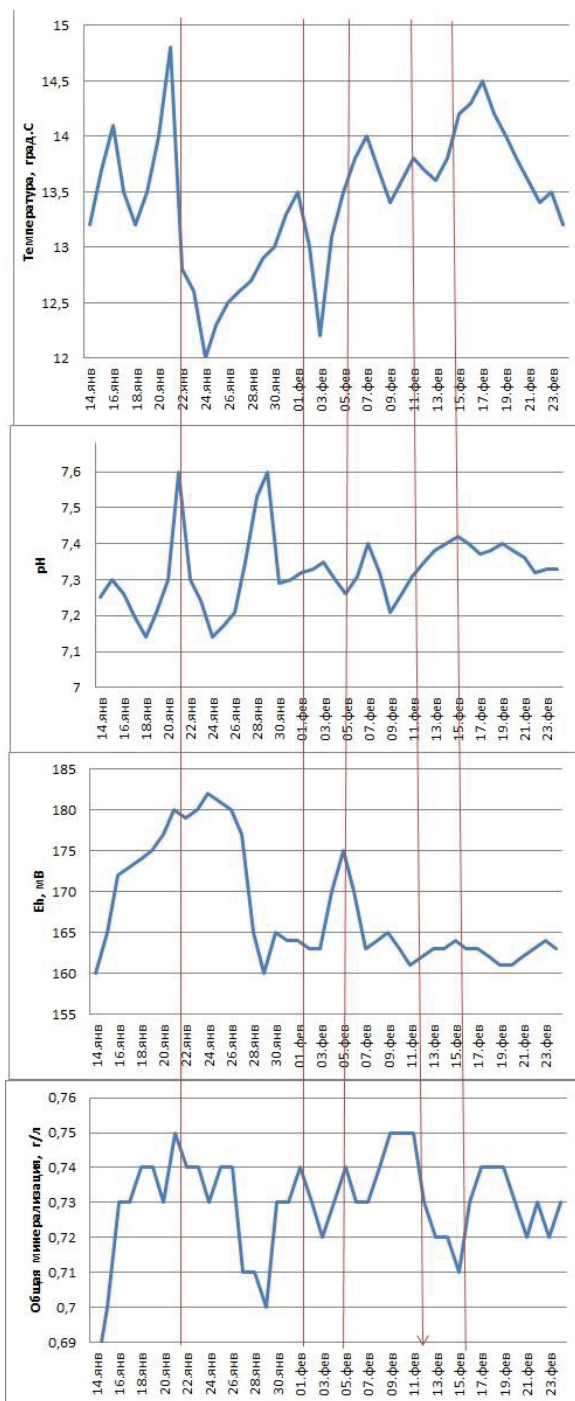
В данном пункте мониторинга, где ранее не были выявлены высокие значения содержания гелия в подземных водах, не наблюдается и ярких изменений, гелий здесь находится на уровне 1–1,1 фона.

Наиболее сильно изменения наблюдаемых параметров пункта по ул. Северная отразились в динамике температуры, pH, Eh и минерализации. Нами было зафиксировано, что с 15.01.21 г. наблюдалось повышение температуры подземных вод с 13 до 15,8 °С, при этом показатель pH также скачкообразно увеличился с 7,15 (18.01.21 г.) до 7,6 (21.01.21 г.), показатель Eh также резко увеличился с 160 (14.01.21 г.) до 182 мВ (21.01.21 г.), общая минерализация также увеличилась с 0,67 до 0,75 г/л. Предположительно это резкое изменение изучаемых гидрогеохимических характеристик на данном пункте мониторинга связано с Хубсугульским землетрясением (12.01.2021 г.).

Таким образом, все регистрируемые обобщенные показатели состояния подземных вод в период времени, предшествующий землетрясению, отреагировали на подготовку и протекание сейсмических событий в Алтае-Саянском регионе, что позволяет подтвердить эффективность данной точки мониторинга подземных вод для сейсмических процессов территории Горного Алтая, что в очередной раз подтверждает наши предыдущие исследования [12, 14, 15, 18].

Динамика характеристик подземных вод в с. Старый Бельтир

По данным измеренных характеристик пункта мониторинга Старый Бельтир также похоже, что сейсмические процессы на территории Горного Алтая на оказывают существенного влияния на динамику изучаемых гидрогеохимических характеристик (рис. 4).



**Рис. 3.** Изменение характеристик подземных вод в пункте мониторинга Горно-Алтайск (выделены дни землетрясений)

**Fig. 3.** Changes in groundwater characteristics at the Gorno-Altaysk monitoring point (earthquake days are highlighted)

Так, 24.01.21 г. на границе Горного Алтая и Саян произошло сейсмическое событие с магнитудой 3. При этом значение pH повысилось в это день с 7,7 до 8,14, а Eh – до 155 мВ (это повышение продолжалось до 25.02.21 г.), также скачкообразно вырос уровень минерализации с 0,49 до 0,54 г/л. Данные характеристики синхронно снизились к 27–28.02.21 г.



Кроме того, 11.02.21 г. в Китайском Алтае (в 200 км от точки мониторинга) произошло землетрясение с магнитудой 4,2. На данное сейсмическое событие отреагировали подземные воды в пункте мониторинга – повысилась рН с 7,5 (07.02) до 8,05 (11.02), значения Eh выросло с 20 до 165 мВ.

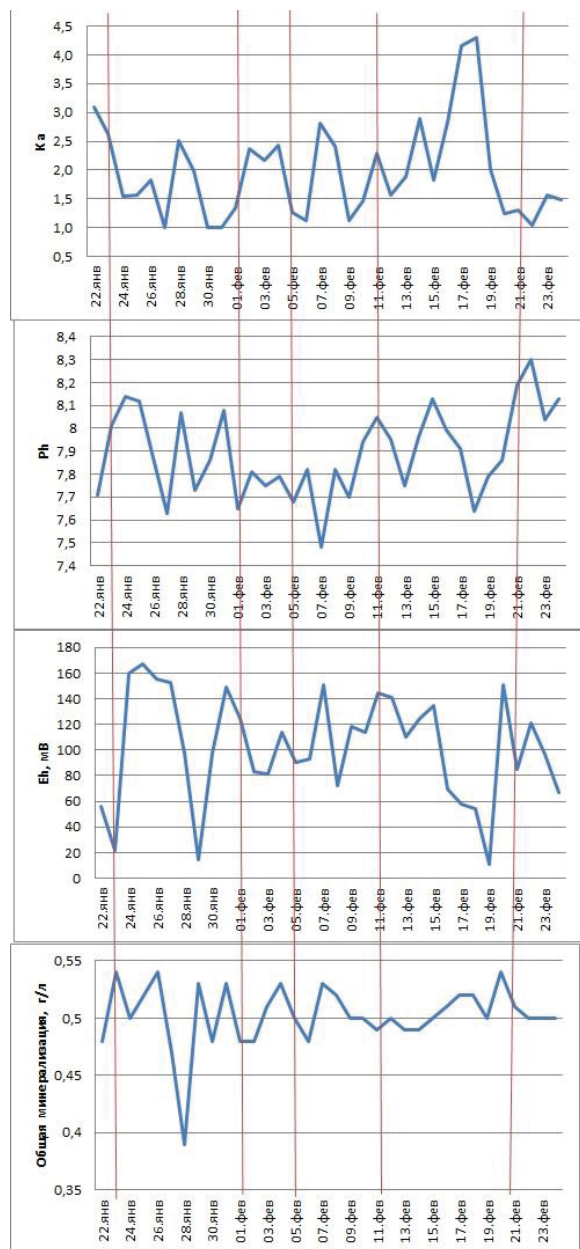


Рис. 4. Изменение характеристик подземных вод на пункте мониторинга Старый Бельтир

Fig. 4. Changes in groundwater characteristics at the Staryy Beltir monitoring point

Также после землетрясений, произошедших 15.02 и 22.02.2021 в Монгольском Алтае (в 250 км от точки мониторинга) значение рН в подземных водах точки мониторинга повысилось с 6,5–7,5 до 7,7–8,13. На следующий день после землетрясения значения рН возвращались к фоновым значениям. Значения Eh в дни данных сейсмических событий также возрастали с 80 до 150 мВ.

### Обсуждение результатов

Для поиска общих закономерностей измеряемых параметров подземных вод, которые могли измениться в результате подготовки и протеканий сейсмических событий, нами был использован метод наложенных эпох. Данный метод полезен, когда необходимо проследить влияние дискретных событий, таких как землетрясение, на измеряемые параметры и посмотреть, имеются ли общие закономерности относительно времени землетрясения, а также показать, существуют ли предвестники измеряемых характеристик.

Методика расчета производится следующим образом: каждый день сейсмического события принимается как нулевые сутки, в которые произошли землетрясения. Затем берутся данные во все дни землетрясения и рассчитывается среднее значение измеряемых величин (гелий, рН, Eh, температура, общая минерализация) как в этот нулевой день. При этом соответственно считалось, что –1 – –7 – дни перед землетрясением, 1–7 дни после землетрясения. Для них также рассчитывались соответствующие относительно момента землетрясения средние значения.

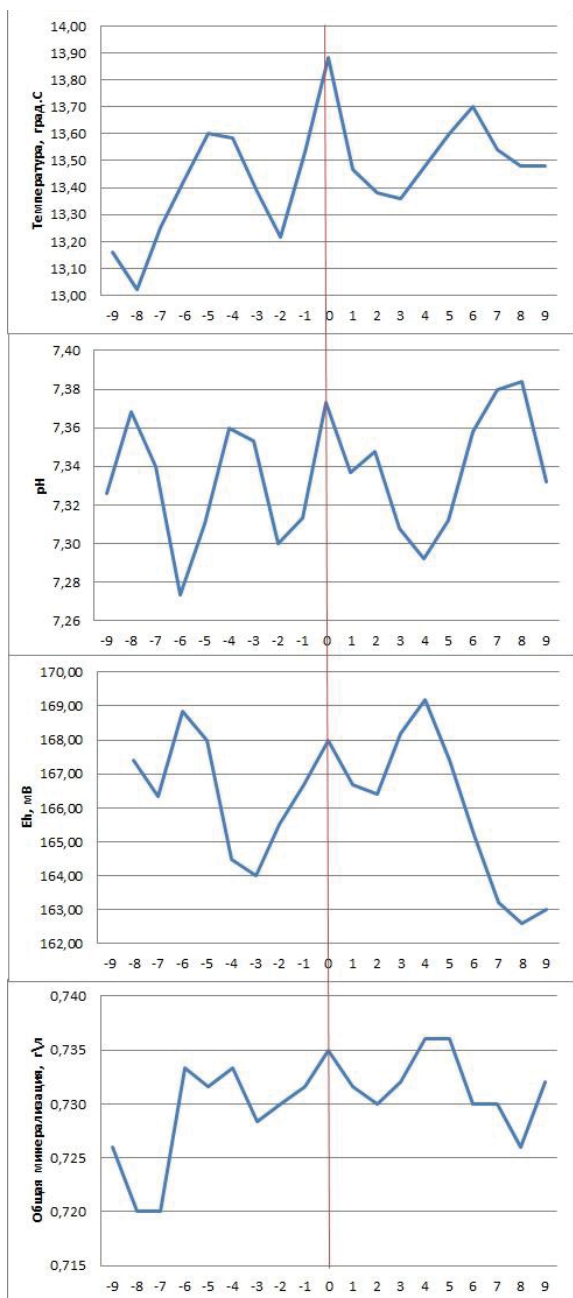
Эффективность данного метода при поиске общих закономерностей влияния землетрясений на параметры среды показана в ряде исследований [19, 20].

#### Горно-Алтайск

В данном пункте мониторинга день сейсмического события выделяется по всем изучаемым характеристикам (рис. 5): температура – 13,9; рН – 7,37; Eh – 168; минерализация – 0,735. Данная особенность, скорей всего, связана с расположением близ поверхности данного пункта мониторинга. Кроме этого, за 6–7 дней до землетрясения начинают изменяться все наблюдаемые характеристики: некоторые повышаются (температура, общая минерализация), некоторые начинают понижаться (рН, Eh). За 3–4 дня до землетрясения температура, минерализация, Eh понижаются. За 1–2 дня до сейсмического события опять начинают повышаться температура, общая минерализация. После землетрясения все показатели снижаются, и только на 4–5 день отдельные характеристики снова повышаются (температура, минерализация).

#### Старый Бельтир

На данном пункте мониторинга не зафиксировано четкого повышения значений измеряемых параметров в день землетрясения, что может быть связано с большой глубиной скважины (рис. 6). В то же время здесь зафиксировано существенное изменение регистрируемых параметров уже за 7–8 дней до землетрясения (гелий, рН, Eh, минерализация) и стремление к экстремумам за 3, 5 дней до землетрясения. Прослеживается синхронность динамики гелия, рН и разнонаправленность их с значениями Eh и общей минерализации. Необходимо отметить, что после землетрясения, на 2–3 день, наблюдается синхронный рост минерализации и содержания гелия в воде, что может быть связано с раскрытием трещин и разломов, произошедших в результате сейсмического события, и активным газовыделением из них.



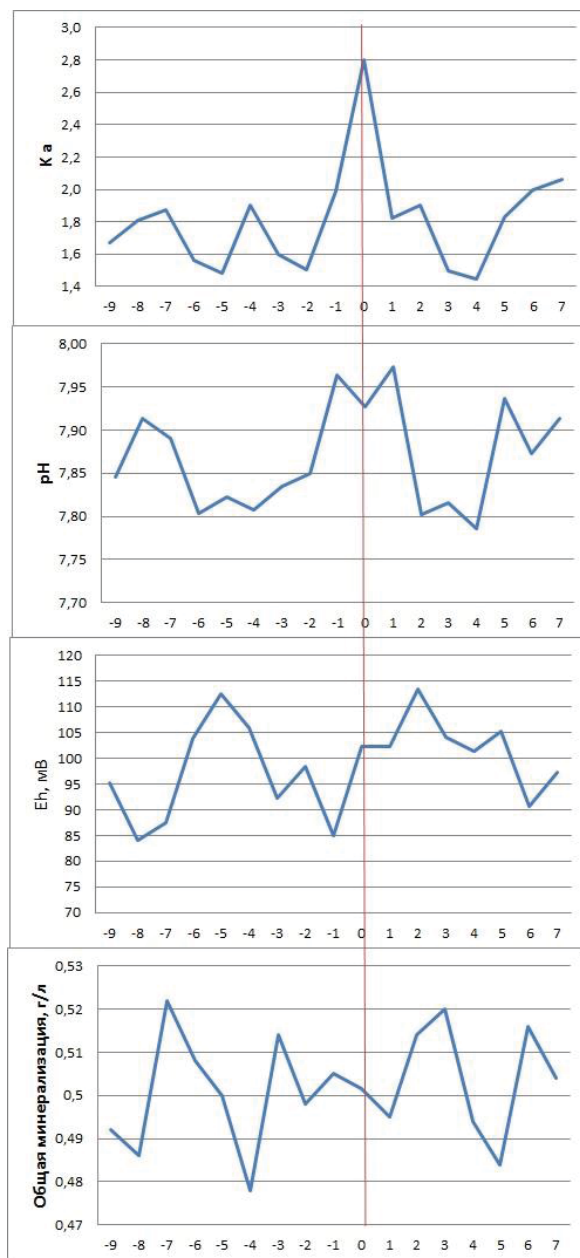
**Рис. 5.** Средние значения измеряемых параметров подземных вод относительно моментов землетрясений (0 – день землетрясения) в пункте мониторинга Горно-Алтайск

**Fig. 5.** Average values of the measured parameters of groundwater relative to the moments of earthquakes (0 – day of the earthquake) at the monitoring point Gorno-Altaysk

### Заключение

Детальное изучение динамики геохимических характеристик подземных вод является важным направлением современных исследований. Выявление особенностей изменения флюидных характеристик по дням мониторинга позволяет показать основные закономерности влияния на них землетрясений.

1. Впервые на территории Горного Алтая было проведено изучение динамики обобщенных геохимических показателей и содержания гелия в



**Рис. 6.** Средние значения измеряемых параметров подземных вод относительно моментов землетрясений (0 – день землетрясения) в пункте мониторинга Старый Бельтир

**Fig. 6.** Average values of the measured parameters of groundwater relative to the moments of earthquakes (0 – day of the earthquake) in the monitoring point Stary Beltir

подземных водах и показаны их кратковременные (1–3 суток) изменения в связи с землетрясениями.

2. Показано, что пункт мониторинга Старый Бельтир, расположенный в разломной зоне вблизи эпицентральной зоны Чуйского землетрясения (2003 г.), характеризуется не только высокой чувствительностью к изменениям на землетрясения обобщенных геохимических характеристик подземных вод, но и высокой динамикой содержания гелия.



3. В результате исследования было выявлено, что Хубсугульское землетрясение (2021 г.) предположительно оказало влияние на гидрогеохимический состав пункта мониторинга Горно-Алтайск, где в момент основного толчка отмечено резкое изменение измеряемых характеристик (температуры, рН, Eh).
4. Выбранные пункты мониторинга в ряде случаев не перекрывают друг друга и реагируют в основ-

ном на ближайшие к ним землетрясения, в том числе и на слабые.

5. Наиболее динамичная реакция на землетрясения отмечена у гелия, рН, Eh, температуры. Ежесуточное изучение динамики гидрогеохимических характеристик позволяет выявить кратковременные изменения (1–3 суток) измеряемых показателей у обоих пунктов мониторинга относительно сейсмических событий.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Варганиян Г.С., Бредехофт Дж.Д., Роуэллофф Э. Гидрогеологические методы исследования тектонических напряжений // Советская геология. – 1991. – № 9. – С. 3–12.
2. İnan S., Akgu T., Cemil S. Geochemical monitoring in the Marmara region (NW Turkey): a search for precursors of seismic activity // J. of Geophysical Research. – 2008. – V. 113: B03401. URL: <https://doi.org/10.1029/2007JB005206> (дата обращения 15.08.2022).
3. Kissin I.G. Strain sensitivity in fluid-saturated media // J. of Volcanology and Seismology. – 2011. – V. 5 (3). – P. 179–189. DOI: 10.1134/S0742046311030055.
4. Immè G., Morelli D. Radon as earthquake precursor // Earthquake research and analysis – statistical studies, observations and planning / Ed. by S. D'Amico. – Rijeka: InTech, 2012. – P. 143–160. URL: <https://doi.org/10.5772/29917> (дата обращения 15.08.2022).
5. Фирстов П.П., Макаров Е.О., Глухова И.П. Особенности динамики подземного газа перед землетрясением в Жупаново M=7,2 30 января 2016 г., Камчатка // Доклады Академии наук. – 2017. – Т. 472. – С. 196–199. URL: <https://doi.org/10.1134/s1028334x17020015> (дата обращения 15.08.2022).
6. Non-parametric detection of atmospheric radon concentration anomalies related to earthquakes / D. Iwata, H. Nagahama, J. Muto, Y. Yasuoka // Scientific Reports. – 2018. – V. 8 (13028). URL: <https://doi.org/10.1038/s41598-018-31341-5> (дата обращения 15.08.2022).
7. Копылова Г.Н., Болдина С.В. Гидрогеосейсмологические исследования на Камчатке: 1977–2017 гг. // Вулканология и сейсмология. – 2019. – № 2. – С. 3–20.
8. Vartanyan G.S. The Global Endodrainage System: some fluid-physical mechanisms of geodynamic processes // Geodynamics & Tectonophysics. – 2019. – V. 10 (1). – P. 53–78. URL: <https://doi.org/10.5800/GT-2019-10-1-0404> (дата обращения 15.08.2022).
9. Dissolved inert gases He, Ne and N<sub>2</sub> as markers of groundwater flow and degassing areas at Mt Etna volcano (Italy) / A. Paonita, M. Longo, S. Bellomo, W. D'Alessandro, L. Brusca // Chemical Geology. – 2016. – V. 443. – P. 10–21.
10. Шитов А.В. Об изменении влияния геологических факторов на здоровье населения при геодинамической активизации // Геофизические процессы и биосфера. – 2012. – Т. 11. – № 2. – С. 54–70.
11. Изменение химического состава подземных вод Республики Алтай при землетрясениях / А.В. Шитов, В.Е. Кац, Е.М. Дутова, В.А. Молоков, В.Д. Покровский // Известия Томского политехнического университета. – 2016. – Т. 327. – № 1. – С. 19–29.
12. Гидрогеохимические исследования в Южном Прибайкалье в связи с поисками предвестников землетрясений / Р.М. Семенов, П.С. Бадминов, М.Н. Лопатин, А.И. Оргильянов, И.Г. Крюкова // Вестник Иркутского государственного технического университета. – 2015. – № 2 (97). – С. 94–98.
13. Семенов Р.М., Лопатин М.Н., Чечельницкий В.В. Изучение концентраций растворенных гелия и радона в подземных водах Южного Прибайкалья в связи с сейсмическими процессами // Геодинамика и тектонофизика. – 2020. – Т. 11. – № 1. – С. 63–74. URL: <https://doi.org/10.5800/GT-2020-11-1-0463> (дата обращения 15.08.2022).
14. Гелий в подземных водах Республики Алтай / Е.М. Дутова, В.Е. Кац, А.В. Шитов, А.И. Сурнин, В.А. Молоков // Геодинамика и тектонофизика. – 2020. – Т. 11 (3). – С. 651–663. DOI: 10.5800/GT-2020-11-3-0497.
15. Кац В.Е., Шитов А.В., Драчев С.С. О механизмах изменения химического состава и температуры подземных вод в районе Горно-Алтайска // Геоэкология. – 2010. – № 3. – С. 207–212.
16. Яницкий И.Н. Гелиевая съемка. – М.: Недра, 1979. – 96 с.
17. Методические рекомендации по режимным наблюдениям за содержанием гелия во флюидах при геодинамических исследованиях и выявлении предвестников землетрясений / В.Н. Башорин, А.М. Галинский, И.В. Кучевская, А.И. Сальников, Т.В. Созинова, И.Н. Яницкий / под ред. А.Н. Еремеева. – М.: ВИМС, 1991. – 50 с.
18. Шитов А.В., Кац В.Е., Харьковина М.А. Эколого-геодинамическая оценка Чуйского землетрясения // Вестник Моск. ун-та. Сер. Геология. – 2008. – № 3. – С. 41–47.
19. Pulinets S., Boyarchuk K. Ionospheric precursors of earthquakes. – NY: Springer, 2004. – 289 p.
20. Физические основы генерации краткосрочных предвестников землетрясений. Комплексная модель геофизических процессов в системе литосфера–атмосфера–ионосфера–магнитосфера, инициируемых ионизацией / С.А. Пулинец, Д.П. Узунов, А.В. Карелин, Д.В. Давиденко // Геомагнетизм и аэронавигация. – 2015. – Т. 55. – № 4. – С. 540–558.

Поступила 25.07.2022 г.

Прошла рецензирование 03.10.2022 г.

#### Информация об авторах

**Дутова Е.М.**, доктор геолого-минералогических наук, профессор, отделение геологии, Инженерная школа природных ресурсов, Национальный исследовательский Томский политехнический университет; профессор, кафедра природопользования, Геолого-географический факультет, Национальный исследовательский Томский государственный университет.

**Кац В.Е.**, начальник отдела, Горно-Алтайское отделение «Сибирского регионального центра Государственного мониторинга состояния недр» ФГБУ «Гидроспецгеология».

**Шитов А.В.**, кандидат геолого-минералогических наук, доцент кафедры географии и природопользования, Естественно-географический факультет, Горно-Алтайский государственный университет.

**Сурнин А.И.**, кандидат геолого-минералогических наук, начальник отдела, Сибирский научно-исследовательский институт геологии, геофизики и минерального сырья.

**Драчев С.С.**, аспирант, кафедра природопользования, Геолого-географический факультет, Национальный исследовательский Томский государственный университет.

UDC 55.504.624.131

## RESULTS OF SHORT-TERM MONITORING OF HELIUM CONTENT AND GENERALIZED INDICATORS IN THE UNDERGROUND WATERS OF THE ALTAI MOUNTAINS

**Ekaterina M. Dutova**<sup>1,2</sup>,  
dutova@tpu.ru

**Valentina E. Kats**<sup>3</sup>,  
altai.geo@yandex.ru

**Alexander V. Shitov**<sup>4</sup>,  
sav103@yandex.ru

**Alexey I. Surnin**<sup>5</sup>,  
ogec@sniiggims.ru

**Sergey S. Drachev**<sup>2</sup>,  
oldwolf07@yandex.ru

<sup>1</sup> National Research Tomsk Polytechnic University,  
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050. Russia.

<sup>2</sup> National Research Tomsk State University,  
36, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

<sup>3</sup> Gorno-Altai Branch of the «Siberian Regional Center for State Monitoring of the Subsoil State», «Hydrospetsgeology»,  
52, Zavodskaya street, v. Maima, 649100, Russia.

<sup>4</sup> Gorno-Altai State University,  
7, Lenkin street, Gorno-Altai, 649000, Russia.

<sup>5</sup> Siberian Research Institute of Geology, Geophysics and Mineral Raw Materials,  
67, Krasny avenue, Novosibirsk, 630091, Russia.

**The relevance** of the work is caused by the need to improve the methods for monitoring the characteristics of groundwater and their changes in the seismically active regions of the Altai Republic. Groundwater is an indicator of seismic processes and they react to changes in the stress-strain state of rocks in the zones of foci of upcoming tectonic earthquakes.

**The aim** of the work is to identify short-term changes in the helium content and generalized hydrogeochemical indicators in the previously identified highly dynamic groundwater monitoring facilities of the Altai Republic in relation to the search for precursors of strong seismic events.

**Research methods.** The work is based on the results of daily monitoring of groundwater in the Altai Republic, which was carried out in January–March 2021 at two observation points for temperature conditions and the qualitative composition of groundwater – well and a column – of the Territorial Center «Altaigeomonitoring».

**Results.** For the first time on the territory of Gorny Altai, a study was made of the dynamics of generalized geochemical characteristics and helium content in groundwater and their short-term (1–3 days) changes due to earthquakes were shown. For this study, we used two groundwater observation points located in Gorno-Altai (street water fountain) and in the village Stary Beltir (borehole) distant from each other of more than 200 km. These monitoring points were chosen due to the fact that a significant change in the characteristics of groundwater was recorded there during the preparation and course of seismic events in the region. The work gives a characteristic of the seismic setting of the Altai-Sayan region during the monitoring period. To identify the dynamics of the helium content and generalized geochemical indicators of groundwater in the period of January 14–February 23, 2021, we carried out sampling. The sampling results showed that the monitoring point Stary Beltir, located in the fault zone near the epicentral zone of the Chuya earthquake (2003), is characterized by a high sensitivity to changes in both generalized groundwater characteristics and a high degree of helium content response to earthquakes. At the same time, the seismic events closest to them are reflected in the presented groundwater monitoring points. The chosen monitoring points in some cases do not overlap each other and react mainly to the nearest earthquakes, including weak ones. The most dynamic response to earthquakes was noted in helium, pH, Eh, and temperature.

### Key words:

groundwater, groundwater monitoring, geochemical characteristics, helium, rupture zones, earthquakes.

### REFERENCES

1. Vartanyan G.S., Bredekhoft Dzh.D., Rouellofs E. Gidrogeologicheskie metody issledovaniya tektonicheskikh napryazheniy [Hydrogeological methods of studying tectonic stresses]. *Sovetskaya geologiya*, 1991, no. 9, pp. 3–12.
2. Inan S., Akgu T., Cemil S. Geochemical monitoring in the Marmara region (NW Turkey): a search for precursors of seismic activity. *J. of Geophysical Research*, 2008, vol. 113, B03401. Available at: <https://doi.org/10.1029/2007JB005206> (accessed 15 August 2022).
3. Kissin I.G. Strain sensitivity in fluid-saturated media. *J. of Volcanology and Seismology*, 2011, vol. 5 (3), pp.179–189. DOI: 10.1134/S0742046311030055.
4. Immè G., Morelli D. Radon as earthquake precursor. *Earthquake research and analysis – statistical studies, observations and planning*. Ed. by S. D'Amico. Rijeka, InTech, 2012. pp. 143–160.

- Available at: <https://doi.org/10.5772/29917> (accessed 15 August 2022).
5. Firstov P.P., Makarov E.O., Glukhova I.P. Peculiarities of subsoil gas dynamics before the M = 7.2 Zhupanovo earthquake on January 30, 2016, Kamchatka. *Doklady Earth Sciences*, 2017, 472, pp. 196–199. Available at: <https://doi.org/10.1134/s1028334x17020015> (accessed 15 August 2022).
  6. Iwata D., Nagahama H., Muto J., Yasuoka Y. Non-parametric detection of atmospheric radon concentration anomalies related to earthquakes. *Scientific Reports*, 2018, (13028). Available at: <https://doi.org/10.1038/s41598-018-31341-5> (accessed 15 August 2022).
  7. Kopylova G.N., Boldina S.V. Hydrogeochemical studies in Kamchatka: 1977–2017. *Volcanology and seismology*, 2019, no. 2, pp. 3–20. In Rus.
  8. Vartanyan G.S. The Global Endodrainage System: some fluid-physical mechanisms of geodynamic processes. *Geodynamics & Tectonophysics*, 2019, vol. 10 (1), pp. 53–78. Available at: <https://doi.org/10.5800/GT-2019-10-1-0404> (accessed 15 August 2022).
  9. Paonita A., Longo M., Bellomo S., D'Alessandro W., Brusca L. Dissolved inert gases He, Ne and N<sub>2</sub> as markers of groundwater flow and degassing areas at Mt Etna volcano (Italy). *Chemical Geology*, 2016, vol. 443, pp. 10–21.
  10. Shitov A.V. Changes in the effect of geological factors on the health of the population during geodynamical activation. *Izvestiya, Atmospheric and Oceanic Physics*, 2012, vol. 48, no. 8, pp. 859–870.
  11. Shitov A.V., Kats V.E., Dutova E.M., Molokov V.Y., Pokrovskiy V.D. Changes of chemical groundwater composition in the republic of Altai due to the earthquakes. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University, Geo Assets Engineering*, 2016, vol. 327, no. 1, pp. 19–29. In Rus.
  12. Semenov R.M., Badminov P.S., Lopatin M.N., Orgilianov A.I., Kryukova I.G. Hydrogeochemical studies in the Southern Baikal region in connection with the search for earthquake precursors. *Bulletin of Irkutsk State Technical University*, 2015, no. 2 (97), pp. 94–98. In Rus.
  13. Semenov R.M., Lopatin M.N., Chechelitsky V.V. The study of dissolved helium and radon concentrations in groundwaters of Southern Pribaikalie in connection with seismic processes. *Geodynamics & Tectonophysics*, 2020, vol. 11 (1), pp. 63–74. DOI: 10.5800/GT-2020-11-1-0463.
  14. Dutova E.M., Kats V.E., Shitov A.V., Surnin A.I., Molokov V.A. Helium in groundwaters of the Altai Republic. *Geodynamics & Tectonophysics*, 2020, vol. 11 (3), pp. 651–663. In Rus. DOI: 10.5800/GT-2020-11-3-0497.
  15. Kats V.E., Shitov A.V., Drachev S.S. On the mechanisms of changing the chemical composition and temperature of groundwater in the area of Gorno-Altaysk. *Geocology, engineering geology, hydrogeology, geocryology*, 2010, no. 3, pp. 207–212. In Rus.
  16. Yanitskiy I.N. *Gelievaya syemka* [Helium shooting]. Moscow, Nedra Publ., 1979. 96 p.
  17. Bashorin V.N., Galinskiy A.M., Kuchevskaya I.V., Salnikov A.I., Sozinova T.V., Yanitskiy I.N. *Metodicheskie rekomendatsii po rezhimnym nablyudeniya za sodержaniem geliya vo flyuidakh pri geodinamicheskikh issledovaniyakh i vyyavlenii predvestnikov zemletryaseniy* [Methodological recommendations on routine observations of helium content in fluids during geodynamic studies and detection of earthquake precursors]. Ed. by A.N. Ereemeva. Moscow, VIMS Publ., 1991. 50 p.
  18. Shitov A.V., Kats V.E., Kharkina M.A. Ecological and geodynamic assessment of the Chuya earthquake. *Vestnik Mosk. un-ta. Ser. Geologiya*, 2008, no. 3, pp. 41–47. In Rus.
  19. Pulnits S., Boyarchuk K. *Ionospheric precursors of earthquakes*. NY, Springer, 2004. 289 p.
  20. Pulnits S., Ouzounov D., Karelin A., Davidenko D. Physical bases of the generation of short-term earthquake precursors: a complex model of ionization-induced geophysical processes in the lithosphere–atmosphere–ionosphere–magnetosphere system. *Geomagn. Aeron.*, 2015, vol. 55 (4), pp. 540–558.

Received: 25 July 2022.

Reviewed: 3 October 2022.

#### Information about the authors

**Ekaterina M. Dutova**, Dr. Sc., professor, National Research Tomsk Polytechnic University; professor, National Research Tomsk State University.

**Valentina E. Kats**, head of department, Gorno-Altaysk Branch of the «Siberian Regional Center for State Monitoring of the Subsoil State», «Hydrospetsgeology».

**Alexander V. Shitov**, Cand. Sc., associate professor, Gorno-Altaysk State University.

**Alexey I. Surnin**, Cand. Sc., head of department, Siberian Research Institute of Geology, Geophysics and Mineral Raw Materials.

**Sergey S. Drachev**, postgraduate student, National Research Tomsk State University.

УДК 504.4.054: 622:553.45 (571.62):004.94

## ВЛИЯНИЕ ТЕХНОГЕННЫХ ВОД НА РЕКУ РУДНУЮ ДАЛЬНЕВОСТОЧНОГО РЕГИОНА

**Зверева Валентина Павловна<sup>1</sup>,**  
zvereva@fegi.ru

**Фролов Константин Русланович<sup>2</sup>,**  
konstantin.fk@gmail.com

**Лысенко Анастасия Игоревна<sup>1</sup>,**  
lion8888@inbox.ru

<sup>1</sup> Дальневосточный геологический институт ДВО РАН,  
Россия, 690022, г. Владивосток, пр. 100-летия Владивостока, 159.

<sup>2</sup> Дальневосточный федеральный университет,  
Россия, 690922, г. Владивосток, о. Русский, п. Аякс, 10.

**Актуальность** исследования связана с негативным воздействием техногенных вод оловосульфидных и оловополиметаллических хвостохранилищ Дальнегорского рудного района Дальнего Востока России на речные воды и с необходимостью изучения процессов их смешения на геохимических барьерах «техногенные – природные поверхностные воды».

**Цель:** рассмотреть процесс смешения шламовых и дренажных вод хвостохранилищ с природными водами р. Рудной, протекающей на геохимическом барьере «техногенные – поверхностные природные воды».

**Объекты:** техногенные воды – дренажные и шламовые оловополиметаллического хвостохранилища Центральной обогатительной фабрики, а также дренажные, шламовые и воды пруда-отстойника оловосульфидных хвостохранилищ Краснореченской обогатительной фабрики Дальнегорского рудного района; природные поверхностные воды р. Рудной; геохимические барьеры «техногенные – природные поверхностные воды».

**Методы:** экологический мониторинг – отбор и анализ гидрохимических проб методами масс-спектрометрии с индуктивно связанной плазмой и атомно-эмиссионной спектрометрии; компьютерное физико-химическое (термодинамическое) моделирование в программном комплексе «Селектор-Windows»; моделирование процессов, протекающих на геохимических барьерах «техногенные – природные поверхностные воды», с помощью формирования компьютерных многорезервуарных моделей по типу проточного реактора; рассмотрение процессов образования водных растворов на геохимических барьерах выполнено с разбавлением техногенных вод природными при соотношениях 1:1, 1:10, 1:100, 1:1000 для установления количественного (элементы сульфидных руд и вмещающих оруденение пород) и качественного (их ионы и молекулы) состава водных растворов и кристаллизации из них техногенных минералов.

**Результаты.** По результатам мониторинговых работ установлен химический состав техногенных и природных вод Дальнегорского рудного района посезонно. С помощью программного комплекса «Селектор-Windows» смоделированы процессы образования водных растворов летнего, осеннего и зимнего периода на различных геохимических барьерах «техногенные – природные воды» в соответствии с принятыми соотношениями. На основании анализа полученных результатов в статье приведен количественный и качественный состав посезонно формирующихся растворов, показаны кристаллизующиеся из них минералы и распределение содержания элементов сульфидных руд на геохимических барьерах, что подтверждает негативное воздействие техногенных вод хвостохранилищ на воды р. Рудная.

### Ключевые слова:

Горнопромышленные техногенные системы, шламовые воды хвостохранилищ, дренажные воды хвостохранилищ, техногенные минералы, геохимические барьеры, физико-химическое моделирование, Дальнегорский рудный район, р. Рудная.

### Введение

Дальнегорский район находится в Приморском крае на побережье Японского моря. Горнорудная промышленность в районе развивается более 120 лет. Главная водная артерия района – река Рудная – подвергается влиянию трех горнопромышленных техногенных систем (рис. 1). Это Краснореченская техногенная система, включающая одноименное оловосульфидное месторождение, карьер и два хвостохранилища (ХВ) Краснореченской обогатительной фабрики (КОФ), Центральная, состоящая из нескольких полиметаллических месторождений, карьеров и двух хвостохранилищ Центральной обогатительной фабрики (ЦОФ), а также третья – Бор, сформированная месторождениями бора, их карьерами и двумя хвостохранилищами. Хвостохранилища занимают более

3 тыс. м<sup>2</sup>, здесь накоплено порядка 100 млн т отходов обогащения четырех горно-обогатительных фабрик.

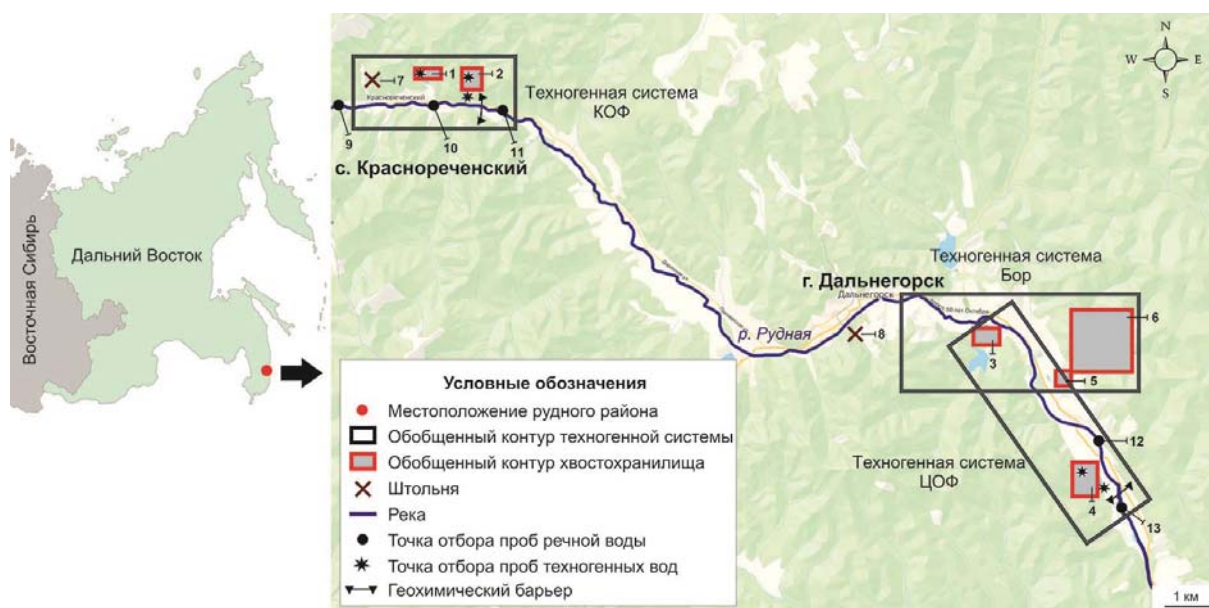
Руды м. Краснореченское перерабатывались на КОФ. В их состав входят: касситерит, пирротин, сфалерит, галенит, джемсонит, арсенопирит, пирраргирит, аргентит. К минералам вмещающих пород относятся: гранат, турмалин, кварц, кальцит и другие. Среди гипергенных минералов установлены: церуссит, англезит, лимонит, гизингерит, пиролюзит, валентинит, псиломелан и кермесит [1]. Кроме Sn, Pb и Zn сопутствующими компонентами в руде были Ag, Sb, Cd, Bi, Cu и In.

Полиметаллические руды перерабатываются на ЦОФ. Основной Pb-содержащий минерал – галенит (до 95 %), а Zn-содержащий – сфалерит (до 96,3 %), попутно извлекалось серебро (Ag). Кроме того, в руде присутствуют сульфиды: пирит, пирротин, арсенопи-



рит, халькопирит и нерудные минералы: кварц, кальцит и другие. К минералам зоны окисления относятся

церуссит и англезит, а второстепенными являются лимонит и смитсонит [2].



**Рис. 1.** Схематическая карта географического положения и горнопромышленных техногенных систем Дальнегорского района: 1 – старое ХВ КОФ; 2 – новое ХВ КОФ; 3 – старое ХВ ЦОФ; 4 – новое ХВ ЦОФ; 5 – старое ХВ Бор; 6 – комплекс новых ХВ Бор; 7 – штольня рудника Краснореченский; 8 – штольня Бункерная; 9 – р. Рудная выше объектов КОФ (фоновые воды); 10 – р. Рудная выше старого ХВ КОФ; 11 – р. Рудная ниже нового ХВ КОФ; 12 – р. Рудная выше нового ХВ ЦОФ; 13 – р. Рудная ниже нового ХВ ЦОФ

**Fig. 1.** Contour map of Dalnegorsk ore district geographical location and mining technogenic systems: 1 – old Krasnorechensk concentrating mill tailing dump; 2 – new Krasnorechensk concentrating mill tailing dump; 3 – old Central concentrating mill tailing dump; 4 – new Central concentrating mill tailing dump; 5 – old Bor tailing dump; 6 – new Bor tailing dump; 7 – adit of Krasnorechensky mine; 8 – adit of Bunkernaya; 9 – Rudnaya River upstream of Krasnorechensk facilities (background water); 10 – Rudnaya River above the old Krasnorechensk concentrating mill tailing dump; 11 – Rudnaya River below the new Krasnorechensk concentrating mill tailing dump; 12 – Rudnaya River above the old Central concentrating mill tailing dump; 13 – Rudnaya River below the new Central concentrating mill tailing dump

Исследование влияния горнорудного производства на природные воды проводилось как в России, так и за рубежом. Многими авторами показано негативное воздействие техногенных стоков хвостохранилищ на природные воды как в России [3–5], так и в мире [6–15]. Следует отметить гидрохимические исследования и в рассматриваемом горнорудном районе [16–19]. Разными авторами установлено увеличение значений канцерогенных и неканцерогенных рисков здоровью населения при различных сценариях экспозиции загрязняющих веществ в воде [20–25].

Изучение техногенных и речных вод р. Рудной в районе авторами данной работы проводится с 2003 г. Гидрохимические пробы анализировались методом масс-спектрометрии с индуктивно связанной плазмой на спектрометре Agilent 7700 и атомно-эмиссионной спектрометрии на спектрометре iCAP 7600 Duo на содержание Cu, Pb, Zn, Sn, Co, Ni, Cr, Fe, Mn, Sr, Li, Ag, Al, В, Ba, Na, Ca и Mg. Результаты исследований представлены в статьях [16, 19].

Водородный показатель вод р. Рудной выше хвостохранилищ КОФ (рис. 1, точка 9) изменяется от 4,6 до 8,0. Вследствие того, что в верховье реки круглогодично сбрасываются неочищенные рудничные воды месторождения Краснореченское, превышение фоновых концентраций химических элементов здесь составляло (раз):

по Zn – от 187 до 4435, Cu – 2–29, Pb – 4–1280, Fe – 4–989, Mn – 10–9190, Al – 2–227, As – 1,7–18. Минерализация растворов в 2019 г. достигала 270 мг/л.

Величина показателя pH вод р. Рудной ниже комплекса хвостохранилищ КОФ (рис. 1, точка 11) изменялась от 5,8 до 6,3, а превышение фоновых концентраций составляло (раз): Zn от 25 до 7575, Cu – 2–20, Pb – 6–540, Fe – 3–1016, Mn – 86–17870, Al – 1,5–182, As – 33, максимальная минерализация отмечалась в 2019 г. – 318 мг/л.

Водородный показатель вод р. Рудной ниже старого хвостохранилища ЦОФ и боросиликатных хвостохранилищ (рис. 1, точка 12) изменяется от 5,0 до 8,4, при этом превышения фона ряда элементов имели следующие значения (раз): Zn от 11,5 до 25, Cu – 2–14, Pb – 10–240, Fe – 3,8–13,0, Mn – 4–87, Al – 3–19, As – 15–33, В – 17–52. Максимальная минерализация установлена в 2019 г. – 533 мг/л.

Величина показателя pH вод р. Рудной ниже нового хвостохранилища ЦОФ (рис. 1, точка 13) изменяется от 7,4 до 8,9, а превышение фоновых значений (раз): Zn от 8 до 19, Cu – 2–3, Pb – 2–140, Fe – 2–7, Mn – 14–44, Al – 3–11, As – 20–33, В – 16–31. Концентрация бора в речной воде достигала 9,6 мг/л. В 2019 г. максимальная минерализация воды составила 473 мг/л.

Максимальные превышения фоновых значений химических элементов в воде р. Рудной в 2018 г. по сравнению с 2012 г. [19] выросли (раз): по Zn – с 25–7575, Cu – 14–29, Pb – 240–1280, Fe – 13–989, Mn – 87–9190 и Al – 19–227.

Воздействие горнопромышленной техногенной системы привело к тому, что превышение ПДК<sub>рыб.-хоз.</sub> большинства рассмотренных элементов с 2012 по 2018 гг. [19] в воде р. Рудной составило (раз): по Zn – от 1,5 до 606, Cu – 1,4–4,0, Pb – 1,2–10,7, Fe – 3–2372, Mn – 3–357, Al – 3–59, As – 4,0–6,6 и В – 2–28. В предыдущие годы наблюдений, с 2001 по 2011 гг. [16–19], максимальные превышения этого норматива были ниже (раз): по Zn в 19, Pb – 2, Fe – 5, Mn – 2, Al – 5 и В – 11.

Полученные гидрохимические данные показывают существенное негативное влияние техногенных вод на химический состав р. Рудной. Следовательно, важно рассмотреть в деталях сам процесс смешения вод на геохимическом барьере «техногенные – поверхностные природные воды» сезонно.

Основоположником учения о геохимических барьерах является А.И. Перельман. Геохимическими барьерами называются участки пространства, на которых происходит резкое уменьшение интенсивности миграции химических элементов и, как следствие, их концентрирование [26]. Геохимические барьеры разделяются на три основных класса: физико-химические, механические и биогеохимические. По генетической классификации А.И. Перельмана геохимические барьеры делятся на два типа: природный и техногенный. В случае природных барьеров смена одной геохимической обстановки на другую связана с особенностями конкретного участка экосферы. Для техногенных барьеров смена геохимических обстановок происходит в результате антропогенной деятельности, что и имеет место в рассматриваемом районе.

*Цель данной работы* – рассмотреть процессы смешения шламовых и дренажных вод хвостохранилищ с речными водами р. Рудной, протекающие на геохимических барьерах «техногенные – поверхностные природные воды». Для достижения цели решались следующие задачи: 1. С помощью программного комплекса «Селектор-Windows» произвести физико-химическое моделирование сезонного смешения техногенных вод (хвостохранилищ КОФ и ЦОФ) с природными на геохимических барьерах. 2. Определить водородный показатель формирующихся растворов, содержание в них элементов сульфидных руд и вмещающих пород, их ионный и молекулярный состав, а также вероятный состав кристаллизующихся техногенных минералов. 3. Рассмотреть процесс разбавления техногенных вод речными в 10, 100 и 1000 раз. 4. Показать негативное влияние техногенных вод рассматриваемых хвостохранилищ на р. Рудную.

#### Методология эксперимента

Моделирование процессов, протекающих на геохимических барьерах, проводилось с помощью программного комплекса «Селектор-Windows» (разработан в ИГХ СО РАН). В нем реализован подход вы-

пуклого программирования к вычислению равновесия в гетерогенных системах с помощью минимизации термодинамических потенциалов. Ключевой возможностью данного продукта является расчет сложных химических равновесий в изобарно-изотермических, изохорических и адиабатических условиях в мультисистемах, где одновременно могут присутствовать водный раствор электролита, газовая смесь, жидкие и твердые углеводороды, минералы в виде твердых растворов и однокомпонентных фаз, расплавы и плазма [27].

Расчет термодинамических свойств для различных фаз в «Селектор-Windows» производится в зависимости от температуры, давления и коэффициентов активности. В вычислении изотермических изменений термодинамических функций используются: уравнения зависимости изменения объема конденсированных фаз в зависимости от температуры, давления и полуэмпирического состояния газов в приведенных параметрах. Термодинамические свойства компонентов водного раствора в области до 1000 °С и 5000 бар рассчитываются по модифицированной модели НКФ (Хельгесона–Киркхемма–Флауэрса). Коэффициенты активности компонентов водного раствора электролита вычисляются по уравнению Дебая–Хюккеля в модификации Хельгесона [27].

При моделировании используются термодинамические характеристики (энергия Гиббса, энтальпия, энтропия, коэффициенты для уравнения теплоемкости) из стандартного комплекта поставки и соответствующих публикаций [27–30].

Методология моделирования процессов, протекающих на геохимических барьерах, представлена в работе [31]. Для рассмотрения состава водных растворов, образующихся при взаимодействии техногенных и природных вод на вышеуказанных геохимических барьерах, в данном комплексе формировались двухрезервуарные модели по типу проточного реактора. Первый резервуар включал химический состав 10 кг атмосферного воздуха ( $Ar_{0,3209}C_{0,01036}N_{53,9478}O_{14,48472}$ ) [32] и 1 кг техногенных вод, которые поступали во второй резервуар с составом речных вод массой от 1 до 1000 кг. При моделировании устанавливалось постоянное давление – 1 бар. Температура в системе соответствовала природной для техногенных и природных вод в момент их летнего, осеннего и зимнего пробоотбора: 18,4, 13,5 и 3 °С, соответственно.

Использовался химический состав проб техногенных и речных вод, отобранных летом и осенью 2018 г., а также зимой 2019 г. (таблица). Пробы были проанализированы в ЦКП ДВГИ ДВО РАН методами масс-спектрометрии с индуктивно связанной плазмой на спектрометре Agilent 7700 и атомно-эмиссионной спектрометрии на спектрометре iCAP 7600 Duo. Это дренажные и шламовые воды действующего хвостохранилища ЦОФ (рис. 1, точка 4), шламовые воды старого хвостохранилища КОФ (рис. 1, точка 1), техногенные воды пруда-отстойника и дренажные воды нового хвостохранилища КОФ (рис. 1, точка 2). В летний и осенний периоды пробы вод в р. Рудной отбирались выше хвостохранилищ КОФ (рис. 1,

точка 10). Кроме того, в зимний период речные пробы взяты в истоке реки, на расстоянии 8,5 км от ближайшей промышленной и жилой зоны (рис. 1, точка 9), а техногенные воды в прудке-отстойнике промерзли на глубину более 110 см, что не позволило провести их пробоотбор. В общей сложности в работе сформированы и проанализированы 32 варианта моделей геохимических барьеров.

Для летнего, осеннего и зимнего периодов рассмотрены следующие природные геохимические барьеры физико-химического (окислительно-восстановительного) типа:

- «дренажные воды нового ХВ ЦОФ – воды р. Рудной»;
- «шламовые воды нового ХВ ЦОФ – воды р. Рудной»;
- «шламовые воды старого ХВ КОФ – воды р. Рудной»;
- «воды пруда-отстойника нового ХВ КОФ – воды р. Рудной»;
- «дренажные воды нового ХВ КОФ – воды р. Рудная»;
- разбавление техногенных вод рассматриваемых хвостохранилищ водами р. Рудной – соотношения «техногенные – природные воды»: 1:10, 1:100 и 1:1000.

**Таблица.** Химический состав моделей, мг/л

**Table.** Chemical composition of the models, mg/L

Вещество Substance	Сезон Season	Дренажные воды нового ХВ ЦОФ Drainage water of new CCM TD	Шламовые воды нового ХВ ЦОФ Slurry water of new CCM TD	Шламовые воды старого ХВ КОФ Slurry water of new KCM TD	Вода отстойника нового ХВ КОФ Settling of new KCM TD	Дренажные воды нового ХВ КОФ Drainage water of new KCM TD	Вода р. Рудной, выше ХВ КОФ Rudnaya River before KCM TD
Al	Л/S	0,002	0,052	95,4	1,7	0,016	0,029
	О/A	0,0007	0,089	30,4	3,7	0,002	0,04
	З/W	0,012	0,01	0,008	–	12,5	0,005
Mn	Л/S	0,001	0,329	9,1	4,2	0,878	0,231
	О/A	0,46	0,222	23,4	4,7	1,6	0,783
	З/W	0,001	0,601	0,642	–	70,9	0,003
Fe	Л/S	0,008	0,016	10,3	0,458	0,095	0,062
	О/A	0,003	0,028	69,1	0,11	0,009	0,197
	З/W	0,002	0,04	0,002	–	450,6	0,011
Cu	Л/S	0,002	0,039	6,8	0,03	0,002	0,004
	О/A	0,011	0,238	1,4	0,082	0,001	0,003
	З/W	0,32	0,056	0,002	–	0,423	0,004
Zn	Л/S	0,038	0,024	386	2,4	0,393	0,749
	О/A	0,277	0,316	71,9	4	0,637	2
	З/W	0,001	0,093	0,021	–	28,7	0,005
As	Л/S	0,011	0,049	2,9	0,004	0,002	0,0005
	О/A	0,006	0,016	1,7	0,001	0,0005	0,0004
	З/W	0,012	0,005	0,002	–	0,303	0,001
Pb	Л/S	0,0001	0,001	0,01	0,077	0,0003	0,0008
	О/A	0,0002	0,0001	0,016	0,076	0,0001	0,002
	З/W	0,0001	0,0001	0,0002	–	0,03	0,0003
Ca	Л/S	126,3	83,9	670,3	107,7	29,8	14,4
	О/A	116,6	113,3	231,6	114,5	32,5	22,2
	Зима	0,124	0,134	0,031	–	0,182	0,008
K	Л/S	0,101	28,6	0,106	5,1	1,1	0,587
	О/A	10,1	31,3	0,825	4,9	0,41	0,58
	З/W	0,013	0,0007	0,002	–	0,004	0,0004
Mg	Л/S	107,8	2,4	603,8	11,9	7,8	4,5
	О/A	10,1	3,1	134,9	13,8	8,3	7,5
	З/W	0,01	0,034	0,008	–	0,037	0,0008
Na	Л/S	359,8	37,6	4,5	3,8	3,4	4,4
	О/A	36,5	40	4,3	5,6	4,8	4,7
	З/W	0,04	0,006	0,004	–	0,024	0,003
Si	Л/S	5,355	4,5	97,3	9,5	4,4	9,2
	О/A	4,8	4,1	26,7	11,4	4,7	9,4
	З/W	0,001	0,004	0,005	–	0,005	0,008
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Л/S	22,9	334,1	8332,8	6412,8	38,4	32,9
	О/A	23,8	27,7	1804,8	4053,7	34,6	67,7
	З/W	0,104	0,077	0,012	–	0,335	0,002

Примечание/Note: Л – лето, О – осень, З – зима/S – summer, A – autumn, W – winter.

### Результаты и их обсуждение

**Геохимические барьеры летнего периода.** Для формирования моделей геохимических барьеров данного периода использовался химический состав техногенных и речных вод (таблица, лето), системе задавалась их средняя температура во время пробоотбора: 18,4 °С.

Результаты моделирования барьера «дренажные воды нового ХВ ЦОФ – речные воды» показали, что раствор имеет величину рН 8,64 и минерализацию 276 мг/л. Концентрация элементов составляет (мг/л): Cu – 0,01, Zn – 0,8, Pb – 0,001, As – 0,01, S – 18, Na – 40, K – 11, Mg – 15, Ca – 6 и Si – 2. Из раствора выпадает кальцит – CaCO<sub>3</sub>, масса которого 0,34 г.



На рис. 2 представлены частицы, содержание которых в растворах составляет более 0,01 мг/л. В случае геохимического барьера в летнее время (18,4 °С) элементы представлены в основном ионами и молекулами сульфидных руд и вмещающих их пород:  $\text{CuHCO}_3^+$ ,  $\text{ZnHCO}_3^+$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{HSiO}_3^-$  (рис. 2, барьер 1).

При моделировании барьера «шламовые воды нового ХВ ЦОФ – речные воды» водородный показатель раствора составляет 7,87, а минерализация – 571 мг/л. Содержание элементов в нем (мг/л):  $\text{Cu} - 0,04$ ,  $\text{Zn} - 0,8$ ,  $\text{Pb} - 0,002$ ,  $\text{As} - 0,05$ ,  $\text{S} - 121$ ,  $\text{Na} - 42$ ,  $\text{K} - 29$ ,  $\text{Mg} - 7$ ,  $\text{Ca} - 97$  и  $\text{Si} - 2$ . Их качественный ионный и молекулярный состав в основном не изменился, но в растворе появился  $\text{CaSO}_4$  (рис. 2, барьер 2).

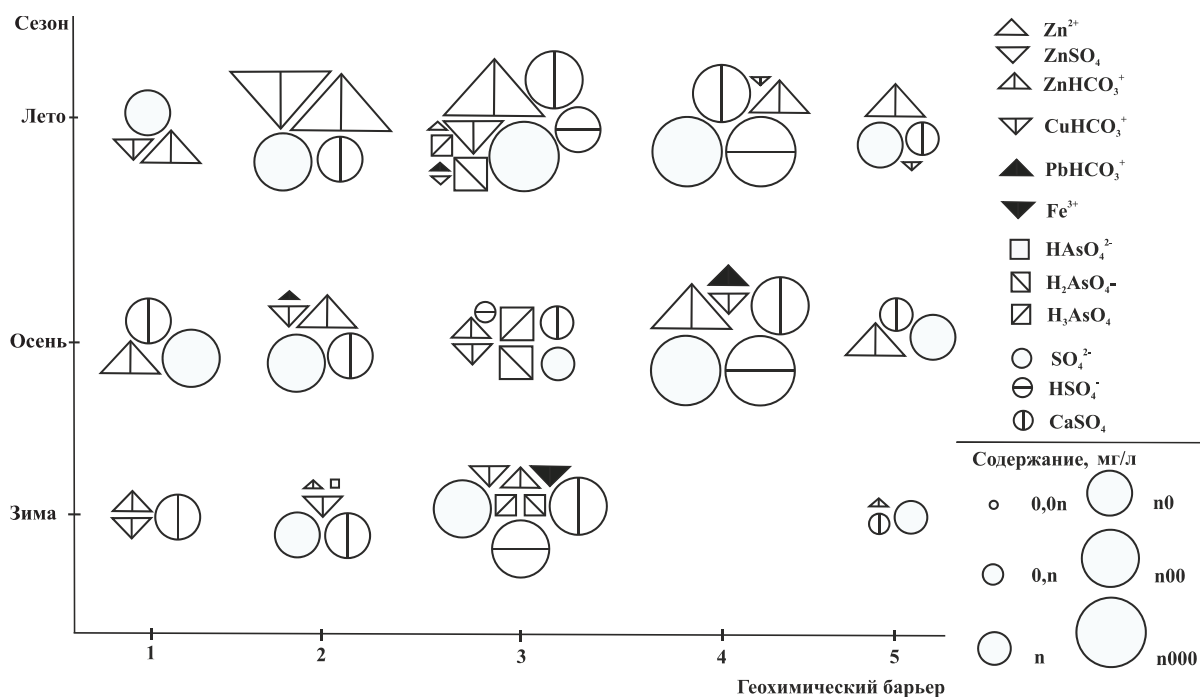
Результатами моделирования барьера «шламовые воды старого ХВ КОФ – речные воды» установлен кислый раствор с pH равным 3,2 и минерализацией 4846 мг/л. На барьере кристаллизуется техногенный минерал фиброферрит –  $\text{Fe}[\text{SO}_4](\text{OH}) \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  массой 4,8 г. Содержание элементов (мг/л):  $\text{Cu} - 3,4$ ,  $\text{Zn} - 194$ ,  $\text{Pb} - 0,01$ ,  $\text{As} - 1,5$ ,  $\text{S} - 1103$ ,  $\text{Na} - 4,5$ ,  $\text{K} - 0,4$ ,  $\text{Mg} - 305$ ,  $\text{Ca} - 343$ ,  $\text{Al} - 48$  и  $\text{Si} - 2$ . Полученный состав раствора повторяет данные барьера нового ХВ ЦОФ,

но прибавились следующие ионы и молекулы:  $\text{Zn}^{2+}$ ,  $\text{ZnSO}_4$ ,  $\text{PbHCO}_3^+$ ,  $\text{H}_2\text{AsO}_4^-$ ,  $\text{H}_3\text{AsO}_4$ ,  $\text{HSO}_4^-$ ,  $\text{CaSO}_4$  (рис. 2, барьер 3) и  $\text{Al}^{3+}$ .

Моделируемый барьер «воды отстойника нового ХВ КОФ – речные воды» имеет раствор pH, равный 1,22, и минерализацию 6604 мг/л. Концентрация элементов (мг/л):  $\text{Cu} - 0,03$ ,  $\text{Zn} - 3,1$ ,  $\text{Pb} - 0,08$ ,  $\text{As} - 0,005$ ,  $\text{S} - 2130$ ,  $\text{Na} - 8,2$ ,  $\text{K} - 5,6$ ,  $\text{Mg} - 16,2$ ,  $\text{Ca} - 121$ ,  $\text{Al} - 2$  и  $\text{Si} - 2$ . Из него выпадает фиброферрит массой 0,04 г. Из состава раствора предыдущего барьера исчезают:  $\text{Zn}^{2+}$ ,  $\text{ZnSO}_4$ ,  $\text{PbHCO}_3^+$ ,  $\text{H}_2\text{AsO}_4^-$ ,  $\text{H}_3\text{AsO}_4$  (рис. 2, барьер 4).

При моделировании барьера «дренажные воды нового ХВ КОФ – речные воды» водородный показатель раствора составил 8,31, а минерализация – 193 мг/л. Содержание элементов в нем (мг/л):  $\text{Cu} - 0,01$ ,  $\text{Zn} - 1,1$ ,  $\text{S} - 24$ ,  $\text{Na} - 7,7$ ,  $\text{K} - 1,7$ ,  $\text{Mg} - 12$ ,  $\text{Ca} - 24$  и  $\text{Si} - 2,2$ . В растворе формируется кальцит, масса которого 0,05 г. Качественный ионный и молекулярный состав полностью совпадает с тем, который получен на предыдущем барьере, но в нем отсутствует ион  $\text{HSO}_4^-$  (рис. 2, барьер 5).

Распределение элементов на барьерах ЦОФ и КОФ представляет ряд вида:  $\text{S} > \text{Zn} > \text{Cu} > \text{As} > \text{Pb}$ .



**Рис. 2.** Посезонное содержание ионов и молекул элементов сульфидных руд в воде на геохимических барьерах р. Рудная. По оси X: 1 – дренажные воды нового ХВ ЦОФ; 2 – шламовые воды нового ХВ ЦОФ; 3 – шламовые воды старого ХВ КОФ; 4 – воды отстойника нового ХВ; 5 – дренажные воды нового ХВ КОФ

**Fig. 2.** Seasonal content of ions and molecules of sulfide ores in water on Rudnaya River geochemical barriers. On the X-axis: 1 – drainage water of new CCM TD; 2 – slurry water of new CCM TD; 3 – slurry water of new KCM TD; 4 – settling of new KCM TD; 5 – drainage water of new KCM TD

Геохимические барьеры осеннего периода. Для формирования моделей геохимических барьеров в осенний период использовался химический состав вод из таблицы (осень), температура систем – 13,6 °С.

Результаты моделирования барьера «дренажные воды нового ХВ ЦОФ – речные воды» показали, что

раствор имеет величину pH 8,18 и минерализацию 505 мг/л. Концентрация элементов составляет (мг/л):  $\text{Cu} - 0,01$ ,  $\text{Zn} - 2,3$ ,  $\text{Pb} - 0,002$ ,  $\text{As} - 0,01$ ,  $\text{S} - 1,7$ ,  $\text{Na} - 41$ ,  $\text{K} - 11$ ,  $\text{Mg} - 17$ ,  $\text{Ca} - 73$  и  $\text{Si} - 1,7$ . Из раствора выпадает кальцит с массой 0,16 г. Качественный состав элементов в виде ионов и молекул в растворе



представлен:  $\text{ZnHCO}_3^+$ ,  $\text{CaSO}_4$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  (рис. 2, барьер 1),  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{SiO}_2$  и  $\text{HSiO}_3^-$ .

Раствор на барьере «шламовые воды нового ХВ ЦОФ – речные воды» имеет рН 8,12 и минерализацию 569 мг/л, с содержанием элементов (мг/л): Cu – 0,24, Zn – 2,3, As – 0,02, S – 114, Na – 44, K – 31, Mg – 11, Ca – 85 и Si – 1,6. Из него кристаллизуется кальцит (0,12 г). Качественный ионный и молекулярный состав элементов здесь полностью повторяет предыдущий барьер, но добавились ионы  $\text{Fe}^{3+}$  и  $\text{CuHCO}_3^+$  (рис. 2, барьер 2).

Моделирование барьера «шламовые воды старого ХВ КОФ – речные воды» показало, что формируется кислый раствор с рН, равный 3,19, и минерализацией 2664 мг/л, из которого осаждаются 0,24 г кальцита. Содержание элементов в нем (мг/л): Cu – 1,4, Zn – 73, As – 1,7, S – 619, Na – 7, K – 1,4, Mg – 141, Ca – 251, Al – 30. В растворе дополнительно отмечаются  $\text{H}_2\text{AsO}_4^-$ ,  $\text{H}_3\text{AsO}_4$  и  $\text{HSO}_4^-$  (рис. 2, барьер 3) и  $\text{Al}^{3+}$ , но исчезают частицы  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{SiO}_2$  и  $\text{HSiO}_3^-$ .

Результаты моделирования барьера «воды отстойника нового ХВ КОФ – речные воды» показали, что раствор имеет величину рН 1,41 и минерализацию 4305 мг/л. Концентрации элементов (мг/л): Cu – 0,08, Zn – 2,1, Pb – 1,4, As – 0,002, S – 1360, Na – 10,2, K – 5,4, Mg – 21, Ca – 135, Al – 4. Из раствора выпадает фиброферрит с массой 0,001 г. В растворе дополнительно появляется ион  $\text{PbHCO}_3^+$ , но исчезают  $\text{HAsO}_4^{2-}$  и  $\text{H}_3\text{AsO}_4$  (рис. 2, барьер 4).

Раствор на барьере «дренажные воды нового ХВ КОФ – речные воды» имеет рН 8,3 и минерализацию 239 мг/л. Содержание элементов в нем (мг/л): Cu – 0,004, Zn – 2,6, Pb – 0,002, As – 0,001, S – 34, Na – 9,5, K – 1,0, Mg – 15,6 Ca – 29 и Si – 1,7. В растворе формируется кальцит, масса которого 0,06 г. В нем установлены:  $\text{ZnHCO}_3^+$ ,  $\text{CaSO}_4$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  (рис. 2, барьер 5) и  $\text{Al}^{3+}$ .

Распределение элементов на барьерах ЦОФ – S>Zn>Cu>As, а КОФ – S>Zn>Pb>Cu>As.

*Геохимические барьеры зимнего периода.* При моделировании использовался химический состав техногенных и речных вод из таблицы (зима) и их средняя температура 3 °С.

Результаты моделирования барьера «дренажные воды нового ХВ ЦОФ – речные воды» показали, что раствор имеет величину рН 8,24 и минерализацию 437 мг/л. Концентрация элементов (мг/л): Cu – 0,06, Zn – 0,1, As – 0,01, S – 78, Na – 43, K – 13, Mg – 11, Ca – 58 и Si – 0,9. Из него выпадает кальцит массой 0,18 г. Элементы на барьере представлены:  $\text{CuHCO}_3^+$ ,  $\text{ZnHCO}_3^+$ ,  $\text{CaSO}_4$  (рис. 2, барьер 1),  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{SiO}_2$  и  $\text{HSiO}_3^-$ .

Раствор, полученный на барьере «шламовые воды нового ХВ ЦОФ – речные воды», имеет водородный показатель 8,2 и минерализацию 561 мг/л. Содержание элементов (мг/л): Cu – 0,32, Zn – 0,01, As – 0,01, S – 105, Na – 62, K – 40, Mg – 0,6, Ca – 74 и Si – 0,9. Из раствора кристаллизуется кальцит (0,24 г). К качественному составу раствора предыдущего барьера прибавляются ионы  $\text{HAsO}_4^{2-}$  и  $\text{SO}_4^{2-}$  (рис. 2, барьер 2).

При моделировании барьера «шламовые воды старого ХВ КОФ – речные воды» установлено фор-

мирование кислого раствора, рН которого 2,35, а минерализация 1317 мг/л. Содержание элементов (мг/л): Cu – 0,42, Zn – 28, Fe – 0,8, As – 0,3, S – 333, K – 1,1, Mg – 34, Ca – 141, Al – 12, Si – 0,7. В нем установлены все ионы и молекулы, отмеченные в предыдущих вариантах, а также  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{H}_2\text{AsO}_4^-$ ,  $\text{H}_3\text{AsO}_4$ ,  $\text{HSO}_4^-$  (рис. 2, барьер 3) и  $\text{Al}^{3+}$ , но исчезает  $\text{HAsO}_4^{2-}$ . Из раствора кристаллизуется минерал фиброферрит массой 3,1 г.

Раствор на барьере «дренажные воды нового ХВ КОФ – речные воды» имеет параметр рН 8,63 и минерализацию 266 мг/л. Из него кристаллизуется кальцит, масса которого 0,33 г. Содержание элементов (мг/л): Cu – 0,006, Zn – 0,02, S – 14,2, Na – 9,7, K – 1,1, Mg – 34, Ca – 8,5 и Si – 0,8. В моделируемом растворе отмечаются:  $\text{ZnHCO}_3^+$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{CaSO}_4$  (рис. 2, барьер 5).

Распределение элементов на барьерах ЦОФ – S>Cu>Zn>As, а КОФ – S>Zn>Fe>Cu>As.

Таким образом, содержание ионов и молекул элементов вмещающих пород во всех рассмотренных вариантах с соотношением техногенные – природные воды 1:1 изменяется (мг/л):  $\text{Ca}^{2+}$  от 5 до 1460,  $\text{Mg}^{2+}$  – 2,5–304,  $\text{K}^+$  – 0,3–338,  $\text{Na}^+$  – 4–141,  $\text{Al}^{3+}$  – 1,7–30,  $\text{SiO}_2$  – 1,4–4,  $\text{HSiO}_3^-$  – 0,07–0,3, причем максимальная концентрация отмечается на барьере речных и шламовых вод старого ХВ КОФ.

В летний и осенний сезоны при смешении техногенных и речных вод наибольшее отрицательное влияние р. Рудной наносят шламовые воды старого хвостохранилища КОФ (Cu, Zn, As, Mn, Mg и Ca) и воды из отстойника нового КОФ (Pb и S). При их смешении с речными водами параметр рН достигает 1,22–1,41, а минерализация – 4305–6604 мг/л, соответственно. В зимний сезон максимальное отрицательное влияние происходит при смешении шламовых вод старого хвостохранилища КОФ с водами р. Рудной. В это время параметр рН достигает 2,35, а минерализация – 1317 мг/л.

Распределение содержания элементов сульфидных руд на геохимических барьерах летом и осенью имеет вид S>Zn>Cu>As>Pb (ЦОФ) и S>Zn>Pb>Cu>As (КОФ), а зимой – S>Cu>Zn>As и S>Zn>Fe>Cu>As (ЦОФ и КОФ, соответственно).

Далее для геохимических барьеров моделировалось разбавление техногенных вод речными в 10, 100 и 1000 раз. Результаты моделирования показали, что у формирующихся растворов водородный показатель изменяется с щелочных (ЦОФ) и кислых (КОФ) к близнейтральным значениям. Снижается концентрация элементов в растворе и их минерализация, но общее содержание элементов в растворах далеко от фоновых значений.

В моделируемых растворах барьеров для ЦОФ даже при разбавлении в 1000 раз установлены превышения основных элементов сульфидных руд по сравнению с их фоновыми концентрациями (раз): Cu – от 2 до 30, Pb – 6–20, Zn – 2–180, As – 2–17. При этом основными растворенными частицами являются (мг/л):  $\text{CuHCO}_3^+$  – до 0,008,  $\text{ZnHCO}_3^+$  – 0,014,  $\text{HAsO}_4^-$  – 0,004,  $\text{SO}_4^{2-}$  – 32,7. При максимальном разбавлении в 1000 раз в моделируемых растворах барьеров для КОФ установлены следующие превышения элемен-

тов по сравнению с фоновыми значениями (раз): Cu – от 3 до 138, Pb – 8–140, Zn – 25–168, As – 3–3167. Основные частицы в них (мг/л):  $\text{CuHCO}_3^+$  от 0,01 до 0,25,  $\text{ZnHCO}_3^+$  – 0,01–13,0,  $\text{PbHCO}_3^+$  – 0,01,  $\text{HAsO}_4^-$  – 0,29,  $\text{H}_3\text{AsO}_4$  – 0,04,  $\text{SO}_4^{2-}$  – 6,4–394,0.

Следовательно, для достижения фоновых значений концентраций загрязняющих веществ разбавление техногенных вод речными должно происходить более чем в 1000 раз.

#### Заключение

При смешении техногенных и речных вод в летний и осенний периоды наибольший вред р. Рудной наносится шламовыми водами старого хвостохранилища КОФ (Cu, Zn, As, S, Mg и Ca) и водами из отстойника нового КОФ (Pb и S). При смешении двух последних с речными водами параметр pH достигает 1,22–1,41, а минерализация – 4305–6604 мг/л, соответственно. В зимний сезон негативное воздействие оказывает смешение шламовых вод старого хвостохранилища КОФ с р. Рудной. В это время водородный показатель растворов достигает 2,35, а минерализация – 1317 мг/л.

Распределение содержания элементов сульфидных руд на геохимических барьерах в большинстве моде-

лируемых растворов в летний и осенний период можно представить в виде рядов  $\text{S} > \text{Zn} > \text{Cu} > \text{As} > \text{Pb}$  (ЦОФ) и  $\text{S} > \text{Zn} > \text{Pb} > \text{Cu} > \text{As}$  (КОФ), а в зимний –  $\text{S} > \text{Cu} > \text{Zn} > \text{As}$  и  $\text{S} > \text{Zn} > \text{Cu} > \text{As}$  (ЦОФ и КОФ, соответственно).

Из моделируемых растворов выпадают кальцит или фиброферрит, причем последний установлен летом на геохимическом барьере со шламовыми водами старого хвостохранилища КОФ и осенью с водами отстойника нового хвостохранилища КОФ, а при разбавлении техногенных вод речными картина минералообразования аналогична.

Установлено, что для достижения естественных фоновых значений разбавление техногенных вод речными должно происходить более чем в 1000 раз, что в природе далеко не всегда возможно.

Таким образом, как многолетние результаты, полученные ранее разными авторами при изучении состава гидрохимических проб, так и данные, представленные в статье, свидетельствуют о существенном негативном воздействии техногенных стоков объектов горнопромышленной техногенной системы Дальнегорского рудного района на экологическое состояние природных вод р. Рудной.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Булавко Н.В. Минералогия скарновых месторождений Дальнегорского рудного поля (Приморье). – Владивосток: Дальневосточное книжное издательство, 2000. – 219 с.
- Тарасенко И.А., Зиньков А.В. Экологические последствия минерало-геохимических преобразований хвостов обогащения Sn-Ag-Pb-Zn руд. – Владивосток: Дальнаука, 2001. – 184 с.
- Грехнев Н.И. Минеральные отходы горных предприятий – экономические и экологические проблемы недропользования в Дальневосточном регионе // Горный информационно-аналитический бюллетень (научно-технический журнал). – 2014. – Т. 7. – С. 337–343.
- Юркевич Н.В., Бортникова С.Б., Саева О.П. Направления подземного и поверхностного стоков с хвостохранилищ горнорудного производства по данным геофизических и геохимических исследований // Интерэкспо Гео-Сибирь. – Новосибирск, 2015. – Т. 2. – С. 305–310.
- Влияние разработки Сибайского месторождения (Южный Урал) на трансформацию потока металлов в подчиненных ландшафтах / А.Ю. Опекунов, М.Г. Опекунова, В.В. Сомов, Е.С. Митрофанова, С.Ю. Кукушкин // Вестник Московского университета. Серия 5. География. – 2018. – № 1. – С. 14–24.
- Ashley P.M., Lottermoser B.G. Arsenic contamination at the mole river mine, northern New South Wales // Australian Journal of Earth Sciences. – 1999. – V. 46. – № 6. – P. 861–874.
- Nordstrom D.K., Alpers C.N. Geochemistry of acid mine waters // The environmental geochemistry of mineral deposits. – Littleton: Society of Economic Geologists, 1999. – P. 133–160.
- Release, transport and attenuation of metals from an old tailings impoundment / M.C. Moncur, C.J. Ptacek, D.W. Blowes, J.L. Jambor // Applied geochemistry. – 2005. – V. 20. – № 3. – P. 639–659.
- Geochemical and mineralogical aspects of sulfide mine tailings / M.B. Lindsay, M.C. Moncur, J.G. Bain, J.L. Jambor, C.J. Ptacek, D.W. Blowes // Applied geochemistry. – 2015. – V. 57. – P. 157–177.
- Nordstrom D.K., Blowes D.W., Ptacek C.J. Hydrogeochemistry and microbiology of mine drainage: an update // Applied Geochemistry. – 2015. – V. 57. – P. 3–16.
- Spatial distribution and environmental implications of heavy metals in typical lead (Pb)-zinc (Zn) mine tailings impoundments in Guangdong Province, South China / T. Chen, C. Lei, B. Yan, L. Li, D.M. Xu, G.G. Ying // Environmental Science and Pollution Research. – 2018. – V. 25. – № 36. – P. 36702–36711.
- Sharma M.K., Kumar M. Sulphate contamination in groundwater and its remediation: an overview // Environmental Monitoring and Assessment. – 2020. – V. 192. – № 2. – P. 1–10.
- Kacmaz H. Assessment of heavy metal contamination in natural waters of Dereli, Giresun: an area containing mineral deposits in northeastern Turkey // Environmental monitoring and assessment. – 2020. – V. 192. – № 2. – P. 1–12.
- Seasonal variability of extremely metal rich acid mine drainages from the Tharsis mines (SW Spain) / R.M. González, C.R. Cánovas, M. Ollas, F. Macías // Environmental Pollution. – 2020. – V. 259. – P. 113829.
- Seasonal fluctuations and geochemical modeling of acid mine drainage in the semi-arid Puna region: the Pan de Azúcar Pb–Ag–Zn mine, Argentina / J. Murray, D.K. Nordstrom, B. Dold, A. Kirschsbaum // Journal of South American Earth Sciences. – 2021. – V. 109. – P. 103197.
- Зверева В.П., Крупская Л.Т. Техногенные воды Комсомольского, Кавалеровского и Дальнегорского горнорудных районов Дальнего Востока и их воздействие на гидросферу // Экологическая химия. – 2012. – Т. 21. – № 3. – С. 144–153.
- Zvereva V.P., Krupskaya L.T., Salyukova E.N. Estimation of effect of technogenic discharges on hydrosphere in Dalnegorsk district of the Far East // Applied Mechanics and Materials. – 2013. – V. 260-261. – P. 825–832.
- Влияние горнорудной деятельности на изменение химического состава компонентов водных экосистем / В.М. Шулькин, Е.Н. Чернова, Н.К. Христофорова, С.И. Коженкова // Геоэкология. Инженерная геология, гидрогеология, геокриология. – 2014. – Т. 6. – С. 483–494.
- Зверева В.П. Оценка воздействия техногенных вод Кавалеровского и Дальнегорского горнорудных районов на гидросферу Приморского края // Экологическая химия. – 2019. – Т. 28. – № 4. – С. 199–210.
- Human risk assessment for heavy metals and as contamination in the abandoned metal mine areas, Korea / S.W. Lee, B.T. Lee, J.Y. Kim, K.W. Kim, J.S. Lee // Environmental monitoring and assessment. – 2006. – V. 119. – № 1. – P. 233–244.
- Spatial distribution and environmental implications of heavy metals in typical lead (Pb)-zinc (Zn) mine tailings impoundments in Guangdong Province, South China / T. Chen, C. Lei, B. Yan, L. Li, D.M. Xu, G.G. Ying // Environmental Science and Pollution Research. – 2018. – V. 25. – № 36. – P. 36702–36711.
- Растанина Н.К., Крупская Л.Т., Голубев Д.А. Роль техногенных факторов в изучении состояния среды обитания и здоро-

- вья населения в горнячком поселке // Медико-фармацевтический журнал «Пульс». – 2018. – Т. 20. – № 10. – С. 35–59.
23. Frolov K.R., Lysenko A.I., Pyatakov A.D. A study of the qualitative chemical composition of technogenic waters in the tailing dumps of the Russian Southern Far East in a wide temperature range using the physicochemical modeling method // IOP Conference Series: Earth and Environmental Science. – 2019. – V. 272. – № 2. – P. 022124.
24. Health risk assessment associated with abandoned copper and uranium mine tailings / G. Pehoiu, C. Radulescu, O. Murarescu, I.D. Dulama, I.A. Bucurica, S. Teodorescu, R.M. Stirbescu // Bulletin of environmental contamination and toxicology. – 2019. – V. 102. – № 4. – P. 504–510.
25. Frolov K.R., Artemova M.I., Ponomarev O.A. Risk assessment on human health: the case of Primorsky Krai abandoned sulfide-rich tailings dump // IOP Conference Series: Earth and Environmental Science. – 2021. – V. 666 – № 3. – P. 032017.
26. Перельман А.И. Геохимия ландшафта. – М.: Высшая школа, 1975. – 341 с.
27. Karpov I.K. Minimization of Gibbs free energy in geochemical systems by convex programming / I.K. Karpov, K.V. Chudnenko, V.A. Bychinskii, D.A. Kulik, O.V. Avchenko // Geochem. Int. – 2001. – V. 39. – P. 1108–1119.
28. Johnson J., Oelkers E., Helgeson H. SUPCRT92: a software package for calculating the standard molal thermodynamic properties of minerals, gases, aqueous species, and reactions from 1 to 5000 bar and 0–1000 °C // Comput. Geosci. – 1992. – V. 18. – P. 899–947
29. SUPCRTBL // Indiana University Bloomington. URL: <https://models.earth.indiana.edu/supcrtbl.php> (дата обращения 07.10.2022).
30. Чарыкова М.В., Кривовичев В.Г., Деммайер В. Термодинамика арсенатов, селенитов и сульфатов в зоне окисления сульфидных руд. 1. Термодинамические константы при стандартных условиях // Записки Российского минералогического общества. – 2009. – Т. 138. – № 6. – С. 105–117.
31. Frolov K.R. Assessment of the Rudnaya River geochemical barriers water composition using physico-chemical modeling method (Dalnegorsk Ore District, Russia) // International Conference on Sustainable Development of Water and Environment. – Cham: Springer, 2020. – P. 177–189.
32. Horne R.A. Marine Chemistry. – New York: Wiley–Interscience, 1969. – 568 p.

Поступила 25.05.2022 г.

Прошла рецензирование 21.09.2022 г.

#### Информация об авторах

**Зверева В.П.**, доктор геолого-минералогических наук, главный научный сотрудник лаборатории геохимии гипергенных процессов Дальневосточного геологического института ДВО РАН.

**Фролов К.Р.**, кандидат химических наук, доцент департамента нефтегазового дела и нефтехимии Политехнического института, доцент департамента ядерных технологий Института наукоемких технологий и передовых материалов Дальневосточного федерального университета.

**Лысенко А.И.**, кандидат химических наук, научный сотрудник лаборатории геохимии гипергенных процессов Дальневосточного геологического института ДВО РАН.

UDC 504.4.054: 622:553.45 (571.62):004.94

**IMPACT OF TECHNOGENIC WATERS ON THE RUDNAYA RIVER OF THE RUSSIAN FAR EAST****Valentina P. Zvereva**<sup>1</sup>,  
zvereva@fegi.ru**Konstantin R. Frolov**<sup>2</sup>,  
konstantin.fk@gmail.com**Anastasiya I. Lysenko**<sup>1</sup>,  
lion8888@inbox.ru<sup>1</sup> Far East Geological Institute,  
159, Prospekt 100-letiya Vladivostoka, Vladivostok, 690022, Russia.<sup>2</sup> Far Eastern Federal University,  
10, Ajax Bay, Russky Island, Vladivostok, 690922, Russia.

**The relevance** of the research is in significant negative impact of technogenic waters of tin-sulfide and tin-polymetallic tailings of the Dalnegorsk ore district of the Russian Far East on natural water bodies, as well as in importance of studying their mixing on geochemical barriers «technogenic – natural surface waters».

**The main aim** of the research is to consider processes of mixing of sludge and drainage waters of tailings dumps with natural waters of the Rudnaya River, occurring on geochemical barriers «technogenic – surface natural waters».

**Objects:** technogenic waters – drainage and sludge waters of the tin-polymetallic tailings pond of the Central Concentrating Mill, as well as drainage, slurry, and tailings waters of the tin-sulfide tailings pond of the Krasnorechensk Concentrating Mill, Dalnegorsk ore district; natural surface waters of the Rudnaya River; «technogenic – natural surface waters» geochemical barriers.

**Methods:** environmental monitoring – sampling and analysis of hydrochemical samples by inductively coupled plasma mass spectrometry and atomic emission spectrometry; computer physical and chemical (thermodynamic) simulation in «Selektor-Windows» software complex; simulation of processes flowing on geochemical barriers «technogenic – natural surface waters» – formation of computer multi reservoir models by type of flow reactor; consideration of aqueous solutions formation on geochemical barriers was carried out at dilution of technogenic waters with natural waters in the ratio 1:1, 1:10, 1:100, 1:1000 to establish quantitative (elements of sulfide ores and host rocks) and qualitative (their ions and molecules) composition of water solutions and crystallization of technogenic minerals from them.

**Results.** According to the results of environmental monitoring, the chemical composition of anthropogenic and natural waters of the Dalnegorsk ore district was established seasonally. The processes of water solutions formation in summer, autumn and winter on different geochemical barriers «anthropogenic – natural waters» in accordance with the adopted ratios were simulated in «Selektor-Windows» software package. Based on the analysis of the obtained results, the article presents quantitative and qualitative composition of seasonally formed solutions, shows minerals crystallizing from them and distribution of sulfide ore elements on geochemical barriers, which confirms the negative impact of tailing dumps technogenic waters on the Rudnaya River.

**Key words:**

Mining technogenic systems, tailings dumps slurry waters, tailings dumps drainage waters, technogenic minerals, geochemical barriers, physico-chemical modelling, Dalnegorsk ore district, Rudnaya River.

**REFERENCES**

1. Bulavko N.V. *Mineralogiya skarnovykh mestorozhdeniy Dalnegorskogo rudnogo polya (Primorye)* [Mineralogy of skarn deposits of the Dalnegorsk ore field (Primorye)]. Vladivostok, Dalnevostochnoe knizhnoe izdatelstvo, 2000. 219 p.
2. Tarasenko I.A., Zinkov A.V. *Ekologicheskie posledstviya mineralogo-geokhimicheskikh preobrazovaniy khvostov obogashcheniya Sn-Ag-Pb-Zn rud* [Environmental consequences of mineralogical and geochemical transformations of Sn-Ag-Pb-Zn ore concentration tailings]. Vladivostok, Dalnauka Publ., 2001. 184 p.
3. Grekhnev N.I. Mineralnye othody gornyykh predpriyatiy-ekonomicheskies i ekologicheskies problemy nedropolzovaniya v Dalnevostochnom regione [Mineral wastes from mining enterprises-economic and environmental problems of subsoil use in the Far Eastern region]. *Gornyy informatsionno-analiticheskiy byulleten (nauchno-tekhnicheskii zhurnal)*, 2014, vol. 7, pp. 337–343.
4. Yurkevich N.V., Bortnikova S.B., Saeva O.P. Napravleniya podzemnogo i poverkhnostnogo stokov s khvostokhranilishch gornorudnogo proizvodstva po dannym geofizicheskikh i geokhimicheskikh issledovaniy [Directions of underground and surface runoff from mining tailings according to geophysical and geochemical studies]. *Interekspos Geo-Sibir* [International Expo Geo-Siberia]. Novosibirsk, 2015. Vol. 2, pp. 305–310.
5. Opekunov A.Yu., Opekunova M.G., Somov V.V., Mitrofanova E.S., Kukushkin S.Yu. Vliyaniye razrabotki Sibayskogo mestorozhdeniya (Yuzhny Ural) na transformatsiyu potoka metallov v podchinennykh landshaftakh [Influence of Sibayskoe deposit development (Southern Urals) on transformation of metal flow in subordinate landscapes]. *Vestnik Moskovskogo universiteta. Seriya 5. Geografiya*, 2018, no. 1, pp. 14–24.
6. Ashley P.M., Lottermoser B.G. Arsenic contamination at the mole river mine, northern New South Wales. *Australian Journal of Earth Sciences*, 1999, vol. 46, no. 6, pp. 861–874.
7. Nordstrom D.K., Alpers C.N. Geochemistry of acid mine waters. *The environmental geochemistry of mineral deposits*. Littleton, Society of Economic Geologists, 1999. pp. 133–160.
8. Moncur M.C., Ptacek C.J., Blowes D.W., Jambor J.L. Release, transport and attenuation of metals from an old tailings impoundment. *Applied geochemistry*, 2005, vol. 20, no. 3, pp. 639–659.
9. Lindsay M.B., Moncur M.C., Bain J.G., Jambor J.L., Ptacek C.J., Blowes D.W. Geochemical and mineralogical aspects of sulfide mine tailings. *Applied geochemistry*, 2015, vol. 57, pp. 157–177.
10. Nordstrom D.K., Blowes D.W., Ptacek C.J. Hydrogeochemistry and microbiology of mine drainage: an update. *Applied Geochemistry*, 2015, vol. 57, pp. 3–16.
11. Chen T., Lei C., Yan B., Li L.L., Xu D.M., Ying G.G. Spatial distribution and environmental implications of heavy metals in typical lead (Pb)-zinc (Zn) mine tailings impoundments in Guangdong Province, South China. *Environmental Science and Pollution Research*, 2018, vol. 25, no. 36, pp. 36702–36711.



12. Sharma M.K., Kumar M. Sulphate contamination in groundwater and its remediation: an overview. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2020, vol. 192, no. 2, pp. 1–10.
13. Kacmaz H. Assessment of heavy metal contamination in natural waters of Dereli, Giresun: an area containing mineral deposits in northeastern Turkey. *Environmental monitoring and assessment*, 2020, vol. 192, no. 2, pp. 1–12.
14. González R.M. Seasonal variability of extremely metal rich acid mine drainages from the Tharsis mines (SW Spain). *Environmental Pollution*, 2020, vol. 259, pp. 113829.
15. Murray J., Nordstrom D.K., Dold B., Kirschbaum A. Seasonal fluctuations and geochemical modeling of acid mine drainage in the semi-arid Puna region: the Pan de Azúcar Pb–Ag–Zn mine, Argentina. *Journal of South American Earth Sciences*, 2021, vol. 109, pp. 103197.
16. Zvereva V.P., Krupskaya L.T. Anthropogenic waters in the Komсомolsk, Kavalerovskii, and Dalnegorsk mining areas of the Far East and their impact on the hydrosphere. *Russian Journal of General Chemistry*, 2012, vol. 82, no. 13, pp. 2244–2252.
17. Zvereva V.P., Krupskaya L.T., Salyukova E.N. Estimation of effect of technogenic discharges on hydrosphere in Dalnegorsk District of the Far East. *Applied Mechanics and Materials*, 2013, vol. 260–261, pp. 825–832.
18. Shulkin V.M., Chernova E.N., Khristoforova N.K., Kozhenkova S.I. Vliyaniye gornorudnoy deyatelnosti na izmeneniye khimicheskogo sostava komponentov vodnykh ekosistem [Impact of mining activities on changes in the chemical composition of components of aquatic ecosystems]. *Geoecology. Engineering Geology, Hydrogeology, Geocryology*, 2014, vol. 6, pp. 483–494.
19. Zvereva V.P. Impact of technogenic wastewaters of Kavalerovskii and Dalnegorskii mining districts on the hydrosphere of Primorsky Krai. *Russian Journal of General Chemistry*, 2019, vol. 89, no. 13, pp. 2808–2817.
20. Lee S.W., Lee B.T., Kim J.Y., Kim K.W., Lee J.S. Human risk assessment for heavy metals and as contamination in the abandoned metal mine areas, Korea. *Environmental monitoring and assessment*, 2006, vol. 119, no. 1, pp. 233–244.
21. Chen T., Lei C., Yan B., Li L., Xu D.M., Ying G.G. Spatial distribution and environmental implications of heavy metals in typical lead (Pb)-zinc (Zn) mine tailings impoundments in Guangdong Province, South China. *Environmental Science and Pollution Research*, 2018, vol. 25, no. 36, pp. 36702–36711.
22. Rastanina N.K., Krupskaya L.T., Golubev D.A. Rol tekhnogenykh faktorov v izuchenii sostoyaniya sredy obitaniya i zdorovya naseleniya v gornyackom poselke [The role of anthropogenic factors in the study of the environment and population health in the mining village]. *Mediko-farmatsevticheskiy zhurnal «Puls»*, 2018, vol. 20, no. 10, pp. 35–59.
23. Frolov K.R., Lysenko A.I., Pyatakov A.D. A Study of the qualitative chemical composition of technogenic waters in the tailing dumps of the Russian Southern Far East in a wide temperature range using the physicochemical modeling method. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 2019, vol. 272, no. 2, pp. 022124.
24. Pehoiu G., Radulescu C., Murarescu O., Dulama I.D., Bucurica I.A., Teodorescu S., Stirbescu R.M. Health risk assessment associated with abandoned copper and uranium mine tailings. *Bulletin of environmental contamination and toxicology*, 2019, vol. 102, no. 4, pp. 504–510.
25. Frolov K.R., Artemova M.I., Ponomarev O.A. Risk assessment on human health: the case of Primorsky Krai abandoned sulfide-rich tailings dump. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 2021, vol. 666, no. 3, pp. 032017.
26. Perelman A.I. *Geochemistry of Epigenesis*. New York, Springer, 1967. 284 p.
27. Karpov I.K., Chudnenko K.V., Bychinskii V.A., Kulik D.A., Avchenko O.V. Minimization of Gibbs free energy in geochemical systems by convex programming, *Geochem. Int.*, 2001, vol. 39, pp. 1108–1119.
28. Johnson J., Oelkers E., Helgeson H. SUPCRT92: a software package for calculating the standard molal thermodynamic properties of minerals, gases, aqueous species, and reactions from 1 to 5000 bar and 0–1000 °C. *Comput. Geosci.*, 1992, vol. 18, pp. 899–947.
29. Shock E. *SUPCRT 1992–1998 Database*. Available at: <http://geopig.asu.edu/sites/default/files/slop98.dat> (accessed at 12 August 2012).
30. Charykova M.V., Krivovichev V. G., Depmeir W. Thermodynamics of arsenates, selenites, and sulfates in the oxidation zone of sulfide ores: I. Thermodynamic constants at ambient conditions. *Geology of Ore Deposits*, 2010, vol. 52, pp. 689–700.
31. Frolov K.R. Assessment of the Rudnaya River geochemical barriers water composition using physico-chemical modeling method (Dalnegorsk Ore District, Russia). *International Conference on Sustainable Development of Water and Environment*. Cham, Springer, 2020. pp. 177–189.
32. Horne R.A. *Marine chemistry*. New York, Wiley–Interscience, 1969. 568 p.

Received: 25 May 2022.

Reviewed: 21 September 2022.

#### Information about the authors

**Valentina P. Zvereva**, Dr. Sc., leading researcher, Far East Geological Institute.

**Konstantin R. Frolov**, Cand. Sc., associate professor, Far Eastern Federal University.

**Anastasiya I. Lysenko**, Cand. Sc., researcher, Far East Geological Institute.

УДК 622.276

## РАЗРАБОТКА ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНЫХ АЛГОРИТМОВ УПРАВЛЕНИЯ ПЕРИФЕРИЙНЫМ ТЕХНОЛОГИЧЕСКИМ ОБОРУДОВАНИЕМ КУСТА СКВАЖИН С ПОМОЩЬЮ ЕДИНОЙ СТАНЦИИ УПРАВЛЕНИЯ

Илюшин Павел Юрьевич<sup>1</sup>,  
ilushin-pavel@yandex.ru

Вяткин Кирилл Андреевич<sup>1</sup>,  
kirill.vyatkin@girngm.ru

Козлов Антон Вадимович<sup>1</sup>,  
anton.kozlov@girngm.ru

<sup>1</sup> Пермский национальный исследовательский политехнический университет,  
Россия, 614990, г. Пермь, Комсомольский пр., 29.

**Актуальность** исследования заключается в необходимости повышения энергоэффективности добычи нефти на месторождениях, находящихся на поздних стадиях работы. Сущность работы заключается в интеграции периферийного нефтепромыслового оборудования, в том числе замерных установок, устройств по борьбе с отложениями, в единую со скважинами систему – интеллектуальную станцию управления. В настоящее время динамика работы скважин не влияет на параметры работы данных установок. При их интеграции в систему и написании соответствующих алгоритмов возможно увеличение энергоэффективности добычи нефти, снижение затрат на обслуживание скважин и, в перспективе, интеллектуализацию их работы.

**Цель:** определить алгоритмы регулирования периферийного оборудования, работу которого можно оптимизировать на основе динамики изменения параметров работы нефтедобывающей скважины.

**Методы:** гидравлическое моделирование работы куста скважин, численное определение напорной характеристики скважины, обзор научных источников и анализ параметров борьбы с органическими отложениями.

**Результаты.** Приведены сценарии оптимизации работы нефтедобывающих скважин при интеграции в интеллектуальную станцию управления периферийных устройств. Так, интеграция устьевого блока подачи реагента, устройства очистки лифтовой колонны или станции управления греющего кабеля, при идентификации образования парафиновых отложений, может изменить режим работы, что позволит оптимизировать процессы борьбы с отложениями и увеличить межочистный период скважины. Расчет изменения устьевых давлений при значительном кратковременном изменении дебита одной или нескольких скважин позволит изменить диаметр штуцера на скважине, что сохранит точку пересечения напорной характеристики скважины и характеристики электроцентробежного насоса. Согласно технологическому расчёту, это позволит избежать нестабильной работы насоса и сохранить оптимальное значение коэффициента полезного действия, падение которого может превышать 2 %. Третий алгоритм описывает способ снижения затрат инженерно-технического персонала на обслуживание скважин при получении некондиционных данных дебита. При их получении предлагается запуск алгоритма оценки дебита скважины по косвенным данным – технология «Виртуальный расходомер». По результатам проверки система автоматически запустит повторный замер или сообщит инженерно-техническому персоналу о нарушениях в работе глубинно-насосного оборудования.

**Выводы.** Полученные алгоритмы могут быть интегрированы в станцию управления. Это обеспечит оптимизацию работы глубинно-насосного оборудования, увеличение межочистного периода скважины, а также снизит затраты времени инженерно-технического персонала на обслуживание скважин. Все представленные алгоритмы способны увеличить энергоэффективности добычи нефти, что является важной задачей при разработке месторождений на поздних стадиях.

### Ключевые слова:

скважина, интеллектуальная станция управления, периферийное оборудование, энергоэффективность, эксплуатация скважин.

### Введение

Большинство нефтяных месторождений Российской Федерации, в частности Пермского края, и ближайшего зарубежья находятся на поздних стадиях разработки. [1]. Данный процесс, помимо снижения технологических показателей разработки месторождения, сопровождается увеличением интенсивности возникновения различных осложнений и увеличением затрат на эксплуатацию и обслуживание добывающих скважин [2–4]. Стоит отметить, что на территории Пермского края более 99 % скважин эксплуатируются механизированным способом, при этом 21 % скважин – электроцентробежными насосами (ЭЦН). Также широкое распространение получили штанговые

глубинные насосы (ШГН), электрические одновинтовые насосы (ЭОВН) и штанговые винтовые насосы (ШВН) (рис. 1).

На поздних стадиях разработки становятся наиболее актуальными вопросы повышения эффективности разработки месторождения, увеличения добычи нефти, повышения нефтеотдачи пластов. Не менее важной проблемой выступает оптимизация энергопотребления и увеличения эффективности работы глубинно-насосного оборудования (ГНО). Причина этого – высокая доля механизированной добычи в структуре энергопотребления – более 55 % [5]. Основными методами увеличения энергоэффективности ГНО являются: оптимизация и замена ГНО, внедрение новых

технологий или оборудования, внедрение систем управления и автоматизации процессов добычи нефти и борьба с осложняющими факторами [6–8].

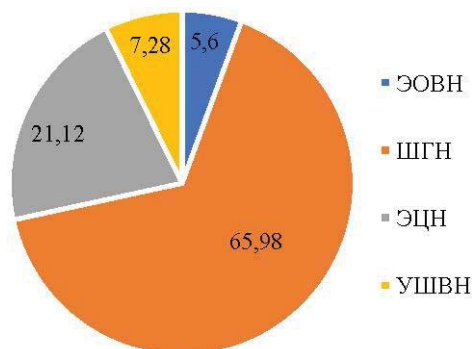


Рис. 1. Распределение добывающего фонда по способу эксплуатации

Fig. 1. Distribution of the mining fund by the method of operation

К осложнениям при добыче нефти относятся: образование асфальтосмолопарафиновых отложений (АСПО), образование высоковязких эмульсий, высокий газовый фактор, интенсивная коррозия нефтепромыслового оборудования, вынос механических примесей и другие. На рис. 2 представлен состав добывающего фонда Пермского края.

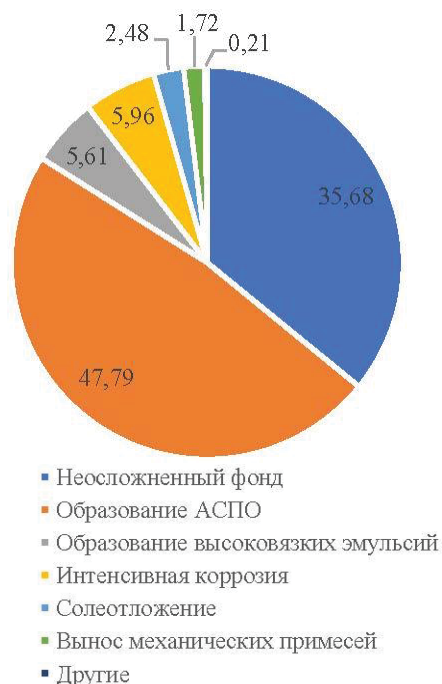


Рис. 2. Причины включения скважин в осложненный фонд добывающих скважин

Fig. 2. Reasons for including wells in the complicated fund of producing wells

Как видно из данного рисунка, наибольшая доля фонда добывающих скважин осложнена образованием АСПО. При этом стоит отметить, что добыча нефти на скважине может быть осложнена рядом факторов, например образованием АСПО и ВВЭ.

В этом случае на рис. 2 отображается лишь основное осложнение, определяемое как наиболее часто возникающее или для борьбы с которым выполняется больше регламентных работ. Данные органические отложения формируются на поверхности нефтепромыслового оборудования и стенки скважины, что приводит к снижению срока службы нефтепромыслового оборудования и гидравлического радиуса лифтовой колонны, росту давления и аварии [9–11]. Все методы борьбы с АСПО могут быть разделены на две группы: методы предупреждения образования и удаления сформированных отложений [12–14]. Наиболее распространенными методами предупреждения образования АСПО являются установка греющих кабелей и дозирование ингибитора в различных участках потока нефти [15]. Удаление же отложений выполняется скребкованием или проведением промывок горячими агентами (вода, нефть, пар) или углеводородными растворителями [16].

Большинство методов борьбы с осложнениями требует установки дополнительного оборудования на территории куста скважин [17, 18]. Для применения ингибиторов парафиноотложения применяются устьевые блоки подачи реагента (УБПР), позволяющие регулировать расход реагента по импульсной трубке. Для применения греющих кабелей также требуется установка станции управления. В современном нефтепромысле очистка скважин скребками выполняется устройствами очистки колонны (УОК), которые оснащены станцией управления, приводом лебедки и скребком. В лифтовую колонну через лубрикатор спущен скребок на лебедке, а его движение регулируется программой со станции управления. Так, на осложненных скважинах возможна установка ряда дополнительного оборудования, оснащенного станциями управления, регулирование работы которого выполняется вручную. Например, для изменения подачи реагента требуется регулировка хода плунжера насоса в УБПР, а для регулирования глубины и скорости прохождения требуемых интервалов УОК необходимо занесение этих данных в станции управления.

Зачастую нефтедобывающие скважины располагаются не отдельно, а группами – кустами. Однако в данном случае возникает две важные проблемы при их эксплуатации. Во-первых, замер количества добываемой жидкости, являющийся важнейшим параметром для мониторинга разработки месторождения, выполняется одной автоматической групповой замерной установкой (АГЗУ). Ввиду того, что замеры выполняются интервально, возможно получение некондиционных данных, после чего инженерно-технический персонал месторождения в ручном или автоматическом режиме изменяет порядок оценки дебита жидкости для повторения некондиционного замера. При большом фонде скважин проведение анализа и изменение порядка замеров дебитов скважин может занимать значительное количество времени. Во-вторых, в данном случае скважины могут значительно влиять друг на друга как напрямую, так и косвенно. Данное явление называется интерференцией. При эксплуатации одной скважины сам процесс притока жидкости



из пласта способен оказать влияние на различные параметры эксплуатируемого объекта и работы соседней скважины [19]. В процессе эксплуатации и регулирования работы скважины параметры системы «пласт–скважина» постоянно изменяются, вследствие чего параметры работы системы нефтесбора также могут изменяться. Также немаловажным является взаимодействие между скважинами при их введении и выведении из эксплуатации [20].

При регулировании работы одной скважины, например, для максимизации добычи, это может привести к снижению суммарной добычи нефти из интерферирующих между собой скважин. Следовательно, требуется постоянная регулировка параметров работы скважины в зависимости от внешних обстоятельств с учетом возможных последствий. Основными способами являются изменения параметров работы скважины без проведения ремонта, установка штуцера или частотное регулирование. [21, 22]. Последний метод является наиболее энерго- и ресурсоэффективным [23].

В настоящее время ведется активная разработка интеллектуальных станций управления (ИСУ) приводами скважин [24]. Их основной отличительной особенностью является оптимизация режима работы добывающей скважины и снижение удельного энергопотребления [25]. Станция управления должна обеспечивать длительную безаварийную работу нефтедобывающего оборудования, его эксплуатация должна производиться в «щадящем» режиме с минимальным износом ГНО [26]. Поддержание работы ЭЦН зависит от корректно установленных уставок, заложенных в станцию управления алгоритмов, и адекватной реакции на внешние воздействия [27]. В условиях регулирования работы штангового насоса требуется построение ваттметрограмм, динамограмм, автоматизированная оценка необходимости балансировки станка-качалки, обеспечение подбора закона перемещения колонны для минимальной нагрузки на штанги, определенного уровня заполнения насоса, минимального удельного расхода электричества и т. д. [28–30].

В рамках существующего тренда на цифровизацию нефтяного промысла требуется внедрение искусственного интеллекта в управление фондом скважин [31, 32]. Внедрение искусственного интеллекта предполагает увеличение энергоэффективности добычи за счет постоянной оптимизации процесса, что особенно актуально для месторождений на поздней стадии разработки. Один из существующих подходов к оптимизации процесса добычи нефти – это управление работой единой системы – куста скважин [33]. В рамках данного подхода выполняется разработка интеллектуальных станций управления, перечень функций которых охватывает: регулирование работы каждой скважины, беспрерывную оптимизацию, аналитику параметров работы скважин и своевременное выявление отклонений и т. д. В научной литературе описаны концепции интеллектуального подхода к построению автоматизированных станций управления ЭЦН. В рамках данных концепций предлагается композиция станций управления на постоянную и пе-

ременную часть, использование статической и динамической информации, интеграция системы принятия решений на основе синтеза технологий прецедентов и нейросетей [34]. В результате предлагаемая автоматизированная станция управления позволит увеличить продолжительность работы ГНО на 10 % и повысить дебит куста скважин [35].

Приведенные исследования по созданию автоматизированных систем управления приводами нефтяных скважин охватывают алгоритмы оптимизации и управления глубинным оборудованием, однако упускают наличие множества технологического оборудования у устья скважины и необходимость регулирования системы сбора с куста скважин. В рамках данной работы предлагаются алгоритмы управления кустом скважин, эксплуатируемых ЭЦН, в частности периферийным оборудованием. Предлагаемые алгоритмы позволят наиболее эффективно эксплуатировать скважины, снизить долю ручного управления, а также повысить энергоэффективность добычи нефти.

#### **Интеллектуальное управление оборудованием для борьбы с образованием асфальтосмолопарафиновых отложений**

Как уже было сказано, образование АСПО является одной из наиболее распространенных проблем при добыче нефти на множестве месторождений. Станции управления дополнительного оборудования для борьбы с данными отложениями могут выполняться интегрированными с ИСУ. Идентификация образования АСПО в нефтяных скважинах выполняется различными способами в зависимости от способа эксплуатации скважины. При добыче нефти ЭЦН основными способом идентификации является анализ параметров работы глубинно-насосного оборудования (нагрузка на двигатель, давление), а также падение дебита скважин из-за изменения характеристики скважины. Так, при анализе параметров работы нефтедобывающей скважины их изменение во времени может быть заранее отмечено и предотвращено отключение скважины по причине перегруза. Далее представлены предлагаемые алгоритмы регулирования работы оборудования по борьбе с образованием АСПО.

При использовании химических реагентов, например ингибиторов АСПО, скорость образования отложений значительно сокращается. Однако в процессе эксплуатации скорость образования отложений и состав добываемого флюида может изменяться. При достаточном снижении пластового давления возможно выделение из нефти попутного нефтяного газа и значительная интенсификация образования отложений. При постоянном мониторинге параметров работы скважины возможна идентификация наличия тренда на увеличение нагрузки на двигатель при изменении устьевого давления и дебита скважины и увеличение подачи химического реагента или автоматическое дозирование на прием насоса углеводородного растворителя. При оборудовании скважины греющими кабелями обнаружение указанного ранее тренда, свидетельствующего об образовании АСПО, будет причиной для увеличения температуры нагрева. А при обо-



рудовании скважины УОК возможно увеличение частоты хода скребка или изменение интервала очистки лифта скважины. Предлагаемый алгоритм работы приведен на рис. 3.

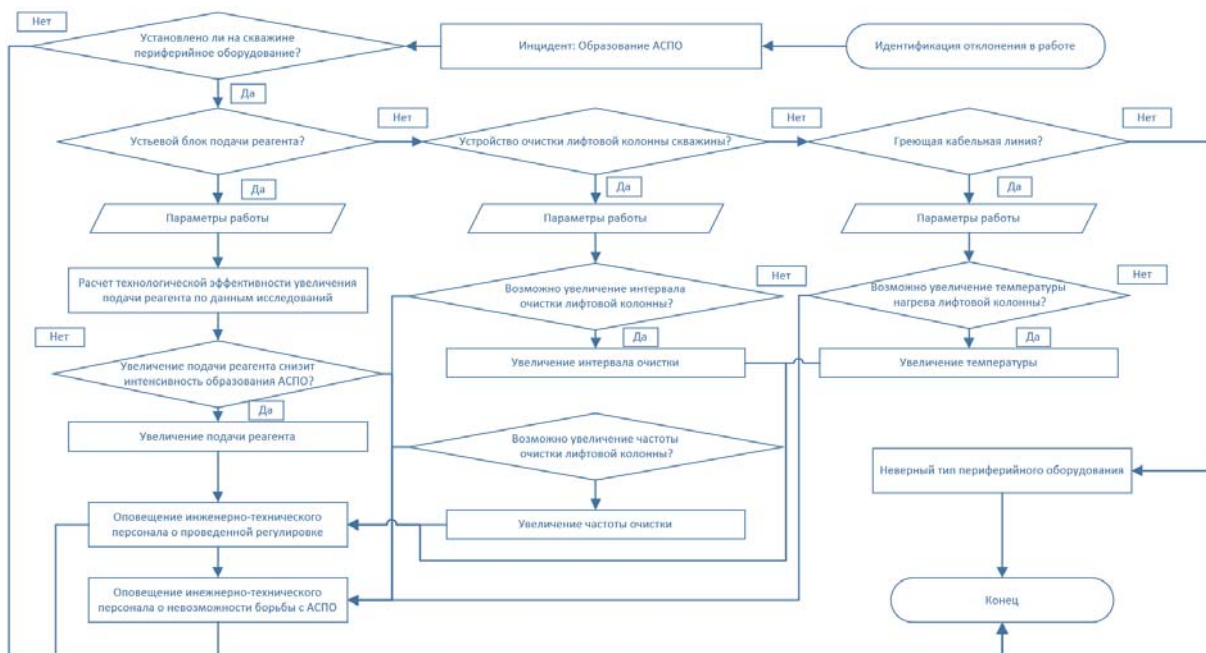


Рис. 3. Алгоритм регулирования работы оборудования для борьбы с образованием органических отложений  
 Fig. 3. Algorithm for regulating the operation of wax deposit formation control equipment

При наличии достаточного объема данных возможно применение машинного обучения для обеспечения раннего выявления образования отложений. При реализации данного алгоритма на основании предиктивной аналитики возможно значительно снизить риски возникновения аварий на скважинах, а также необходимость постоянного ручного регулирования работы данного дополнительного оборудования, что не только повысит безопасность эксплуатации скважины, но и снизит затраты на ее обслуживание.

#### Регулирование устьевых штуцеров при изменении параметров работы добывающих скважин

При кустовой добыче нефти линейные трубопроводы объединены в одну систему и могут оказывать взаимовлияние друг на друга. При значительном увеличении добычи нефти на одной из скважин, потери давления по длине трубопровода также возрастают, вследствие чего увеличивается давление во всей системе. При рассмотрении работы ЭЦН воспользуемся «узловым» анализом [36, 37].

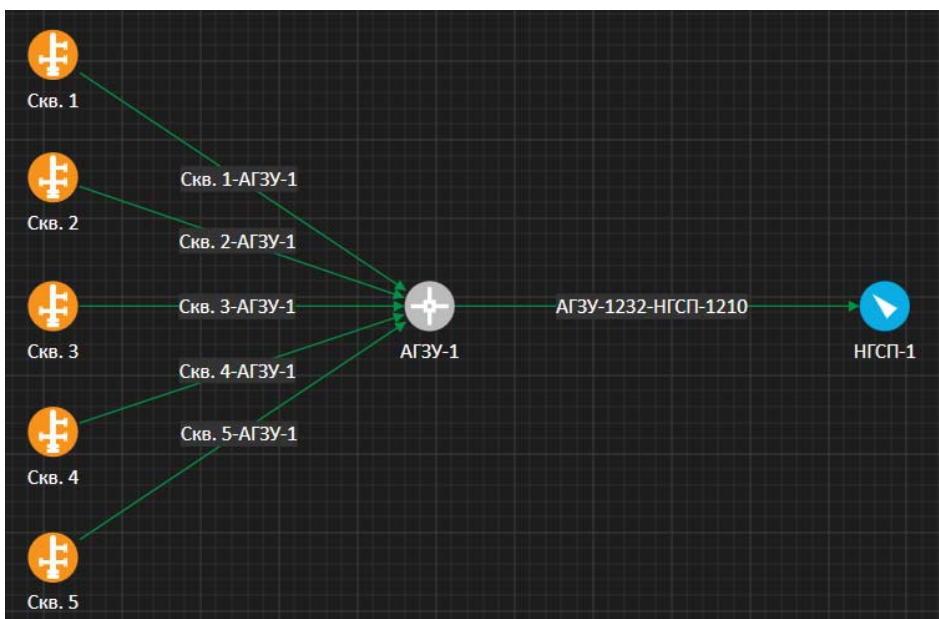


Рис. 4. Схема рассматриваемого куста скважин  
 Fig. 4. Scheme of the considered well cluster

Моделирование рассматриваемой ситуации проведем в программном обеспечении «Инженерный симулятор технологических процессов» на базе актуальной модели одного из месторождений Пермского края. На рис. 4 приведена схема рассматриваемого куста скважин.

Проведем моделирование работы данной системы при различных значениях дебита одной из скважин. В таблице приведены расчетные устьевые давления на скважинах при моделируемых вариантах.

**Таблица.** Параметры и результаты моделирования работы куста скважин

**Table.** Parameters and results of modeling the operation of a well cluster

№ скважины Well no.	Текущий режим Current mode		Моделируемый режим/Simulated mode	
	Давление на устье, МПа Wellhead pressure, MPa	Дебит скважины, м <sup>3</sup> /сут Well flow rate, m <sup>3</sup> /day	Давление на устье, МПа Wellhead pressure, MPa	Дебит скважины, м <sup>3</sup> /сут Well flow rate, m <sup>3</sup> /day
1	2,51	79	1,79	79
2	2,60	86,5	–	0
3	2,55	88	1,86	88
4	2,56	81	1,83	81
5	2,77	78	2,10	78

Текущий режим отражает состояние работы куста скважин согласно технологическому режиму; модель данного куста верифицирована на промысловых данных, и ее можно считать достоверной. Моделируемый режим предполагает ремонт, остановку или другое мероприятие на одной из скважин, в результате которого ее работа останавливается. По результатам

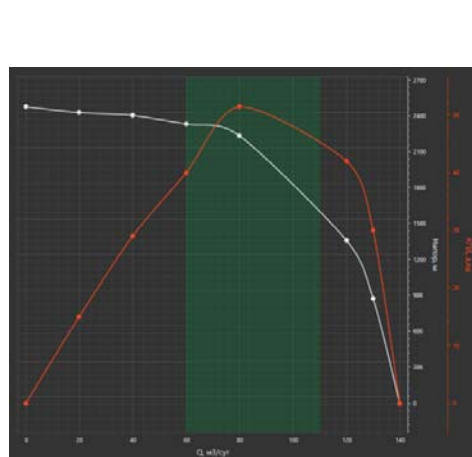
моделирования видно, что отключение данной скважины приводит к значительному изменению устьевых давлений на других скважинах. На рис. 4 представлены характеристики ЭЦН и рассчитанная характеристика скважины № 4. Характеристика ЭЦН принималась согласно паспортным данным, а характеристика скважины рассчитывалась по методике, указанной в [38]. Запишем формулу для расчета характеристики скважины (1).

$$H_{\text{скв}} = H_{\text{д}} + \frac{P_{\text{у}}}{\rho_{\text{см}}g} + h_{\text{тр}} - H_{\text{г}}, \quad (1)$$

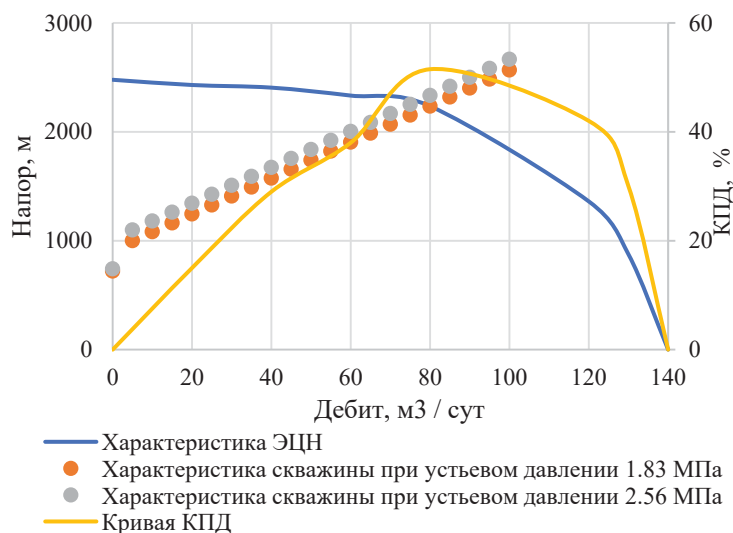
где  $H_{\text{д}}$  – динамический уровень по вертикали (разность высотных отметок верхней и нижней точек), м;  $h_{\text{тр}}$  – потери на трение в лифтовой колонне, м;  $\rho_{\text{см}}$  – средняя плотность флюида в лифтовой колонне, кг/м<sup>3</sup>;  $H_{\text{г}}$  – работа выделяющегося из жидкости газа, м;  $P_{\text{у}}$  – давление на устье скважины, Па.

Согласно данной методике, изменение устьевого давления приводит к пропорциональному изменению потребного напора на подъем жидкости. На рис. 5 приведена характеристика скважины при измененном устьевом давлении.

Согласно полученному изменению характеристики скважины можно заключить, что изменение устьевого давления может значительно сместить точку пересечения характеристики скважины и ЭЦН. Следствием этого может выступать падение коэффициента полезного действия ЭЦН, что может привести к нестабильной работе ЭЦН или его работе в неэнергоэффективном режиме [39, 40]. В рамках рассматриваемого случая отключение скважины № 2 приведет к снижению КПД скважины более чем на 2 % и изменению потребного напора на 100 м, а следовательно, к смещению рабочей точки системы «насос–скважина».



a/a



б/б

**Рис. 5.** Характеристики электроцентробежного насоса (а) и лифтовой колонны скважины (б)  
**Fig. 5.** Characteristics of the electric centrifugal pump (a) and the production string of the well (b)

Для недопущения отклонения режима работы ЭЦН от оптимального и снижения его КПД предлагается интеграция в кустовую станцию управления

алгоритма расчета необходимого устьевого сопротивления и потерь давления при установке штуцеров различных диаметров. Согласно данной мето-

дике станет возможным поддержание оптимального режима работы скважины без изменения эксплуатационных характеристик или параметров работы ЭЦН.

#### Интеллектуальное регулирование порядка регистрации дебита добывающих скважин

Основным и наиболее распространенным поверхностным технологическим оборудованием на кусте

скважин является АГЗУ. Как уже было сказано, при замере дебита жидкости интервально возможно получение некорректного значения. Причин ошибочных замеров множество, в том числе и неверная работа систем автоматики, глубинного-насосного оборудования и т. д. На рис. 6 представлен график изменения измеряемого дебита жидкости по ряду скважин с одного из нефтяных месторождений.

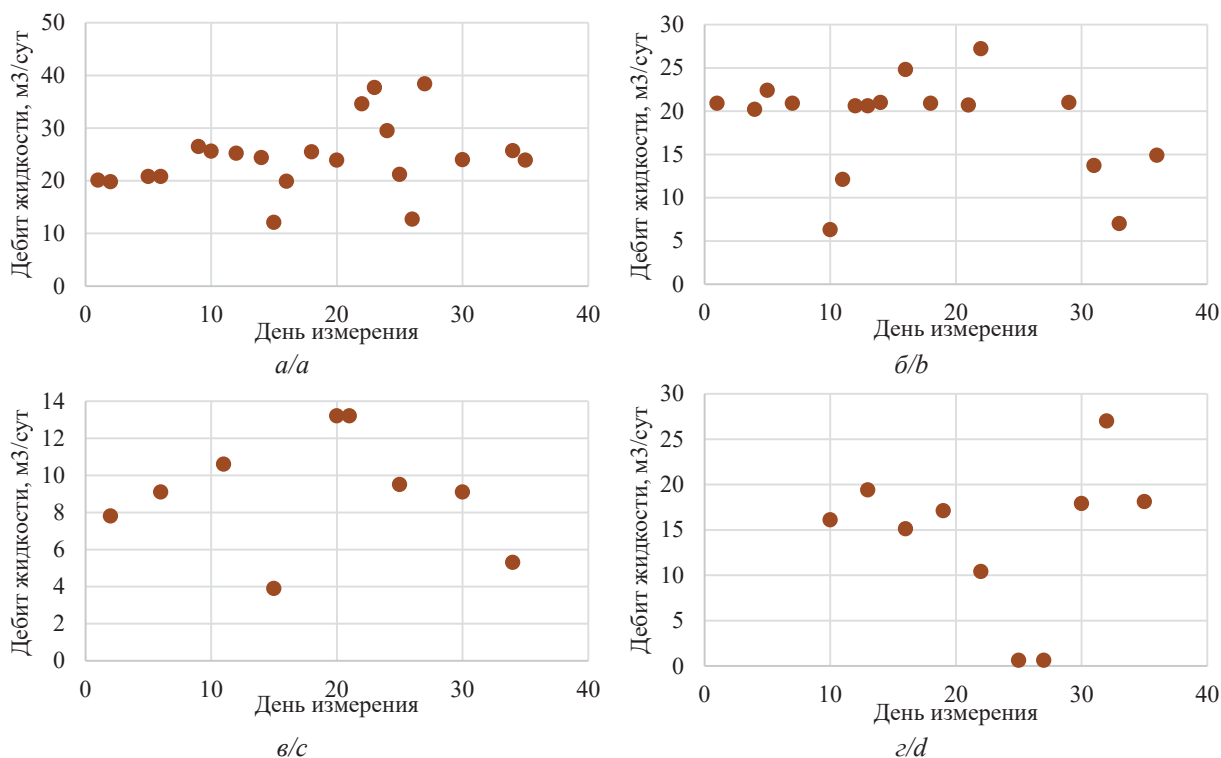


Рис. 6. Дебит по жидкости скважины 1 (а), 2 (б), 3 (в) и 4 (г) в течение рассматриваемого времени

Fig. 6. Fluid flow rate of well 1 (a), 2 (b), 3 (c) and 4 (d) during the considered time

Как видно из полученного графика, дебит жидкости по скважинам регулярно изменяется, причем имеют место значительные падения, вплоть до 95 % (скважина № 4, день 25). Очевидно, что данное падение указывает лишь на нарушения в работе ГНО или ошибки при замере, а не на изменения условий добычи или объема запасов. В настоящий момент при получении некондиционного замера проводится работа по определению причин его возникновения. В рамках интеллектуализации работы нефтяных скважин предлагается интеграция в систему алгоритма анализа данных замера дебита скважины. Данный алгоритм предполагает использование технологии «виртуальный расходомер», которая представляет собой систему датчиков, интегрированную со станцией управления, позволяющей анализировать параметры работы скважины и рассчитывать ее дебит по косвенным параметрам [41–43]. Сущность алгоритма представлена на рис. 7.

#### Заключение

В данной статье приведены алгоритмы оптимизации работы периферийного нефтепромыслового оборудования: станций управления греющими линиями, автома-

тической групповой замерной установкой, устьевым блоком подачи реагента и т. д. Предлагается алгоритм автоматизации выбора дозировки ингибитора парафиноотложения исходя из динамики параметров работы скважины, автоматического управления работой греющей кабельной линией и установкой очистки колонны насосно-компрессорных труб. Работа данных устройств может быть алгоритмизирована и, в перспективе, с использованием машинного обучения, автоматизирована. Также предложен способ сохранения оптимального дебита скважины при отключении или снижении подачи на других скважинах куста. В рамках данного способа предлагается рассчитывать и регулировать параметр устьевого давления для недопущения снижения коэффициента полезного действия электроцентробежного насоса. Последний алгоритм предлагается для снижения временных затрат инженерно-технического персонала на повторение замеров дебитов при получении некондиционных параметров. Его применение позволит оценить дебит скважины по данным работы глубинно-насосного оборудования, при необходимости повторить замер дебита и оповестить инженерно-технический персонал о результатах проверки.

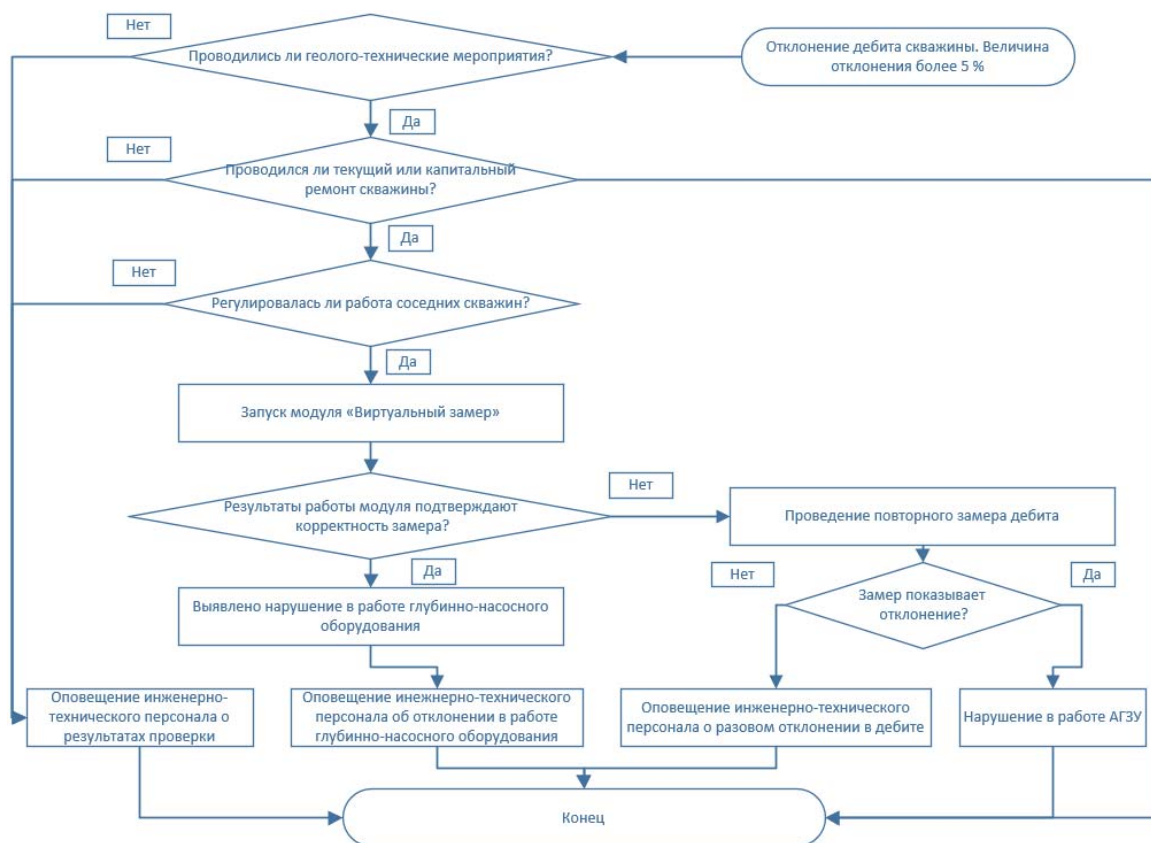


Рис. 7. Алгоритм анализа замеров дебита скважин

Fig. 7. Algorithm for analyzing well flow rate measurements

На современном нефтепромысле на кусту скважин располагается большое количество различного промышленного оборудования, работа которого не зависит от состояния каждой скважины. В рамках данной работы предложены конкретные алгоритмы, позволяющие объединить данное оборудование для обеспечения энергоэффективной и безопасной добычи нефти.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Lekomtsev A. Designing of a washing composition model to conduct the hot flushing wells producing paraffin crude oil // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2022. – V. 217. – P. 110923.
- Xuxin W.A.N., Guanglong X.I.E., Yugang D. Exploration of geology-engineering integration in hard-to-recover reserves in the Shengli Oilfield // China Petroleum Exploration. – 2020. – V. 25. – P. 43–50.
- Vyatkin K.A., Ilushin P.Y., Kozlov A.V. Forecasting the value of the linear pipeline cleaning interval based on the laboratory research // International Review of Mechanical Engineering. – 2021. – V. 15. – P. 294–300.
- Методика оценки теплопроводности органических отложений на лабораторной установке Wax Flow Loop / П.Ю. Илюшин, К.А. Вяткин, А.В. Козлов, А.О. Вогинова // Наука и технологии трубопроводного транспорта нефти и нефтепродуктов. – 2021. – Т. 11. – № 6. – С. 622–629.
- Букреев В.Г., Сипайлова Н.Ю., Сипайлов В.А. Стратегия управления электротехническим комплексом механизированной добычи нефти на основе экономического критерия // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2017. – Т. 328. – № 3. – С. 75–84.
- An automation system for gas-lifted oil wells: Model identification, control, and optimization / E. Camponogara, A. Plucenio,

Работа выполнена в организации Главного исполнителя в рамках выполняемой составной части НИКОТР, проводимой при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (соглашение № 075-11-2021-052 от 24 июня 2021 г.) в соответствии с постановлением Правительства РФ от 09.04.2010 № 218 (проект 218). Главной исполнитель НИКОТР – ФГАОУ ВО «Пермский национальный исследовательский политехнический университет».

- A.F. Teixeira, S.R. Campos // Journal of petroleum science and engineering. – 2010. – V. 70. – № 3–4. – P. 157–167.
- Jia A., Guo J. Key technologies and understandings on the construction of Smart Fields // Petroleum Exploration and Development. – 2012. – V. 39. – P. 127–131.
- Study of the intelligent completion system for Liaohe oil field / Z. Huang, Y. Li, Y. Peng, Z. Shen, W. Zhang, M. Wang // Procedia Engineering. – 2011. – V. 15. – P. 739–746.
- Application of the Avrami theory for wax crystallisation of synthetic crude oil / A. Hosseinipour, A. Japper-Jaafar, S. Yusup, L. Ismail // International Journal of Engineering. – 2019. – V. 32. – № 1. – P. 18–27. DOI: 10.5829/IJE.2019.32.01A.03
- Илюшин П.Ю., Вяткин К.А., Козлов А.В. Влияние компонентного состава нефти на теплопроводность формируемых органических отложений // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2022. – Т. 333. – № 2. – С. 90–97.
- Илюшин П.Ю., Вяткин К.А., Козлов А.В. Исследование реологических свойств нефти в процессе образования органических отложений // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2022. – Т. 333. – № 6. – С. 157–166.
- Sousa A.L., Matos H.A., Guerreiro L.P. Preventing and removing wax deposition inside vertical wells: a review // Journal of Petroleum Exploration and Production Technology. – 2019. – V. 9. – № 3. – P. 2091–2107.



13. Bai J., Jin X., Wu J.T. Multifunctional anti-wax coatings for paraffin control in oil pipelines // *Petroleum Science*. – 2019. – V. 16. – P. 619–631.
14. Ilyushin P.Y., Vyatkin K.A., Kozlov A.V. Development of a method for estimating thermal conductivity of organic deposits on the wax flow loop laboratory installation // *International Journal of Engineering*. – 2022. – V. 35. – № 6. – P. 1178–1185.
15. Critical review on wax deposition in single-phase flow / C. van der Geest, A. Melchuna, L. Bizarre, A.C. Bannwart, V.C. Guersoni // *Fuel*. – 2021. – V. 293. – P. 120358.
16. Occurrence and characterization of paraffin wax formed in developing wells and pipelines / M.M. El-Dalatony, B.H. Jeon, E.S. Salama, M. Eraky, W.B. Kim, J. Wang, T. Ahn // *Energies*. – 2019. – V. 12. – № 6. – P. 967–989.
17. Ehsani S., Haj-Shafiei S., Mehrotra A.K. Experiments and modeling for investigating the effect of suspended wax crystals on deposition from waxy mixtures under cold flow conditions // *Fuel*. – 2019. – V. 243. – P. 610–621.
18. Plushin P., Vyatkin K., Kozlov A. Application of epoxy coatings to increase the efficiency of wax oils production // *Fluid Dynamics and Materials Processing*. – 2022. – V. 18. – № 5. – P. 1229–1241.
19. Соловьев И.Г., Константинов И.В., Говорков Д.А. Ресурсно-энергетическая эффективность обустройства скважин с частотно-регулируемой подачей насоса // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2021. – Т. 332. – № 6. – С. 60–72.
20. Галкин В.И., Пономарева И.Н., Репина В.А. Исследование процесса нефтеизвлечения в коллекторах различного типа пустотности с использованием многомерного статистического анализа // *Вестник Пермского национального исследовательского политехнического университета. Геология, нефтегазовое и горное дело*. – 2016. – Т. 15. – С. 145–154.
21. Корабельников М.И. Оптимизация режимов работы скважин установками электроцентробежных насосов на современном этапе добычи нефти // *Вестник Южно-Уральского государственного университета. Серия: Энергетика*. – 2017. – Т. 17. – № 1. – С. 29–33.
22. Zabala G.W.A., Martinez R.G. Power consumption measurements & optimization automated with null electrical risk in ESP systems // *SPE Middle East artificial lift conference and exhibition*. – Manama, 2018.
23. Electrical cost optimization for electric submersible pumps: systematic integration of current conditions and future expectations / A. Nieto, D. Brinez, J.E. Lopez, P. Marin, S. Cabrera, D. Paya, E. Cifuentes // *SPE Middle East oil & gas show and conference*. – Manama, 2017.
24. Elmer W.G., Elmer J.B. Pump-stroke optimization: case study of twenty-well pilot // *SPE production & operations*. – 2018. – V. 33. – С. 419–436. DOI: 10.2118/181228-PA
25. Разработка интеллектуальной станции управления для установок штанговых глубинных насосов / М.Г. Пачин, А.Н. Яшин, А.С. Бодылев, М.И. Хакимьянов // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2022. – Т. 333. – № 3. – С. 68–75.
26. Хакимьянов М.И., Хусайнов Ф.Ф., Шафиков И.Н. Проблемы повышения энергетических характеристик электроприводов скважинных штанговых насосов // *Электротехнические системы и комплексы*. – 2017. – Т. 35. – № 2. – С. 35–40.
27. Мельниченко В.Е. Увеличение эффективности механизированной добычи нефти // *Нефтегазовая Вертикаль*. – 2013. – № 11. – С. 62–66.
28. Energy saving by reducing motor rating of sucker-rod pump systems / W. Li, V. Vaziri, S.S. Aphale, S. Dong, M. Wiercigroch // *Energy*. – 2021. – V. 228. – P. 120618.
29. Motor's expense repaid in savings / P. Ali-Zade, K. Buruncuk, K. Radjabli, H. Mamadov // *IEEE Industry Applications Magazine*. – 2006. – V. 12. – № 6. – P. 21–28.
30. Sadov V.B., Plotnikova N.V. Main functions of control system of the installation with the drive sucker rod pump // 2016 2nd International Conference on Industrial Engineering, Applications and Manufacturing (ICIEAM). – Chelyabinsk, Russia: IEEE, 2016. – P. 1–4.
31. Improving hydrogeological understanding through well-test interpretation by diagnostic plot and modelling: a case study in an alluvial aquifer in France / T. Garin, B. Arfib, B. Ladouche, J. Goncalves, B. Dewandel // *Hydrogeology Journal*. – 2022. – V. 30. – № 1. – P. 283–302.
32. Sharaf E.F., Sheikh H. Reservoir characterization and production history matching of Lower Cretaceous, Muddy Formation in Ranch Creek area, Bell Creek oil field, Southeastern Montana, USA // *Marine and Petroleum Geology*. – 2021. – V. 127. – P. 104996.
33. Пашали А.А., Зейгман Ю.В. Интеллектуализация процесса интенсификации добычи нефти в условиях недостатка мощности кустовой системы энергоснабжения // *Нефтегазовое дело*. – 2020. – Т. 18. – № 6. – С. 56–63.
34. Тагирова К.Ф. Архитектура интеллектуальной автоматизированной системы управления насосной установкой нефтедобычи // *Высокопроизводительные вычислительные системы и технологии*. – 2018. – Т. 2. – № 2. – С. 124–129.
35. Ильясов Б.Г., Комелин А.В., Тагирова К.Ф. Интеллектуальная автоматизированная система управления установкой электроцентробежного насоса // *Вестник Уфимского государственного авиационного технического университета*. – 2007. – Т. 9. – № 2. – С. 58–70.
36. A nodal analysis based monitoring of an electric submersible pump operation in multiphase flow / J. Iranzi, H. Son, Y. Lee, J. Wang // *Applied Sciences*. – 2022. – V. 12. – № 6. – P. 2825.
37. Arguello-Marrufo P.L., Lopez-Falcon D.A., Munoz-Salazar L. Production optimization and economic analysis for hydraulic fracturing operations in tight oil wells // *Petroleum Science and Technology*. – 2021. – V. 39. – № 11–12. – P. 381–391.
38. Сборник задач по технологии и технике нефтедобычи / И.Т. Мищенко, В.А. Сахаров, В.Г. Грон, Г.И. Богомольный. – М.: Изд-во «Недра», 1984. – 272 с.
39. Experimental investigation on the performance of Electrical Submersible Pump (ESP) operating with unstable water/oil emulsions / N.A.V. Bulgarelli, J.L. Biazussi, W.M. Verde, P.C. Eerles, M.S., Bannwart A.C. de Castro // *Journal of Petroleum Science and Engineering*. – 2021. – V. 197. – P. 107900.
40. Experimental and numerical study of oil drop motion within an ESP impeller / R.M. Perissinotto, W.M. Verde, M. Gallassi, G.F. Goncalves, M.S. de Castro, J. Carneiro, J.L. Biazussia, A.C. Bannwart // *Journal of Petroleum Science and Engineering*. – 2019. – V. 175. – P. 881–895.
41. Ивановский В.Н., Сабиров А.А., Герасимов И.Н., Мазеин И.И., Брюханов С.В., Золотарев И.В. Разработка и внедрение виртуального расходомера для скважин, оборудованных установками центробежных насосов // *Территория Нефтегаз*. – 2016. – № 11. – С. 115–120.
42. Пашали А.А., Михайлов В.Г. Использование алгоритма «виртуального расходомера» при выводе нефтяных скважин на режим // *Нефтяное хозяйство*. – 2020. – № 10. – С. 82–85.
43. Bikmukhametov T., Jäschke J. First principles and machine learning virtual flow metering: a literature review // *Journal of Petroleum Science and Engineering*. – 2020. – V. 184. – P. 106487.

Поступила 30.05.2022 г.

Прошла рецензирование 17.06.2022 г.

#### Информация об авторах

**Илюшин П.Ю.**, кандидат технических наук, доцент кафедры нефтегазовых технологий Пермского национального исследовательского политехнического университета.

**Вяткин К.А.**, аспирант кафедры нефтегазовых технологий Пермского национального исследовательского политехнического университета.

**Козлов А.В.**, лаборант-исследователь кафедры нефтегазовых технологий Пермского национального исследовательского политехнического университета.

UDC 622.276

## DEVELOPMENT OF INTELLIGENT ALGORITHMS FOR CONTROLLING PERIPHERAL TECHNOLOGICAL EQUIPMENT OF THE WELL CLUSTER USING A SINGLE CONTROL STATION

**Pavel Yu. Ilyushin**<sup>1</sup>,  
ilyushin-pavel@yandex.ru

**Kirill A. Vyatkin**<sup>1</sup>,  
kirill.vyatkin@girngm.ru

**Anton V. Kozlov**<sup>1</sup>,  
anton.kozlov@girngm.ru

<sup>1</sup> Perm National Research Polytechnic University,  
29, Komsomolskiy avenue, Perm, 614990, Russia.

**The relevance** of the study lies in the need to improve the energy efficiency of oil production in fields that are in the late stages of development. The essence of the work lies in the integration of peripheral oilfield equipment, including metering units, sediment control devices, into a single system with wells – an intelligent control station. Currently, the dynamics of well operation does not affect the operation parameters of these units. When they are integrated into the system and the corresponding algorithms are written, it is possible to increase the energy efficiency of oil production, reduce the cost of well maintenance and, in the future, intellectualize their work.

**Purpose:** to determine the control algorithms for peripheral equipment, the operation of which can be optimized based on the dynamics of changes in the parameters of the operation of an oil well.

**Methods:** hydraulic modeling of a well cluster operation, numerical determination of a well pressure characteristic, review of scientific sources and analysis of parameters for combating organic deposits.

**Results.** The paper introduces the scenarios for optimizing the operation of oil wells when integrating peripheral devices into an intelligent control station. Thus, the integration of a wellhead reagent supply unit, a tubing string cleaning device or a heating cable control station, upon identification of the formation of paraffin deposits, can change the operating mode, which will allow optimizing the processes of controlling deposits and increasing the cleanup period of the well. Calculation of the change in wellhead pressure, with a significant short-term change in the flow rate of one or several wells, will allow changing the diameter of the choke in the well, which will save the intersection point of the pressure characteristic of the well and the characteristics of the electric submersible pump. According to the technological calculation, this will avoid unstable operation of the pump and maintain the optimal value of the efficiency factor, the drop of which can exceed 2 %. The third algorithm describes a way to reduce the cost of engineering and technical personnel for well maintenance when receiving substandard production data. When they are received, it is proposed to launch an algorithm for estimating the well flow rate based on indirect data – the «Virtual Flow Meter» technology. Based on the results of the check, the system will automatically start a re-measurement or inform the engineering and technical staff about violations in the operation of the downhole pumping equipment.

**Conclusions.** The resulting algorithms can be integrated into control stations. This will optimize the operation of downhole pumping equipment, increase the cleanup period of the well, and also reduce the time spent by engineering and technical personnel on well maintenance. All presented algorithms are able to increase the energy efficiency of oil production, which is an important task in the development of deposits at later stages.

### Key words:

well, intelligent control station, peripheral equipment, energy efficiency, well operation.

The work was carried out in the organization of the Lead Contractor as part of the R&D, carried out with the financial support of the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation (agreement number 075-11-2021-052 of 24 June 2021) in accordance with the decree of the Government of the Russian Federation: 09.04.2010, number 218 (PROJECT 218). The main R&D contractor is Perm National Research Polytechnic University.

### REFERENCES

- Lekomtsev A., Kozlov A., Kang W., Dengaev A. Designing of a washing composition model to conduct the hot flushing wells producing paraffin crude oil. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2022, vol. 217, pp. 110923.
- Xuxin W.A.N., Guanglong X.I.E., Yugang D. Exploration of geology-engineering integration in hard-to-recover reserves in the Shengli Oilfield. *China Petroleum Exploration*, 2020, vol. 25, pp. 43–50.
- Ilyushin P.Y., Vyatkin K.A., Kozlov A.V. Forecasting the value of the linear pipeline cleaning interval based on the laboratory research. *International Review of Mechanical Engineering*, 2021, vol. 15, no. 6, pp. 294–300.
- Ilyushin P.Yu., Vyatkin K.A., Kozlov A.V., Votnova A.O. Methodology for evaluation of organic deposits thermal conduction using laboratory facility Wax Flow Loop. *Science & Technologies: Oil and Oil Products Pipeline Transportation*, 2021, vol. 111, no. 6, pp. 622–629. In Rus.
- Bukreev V.G., Sipaylova N.Yu., Sipaylov V.A. Control strategy in accordance with economical criterion for electrotechnical installation of mechanized oil production. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2017, vol. 328, no. 3, pp. 75–84. In Rus.
- Camponogara E., Plucenio A., Teixeira A.F., Campos S.R. An automation system for gas-lifted oil wells: model identification, control, and optimization. *Journal of petroleum science and engineering*, 2010, vol. 70, no. 3–4, pp. 157–167.
- Jia A., Guo J. Key technologies and understandings on the construction of Smart Fields. *Petroleum Exploration and Development*, 2012, vol. 39, pp. 127–131.
- Huang Z., Li Y., Peng Y., Shen Z., Zhang W., Wang M. Study of the Intelligent Completion System for Liaohu Oil Field. *Procedia Engineering*, 2011, vol. 15, no. 739–746.
- Hosseiniipour A., Japper-Jaafar A., Yusup S., Ismail L. Application of the Avrami theory for wax crystallisation of synthetic crude oil. *International Journal of Engineering*, 2019, vol. 32, no. 1, pp. 18–27.

10. Ilyushin P.Yu., Vyatkin K.A., Kozlov A.V. Oil component composition influence on thermal conductivity of formed organic deposits. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2022, vol. 333, no. 2, pp. 90–97. In Rus.
11. Ilyushin P.Yu., Vyatkin K.A., Kozlov A.V. Investigation of rheological properties of oil during the formation of wax deposits. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2022, vol. 333, no. 6, pp. 157–166. In Rus.
12. Sousa A.L., Matos H.A., Guerreiro L.P. Preventing and removing wax deposition inside vertical wells: a review. *Journal of Petroleum Exploration and Production Technology*, 2019, vol. 9, no. 3, pp. 2091–2107.
13. Bai J., Jin X., Wu J.T. Multifunctional anti-wax coatings for paraffin control in oil pipelines. *Petroleum Science*, 2019, vol. 16, pp. 619–631.
14. Ilyushin P.Y., Vyatkin K.A., Kozlov A.V. Development of a method for estimating thermal conductivity of organic deposits on the wax flow loop laboratory installation. *International Journal of Engineering*, 2022, vol. 35, pp. 1178–1185.
15. Van der Geest C., Melchuna A., Bizarre L., Bannwart A.C., Guersoni V.C. Critical review on wax deposition in single-phase flow. *Fuel*, 2021, vol. 293, pp. 120358.
16. El-Dalatony M.M., Jeon B.H., Salama E.S., Eraky M., Kim W.B., Wang J., Ahn T. Occurrence and characterization of paraffin wax formed in developing wells and pipelines *Energies*, 2019, vol. 12, no. 6, pp. 967–989.
17. Ehsani S., Haj-Shafiei S., Mehrotra A. K. Experiments and modeling for investigating the effect of suspended wax crystals on deposition from waxy mixtures under cold flow conditions. *Fuel*, 2019, vol. 243, pp. 610–621.
18. Ilyushin P., Vyatkin K., Kozlov A. Application of epoxy coatings to increase the efficiency of wax oils production. *Fluid Dynamics and Materials Processing*, 2022, vol. 18, no. 5, pp. 1229–1241.
19. Soloviev I.G., Konstantinov I.V., Govorkov D.A. Resource-energy efficiency of wells construction with frequency-controlled pump delivery. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2021, vol. 332, no. 6, pp. 60–72. In Rus.
20. Galkin V.I., Ponomareva I.N., Repina V.A. Study of the process of oil recovery in reservoirs of various types of voids using multivariate statistical analysis. *Bulletin of the Perm National Research Polytechnic University. Geology, oil and gas and mining*, 2016, vol. 15, no. 19, pp. 145–154. In Rus.
21. Korabelnikov M.I. Optimizatsiya rezhimov raboty skvazhin ustanovkami elektrosentrobezhnykh nasosov na sovremennom etape dobychi nefii [Optimization of operating modes of wells by installations of electric centrifugal pumps at the present stage of oil production]. *Bulletin of the South Ural State University. Series: Energy*, 2017, vol. 17, no. 1, pp. 29–33.
22. Zabala G.W.A., Martinez R.G. Power consumption measurements & optimization automated with null electrical risk in ESP systems. *SPE Middle East artificial lift conference and exhibition*. Manama, 2018. URL: <https://doi.org/10.2118/192466-MS> (accessed 15 August 2022).
23. Nieto A., Brinez D., Lopez J.E., Marin P., Cabrera S., Paya D., Cifuentes E. Electrical cost optimization for electric submersible pump systematic integration of current conditions and future expectations. *SPE Middle East oil & gas show and conference*. Manama, 2017. URL: <https://doi.org/10.2118/184006-MS> (accessed 15 August 2022).
24. Elmer W.G., Elmer J.B. Pump-stroke optimization: a case study of twenty-well pilot. *SPE production & operations*, 2018, vol. 33. URL: <https://doi.org/10.2118/181228-PA> (accessed 15 August 2022).
25. Pachin M.G., Yashin A.N., Bodylev A.S., Khakimyanov M.I. Development of an intelligent control station for rod pumps. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2022, vol. 333, no. 3, pp. 68–75. In Rus.
26. Khakimyanov M.I., Khusainov F.F., Shafikov I.N. Problemy povysheniya energeticheskikh kharakteristik elektroprivodov skvazhinnykh shtangovykh nasosov [Problems of increasing the energy characteristics of electric drives of borehole rod pumps]. *Electrotechnical systems and complex*, 2017, vol. 35, no. 2, pp. 35–40.
27. Melnichenko V.E. Uvelichenie effektivnosti mekhanizirovannoy dobychi nefii [Increasing the efficiency of mechanized oil production]. *Oil and Gas Vertical*, 2013, no. 11, pp. 62–66.
28. Li W., Vaziri V., Aphale S.S., Dong S., Wiercigroch M. Energy saving by reducing motor rating of sucker-rod pump systems. *Energy*, 2021, vol. 228, pp. 120618.
29. Ali-Zade P., Buruncuk K., Radjabli K., Mamadov H. Motor's expense repaid in savings. *IEEE Industry Applications Magazine*, 2006, vol. 12, no. 6, pp. 21–28.
30. Sadov V.B., Plotnikova N.V. Main functions of control system of the installation with the drive sucker rod pump. *2016 2<sup>nd</sup> International Conference on Industrial Engineering, Applications and Manufacturing (ICIEAM)*. Chelyabinsk, Russia IEEE, 2016, pp. 1–4.
31. Garin T., Arfib B., Ladouche B., Goncalves J., Dewandel B. Improving hydrogeological understanding through well-test interpretation by diagnostic plot and modelling: a case study in an alluvial aquifer in France. *Hydrogeology Journal*, 2022, vol. 30, no. 1, pp. 283–302.
32. Sharaf E.F., Sheikha H. Reservoir characterization and production history matching of Lower Cretaceous, Muddy Formation in Ranch Creek area, Bell Creek oil field, Southeastern Montana, USA. *Marine and Petroleum Geology*, 2021, vol. 127, pp. 104996.
33. Pashali A.A., Zeigman Yu.V. Intellektualizatsiya protsessa intensifikatsii dobychi nefii v usloviyakh nedostatka moschnosti kustovoy sistemy energosnabzheniya [Intellectualization of the process of intensification of oil production in conditions of a lack of capacity of a cluster power supply system]. *Oil and gas business*, 2020, vol. 18, no. 6, pp. 56–63.
34. Tagirova K.F. Arkhitektura intellektualnoy avtomatizirovannoy sistemy upravleniya nasosnoy ustanovkoy nefte dobychi [Architecture of an intelligent automated control system of an oil production pumping unit]. *High-performance computing systems and technologies*, 2018, vol. 2, no. 2, pp. 124–129.
35. Ilyasov B.G., Komelin A.V., Tagirova K.F. Intellektualnaya avtomatizirovannaya sistema upravleniya ustanovkoy elektrosentrobezhnogo nasosa [Intelligent automated control system for the installation of an electric centrifugal pump]. *Bulletin of the Ufa State Aviation Technical University*, 2007, vol. 9, no. 2, pp. 58–70.
36. Iranzi J., Son H., Lee Y., Wang J. A nodal analysis based monitoring of an electric submersible pump operation in multiphase flow. *Applied Sciences*, 2022, vol. 12, no. 6, pp. 2825.
37. Arguello-Marrufo P.L., Lopez-Falcon D.A., Munoz-Salazar L. Production optimization and economic analysis for hydraulic fracturing operations in tight oil wells. *Petroleum Science and Technology*, 2021, vol. 39, no. 11–12, pp. 381–391.
38. Mishchenko I.T., Sakharov V.A., Gron V.G., Bogomolny G.I. *Sbornik zadach po tekhnologii i tekhnike nefte dobychi* [Collection of tasks on oil production technology and technology]. Moscow, Nedra Publ. House, 1984. 272 p.
39. Bulgarelli N.A.V., Biazussi J.L., Verde W.M., Perles C.E., De Castro M.S., Bannwart A.C. Experimental investigation on the performance of Electrical Submersible Pump (ESP) operating with unstable water/oil emulsions. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2021, vol. 197, pp. 107900.
40. Perissinotto R.M., Verde W.M., Gallassi M., Goncalves G.F., De Castro M.S., Carneiro J., Biazussia J.L., Bannwart A.C. Experimental and numerical study of oil drop motion within an ESP impeller. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2019, vol. 175, pp. 881–895.
41. Ivanovsky V.N., Sabirov A.A., Gerasimov I.N., Mazein I.I., Bryukhanov S.V., Zolotarev I.V. Razrabotka i vnedrenie virtualnogo rashodomera dlya skvazhin, oborudovannykh ustanovkami tsentrobezhnykh nasosov [Development and implementation of a virtual flow meter for wells equipped with centrifugal pump installations]. *Territory of Neftgaz*, 2016, no. 11, pp. 115–120.
42. Pashali A.A., Mikhaylov V.G. Use of the «virtual flow meter» algorithm in bringing the oil wells on to stable production. *Oil industry*, 2020, no. 10, pp. 82–85. In Rus.
43. Bikmukhametov T., Jäschke J. First principles and machine learning virtual flow metering: a literature review. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2020, vol. 184, pp. 106487.

Received: 30 May 2022.

Reviewed: 17 June 2022.

#### Information about the authors

**Pavel Yu. Ilyushin**, Cand. Sc., associate professor, Perm National Research Polytechnic University.

**Kirill A. Vyatkin**, postgraduate student, Perm National Research Polytechnic University.

**Anton V. Kozlov**, research assistant, Perm National Research Polytechnic University.



УДК 504.3.054

## ОЦЕНКА ПЫЛЕАЭРОЗОЛЬНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ В ЗОНЕ ВЛИЯНИЯ ЦЕМЕНТНОГО ЗАВОДА НА ОСНОВЕ ИЗУЧЕНИЯ СНЕГОВОГО ПОКРОВА (НОВОСИБИРСКАЯ ОБЛАСТЬ)

Володина Дарья Анатольевна<sup>1</sup>,  
volodina.da2014@yandex.ru

Таловская Анна Валерьевна<sup>1</sup>,  
talovskaj@yandex.ru

Язиков Егор Григорьевич<sup>1</sup>,  
yazikoveg@tpu.ru

Девятова Анна Юрьевна<sup>2,3</sup>,  
devyatovaAY@ipgg.sbras.ru

Еделев Алексей Викторович<sup>3</sup>,  
edelevAV@ipgg.sbras.ru

<sup>1</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет, Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

<sup>2</sup> Новосибирский государственный университет, Россия, 630090, г. Новосибирск, ул. Пирогова, 1.

<sup>3</sup> Институт нефтегазовой геологии и геофизики СО РАН, Россия, 630090, г. Новосибирск, пр. Академика Коптюга, 3.

**Актуальность.** Загрязнение атмосферного воздуха является важной и актуальной проблемой современности. Одними из главных источников поступления твердых частиц являются предприятия строительной отрасли. Твердые частицы поступают в атмосферный воздух в результате добычи, транспортировки и измельчения сырьевых компонентов, обжига клинкера, помола и транспортировки цемента. В этой связи актуальным является экологическая оценка пылеаэрозольного загрязнения атмосферного воздуха в районах размещения цементных заводов.

**Цель:** оценить состояние атмосферного воздуха в окрестностях цементного завода г. Искитим на основе изучения пылевой нагрузки, уровней накопления химических элементов и форм их нахождения в составе твердых частиц, осевших в снеговом покрове.

**Объекты:** твердая фаза снегового покрова, содержащая пылеаэрозольные частицы, осевшие из атмосферного воздуха в снеговой покров в районе расположения цементного завода, сырьевые компоненты для производства цемента (известняк, глина, шлак, пиритные огарки).

**Методы:** атмогеохимический метод, включающий отбор и подготовку проб снегового покрова для получения твердой фазы снегового покрова; аналитические методы исследования проб: масс-спектрометрия с индуктивно-связанной плазмой, инструментальный нейтронно-активационный анализ, рентгенофазовый метод, сканирующая электронная микроскопия; методы статистической обработки результатов в программном обеспечении «STATISTICA 8»; эколого-геохимический анализ данных путем расчета показателей – пылевая нагрузка ( $P_n$ ), коэффициент концентрации ( $K_c$ ), суммарный показатель загрязнения ( $Z_c$ ), картографическое представление результатов в ПО «Surfer 11» и «CorelDraw X7».

**Результаты.** Уровни пылевой нагрузки в окрестностях цементного завода находятся в широком диапазоне – от 57 до 1028 мг/(м<sup>2</sup>·сут.) при среднем значении 318 и фоне 7 мг/(м<sup>2</sup>·сут.). По нормативным грациям формируются уровни пылевого загрязнения от низкого до очень высокого. По мере удаления от предприятия в север-северо-западном направлении на расстоянии от 0,6 до 2,8 км уровни пылевой нагрузки уменьшаются от 436 до 78 мг/(м<sup>2</sup>·сут.). Наибольший уровень пылевой нагрузки формируется в ближней зоне влияния (до 500 м) – 1028 мг/(м<sup>2</sup>·сут.), а также в районе расположения карьера, где добываются основные сырьевые компоненты – 932 мг/(м<sup>2</sup>·сут.). Минеральный состав твердой фазы снегового покрова представлен минералами сырьевых компонентов – кальцитом (CaCO<sub>3</sub>) – 82,1 %, кварцем (SiO<sub>2</sub>) – 4,4 %, магнезитом (MgCO<sub>3</sub>) – 7,6 %; минералами цементного клинкера – браунмиллеритом (Ca<sub>2</sub>(Al, Fe)<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) и хатруритом (Ca<sub>3</sub>(SiO<sub>4</sub>)O) – 6,4 и 26,6 %, соответственно. В твердой фазе снегового покрова выделены микрочастицы оксидов кальция и железа, а также микрочастицы алюмосиликатного состава с размерами от 2,7 до 64,5 мкм. Техногенная геохимическая специализация твердой фазы снегового покрова характеризуется повышенными уровнями накопления Ca (в 14–23 раза выше фона), Zn, Sr, Sb, Tb, Yb, La, Sm, U (в 2–7 раз выше фона), которые формируют низкий уровень загрязнения. Распределение Ca и пылевой нагрузки по мере удаления от границ завода в северо-западном направлении имеет схожий характер. Максимальные уровни пылевой нагрузки (1028 мг/(м<sup>2</sup>·сут.)) и накопления Ca (24 %) в твердой фазе снегового покрова определены на расстоянии 0,5 км, а по мере удаления от границ завода (от 0,5 до 2,8 км) наблюдается снижение уровня пылевой нагрузки в среднем от 7 до 13 раз (140–78 мг/(м<sup>2</sup>·сут.)) и накопления Ca в 1,5 раза (16–17 %). Микроэлементы-индикаторы (Cr, Sb, Zn), которые определены в справочнике наилучших доступных технологий как специфичные в составе выбросов цементного производства, в твердой фазе снегового покрова превышают фоновые уровни от 2 до 7 раз. Для твердой фазы снегового покрова характерными являются геохимические ассоциации Zn-Cr, As-Ta, Yb-U-Sb, Tb-Ba, Th-Na, Fe-La. Отмечаются корреляционные связи между микроэлементами-индикаторами (Ca, Ba, Cr, As, Fe, Sb, Zn), характерными для выбросов производства цемента, с редкоземельными и радиоактивными (U, Th) химическими элементами. Этот факт может указывать на единый источник поступления



*этих элементов (при положительных корреляционных связях), а также отражать разницу в составе корректирующих добавок для производства цемента и разные формы нахождения химических элементов в составе твердых частиц в окрестностях цементного завода (при отрицательных корреляционных связях). Выявленные геохимические ассоциации с высокой долей вероятности отражают геохимическую специализацию используемого сырья, корректирующих и минеральных технологических добавок для производства цемента.*

**Ключевые слова:**

*пылеаэрозоли, цементная промышленность, пылевая нагрузка, снеговой покров, микроэлементы, загрязнение атмосферного воздуха.*

**Введение**

Одной из актуальных проблем современного мира является загрязнение атмосферного воздуха выбросами промышленных предприятий. Цементная промышленность характеризуется значительным выбросом пыли в атмосферный воздух – на производство 1 т цементного клинкера приходится до 4,7 т газовых выбросов и 0,1 кг пыли [1]. Согласно [2], ежегодно со стороны цементных заводов в атмосферный воздух поступает порядка 2,5 млн т цементной пыли, что составляет 2/3 промышленных выбросов [3]. Оценка уровня загрязнения компонентов окружающей среды в районах расположения предприятий по производству цемента является актуальной как в России [4–7], так и за рубежом [8–16]. Основное внимание уделяется изучению почв и растительности [16–21]. К примеру, в китайском городе Урумчи в пробах почвы, сосновой хвой, коры и кольцах деревьев обнаружены высокие содержания ртути в образцах, отобранных в 0,5 км от цементного завода [22]. Так, в пробах почвы из зоны влияния цементного завода г. Новороссийска выявлены высокие концентрации свинца (Pb), стронция (Sr), серебра (Ag), меди (Cu), цинка (Zn), галлия (Ga), олова (Sn), иттербия (Yb) относительно фона [23]. Немногочисленные работы, в которых преимущественно изучают показатели снеготалой воды, посвящены оценке уровня загрязнения снегового покрова. Например, в районе расположения Теплоозерского цементного завода определили максимальные концентрации взвешенных веществ в снеготалой воде, которые превышают контрольные показатели от 56 до 385 раз на расстоянии 0,2–0,7 км от предприятия [24]. Так, польские ученые из г. Кельце определили, что значения водородного показателя (рН) проб снеготалой воды приближены к щелочной среде и находятся в диапазоне от 6,55 до 9,23 ед., что указывает на влияние предприятий цементной промышленности и добывающих известняк производств на окружающую среду [25].

В Новосибирской области, в г. Искитим, на берегу р. Бердь, функционирует крупный цементный завод, который вносит существенный вклад в развитие отрасли по производству строительных материалов [26]. В 2018 г. в список городов России с самым высоким уровнем загрязнения воздуха вошел г. Искитим [27], что связано с воздействием местных техногенных источников загрязнения на качество атмосферного воздуха. Согласно данным [28], в 2021 г. максимальная разовая концентрация взвешенных веществ составила 1,7 ПДК (наблюдения под факелом цементного завода на расстоянии 1 км), при этом значительного изме-

нения среднегодовых концентраций не произошло. Ранее проведенные исследования снегового покрова в окрестностях цементного завода, расположенного в г. Искитим, показали, что рН снеготалой воды соответствует щелочной среде (9–12 ед.). По результатам изучения снегового покрова также установлено, что твердые частицы в окрестностях данного цементного завода распространяются преимущественно в северо-западном, северном и северо-восточном направлениях [4–7].

В районах расположения предприятий цементного производства мало изученными остаются вопросы геохимии и минералогии пылеаэрозолей, осевших в снеговой покров. В связи с этим целью данной работы является оценка состояния атмосферного воздуха в окрестностях цементного завода на основе изучения пылевой нагрузки, уровней накопления химических элементов и форм их нахождения в составе твердых частиц, осевших в снеговом покрове в окрестностях цементного завода г. Искитим.

**Объект и методы исследования**

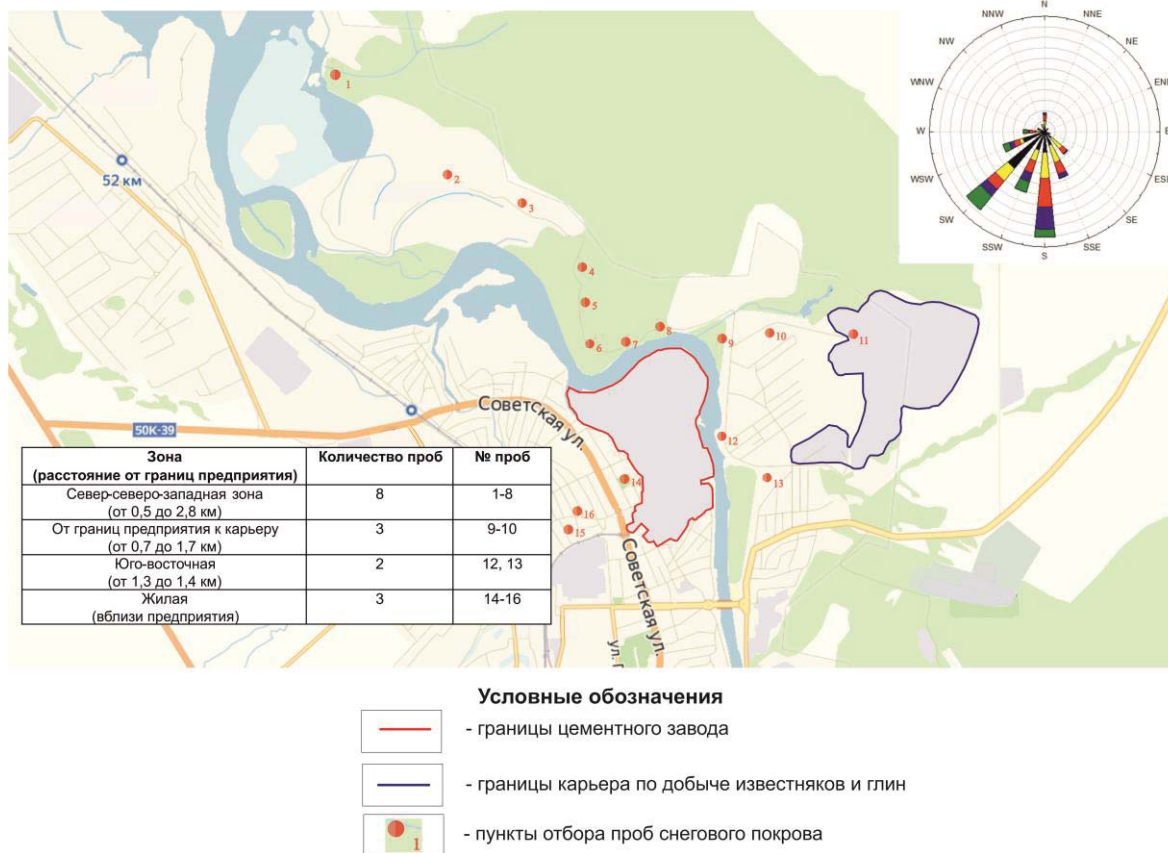
Отбор проб снегового покрова производился в окрестностях цементного завода, расположенного в г. Искитим Новосибирской области. Выбор пунктов отбора проб обусловлен господствующим направлением ветра (южное, юго-западное), формами рельефа, доступностью отбора проб, удаленностью от дорог. Пробы снегового покрова были отобраны в окрестностях цементного завода, в районе карьера по добыче сырьевых материалов и в жилом районе города Искитим (рис. 1). Расположение точек отбора проб выбрано в соответствии с нормативно-методическими рекомендациями [29, 30] и результатами ранее проведенных исследований [4–7] по распределению твердых частиц в окрестностях данного завода. Всего на исследуемой территории нами отобрано и подготовлено 16 проб снегового покрова.

Пробы отбирались на всю мощность снегового покрова методом шурфа, исключая пятисантиметровый слой над почвой. Рулеткой были зафиксированы площадь шурфа и глубина. Каждая проба была упакована в полиэтиленовый мешок. Вес каждой пробы составлял не менее 15 кг для получения оптимальной массы твердой фазы снегового покрова.

Подготовка проб снегового покрова осуществлялась согласно методическим рекомендациям [29, 30] и многолетнему опыту сотрудников кафедры геоэкологии и геохимии ТПУ (н.в. отделение геологии) [31–34]. После отбора пробы снегового покрова были растоплены в пластмассовых тарах с получением 10–13 л снеготалой воды. Из данного объема снеготала-

лой воды часть ее (2–3 л с осадком) фильтровалась через беззольный фильтр типа «синяя лента», который потом просушивался вместе с твердой фазой.

Полученная твердая фаза просеивалась через сито с диаметром ячеек 1 мм для освобождения от посторонних примесей и потом взвешивалась.



**Рис. 1.** Карта-схема расположения пунктов отбора проб снегового покрова в зоне влияния цементного завода г. Искитим (основа карты – Яндекс-карты; зимняя «роза» ветров построена в программе Origin, цветом обозначена скорость ветра)

**Fig. 1.** Map of snow cover sampling points in the zone of influence of a cement plant in Iskitim, Novosibirsk Region (winter wind rose was created by the author in the Origin program, colors indicate wind speed)

Определение содержания 28 химических элементов (As, Cr, Ba, Sr, Co, Zn, Sb, Hf, Sc, Cs, Rb, Ta, Eu, Sm, Lu, Yb, La, Ce, Tb, Nd, U, Th, Ca, Na, Fe, Au, Ag, Br) в пробах твердой фазы снежного покрова и сырьевых добавок для производства цемента (известняк, глина, шлак, пиритные огарки) производилось методом инструментального нейтронно-активационного анализа (ИНАА) в ядерно-геохимической лаборатории ТПУ на базе ядерного реактора ТПУ. Содержание макроэлементов (Ca, Fe, Na, Mg, Al, Si, P, K, Mn) определялось методом масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой (ИСП-МС) в ХАЦ «Плазма» (г. Томск). Размер и элементный состав микрочастиц определен в лабораториях МИНОЦ «Урановая геология» в ТПУ на электронном сканирующем микроскопе (S 3400N фирмы Hitachi, Япония) с энергодисперсионной приставкой для микроанализа (Bruker XFlash 4010, Германия). Минеральный состав проб изучался методом рентгенофазового анализа на порошковом дифрактометре (фирма Bruker D2 Phaser).

На основании полученных результатов исследований твердой фазы рассчитывались эколого-геохимические

показатели (пылевая нагрузка ( $P_n$ ), коэффициенты концентрации ( $K_c$ ) и суммарный показатель загрязнения ( $Z_c$ )) в соответствии с методическими рекомендациями [29, 35, 36].

Пылевую нагрузку ( $P_n$ , мг/(м<sup>2</sup>·сут.)) находили по формуле (1):

$$P_n = \frac{P_0}{S \cdot t}, \quad (1)$$

где  $P_0$  – масса твердой фазы снежного покрова, мг;  $S$  – площадь снежного шурфа, м<sup>2</sup>;  $t$  – количество суток от начала снегостава до дня отбора проб.

Фоновый уровень пылевой нагрузки принят в соответствии с ранее выполненными исследованиями [31, 32] – 7 мг/(м<sup>2</sup>·сут.).

Для выявления уровня содержаний химических элементов относительно фона в твердой фазе снежного покрова рассчитывали коэффициенты концентрации ( $K_c$ ) по формуле (2):

$$K_c = \frac{C}{C_\phi}, \quad (2)$$

где  $C$  – содержание элемента в пробе, мг/кг;  $C_{\phi}$  – фоновое содержание элемента, мг/кг; в качестве фоновых уровней приняты оценки, ранее нами выполненные и опубликованные [37, 38].

По полученным значениям коэффициентов концентрации по формуле (3) определяли суммарный показатель загрязнения ( $Z_c$ ):

$$Z_c = \sum K_c - (n-1), \quad (3)$$

где  $K_c$  – коэффициенты концентраций;  $n$  – количество элементов, принимаемых в расчете при  $K_c \geq 1,5$ .

По полученным значениям пылевой нагрузки и суммарного показателя загрязнения устанавливались уровни загрязнения территории и экологической опасности в соответствии с методическими рекомендациями [29, 35, 36] (табл. 1).

**Таблица 1.** Уровни загрязнения и опасности в зависимости от значений пылевой нагрузки ( $P_n$ ) и суммарного показателя загрязнения ( $Z_c$ ) по результатам снегогеохимической съемки [29, 35, 36]

**Table 1.** Gradation by dust load and total pollution index during snow-geochemical survey [29, 35, 36]

$P_n$ , мг/(м <sup>2</sup> ·сут.) mg/(m <sup>2</sup> ·day)	$Z_c$	Уровень загрязнения, уровень опасности Pollution level, hazard level
Менее 250 Less than 250	Менее 64 Less than 64	Низкий, неопасный Low, un-hazardous
251–450	64–128	Средний, умеренно-опасный Medium, moderately hazardous
451–850	128–256	Высокий, опасный High, hazardous
Более 850 Over 850	Более 256 Over 256	Очень высокий, чрезвычайно опасный Very high, highly hazardous

Построение картографического материала осуществлялось в программном обеспечении «Surfer 11» методом Natural Neighbor, а доработка карт проводилась в ПО «Corel Draw X7». Статистическая обработка данных (описательная статистика, проверка принадлежности статистических гипотез распределения, кластерный анализ, корреляционный анализ (параметрические критерии, коэффициенты парных корреляций Пирсона  $r$ ) производилась в программном комплексе Statistica 8.0 с использованием учебного пособия [39]. В качестве средних величин пылевой нагрузки и содержания химических элементов в пробах использованы среднеарифметические значения.

#### Результаты и их обсуждение

**Пылевая нагрузка.** По результатам исследований установлено, что уровни пылевой нагрузки в районе расположения цементного завода в г. Искитим изменяются в широком диапазоне (от 57 до 1028 мг/(м<sup>2</sup>·сут.), многократно превышая фоновые показатели – в 8 раз в жилой зоне и до 147 раз вблизи границ предприятия (табл. 2, рис. 3). Среднее значение пылевой нагрузки в окрестностях цементного завода составляет 318 мг/(м<sup>2</sup>·сут.), что превышает фоновый уровень в 45 раз.

В север-северо-западном направлении от цементного завода и в районе карьера по добыче сырьевых материалов формируются средние уровни пылевого

загрязнения, соответствующие умеренно-опасной экологической опасности. Выявленная тенденция может быть обусловлена пылением в результате добычи и переработки сырья, обжига клинкера, производства и отгрузки цемента.

В юго-восточной и жилой зонах установлены низкие уровни пылевой нагрузки. Похожая закономерность в формировании уровней пылевой нагрузки ранее выявлена в окрестностях цементного завода, расположенного в Кемеровской области [40].

**Таблица 2.** Средние уровни пылевой нагрузки ( $P_n$ , мг/(м<sup>2</sup>·сут.) в зоне влияния цементного завода г. Искитим

**Table 2.** Average values of dust load in zones of influence of a cement plant in Iskitim

Зона (расстояние до границ предприятия) Zone (distance to the borders of the plant)	$P_n$ , мг/(м <sup>2</sup> ·сут.) mg/(m <sup>2</sup> ·day)	Уровень загрязнения, уровень опасности Pollution level, hazard level [26, 32, 33]
Север-северо-западная (от 0,5 до 2,8 км) North-northwest (from 0,5 to 2,8 km)	412,9 ( $\frac{78}{1028}$ )	Средний, умеренно-опасный Medium, moderately hazardous
От границ предприятия к карьеру (от 0,7 до 1,7 км) From the plant boundaries to the open pit (from 0,7 to 1,7 km)	419,4 ( $\frac{144}{932}$ )	Средний, умеренно-опасный Medium, moderately hazardous
Юго-восточная (от 1,3 до 1,4 км) Southeastern (from 1,3 to 1,4 km)	155,9 ( $\frac{126}{185}$ )	Низкий, неопасный Low, un-hazardous
Жилая (вблизи завода – от 1,1 до 1,4 км) Residential (near the cement plant – from 1,1 to 1,4 km)	72,9 ( $\frac{57}{102}$ )	Низкий, неопасный Low, un-hazardous

Примечание: среднее ( $\frac{\text{мин}}{\text{макс}}$ ); фон – 7 мг/(м<sup>2</sup>·сут.) [34, 35].

Note: average ( $\frac{\text{min}}{\text{max}}$ ); background – 7 mg/(m<sup>2</sup>·day) [34, 35].

По мере удаления от границ завода на расстояние от 0,5 до 2,8 км в север-северо-западном направлении уровни пылевой нагрузки уменьшаются от 1028 до 78 мг/(м<sup>2</sup>·сут.) (рис. 2).

Наибольшие уровни пылевой нагрузки (1028 мг/(м<sup>2</sup>·сут.)) формируются в 0,5 км в север-северо-западном направлении от границ завода, а также в районе карьера (932 мг/(м<sup>2</sup>·сут.)) по добыче сырьевых компонентов, где уровень загрязнения изменяется от среднего до очень высокого (рис. 2). При удалении от завода на расстояние от 1,0 до 2,8 км значения пылевой нагрузки уменьшаются от 191 до 78 мг/(м<sup>2</sup>·сут.) и соответствуют низкому уровню загрязнения.

Наши результаты по распределению пылевой нагрузки сопоставимы с данными исследований новосибирских ученых [5], которые установили, что максимум выпадений неорганической пыли происходит в 450 м от основных источников и наибольшее распространение веществ наблюдается в северо-западном направлении от цементного завода вдоль долины р. Бердь. Такое распределение пыли связывают с возможным влиянием возвышенных форм рельефа, усилением скорости ветра по мере приближения к реке.



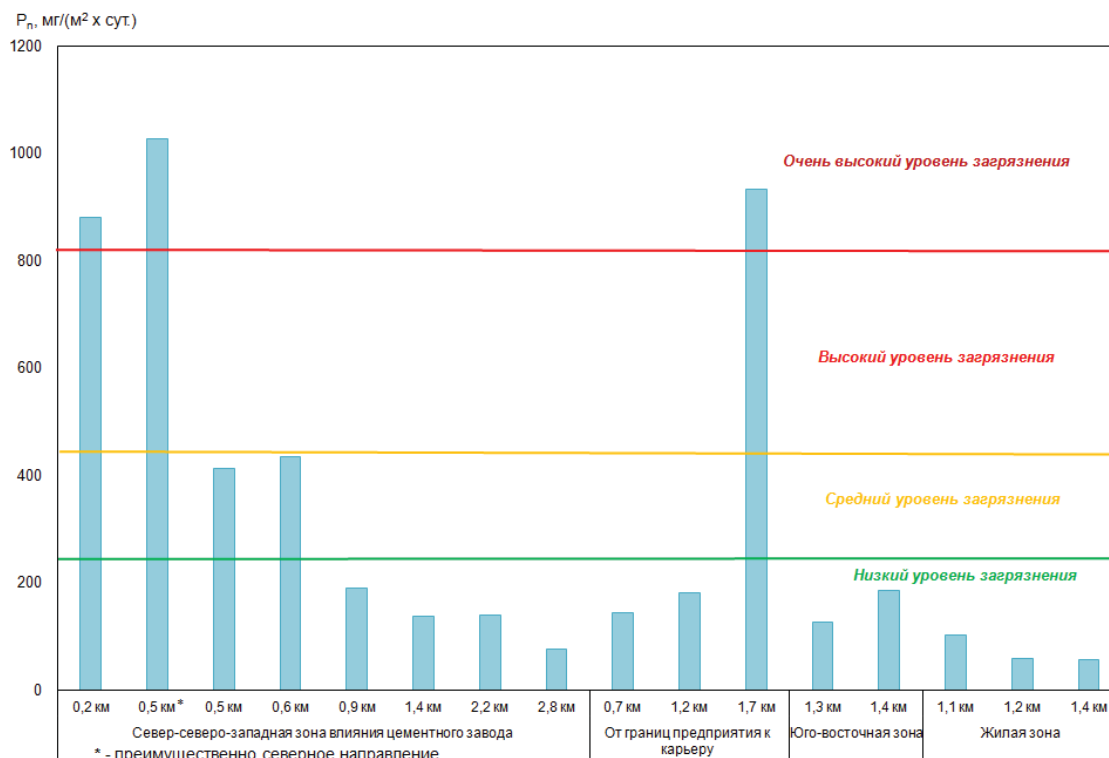


Рис. 2. Уровни пылевой нагрузки по мере удаления от границ цементного завода г. Искитим по данным снеговой съёмки

Fig. 2. Values of the dust load as it moves away from the boundaries of the cement plant according to snow survey data

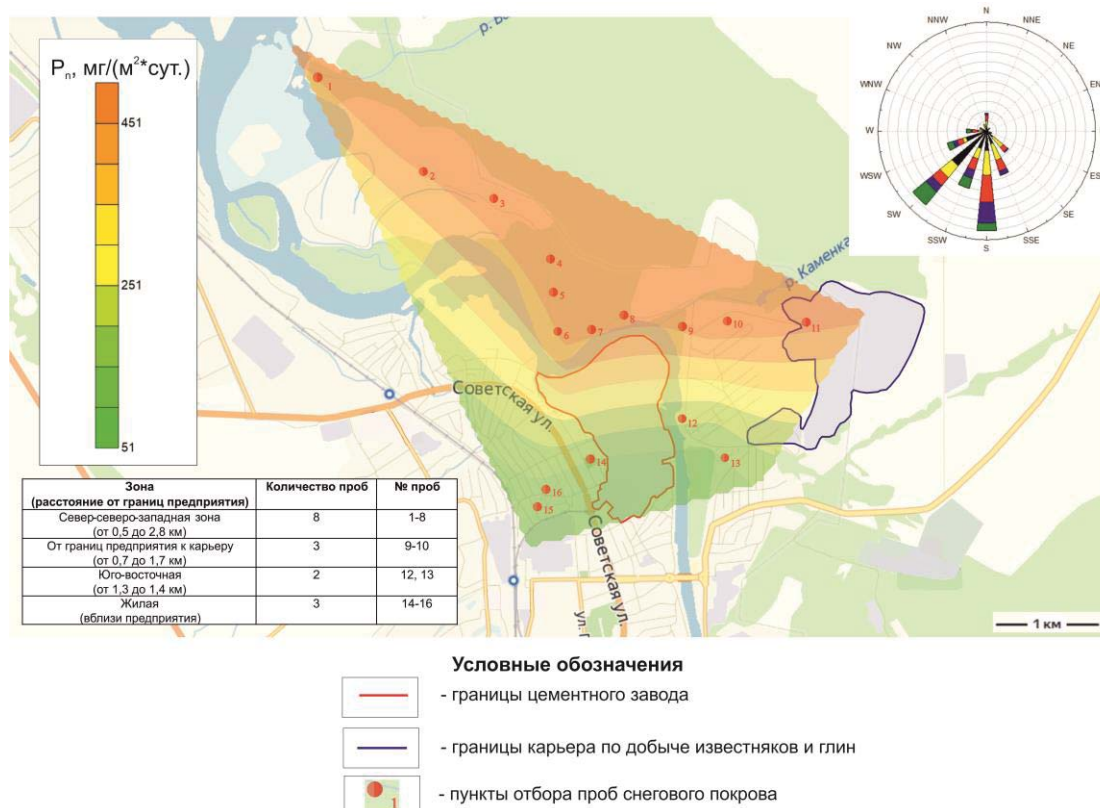


Рис. 3. Распределение пылевой нагрузки в зоне влияния цементного завода г. Искитим по данным снеговой съёмки (основа карты – Яндекс-карты; зимняя «роза» ветров построена в программе Origin, цветом обозначены скорость ветра)

Fig. 3. Distribution of dust load in the zone of influence of a cement plant in Iskitim, Novosibirsk Region (winter wind rose was created by the author in the Origin program, colors indicate wind speed)



*Минеральный состав твердой фазы снегового покрова.* Твердая фаза снегового покрова из зоны влияния цементного завода представлена кристаллической фазой, содержание которой изменяется от 82,4 до 93,0 %, а также аморфной фазой – от 7,0 до 17,6 %, соответственно. Кристаллическая фаза представлена минералами цементного клинкера – хатруритом (трехкальциевый силикат (алит)  $(Ca_3(SiO_4)O)$ ) и браунмиллеритом (алюмоферрит кальция  $(Ca_2(Al,Fe)_2O_5)$ ), а также кальцитом  $(CaCO_3)$ , кварцем  $(SiO_2)$  и магнезитом  $(MgCO_3)$  (табл. 3).

**Таблица 3.** Минеральный состав твердой фазы снегового покрова из зоны влияния цементного завода г. Искитим, %

**Table 3.** Mineral composition of solid phase snow cover samples from the zones of influence of the cement plant in Iskitim, %

Минерал/Зона Mineral/Zone	Содержание/Content, %		
	Север-северо-западная зона (от 0,5 до 2,8 км) North-northwest zone (from 0,5 to 2,8 km)	От границ предприятия к карьеру (от 0,7 до 1,7 км) From the plant to the open pit (from 0,7 to 1,7 km)	Юго-восточная (от 1,3 до 1,4 км) Southeast (from 1,3 to 1,4 km)
Кристаллическая фаза Crystal phase	84,5 ( $\frac{82,4}{85,9}$ )	90,1 ( $\frac{87,4}{93,0}$ )	89,0
Аморфная фаза Amorphous phase	15,5 ( $\frac{14,1}{17,6}$ )	9,9 ( $\frac{7,0}{14,1}$ )	11,0
Минералы кристаллической фазы Minerals of the crystalline phase			
Кальцит/Calcite $(CaCO_3)$	64,8 ( $\frac{59,2}{75,1}$ )	93,0 ( $\frac{89,8}{97,6}$ )	90,5
Кварц/Quartz $(SiO_2)$	3,4 ( $\frac{1,7}{6,0}$ )	4,3 ( $\frac{2,4}{5,5}$ )	5,2
Браунмиллерит Brownmillerite $(Ca_2(Al, Fe)_2O_5)$	8,7 ( $\frac{7,5}{11,4}$ )	4,0 ( $\frac{3,3}{4,7}$ )	4,3
Хатрурит/Natruirite $(Ca_3(SiO_4)O)$	27,6	–	–
Магнезит/Magnesite $(MgCO_3)$	7,6	–	–

*Примечание/Note:* среднее ( $\frac{min}{max}$ )/average ( $\frac{min}{max}$ ).

В твердой фазе снегового покрова выявлено преобладание кальцита – основного минерала известняка, который добывается на близко расположенном карьере. Район карьера по добыче известняков и глин представлен максимальными содержаниями кальцита  $(CaCO_3)$ , которые уменьшаются по мере отдаления от карьера.

В небольшом количестве в твердой фазе снегового покрова выделяются такие минералы, как кварц  $(SiO_2)$  и магнезит  $(MgCO_3)$ , который в виде примеси входит в состав известняка. Твердая фаза снегового покрова отличается наличием хатрурита в север-северо-западной зоне и небольшими содержаниями браунмиллерита во всех исследуемых направлениях. Минералы цементного клинкера имеют особенности минерального состава, которые зависят от условий обжига. Содержание примесей в кристаллах хатрури-

та могут колебаться в широких пределах:  $Al_2O_3$  (от 0,4 до 1,8 %),  $MgO$  (от 0,3 до 2,1 %),  $Fe_2O_3$  (от 0,2 до 1,9 %) и др. Браунмиллерит может включать в свою кристаллическую решетку посторонние оксиды, а ферритная фаза алюмоферрита кальция не обладает определенным химическим составом, а образует твердые растворы с переменным соотношением оксидов  $Al_2O_3/Fe_2O_3$  [41].

Стоит отметить, что аналогичным минеральным составом характеризуются пробы твердой фазы снега из зоны влияния цементного завода г. Топки, в которых также нами были обнаружены минералы кальцита, кварца и цементного клинкера [39]. Анализ минерального состава пыли, улавливаемой при очистке выбросов печей для обжига клинкера на заводе, показал, что пыль представлена преимущественно неорганической фазой и состоит из кварца  $(SiO_2)$ , кальцита  $(CaCO_3)$  и доломита  $(Ca, Mg)CO_3$ , а также браунмиллерита  $(Ca_2(Al, Fe)_2O_5)$ , хатрурита  $(Ca_3(SiO_4)O)$  [39].

*Геохимическая характеристика твердой фазы снегового покрова.* Твердая фаза снегового покрова из окрестностей цементного завода характеризуется широким диапазоном содержаний химических элементов (рис. 4) с проявлением точечных аномалий в пробах с высокими значениями.

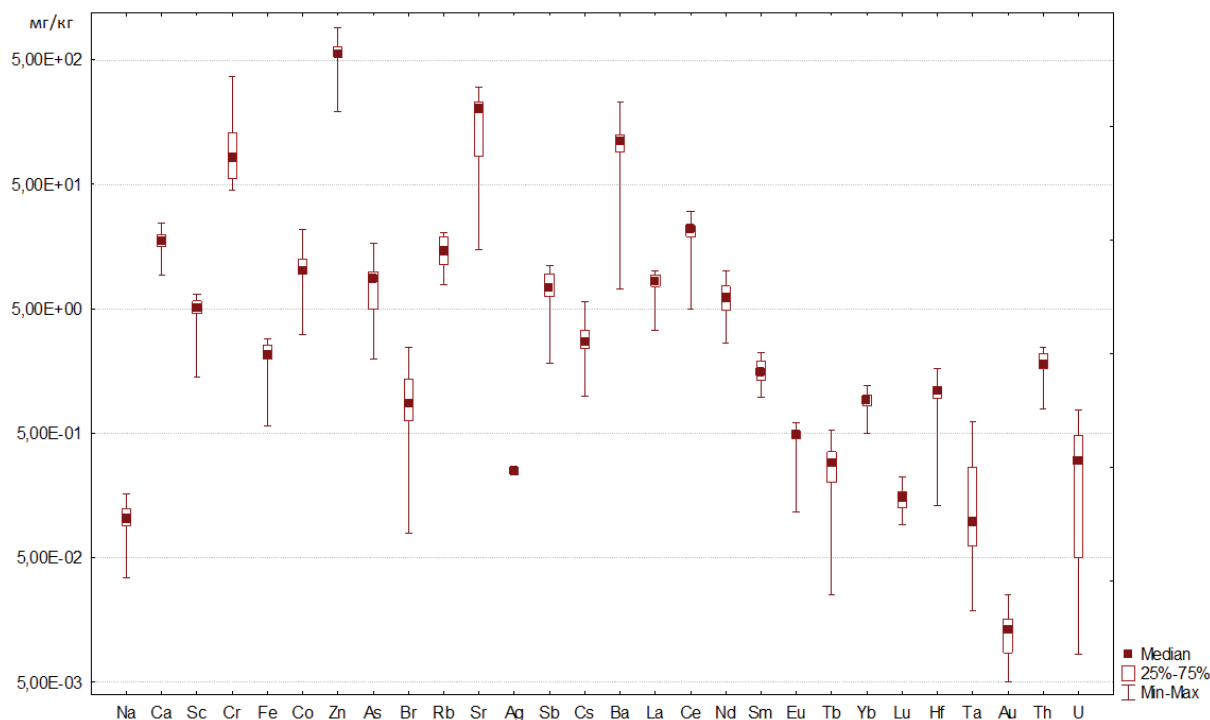
Содержание химических элементов в твердой фазе снегового покрова превышает фоновые значения от 2 до 29,7 раз. Определено, что кальций (Ca) ( $K_c=29,7$ ), иттербий (Yb), тербий (Tb), цинк (Zn), олово (Sb), лантан (La) ( $K_c$  от 3,1 до 5,7) составляют группу с высоким накоплением элементов (табл. 4). Максимальные содержания кальция (Ca) ( $K_c$  от 23,7 до 29,7) определены на расстоянии в 0,5 км от границ предприятия, по мере удаления от границ предприятия содержания кальция в пробах твердой фазы снегового покрова незначительно уменьшаются – от 1,1 до 2,6 раз (рис. 7). В север-северо-западном направлении содержания кальция превышают фоновые показатели в среднем в 20,7 раз, по направлению к карьере по добыче сырьевых компонентов – в 23,2 раза; в юго-восточном – в 22 раза. Жилая зона характеризуется наименьшими содержаниями кальция в выборке, превышающими фон в среднем в 14,6 раз. Отмечается корреляционная связь между кальцием и пылевой нагрузкой ( $r=0,72$ ), что также подтверждается их схожим пространственным распределением в зоне воздействия завода (рис. 5). На расстоянии 2,2–2,8 км от границ предприятия выявлено высокое накопление иттербия (Yb) ( $K_c$  6,1 и 5,4), тербия (Tb) ( $K_c$  5,0 и 6,4), лантана (La) ( $K_c=3,5$ ). Значения остальных химических элементов находятся в твердой фазе снегового покрова в пределах фона.

Суммарный показатель загрязнения ( $Z_c=46,1$ ) соответствует низкому уровню загрязнения с неопасной экологической ситуацией в соответствии с градацией [29] (табл. 4).

Наибольшие значения коэффициентов концентрации выделяются у кальция, превышающего фон от 23,7 до 29,7 раз, особенно в направлении карьера по добыче сырьевых компонентов для производства цемента. Кальций может поступать в атмосферный воздух в результате буровзрывных работ, осуществляе-

мых для добычи известняка. Кальций содержится в основном компоненте сырьевой смеси для производства цемента – известняке, в состав которого входит

кальцит ( $\text{CaCO}_3$ ), что подтверждается результатами анализа элементного состава твердой фазы снегового покрова (рис. 4).



**Рис. 4.** Диаграмма размаха содержаний химических элементов в твердой фазе снегового покрова в окрестностях цементного завода г. Искитим (содержание Na, Ca, Fe – в %, остальные химические элементы – в мг/кг)

**Fig. 4.** Diagram of the range of the content of chemical elements in the samples of the solid phase of the snow cover near the cement plant (content of Na, Ca, Fe – in %, other chemical elements – in mg/kg)

**Таблица 4.** Геохимическая характеристика твердой фазы снегового покрова и суммарный показатель загрязнения в зоне влияния цементного завода г. Искитим

**Table 4.** Geochemical characteristics of samples of snow cover solid phase and the value of the total pollution index in samples in the zones of influence of the Iskitim cement plant

Зона (расстояние до границ предприятия) Zone (distance to the borders of the plant)	Геохимический ряд элементов по величинам $K_c$ Geochemical series of elements by $K_c$ values	$Z_c$	Уровень загрязнения, уровень опасности Pollution level, hazard level [29, 35, 36]
Север-северо-западная (от 0,5 до 2,8 км) North-northwest (from 0,5 to 2,8 km)	$\text{Ca}_{22,9}\text{-Yb}_{5,2}\text{-Tb}_{4,7}\text{-Zn}_{4,3}\text{-Sb}_{3,9}\text{-La}_{3,1}\text{-Sm}_{2,7}\text{-U}_{2,3}\text{-Ce}_{2,0}$	54 ( $\frac{38}{58}$ )	Низкий, неопасный Low, un Hazardous
От границ предприятия к карьере (от 0,7 до 1,7 км) From the plant to the open pit (from 0,7 to 1,7 km)	$\text{Ca}_{23,2}\text{-Tb}_{4,0}\text{-Yb}_{3,6}\text{-Zn}_{3,3}\text{-Sb}_{2,3}\text{-Sm}_{2,2}\text{-La}_{2,1}\text{-Ce}_{1,7}$	51 ( $\frac{28}{47}$ )	
Юго-восточная (от 1,3 до 1,4 км) Southeastern (from 1,3 to 1,4 km)	$\text{Ca}_{22,0}\text{-Tb}_{7,0}\text{-Zn}_{4,3}\text{-Yb}_{4,3}\text{-Sm}_{3,4}\text{-La}_{3,0}\text{-Sr}_{2,7}\text{-Sb}_{2,7}\text{-Ce}_{2,5}$	53 ( $\frac{44}{56}$ )	
Жилая (вблизи завода) Residential (near the factory)	$\text{Ca}_{14,6}\text{-Zn}_{7,4}\text{-Tb}_{3,9}\text{-Yb}_{3,8}\text{-Sm}_{3,5}\text{-La}_{3,1}\text{-Sb}_{2,8}\text{-Sr}_{2,1}\text{-Ce}_{1,9}\text{-Cr}_{1,7}$	47 ( $\frac{37}{44}$ )	

Примечание: представлены химические элементы с  $K_c \geq 1,5$ ; среднее ( $\frac{\text{МИН}}{\text{МАКС}}$ ).

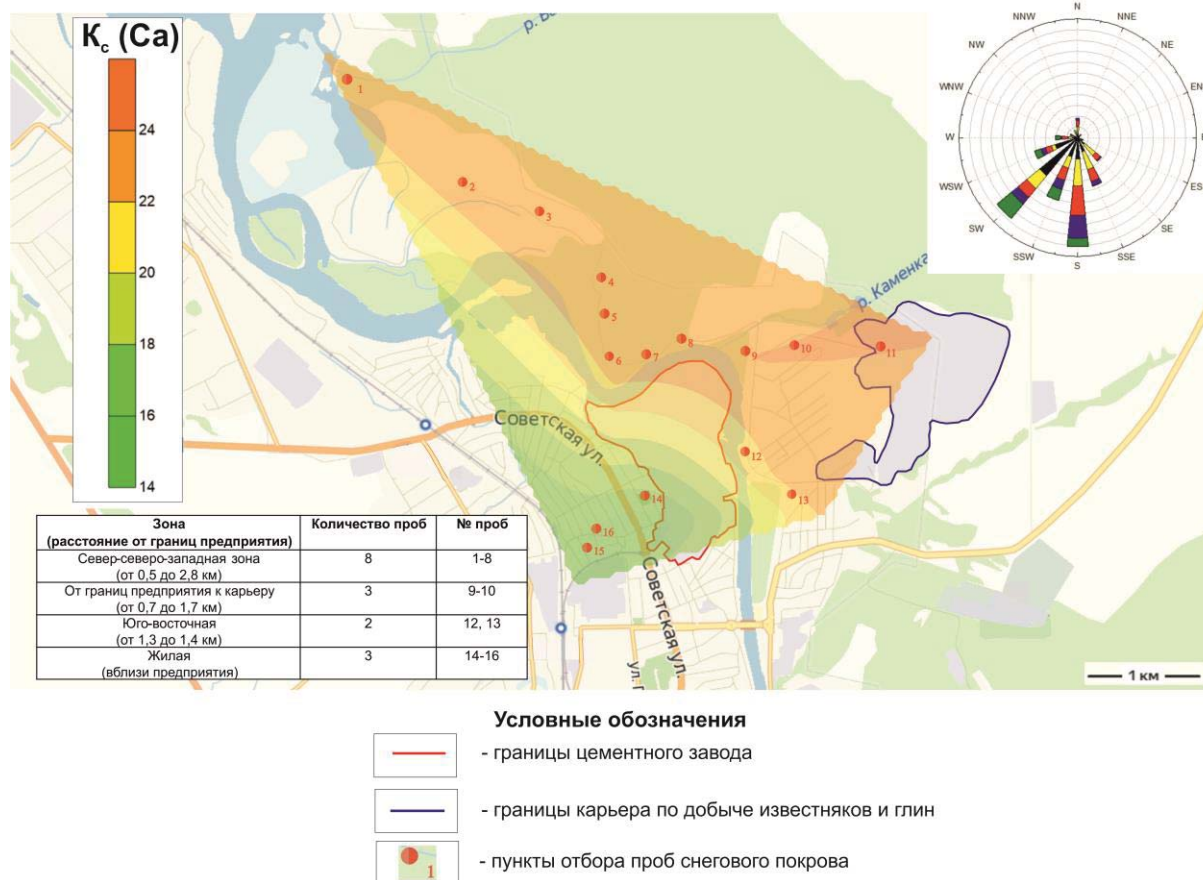
Note: chemical elements with  $K_c \geq 1,5$  are presented; average ( $\frac{\text{МИН}}{\text{МАКС}}$ ).

По результатам корреляционного анализа в пробах твердой фазы снегового покрова выявлены коэффициенты корреляции ( $r$ ) между химическими элементами, которые показывают степень связи между химическими элементами и могут указывать на их единые источники

поступления (рис. 6). Наибольшее количество корреляций имеют Fe, Co, Zn, Ba, La, Sm, Lu, Th. Редкоземельные элементы образуют корреляционные связи преимущественно внутри группы. Примерами таких корреляций являются La и Sc ( $r=0,93$ ), Sm и Lu ( $r=0,84$ ), Yb и

La ( $r=0,60$ ), Sm и La ( $r=0,62$ ) и другие. Перечисленные химические элементы входят в состав сырьевых добавок:

в шлаке – La (92,2 мг/кг), Yb (3,5 мг/кг), Lu (0,4 мг/кг), в глине – Sc (22,2 мг/кг) и Sm (5,7 мг/кг).



**Рис. 5.** Карта-схема распределения кальция по значениям коэффициентов концентрации в зоне влияния цементного завода г. Искитим (основа карты – Яндекс-карты; зимняя «роза» ветров построена в программе Origin, цветом обозначены скорость ветра)

**Fig. 5.** Concentration coefficient of calcium distribution map in the zones of influence of the cement plant (winter wind rose was created by the author in the Origin program, colors indicate wind speed)

В матрице корреляционных связей выделяются отрицательные связи ( $r$  от  $-0,5$  до  $-0,58$ ) между Ca и некоторыми маркерными элементами (Na, Cr) для выбросов цементных заводов, которые представлены в справочнике НДТ [42], а также с Vg и Th. Это может свидетельствовать о разных формах нахождения этих элементов в твердой фазе снегового покрова и о различных источниках их поступления, в частности используемых сырьевых компонентов. Как отмечалось выше, Ca – это основной компонент известняка. Например, высокие концентрации Cr определены в огарках (254 мг/кг), а Th – в шлаке (7,2 мг/кг). Положительная связь обнаружена между U и Ca ( $r=0,62$ ). Следует отметить, что в химический состав шлака входят как U (17,4 мг/кг), так и Ca (27,5 %), что может объяснять ассоциацию между этими элементами.

Ранее отмечалось, что в справочнике по наилучшим доступным технологиям [42] представлены элементы-маркеры выбросов производства цемента, к которым относятся барий (Ba), хром (Cr), мышьяк (As), кальций (Ca), железо (Fe), сурьма (Sb), цинк (Zn), натрий (Na). Данная группа химических элементов образует характерные корреляции между собой и

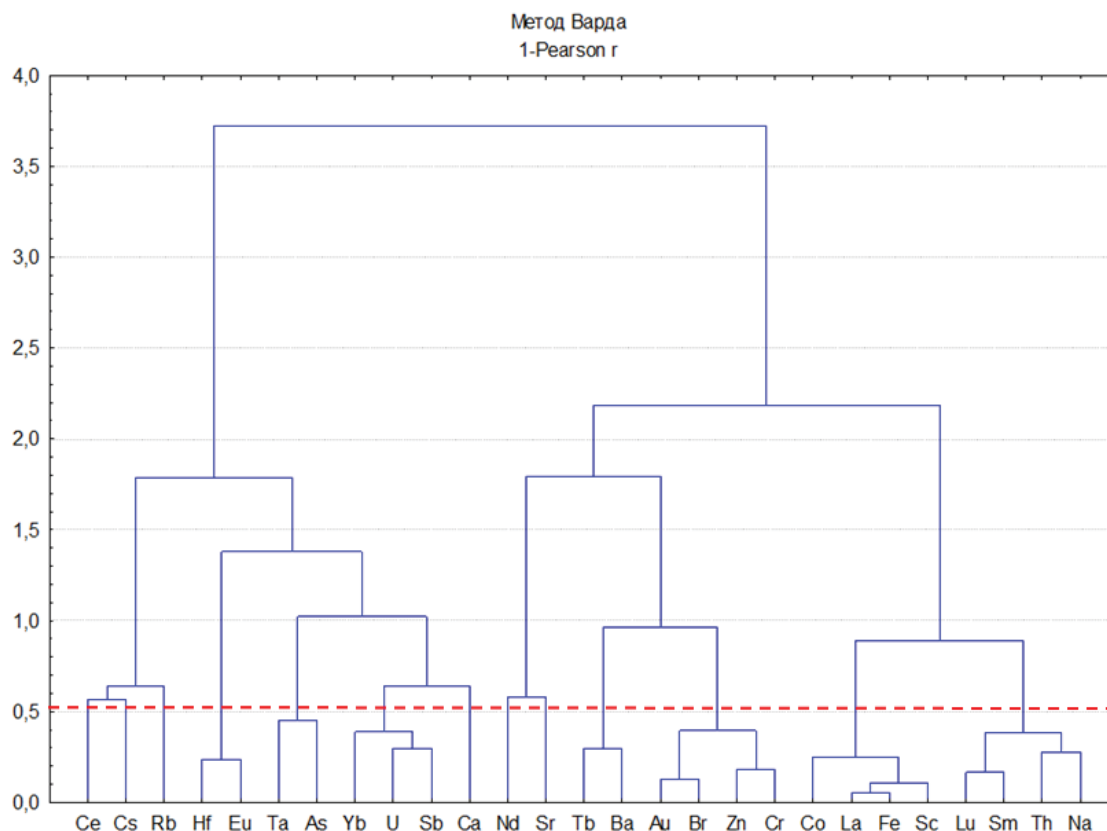
другими химическими элементами. Например, As-Ta, Yb-U-Sb, Tb-Ba, Zn-Cr, Th-Na, Fe-La (рис. 6).

Исследования химического состава сырья (глина, известняк) и корректирующих добавок для производства цемента (огарки, шлак) позволили сделать предположение о поступлении некоторых химических элементов в окружающую среду в составе твердых частиц в результате применения данных сырьевых компонентов (рис. 7). Например, источником U, Th, Yb, Tb, La может быть шлак, а As, Sb, Ba, Zn, Cr, Fe – пиритные огарки. Вероятно, этим можно объяснить сильные геохимические связи между перечисленными химическими элементами. К химическим элементам, не образующим корреляций, относятся Cs, Rb, Nd.

Кластерный анализ выделяет группы характерных связей между химическими элементами. Графические результаты кластерного анализа микроэлементов (рис. 6) демонстрируют устойчивое разбиение 26 химических элементов на 7 значимых кластеров.

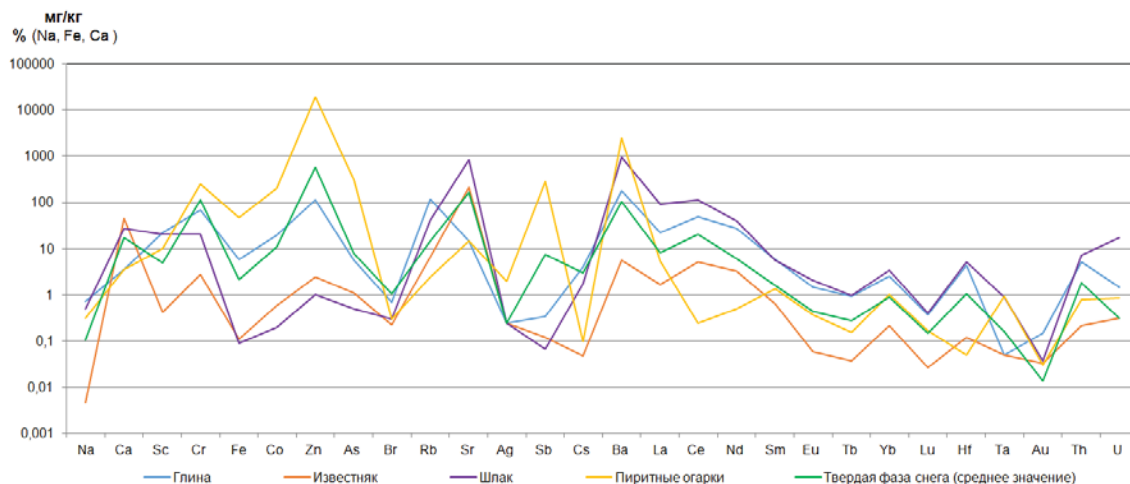
Кластеры с характерными геохимическими связями образованы преимущественно редкоземельными химическими элементами, что может указывать на единый источник их поступления. Обращает на себя

внимание кальций, который не входит ни в один из образованных кластеров при уровне значимости  $r_{0,07}=0,51$ , вероятно, из-за преобладания его содержания в пробах твердой фазы снегового покрова.



**Рис. 6.** Дендрограмма корреляционной матрицы геохимического спектра элементов в твердой фазе снегового покрова в зоне влияния цементного завода г. Искитим (1-Pearson  $r_{0,07}=0,51$ ; объем выборки – 16 проб)

**Fig. 6.** Dendrogram of the correlation matrix of the geochemical spectrum of elements in the solid phase of snow cover in the zone of influence of the cement plant in Iskitim (1-Pearson  $r(0,07)=0,51$ ; 16 samples)



**Рис. 7.** Сравнение химических составов сырьевых компонентов, корректирующих добавок для производства цемента, проб твердой фазы снегового покрова

**Fig. 7.** Comparison of elemental compositions of raw materials, corrective additives for cement production, samples of snow cover solid phase

Положение Ca в графических результатах факторного анализа также указывает на выявленную нами минеральную форму его нахождения (кальцит ( $\text{CaCO}_3$ )) в составе твердой фазы снегового покрова (рис. 8). Рассмотрение факторных нагрузок 1 и 2 свя-

зано с тем, что они имеют наибольшее количество корреляций. Предположительно, механизм формирования факторов 1 и 2 зависит от химического состава корректирующих добавок (фактор 1) и использования главных сырьевых компонентов – известняка (фак-



тор 2). На рис. 8 показано, что фактор 1 (34,88 %) оказывает наибольшее влияние на La, Ba, Sm, Na, Cr, Fe, Th, Zn, Lu, Br. Фактор 2 (18,90 %) влияет преимущественно на Ca.

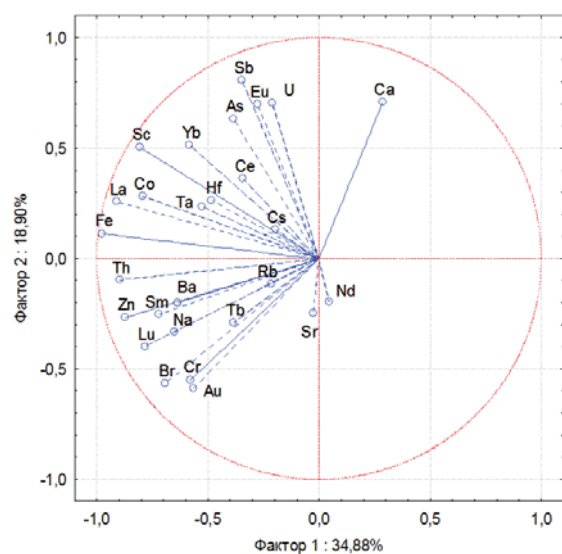


Рис. 8. Значения вращаемых факторных нагрузок в твердой фазе снегового покрова в зоне влияния цементного завода г. Искитим

Fig. 8. Values of rotated factor loads in samples of snow cover solid phase in the zone of influence of the cement plant in Iskitim

Элементы-индикаторы выбросов производства цемента по мере отдаления от границ предприятия в северо-западном направлении и по направлению к карьере по добыче сырьевых материалов имеют сходный характер распределения (рис. 9). На расстоя-

нии 1,7 км от границ цементного завода все химические элементы, кроме кальция, имеют тенденцию к снижению содержаний от 3 до 19 раз в пробах твердой фазы снегового покрова. Вероятно, такое распределение химических элементов связано с добычей известняка, в процессе которой происходит активное пыление, и формируются более высокие содержания кальция по сравнению с другими химическими элементами.

Таким образом, техногенная геохимическая специализация твердой фазы снегового покрова в зоне влияния цементного завода определяется уровнями накопления элементов-индикаторов производства цемента (Ca, Ba, Cr, As, Fe, Sb, Zn, Na) и Yb, Tb, Sb, La, Sm, U, Ce. Данные химические элементы в составе атмосферных выпадений могут поступать в снеговой покров в результате применения различных корректирующих добавок для производства цемента (шлак, песок, трифолин и другие) [43]. Глинистые породы, являющиеся одним из основных компонентов для производства цемента, могут аккумулировать данные химические элементы и привносить их в сырьевую смесь в качестве примесей [44, 45]. По данным [38], элементный состав цементной пыли представлен такими химическими элементами, как U, Yb, Ba, Ca, Hf, Sr, Tb, La, Ta, Sm, Ce, Th, Na. Причём большая доля La, Ce, Eu и Yb сосредоточена в немагнитной фракции цементной пыли. Не исключается возможность поступления перечисленных химических элементов в окружающую среду в результате дальнего переноса при сжигании угля с выбросами котельных или при печном отоплении жилых домов в г. Искитим. Так, угли Кузнецкого бассейна характеризуются редкометальной геохимической специализацией [46].

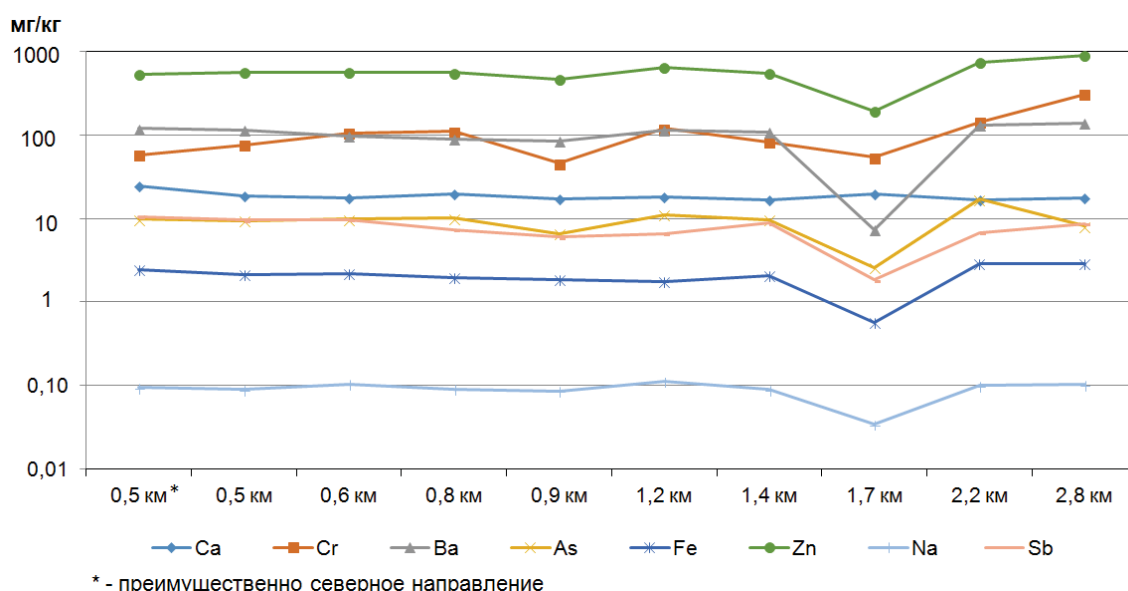
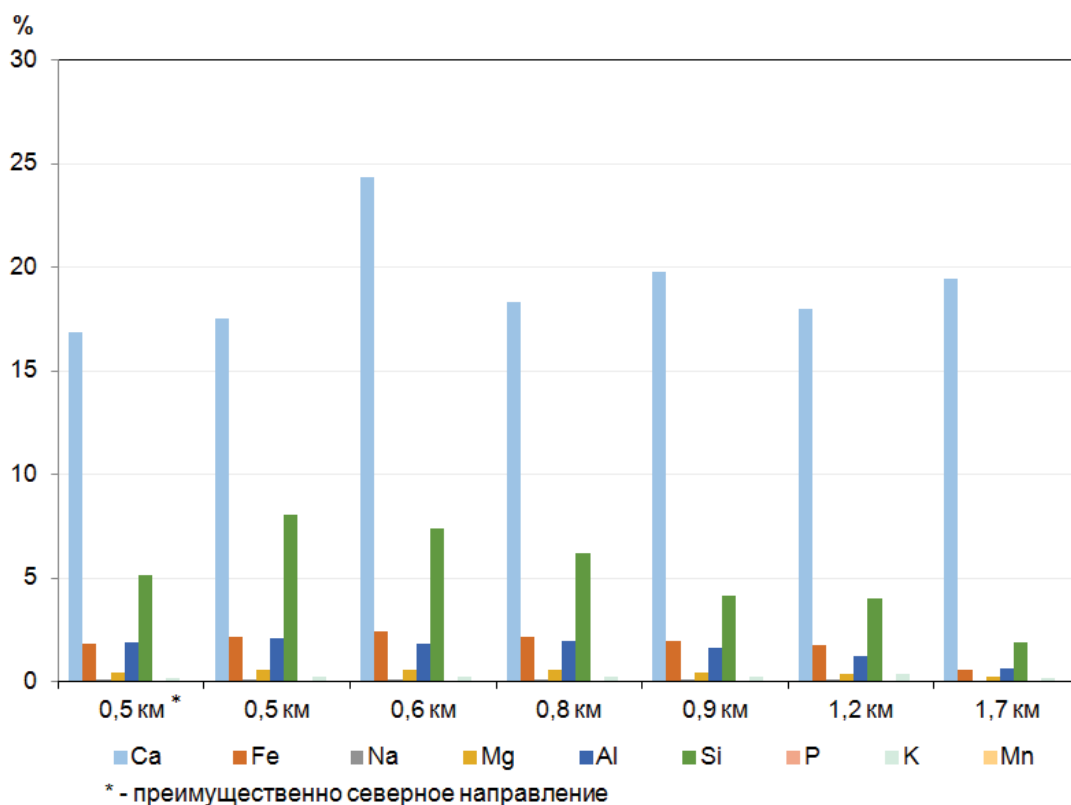


Рис. 9. Распределение элементов-индикаторов производства цемента в твердой фазе снегового покрова по мере удаления от цементного завода г. Искитим в северо-западном направлении и в направлении к карьере (натрий (Na), железо (Fe), кальций (Ca) – в %, остальные химические элементы – в мг/кг)

Fig. 9. Distribution of elements-indicators of cement production in snow cover solid phase with distance from the cement plant in the north-west direction and towards the open pit (sodium (Na), iron (Fe), calcium (Ca) – in %, other chemical elements – in mg/kg)

Согласно литературным данным [41], при оценке химического состава клинкера происходит разделение химических элементов на основные и второстепенные. Основными химическими элементами клинкера являются Ca, Si, Al, Fe (концентрация в клинкере до  $10^3$  мас. %), а второстепенные представлены Mg, Mn, K, Na, P, K (концентрация в клинкере до  $10^1$  мас. %). Химический состав портландцемента отличается наличием основных элементов – Ca, Si, Al, Fe (концентрация в клинкере до  $10^3$  мас. %) и второ-

степенных элементов – Mg, Mn, K, Na, P, K (концентрация в клинкере до  $10^1$  мас. %) [41]. Основные элементы в пробах твердой фазы снегового покрова имеют преобладающие значения над второстепенными элементами, что соответствует литературным данным, приведенным выше. Наибольшие значения содержания химических элементов наблюдаются в твердой фазе снегового покрова на расстоянии до 0,5 км от границ предприятия (рис. 10).



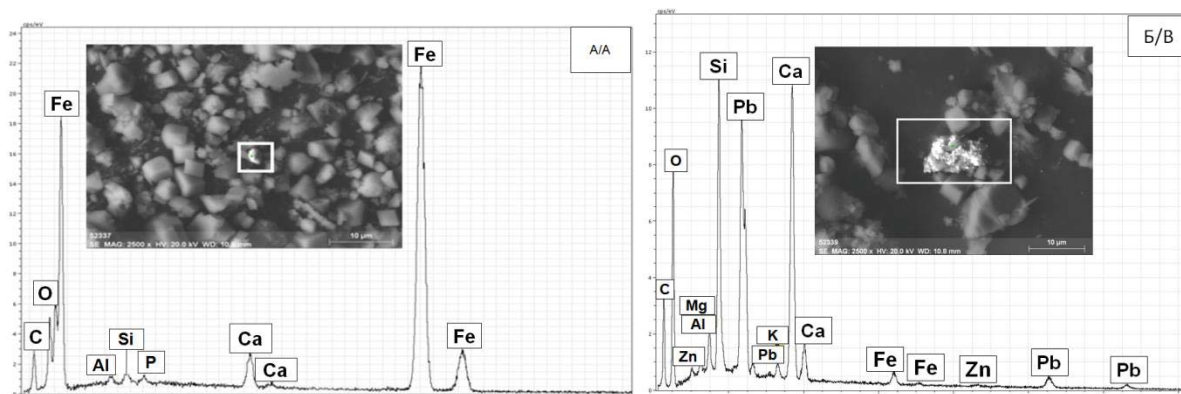
**Рис. 10.** Распределение основных и второстепенных химических элементов, содержащихся в твердой фазе снегового покрова, по мере удаления от цементного завода в северо-западном направлении, % (кальций (Ca), железо (Fe), натрий (Na) – инструментальный нейтронно-активационный анализ; магний (Mg), алюминий (Al), кремний (Si), фосфор (P), калий (K), марганец (Mn) – масс спектрометрия с индуктивно-связанной плазмой)

**Fig. 10.** Distribution of the main and secondary chemical elements in the samples of snow cover solid phase as it moves away from the cement plant in the north-west direction, % (Ca, Fe, Na – instrumental neutron activation analysis; Mg, Al, Si, P, K, Mn – inductively coupled plasma mass spectrometry)

**Характеристика микрочастиц в твердой фазе снегового покрова.** Результаты изучения состава проб твердой фазы снегового покрова из ближней зоны влияния завода (до 0,5 км) и района расположения карьера методом сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) показали наличие частиц оксидов кальция и железа (рис. 11, а), алюмосиликатных микросферул (рис. 12, а, б), частиц кальциевого состава с примесью Pb и Si (рис. 11, б). В твердой фазе снегового покрова из зоны влияния цементного завода обнаружены частицы, различающиеся размером, составом и формами. В пробе, отобранной в районе карьера, обнаружены частицы, предположительно, кальцита с примесями Si, Mg, Al (рис. 11), а также алюмосиликатные сферулы с примесями K, Ca, Zn.

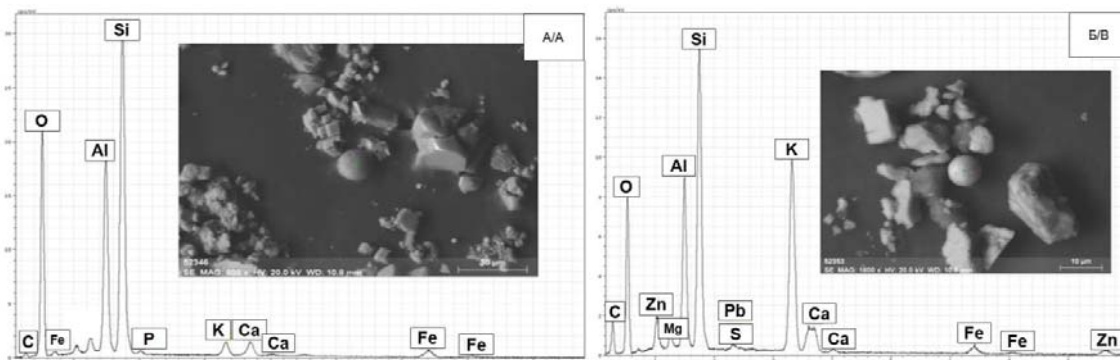
Алюмосиликатные сферулы с примесью Fe, Zn, Pb могут поступать в атмосферный воздух в результате обжига сырьевой смеси, а также сжигания угля.

Химический состав частиц характеризуется преобладающим количеством оксидов Ca, Fe, Al, Si, в качестве примесей встречается Mg. Оксидный состав портландцементного клинкера, согласно [27], представлен оксидами Ca (63–67 %), Si (21–24 %), Al (4–7 %) Fe (3–5 %), а также Mg ( $\leq 5$  %). Элементное картирование позволяет оценить химический состав проб. В результате проведения элементного картирования на одном участке пробы твердой фазы снегового покрова было выявлено, что исследуемое вещество состоит преимущественно из частиц кальциевого состава, в меньших содержаниях выделяются частицы кремниевый и алюминиевый состава (рис. 13).



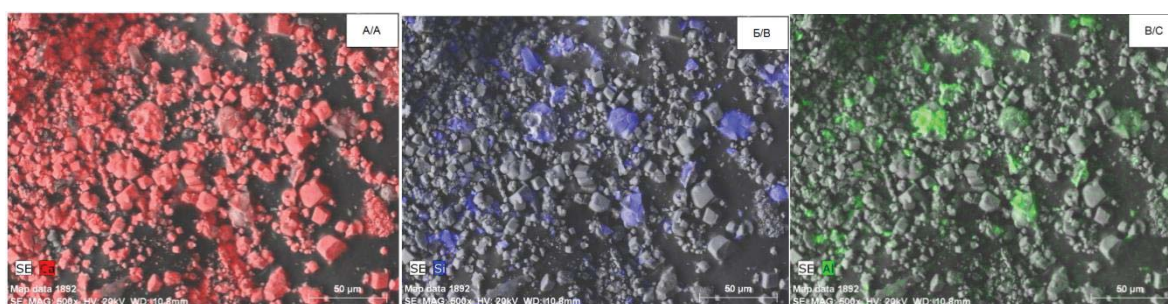
**Рис. 11.** Микроснимки и энергодисперсионные спектры микрочастиц в твердой фазе снегового покрова в зоне влияния цементного завода г. Искитим: А) микрочастица, содержащая оксиды Fe и Ca, размером 2,7 мкм; Б) микрочастица кальциевого состава с примесью Pb и Si, размером 12,4 мкм

**Fig. 11.** Images and energy dispersive spectra of particles in solid phase of snow cover in the zones of influence of the Iskitim cement plant: A) particle of Fe and Ca oxides, size 2,7 μm; B) particle of calcium composition with trace of Pb and Si, size 12,4 μm



**Рис. 12.** Микроснимки и энергодисперсионные спектры алюмосиликатных микросферул в твердой фазе снегового покрова: А) микросферула с примесями Fe размером 16,7 мкм из зоны влияния цементного завода г. Искитим; Б) микросферула с примесями Zn, Pb, S размерами 8,2 мкм из района карьера

**Fig. 12.** Images and energy dispersive spectra of aluminosilicate microspheres in solid phase of snow cover: A) microspherule with Fe impurities measuring 16,7 μm in the zones of influence of the Iskitim cement plant; B) microspherule with Zn, Pb, S impurities measuring 8,2 μm in the open pit area



**Рис. 13.** Элементное картирование участка пробы твердой фазы снегового покрова из север-северо-западной зоны влияния цементного завода г. Искитим: А) Ca; Б) Si; В) Al

**Fig. 13.** Elemental mapping of the sample site of the north-north-west zone of influence of the cement plant: A) calcium mapping; B) silicon mapping; C) aluminum mapping

### Выводы

В результате проведенной оценки пылеаэрозольного загрязнения в окрестностях цементного завода, расположенного в г. Искитим Новосибирской области, по данным изучения уровня пылевой нагрузки, элементного и минерального состава твердой фазы снегового покрова можно сделать следующие выводы:

1. Очень высокий уровень пылевой нагрузки ( $1028 \text{ мг}/(\text{м}^2 \cdot \text{сут.})$ ) формируется на расстоянии 0,5 км от границ предприятия. Величина пылевой нагрузки по мере приближения от границ предприятия к карьере по добыче сырьевых компонентов соответствует среднему уровню загрязнения и составляет  $419 \text{ мг}/(\text{м}^2 \cdot \text{сут.})$ . Среднее значение пы-



- левой нагрузки составляет 196 мг/(м<sup>2</sup>·сут.) на расстоянии от 1,0 до 2,8 км от границ цементного завода в северо-западном направлении, что соответствует низкому уровню загрязнения. Юго-восточная и жилищная зоны рассматриваемой территории характеризуются низким уровнем загрязнения.
2. Минеральная составляющая твердой фазы снегового покрова представлена минералами цементного клинкера – хатрурит (трехкальциевый силикат (алит)) (Ca<sub>3</sub>(SiO<sub>4</sub>)O) и браунмиллерит (алюмоферрит кальция) (Ca<sub>2</sub>(Al, Fe)<sub>2</sub>O<sub>5</sub>), а также минералами сырьевых компонентов – кальцит (CaCO<sub>3</sub>), кварц (SiO<sub>2</sub>) и магнезит (MgCO<sub>3</sub>). При этом в северо-западной зоне влияния отмечается преобладание минералов цементного клинкера.
  3. Геохимическая специализация твердой фазы снегового покрова в окрестностях цементного завода определяется высокими уровнями накопления Ca (от 14 до 23 раз выше фона), Zn, Sr, Sb, Tb, Yb, La, Sm, U (от 2 до 7 раз выше фона). Элементы-индикаторы (Ba, Cr, As, Ca, Fe, Sb, Zn, Na), которые определены в справочнике наилучших доступных технологий как специфичные в составе выбросов цементного производства, в твердой фазе снегового покрова находятся на уровне фона (As, Ba, Na, Fe) или превышают фон от 2 до 29 раз (Cr, Ca, Sb, Zn). Химические элементы образуют между собой корреляционные связи (Zn-Cr, As-Ta, Yb-U-Sb, Tb-Ba, Th-Na, Fe-La), отражающие элементный состав используемого сырья и корректирующих добавок.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. ГОСТ Р 56828.47-2019. Наилучшие доступные технологии. Производство цемента. Выбор маркерных показателей для выбросов в атмосферу от промышленных источников. – М.: Стандартинформ, 2019. – 32 с.
  2. Силосы как цементная бомба // sovplym.ru. URL: <https://sovplym.ru/blogs/filtr-silosa-cementa/> (дата обращения 22.06.2022).
  3. Косорукова О.Е., Крылова О.К. Загрязнение окружающей среды цементной промышленностью // Актуальные проблемы авиации и космонавтики. – 2019. – Т. 2. – С. 495–496.
  4. Морозов С.В., Рапута В.Ф., Коковкин В.В. Оценка выпадений органических и неорганических примесей в окрестностях цементного завода // ИНТЕРЭКСПО ГЕО-Сибирь. – 2019. – Т. 4. – № 1. – С. 113–120.
  5. Мониторинг загрязнения снежного покрова в районе Искитимского цементного завода / А.Ф. Щербатов, В.Ф. Рапута, В.В. Турбинский, В.А. Хмельев, С.Е. Олькин, Т.В. Ярославцева // Дистанц. методы зонд. Земли и фотограмм., мониторинг окр. среды, геокол. (Интерэкспо ГЕО-Сибирь). – 2014. – Т. 1. – С. 163–168.
  6. Леженин А.А., Ярославцева Т.В., Рапута В.Ф. Мониторинг аэрозольного загрязнения снежного покрова на основе наземной и спутниковой информации // Журнал Сибирского федерального университета. Техника и технологии. Серия: Техника и технологии. – 2016. – № 9 (7). – С. 950–959.
  7. Оценка загрязнения атмосферного воздуха пылью по данным снегосъемки на основе реконструкции полей выпадений / А.Ф. Щербатов, В.Ф. Рапута, В.В. Турбинский, Т.В. Ярославцева // Анализ риска здоровью. – 2014. – № 2. – С. 42–47.
  8. Environmental forensic investigation of the air pollution from a cement manufacturing unit / Muhammed Siddik Abdul Samad, Prem Mohan, G.K. Varghese, Irfan Khurshed Shah, Babu J. Alappat // Environmental Forensics. – 2019. – V. 21 (1). – P. 37–47.
  4. Установлен низкий уровень загрязнения снегового покрова 28 химическими элементами в результате расчета суммарного показателя загрязнения и сопоставления полученных значений с общепринятой градацией [26] в зоне влияния цементного завода.
  5. Выявлены микрочастицы оксидов кальция и железа, алюмосиликатные сферулы и частицы кальциевого состава с примесями металлов в твердой фазе снегового покрова. Размеры частиц варьируются от 2,7 до 64,5 мкм. По результатам элементного картирования выявлено преобладание частиц кальциевого состава.
- Авторы выражают благодарность аналитикам ядерно-геохимической лаборатории ТПУ Александру Федоровичу Судыко, Ларисе Васильевне Богутской, директору химико-аналитического центра «Плазма» (г. Томск) Нине Викторовне Федюниной за выполнение лабораторно-аналитических работ по определению химического состава проб твердой фазы снегового покрова, старшему преподавателю ОГ ТПУ, канд. геол.-минерал. наук Сергею Сергеевичу Ильенку за помощь в изучении микрочастиц на сканирующем электронном микроскопе, доценту ОГ ТПУ, канд. геол.-минерал. наук Булату Ринчиновичу Соктоеву за консультацию по изучению проб на рентгеновском дифрактометре..*
- Исследования выполнены в Национальном исследовательском Томском политехническом университете в рамках программы повышения конкурентоспособности ТПУ среди ведущих мировых исследовательских центров. Отбор и подготовка проб снегового покрова выполнены при частичной финансовой поддержке базового проекта ИНГГ СО РАН 0266-2022-0028.*



18. Drack J.M.E., Vazquez D.P. Morphological response of a cactus to cement dust pollution // *Ecotoxicology and Environmental Safety*. – 2018. – V. 148. – P. 571–577.
19. Assessment of effect of cement dust from cement factory on elemental properties of some cultivated crops, Obajana, Kogi State, Nigeria / N.O. Olatunbosun, B.A. Sawa, A. Jibrin, A.E. Ilori // *J. Geogr. Environ. Earth. Sci. Int.* – 2020. – V. 24 (1). – P. 63–69.
20. Lamare R.E., Singh O.P. Effect of cement dust on soil physicochemical properties around cement plants in Jaintia Hills, Meghalaya // *Environ. Eng. Res.* – 2020. – V. 25 (3). – P. 409–417.
21. Magnetic properties and element concentrations in lichens exposed to airborne pollutants released during cement production / L. Paoli, A.I. Winkler, A. Guttova, L. Sagnotti, A. Grassi, A. Lackovicova, D. Senko, S. Loppi // *Environ. Sci. Pollut. Res.* – 2017. – V. 24. – P. 12063–12080.
22. Characterization of mercury concentration from soils to needle and tree rings of Schrenk spruce (*Picea schrenkiana*) of the middle Tianshan Mountains, northwestern China / Huhu Kang, Xiaohong Liu, Junming Guo, Bo Wang, Guobao Xu, Guoju Wu, Shichang Kang, Jie Huang // *Ecological Indicators*. – 2019. – № 104. – P. 24–31.
23. Пашкевич М.А., Алексеенко А.В. Мониторинг загрязнения почв в районе воздействия ОАО Новоросцемент // *Горный информационно-аналитический бюллетень* (научно-технический журнал). – 2015. – № 10. – С. 369–376.
24. Турбина Е.С. Оценка пылевого загрязнения атмосферного воздуха Теплоозерским цементным заводом методом снеговой съемки // *Вестник Приамурского государственного университета им. Шолом-Алейхема*. – 2016. – № 3. – С. 58–65.
25. Kozłowski R., Szwał M., Jarzyna K. Analysis of snow pollutants in an industrial urban zone near the city of Ostrowiec Swietokrzyski // *Ecological Chemistry and Engineering*. – 2018. – V. 25 (1). – P. 7–18.
26. Инвестиционный паспорт г. Искитим 2018 г. // nso. 2014. URL: [https://www.nso.ru/sites/test.new.nso.ru/wodby\\_files/files/wiki/2014/01/iskitim.pdf](https://www.nso.ru/sites/test.new.nso.ru/wodby_files/files/wiki/2014/01/iskitim.pdf) (дата обращения 17.12.2019).
27. Государственный доклад «О состоянии и об охране окружающей среды Российской Федерации в 2018 году». – М.: Минприроды России; НПФ «Кадастр», 2019. – 844 с.
28. Государственный доклад о состоянии и об охране окружающей среды Новосибирской области в 2021 году. – Новосибирск, 2022. – 180 с.
29. Методические рекомендации по геохимической оценке загрязнения территорий городов химическими элементами. – М.: ИМГРЭ, 1982. – 111 с.
30. РД 52.04.186-89 Руководство по контролю загрязнения атмосферы. – М.: Госкомгидромет, 1991. – 693 с.
31. Таловская А.В., Филимоненко Е.А., Язиков Е.Г. Динамика элементного состава снегового покрова на территории северовосточной зоны влияния Томск-Северской промышленной агломерации // *Оптика атмосферы и океана*. – 2014. – Т. 27. – № 06. – С. 491–495.
32. Оценка аэротехногенного загрязнения в окрестностях угольных и нефтяных котельных по состоянию снегового покрова (на примере Томской области) / А.В. Таловская, Е.Г. Язиков, Т.С. Шахова, Е.А. Филимоненко // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2016. – Т. 327. – № 10. – С. 116–130.
33. Язиков Е.Г., Шатилов А.Ю. Геоэкологический мониторинг. – Томск: Изд-во ТПУ, 2004. – 276 с.
34. Язиков Е.Г. Разработка методологии комплексной эколого-геохимической оценки состояния природной среды (на примере объектов юга Западной Сибири) // *Известия Томского политехнического университета*. – 2011. – Т. 304. – Вып. 1. – С. 325–336.
35. Геохимия окружающей среды / Ю.Е. Саэт, Б.А. Ревич, Е.П. Янин, Р.С. Смирнова, И.Л. Башаркевич, Т.Л. Онищенко, Л.Н. Павлова, Н.Я. Трефилова, А.И. Ачкасов, С.Ш. Саркисян. – М.: Недра, 1990. – 335 с.
36. Геохимия снежного покрова в Восточном округе Москвы / Н.С. Касимов, Н.В. Кошелева, Д.В. Власов, Е.В. Терская // *Вестник Московского ун-та. Сер. 5: «География»*. – 2012. – № 4. – С. 14–24.
37. Шатилов А.Ю. Вещественный состав и геохимическая характеристика атмосферных выпадений на территории Обского бассейна: дис. ... канд. геол.-минерал. наук. – Томск, 2001. – 205 с.
38. Язиков Е.Г. Экогеохимия урбанизированных территорий юга Западной Сибири: дис. ... д-ра. геол.-минерал. наук. – Томск, 2006. – 423 с.
39. Михальчук А.А., Язиков Е.Г. Многомерный статистический анализ эколого-геохимических измерений. Ч. II. Компьютерный практикум. – Томск: Изд-во ТПУ, 2014. – 150 с.
40. Таловская А.В., Володина Д.А., Язиков Е.Г. Макроэлементный и минерально-фазовый состав пыли в зоне воздействия цементного завода по данным изучения снегового покрова (Кемеровская обл.) // *Химия в интересах устойчивого развития*. – 2019. – № 2. – С. 201–210.
41. Штарк Й., Вихт Б. Цемент и известь. – Киев: Изд-во института строительных материалов им. Ф.А. Фингера Баухаус-Университета, 2008. – 480 с.
42. Информационно-технический справочник по наилучшим доступным технологиям. Производство цемента. – М.: Бюро НДТ, 2015. – 305 с.
43. Письмо от 18.09.2003 г. N НК-5830/4 Об инвестициях в развитие цементной промышленности и об утилизации при производстве цемента отходов других отраслей экономики, в том числе бытовых // docs.cndt. URL: <https://docs.cndt.ru/document/901892828> (дата обращения 10.01.2020)
44. Савко А.Д. Глинистые породы как сырьё для получения металлов // *Вестник ВГУ. Серия: Геология*. – 2016. – № 1. – С. 92–98.
45. Волконский Б.В., Макашев С.Д., Штейерт Н.П. Технологические физико-механические и физико-химические исследования цементных минералов. – Л.: Стройиздат [Ленингр. отд-ние], 1972. – 303 с.
46. Арбузов С.И., Рихванов Л.П. Геохимические исследования углей в Сибири // *Известия Томского политехнического университета*. – 2009. – Т. 314. – № 1. – С. 96–100.

Поступила 23.05.2022 г.

Прошла рецензирование 27.06.2022 г.

#### Информация об авторах

**Володина Д.А.**, аспирант отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

**Таловская А.В.**, доктор геолого-минералогических наук, доцент отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

**Язиков Е.Г.**, доктор геолого-минералогических наук, профессор отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

**Девятова А.Ю.**, кандидат геолого-минералогических наук, доцент кафедры общей и региональной геологии Геолого-геофизического факультета Новосибирского государственного университета; старший научный сотрудник лаборатории геоэлектрохимии Института нефтегазовой геологии и геофизики СО РАН.

**Еделев А.В.**, кандидат геолого-минералогических наук, старший научный сотрудник лаборатории эколого-экономического моделирования техногенных систем Института нефтегазовой геологии и геофизики СО РАН.

UDC 504.3.054

## ASSESSMENT OF DUST AND AEROSOL POLLUTION IN THE ZONE OF INFLUENCE OF THE CEMENT PLANT BASED ON THE STUDY OF SNOW COVER (NOVOSIBIRSK REGION)

**Darya A. Volodina**<sup>1</sup>,  
volodina.da2014@yandex.ru

**Anna V. Talovskaya**<sup>1</sup>,  
talovskaj@yandex.ru

**Egor G. Yazikov**<sup>1</sup>,  
yazikoveg@tpu.ru

**Anna Yu. Devyatova**<sup>2,3</sup>,  
devyatovaAY@ipgg.sbras.ru

**Alexey V. Edelev**<sup>3</sup>,  
edelevAV@ipgg.sbras.ru

<sup>1</sup> National Research Tomsk Polytechnic University,  
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

<sup>2</sup> Novosibirsk State University,  
1, Pirogov street, Novosibirsk, 630090, Russia.

<sup>3</sup> Institute of Petroleum Geology and Geophysics Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences,  
3, Academician Koptuyg avenue, Novosibirsk, 630090, Russia.

**The relevance of the research.** Air pollution is an important and urgent problem of our time. One of the main sources of particulate matter is the construction industry. Solid particles enter the atmospheric air as a result of the extraction, transportation and grinding of raw materials, clinker firing, grinding and transportation of cement. In this regard, the environmental assessment of dust and aerosol pollution of atmospheric air in the areas where cement plants are located is relevant.

**Purpose:** to assess the state of atmospheric air in the vicinity of the cement plant in Iskitim based on the study of dust load, the levels of accumulation of chemical elements and the forms of their presence in the composition of solid particles settled in the snow cover.

**Objects:** the solid phase of the snow cover containing dust and aerosol particles deposited from the atmospheric air into the snow cover in the area of the cement plant.

**Methods:** atmogeochemical method, including the selection and preparation of snow cover samples to obtain a solid phase of snow cover; analytical methods for studying samples: inductively coupled plasma mass spectrometry, instrumental neutron activation analysis, X-ray phase method, scanning electron microscopy; methods of statistical processing of results in the software «STATISTICA 8»; ecological and geochemical analysis of data by calculating indicators – dust load ( $P_n$ ), concentration coefficient ( $K_c$ ), total pollution index ( $Z_{spz}$ ), cartographic presentation of the results in Surfer 11 and CorelDraw X7 software, raw materials for cement production (limestone, clay, slag, pyrite cinders).

**Results.** The levels of dust load in the vicinity of the cement plant are in a wide range (from 57 to 1028 mg/(m<sup>2</sup>·day) with an average value of 318 and a background of 7 mg/(m<sup>2</sup>·day). Dust pollution ranges from low to very high level. The levels of dust load decrease from 436 to 78 mg/(m<sup>2</sup>·day) in the north-north-west direction at a distance of 0,6 to 2,8 km from the plant. The near zone of influence (up to 500 m) – 1028 mg/(m<sup>2</sup>·day), as well as in the area of the open pit where the main raw materials are mined – 932 mg/(m<sup>2</sup>·day). The mineral composition of the solid phase of the snow cover is represented by minerals raw materials – calcite (CaCO<sub>3</sub>) – 82,1 %, quartz (SiO<sub>2</sub>) – 4,4 %, magnesite (MgCO<sub>3</sub>) – 7,6 %, cement clinker minerals – brownmillerite (Ca<sub>2</sub>(Al, Fe)<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) and hatrurite (Ca<sub>3</sub>(SiO<sub>4</sub>)O) – 6,4 and 26,6 %, respectively. In the solid phase of the snow cover, microparticles of calcium and iron oxides, as well as microparticles of aluminosilicate composition with sizes from 2,7 to 64,5 μm, were isolated. The technogenic geochemical specialization of the solid phase of the snow cover is characterized by elevated levels of accumulation of Ca (14–23 times higher than the background), Zn, Sr, Sb, Tb, Yb, La, Sm, U (2–7 times higher than the background), which form a low pollution level. The distribution of Ca and dust load with distance from the boundaries of the plant in the northwest direction are similar. The maximum levels of dust load (1028 mg/(m<sup>2</sup>·day)) and Ca accumulation (24 %) in the solid phase of the snow cover were determined at a distance of 0,5 km, and as the distance from the plant boundaries (from 0,5 to 2,8 km), there is a decrease in the level of dust load by an average of 7 to 13 times (140–78 mg/(m<sup>2</sup>·day)) and Ca accumulation by 1,5 times (16–17 %). Trace elements-indicators (Cr, Sb, Zn), which are defined in the reference book of the best available technologies as specific in the composition of cement production emissions, in the solid phase of the snow cover exceed background levels from 2 to 7 times. The solid phase of the snow cover is characterized by geochemical associations Zn-Cr, As-Ta, Yb-U-Sb, Tb-Ba, Th-Na, Fe-La. There are correlations between trace elements-indicators (Ca, Ba, Cr, As, Fe, Sb, Zn), characteristic of cement production emissions, with rare earth and radioactive (U, Th) chemical elements. This fact may indicate a single source of these elements (with positive correlations), and also reflect the difference in the composition of corrective additives for cement production and different forms of presence of chemical elements in the composition of solid particles in the vicinity of the cement plant (with negative correlations). The identified geochemical associations with a high degree of probability reflect the geochemical specialization of the raw materials used, corrective and mineral technological additives for cement production.

### Key words:

dust aerosols, cement industry, dust load, snow cover, trace elements, air pollution.

The authors appreciate the performance of laboratory and analytical works for determining chemical composition of snow cover solid phase samples by Aleksandr F. Sudyko, Larisa V. Bogutskaya, analysts of nuclear-geochemical laboratory at TPU, Nina V. Fedyunina, director of chemical and analytical center «Plasma» (Tomsk), assistance in studying microparticles on scanning electronic microscope by Sergey S. Ilyenok, senior lecture of Department of Geology at TPU, Cand. Sc., assistance in determining mineral composition of snow cover solid phase samples by Bulat R. Soktoev, associate professor of Department of Geology at TPU, Cand. Sc.

Sampling and preparation of snow cover samples were carried out with partial financial support of the basic project of Institute of Petroleum Geology and Geophysics, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences, 0266-2022-0028.

The research was carried out at the National Research Tomsk Polytechnic University as part of the program to increase the competitiveness of TPU among the world's leading research centers.

## REFERENCES

- GOST R 56828.47-2019. *Nailuchshie dostupnye tekhnologii. Proizvodstvo tsementa. Vybory markernykh pokazateley dlya vybrosov v atmosferu ot promyshlennykh istochnikov* [State Standard R 56828.47-2019. The best available technologies. Cement production. Selection of marker indicators for atmospheric emissions from industrial sources]. Moscow, StandardInform Publ., 2019. 32 p.
- Silosy kak tsementnaya bomba* [Silos like a cement bomb]. 2022. Available at: <https://sovpym.ru/blogs/filtr-silosa-cementa/> (accessed 22 June 2022).
- Kosorukova O.E., Krylova O.K. Environmental pollution from the cement industry. *Actual problems of aviation and astronautics*, 2019, vol. 2, pp. 495–496. In Rus.
- Morozov S.V., Raputa V.F., Kokovkin V.V. Evaluation of precipitation of organic and inorganic impurities in the vicinity of a cement plant. *INTEREXPO GEO-Siberia*, 2019, vol. 4, no. 1, pp. 113–120. In Rus.
- Shcherbatov A.F., Raputa V.F., Turbinsky V.V., Khmelev V.A., Olkin S.E., Yaroslavtseva T.V. Monitoring of snow cover pollution in the area of the Iskitim cement plant. *Distant. probe methods. Earth and photograms, environmental monitoring environment, geocological (Interexpo GEO-Siberia)*, 2014, vol. 1, pp. 163–168. In Rus.
- Lezhenin A.A., Yaroslavtsev T.V., Raputa V.F. Monitoring of aerosol pollution of the snow cover based on ground and satellite information. *Journal of the Siberian Federal University. Technics and technology. Series: Technics and technologies*, 2016, vol. 9, no. 7, pp. 950–959. In Rus.
- Shcherbatov A.F., Raputa V.F., Turbinsky V.V., Yaroslavtseva T.V. Evaluation of air pollution by dust according to snow survey data based on the reconstruction of fallout fields. *Health risk analysis*, 2014, no. 2, pp. 42–47. In Rus.
- Muhammed Siddiq Abdul Samad, Prem Mohan, Varghese G.K., Irfan Khurshed Shah, Babu J. Alappat. Environmental forensic investigation of the air pollution from a cement manufacturing unit. *Environmental Forensics*, 2019, vol. 21, no. 1, pp. 37–47.
- Eom S.Y., Cho E.B., Oh M.K. Increased incidence of respiratory tract cancers in people living near Portland cement plants in Korea. *Int. Arch. Occup. Environ. Health*, 2017, vol. 90, pp. 859–864.
- Zeb K., Ali Y., Khan M.W. Factors influencing environment and human health by cement industry: Pakistan a case in point. *Management of Environmental Quality: An International Journal*, 2019, vol. 30, no. 4, pp. 751–767.
- Fayomi G.U., Mini S.E., Fayomi O.S., Ayoola A.A. Perspectives on environmental CO<sub>2</sub> emission and energy factor in Cement Industry. *IOP Conf. Series: Earth and Environmental Science*, 2019, vol. 331, pp. 1–7.
- Nidheesh P.V., Suresh Kumar M. An overview of environmental sustainability in cement and steel production. *Journal of Cleaner Production*, 2019, vol. 231, pp. 856–871.
- Bertoldi M., Borgini A., Tittarelli A., Fattore E., Cau A., Fanelli R., Crosignani P. Health effects for the population living near a cement plant: an epidemiological assessment. *Environment International*, 2012, no. 41, pp. 1–7.
- Kameswaran S., Gunavathi Y., Gopi Krishna P. Dust pollution and its influence on vegetation – a critical analysis. *Research Journal of Life Sciences, Bioinformatics, Pharmaceutical and Chemical Sciences*, 2019, vol. 5 (1), pp. 341–363.
- Ines Terwayet Bayouli, Houssein Terwayet Bayouli, Aronne Dell'Oca, Erik Meers, Jian Sun. Ecological indicators and bioindicator plant species for biomonitoring industrial pollution: Eco-based environmental assessment. *Ecological Indicators*, 2021, vol. 125, pp. 1–15.
- Al faifi T., El-Shabasy A. Effect of heavy metals in the cement dust pollution on morphological and anatomical characteristics of *Cenchrus ciliaris* L. *Saudi Journal of Biological Sciences*, 2021, vol. 28, pp. 1069–1079.
- Ying Hong Liu, Xue Song Wang, Ying Hai Guo, Ying Ming Mao, Hao Li. Association of black carbon with heavy metals and magnetic properties in soils adjacent to a cement plant, Xuzhou (China). *Journal of Applied Geophysics*, 2019, vol. 170, pp. 1–8.
- Drack J.M.E., Vazquez D.P. Morphological response of a cactus to cement dust pollution. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, vol. 148, pp. 571–577.
- Olatunbosun N.O., Sawa B.A., Jibrin A., Ilori A.E. Assessment of effect of cement dust from cement factory on elemental properties of some cultivated crops, Obajana, Kogi State, Nigeria. *J. Geogr. Environ. Earth. Sci. Int.*, 2020, vol. 24 (1), pp. 63–69.
- Lamare R.E., Singh O.P. Effect of cement dust on soil physico-chemical properties around cement plants in Jaintia Hills, Meghalaya. *Environ. Eng. Res.*, 2020, vol. 25 (3), pp. 409–417.
- Paoli L., Winkler Al., Guttova A., Sagnotti L., Grassi A., Lackovicova A., Senko D., Loppi S. Magnetic properties and element concentrations in lichens exposed to airborne pollutants released during cement production. *Environ. Sci. Pollut. Res.*, 2017, vol. 24, pp. 12063–12080.
- Huhu Kang, Xiaohong Liu, Junming Guo, Bo Wang, Guobao Xu, Guoju Wu, Shichang Kang, Jie Huang. Characterization of mercury concentration from soils to needle and tree rings of Schrenk spruce (*Picea schrenkiana*) of the middle Tianshan Mountains, northwestern China. *Ecological Indicators*, 2019, no. 104, pp. 24–31.
- Pashkevich M.A., Alekseenko A.V. Monitoring of soil pollution in the area affected by OAO Novoroscement. *Mining Information and Analytical Bulletin (scientific and technical journal)*, 2015, no. 10, pp. 369–376. In Rus.
- Turbina E.S. Estimation of dust pollution of atmospheric air by the Teplozersky cement plant using the snow survey method. *Vestnik Priamurskogo gosudarstvennogo universiteta im. Sholom Aleichem*, 2016, no. 3, pp. 58–65. In Rus.
- Kozłowski R., Szwed M., Jarzyna K. Analysis of snow pollutants in an industrial urban zone near the city of Ostrowiec Swietokrzyski. *Ecological Chemistry and Engineering*, 2018, vol. 25 (1), pp. 7–18.
- Investitsionny passport g. Iskitim* [Investment passport of Iskitim town]. 2018. Available at: [https://www.nso.ru/sites/test.new.nso.ru/wodby\\_files/files/wiki/2014/01/iskitim.pdf](https://www.nso.ru/sites/test.new.nso.ru/wodby_files/files/wiki/2014/01/iskitim.pdf) (accessed 17 December 2019).
- Gosudarstvennyy doklad «O sostoyanii i ob okhrane okruzhayushchey sredy Rossiyskoy Federatsii v 2018 godu»* [State report «On the state and protection of the environment of the Russian Federation in 2018»]. Moscow, Ministry of Natural Resources of the Russian Federation, Research and production enterprise «Cadastre», 2019. 844 p.
- Gosudarstvenny doklad o sostoyanii i ob okhrane okruzhayushchey sredy Novosibirskoy oblasti v 2021 godu* [State report on the state and environmental protection of the Novosibirsk Region in 2021]. Novosibirsk, Ministry of Natural Resources and Ecology of the Novosibirsk Region, 2022. 180 p.
- Metodicheskie rekomendatsii po geokhimicheskoy otsenke zagryazneniya territorii gorodov khimicheskimi elementami* [Guidelines for the geochemical assessment of pollution of urban areas with



- chemical elements]. Moscow, Institute of Mineralogy, Geochemistry and Crystal Chemistry of Rare Elements Publ., 1982. 111 p.
30. RD 52.04.186-89 Rukovodstvo po kontrolyu zagryazneniya atmosfery [Guidelines for the control of air pollution]. Moscow, Goskomgidromet Publ., 1991. 693 p.
  31. Talovskaya A.V., Filimonenko E.A., Yazikov E.G. Dynamics of the elemental composition of the snow cover in the territory of the northeastern zone of influence of the Tomsk-Seversk industrial agglomeration. *Atmospheric and ocean optics*, 2014, vol. 27, no. 06, pp. 491–495. In Rus.
  32. Talovskaya A.V., Yazikov E.G., Shakhova T.S., Filimonenko E.A. Assessment of aerotechnogenic pollution in the vicinity of coal and oil boilers according to the state of the snow cover (on the example of the Tomsk region). *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2016, vol. 327, no. 10, pp. 116–130. In Rus.
  33. Yazikov E.G., Shatilov A.Yu. *Geoekologicheskii monitoring* [Geoecological monitoring]. Tomsk, TPU Publ. house, 2004. 276 p.
  34. Yazikov E.G. Development of a methodology for a comprehensive ecological and geochemical assessment of the state of the natural environment (on the example of objects in the south of Western Siberia). *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University*, 2011, vol. 304, no. 1, pp. 325–336.
  35. Saet Yu.E., Revich B.A., Yanin E.P., Smirnova R.S., Basharkevich I.L., Onishchenko T.L., Pavlova L.N., Achkasov A.I., Sargsyan S.Sh. *Geokhimiya okruzhayushchey sredy* [Geochemistry of the environment]. Moscow, Nedra Publ., 1990. 335 p.
  36. Kasimov N.S., Kosheleva N.V., Vlasov D.V., Terskaya E.V. Geochemistry of snow cover in the Eastern District of Moscow. *Bulletin of the Moscow University*, 2012, vol. 5 Geography, no. 4, pp. 14–24. In Rus.
  37. Shatilov A.Yu. *Veschestvennyy sostav i geokhimicheskaya kharakteristika atmosferykh vipadeniy na territorii Obского basseyna*. Dis. Kand. nauk [Material composition and geochemical characteristics of atmospheric precipitation on the territory of the Ob basin. Cand. Diss.]. Tomsk, 2001. 205 p.
  38. Yazikov E.G. *Ekogeokhimiya urbanizirovannykh territoriy yuga Zapadnoy Sibiri*. Diss. Dokt. nauk. [Ecogeochemistry of urbanized territories in the south of Western Siberia. Dr. Diss.]. Tomsk, 2006. 423 p.
  39. Mikhaltchuk A.A., Yazikov E.G. *Mnogomerny statisticheskiy analiz ekologo-geokhimicheskikh izmereniy*. Ch. II. Kompyuterny praktikum [Multivariate statistical analysis of ecological and geochemical measurements. P. II. Computer workshop]. Tomsk, TPU Publ. house, 2014. 150 p.
  40. Talovskaya A.V., Volodina D.A., Yazikov E.G. Macroelement and mineral-phase composition of dust in the impact zone of a cement plant according to the study of snow cover (Kemerovo region). *Chemistry for Sustainable Development*, 2019, no. 2, pp. 201–210. In Rus.
  41. Stark J., Wicht B. *Tsement i izvest* [Cement and lime]. Kyiv, F.A. Finger Institute of Building Materials of Bauhaus University Publ. House, 2008. 480 p.
  42. *Informatsionno-tekhnicheskiiy spravochnik po nailuchshim dostupnyim tekhnologiyam. Proizvodstvo tsementa* [Information and technical guide to the best available technologies. Cement production]. Moscow, NDT Bureau, 2015. 305 p.
  43. *Pismo ot 18.09.2003 g. N NK-5830/4 Ob investitsiyakh v razvitie tsementnoy promyshlennosti i ob utilizatsii pri proizvodstve tsementa otkhodov drugikh otrasley ekonomiki, v tom chisle bytovykh* [Letter, 18.09.2003 N NK-5830/4. On investments into development of cement industry and on utilization of wastes of other economic sectors, including domestic wastes, when producing cement]. 2003. Available at: <https://docs.cntd.ru/document/901892828> (accessed 10 January 2020)
  44. Savko A.D. Clay rocks as a raw material for obtaining metals. *Bulletin of VSU, Series Geology*, 2016, no. 1, pp. 92–98. In Rus.
  45. Volkonsky B.V., Makashev S.D., Shteiert N.P. *Tehnologicheskie fiziko-mekhanicheskie i fiziko-khimicheskie issledovaniya tsementnykh mineralov* [Technological physical-mechanical and physical-chemical studies of cement minerals]. Leningrad, Stroyizdat Publ., 1972. 303 p.
  46. Arbuzov S.I., Rikhvanov L.P. Geochemical studies of coals in Siberia. *Proceedings of the Tomsk Polytechnic University*, 2009, vol. 314, no. 1, pp. 96–100. In Rus.

Received: 23 May 2022.  
Reviewed: 27 June 2022.

#### Information about the authors

**Darya A. Volodina**, postgraduate student, National Research Tomsk Polytechnic University.

**Anna V. Talovskaya**, Dr. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

**Egor G. Yazikov**, Dr. Sc., professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

**Anna Yu. Devyatova**, Cand. Sc., associate professor, Novosibirsk State University; senior researcher, Institute of Petroleum Geology and Geophysics Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences.

**Alexey V. Eddelev**, Cand. Sc., senior researcher, Institute of Petroleum Geology and Geophysics Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences.



УДК 541.128:542.97:542.941.7:547.21:549.67

## МО-СОДЕРЖАЩИЕ ГРАНУЛИРОВАННЫЕ ЦЕОЛИТЫ ZSM-5 РАЗЛИЧНОЙ КИСЛОТНОСТИ С ИЕРАРХИЧЕСКОЙ ПОРИСТОЙ СТРУКТУРОЙ В НЕОКИСЛИТЕЛЬНОЙ КОНВЕРСИИ МЕТАНА

Степанов Андрей Александрович<sup>1</sup>,  
stepanov@ipc.tsc.ru

Коробицына Людмила Леонидовна<sup>1</sup>,  
kl@ipc.tsc.ru

Ишкильдина Алина Хайдаровна<sup>2</sup>,  
miss.ishckildina@ya.ru

Травкина Ольга Сергеевна<sup>2</sup>,  
simchanka@mail.ru

Куватова Резеда Загитовна<sup>2</sup>,  
kuvatova2010@mail.ru

Восмериков Александр Владимирович<sup>1</sup>,  
pika@ipc.tsc.ru

Кутепов Борис Иванович<sup>2</sup>,  
kutepoff@inbox.ru

<sup>1</sup> Институт химии нефти Сибирского отделения Российской академии наук,  
Россия, 634055, г. Томск, пр. Академический, 4.

<sup>2</sup> Институт нефтехимии и катализа – обособленное подразделение Уфимского федерального исследовательского центра Российской академии наук,  
Россия, 450075, г. Уфа, пр. Октября, 141.

**Актуальность** проведенного исследования связана с получением активных и селективных катализаторов для процессов переработки природного и нефтяного попутного газов, основным компонентом которых является метан, в ценные химические продукты. Наибольший интерес представляет процесс неокислительной конверсии метана в ароматические углеводороды на цеолитсодержащих катализаторах, модифицированных металлами.

**Цель:** сравнительное исследование физико-химических и каталитических свойств в процессе неокислительной конверсии метана в ароматические углеводороды Мо-содержащих катализаторов на основе гранулированных цеолитов ZSM-5 высокой степени кристалличности с иерархической пористой структурой до и после деалюминирования водным раствором лимонной кислоты.

**Объекты:** Мо/ZSM-5 катализаторы неокислительной конверсии метана.

**Методы:** рентгенофлуоресцентный анализ, РФА, СЭМ, низкотемпературная адсорбция азота, температурно-программированная десорбция аммиака (ТПД-NH<sub>3</sub>), газовая хроматография.

**Результаты.** Приведены результаты исследования физико-химических и каталитических свойств в процессе неокислительной конверсии метана в ароматические углеводороды гранулированных Мо-содержащих цеолитных катализаторов различной кислотности с иерархической пористой структурой. Показано, что катализаторы, полученные на основе гранулированного цеолита ZSM-5 высокой степени кристалличности с иерархической пористой структурой, являются более эффективными в процессе неокислительной конверсии метана по сравнению с катализатором, приготовленным традиционным способом со связующим материалом. Установлено, что наибольшая конверсия метана и максимальный выход ароматических углеводородов составляют 18,3 и 14,4 %, соответственно, и достигаются на каталитической системе, приготовленной нанесением 4 % мас. МоО<sub>3</sub> на деалюминированный в результате обработки 0,3 N раствором лимонной кислоты гранулированный цеолит ZSM-5 высокой степени кристалличности с иерархической пористой структурой.

### Ключевые слова:

цеолит ZSM-5, кислотность, иерархическая пористая структура, гранулированные катализаторы, каталитические свойства, метан, ароматические углеводороды, неокислительная конверсия метана.

### Введение

Процесс неокислительной конверсии метана в ароматические углеводороды на цеолитных катализаторах, модифицированных ионами переходных металлов, представляет значительный интерес как эффективный способ утилизации природного газа, содержащего более 90 % метана [1–7]. Природа используемого носителя, содержание активного металлического компонента и способ приготовления катализатора являются основными факторами, определяющими его активность, селективность и стабильность в данном процессе. Наиболее высокую активность и стабильность в процессе превращения метана в ароматические углеводороды проявляют каталитические системы, в которых соединения Мо нанесены на H-форму цеолита ZSM-5 [1, 8–10]. Согласно общепринятому на данный момент механизму дегидроар-

оматизации метана, его активация происходит на Мо-содержащих центрах с образованием поверхностных частиц CH<sub>x</sub> [11–14], продукты димеризации (C<sub>2</sub>H<sub>y</sub>) которых олигомеризуются и циклизуются с участием брэнстедовских кислотных центров цеолита ZSM-5 с образованием бензола и нафталина [1, 15, 16].

Способы приготовления катализаторов на основе цеолита ZSM-5 обычно предусматривают его синтез с различным модулем в виде кристаллов размером 1–5 мкм в требуемых катион-декационированных формах с последующей формовкой в гранулы в смеси со связующим материалом и термообработкой. В качестве второго компонента обычно используют гидроксид алюминия со структурой псевдобемита, который при термообработке переходит в γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Содержание связующего материала в катализаторе составляет от 20 до 30 % мас. Однако микропористая струк-

тура цеолита ZSM-5 затрудняет процессы массопереноса реагирующих молекул и приводит к увеличению времени их пребывания в таких катализаторах, способствуя интенсивному коксообразованию и быстрой дезактивации катализатора [17–21]. Кроме того, частицы связующего материала могут затруднять доступ к внутренней поверхности части кристаллов цеолита. В работе [22] показана более высокая активность Мо-содержащих катализаторов, синтезированных с использованием цеолитов ZSM-5 в Н-форме с микро-мезо-макропористой (иерархической) структурой, по сравнению с катализаторами, приготовленными традиционным способом и описанными выше.

Для дополнительного регулирования концентрации и силы кислотных центров, а также характеристик пористой структуры цеолитов и, как следствие, их активности, селективности и стабильности каталитического действия используют постсинтетические гидротермальные обработки [11, 23–26], например, деалюминирование их Н-форм [27].

Целью настоящей работы явилось сравнительное исследование физико-химических и каталитических свойств в процессе неокислительной конверсии метана в ароматические углеводороды Мо-содержащих катализаторов на основе гранулированных цеолитов ZSM-5 высокой степени кристалличности с иерархической пористой структурой до и после деалюминирования водным раствором лимонной кислоты.

#### Экспериментальная часть

Гранулированный цеолит ZSM-5 высокой степени кристалличности с иерархической пористой структурой (мольное отношение  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=24$ , далее – ZSM-5mm) готовили смешением порошкообразного цеолита ZSM-5 (мольное отношение  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=30$ ) и аморфного алюмосиликата с мольным отношением  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=12$ , увлажнением полученной смеси путем добавления воды, формованием гранул диаметром  $1,6\pm 0,1$  мм и длиной  $4-6\pm 0,2$  мм, термообработкой сформованных гранул при  $550\pm 5$  °С в течение 4 ч и гидротермальной кристаллизацией в растворе силиката натрия [28]. Н-форму гранулированного цеолита (далее – образец Н-ZSM-5mm, содержание  $\text{Na}_2\text{O} - 0,05$  % масс.) получали ионным обменом катионов  $\text{Na}^+$  на катионы  $\text{NH}_4^+$  с последующей термообработкой при  $550\pm 5$  °С в течение 6–8 ч.

Для дополнительного модифицирования физико-химических и каталитических свойств цеолита Н-ZSM-5mm за счет деалюминирования проводили его обработку в водном растворе лимонной кислоты. В результате предварительных исследований были выбраны следующие условия кислотной обработки: 0,3 N водный раствор лимонной кислоты,  $85\pm 3$  °С, 6 ч, отмывка дистиллированной водой до отсутствия катионов алюминия, сушка и прокалка при  $540\pm 5$  °С в течение 4 ч в атмосфере воздуха (далее – образец Н-ZSM-5mm/ЛК).

Микропористый цеолит ZSM-5 (мольное отношение  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=28$ ), используемый для приготовления катализатора со связующим веществом традицион-

ным способом, был получен методом гидротермального синтеза по методике, приведенной в работе [29]. В качестве связующего вещества использовали псевдобемит производства ООО «Ишимбайский специализированный химический завод катализаторов» (г. Ишимбай) со следующими характеристиками: размеры кристаллов – 40–50 нм, удельная поверхность –  $241 \text{ м}^2/\text{г}$ , содержание  $\text{Na}_2\text{O} - 0,05$  % мас., ППП (потери при прокаливании) – 30,21 % мас. При приготовлении гранулированного катализатора со связующим материалом (Н-ZSM-5/30 %  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) порошкообразный цеолит ZSM-5 в Н-форме тщательно перемешивали с псевдобемитом, добавляя водный раствор азотной кислоты (моль  $\text{NO}_3^-/\text{моль } \text{Al}_2\text{O}_3=0,17$ ), полученную однородную пластичную массу формовали на шнековом экструдере в гранулы, которые сушили на воздухе при комнатной температуре в течение суток, затем 8 ч при  $100\pm 3$  °С и прокаливали 8 ч при  $550\pm 5$  °С. Готовые гранулы имели форму цилиндров диаметром  $1,6\pm 0,1$  мм и длиной  $4-6\pm 0,2$  мм. Содержание связующего вещества в цеолитсодержащем катализаторе составляло ~30 % мас. в пересчете на  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

Мо-содержащие цеолитные катализаторы готовили методом пропитки гранул образцов Н-ZSM-5mm, Н-ZSM-5mm/ЛК и Н-ZSM-5/30 %  $\text{Al}_2\text{O}_3$  водным раствором гептамолибдата аммония ( $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ) с последующим высушиванием при  $100\pm 3$  °С в течение 4 ч и прокаливанием в атмосфере воздуха при  $550\pm 5$  °С 4 ч. Содержание Мо во всех образцах составляло 4 % мас.

Химический состав образцов анализировали на энергодисперсионном рентгенофлуоресцентном спектрометре EDX-800HS (Shimadzu) с рентгеновской трубкой с родиевым анодом (напряжение 15–50 кВ, ток 20–1000 мкА, вакуум, коллиматор 3–5 мм) и пламенном фотометре ПФА-378.

Фазовый состав и степень кристалличности образцов оценивали рентгенографическим методом (РФА). Перед проведением анализа образцы были подвергнуты термообработке при 600 °С в течение 3 ч для удаления темплата. Запись дифрактограмм проводили на дифрактометре Ultima IV «Rigaku» в монохроматизированном  $\text{CuK}\alpha$  излучении в области углов от 3 до 50 по 2 $\theta$  с шагом 0,5 град/мин и временем накопления в каждой точке 2 сек. Относительную степень кристалличности рассчитывали по отношению суммарной интегральной интенсивности от кристаллической фазы к сумме суммарных интегральных интенсивностей от кристаллической и аморфной фаз. Рентгенофазовый анализ проводили в программе PDXL сопоставлением полученных дифрактограмм с базой данных PDF2.

Морфологию и размер кристаллов образцов исследовали методом сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) на электронном микроскопе JEOL JSM-6490LV. Съемку изображений вели в режиме регистрации вторичных электронов при ускоряющем напряжении 20 кВ и рабочем расстоянии 10 мм. Перед съемкой образцы помещали на поверхность алюминиевого столика диаметром 25 мм, фиксировали при помощи проводящей липкой ленты.

Кислотные свойства полученных катализаторов изучали методом термопрограммированной десорбции (ТПД) аммиака, позволяющим определить количество и распределение кислотных центров по силе. Адсорбцию аммиака осуществляли при 100 °С до полного насыщения образца, затем удаляли физически адсорбированный аммиак продувкой потоком гелия при той же температуре в течение 2 ч, после чего проводили десорбцию в интервале температур 100–550 °С при скорости подъема температуры 10 град/мин.

Характеристики пористой структуры определяли методом низкотемпературной адсорбции-десорбции азота (77 К) на сорбтометре ASAP-2020 (Micromeritics, США). Перед анализом образцы вакуумировали 6 ч при 350 °С. Удельную поверхность рассчитывали по методу БЭТ при относительном парциальном давлении  $P/P_0=0,2$ . Распределение пор по размерам рассчитывали по десорбционной кривой методом ВЈН (Баррета–Джойнера–Халенды), общий объем пор определяли методом ВЈН при относительном парциальном давлении  $P/P_0=0,95$ , объем микропор в присутствии мезопор – t-методом де Бура и Липпенса.

Процесс неокислительной конверсии метана (степень чистоты 99,99 % об.) изучали в реакторе проточного типа при 750 °С, объемной скорости подачи сырья 1000 ч<sup>-1</sup> и атмосферном давлении. В кварцевый реактор загружали 1 см<sup>3</sup> катализатора (фракционный состав: от 0,5 до 1,0 мм). Продукты реакции анализировали методом газожидкостной хроматографии с использованием хроматографа «Хроматэк-Кристалл 5000.2» через каждые 40 мин каталитического эксперимента. Для оценки каталитических свойств образцов определяли степень превращения метана, выход и селективность образования продуктов реакции [30].

### Результаты и обсуждение

Обнаружено, что после обработки образца H-ZSM-5mm 0,3 N раствором лимонной кислоты концентрация алюминия в жидкой фазе составляет 3,47 г/л, кремний отсутствует. Полученные результаты свидетельствуют о том, что при обработке раствором лимонной кислоты происходит заметное dealюминирование образца цеолита. При этом мольное отношение SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> увеличивается с 24 до 47.

На рис. 1 приведены дифрактограммы цеолитов, которые использованы в данной работе для приготовления Мо-содержащих катализаторов. На них присутствуют рефлексы, характерные только для цеолита типа ZSM-5 [31]. Полученные результаты свидетельствуют о высокой фазовой чистоте исследуемых материалов. Расчеты показывают, что степень кристалличности образца H-ZSM-5mm составляет ~95 %. После dealюминирования (образец H-ZSM-5mm/ЛК) степень его кристалличности практически не изменяется (табл. 1).

На рис. 2 представлены изображения образцов H-ZSM-5mm до и после dealюминирования, полученные с помощью сканирующей электронной микроскопии. Видно, что образец H-ZSM-5mm состоит из кристаллов цеолита ZSM-5, использованных для приготовления гранул, между слоями которых

наблюдаются высокодисперсные кристаллы размером от 50 до 300 нм. После обработки гранул раствором лимонной кислоты морфология кристаллов, образующих единый сросток, не изменяется.

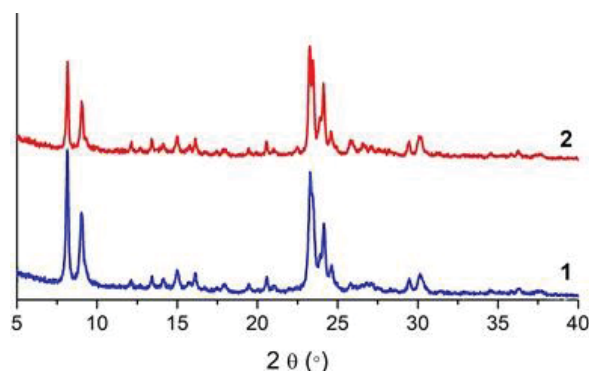


Рис. 1. Дифрактограммы образцов H-ZSM-5mm (1) и H-ZSM-5mm/ЛК (2)

Fig. 1. Diffraction patterns of H-ZSM-5mm (1) and H-ZSM-5mm/LK samples (2)

Таблица 1. Значения степени кристалличности и содержания цеолитной фазы в образце цеолита H-ZSM-5mm до и после dealюминирования

Table 1. Degree of crystallinity and the content of zeolite phase in the sample of H-ZSM-5mm zeolite before and after dealumination

Образец Sample	Степень кристалличности, % Crystallinity degree, %	Содержание цеолитной фазы, % Zeolite phase content, %
H-ZSM-5mm	95	95
H-ZSM-5mm/ЛК H-ZSM-5mm/CA	95	95

На рис. 3 приведены изотермы адсорбции-десорбции азота и распределение пор по размеру для образцов H-ZSM-5mm до и после dealюминирования.

Видно, что для них получена изотерма IV типа с петлей гистерезиса типа H1 по классификации ИЮПАК с резким подъемом при давлении  $P/P_0 \sim 1$ , которая характерна для мезо-макропористых материалов.

В табл. 2 представлены результаты исследования характеристик пористой структуры образцов цеолитов ZSM-5 и Мо-содержащих катализаторов на их основе. Видно, что образец H-ZSM-5 характеризуется объемом микропор 0,13 см<sup>3</sup>/г и удельной поверхностью по БЭТ 285 м<sup>2</sup>/г. Полученные результаты согласуются с литературными данными для цеолита H-ZSM-5 [32].

Пористая структура образца H-ZSM-5mm характеризуется удельной поверхностью 315 м<sup>2</sup>/г и объемами микро-, мезо- и макропор – 0,12, 0,20 и 0,33 см<sup>3</sup>/г, соответственно. Обработка цеолита H-ZSM-5mm раствором лимонной кислоты приводит к увеличению удельной поверхности, а также объема мезо- и макропор в результате dealюминирования цеолита. При введении Мо в цеолит удельная поверхность и объем пор уменьшаются из-за их частичной блокировки частицами оксида Мо.



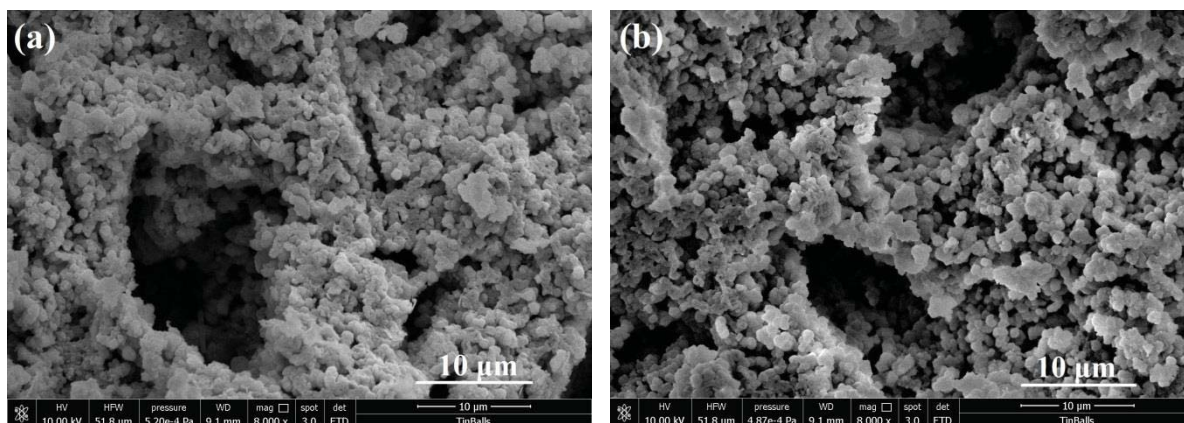


Рис. 2. СЭМ-изображения образцов: H-ZSM-5mm (a) и H-ZSM-5mm/ЛК (b)

Fig. 2. SEM images of samples: H-ZSM-5mm (a) and H-ZSM-5mm/CA (b)

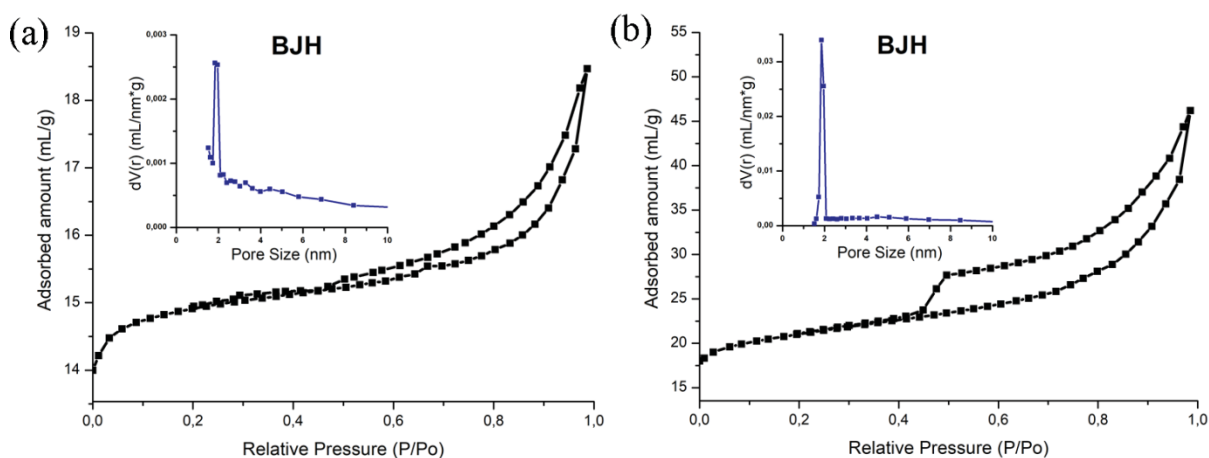


Рис. 3. Изотермы адсорбции-десорбции азота и распределение пор по размеру для образцов: H-ZSM-5mm до (a) и после (b) деалюминирования

Fig. 3. Nitrogen adsorption-desorption isotherms and pore size distribution for samples: H-ZSM-5mm before (a) and after dealumination (b)

Таблица 2. Структурные характеристики образцов цеолитов ZSM-5 и Мо-содержащих катализаторов на их основе

Table 2. Structural characteristics of ZSM-5 zeolite samples and Mo-containing catalysts based on them

Образец Sample	$S_{\text{ВЕТ}}^a$ ( $\text{M}^2/\text{г}$ )	$V_{\text{микро}}^b$ $V_{\text{micro}}$	$V_{\text{мезо}}^c$ $V_{\text{meso}}$	$V_{\text{макро}}^d$ $V_{\text{macro}}$	$V_{\Sigma}^e$
	$S_{\text{ВЕТ}}^a$ ( $\text{m}^2/\text{g}$ )	$\text{cm}^3/\text{г}/\text{cm}^3/\text{g}$			
H-ZSM-5	285	0,13	0,02	0	0,15
H-ZSM-5mm	315	0,12	0,20	0,33	0,65
H-ZSM-5mm/ЛК	342	0,12	0,23	0,36	0,71
H-ZSM-5/30 % $\text{Al}_2\text{O}_3$	345	0,08	0,22	0,33	0,63
Mo/ZSM-5mm	301	0,10	0,19	0,31	0,60
Mo/ZSM-5mm/ЛК	312	0,10	0,20	0,32	0,62
Mo/ZSM-5mm/CA	313	0,08	0,20	0,31	0,59

Примечание: а – площадь удельной поверхности; б – объем микропор; в – объем мезопор; г – объем макропор; д – суммарный объем пор.

Note: a – specific surface area; b – micropore volume; c – mesopore volume; d – macropore volume; e – total pore volume.

Следует отметить, что значения характеристик пористой структуры катализаторов H-ZSM-5mm и H-ZSM-5/30 %  $\text{Al}_2\text{O}_3$  близки. Однако пористая структура цеолита ZSM-5mm сформирована только кристаллами цеолита различной дисперсности, а в образце H-ZSM-5/30 %  $\text{Al}_2\text{O}_3$  – кристаллами цеолита и оксида алюминия, при этом сам цеолит H-ZSM-5 остается микропористым, и ограничения для диффузии реагирующих молекул к каталитически активным центрам и образующихся продуктов реакции сохраняются.

Кислотные свойства исследуемых материалов представлены в табл. 3. Видно, что для всех изученных образцов характерно наличие двух типов кислотных центров – слабо- и сильнокислотных. Известно [33], что высокотемпературный пик относится в основном к бренstedовским кислотным центрам, а низкотемпературный – преимущественно к льюисовским кислотным центрам. Наибольшую концентрацию сильных кислотных центров имеет цеолит H-ZSM-5mm, кислотность которого существенно снижается после обработки цеолита раствором 0,3 N лимонной кислоты.



**Таблица 3.** Кислотные характеристики исходных цеолитов и Mo/ZSM-5 катализаторов

**Table 3.** Acidic characteristics of the initial zeolites and Mo/ZSM-5 catalysts

Образец Sample	Количество десорбируемого аммиака, мкмоль/г Amount of desorbed ammonia, $\mu\text{mol/g}$		
	Слабые кислотные центры <sup>1</sup> Weak acid sites <sup>1</sup>	Сильные кислотные центры <sup>2</sup> Strong acid sites <sup>2</sup>	Общее количество кислотных центров Total number of acid sites
H-ZSM-5	369	319	688
H-ZSM-5mm	421	307	728
H-ZSM-5mm/ЛК	357	158	515
H-ZSM-5mm/CA	318	194	512
H-ZSM-5/30 % Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	318	194	512
MoZSM-5mm	500	176	676
MoZSM-5mm/ЛК	335	61	396
H-ZSM-5mm/CA	335	61	396
MoZSM-5/30 % Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	349	161	510

<sup>1</sup> – количество десорбируемого аммиака в интервале температур 100–350 °C/amount of desorbed ammonia in the temperature range of 100–350 °C;

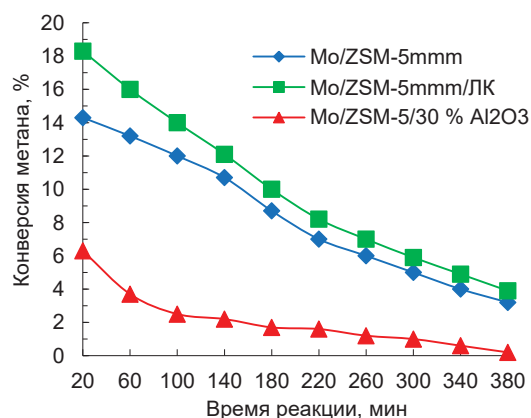
<sup>2</sup> – количество десорбируемого аммиака в интервале температур 350–550 °C/amount of desorbed ammonia in the temperature range of 350–550 °C.

Более низкая концентрация сильных кислотных центров гранулированного катализатора H-ZSM-5/30 % Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> по сравнению с образцом H-ZSM-5mm связана с уменьшением цеолитной фазы при добавлении 30 % связующего вещества. Введение Mo в образцы исследуемых гранулированных цеолитов приводит к снижению концентрации сильных кислотных центров. Наиболее заметное их снижение, более чем в 2,5 раза, наблюдается для цеолита, обработанного лимонной кислотой, для которого концентрация сильных кислотных центров составляет 61 мкмоль/г. Основной причиной этого является взаимодействие модифицирующего элемента с бренстедовскими кислотными центрами цеолита [34, 35].

Максимальная степень конверсии метана на всех исследуемых катализаторах достигается в начале процесса (в данном случае через 20 мин каталитического эксперимента) и указывает на короткий индукционный период (рис. 4). Ее наибольшее значение (18,3 %) наблюдается на Mo-содержащем катализаторе, приготовленном на основе цеолита ZSM-5mm/ЛК, а наименьшее (6,3 %) – на катализаторе, содержащем 30 % связующего вещества. Такое поведение образца Mo/ZSM-5/30 % Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> связано с тем, что его пористая структура сформирована кристаллами цеолита и оксида алюминия, при этом цеолит остается микропористым и, следовательно, ограничения для диффузии реагирующих молекул к каталитически активным центрам и отвод продуктов каталитических превращений сохраняются.

С увеличением продолжительности каталитического эксперимента конверсия метана снижается на всех исследуемых образцах из-за образования угле-

родных отложений на их поверхности [26, 36–38]. В работе [39] было показано, что центрами активации молекул метана в Mo/ZSM-5 катализаторе являются MoC<sub>x</sub>-центры, которые во время реакции дегидроароматизации метана покрываются слоем графита толщиной 2–3 нм со структурой графита. При этом на поверхности цеолита наблюдается образование углеродных отложений разупорядоченной структуры, подобных коксу, и за 380 мин реакции поверхность цеолитного носителя полностью покрывается коксом.



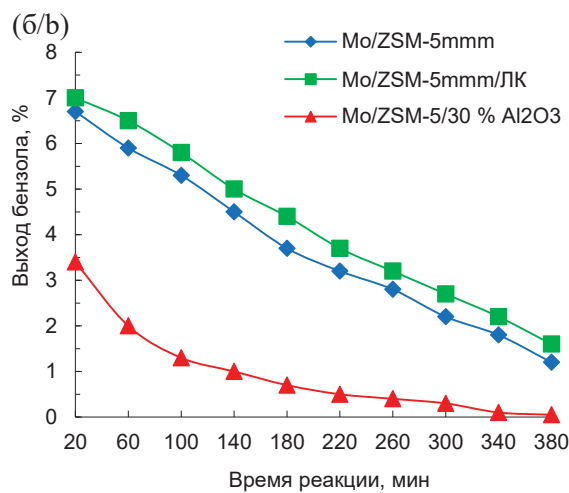
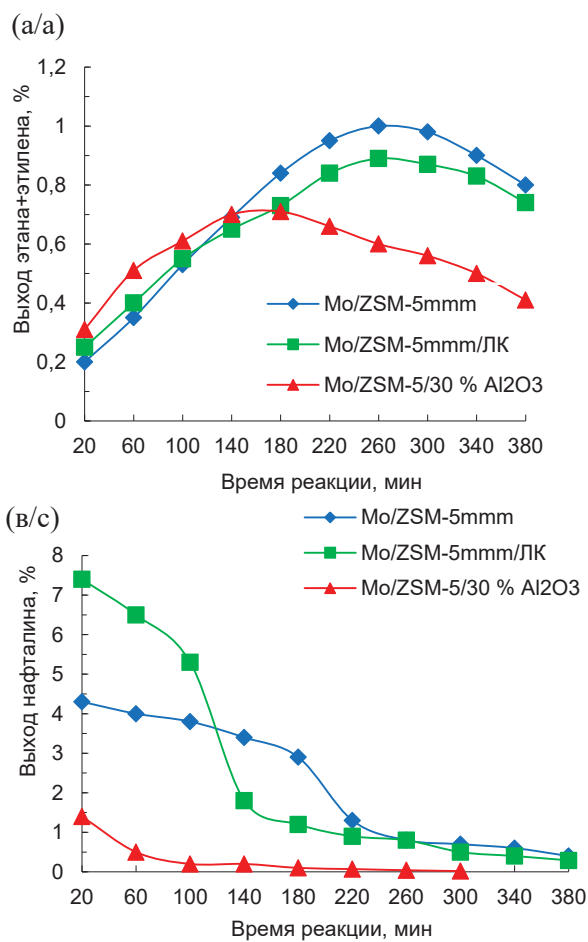
**Рис. 4.** Изменение степени конверсии метана на Mo/ZSM-5 катализаторах в зависимости от продолжительности каталитического эксперимента

**Fig. 4.** Change in methane conversion over Mo/ZSM-5 catalysts vs the duration of the catalytic experiment

Анализ образующихся в процессе конверсии метана газообразных продуктов показывает, что они состоят в основном из этана и этилена, суммарный выход которых не превышает 1,0 %, кроме них в газовой фазе присутствуют водород и не превращенный метан, а также в самом начале процесса образуются небольшие количества CO, CO<sub>2</sub> и H<sub>2</sub>O. По мере увеличения продолжительности эксперимента суммарный выход этана и этилена увеличивается, достигая максимальных значений на образце Mo/ZSM-5mm через 260 мин (рис. 5, а). Наименьшее количество газообразных углеводородов образуется на катализаторе MoZSM-5/30 % Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

В жидких продуктах превращения метана преобладают бензол и нафталин. Кроме того, в следовых количествах содержатся толуол, ксилол и алкилнафталины. Наибольшее количество бензола на всех исследуемых катализаторах образуется через 20 мин после начала реакции, при дальнейшем увеличении продолжительности эксперимента выход бензола снижается. При этом через 380 мин выход бензола на катализаторе MoZSM-5/30 % Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> составляет всего 0,1 % (рис. 5, б).

Наиболее высокий выход нафталина наблюдается в начале процесса на катализаторе Mo/ZSM-5mm/ЛК, однако через 100 мин после начала реакции его количество резко снижается. Минимальное количество нафталина образуется на образце MoZSM-5/30 % Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (рис. 5, в).



**Рис. 5.** Изменение выхода  $C_2$ -углеводородов (а), бензола (б) и нафталина (в) на Mo/ZSM-5 катализаторах в зависимости от продолжительности каталитического эксперимента

**Fig. 5.** Change in the yield of  $C_2$ -hydrocarbons (a), benzene (b) and naphthalene (c) over Mo/ZSM-5 catalysts vs the duration of the catalytic experiment

Таким образом, Мо-содержащие катализаторы на основе цеолитов H-ZSM-5mm и H-ZSM-5mm/LK проявляют более высокую стабильность работы по сравнению с катализатором, приготовленным с использованием 30 %  $Al_2O_3$ . Степень конверсии метана на катализаторах Mo/ZSM-5mm/LK и Mo/ZSM-5/30 %  $Al_2O_3$  через 260 мин каталитического эксперимента составляет 7,0 и 1,2 %, соответственно (рис. 4).

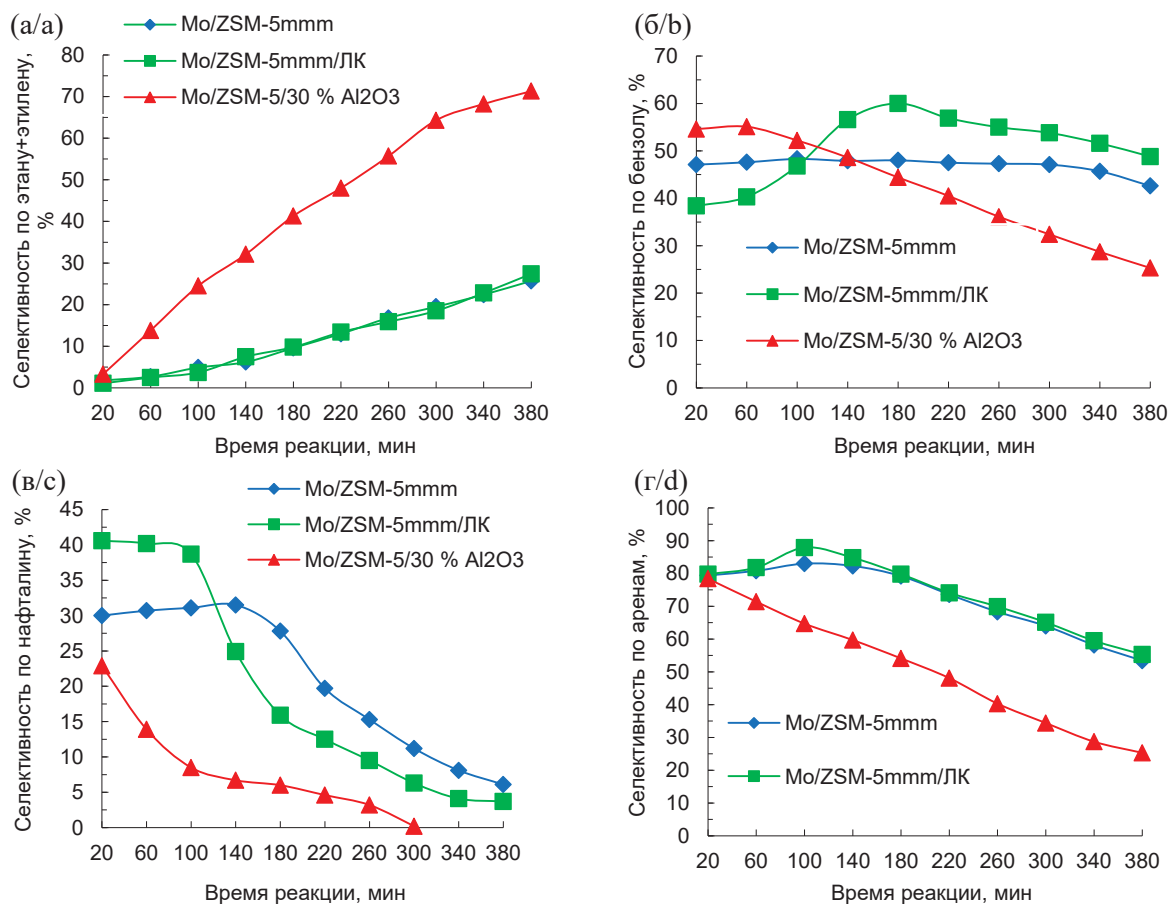
На рис. 6 приведены значения селективности образования основных продуктов превращения метана на исследуемых катализаторах. Видно, что наибольшая селективность образования  $C_2$ -углеводородов наблюдается на катализаторе Mo/ZSM-5/30 %  $Al_2O_3$ . С ростом продолжительности эксперимента она практически линейно увеличивается, достигая 71,3 % за 380 мин реакции (рис. 6, а). Полученные результаты свидетельствуют о том, что образующиеся в ходе реакции этан и этилен всё меньше вступают в дальнейшие превращения с образованием ароматических соединений из-за дезактивации брэнстедовских кислотных центров цеолитного носителя. Для других катализаторов также наблюдается рост селективности образования  $C_2$ -углеводородов при увеличении продолжительности эксперимента, но в меньшей степени, чем на образце Mo/ZSM-5/30 %  $Al_2O_3$ .

В первые 100 мин реакции наибольшая селективность образования бензола наблюдается на катализаторах Mo/ZSM-5mm и Mo/ZSM-5/30 %  $Al_2O_3$  (рис. 6, б). В дальнейшем происходит её резкое уменьшение на

образце Mo/ZSM-5/30 %  $Al_2O_3$  и плавное снижение на катализаторе Mo/ZSM-5mm. Селективность образования бензола на образце Mo/ZSM-5mm/LK растёт вплоть до 180 мин протекания процесса, а затем начинает плавно уменьшаться. При этом её значения остаются выше, чем на других катализаторах.

Наибольшая селективность образования нафталина достигается через 100 мин реакции на катализаторе Mo/ZSM-5mm/LK (рис. 6, в). В дальнейшем она резко снижается до величин, существенно меньших, чем на образце Mo/ZSM-5mm. Катализатор Mo/ZSM-5/30 %  $Al_2O_3$  по селективности образования нафталина значительно уступает другим образцам во всем исследуемом временном интервале.

Максимальная суммарная селективность образования ароматических углеводородов наблюдается на катализаторе Mo/ZSM-5mm. При этом можно отметить, что по селективности их образования катализаторы Mo/ZSM-5mm и Mo/ZSM-5mm/LK отличаются незначительно (рис. 6, г). Селективность образования ароматических соединений на катализаторе Mo/ZSM-5/30 %  $Al_2O_3$  близка к показателям, полученным на других катализаторах, лишь вначале процесса, затем она резко уменьшается и, например, уже за 260 мин реакции селективность образования ароматических углеводородов на катализаторе Mo/ZSM-5mm/LK составляет 69,9 %, а на катализаторе Mo/ZSM-5/30 %  $Al_2O_3$  – 40,3 %.



**Рис. 6.** Изменение селективности образования  $C_2$ -углеводородов (а), бензола (б), нафталина (в) и суммарной селективности образования ароматических углеводородов (г) на Mo/ZSM-5 катализаторах в зависимости от продолжительности каталитического эксперимента

**Fig. 6.** Change in the selectivity towards the formation of  $C_2$ -hydrocarbons (a), benzene (b), naphthalene (c) and the total selectivity towards the formation of aromatic hydrocarbons (d) over Mo/ZSM-5 catalysts vs the duration of the catalytic experiment

### Заключение

Таким образом, в результате проведенных сравнительных исследований физико-химических и каталитических свойств в процессе неокислительной конверсии метана в ароматические углеводороды Мо-содержащих катализаторов на основе гранулированных цеолитов ZSM-5 высокой степени кристалличности с иерархической пористой структурой до и после dealюминирования раствором лимонной кислоты, а также приготовленных традиционным способом показано, что активность, селективность и стабильность гранулированного катализатора Mo/ZSM-5mm выше, чем катализатора, полученного путем смешения порошкообразного цеолита и псевдобемита с последующей грануляцией и прокалкой. Обработка образца H-ZSM-5mm 0,3 N раствором лимонной кислоты оказывает влияние на оптимизацию его кислотных характеристик и создание дополнительной мезопористости в цеолите, что приводит к улучшению каталитических показателей катализатора Mo/ZSM-5mm/LK в процессе дегидроароматизации метана.

Работа выполнена в рамках государственного задания ИХН СО РАН, финансируемого Министерством науки и высшего образования Российской Федерации (проект № 12103-1200182-5), государственного задания Института нефтехимии и катализа УФИЦ РАН (тема № АААА-А19-119022290006-2), при финансовой поддержке РФФИ (проект № 19-33-60009).

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Recent progress in methane dehydroaromatization: from laboratory curiosities to promising technology / S. Ma, X. Guo, L. Zhao, S. Scott, X. Bao // Journal of Energy Chemistry. – 2013. – V. 22. – P. 1–20. URL: [https://doi.org/10.1016/S2095-4956\(13\)60001-7](https://doi.org/10.1016/S2095-4956(13)60001-7) (дата обращения 20.05.2022).
- Степанов А.А., Коробицына Л.Л., Восмериков А.В. Оценка современного состояния исследований и достижения в области каталитической переработки природного газа в ценные химические продукты // Катализ в промышленности. – 2021. – Т. 21. – С. 197–217. URL: <https://doi.org/10.18412/1816-0387-2021-4-197-217> (дата обращения 20.05.2022).
- Karakaya C., Kee R.J. Progress in the direct catalytic conversion of methane to fuels and chemicals // Progress in Energy and Combustion Science. – 2016. – V. 55. – P. 60–97. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.peccs.2016.04.003> (дата обращения 20.05.2022).
- Progress in the direct catalytic conversion of methane to fuels and chemicals / B. Wang, S. Albarracin-Suazo, Y. Pagan-Torres, E. Nikolla // Catalysis Today. – 2017. – V. 285. – P. 147–158.

- URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cattod.2017.01.023> (дата обращения 20.05.2022).
- Direct conversion of natural gas to higher hydrocarbons: a review / S. Majhi, P. Mohanty, H. Wang, K.K. Pant // *Journal of Energy Chemistry*. – 2013. – V. 22. – P. 543–554. URL: [https://doi.org/10.1016/S2095-4956\(13\)60071-6](https://doi.org/10.1016/S2095-4956(13)60071-6) (дата обращения 20.05.2022).
  - Liu Y., Kooli F., Borgna A. Tandem dual bed Mo/HZSM-5 and Mo/HMCM-22 catalysts with enhanced catalytic performance for natural gas conversion to aromatics // *Catalysis Today*. – 2020. – V. 357. – P. 392–398. URL: <https://doi.org/10.1016/j.cattod.2019.09.026> (дата обращения 20.05.2022).
  - A feasible way to enhance effectively the catalytic performance of methane dehydroaromatization / N. Chu, J. Yang, J. Wang, S. Yu, J. Lu, Y. Zhang, D. Yin // *Catalysis Communications*. – 2010. – V. 11. – P. 513–517. URL: <https://doi.org/10.1016/j.catcom.2009.12.004> (дата обращения 20.05.2022).
  - Progress in nonoxidative dehydroaromatization of methane in the last 6 years / K. Sun, D.M. Ginosar, T. He, Y. Zhang, M. Fan, R. Chen // *Industrial & Engineering Chemistry Research*. – 2018. – V. 57. – P. 1768–1789. URL: <https://doi.org/10.1021/acs.iecr.7b04707> (дата обращения 20.05.2022).
  - Spivey J.J., Hutchings G. Catalytic aromatization of methane // *Chemical Society Reviews*. – 2014. – V. 43. – P. 792–803. URL: <https://doi.org/10.1039/c3cs60259a> (дата обращения 20.05.2022).
  - Catalytic chemistry for Methane Dehydroaromatization (MDA) on a bifunctional Mo/HZSM-5 catalyst in a packed bed / C. Karakaya, S.H. Morejudo, H. Zhu, R.J. Kee // *Industrial & Engineering Chemistry Research*. – 2016. – V. 55. – P. 9895–9906. URL: <https://doi.org/10.1021/acs.iecr.6b02701> (дата обращения 20.05.2022).
  - Desilication and silylation of Mo/HZSM-5 for methane dehydroaromatization / C.H.L. Tempelman, V.O. de Rodrigues, E.R.H. van Eck, P.C.M.M. Magusin, E.J.M. Hensen // *Microporous and Mesoporous Materials*. – 2015. – V. 203. – P. 259–273. URL: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2014.10.020> (дата обращения 20.05.2022).
  - Non-oxidative dehydroaromatization of methane over Mo/H-ZSM-5 catalysts: a detailed analysis of the reaction-regeneration cycle / S.J. Han, S.K. Kim, A. Hwang, S. Kim, D.-Y. Hong, G. Kwak, K.-W. Jun, Y.T. Kim // *Applied Catalysis B: Environmental*. – 2019. – V. 241. – P. 305–318. URL: <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2018.09.042> (дата обращения 20.05.2022).
  - Martinez A., Peris E. Non-oxidative methane dehydroaromatization on Mo/HZSM-5 catalysts: tuning the acidic and catalytic properties through partial exchange of zeolite protons with alkali and alkaline-earth cations // *Applied Catalysis A: General*. – 2016. – V. 515. – P. 32–44. URL: <https://doi.org/10.1016/j.apcata.2016.01.044> (дата обращения 20.05.2022).
  - Increasing the catalytic stability by optimizing the formation of zeolite-supported Mo carbide species ex situ for methane dehydroaromatization / M. Rahman, A. Infantes-Molina, A. Boubnov, S.R. Bare, E. Stavitski, A. Sridhar, S.J. Khatib // *Journal of Catalysis*. – 2019. – V. 375. – P. 314–328. URL: <https://doi.org/10.1016/j.jcat.2019.06.002> (дата обращения 20.05.2022).
  - Karakaya C., Zhu H., Kee R.J. Kinetic modeling of methane dehydroaromatization chemistry on Mo/Zeolite catalysts in packed-bed reactors // *Chemical Engineering Science*. – 2015. – V. 123. – P. 474–486. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.ces.2014.11.039> (дата обращения 20.05.2022).
  - Ultrasound-assisted preparation of Mo/ZSM-5 zeolite catalyst for non-oxidative methane dehydroaromatization / H. Ramirez-Mendoza, M.V.L. Pereira, T.V. Gerven, C. Lutz, I. Julian // *Catalysts*. – 2021. – V. 11. – P. 313. URL: <https://doi.org/10.3390/catal11030313> (дата обращения 20.05.2022).
  - Coke distribution determines the lifespan of a hollow Mo/HZSM-5 capsule catalyst in CH<sub>4</sub> dehydroaromatization / X. Huang, X. Jiao, M. Lin, K. Wang, L. Jia, B. Houa, D. Lia // *Catalysis Science and Technology Journal*. – 2018. – V. 8. – P. 5740–5749. URL: <https://doi.org/10.1039/C8CY01391H> (дата обращения 20.05.2022).
  - Coking mechanism of Mo/ZSM-5 catalyst in methane dehydroaromatization / Y. Gu, P. Chen, H. Yan, X. Wang, Y. Lyu, Y. Tian, W. Liu, Z. Yan, X. Liu // *Applied Catalysis A, General*. – 2021. – V. 613. – P. 118019. URL: <https://doi.org/10.1016/j.apcata.2021.118019> (дата обращения 20.05.2022).
  - Comparison of the activities of binder-added and binder-free Mo/HZSM-5 catalysts in methane dehydroaromatization at 1073 K in periodic CH<sub>4</sub>-H<sub>2</sub> switch operation mode / Y. Xu, H. Ma, Y. Yamamoto, Y. Suzuki, Z. Zhang // *Journal of Natural Gas Chemistry*. – 2012. – V. 21. – P. 729–744. URL: [https://doi.org/10.1016/S1003-9953\(11\)60426-X](https://doi.org/10.1016/S1003-9953(11)60426-X) (дата обращения 20.05.2022).
  - Methane aromatization in the absence of oxygen over extruded and molded MoO<sub>3</sub>/ZSM-5 catalysts: Influences of binder and molding method / D. Ren, X. Wang, G. Li, X. Chen, H. Long, L. Chen // *Journal of Natural Gas Chemistry*. – 2010. – V. 19. – P. 646–652. URL: [https://doi.org/10.1016/S1003-9953\(09\)60130-4](https://doi.org/10.1016/S1003-9953(09)60130-4) (дата обращения 20.05.2022).
  - Effect of  $\gamma$ -alumina content on catalytic performance of modified ZSM-5 for dehydration of crude methanol to dimethyl ether / S.D. Kim, S.C. Baek, Y.-J. Lee, K.-W. Jun, M.J. Kim, I.S. Yoo // *Applied Catalysis A: General*. – 2006. – V. 309. – P. 139–143. URL: <https://doi.org/10.1016/j.apcata.2006.05.008> (дата обращения 20.05.2022).
  - Nonoxidative methane conversion on granulated Mo/ZSM-5 catalysts / A.A. Stepanov, R.Z. Kuvatova, L.L. Korobitsyna, O.S. Travkina, A.V. Vosmerikov, B.I. Kutepov // *Petroleum Chemistry*. – 2021. – V. 61. – P. 370–377. URL: <https://doi.org/10.1134/S0965544121020092> (дата обращения 20.05.2022).
  - Parkhomchuk E.V., Sashkina K.A., Parmon V.N. New heterogeneous catalysts based on zeolites with hierarchical pore system // *Petroleum Chemistry*. – 2016. – V. 56. – P. 197–204. URL: <https://doi.org/10.1134/S0965544116030105> (дата обращения 20.05.2022).
  - Selective conversion of methane to aromatic hydrocarbons on large crystallite zeolite catalysts with mesoporous structure / S.A. Mikhaylov, L.M. Kustov, M.N. Mikhaylov, N.A. Mamonov // *Russian Chemical Bulletin*. – 2017. – V. 66. – P. 2066–2072. URL: <http://doi.org/10.1007/s11172-017-1982-6> (дата обращения 20.05.2022).
  - Na K., Choi M., Ryou R. Recent advances in the synthesis of hierarchically nanoporous zeolites // *Microporous and Mesoporous Materials*. – 2013. – V. 166. – P. 3–19. URL: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2012.03.054> (дата обращения 20.05.2022).
  - Intra-crystalline mesoporous ZSM-5 zeolite by grinding synthesis method / Y. Gu, X. Wang, Z. Qin, S. Mintova, X. Liu // *Microporous and Mesoporous Materials*. – 2020. – V. 306. – P. 110437. URL: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2020.110437> (дата обращения 20.05.2022).
  - Mesopore-modified zeolites: preparation, characterization, and applications / Y. Tao, H. Kanoh, L. Abrams, K. Kaneko // *Chemical Reviews*. – 2006. – V. 106. – P. 896–910. URL: <https://doi.org/10.1021/cr040204o> (дата обращения 20.05.2022).
  - Гранулированный цеолит ZSM-5 без связующего и способ его получения: пат. Рос. Федерация, № 2739350, заявл. 16.12.2019; опубл. 23.12.2020. Бюл. № 36. – 12 с.
  - Способ получения высококремнеземного цеолита типа ZSM-5: пат. Рос. Федерация, № 1527154, заявл. 17.11.1987; опубл. 07.12.1989. Бюл. № 45. – 3 с.
  - Deactivation of molybdenum-containing zeolites in the course of nonoxidative methane conversion / A.V. Vosmerikov, L.L. Korobitsyna, Ya.E. Barabashin, N.V. Arbutova, G.V. Echevskii, E.G. Kodenev, S.P. Zhuravkov // *Kinetics and Catalysis*. – 2005. – V. 46. – P. 724–728. URL: <https://doi.org/10.1007/s10975-005-0128-2> (дата обращения 20.05.2022).
  - Breck D.W. Zeolite molecular sieves: structure, chemistry, and use. – New York: Wiley, 1974. – 771 p.
  - Baerlocher C., McCusker L.B., Olson D.H. Atlas of zeolite framework types. – Elsevier, 2007. URL: <https://doi.org/10.1016/B978-0-444-53064-6.X5186-X> (дата обращения 20.05.2022).
  - MAS NMR, ESR and TPD studies of Mo/HZSM-5 catalysts: evidence for the migration of molybdenum species into the zeolitic channels / D. Ma, W. Zhang, Y. Shu, X. Liu, Y. Xu, X. Bao // *Catalysis Letters*. – 2000. – V. 66. – P. 155–160. URL: <https://doi.org/10.1023/A:1019099607029> (дата обращения 20.05.2022).
  - Kim Y.-H., Borry R.W., Iglesia E. Genesis of methane activation sites in Mo-exchanged H-ZSM-5 catalysts // *Microporous and Mesoporous Materials*. – 2000. – V. 35–36. – P. 495–509. URL:



- [https://doi.org/10.1016/S1387-1811\(99\)00245-0](https://doi.org/10.1016/S1387-1811(99)00245-0) (дата обращения 20.05.2022).
35. Zhou D., Zuo S., Xing S. Methane dehydrogenation and coupling to ethylene over a Mo/HZSM-5 catalyst: a density functional theory study // *The Journal of Physical Chemistry C*. – 2012. – V. 116. – P. 4060–4070. URL: <https://doi.org/10.1021/jp209037c> (дата обращения 20.05.2022).
36. Creating mesopores in ZSM-5 zeolite by alkali treatment: a new way to enhance the catalytic performance of methane dehydroaromatization on Mo/HZSM-5 catalysts / L. Su, L. Liu, J. Zhuang, H. Wang, Y. Li., W. Shen, Y. Xu, X. Bao // *Catalysis Letters*. – 2003. – V. 91. – P. 155–167. URL: <https://doi.org/10.1023/B:CATL.0000007149.48132.5a> (дата обращения 20.05.2022).
37. Study on Mo/HZSM-5 catalysts modified by bulky aminoalkyl-substituted silyl compounds for the selective methane-to-benzene (MTB) reaction / S. Kikuchi, R. Kojima, H. Ma, J. Bai, M. Ichikawa // *Journal of Catalysis*. – 2006. – V. 242. – P. 349–356. URL: <https://doi.org/10.1016/j.jcat.2006.06.024> (дата обращения 20.05.2022).
38. Coke accumulation and deactivation behavior of microzeolite-based Mo/HZSM-5 in the non-oxidative methane aromatization under cyclic CH<sub>4</sub>-H<sub>2</sub> feed switch mode / Y. Song, Q. Zhang, Y. Xu, Y. Zhang, K. Matsuoka, Z.-G. Zhang // *Applied Catalysis A: General*. – 2017. – V. 530. – P. 12–20. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.apcata.2016.11.016> (дата обращения 20.05.2022).
39. Properties and deactivation of the active sites of an MoZSM-5 catalyst for methane dehydroaromatization: Electron microscopic and EPR studies / V.I. Zaikovskii, A.V. Vosmerikov, V.F. Anufrienko, L.L. Korobitsyna, E.G. Kodenev, G.V. Echevskii, N.T. Vasenin, S.P. Zhuravkov, E.V. Matus, Z.R. Ismagilov, V.N. Parmon // *Kinetics and Catalysis*. – 2006. – V. 47. – P. 389–394. URL: <https://doi.org/10.1134/S0023158406030104> (дата обращения 20.05.2022).

Поступила 25.05.2022 г.

Прошла рецензирование 25.07.2022 г.

#### Информация об авторах

**Степанов А.А.**, ученый секретарь, Институт химии нефти Сибирского отделения Российской академии наук.

**Коробицына Л.Л.**, кандидат химических наук, доцент, старший научный сотрудник лаборатории каталитической переработки легких углеводородов, Институт химии нефти Сибирского отделения Российской академии наук.

**Ишкильдина А.Х.**, инженер лаборатории приготовления катализаторов Институт нефтехимии и катализа – обособленное подразделение Уфимского федерального исследовательского центра Российской академии наук.

**Травкина О.С.**, кандидат химических наук, научный сотрудник лаборатории приготовления катализаторов Институт нефтехимии и катализа – обособленное подразделение Уфимского федерального исследовательского центра Российской академии наук.

**Куватова Р.З.**, кандидат химических наук, младший научный сотрудник лаборатории приготовления катализаторов Институт нефтехимии и катализа – обособленное подразделение Уфимского федерального исследовательского центра Российской академии наук.

**Восмериков А.В.**, доктор химических наук, профессор, директор Института химии нефти Сибирского отделения Российской академии наук.

**Кутепов Б.И.**, доктор химических наук, профессор, заведующий лабораторией приготовления катализаторов Институт нефтехимии и катализа – обособленное подразделение Уфимского федерального исследовательского центра Российской академии наук.

UDC 541.128:542.97:542.941.7:547.21:549.67

## GRANULAR HIERARCHICALLY POROUS Mo-CONTAINING ZSM-5 ZEOLITES WITH DIFFERENT LEVEL OF ACIDITY IN NON-OXIDATIVE CONVERSION OF METHANE TO AROMATIC HYDROCARBONS

**Andrey A. Stepanov<sup>1</sup>,**  
stepanov@ipc.tsc.ru

**Lyudmila L. Korobitsyna<sup>1</sup>,**  
kl@ipc.tsc.ru

**Alina Kh. Ishkildina<sup>2</sup>,**  
miss.ishkildina@ya.ru

**Olga S. Travkina<sup>2</sup>,**  
simchanka@mail.ru

**Rezeda Z. Kuvatova<sup>2</sup>,**  
kuvatova2010@mail.ru

**Alexander V. Vosmerikov<sup>1</sup>,**  
pika@ipc.tsc.ru

**Boris I. Kutepov<sup>2</sup>,**  
kutepoff@inbox.ru

<sup>1</sup> Institute of Petroleum Chemistry SB RAS,  
4, Akademicheskoye avenue, Tomsk, 634055, Russia.

<sup>2</sup> Institute of Petrochemistry and Catalysis Russian Academy of Sciences,  
141, Oktyabrskaya avenue, Ufa, 450075, Russia.

**The relevance** of the work is related to the development of active and selective catalysts for processing natural and petroleum associated gases, the main component of which is methane, into valuable chemical products. Methane non-oxidative conversion into aromatic hydrocarbons on zeolite-containing catalysts modified with metals is of the greatest interest.

**The aim** of this work is comparative study of physicochemical and catalytic properties in methane non-oxidative conversion into aromatic hydrocarbons of Mo-containing catalysts based on granular zeolites ZSM-5 of a high degree of crystallinity with a hierarchical porous structure before and after dealuminating with aqueous solution of citric acid.

**Methods:** X-ray fluorescence analysis, XRF, SEM, nitrogen low-temperature adsorption, temperature-programmed desorption of ammonia (TPD-NH<sub>3</sub>), gas chromatography.

**Results.** The paper presents the results of the investigation of physicochemical and catalytic properties of granular hierarchically porous Mo-containing ZSM-5 zeolites with different level of acidity in the course of non-oxidative conversion of methane to aromatic hydrocarbons. It is shown that catalysts based on a granular high crystalline ZSM-5 zeolite with a hierarchical porous structure are more effective in the nonoxidative conversion of methane compared to a catalyst prepared by a traditional method with a binder. It was found out that the highest methane conversion and the maximum yield of aromatic hydrocarbons are 18,3 and 14,4 %, respectively. These results are achieved over a catalytic system prepared by applying 4 wt. % of MoO<sub>3</sub> on a granular hierarchically porous ZSM-5 zeolite of high crystallinity dealuminated by the treatment with 0,3 N citric acid solution. The maximum total selectivity of formation of aromatic hydrocarbons is observed on the Mo/ZSM-5mm catalyst. At the same time, the selectivity of aromatic hydrocarbons on the catalysts Mo/ZSM-5mm and Mo/ZSM-5mm/CA differ slightly.

### Key words:

ZSM-5 zeolite, acidity, hierarchical porous structure, granular catalysts, catalytic properties, methane, aromatic hydrocarbons, methane non-oxidative conversion.

*This work was supported by the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation (Registration Number 12103-1200182-5 and AAAA-A19-119022290006-2) and the reported study was funded by RFBR, project number 19-33-60009.*

### REFERENCES

- Ma S., Guo X., Zhao L., Scott S., Bao X. Recent progress in methane dehydroaromatization: From laboratory curiosities to promising technology. *Journal of Energy Chemistry*, 2013, vol. 22, pp. 1–20. Available at: [https://doi.org/10.1016/S2095-4956\(13\)60001-7](https://doi.org/10.1016/S2095-4956(13)60001-7) (accessed 20 May 2022).
- Stepanov A.A., Korobitsyna L.L., Vosmerikov A.V. Assessment of the current state of research and achievements in the field of catalytic processing of natural gas into valuable chemical products. *Kataliz v promyshlennosti*, 2021, vol. 21, pp. 197–217. In Rus. Available at: <https://doi.org/10.18412/1816-0387-2021-4-197-217> (accessed 20 May 2022).
- Karakaya C., Kee R.J. Progress in the direct catalytic conversion of methane to fuels and chemicals. *Progress in Energy and Combustion Science*, 2016, vol. 55, pp. 60–97. Available at: <http://dx.doi.org/10.1016/j.peccs.2016.04.003> (accessed 20 May 2022).
- Wang B., Albarracin-Suazo S., Pagan-Torres Y., Nikolla E. Progress in the direct catalytic conversion of methane to fuels and chemicals. *Catalysis Today*, 2017, vol. 285, pp. 147–158. Available at: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cattod.2017.01.023> (accessed 20 May 2022).
- Majhi S., Mohanty P., Wang H., Pant K.K. Direct conversion of natural gas to higher hydrocarbons: A review. *Journal of Energy Chemistry*, 2013, vol. 22, pp. 543–554. Available at: [https://doi.org/10.1016/S2095-4956\(13\)60071-6](https://doi.org/10.1016/S2095-4956(13)60071-6) (accessed 20 May 2022).
- Liu Y., Kooli F., Borgna A. Tandem dual bed Mo/HZSM-5 and Mo/HMCM-22 catalysts with enhanced catalytic performance for natural gas conversion to aromatics. *Catalysis Today*, 2020, vol. 357, pp. 392–398. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.cattod.2019.09.026> (accessed 20 May 2022).
- Chu N., Yang J., Wang J., Yu S., Lu J., Zhang Y., Yin D. A feasible way to enhance effectively the catalytic performance of methane dehydroaromatization. *Catalysis Communications*, 2010, vol. 11, pp. 513–517. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.catcom.2009.12.004> (accessed 20 May 2022).
- Sun K., Ginosar D.M., He T., Zhang Y., Fan M., Chen R. Progress in nonoxidative dehydroaromatization of methane in the last 6

- years. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2018, vol. 57, pp. 1768–1789. Available at: <https://doi.org/10.1021/acs.iecr.7b04707> (accessed 20 May 2022).
9. Spivey J.J., Hutchings G. Catalytic aromatization of methane. *Chemical Society Reviews*, 2014, vol. 43, pp. 792–803. Available at: <https://doi.org/10.1039/c3cs60259a> (accessed 20 May 2022).
  10. Karakaya C., Morejudo S.H., Zhu H., Kee R.J. Catalytic Chemistry for Methane Dehydroaromatization (MDA) on a Bifunctional Mo/HZSM-5 Catalyst in a Packed Bed. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2016, vol. 55, pp. 9895–9906. Available at: <https://doi.org/10.1021/acs.iecr.6b02701> (accessed 20 May 2022).
  11. Tempelman C.H.L., Rodrigues V.O.D., Eck E.R.H.V., Magusin P.C.M.M., Hensen E.J.M. Desilication and silylation of Mo/HZSM-5 for methane dehydroaromatization. *Microporous and Mesoporous Materials*, 2015, vol. 203, pp. 259–273. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2014.10.020> (accessed 20 May 2022).
  12. Han S.J., Kim S.K., Hwang A., Kim S., Hong D.-Y., Kwak G., Jun K.-W., Kim Y.T. Non-oxidative dehydroaromatization of methane over Mo/H-ZSM-5 catalysts: a detailed analysis of the reaction-regeneration cycle. *Applied Catalysis B: Environmental*, 2019, vol. 241, pp. 305–318. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2018.09.042> (accessed 20 May 2022).
  13. Martinez A., Peris E. Non-oxidative methane dehydroaromatization on Mo/HZSM-5 catalysts: Tuning the acidic and catalytic properties through partial exchange of zeolite protons with alkali and alkaline-earth cations. *Applied Catalysis A: General*, 2016, vol. 515, pp. 32–44. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.apcata.2016.01.044> (accessed 20 May 2022).
  14. Rahman M., Infantes-Molina A., Boubnov A., Bare S.R., Stavitski E., Sridhar A., Khatib S.J. Increasing the catalytic stability by optimizing the formation of zeolite-supported Mo carbide species *in situ* for methane dehydroaromatization. *Journal of Catalysis*, 2019, vol. 375, pp. 314–328. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.jcat.2019.06.002> (accessed 20 May 2022).
  15. Karakaya C., Zhu H., Kee R.J. Kinetic modeling of methane dehydroaromatization chemistry on Mo/Zeolite catalysts in packed-bed reactors. *Chemical Engineering Science*, 2015, vol. 123, pp. 474–486. Available at: <http://dx.doi.org/10.1016/j.ces.2014.11.039> (accessed 20 May 2022).
  16. Ramirez-Mendoza H., Pereira M.V.L., Gerven T.V., Lutz C., Julian I. Ultrasound-assisted preparation of Mo/ZSM-5 zeolite catalyst for non-oxidative methane dehydroaromatization. *Catalysts*, 2021, vol. 11, p. 313. Available at: <https://doi.org/10.3390/catal11030313> (accessed 20 May 2022).
  17. Huang X., Jiao X., Lin M., Wang K., Jia L., Houa B., Lia D. Coke distribution determines the lifespan of a hollow Mo/HZSM-5 capsule catalyst in CH<sub>4</sub> dehydroaromatization. *Catalysis Science and Technology Journal*, 2018, vol. 8, p. 5740–5749. Available at: <https://doi.org/10.1039/C8CY01391H> (accessed 20 May 2022).
  18. Gu Y., Chen P., Yan H., Wang X., Lyu Y., Tian Y., Liu W., Yan Z., Liu X. Coking mechanism of Mo/ZSM-5 catalyst in methane dehydroaromatization. *Applied Catalysis A, General*, 2021, vol. 613, p. 118019. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.apcata.2021.118019> (accessed 20 May 2022).
  19. Xu Y., Ma H., Yamamoto Y., Suzuki Y., Zhang Z. Comparison of the activities of binder-added and binder-free Mo/HZSM-5 catalysts in methane dehydroaromatization at 1073 K in periodic CH<sub>4</sub>-H<sub>2</sub> switch operation mode. *Journal of Natural Gas Chemistry*, 2012, vol. 21, pp. 729–744. Available at: [https://doi.org/10.1016/S1003-9953\(11\)60426-X](https://doi.org/10.1016/S1003-9953(11)60426-X) (accessed 20 May 2022).
  20. Ren D., Wang X., Li G., Chen X., Long H., Chen L. Methane aromatization in the absence of oxygen over extruded and molded MoO<sub>3</sub>/ZSM-5 catalysts: Influences of binder and molding method. *Journal of Natural Gas Chemistry*, 2010, vol. 19, pp. 646–652. Available at: [https://doi.org/10.1016/S1003-9953\(09\)60130-4](https://doi.org/10.1016/S1003-9953(09)60130-4) (accessed 20 May 2022).
  21. Kim S.D., Baek S.C., Lee Y.-J., Jun K.-W., Kim M.J., Yoo I.S. Effect of  $\gamma$ -alumina content on catalytic performance of modified ZSM-5 for dehydroaromatization of crude methanol to dimethyl ether. *Applied Catalysis A: General*, 2006, vol. 309, pp. 139–143. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.apcata.2006.05.008> (accessed 20 May 2022).
  22. Stepanov A.A., Kuvatova R.Z., Korobitsyna L.L., Travkina O.S., Vosmerikov A.V., Kutepov B.I. Nonoxidative Methane Conversion on Granulated Mo/ZSM-5 Catalysts. *Petroleum Chemistry*, 2021, vol. 61, pp. 370–377. Available at: <https://doi.org/10.1134/S0965544121020092> (accessed 20 May 2022).
  23. Parkhomchuk E.V., Sashkina K.A., Parmon V.N. New heterogeneous catalysts based on zeolites with hierarchical pore system. *Petroleum Chemistry*, 2016, vol. 56, pp. 197–204. Available at: <https://doi.org/10.1134/S0965544116030105> (accessed 20 May 2022).
  24. Mikhaylov S.A., Kustov L.M., Mikhaylov M.N., Mamonov N.A. Selective conversion of methane to aromatic hydrocarbons on large crystallite zeolite catalysts with mesoporous structure. *Russian Chemical Bulletin*, 2017, vol. 66, pp. 2066–2072. Available at: <http://doi.org/10.1007/s11172-017-1982-6> (accessed 20 May 2022).
  25. Na K., Choi M., Ryoo R. Recent advances in the synthesis of hierarchically nanoporous zeolites. *Microporous and Mesoporous Materials*, 2013, vol. 166, pp. 3–19. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2012.03.054> (accessed 20 May 2022).
  26. Gu Y., Wang X., Qin Z., Mintova S., Liu X. Intra-crystalline mesoporous ZSM-5 zeolite by grinding synthesis method. *Microporous and Mesoporous Materials*, 2020, vol. 306, p. 110437. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2020.110437> (accessed 20 May 2022).
  27. Tao Y., Kanoh H., Abrams L., Kaneko K. Mesopore-Modified Zeolites: Preparation, Characterization, and Applications. *Chemical Reviews*, 2006, vol. 106, pp. 896–910. Available at: <https://doi.org/10.1021/cr040204o> (accessed 20 May 2022).
  28. Travkina O.S., Kuvatova R.Z., Kutepov B.I., Agliullin M.R., Pavlova I.N. *Granulirovanny tseolit ZSM-5 bez svyazuyushchego i sposob ego polucheniya* [Granulated zeolite ZSM-5 without binder and method for production thereof]. Patent RF, no. 2739350, 2020.
  29. Erofeev V.I., Antonova N.V., Ryabov Yu.V., Korobitsyna L.L. *Sposob polucheniya vysokokremnezemno tseolita tipa ZSM-5* [Method of producing high-silica zeolite of ZSM-5 type]. Patent RF, no. 1527154, 1989.
  30. Vosmerikov A.V., Korobitsyna L.L., Barabashin Ya.E., Arbusova N.V., Echevskii G.V., Kodenev E.G., Zhuravkov S.P. Deactivation of Molybdenum-Containing Zeolites in the Course of Nonoxidative Methane Conversion. *Kinetics and Catalysis*, 2005, vol. 46, pp. 724–728. Available at: <https://doi.org/10.1007/s10975-005-0128-2> (accessed 20 May 2022).
  31. Breck D.W. *Zeolite molecular sieves: structure, chemistry, and use*. New York, Wiley, 1974. 771 p.
  32. Baerlocher C., McCusker L.B., Olson D.H. *Atlas of zeolite framework types*. Elsevier, 2007. Available at: <https://doi.org/10.1016/B978-0-444-53064-6.X5186-X> (accessed 20 May 2022).
  33. Ma D., Zhang W., Shu Y., Liu X., Xu Y., Bao X. MAS NMR, ESR and TPD studies of Mo/HZSM-5 catalysts: evidence for the migration of molybdenum species into the zeolitic channels. *Catalysis Letters*, 2000, vol. 66, pp. 155–160. Available at: <https://doi.org/10.1023/A:1019099607029> (accessed 20 May 2022).
  34. Kim Y.-H., Borry R.W., Iglesia E. Genesis of methane activation sites in Mo-exchanged H-ZSM-5 catalysts. *Microporous and Mesoporous Materials*, 2000, vol. 35–36, pp. 495–509. Available at: [https://doi.org/10.1016/S1387-1811\(99\)00245-0](https://doi.org/10.1016/S1387-1811(99)00245-0) (accessed 20 May 2022).
  35. Zhou D., Zuo S., Xing S. Methane dehydrogenation and coupling to ethylene over a Mo/HZSM-5 catalyst: a density functional theory study. *The Journal of Physical Chemistry C*, 2012, vol. 116, pp. 4060–4070. Available at: <https://doi.org/10.1021/jp209037c> (accessed 20 May 2022).
  36. Su L., Liu L., Zhuang J., Wang H., Li Y., Shen W., Xu Y., Bao X. Creating mesopores in ZSM-5 zeolite by alkali treatment: a new way to enhance the catalytic performance of methane dehydroaromatization on Mo/HZSM-5 catalysts. *Catalysis Letters*, 2003, vol. 91, pp. 155–167. Available at: <https://doi.org/10.1023/B:CATL.0000007149.48132.5a> (accessed 20 May 2022).
  37. Kikuchi S., Kojima R., Ma H., Bai J., Ichikawa M. Study on Mo/HZSM-5 catalysts modified by bulky aminoalkyl-substituted silyl compounds for the selective methane-to-benzene (MTB) reaction. *Journal of Catalysis*, 2006, vol. 242, pp. 349–356. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.jcat.2006.06.024> (accessed 20 May 2022).
  38. Song Y., Zhang Q., Xu Y., Zhang Y., Matsuoka K., Zhang Z.-G. Coke accumulation and deactivation behavior of microzeolite-based Mo/HZSM-5 in the non-oxidative methane aromatization under cyclic CH<sub>4</sub>-H<sub>2</sub> feed switch mode. *Applied Catalysis A: General*, 2017, vol. 530, pp. 12–20. Available at: <http://dx.doi.org/10.1016/j.apcata.2016.11.016> (accessed 20 May 2022).

39. Zaikovskii V.I., Vosmerikov A.V., Anufrienko V.F., Korobitsyna L.L., Kodenev E.G., Echevskii G.V., Vasenin N.T., Zhuravkov S.P., Matus E.V., Ismagilov Z.R., Parmon V.N. Properties and deactivation of the active sites of an MoZSM-5 catalyst for methane dehydroaromatization: Electron microscopic and EPR studies. *Kinetics and Catalysis*, 2006, vol. 47, pp. 389–394. Available at:

<https://doi.org/10.1134/S0023158406030104> (accessed 20 May 2022).

*Received: 25 May 2022.*

*Reviewed: 25 July 2022.*

#### **Information about the authors**

**Andrey A. Stepanov**, academic secretary, Institute of Petroleum Chemistry SB RAS.

**Lyudmila L. Korobitsyna**, Cand. Sc., associate professor, senior researcher, Institute of Petroleum Chemistry SB RAS.

**Alina Kh. Ishkildina**, engineer, Institute of Petrochemistry and Catalysis Russian Academy of Sciences.

**Olga S. Travkina**, Cand. Sc., researcher, Institute of Petrochemistry and Catalysis Russian Academy of Sciences.

**Rezeda Z. Kuvatova**, Cand. Sc., junior researcher, Institute of Petrochemistry and Catalysis Russian Academy of Sciences.

**Alexander V. Vosmerikov**, Dr. Sc., professor, director, Institute of Petroleum Chemistry SB RAS.

**Boris I. Kutepov**, Dr. Sc., professor, head of the laboratory, Institute of Petrochemistry and Catalysis Russian Academy of Sciences.



УДК 504.55.054:622(470.6)

## О ПОЛНОТЕ ВЫЩЕЛАЧИВАНИЯ УРАНА В ШТАБЕЛЕ

Голик Владимир Иванович<sup>1,2</sup>,  
v.i.golik@mail.ru

Разоренов Юрий Иванович<sup>3</sup>,  
yiri1963@mail.ru

Мицик Михаил Федорович<sup>4</sup>,  
m\_mits@mail.ru

<sup>1</sup> Северо-Кавказский государственный технологический университет,  
Россия, 362021, г. Владикавказ, ул. Николаева, 44.

<sup>2</sup> Московский политехнический университет,  
Россия, 107023, г. Москва, Б. Семеновская, 38.

<sup>3</sup> Южно-Российский государственный политехнический университет,  
Россия, 346428, г. Новочеркасск, ул. Просвещения, 132.

<sup>4</sup> Донской государственный технический университет,  
Россия, 346527, г. Шахты, ул. Шевченко 147.

**Актуальность** проблемы повышения эффективности использования извлеченных из недр на земную поверхность металло-содержащих минеральных ресурсов объясняется возрастающей потребностью промышленности в металлах для удовлетворения жизненных запросов человека.

**Целью** исследования является разработка природо- и ресурсосберегающей технологии добычи металлов при подземной разработке металлических месторождений полезных ископаемых.

**Методика** исследования включает в себя комплекс методов, совокупно определяющих целесообразность вовлечения в производство некондиционных металло-содержащих ресурсов с использованием гидрометаллургических технологий и повышающих извлечение металлов по сравнению с традиционными технологиями обогащения. Основным методом является полупромышленный эксперимент выщелачивания урановой руды в штабеле.

**Результаты** исследования позволяют оптимизировать организацию работ по выщелачиванию металла путем регулирования технологических параметров на всех стадиях выщелачивания некондиционного минерального сырья в штабеле с дифференцированной оценкой влияния основных технологических процессов на показатели выщелачивания. Приведены данные о расходе реагентов и материалов, извлечении металлов в раствор и из раствора, а также нейтрализации маточного раствора. Показано, что выщелачивание в штабеле не радикально повышает показатели традиционных методов извлечения металлов, а лишь уменьшает содержание металлов во вторичных хвостах. Обозначены недостатки существующих методов оценки влияния горного производства на окружающую среду. Результаты исследования могут быть востребованы при разработке металлических руд в горнодобывающих отраслях.

**Выводом** из результатов исследования является заключение о том, что выщелачивание в штабеле не решает проблемы безотходности, по существу увеличивая время воздействия химически опасных продуктов на живое вещество.

### Ключевые слова:

Руда, штабель, выщелачивание, природа, извлечение в раствор, экология.

### Введение

Темпы добычи сырья на протяжении всей истории человечества опережают возможности его переработки, о чем свидетельствуют прогрессивно увеличивающиеся объемы металло-содержащих хвостов. Увеличение потребности минеральных ресурсов и исчерпаемость запасов эксплуатируемых месторождений стимулируют поиск новых технологий, среди которых наибольшие ожидания связаны с методами получения металлов из ранее считавшихся некондиционными запасов руд [1–4].

Воздействие горного производства на геологические ландшафты омертвляет продукты труда, усиливая деградацию флоры и фауны [1], а применяемые меры предотвращения ущерба окружающей среде нередко повышают опасность, так как создают в замкнутой среде опасность генерации мобильных продуктов.

Общепризнано, что дальнейшее увеличение объемов хранения хвостов переработки чревато глобальной катастрофой. Выходом из сложившейся ситуации может быть только утилизация накопленного техногенного сырья.

При некотором содержании металлов в минеральном сырье их извлечение может быть экономически целесообразными. Утилизация хвостов методами традиционных технологий считается невыгодным делом, потому что в соответствии с современными законами большая доля наносимого окружающей среде ущерба не компенсируется производителем, а перекладывается на общество. Это не стимулирует производителей металла к поискам безотходных технологий.

Актуальность проблемы увеличилась в связи с переходом горных предприятий на подземный способ

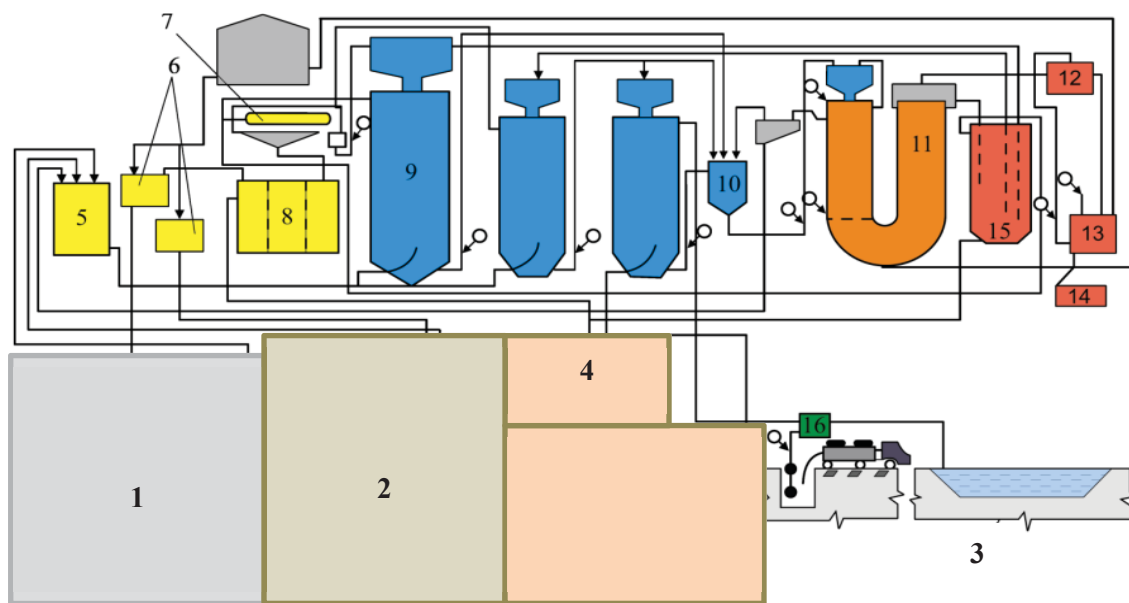
разработки месторождений, который немаловажен без закладки выработанного пространства твердеющими смесями, но при использовании хвостов обогащения в качестве сырья не извлеченные металлы трансформируются в мобильное состояние и влияют на экосистемы окружающей среды [5–9].

Ресурсосберегающие технологии востребованы уже сейчас, потому что продукты утилизации хвостов обогащения являются сырьем для производства товарных продуктов не только в горном производстве, но и в смежных отраслях.

Вовлечение в сферу производства ранее неиспользуемого минерального ресурса может обеспечить по-

лучение многопланового эколого-экономического эффекта. Приоритетным направлением при этом считается выщелачивание металлов из руд и хвостов обогащения руд с переводом металлов в растворы, а затем – в товарные осадки.

Выщелачивание металлов в промышленных масштабах применяют с середины прошлого века для получения золота, меди, урана. Гидрохимические процессы выщелачивания в штабелях позволяют извлекать из хвостов добычи и переработки большую часть ранее теряемых полезных компонентов (рис. 1), поэтому представляют собой существенный шаг в решении проблемы безотходности [10–13].



**Рис. 1.** Комплекс по извлечению металлов в раствор: 1 – блок подземного выщелачивания; 2 – штабель; 3 – отвал; 4 – пруд; 5–8 – оборудование для подготовки руд; 9–11 – оборудование сорбции-десорбции; 12–16 – вспомогательное оборудование

**Fig. 1.** Scheme of complex ore leaching processing: 1 – underground leaching unit; 2 – stack; 3 – dump; 4 – pond; 5–8 – ore preparation equipment; 9–11 – sorption-desorption equipment; 12–16 – auxiliary equipment

Целью исследований в этом направлении является создание методов безотходной переработки металлических руд выщелачиванием, отвечающих требованиям природо- и ресурсосбережения.

С целью разработки природо- и ресурсосберегающей технологии извлечения металлов из некондиционного сырья произведена теоретическая и экспериментальная оценка соответствия технологии выщелачивания в штабеле концепции безотходности горного производства и проведен анализ процессов выщелачивания урановой руды в штабеле на предприятии урановой отрасли.

#### Методы

Для использования хвостов обогащения в составе твердеющих смесей необходимо повысить эффективность выщелачивания металлов за счет использования новых технических решений [14].

Месторождение полезных ископаемых, как геометрический объект, характеризуется комплексом горно-геологических, горнотехнических и других по-

казателей (признаков) как полезных ископаемых, так и вмещающих их пород (1):

$$\bar{X} = (X_1, X_2, \dots, X_n). \quad (1)$$

Каждый из признаков описывается в пространственной системе координат (2):

$$\begin{cases} X_1 = F_1(f_1(\bar{x}, \bar{X}), \varphi_1(\bar{x}, \bar{X})); \\ X_2 = F_2(f_2(\bar{x}, \bar{X}), \varphi_2(\bar{x}, \bar{X})); \\ \dots \\ X_n = F_n(f_n(\bar{x}, \bar{X}), \varphi_n(\bar{x}, \bar{X})), \end{cases} \quad (2)$$

где  $f_i(\bar{x}, \bar{X})$  – функция, описывающая закономерную составляющую пространственно-факторного поля;  $\varphi_i(\bar{x}, \bar{X})$  – функция, описывающая случайную составляющую поля и оценивающая дисперсию модели.

При образовании хвостов обогащения зависимость между характерными признаками пространственно-факторных полей  $X_i$  подобна зависимости (1) с различием в значениях полей концентрации частиц урана в сторону их уменьшения (табл. 1–4).

Коэффициенты трендов  $f_i(\bar{x}, \bar{X})$  зависят от вклада каждого признака в суммарный результат. Поиск тренда определяется результатами испытаний: внутренними – по оценке значимости коэффициентов регрессии в модели и внешними – на соответствие значения показателя доли новой технологии.

Возможности альтернативных технологий определяются экспериментально. Результаты выщелачивания руды в штабеле сравниваются с результатами традиционного агитационного выщелачивания.

### Результаты

Исследуемое месторождение Восток (Республика Казахстан) локализовано в аргиллитах и включает в себя прожилковые вкрапленные руды прочностью 6 по М.М. Протодьяконову.

Химический состав руды, %:  $\text{SiO}_2$  – 60;  $\text{Al}_2\text{O}_3$  – 16;  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  – 2;  $\text{FeO}$  – 6;  $\text{MnO}$  – 0,2;  $\text{MgO}$  – 5;  $\text{CaO}$  – 7;

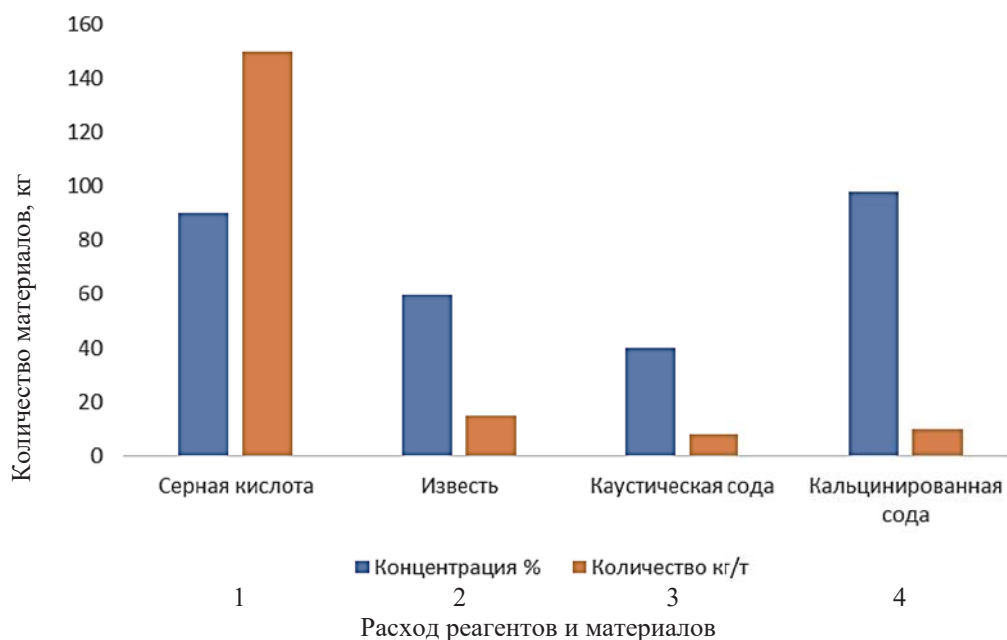
$\text{Na}_2\text{O}$  – 1,0;  $\text{K}_2\text{O}$  – 0,2;  $\text{P}_2\text{O}_5$  – 0,5;  $S_{\text{общ}}$  – 0,5;  $C_{\text{общ}}$  – 2,5;  $C_{\text{орг}}$  – 0,35;  $\text{U}$  – 0,063 [6].

Выщелачивание руды в штабеле является частью промышленного комплекса по извлечению металлов в раствор (рис. 1).

Комплекс переработки руд включал в себя процессы:

- сортировка руд по содержанию металла;
- сортировка руд по крупности;
- строительство штабеля выщелачивания;
- перевод металлов в раствор;
- осаждение урана на сорбенте;
- десорбция урана;
- нейтрализация маточников сорбции с утилизацией осадка.

Расход реагентов и материалов на выщелачивание урана в штабеле характеризуется рис. 2.



**Рис. 2.** Сведения о реагентах и материалах: 1 – серная кислота; 2 – известь; 3 – каустическая сода; 4 – кальцинированная сода (слева – концентрация, %, справа – расход, кг/т)

**Fig. 2.** Information about reagents and materials: 1 – sulfuric acid; 2 – lime; 3 – caustic soda; 4 – soda ash (on the left – concentration, %, on the right – consumption, kg/t)

Продуктивные растворы собирались в отстойных картах, откуда поступали на сорбцию с противоточным движением. Уран осаждался, а маточники и растворы объединяли с маточными растворами. Смола перегружалась на регенерацию. Кристаллы диураната натрия осаждали кальцинированной содой, а фильтрат направляли на приготовление растворов.

Обобщенные показатели выщелачивания урана в штабеле приведены рис. 3.

Для установления закономерностей выщелачивания урана из некондиционного сырья были проведены эксперименты по извлечению металлов традиционной технологией и новым методом выщелачивания в штабеле (табл. 1).



**Рис. 3.** Показатели выщелачивания урана в штабеле  
**Fig. 3.** Indicators of uranium leaching in the stack

**Таблица 1.** Показатели процента выщелачивания урана в штабеле с течением времени

**Table 1.** Indicators of the proportion of uranium leaching in the stack over time

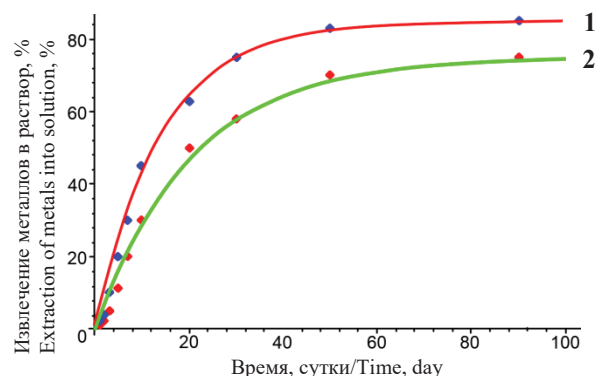
Время, сутки/Time, day	1	2	3	5	7
Технология/Technology					
Традиционная/Traditional	1	2	5	11	20
Предлагаемая/Proposed	2	4	10	20	30
Время, сутки/Time, day	10	20	30	50	90
Технология/Technology					
Традиционная/Traditional	30	50	58	70	75
Предлагаемая/Proposed	45	63	75	83	85

Для описания показателей процента выщелачивания урана в штабеле с течением времени предлагается зависимость в виде (3):

$$P = P_r(1 - e^{-a_1 t}), \quad (3)$$

где  $a_1$  – коэффициент, учитывающий долю извлеченного металла;  $t$  – продолжительность выщелачивания урана в штабеле, с;  $P_r$  – предельное извлечение урана, %;  $P$  – извлечение урана, %.

Результаты расчетов на основе проведенных испытаний представлены в среде Maple (рис. 4).



**Рис. 4.** Извлечение металлов в зависимости от продолжительности выщелачивания при альтернативных технологиях: 1 – агитационное выщелачивание; 2 – выщелачивание в штабеле

**Fig. 4.** Extraction of metals depending on the duration of leaching with alternative technologies: 1 – agitation leaching; 2 – stack leaching

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Белодедов А.А. Обоснование эффективной области применения технологических схем мощности разрабатываемого пласта // Горный информационно-аналитический бюллетень (научно-технический журнал). – 2019. – № S28. – С. 3–10.
- Полухин О.Н., Комащенко В.И. Природоохранная концепция добычи и переработки минерального сырья в центральном федеральном округе России на примере белгородского региона // Научные ведомости Белгородского государственного университета. Естественные науки. – 2014. – Т. 29. – № 23 (194). – С. 180–186.
- Muga-Piątek U. Landscape management on post-exploitation land using the example of the Silesian region, Poland // Environmental & Socio-economic Studies. – 2014. – V. 2 (1). – P. 1–8.
- Sustainable development principles for the disposal of mining and mineral processing wastes / D.M. Franks, D.V. Boger, C.M. Côte, D.R. Mulligan // Resources Policy. – 2011. – V. 36. – № 2. – P. 114–122.
- Parker H.M. Reconciliation principles for the mining industry // Mining Technology. – 2012. – V. 121(3). – P. 160–176.
- Освоение забалансовых запасов металлических руд / В.И. Голик, Ю.И. Разоренов, Е.И. Захаров, Н.И. Абрамкин // Известия Тульского государственного университета. Науки о Земле. – 2018. – № 3. – С. 158–170.
- Рыльникова М.В. Условия устойчивого функционирования минерально-сырьевого комплекса России // Горный информационно-аналитический бюллетень. – Специальный выпуск. – 2014. – Т. 2. – С. 25–32.
- Клюев Р.В., Босиков И.И., Майер А.В. Комплексный анализ генетических особенностей минерального вещества и технологических свойств полезных компонентов Джезказганского месторождения. // Устойчивое развитие горных территорий. – 2019. – Т. 11. – № 3 (41). – С. 321–330.
- Пространственно-временные задачи геоэкологии – междисциплинарный подход / В.С. Бригида, Х.Х. Кожиев, А.А. Сарян, А.К. Джиоева // Горный информационно-аналитический бюллетень. – 2020. – № 4. – С. 20–32.
- Golik V., Komashchenko V., Morkun V. Innovative technologies of metal extraction from the ore processing mill tailings and their integrated use // Metallurgical and Mining Industry. – 2015. – № 3. – P. 49–52.

Значения коэффициентов корреляции по регрессионным зависимостям для традиционной технологии и для предлагаемой технологии приведены в табл. 2.

**Таблица 2.** Значения параметров выщелачивания

**Table 2.** Values of leaching parameters

Технологии/Technologies	Коэффициент выщелачивания/Leaching coefficient	Коэффициент регрессии/Regression coefficient	Коэффициент корреляции/Correlation coefficient
Традиционная/Traditional	0,75	–0,049	0,93
Предлагаемая/Proposed	0,85	–0,072	0,94

При исходном содержании металла 0,063 % в хвостах штабелевого выщелачивания осталось не извлеченными 0,02 % металла.

Установлено, что технология выщелачивания урана из некондиционного сырья в штабеле характеризуется наличием металла во вторичных хвостах, поэтому не является безотходной.

Выщелачивание металлов из природного и техногенного сырья может быть экономически приемлемым для горного предприятия [15–20].

Полученные результаты корреспондируют с данными зарубежных специалистов [21–24].

#### Заключение

Выщелачивание урана в штабеле позволяет уменьшить потери металла в хвостах и улучшить экономико-экологические показатели горного предприятия, но не является безотходным процессом, поскольку вторичные хвосты не удовлетворяют предельно допустимым концентрациям.

В то же время выщелачивание в штабеле осложняет дальнейшие процессы утилизации ввиду снижения возможности дальнейшей деметаллизации хвостов.

В качестве безотходного метода извлечения металлов из бедного металлического сырья может быть рекомендована технология с механохимической активацией некондиционного сырья в дезинтеграторе, хорошо зарекомендовавшая себя при выщелачивании полиметаллических руд, железистых кварцитов и углей.



11. Metal extraction in the case of non-waste disposal of enrichment tailings / V. Golik, V. Komashchenko, V. Morkun, O. Burdzieva // Metallurgical and Mining Industry. – 2015. – № 10. – P. 213–217.
12. Исследование влияния активационной обработки на галитовые отходы обогащения при приготовлении закладочной смеси / Ч.Б. Конгар-Сюрюн, В.В. Фараджов, Ю.С. Тюляева, А.М. Хайрутдинов // Горный информационно-аналитический бюллетень. – 2021. – № 1. – С. 43–57.
13. Святецкий В.С., Солодов И.Н. Стратегия технологического развития уранодобывающей отрасли России // Горный журнал. – 2014. – № 8. – С. 67–74.
14. Повышение безопасности подземной добычи руд учетом геодинамики массива / В.И. Голик, Ю.И. Разоренов, Ю.В. Дмитрак, О.З. Габараев // Безопасность труда в промышленности. – 2019. – № 8. – С. 36–42.
15. Golik V.I., Hasheva Z.M. Economical efficiency of utilization of allied mining enterprises waste // Medwell Journals. The Social Sciences. – 2015. – № 10 (5). – P. 682–686.
16. Improvement of the backfilling characteristics by activation of halite enrichment waste for non-waste geotechnology / A. Khayrutdinov, Ch. Kongar-Syuryun, T. Kowalik, V. Faradzhov // IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. – 2020. – V. 867 (1). – 012018.
17. Freeman A.M., Herriges J.A., Kling C.L. The measurement of environmental and resource values. Theory and methods. – New York, USA: RFF Press, 2014. – 325 p.
18. Земсков А.Н., Лискова М.Ю. Пути обеспечения безопасных условий труда горняков на основе автоматизации контроля производственных процессов // Известия Тульского государственного университета. Науки о Земле. – 2018. – № 1. – С. 82–88.
19. Чотчаев Х.О., Бурдзиева О.Г., Заалишвили В.Б. Влияние геодинамических процессов на геоэкологическое состояние высокогорных территорий // Геология и геофизика Юга России. – 2020. – Т. 10 (4). С. 70–100.
20. Корнилков С.В., Яковлев В.Л. О методологическом подходе к исследованиям в области освоения недр на основе системности, комплексности, междисциплинарности и инновационной направленности // Горный журнал. – 2015. – № 1. – С. 135–142.
21. Gallardo A.H., Matsuzald T., Aoki H. Geological storage of nuclear wastes: insights following the Kuchushima crisis // Energy Policy. – 2014. – V. 73. – P. 391–400.
22. Sinclair L., Thompson J. In situ leaching of raper: challenges and future prospects // Hydrametallurgy. – 2015. – V. 157. – P. 206–224.
23. Сепеда-Перес Э., Де Йонг Н. Динамика наночастиц золота на границе раздела твердое тело: жидкость, изученная методом жидкофазной электронной микроскопии // Микроскопия и микроанализ. – 2019. – Т. 25. – Вып. S1. – С. 43–44.
24. Vrancken C., Langhurst P.J., Waland S.T. Critical review of real-time methods for solid waste characterisation: Informing material recovery and fuel production // Waste Management. – 2017. – V. 61. – P. 40–57.

Поступила 22.06.2022 г.

Прошла рецензирование 19.09.2022 г.

#### Информация об авторах

**Голик В.И.**, доктор технических наук, профессор, профессор кафедры горного дела Северо-Кавказского государственного технологического университета; профессор, профессор кафедры металлургии Московского политехнического университета.

**Разоренов Ю.И.**, доктор технических наук, профессор, ректор Южно-Российского государственного политехнического университета.

**Мицик М.Ф.**, кандидат технических наук, доцент кафедры математики и прикладной информатики, Институт сферы обслуживания и предпринимательства, филиал Донского государственного технического университета.

UDC 504.55.054:622(470.6)

## ON THE COMPLETENESS OF URANIUM LEACHING IN THE STACK

Vladimir I. Golik<sup>1,2</sup>,  
v.i.golik@mail.ru

Yuri I. Razorenov<sup>3</sup>,  
yiri1963@mail.ru

Mikhail F. Mizik<sup>4</sup>,  
m\_mits@mail.ru

<sup>1</sup> North-Caucasian mining and metallurgical institute (state technological university),  
44, Nikolaev avenue, Vladikavkaz, 362021, Russia.

<sup>2</sup> Moscow Polytechnic University,  
38, B. Semenovskaya street, Moscow, 107023, Russia.

<sup>3</sup> South Russian State Polytechnic University,  
132, Prosveshcheniya street, Novocherkassk, 346428, Russia.

<sup>4</sup> Institute of Service and Entrepreneurship, branch of DSTU in Shakhty,  
147, Shevchenko street, Shakhty, 346527, Russia.

**The relevance** of the problem of increasing the efficiency of using the metallic mineral resources extracted from the bowels on the earth's surface is explained by the increasing demand of industrial metals to meet the vital queries of the human.

**The aim** of the study is to develop environment-friendly and resource-saving technologies of extracting metals from sub-standard raw materials in underground mining of metallic mineral deposits

**Research methodology** includes a set of methods that collectively define the feasibility of involvement in production of non-conforming metallic resources using hydrometallurgical technologies and increasing the extraction of metals compared to traditional washing technology. The main method is semi-experimental leaching of uranium ore in the pile.

**The results** of the research allow us to optimize the organization of work on leaching metals by controlling the process parameters at all stages of leaching of off-grade mineral raw materials in the stacks with a differentiated assessment of the influence of major processes on leaching rates. The paper introduces the data on consumption of reagents and materials, extraction of metals into solution and out of solution and neutralization of the mother liquor. It is shown that leaching in the pile does not radically improve performance of traditional methods of extraction of metals, but only reduces the metal content in the secondary tails. The paper identifies the deficiencies of existing methods of assessing the impact of mining on the environment.

The conclusion from the results of the study is that leaching in a stack does not solve the problem of non-waste, essentially increasing the exposure time of chemically hazardous products to living matter.

**Key words:**

Ore, stack, leaching, nature, extraction into solution, ecology.

**REFERENCES**

- Belodedov A.A. Substantiation of the effective field of application of technological power schemes of the developed reservoir. *Mining information and analytical bulletin (scientific and technical journal)*, 2019, no. S28, pp. 3–10. In Rus.
- Polukhin O.N., Komashchenko V.I. Environmental concept of extraction and processing of mineral raw materials in the Central Federal District of Russia on the example of the Belgorod region. *Scientific bulletin of Belgorod State University. Natural sciences*, 2014, vol. 29, no. 23 (194), pp. 180–186. In Rus.
- Maiga-Pietek U. Landscape management on lands after exploitation on the example of the Silesian region, Poland. *Environmental and socio-economic research*, 2014, vol. 2 (1), pp. 1–8.
- Franks D.M., Boger D.V., Kot K.M., Mulligan D.R. Principles of sustainable development for waste disposal of mining and processing of minerals. *Policy in the field of resources*, 2011, Iss. 36, no. 2, pp. 114–122.
- Parker H.M. Principles of harmonization for the mining industry. *Mining equipment*, 2012, vol. 121 (3), pp. 160–176.
- Golik V.I., Razorenov Yu.I., Zakharov E.I., Abramkin N.I. Development of off-balance sheet reserves of metal ores. *Izvestiya Tula State University. Earth Sciences*, 2018, no. 3, pp. 158–170. In Rus.
- Rylnikova M.V. Conditions for the sustainable functioning of the mineral resource complex of Russia. Mining information and analytical bulletin. *Special edition*, 2014, vol. 2, pp. 25–32. In Rus.
- Klyuev R.V., Bosikov I.I., Mayer A.V. Complex analysis of the genetic characteristics of mineral matter and technological properties of useful components of the Dzhez-Kazgan deposit. *Sustainable development of mountain territories*, 2019, vol. 11, no. 3 (41), pp. 321–330. In Rus.
- Brigida V.S., Kojiev H.H., Saryan A.A., Dzhoieva A.K. Spatial-temporal problems of geoecology – an interdisciplinary approach. *Mining information and analytical bulletin (scientific and technical journal)*, 2020, no. 4, pp. 20–32. In Rus.
- Golik V., Komashchenko V., Morkun V. Innovative technologies of metal extraction from tailings of processing plants and their complex use. *Metallurgical and mining industry*, 2015, no. 3, pp. 49–52. In Rus.
- Golik V., Komashchenko V., Morkun V., Burdzieva O. Metal extraction during waste-free disposal of enrichment tailings. *Metallurgical and mining industry*, 2015, no. 10, pp. 213–217. In Rus.
- Kongar-Syuryun Ch.B., Faradzhov V.V., Tyulyaeva Yu.S., Khairutdinov A.M. Investigation of the effect of activation treatment on halite enrichment waste during the preparation of the filling mixture. *Mining information and analytical Bulletin*, 2021, no. 1, pp. 43–57. In Rus.
- Svyatetsky V.S., Solodov I.N. Strategy of technological development of the uranium mining industry in Russia. *Mining Journal*, 2014, no. 8, pp. 67–74. In Rus.
- Golik V.I., Razorenov Yu.I., Dmitrak Yu.V., Gabaraev O.Z. Improving the safety of underground ore mining taking into account

- the geodynamics of the massif. *Occupational safety in industry*, 2019, no. 8, pp. 36–42. In Rus.
15. Golik V.I., Khasheva Z.M. Economic efficiency of waste disposal related mining Enterprises. *Medwell Journals. The Social Sciences*, 2015, no. 10 (5), pp. 682–686.
  16. Khairutdinov A., Kongar-Suryun Ch., Kovalik T., Faradzhev V. Improving backfill characteristics by activating halite enrichment waste for waste-free geotechnology. *IOP conference series: Materials Science and Engineering*, 2020, vol. 867 (1), 012018.
  17. Freeman A.M., Herriges J.A., Kling K.L. Measurement of environmental and resource values. *Theory and methods*. New York, USA, RFF Press, 2014, 325 p.
  18. Zemskov A.N., Leskova M.Yu. Ways of ensuring safe working conditions for miners based on automation of control of production processes. *Izvestiya Tula State University. Earth Sciences*, 2018, no. 1, pp. 82–88. In Rus.
  19. Chotchaev H.O., Burdzieva O.G., Zaalishvili V.B. Influence of geodynamic processes on the geoecological state of high-altitude territories. *Geology and Geophysics of the South of Russia*, 2020, no. 10 (4), pp. 70–100. In Rus.
  20. Kornilkov S.V., Yakovlev V.L. On the methodological approach to research in the field of subsoil development based on consistency, complexity, interdisciplinarity and innovation orientation. *Mining Journal*, 2015, no. 1, pp. 135–142. In Rus.
  21. Gallardo A.H., Matsuzald T., Aoki H. Geological storage of nuclear waste: conclusions after the Kukushima crisis. *Energy policy*, 2014, vol. 73, pp. 391–400.
  22. Sinclair L., Thompson J. Leaching of rapier in situ: problems and prospects. *Hydrometallurgy*, 2015, vol. 157, pp. 206–224.
  23. Cepeda-Pérez E., De Jong N. Dynamics of gold nanoparticles at the solid: liquid interface studied by liquid-phase electron microscopy. *Microscopy and Microanalysis*, 2019, vol. 25, Iss. S1, pp. 43–44. In Rus.
  24. Vrancken C., Langhurst P.J., Waland S.T. A critical review of methods for determining the characteristics of solid waste in real time: informing about the recovery of materials and fuel production. *Waste management*, 2017, vol. 61, pp. 40–57.

Received: 22 June 2022.

Reviewed: 19 September 2022.

#### Information about the authors

**Vladimir I. Golik**, Dr. Sc., professor, North-Caucasian mining and metallurgical institute; professor, Moscow Polytechnic University.

**Yuri I. Razorenov**, Dr. Sc., professor, South Russian State Polytechnic University.

**Mikhail F., Mizik**, Cand. Sc., associate professor, Institute of Service and Entrepreneurship.

УДК 665.642.44

## ВЛИЯНИЕ СОСТАВА СЫРЬЯ ГАЗОКОНДЕНСАТНЫХ МЕСТОРОЖДЕНИЙ НА ПРОЦЕСС КАТАЛИТИЧЕСКОГО РИФОРМИНГА

Пчелинцева Инна Вагизовна<sup>1</sup>,  
PchelincevalV@oilteam.tomsk.ru

Чернякова Екатерина Сергеевна<sup>2</sup>,  
Sharova@tpu.ru

Красовская Ольга Константиновна<sup>2</sup>,  
okk3@tpu.ru

Кокшаров Антон Георгиевич<sup>3</sup>,  
antonk11@mail.ru

<sup>1</sup> ООО ИЦ «ГазИнформПласт»,  
Россия, 634055, г. Томск, пр. Академический, 8/8.

<sup>2</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет,  
Россия, 635050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

<sup>3</sup> ООО «КИНЕФ»,  
Россия, 187110, г. Кириши, ш. Энтузиастов, 1.

**Актуальность** исследования обусловлена возможностью модернизации процесса получения высокооктановых топлив путем подбора и варьирования сырья на базе действующего предприятия, а также на этапе его проектирования.

**Цель** заключается в анализе влияния сырья газоконденсатного месторождения на качественные и количественные характеристики продукта – риформата, являющегося основой бензина.

**Объектом** исследования являются составы сырья трех газоконденсатных месторождений Западной и Восточной Сибири.

**Методы:** хроматографический анализ дегазированного конденсата для детального определения состава до C<sub>13</sub>; математическое моделирование для исследования влияния различного сырья на показатели каталитического риформинга.

**Результаты.** Разработана математическая модель каталитического риформинга полурегенеративного типа. С её помощью исследовано влияние состава сырья на выход и качество риформата. В качестве сырья использован дегазированный конденсат с трех различных газоконденсатных месторождений Западной и Восточной Сибири. Дегазированный конденсат получен методом стандартной сепарации в исследовательской лаборатории. Приведен индекс сырья, обозначающий преобладание определенной углеводородной группы в составах трех дегазированных конденсатов. Выявлено, что применение сырья с газоконденсатных месторождений с минимальным содержанием парафиновых углеводородов и высоким значением нафтеновых и ароматических углеводородов приводит к увеличению выхода ароматических углеводородов на 20 % мас., повышению выхода риформата на 3 % мас., увеличению октанового числа на 7–8 пунктов и повышенному коксообразованию на 0,5 % мас. С использованием математической модели проанализировано изменение состава бензиновой фракции в процессе эксплуатации газоконденсатного месторождения в течение пяти лет. Установлено, что увеличение срока эксплуатации месторождения оказывает отрицательное воздействие на каталитическую систему риформинга в связи с увеличением ароматических соединений в своем составе.

### Ключевые слова:

каталитический риформинг, состав сырья, газоконденсатное месторождение, математическая модель, выход продукта, октановое число.

### Введение

Бензин является востребованным топливом для различных типов современных двигателей. В России добыча нефти с учетом газового конденсата в декабре 2021 г. составила 46,2 млн т, что по сравнению с декабрем 2020 г. увеличилось на 8,6 %. Всего за 2021 г. добыто 524 млн т нефти с учетом газового конденсата, что на 2,1 % больше, чем за 2020 г. [1–5].

Каталитический риформинг – один из основных процессов получения высококачественных бензинов и ароматических углеводородов. Основные цели процесса:

1) увеличение октанового числа бензинов для получения неэтилированного высокооктанового продукта;

2) получение побочного продукта – индивидуальных ароматических углеводородов (бензол, толуол, ксилол);

3) получение ВСГ для промышленных процессов с потреблением водорода (гидроочистка, гидрокрекинг, изомеризация и т. д.).

Выделяют три типа технологического оформления процесса риформинга: полурегенеративный, циклический и непрерывный. Наибольшее распространение как в мире, так и в России получил процесс полурегенеративного типа, или со стационарным слоем катализатора – около 60 % от общемирового объема [6]. На рис. 1 приведена его технологическая схема.



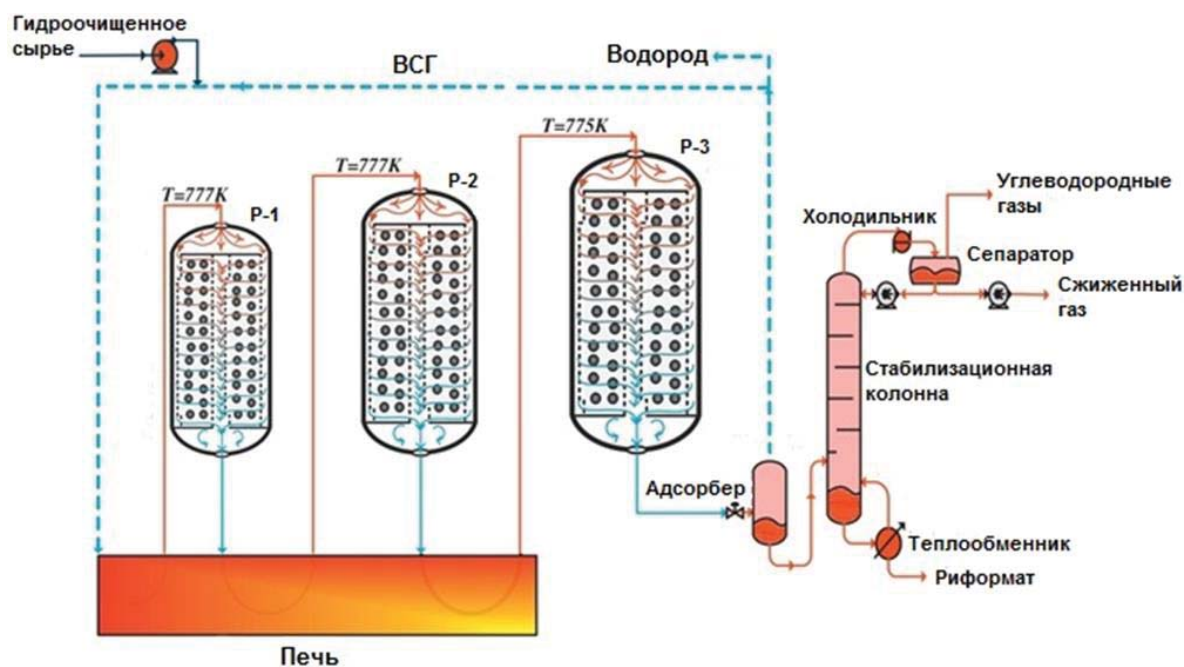


Рис. 1. Технологическая схема установки каталитического риформинга со стационарным слоем катализатора [6]  
Fig. 1. Technological scheme of semi regenerative (SRR) catalytic reforming unit

Сырье, смешиваясь с водородсодержащим газом, поступает последовательно в три (иногда четыре) реактора, проходя подогрев в печи между ними. В первом реакторе преимущественно протекают реакции дегидрирования шестичленных нафтен, которые характеризуются высокими скоростями и эндотермическим эффектом. Изомеризация пятичленных нафтен (метилциклопентана и его гомологов) наиболее активно проходит в первых двух реакторах и в небольшой степени – в последнем. Парафины подвергаются дегидроциклизации особенно значительно во втором и третьем реакторах. В последнем реакторе, кроме того, интенсивно протекают реакции гидрокрекинга углеводородов. Перечисленные реакции проходят на бифункциональном катализаторе, в основном Pt-Re, ускоряющем эти реакции в несколько раз [6–9].

На процесс каталитического риформинга влияет множество факторов, от которых зависит будущий состав целевого продукта. К таким факторам можно отнести ряд технологических параметров (температура, давление, расход водородсодержащего газа), а также компонентный состав сырья. Технологические условия процесса каталитического риформинга полурегенеративного типа: давление 1,3–3,0 МПа, температура на входе в реактор 480–530 °С.

В качестве сырья для каталитического риформинга используют прямогонные бензиновые фракции, реже – лигроиновые [6]. Выбор сырья напрямую зависит от целевого назначения процесса и типа установки, используемой на предприятии. Углеводородный состав сырья напрямую зависит от геологических свойств месторождения и его возраста, следовательно, использование бензиновой фракции разнообразных месторождений приводит к получению продукта с различными характеристиками. Обычно сырьем для изучаемого процесса служит нефть, но в данной работе исследова-

но сырье с газоконденсатных месторождений. Газовый конденсат является ценным химическим сырьем, а свойства стабильного конденсата (сепарированного от газа) близки к свойствам легкой нефти [10].

Целью данной работы является анализ влияния сырья трех разных газоконденсатных месторождений на качественные (содержание ароматических углеводородов и октановое число) и количественные (выход риформата) характеристики катализата – целевого продукта высокооктанового бензина.

Для достижения поставленной цели были реализованы задачи:

- 1) исследование влияния состава сырья различных газоконденсатных месторождений на эффективность процесса получения высокооктановых топлив;
- 2) анализ изменения состава бензиновой фракции в процессе эксплуатации газоконденсатного месторождения;
- 3) оценка влияния изменения состава на качественные и количественные характеристики целевого продукта.

Поставленные задачи были реализованы при помощи хроматографических исследований дегазированного конденсата для определения состава исследуемого сырья, анализ влияния состава сырья на процесс был реализован с помощью метода математического моделирования.

#### О методике математического моделирования

Методы математического моделирования начали интенсивно развиваться, начиная с 1960-х г. [6, 9]. Модель описывает математическое представление реального технологического объекта, исследование которого с помощью компьютерной системы, построенной на базе модели, позволяет решить задачи повышения эффективности и позволяет прогнозировать

поведение реального объекта, тем не менее сама модель всегда представляет собой некоторую степень его идеализации.

Каталитический риформинг – сложный технологический процесс с точки зрения изучения и моделирования в силу ряда причин:

- 1) многокомпонентный состав сырья и продукта (более 300 компонентов);
- 2) большое количество реакций различных порядков;
- 3) бифункциональный состав катализатора;
- 4) процессы дезактивации катализатора, осложняющие процесс.

Создание математической модели каталитического риформинга основано на кинетическом и термодинамическом анализе реакций, протекающих в процессе. Учесть все компоненты, которых несколько сотен, и все реакции превращения, которые они проходят на катализаторе, очень сложно. Для облегчения задачи составления модели приняты некоторые допущения:

- формализованный механизм превращения компонентов (согласно ему, все компоненты исходной смеси классифицированы в гомологические группы, называемые псевдокомпонентами);
- модель реактора идеального вытеснения;
- адиабатический режим реактора.

Подробный разбор поэтапного создания математической модели каталитического риформинга представлен в нескольких работах [11–18]. Окончательный вид математической модели каталитического риформинга со стационарным слоем катализатора представлен в виде системы уравнений материально-го и теплового баланса:

$$\begin{cases} G_c \frac{\partial C_i}{\partial Z} + G_c \frac{\partial C_i}{\partial V} = \sum_{j=1}^m a_j \cdot r_j \\ G_c \frac{\partial T}{\partial V} + G_c \frac{\partial T}{\partial Z} = \frac{1}{\rho \cdot C_p^{mix}} \sum_{j=1}^m a_j \cdot r_j \cdot \left( \frac{RT}{P} \right) \cdot \Delta H_j \end{cases} \quad (1)$$

Граничные условия:

$$\begin{aligned} Z=0, C_i=C_{i0}, T=T_{en}; \\ V=0, T=T_{en}, C_i=C_{i0}, \end{aligned} \quad (2)$$

где  $G_c$  – расход сырья, м<sup>3</sup>/ч;  $C_i$  – концентрация  $i$ -го компонента, моль/м<sup>3</sup>;  $Z$  – объём переработанного сырья с момента загрузки свежего катализатора (новый катализатор, регенераций не проводилось), м<sup>3</sup>;  $V$  – объём катализатора в реакторах, м<sup>3</sup>;  $a_j$  – активность катализатора, моль/м<sup>3</sup>·ч;  $i$  – номер компонента в смеси;  $j$  – номер реакции согласно формализованному механизму;  $T$  – температура, К;  $\rho$  – плотность, моль/м<sup>3</sup>;  $C_p^{mix}$  – теплоёмкость смеси, кДж/моль·К;  $k_j$  – константа  $j$ -й реакции, л/моль·ч;  $\Delta H$  – теплота  $j$ -й реакции, кДж/моль;  $R$  – универсальная газовая постоянная, 8,314 МПа·л/моль·К;  $P$  – давление, МПа.

На основании разработанной модели (уравнения (1), (2)) была написана программа Aktiv [13–16], с помощью которой можно рассчитать показатели работы каталитического риформинга: насколько эффективно используется тот или иной катализатор, технологический режим, и спрогнозировать потенциальный выход продукта при изменении каких-либо параметров. Исследованию влияния режимов и подбору катализаторов, а также расчету основных показателей исследуемого

процесса и выводам об их эффективности посвящено много работ [9, 11–16].

Функция учета состава сырья также заложена в математической модели и представлена в виде зависимости:

$$w = k_0 \cdot e^{-\frac{E}{RT}} \cdot f(C), \quad (3)$$

где  $k_0$  – скорость реакции;  $E$  – энергия активации для реакции;  $R$  – универсальная газовая постоянная, 8,314 м<sup>3</sup>·Па/К·моль;  $T$  – абсолютная температура, К;  $f(C)$  – функция учета сырья.

Углеводородный состав сырья определяет реакционную способность компонентов и скорость целевых и побочных реакций согласно уравнению (3).

Таблица 1. Технологические параметры установки

Table 1. Technological parameters of SRR unit

Параметр Parameter	Численное значение Numerical value				
Объем переработанного сырья, т Volume of processed feedstock, tons	31572	58178	85982	113150	132458
Расход сырья, м <sup>3</sup> /ч Feedstock consumption, m <sup>3</sup> /h	115	114	115	111	102
Температура на входе в реактор Reactors inlet temperature, °C	493				
Давление, МПа Pressure, MPa	1,4				
Расход ВСГ, м <sup>3</sup> /ч HCG consumption, m <sup>3</sup> /h	205000				
Количество реакторов Number of reactors	3				

Таблица 2. Физико-химические свойства катализатора

Table 2. Specification of catalyst properties

Показатели Properties of a catalyst	RG-682 (Axens)
Форма/Shape	Экструдат Extrudate
Диаметр, мм/Diameter, mm	1,6
Насыпная плотность при плотной загрузке, кг/м <sup>3</sup> Packed density, kg/m <sup>3</sup>	700
Удельная поверхность, м <sup>2</sup> /г/Surface area, m <sup>2</sup> /g	220
Общий объём пор, см <sup>3</sup> /г/Pore volume, sm <sup>3</sup> /g	0,6
Платина, % мас./Pt, % wt. Рений, % мас./Re, % wt. Третий элемент, промотор Promoted by the third element	0,25 0,40 Да Yes
Активность – октановое число стабильного риформата по исследовательскому методу Activity is the research octane number of a stable reformat	98,0 <sup>1</sup>
Селективность – выход стабильного риформата, % мас. Selectivity is the yield of a stable reformat, % wt.	88,6 <sup>1</sup>

Определенный уровень показателей зависит от качества сырья. Данные значения предполагают использование сырья с повышенным содержанием предельных углеводородов – 43,8 % мас., углеводородов циклического строения – 40,1 % мас. и ароматических – 16,1 % мас.

A certain level of parameters depends on the feedstock quality. These values assume the feedstock using with a high content of saturated hydrocarbons – 43,8 % wt., hydrocarbons of a cyclic structure – 40,1 % wt. and aromatic hydrocarbons – 16,1 % wt.

В качестве исходных данных для расчетов используются данные хроматографического анализа сырья (нафты) и продукта (риформата), а также набор технологических параметров работы промышленной установки каталитического риформинга полурегенеративного типа. В табл. 1, 2 приведены основные характеристики технологического режима работы и применяемых на установке катализаторов. Технологическая схема установки показана на рис. 1. Краткая характеристика сырья на установке представлена в табл. 6, а основные показатели полученного продукта – в табл. 5.

Данные нафты и катализата, используемые в качестве исходных, а также технологические параметры установки и катализатора получены в готовом виде с предприятия в рамках сотрудничества по исследованию нефтехимических процессов и поиску оптимизационных решений.

#### Формирование исходных данных

Данные для расчетов в программе Aktiv получены хроматографическим методом исследования по ГОСТ Р 52714-2018 «Бензины автомобильные. Определение индивидуального и группового углеводородного состава методом капиллярной газовой хроматографии» [19]. Сущность метода заключается в хроматографическом разделении бензина на капиллярной колонке с неполярной неподвижной фазой с последующей регистрацией углеводородов пламенно-ионизационным детектором (ПИД) и автоматизированной обработкой полученной информации с помощью программного обеспечения. Представительный образец бензина вводят в газовый хроматограф, оснащенный капиллярной колонкой. Под действием газа-носителя – гелия – образец проходит через колонку, в которой его компоненты разделяются. Компоненты регистрирует ПИД. Сигнал детектора обрабатывается интегрирующим компьютером. Идентификацию пиков компонентов (углеводородов и оксигенатов) проводят вручную с помощью соответствующего компьютерного программного обеспечения (Хроматэк Аналитик 3.0). Массовая концентрация каждого углеводородного компонента рассчитывается по нормализованной площади и коэффициентам чувствительности [19, 20].

Данные дегазированного конденсата получены в исследовательском центре «ГазИнформПласт» описанным выше хроматографическим методом. Дегазированный или стабильный конденсат получен из нестабильного конденсата, содержащего газовую фазу. Разделение нестабильного конденсата происходит методом стандартной сепарации в исследовательском центре [20].

После расшифровки пиков и определения массового содержания углеводородов в образцах в программе Aktiv на основании имеющейся базы компонентов в автоматическом режиме формируются файлы для расчёта. Математическая модель учитывает 69 компонентов с отличающейся детонационной стойкостью. Так как количество расшифрованных компонентов значительно больше (более 300), происходит группировка по основному параметру, который ха-

рактеризует способность топлива противостоять самовоспламенению. То есть компоненты, имеющие близкие показатели, объединяются в одну группу для упрощения расчетов. После формирования расчетных файлов при помощи программы Aktiv и имеющихся технологических данных происходит расчет основных характеристик каталитического риформинга, представленных в экспериментальной части данной статьи.

#### Верификация математической модели

Для проверки адекватности математической модели, положенной в основу Aktiv, были проведены сравнения полученных расчетных и экспериментальных значений (табл. 3, 4).

**Таблица 3.** Сравнение между расчетными и экспериментальными значениями показателей каталитического риформинга

**Table 3.** Comparison between experimental and calculated data

Октановое число по исследовательскому методу Research octane number		Выход катализата, % мас. Yield, % wt.	
Эксперимент Experiment	Расчет Calculated	Эксперимент Experiment	Расчет Calculated
94,1	95,5	83,0	84,4
94,3	95,3	82,1	83,0
91,7	93,0	83,7	84,5

**Таблица 4.** Расчетные и экспериментальные значения группового состава исходного сырья (нафты)

**Table 4.** Calculated and experimental values of the feedstock group composition (naphtha)

н-алканы n-alkanes		и-алканы i-alkanes		нафтены-5 naphthenes		нафтены-6 naphthenes		арены aromatics	
% мас./% wt.									
Расч. Calc.	Эксп. Exp.	Расч. Calc.	Эксп. Exp.	Расч. Calc.	Эксп. Exp.	Расч. Calc.	Эксп. Exp.	Расч. Calc.	Эксп. Exp.
7,11	8,05	24,3	22,3	2,63	2,36	0,80	0,82	65,2	65,2
8,08	8,13	24,1	22,9	2,42	2,40	0,80	1,00	64,6	64,7
8,77	9,12	26,2	24,7	2,61	2,71	0,92	1,09	61,5	61,5

Погрешность между расчетными и экспериментальными значениями составляет менее 1 % мас., что позволяет судить об адекватности модели и расчетов, полученных с её помощью.

#### Анализ влияния состава сырья газоконденсатных месторождений на выход и качество продукта

Расчет показателей выполнялся в режиме «Исследование влияния состава сырья» программы Aktiv, по результатам которого были получены данные, представленные в табл. 5. В качестве количественной характеристики риформата выступает параметр выхода риформата, качественной – октановое число и содержание ароматических соединений.

На основании представленных в табл. 5 данных можно сделать вывод, что использование сырья различного состава приводит к получению продукта с различным октановым числом, выходом, а также содержанием ароматических углеводородов.



**Таблица 5.** Характеристики риформата, полученные при исследовании влияния состава сырья

**Table 5.** Characteristics of the reformat obtained in the studying of the feedstock composition impact

Характеристика Characteristic	Объем переработанного сырья, т Volume of processed feedstock, tons				
	31572	58178	85982	113150	132458
Исходное сырье (нафта)/Feedstock (naphtha)					
Выход риформата, % мас. Yield, % wt.	87,74	87,61	87,67	87,55	87,31
Ароматические УВ, % мас. Aromatic hydrocarbons, % wt.	63,70	63,80	63,69	63,74	63,75
Кокс, % мас. Coke, % wt.	0,17	0,32	0,47	0,62	0,71
Октановое число Octane number	95,80	95,90	95,80	95,80	95,80
Образец сырья «kr» (дегазированный конденсат) Sample of feedstock «kr» (degassed condensate)					
Выход риформата, % мас. Yield, % wt.	81,32	81,43	81,53	81,06	87,31
Ароматические УВ, % мас. Aromatic hydrocarbons, % wt.	58,52	58,06	57,87	57,92	58,05
Кокс, % мас. Coke, % wt.	0,30	0,55	0,76	1,03	1,19
Октановое число Octane number	93,60	93,40	93,30	93,30	93,40
Образец сырья «ma» (дегазированный конденсат) Sample of feedstock «ma» (degassed condensate)					
Выход риформата, % мас. Yield, % wt.	89,91	90,01	90,05	89,97	89,77
Ароматические УВ, % мас. Aromatic hydrocarbons, % wt.	83,33	82,92	82,83	82,91	83,09
Кокс, % мас./Coke, % wt.	0,34	0,62	0,89	1,16	1,32
Октановое число Octane number	104,10	103,90	103,80	103,90	104,00
Образец сырья «upn» (дегазированный конденсат) Sample of feedstock «upn» (degassed condensate)					
Выход риформата, % мас. Yield, % wt.	90,61	90,71	90,75	90,67	90,48
Ароматические УВ, % мас. Aromatic hydrocarbons, % wt.	83,49	83,11	83,01	83,09	83,26
Кокс, % мас./Coke, % wt.	0,33	0,60	0,86	1,12	1,26
Октановое число Octane number	104,30	104,10	104,10	104,10	104,20

Описывая полученные результаты, необходимо отметить важный параметр – индекс сырья, который прямо пропорционален содержанию парафиновых углеводородов и обратно пропорционален сумме нафтеновых и ароматических.

$$\text{Индекс сырья} = \frac{\sum(n\text{-парафины} + i\text{-парафины})}{\sum(\text{нафтены} + \text{ароматика})}. \quad (4)$$

Если суммы групп углеводородов примерно одинаковые, показатель будет стремиться к 1, тогда как если показатель меньше 1, это свидетельствует, что в данном виде сырья преобладают нафтеновые углеводороды. Соответственно, при показателе из формулы (4) большем, чем 1, можно судить о доминировании парафинов. Сырье с преобладанием нафтенов представляет наибольшую ценность для риформинга среди остальных, потому что нафтеновые углеводороды превращаются в ароматические углеводороды с большей селективностью, чем парафиновые. Рассчитанный по формуле (4) индекс исследуемого сырья, а также его характеристика согласно формуле (4) представлены в табл. 6.

Исходя из расчётов, можно заметить, что при увеличении индекса сырья и, соответственно, содержа-

ния парафиновых углеводородов (алканов) количество ароматических углеводородов в риформате снижается. Данное явление объяснимо тем, что парафиновые углеводороды, присутствующие в составе сырья, на активных центрах катализатора, вступают в сложные реакции ароматизации, константа скорости которых в среднем равна  $1,5 \cdot 10^2 \text{ с}^{-1}$  [9]. При уменьшении индекса сырья, а, следовательно, и увеличении в составе циклических углеводородов, качество риформата заметно увеличивается, так как последние вступают в реакции дегидрирования, которые протекают в одну стадию. В результате анализа исследуемых образцов риформатом, обладающим максимальным содержанием ароматических углеводородов (83,49 % мас.), является риформат переработки образца сырья «upn» с минимальным содержанием парафиновых углеводородов и высоким значением нафтеновых и ароматических углеводородов, значения которых составили 27,01 и 20,10 % мас. соответственно.

**Таблица 6.** Индекс сырья исследуемых образцов

**Table 6.** Indexes of feedstock samples

Образец сырья Feedstock sample	Индекс сырья Feedstock index	Характеристика Characteristics
Нафта (исходное) Naphtha (initial)	1,67	Повышенное содержание парафиновых и нафтеновых углеводородов Increased content of alkanes and naphthenic hydrocarbons
upn	0,40	Высокое содержание ароматических и нафтеновых углеводородов High content of aromatic and naphthenic hydrocarbons
ma	0,42	Высокое содержание ароматических углеводородов при низком содержании предельных углеводородов High content of aromatic hydrocarbons with low content of alkanes
kr	2,62	Повышенное содержание парафиновых углеводородов Increased content of alkanes

Риформат переработки исходного сырья (нафты) отличается максимальным содержанием нафтеновых углеводородов из исследуемых образцов – 28,5 % мас., однако же количество ароматических соединений в катализате сравнительно мало. Данный образец сырья характеризуется высоким количеством парафинов нормального и изостроения, содержание которых составляет 28,21 и 34,22 % мас. соответственно. Преобразование данных углеводородов в компоненты риформата, обладающие высокой детонационной стойкостью, замедляет процесс ароматизации и, соответственно, снижает качественные характеристики риформата.

Помимо содержания ароматических углеводородов в составе продукта, также качественной характеристикой процесса каталитического риформинга является накопление кокса на поверхности катализатора RG-682. По результатам исследования можно сделать вывод, что данный параметр напрямую зависит от процентного содержания в сырьевом потоке аромати-



ческих углеводов. Данные компоненты сырья при температуре риформинга 493 °С способны вступать в реакции конденсации. Продуктами данной реакции являются неопределенные промежуточные продукты уплотнения, вступающие в реакции коксообразования. Из этого следует, что повышенное содержание аренов в составе сырья приводит к увеличению

накопления кокса на поверхности катализатора и последующему снижению селективности процесса. Максимальным содержанием коксогенных структур (34 % мас.) из всех представленных образцов обладает риформат переработки сырья «та», которое содержит в своем составе 48,44 % мас. ароматических углеводов (рис. 2).

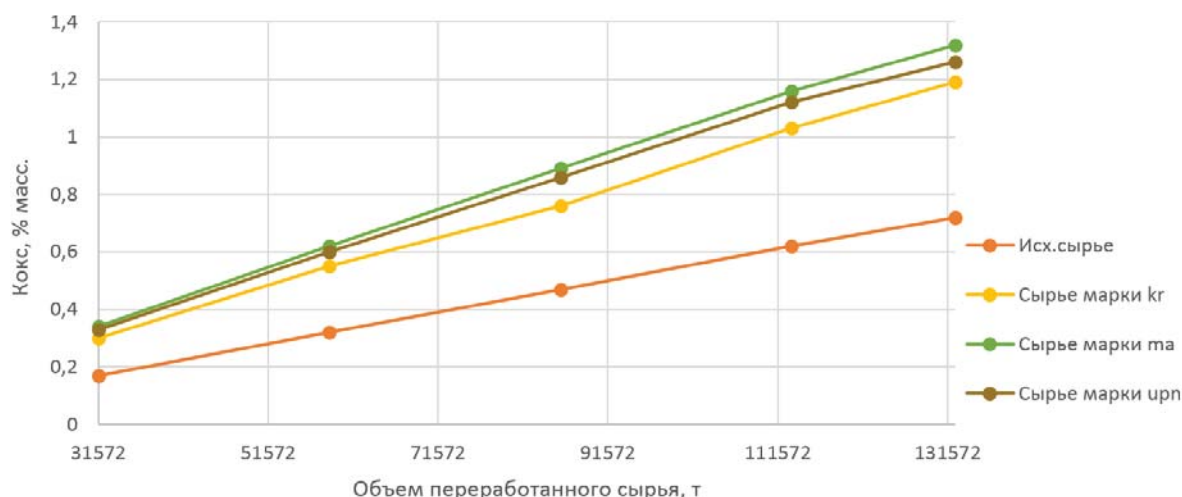


Рис. 2. Изменение накопления кокса при использовании различных образцов сырья при эксплуатации установки

Fig. 2. Change in the coke accumulation depending on feedstock sample on the SRR unit

Одной из количественных характеристик риформата является его выход, который также напрямую зависит от компонентного состава сырья в целом. Максимальным выходом будет обладать риформат с применением сырья с повышенным содержанием нафтеновых углеводов, так как данные компоненты быстрее всего вступают в реакции с образованием веществ с высокими значениями октановых чисел. В данном случае наибольшим из представленных выходов (90,61 % мас.) обладает риформат переработки образца сырья «ирп» с минимальным значением индекса сырья (0,40). Наименьшее количество риформата (81,32 % мас.) образуется при переработке образца «кг», индекс сырья которого 2,62, что соответствует максимальному количеству предельных углеводов в составе, которые способствуют снижению выхода риформата и ароматических веществ.

Основной качественной характеристикой товарных бензинов, которые получают путем компаундирования составных потоков, является октановое число. Катализат, полученный путем риформирования бензиновой фракций, является одним из таких потоков, и его качество также определяет значение октанового числа. На основании проведенных исследований, можно сделать вывод, что переработка сырья с содержанием парафиновых углеводов свыше 50 % мас. (кг) приводит к получению продукта с октановым числом по исследовательскому методу равным 93,6 пунктов. В то время как использования сырья, богатого циклическими углеводородами с относительно низким содержанием предельных (ирп), приводит к образованию риформата с октановым числом 104,3 пунктов, что позволяет судить о большей эффективности процесса.

#### Анализ изменения состава бензиновой фракций в процессе эксплуатации газоконденсатного месторождения

Газоконденсатное месторождение – природное скопление углеводородов, которые в условиях существующего пластового давления и температуры находятся в газовом состоянии. При понижении давления и повышении температуры имеет место явление так называемой «обратной конденсации», при которой углеводороды частично переходят из газообразной фазы в жидкую и остаются в поровых каналах пласта, из которых их трудно извлечь. Бензиновая фракция, добываемая на газоконденсатных месторождениях в течение срока эксплуатации, отличается по составу от бензиновой фракции нефтяного месторождения, так как в данном случае учитываются геологические свойства газоконденсатного коллектора [21–27].

В качестве примера исследования изменения состава сырья в процессе эксплуатации месторождения был выбран образец «та». В качестве исходных данных представлены составы сырья газоконденсатного месторождения при эксплуатации месторождения в течение трех лет (2017–2020 гг.). Наглядное изменение состава сырья в процессе эксплуатации в течение пяти лет газоконденсатного месторождения представлено на рис. 3.

Согласно рис. 3, в процессе разработки газоконденсатного месторождения состав добываемого продукта, а соответственно, и бензиновой фракций непрерывно меняется в широких пределах. Можно отметить, что при увеличении срока работы месторождения содержание парафиновых углеводородов нормального и изостроения уменьшается (2017 г. –

36,17 % мас.; 2020 г. – 19,39 % мас.). Содержание нафтеновых углеводородов, так же, как и парафиновых, при эксплуатации месторождения значительно снижается (2017 г. – 20,01 % мас.; 2020 г. – 18,68 % мас.). Содержание углеводородов ароматического ряда имеет

тенденцию к увеличению, что видно на рис. 4. В 2017 г. содержание ароматических соединений в составе бензиновой фракции составило 48,19 % мас., однако в 2020 г. содержание ароматических углеводородов уже составляет 67,83 % мас.

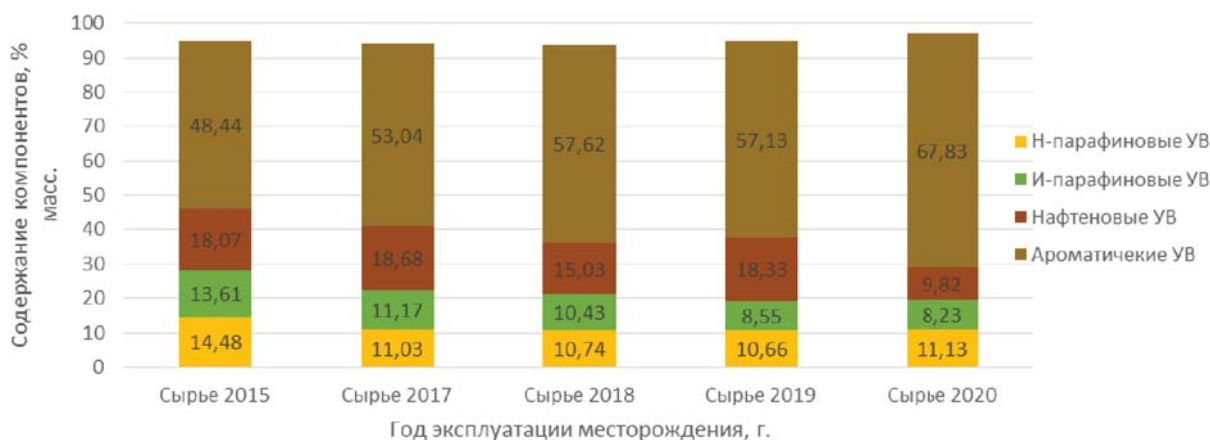


Рис. 3. Изменения состава сырья каталитического риформинга в процессе эксплуатации газоконденсатного месторождения в течение пяти лет

Fig. 3. Changes in the feedstock composition during the gas condensate field operation within five years

Мониторинг изменения состава сырья в процессе эксплуатации газоконденсатного месторождения показал, что при увеличении срока добычи газоконденсата исследуемого месторождения количество легких компонентов – парафиновых и нафтеновых углеводородов – постепенно снижается, а содержание тяжелых ароматических возрастает. Данный факт обуславливается явлением ретроградной конденсации. Ретроградная конденсация – переход природных углеводородных многокомпонентных систем из однофазного газообразного состояния в двухфазное парожидкостное состояние при изотермическом снижении давления. В процессе эксплуатации месторождения пластовое давление снижается, что негативно сказывается на процессе добычи пластовых флюидов, а температура остается постоянной, следовательно, газовый конденсат, в условиях пласта входящий в состав пластового газа и пребывающий в газообразном однофазном состоянии, при достижении критических условий частично переходит в жид-

кую фазу, основной частью которой являются тяжелые ароматические углеводороды, выпадающие в первую очередь [22–27]. Таким образом, при эксплуатации газоконденсатного месторождения состав бензиновой фракции обогащается тяжелыми ароматическими соединениями, которые приводят к снижению качества проведения процесса каталитического риформинга, результаты которого рассмотрены далее.

Так как состав бензиновых фракций, поступающей в качестве сырья на установку каталитического риформинга, непрерывно изменяется, необходимо оценивать степень его влияния на целевые характеристики получаемого продукта.

Данные, на основе которых была оценена динамика по изменению состава сырья, также исследовали на качественные и количественные характеристики реформата при их переработке. С применением представленной математической модели получены результаты, представленные в табл. 7.

Таблица 7. Характеристики реформата, полученные при исследовании образцов сырья

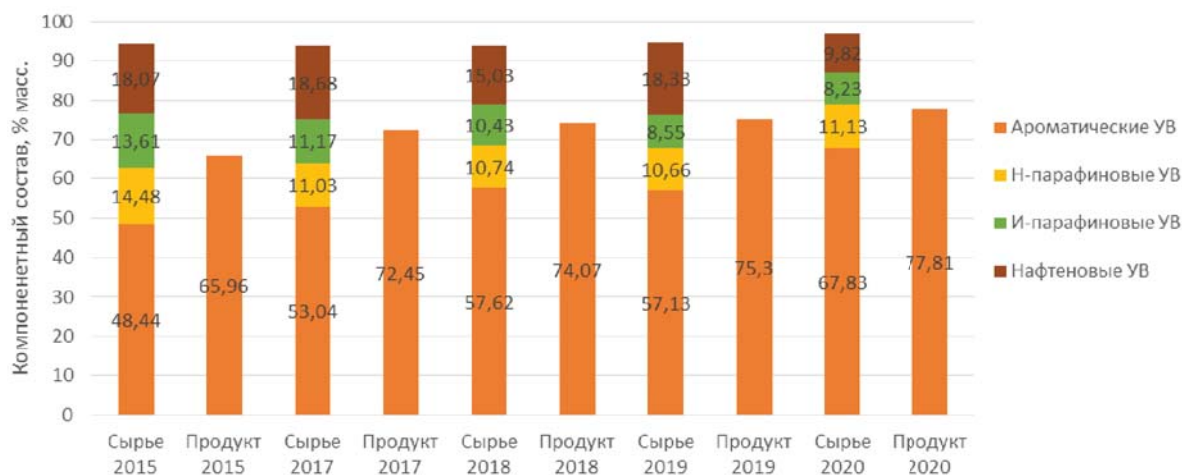
Table 7. Reformate characteristics obtained with studying feedstock samples impact

Параметр продукта/процесса Parameter of product/process	Содержание, % мас./Content, % wt.									
	2017	2017	2017	2018	2018	2018	2018	2019	2019	2020
Ароматика, % мас. Aromatics, % wt.	87,3	86,4	86,6	88,0	85,7	87,1	87,2	88,4	88,6	89,6
Октановое число (исследовательский метод) Research octane number	106,0	105,6	105,6	106,3	105,1	105,8	105,9	106,5	106,6	107,0
Выход реформата, % мас. Yield, % wt.	91,83	91,22	91,12	92,11	90,88	91,57	91,79	92,44	92,52	93,09
Кокс, % мас./Coke, % wt.	0,34	0,34	0,35	0,37	0,30	0,33	0,30	0,38	0,32	0,39

Полученные характеристики целевого продукта представлены на рис. 4, 5.

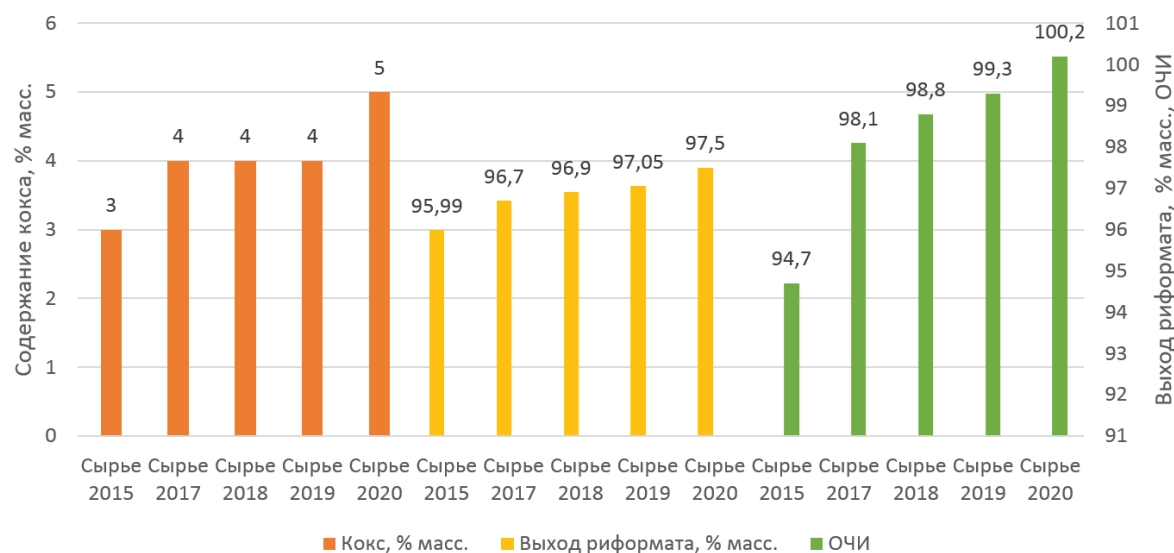
Согласно полученным данным, количественные характеристики целевого продукта при увеличении срока эксплуатации газоконденсатного месторождения увеличиваются. Выход реформата возрастает с

91,83 % мас. в 2017 г. до 93,09 % мас. в 2020 г. Однако увеличение срока эксплуатации месторождения оказывает отрицательное воздействие на каталитическую систему риформинга в связи с увеличением ароматических соединений в своем составе.



**Рис. 4.** Изменение содержания ароматических углеводородов в риформате при увеличении длительности эксплуатации месторождения

**Fig. 4.** Changes in the aromatic hydrocarbons content in the reformat with increase of the field operation duration



**Рис. 5.** Изменение характеристик продукта в зависимости от года эксплуатации месторождения

**Fig. 5.** Change in product characteristics depending on the year of the field operation

Как видно из рис. 3, 4, при увеличении срока эксплуатации газоконденсатного месторождения качественные характеристики целевого процесса увеличиваются. Таким образом, октановое число по исследовательскому методу бензинового топлива изменяется от 105,6 до 107,0 пунктов, что свидетельствует о производстве продукта высокого качества. Зависимость повешения ароматических соединений в составе риформата, представленная на рис. 5, также свидетельствует о повышении их количества при увеличении срока работы месторождения.

Согласно представленным изменениям состава бензиновой фракции и их влиянию на качество бензинового топлива для достижения товарного продукта высокого качества на действующем производстве необходим подбор определенного технологического режима для достижения максимально эффективного результата.

Из полученных зависимостей следует, что при увеличении срока эксплуатации месторождения характеристики полученного риформата различны. Для

обоснования данных зависимостей использовались индексы сырья одного и того же образца (табл. 6), значения которых представлены в табл. 8.

**Таблица 8.** Индекс сырья исследуемого образца «та»

**Table 8.** Feedstock index of the feedstock sample «та»

Год эксплуатации скважины Year of the field operation	Индекс сырья Feedstock index
2017	0,74
2018	0,43
2019	0,31
2020	0,28

Так, при увеличении срока работы скважины повышение содержания ароматических соединений в составе сырьевого потока отрицательным образом воздействует на работу катализатора, так как при высоких температурах данные соединения способны вступать в реакции конденсации с образованием непредельных промежуточных уплотнений.

На уровне увеличения аренов в составе добываемого сырья наблюдается уменьшение углеводородов, что приводит к снижению выхода товарного продукта и снижает количественные характеристики эффективности процесса риформинга. Однако индекс сырья, который отражает совокупность содержащихся углеводородов в сырье, уменьшается по мере эксплуатации месторождения, следовательно, выход риформата возрастает.

Низкий индекс сырья, значение которого обуславливается малым содержанием парафиновых углеводородов и максимальным уровнем ароматических и который наблюдается в 2020 г. обеспечивает наилучшим образом выход качественного продукта, так как октановое число полученного риформата достигает значения 107,0 пунктов.

### Заключение

В данной работе рассмотрены основные закономерности влияния состава сырья газоконденсатных месторождений на эффективность каталитического риформинга. Исследовались три образца сырья, различных по составу и преобладанию групп парафиновых, углеводородов или ароматических углеводородов. Применение сырья с газоконденсатных месторождений с минимальным содержанием парафиновых углеводородов и высоким значением углеводородов и ароматических углеводородов приводит к увеличению выхода ароматических углеводородов по сравнению с исходным сырьем (нафтой) на 20 % мас. Повышение выхода риформата увеличилось на 3 % мас., а октановое число по исследовательскому методу увеличилось на 7–8 пунктов и составило более 100 пунктов по сравнению с исходным. При исследовании образца с преобладанием парафиновых углеводородов, наоборот, наблюдалось снижение выхода ароматических углеводородов и риформата на 5 % мас., а октанового числа – на 2 пункта. Октановое число составило 93–94 пункта при использовании данного вида сырья.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Федеральная служба государственной статистики – Промышленное производство в 2021 году. URL: <https://rosstat.gov.ru/folder/313/document/151988> (дата обращения 09.04.2022).
2. Скоробогатов В.А., Ростовцев В.Н., Паровинчак М.С. Геология и газонефтеносность юго-востока Западно-Сибирской мегапровинции. Итоги семи десятилетий исследований (1951–2020 гг.). Проблемы и перспективы // Вести газовой науки. – 2021. – № 3 (48). – С. 232–251.
3. Минерально-сырьевая база газовой отрасли промышленности России, крупных регионов и компаний: современное состояние и перспективы развития в первой половине XXI века / М.Ю. Недзвецкий, В.В. Рыбальченко, А.Н. Рыбьяков, Д.Я. Хабибуллин, В.А. Скоробогатов // Вести газовой науки. – 2021. – № 3 (48). – С. 4–20.
4. Афанасенков А.П., Высоцкий В.И., Скоробогатов В.А. Развитие минерально-сырьевой базы нефтегазового комплекса России и мира в XX–XXI вв.: итоги, проблемы, перспективы // Вести газовой науки. – 2021. – № 3 (48). – С. 21–40.
5. Кананыхина О.Г., Рыбьяков А.Н. Нефть и газ севера Западной Сибири (суша и шельф): запасы, ресурсы, структура, прогноз // Вести газовой науки. – 2021. – № 3 (48). – С. 73–79.

Вместе с тем с увеличением основных показателей риформинга увеличивается содержание кокса на катализаторе на 0,5 % мас. Ускоренное коксообразование на платиновом катализаторе крайне нежелательно, так как это приводит к его быстрой дезактивации и остановке процесса. При исследовании всех трех образцов наблюдалось увеличение кокса по сравнению с исходным сырьем. Из этого следует необходимость скорректировать технологические условия или подборе катализатора, при котором наряду с высоким выходом продукта заданного качества будет сохраняться умеренное коксообразование.

Изменение свойств и состава газового конденсата, добываемого на месторождении, оказывает прямое воздействие на эффективность всего процесса. Так, при увеличении срока эксплуатации месторождения продукт становится наиболее вязким и ароматизированным, что оказывает негативное воздействие на каталитические системы, используемые в данном процессе. Помимо этого, уменьшается содержание циклических углеводородов, что также оказывает отрицательное влияние на количественную характеристику продукта – его выход. Однако при увеличении длительности функционирования месторождения индекс сырья уменьшается, что увеличивает качественные характеристики продукта.

Получение товарного бензина при использовании сырья, состав которого изменяется во времени, – задача многокритериального анализа, так как увеличение одних параметров наилучшим образом воздействует на одни свойства и негативным образом сказывается на других. Так, путем варьирования технологических параметров с учетом анализа изменения свойств сырья можно достигнуть максимального выхода высококачественного продукта.

*Исследование выполнено при поддержке Российской государственной научной фонды, проект № 19-71-10015-П. Авторы выражают признательность А.Ф. Нагорняк за подробное изучение статьи и комментарии, способствующие лучшему пониманию и аргументации выводов.*

6. Rahimpour M.R., Jafari M., Iranshahi D. Progress in catalytic naphtha reforming process: a review // Applied Energy. – 2013. – V. 109. – P. 79–93.
7. Rodriguez M.F., Ancheyta J. Detailed description of kinetic and reactor modeling for naphtha catalytic reforming // Fuel. – 2011. – V. 90. – P. 3492–3508.
8. Shakor Z., Abdulrazak A.A., Sukkar K. A detailed reaction kinetic model of heavy naphtha reforming // Arabian Journal for Science and Engineering. – 2020. – V. 45. – P. 7361–7370.
9. Иванчина Э.Д. Совершенствование промышленной технологии переработки углеводородного сырья с использованием платиновых катализаторов на основе нестационарной модели: автореф. дис. ... д-ра техн. наук. – Томск, 2002. – 44 с.
10. Марчева В.С., Серебряков О.И. Геохимическая классификация газовых конденсатов // Геология, география и глобальная энергия. – 2013. – № 2 (49). – С. 47–60.
11. Unsteady-state kinetic simulation of naphtha reforming and coke combustion processes in the fixed and moving catalyst beds / A.N. Zagoruiko, A.S. Belyi, M.D. Smolnikov, A.S. Noskov // Catalysis Today. – 2014. – V. 220–227. – P. 168–177.
12. Ivanchina E.D., Ivashkina E.N., Nazarova G.U. Mathematical modelling of catalytic cracking riser reactor // Chemical Engineering Journal (Amsterdam, Netherlands). – 2017. – V. 329. – P. 262–274.



13. Mathematical modeling of the process of catalytic hydrodewaxing of atmospheric gasoil considering the interconnection of the technological scheme devices / N.S. Belinskaya, E.D. Ivanchina, E.N. Ivashkina, V.A. Chuzlov, S.A. Faleev // *Procedia Engineering*. – 2015. – V. 113. – P. 68–72.
14. Yakupova I.V., Ivanchina E.D., Sharova E.S. Mathematical modelling method application for optimisation of catalytic reforming process // *Procedia Chemistry*. – 2014. – V. 10. – P. 197–202.
15. Computer modelling system application for catalytic reforming unit work optimization / I.V. Yakupova, E.D. Ivanchina, E.S. Sharova, A.A. Syskina // *Procedia Chemistry*. – 2014. – V. 10. – P. 192–196.
16. Mathematical modeling and optimization of semi-regenerative catalytic reforming of naphtha / I.V. Pchelintseva, E.D. Ivanchina, E.S. Chernyakova, D.S. Poluboyartsev // *Oil & Gas Science and Technology – Revue IFP Energies nouvelles*. – 2021. – V. 76. URL: <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-03359119/document> (дата обращения 09.04.2022).
17. Duchêne P., Mencarelli L., Pagot A. Optimization approaches to the integrated system of catalytic reforming and isomerization processes in petroleum refinery // *Computers & Chemical Engineering*. – 2020. – V. 141. – P. 1–10.
18. Pasandide P., Rahmani M. Simulation and optimization of continuous catalytic reforming: Reducing energy cost and coke formation // *International Journal of Hydrogen Energy*. – 2021. – V. 46 (58). – P. 30005–30018.
19. ГОСТ Р 52714-2018 «Бензины автомобильные. Определение индивидуального и группового углеводородного состава методом капиллярной газовой хроматографии». – М.: Стандартинформ, 2018. – 11 с.
20. СТО Газпром 5.40-2011. Пластовый газ. Определение компонентно-фракционного состава / Утв. ОАО «Газпром» 06.09.2011; разраб ООО «Газпром-ВНИИГАЗ». – М.: Газпром Экспо, 2012. – 201 с.
21. Красовская О.К. Исследование компонентного состава нефтяного сырья и оценка его влияния на эффективность процесса каталитического риформинга бензинов методом математического моделирования // *Химия и химическая технология в XXI веке: XXII Международная конференция*. – Томск: Национальный исследовательский Томский политехнический университет, 2021. – С. 56–57.
22. Проблемы и возможности совершенствования исследования и моделирования газоконденсатных флюидов // А.Г. Касперович, Д.Р. Крайн, О.А. Омельченко, Н.А. Мурыхныч, Д.А. Рычков, Д.Г. Фатеев, Ю.В. Мамонтова // *Вести газовой науки*. – 2021. – № 1 (48). – С. 149–156.
23. Рыбьяков А.Н., Кананыхина О.Г. Формирование и прогнозирование конденсатсодержащих месторождений и залежей в осадочных бассейнах России. Проблемы ресурсов, разведки и добычи в XXI веке // *Вести газовой науки*. – 2021. – № 3 (48). – С. 80–91.
24. Sabea H.J., Al-Fatlawi O. Studying the impact of condensate blockage on gas production: a review // *Materials Today: Proceedings*. – 2021. URL: <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2021.10.229> (дата обращения 09.04.2022).
25. Optimization of light hydrocarbon recovery system in condensate gas field / H.Lu, G. Ma, L. Cao, M. Azimi // *Energy Reports*. – 2019. – V. 5. – P. 1209–1221.
26. Faraji F., Ugwu J.O., Chong P.L. Modelling two-phase Z factor of gas condensate reservoirs: application of Artificial Intelligence (AI) // *Journal of Petroleum Science and Engineering*. – 2022. – V. 206. – P. 109787.
27. Шарипов А.Ф., Волков А.Н. Система контроля и оценки качества газоконденсатных исследований скважин // *Вести газовой науки*. – 2016. – № 4 (28). – С. 173–179.

Поступила 08.06.2022 г.

Прошла рецензирование 13.09.2022 г.

#### Информация об авторах

**Пчелинцева И.В.**, кандидат технических наук, ведущий специалист Исследовательского центра ООО «ГазИнформПласт».

**Чернякова Е.С.**, кандидат технических наук, доцент отделения химической инженерии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

**Красовская О.К.**, магистрант отделения химической инженерии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

**Кокшаров А.Г.**, начальник установки ООО «КИНЕФ».

UDC 665.642.44

## IMPACT OF FEEDSTOCK COMPOSITION FROM GAS CONDENSATE RESERVOIRS ON CATALYTIC REFORMING

Inna V. Pchelintseva<sup>1</sup>,  
PchelincevalV@oilteam.tomsk.ru

Ekaterina S. Chernyakova<sup>2</sup>,  
Sharova@tpu.ru

Olga K. Krasovskaya<sup>2</sup>,  
okk3@tpu.ru

Anton G. Koksharov<sup>3</sup>,  
antonk11@mail.ru

<sup>1</sup> Research Center GasInformPlast, LLC,  
8/8, Akademicheskoy avenue, Tomsk, 634055, Russia.

<sup>2</sup> National Research Tomsk Polytechnic University,  
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

<sup>3</sup> KINEF LLC,  
1, Entuziastov highway, Kirishi, 187110, Russia.

**The relevance** of the research is caused by the need of catalytic reforming modernization by selecting and varying feedstock on the basis of an existing enterprise, as well as at the stage of its design.

**The main aim** of the research is to analyze the influence of raw materials from a gas condensate field on the qualitative and quantitative characteristics of the product.

**Objects:** feedstock from three gas condensate reservoirs in Western and Eastern Siberia.

**Methods:** determination of individual and group hydrocarbon composition by capillary gas chromatography method; mathematical modeling to study the impact of feedstock varying.

**Results.** A mathematical model of semi-regenerative catalytic reforming was developed. The feedstock composition impact on the reformate yield and quality was studied using the mathematical model. The feedstock used is degassed condensate from three different gas condensate fields in Western and Eastern Siberia. The degassed condensate was obtained by standard separation in the research laboratory «GasInformPlast». The paper introduces the index of raw materials, indicating the predominance of a certain hydrocarbon group in the compositions of three degassed condensates. It was revealed that use of the feedstock from gas condensate fields with a minimum content of paraffin hydrocarbons and a high value of naphthenic and aromatic hydrocarbons leads to increase in the yield of aromatic hydrocarbons by 20 % wt.; increase in reformate yield by 3 % wt.; increase in octane number by 7–8 points; increased coking by 0,5 % wt. The change in the composition of gasoline fractions during gas condensate field operation for five years is analyzed using the mathematical model. It was established that increase in the life of the deposit has negative effect on the catalytic reforming system due to the increase in aromatic compounds in its composition.

### Key words:

semiregenerative catalytic reforming, feedstock composition, gas condensate reservoir, mathematic model, yield, research octane number.

The research was supported by RSCF according to the research project no. 19-71-10015-II.

The authors appreciate A.F. Nagornyak for detailed paper study and commentaries contributing to better comprehension and reasoning of conclusions.

### REFERENCES

1. *Federalnaya sluzhba gosudarstvennoy statistiki – promyshlennoye proizvodstvo v 2021 godu* [Dynamics of industrial production in 2021. Federal State Statistics Service]. Available at: <https://rosstat.gov.ru/folder/313/document/151988> (accessed 9 April 2022).
2. Skorobogatov V.A., Rostovtsev V.N., Parovinchak M.S. Geology and oil & gas presence towards the south-east of West-Siberian Megaprovince. Summarizing seven decades of studies (1951–2020). Challenges and outlooks. *Vesti gazovoy nauki*, 2021, vol. 3 (48), pp. 232–251. In Rus.
3. Nedzvetskiy M.Yu., Rybalchenko V.V., Rybyakov A.N., Khabibullin D.Ya., Skorobogatov V.A. Mineral resource base for gas industry, big regions and companies in Russia: contemporary status and promising trends up to a midpoint of 21st century. *Vesti gazovoy nauki*, 2021, vol. 3 (48), pp. 4–20. In Rus.
4. Afanasev A.P., Vysotskiy V.I., Skorobogatov V.A. Evolution of mineral resource base for petroleum industry in Russia and abroad in 20th and 21st centuries: results, challenges and outlooks. *Vesti gazovoy nauki*, 2021, vol. 3 (48), pp. 21–40. In Rus.
5. Kananykhina O.G., Rybyakov A.N. Oil and gas from north of Western Siberia (onshore and offshore): reserves, resources, structure, prediction. *Vesti gazovoy nauki*, 2021, vol. 3 (48), pp. 73–79. In Rus.
6. Rahimpour M.R., Jafari M., Iranshahi D. Progress in catalytic naphtha reforming process: a review. *Applied Energy*, 2013, vol. 109, pp. 79–93.
7. Rodríguez M.F., Ancheyta J. Detailed description of kinetic and reactor modeling for naphtha catalytic reforming. *Fuel*, 2011, vol. 90, pp. 3492–3508.
8. Shakor Z., Abdulrazak A.A., Sukkar K. a detailed reaction kinetic model of heavy naphtha reforming. *Arabian Journal for Science and Engineering*, 2020, vol. 45, pp. 7361–7370.

9. Ivanchina E.D. *Sovershenstvovanie promyshlennoy tekhnologii pererabotki uglevodorodnogo syr'ya s ispolzovaniem platinovykh katalizatorov na osnove nestacionarnoy modeli*. Avtoreferat Dis. Dokt. nauk [Improving of the industrial technology for hydrocarbon feed processing with platinum catalysts using based on the non-stationary model. Dr. Diss. Abstract]. Tomsk, 2002. 44 p.
10. Mercheva V.S., Serebryakov O. I. Geochemical classification of gas condensates. *Geologiya, geografiya i globalnaya energiya*, 2013, no. 2 (49), pp. 47–60. In Rus.
11. Zagoruiko A.N., Belyi A.S., Smolikov M.D., Noskov A.S. Unsteady-state kinetic simulation of naphtha reforming and coke combustion processes in the fixed and moving catalyst beds. *Catalysis Today*, 2014, vol. 220–227, pp. 168–177.
12. Ivanchina E.D., Ivashkina E.N., Nazarova G.U. Mathematical modelling of catalytic cracking riser reactor. *Chemical Engineering Journal (Amsterdam, Netherlands)*, 2017, vol. 329, pp. 262–274.
13. Belinskaya N.S., Ivanchina E.D., Ivashkina E.N., Chuzlov V.A., Faleev S.A. Mathematical modeling of the process of catalytic hydrodewaxing of atmospheric gasoil considering the interconnection of the technological scheme devices. *Procedia Engineering*, 2015, vol. 113, pp. 68–72.
14. Yakupova I.V., Ivanchina E.D., Sharova E.S. Mathematical modelling method application for optimisation of catalytic reforming process. *Procedia Chemistry*, 2014, vol. 10, pp. 197–202.
15. Yakupova I.V., Ivanchina E.D., Sharova E.S., Syskina A.A. Computer modelling system application for catalytic reforming unit work optimization. *Procedia Chemistry*, 2014, vol. 10, pp. 192–196.
16. Pchelintseva I.V., Ivanchina E.D., Chernyakova E.S., Poluboyartsev D.S. Mathematical modeling and optimization of semi-regenerative catalytic reforming of naphtha. *Oil & Gas Science and Technology – Revue IFP Energies nouvelles*, 2021, vol. 76. Available at: <https://doi.org/10.2516/ogst/2021041> (accessed 9 April 2022).
17. Duchène P., Mencarelli L., Pagot A. Optimization approaches to the integrated system of catalytic reforming and isomerization processes in petroleum refinery. *Computers & Chemical Engineering*, 2020, vol. 141, pp. 1–10.
18. Pasandide P., Rahmani M. Simulation and optimization of continuous catalytic reforming: Reducing energy cost and coke formation. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2021, vol. 46 (58), pp. 30005–30018.
19. GOST P 52714-2018 *Benziny avtomobilnye. Opredelenie individualnogo i gruppovogo uglevodorodnogo sostava metodom kapillyarnoy gazovoy khromatografii* [State Standard 52714-2018 Motor gasolines. Determination of individual and group hydrocarbon composition by capillary gas chromatography method]. Moscow, StandardInform Publ., 2018. 11 p.
20. *STO Gazprom 5.40-2011. Plastovy gaz. Opredelenie komponentno-fraktsionnogo sostava* [Formation gas. Determination of the component-fractional composition]. Moscow, Gazprom Ekspo Publ., 2012. 201 p.
21. Krasovskaya O.K. Issledovanie komponentnogo sostava nefryanogo syr'ya i otsenka ego vliyaniya na effektivnost protsessu kataliticheskogo riforminga benzinov metodom matematicheskogo modelirovaniya [Studying of the component composition of petroleum feed and evaluation of its influence on the efficiency of the catalytic reforming with mathematical modeling method]. *XXII Mezhdunarodnaya konferenciya. Khimiya i khimicheskaya tekhnologiya v XXI veke* [XXII International Conference. Chemistry and Chemical Technology in the XXI century]. Tomsk, National Research Tomsk polytechnic university Publ. house, 2021. pp. 56–57.
22. Kasperovich A.G., Krayn D.R., Omelchenko O.A., Murykhnych N.A., Rychkov D.A., Fateyev D.G., Mamontova Yu.V. Challenges and capabilities to perfect studying and modelling of gas-condensate fluids. *Vesti gazovoy nauki*, 2021, vol. 1 (48), pp. 149–156. In Rus.
23. Rybyakov A.N., Kananykhina O.G. Forming and forecasting condensate-incorporating fields and deposits in sedimentary basins of Russia. Challenges of resources, prospecting and production in 21st century. *Vesti gazovoy nauki*, 2021, vol. 3 (48), pp. 80–91. In Rus.
24. Sabea H. J., Al-Fatlawi O. Studying the impact of condensate blockage on gas production: a review. *Materials Today: Proceedings*, 2021. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2021.10.229> (accessed 9 April 2022).
25. Lu H., Ma G., Cao L., Azimi M. Optimization of light hydrocarbon recovery system in condensate gas field. *Energy Reports*, 2019, vol. 5, pp. 1209–1221.
26. Faraji F., Ugwu J.O., Chong P.L. Modelling two-phase Z factor of gas condensate reservoirs: application of Artificial Intelligence (AI). *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2022, vol. 206, pp. 109787.
27. Sharipov A.F., Volkov A.N. Sistema kontrolya i ochenki kachestva gazokondensatnykh issledovaniy skvazhin [System for monitoring and assessing the quality of gas condensate well surveys]. *Vesti gazovoy nauki*, 2016, vol. 4 (28), pp. 173–179.

Received: 8 June 2022.

Reviewed: 13 September 2022.

#### Information about the authors

**Inna V. Pchelintseva**, Cand Sc., leading specialist, Well Testing Center «GasInformPlast».

**Ekaterina S. Chernyakova**, Cand Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

**Olga K. Krasovskaya**, undergraduate, National Research Tomsk Polytechnic University.

**Anton G. Koksharov**, head of the installation of KINEF LLC.

УДК 550.837:551.435.8:624.13.3

## К ОЦЕНКЕ ОПАСНОСТИ КАРСТОВО-СУФФОЗИОННЫХ ПРОЦЕССОВ

Татаркин Алексей Викторович<sup>1</sup>,  
vsto08@mail.ru

Красильников Павел Анатольевич<sup>1</sup>,  
geolnauka@gmail.com

Мещерякова Ольга Юрьевна<sup>1</sup>,  
olgam.psu@gmail.com

Ермаков Денис Владимирович<sup>2</sup>,  
ermakov@nedra.perm.ru

<sup>1</sup> Пермский государственный национальный исследовательский университет,  
Россия, 614068, г. Пермь, ул. Букирева, 15.

<sup>2</sup> ООО НИПППД «Недра»,  
Россия, 614064, г. Пермь, ул. Л. Шатрова, 13а.

*Актуальность исследования вызвана поиском прогнозных параметров и критериев изменения электрических свойств горных пород, связанных с растворением и выносом частиц горных пород на территориях с распространением отложений карбонатно-сульфатного состава. Кроме того, использование геофизических методов при одностороннем подходе восстановления физических свойств геологического разреза не всегда даёт однозначную оценку получаемых результатов. Вышеперечисленные факты указывают на необходимость поиска и оценки возможностей комплексных решений для повышения однозначности истолкования геофизических данных и достоверности прогнозных расчётов.*

*Цель работы заключается в разработке научно-методических основ способа оценки опасности карстово-суффозионных процессов.*

*Объект представлен массивом горных пород в районе развития карстово-суффозионных процессов.*

*Методы, использованные для достижения поставленной цели, базируются на численном моделировании электрических полей, натурных наблюдениях вертикальным электрическим зондированием в различных азимутальных направлениях, совокупном анализе геолого-геофизических данных и лабораторных исследованиях. В качестве инструментальных средств применены: аппаратный комплекс АМС-1 и системы программ ZondRes3D, «Зонд». Изучение удельного электрического сопротивления на образцах горных пород проводилось с помощью оригинальной методики без нарушения структуры и влажности монолитов. Результаты исследования отображают комплексный анализ геолого-геофизических данных, включающий теоретические расчёты в трёхмерных неоднородных средах, полевой эксперимент и верификацию прогнозной модели. Исходя из априорной информации и лабораторных данных о свойствах среды, составлена физико-геологическая модель с ослабленными областями, связанными с выносом и растворением горных пород. Выявленные закономерности положены в основу для районирования по геометризации потенциальных областей развития опасных карстово-суффозионных процессов и дальнейшего выбора защитных мероприятий по укреплению массива пород или проектных решений.*

### **Ключевые слова:**

*опасные процессы, моделирование, карст, суффозия, физические свойства, электроразведка.*

### **Введение**

Суффозионно-карстовые процессы неразрывно связаны с территориями освоения и эксплуатации различных месторождений закрытого типа, нередко затрудняя ведение производственной деятельности, сопряжённой с опасными природными явлениями. Кроме того, осложняющие факторы ведут к увеличению рисков при проектировании наземно-подземных объектов [1, 2].

Как правило, на территориях, подверженных карсту, проводится районирование с последующим составлением прогнозных карт по степени опасности территории в рамках интегрального подхода или мониторинговые наблюдения [3–5]. Ранжирование осуществляется на основании имеющейся информации различного масштаба. Однако не всегда детальность выполненных исследований может удовлетворять поставленные цели и задачи, которые могут быть реше-

ны в рамках дополнительного обследования [6, 7] или физического моделирования [8].

Другим аспектом вышеуказанной проблемы при оценке карстовой опасности на осваиваемых территориях является невозможность изменения положения проектируемых сооружений относительно разрабатываемых геологических объектов. В этой ситуации возникает необходимость проведения дополнительных противокарстовых мероприятий, включая анализ расчётных решений с оценкой их рентабельности при практической реализации. Одним из способов получения исходных данных для рационального выбора оптимального решения является использование геофизических методов исследований [4, 9–11].

Цель проводимых исследований заключается в обосновании методики изучения степени закарстованности в рамках внутриметодного комплексирования геофизических методов [12–14] на примере одного из участков разрабатываемого месторождения углеводородов.



### Методология и объект исследования

Для изучения закарстованных территорий с целью получения данных о природных условиях и прогнозе их изменений необходим поэтапный подход, основанный на решении следующих задач:

- анализ априорной информации;
- выбор методов исследований, достаточных для определения глубин залегания и литологии покровных и карстующихся отложений;
- составление физико-геологической модели (ФГМ) исследуемого объекта;
- проведение натурных наблюдений;
- восстановление изучаемой среды и локализация в пространстве областей разуплотнения;
- оценка изменчивости свойств отложений и гидро-геологических условий;
- комплексный анализ полученных результатов исследований с выводами о наличии (геометризации) опасных природно-технических процессов.

В качестве инструментария выбраны геофизические методы исследований, базирующиеся на использовании электрических полей [15], и методы их численного моделирования [16]. Для составления геологической модели привлечены данные бурения на карстующейся территории одного из разрабатываемых месторождений в Пермском крае, где по результатам вскрытия в ходе инженерно-геологических изысканий в скважине № 2 выявлены ослабленные зоны и полости (рис. 1). Геологический разрез в верхней его части до глубины порядка 8 м представлен глинистыми грунтами. Ниже залегают коренные породы сульфатного состава, подземные воды не встречены. При проходке скважины выделен ряд особенностей в геологическом строении разреза. Так, в интервале дисперсных грунтов отмечены зоны разуплотнения, а в отложениях гипса выделены незаполненные и заполненные глинистым материалом полости.

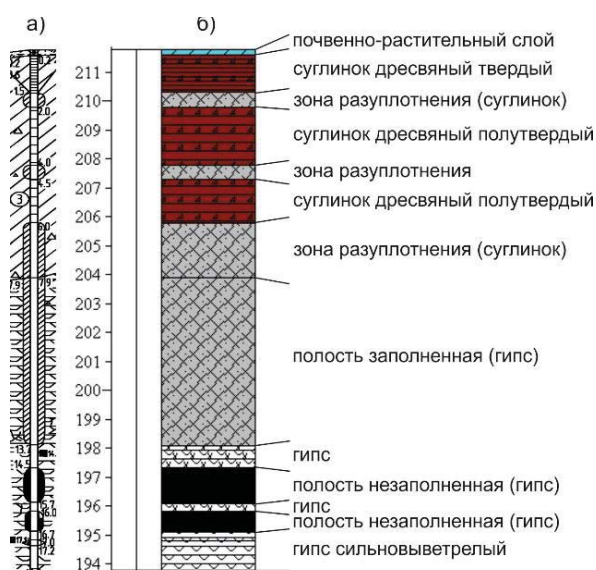


Рис. 1. Обобщенная модель геологической среды

Fig. 1. Generalized model of the geological environment

По результатам анализа априорной информации составлен обобщенный разрез геологической среды, который был положен в основу прогнозируемой ФГМ. В периферийной части, где отсутствуют ослабленные зоны, разрез модели представлен четырьмя инженерно-геологическими элементами: суглинок твердый (1а), полутвердый (1б), гипс сильноветрелый (2а), трещиноватый (2б). Что касается нарушенных областей массива горных пород, то добавлены ещё четыре элемента с индексами «р», «н» и «з», которые связаны с суффозионно-карстовыми процессами и отображают изменения в виде зон разуплотнения в вышеперечисленных структурных единицах геологической среды (табл. 1).

Определение физических свойств элементов дисперсных грунтов, выделенных на рисунке, выполнялось с учётом диаграммы распределения электрических сопротивлений для Приволжского и Северо-Западного Федерального округов [17]. Диаграмма составлена на основании результатов лабораторных измерений удельного электрического сопротивления (УЭС) с применением оригинальной методики. Суть методики заключается в использовании микроустановки на поверхности образцов произвольной формы и размеров без нарушения их герметизации и сплошности. Влияние геометрических размеров образцов оценивается по рассчитанным в ходе численного моделирования палеткам. Данный способ позволяет оперативно и достоверно оценить УЭС грунтов без дополнительного отбора проб. Характеристики сульфатных пород получены исходя из анализа среднестатистических данных в рамках изучаемого региона.

По результатам анализа параметрической информации для составленной геологической модели выделены диапазоны изменения удельного электрического сопротивления при условии отсутствия подземных вод и нормальной минерализации порядка 0,3–0,5 г/л (табл. 1).

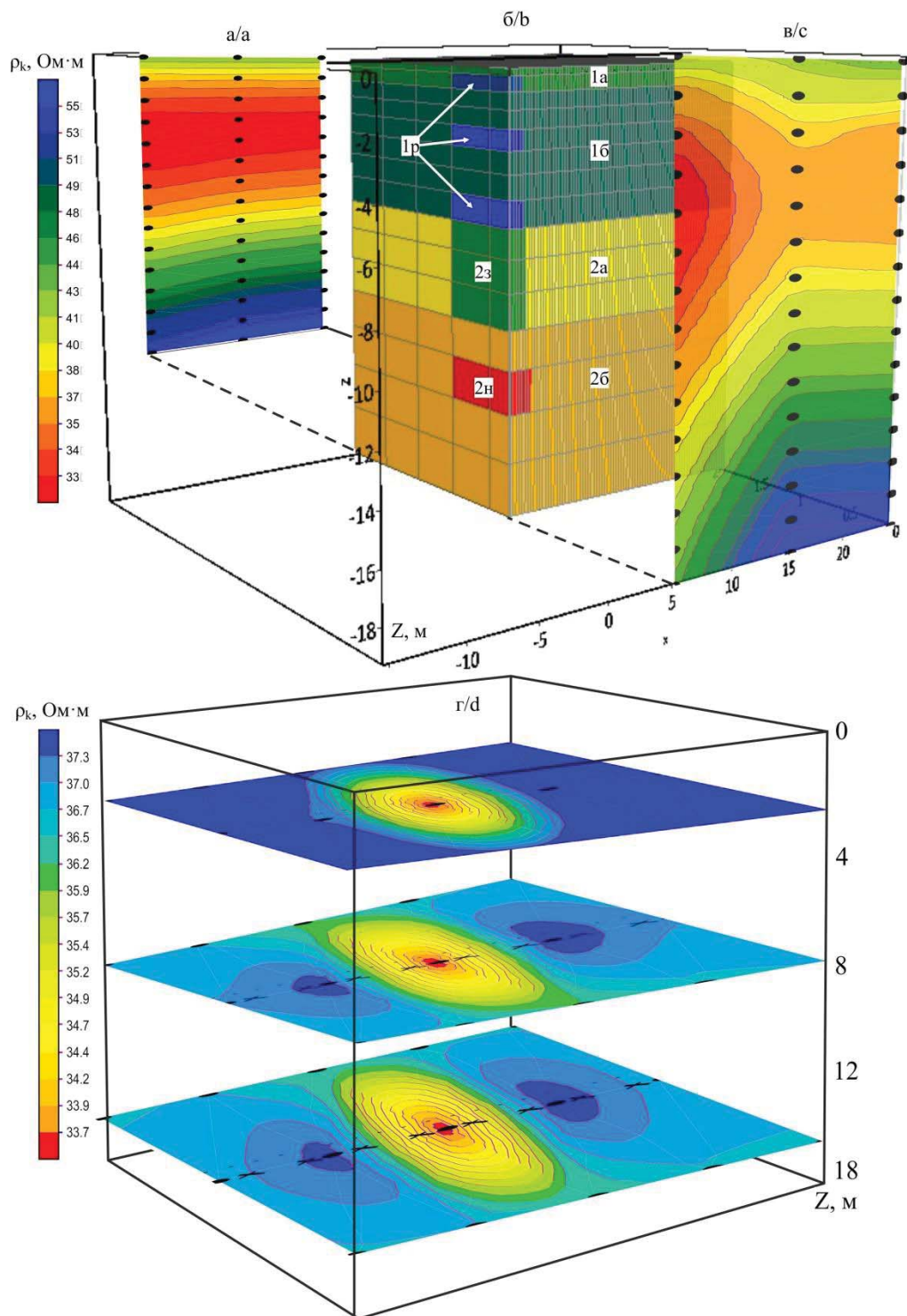
Таблица 1. Электрические характеристики пород

Table 1. Electrical characteristics of rocks

Номер элемента Item number	Порода Rock	Удельное электрическое сопротивление, Ом·м Electrical resistivity, Ohms·m
1а, 1б	Суглинок (твердый, полутвердый) Loam (solid, semi-solid)	20–45
1р	Зона разуплотнения (суглинок) Decompression zone (loam)	10–20
2а, 2б	Гипс (сильновветрелый, трещиноватый) Gypsum (strongly weathered, cracked)	200–700
2н	Полость незаполненная (гипс) Cavity is unfilled (gypsum)	100–2000
2з	Полость заполненная (гипс) Filled cavity (gypsum)	20–50

Приведённые выше исходные данные прогнозируемой ФГМ были положены в основу численных расчётов в трёхмерной среде. В качестве инструмента использовано программное обеспечение А.Е. Каминского для моделирования электрических полей на постоянном токе ZondRes3D [18].

Пространственное распределение удельного электрического сопротивления исходной модели отображает четыре основных инженерно-геологических элемента: суглинок твердый, суглинок полутвердый, гипс сильноветревший (трещиноватый) и пять ослабленных ассиметричных зон (табл. 1, рис. 2, б).



**Рис. 2.** Результаты численного моделирования на различных удалениях от объектов в вертикальной (а–в) и горизонтальной плоскостях (г)

**Fig. 2.** Results of numerical simulation at various distances from objects in the vertical (a–c) and horizontal planes (d)

Первые три ослабленных зоны мощностью от 0,5 до 2,0 м локализованы в дисперсных грунтах и характеризуются уменьшением УЭС на фоне вмещающих отложений за счёт суффозионных процессов и инфильтрации поверхностных вод. Две остальные зоны располагаются в коренных отложениях и представлены карстовыми полостями. В верхней части гипсов полость является заполненной, что ещё раз указывает на её связь с глинистыми грунтами и вертикальную миграцию их за счёт размыва кровли сульфатных пород и суффозионных процессов.

В связи с этим данная область выделена пониженными значениями сопротивления. Вторая же зона объединяет две незаполненные полости в гипсах общей мощностью 2 м и, как следствие, характеризуется повышением УЭС относительно общего фона. Локальный характер и отсутствие заполнителя в зоне разуплотнения указывает на генезис, определяемый движением подземных вод в горизонтальном направлении, и пассивную фазу карстообразования [19, 20].

Результаты численных расчётов для описанной выше модели представлены в виде вертикальных и горизонтальных сечений поля кажущихся сопротивлений (КС), на которых выделяется ряд особенностей (рис. 2).

Так, например, на проекции разреза, полученного по линии наблюдений, проходящей в непосредственной близости к зонам разуплотнения, отмечается повышение дифференциации электрических свойств как по вертикали, так и по латерали. При удалении от объекта на расстояние полутора длин его простираения электрические свойства слабо дифференцированы вкрест простираения поисковых объектов, но при этом отмечаются морфологические изменения поля кажущихся сопротивлений.

Ввиду асимметричности ослабленных зон и наличия их вертикального контакта с ненарушенными по-

родами на горизонтальных сечениях рассчитанной модели мы можем наблюдать вытянутость аномалий и инверсию свойств на периферии. Полученный на этапе качественной интерпретации контраст свойств позволяет оценить величину ожидаемого диапазона аномального проявления зон разуплотнения в пределах 5–8 %.

Принимая во внимание, что в естественных условиях изучаемые массивы горных пород, как правило, неоднородны, изменения электрических свойств зачастую могут быть связаны с вариациями инженерно-геологических условий, а не с наличием ослабленных зон. Кроме того, большое влияние на результаты измерений, расхождение которых сопоставимо с величиной аномального эффекта, оказывает наличие техногенных или геологических помех.

Учитывая вышесказанное, в условиях неоднородного состава отложений для повышения достоверности выделения ослабленных зон необходимо доизучение анизотропных свойств геологического разреза, обусловленных ослаблением физико-механических характеристик его элементов [21].

Выполнение натурных наблюдений проводилось на территории одного из месторождений нефти в районе проектируемого строительства инженерных сооружений. На основании результатов численного моделирования измерения выполнялись методом вертикального электрического зондирования (ВЭЗ) в площадном варианте по нескольким азимутальным направлениям с детализацией в районе вскрытой ослабленной зоны ПК 56, 71, скв. 2 (рис. 3). Расстояние между профилями составляло в среднем 10 м, между пикетами – также 10 м. Измерения проводились с помощью цифрового аппаратурно-программного комплекса АМС-1. Глубина исследований составляла порядка 30 м.

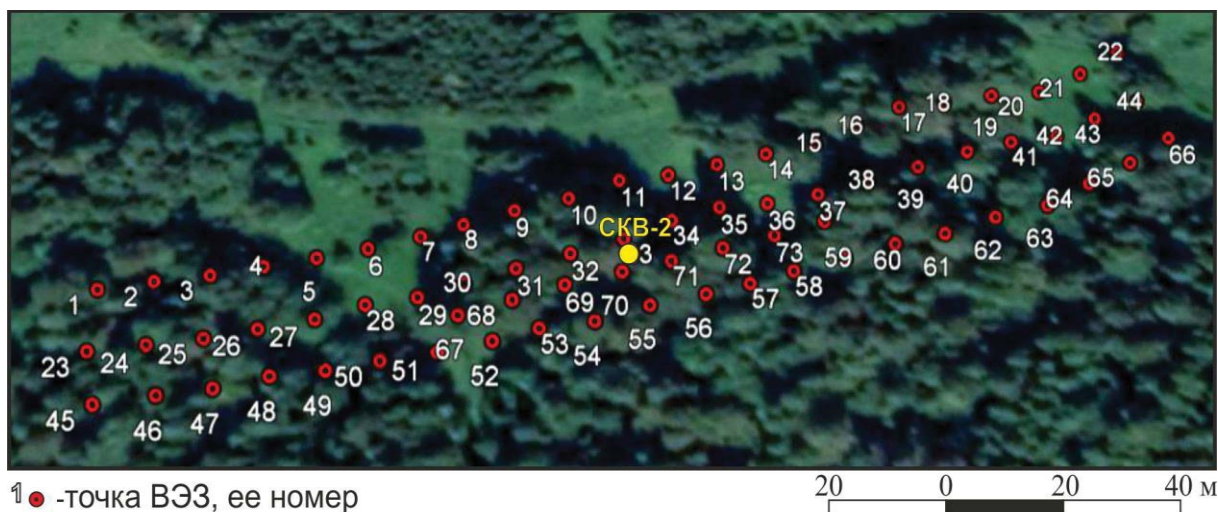


Рис. 3. Обзорная схема участка исследования

Fig. 3. Overview scheme of the research area

В ходе визуального обследования при проведении полевых наблюдений было выявлено, что участок исследований осложнён наличием карстовых образований. На территории изучаемой площади выделяются

шесть карстовых воронок, плановая привязка которых представлена в табл. 2.

Полученные экспериментально значения кажущегося сопротивления исследуемого массива горных



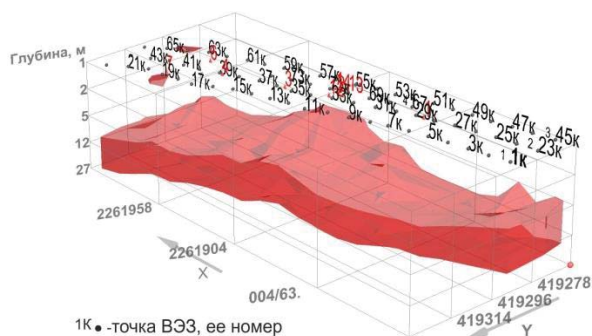
пород изменяются в пределах 20–50 Ом·м. Верхняя часть разреза до эффективных глубин 2–7 м характеризуется наличием сравнительно низкоомных пород ( $\rho_k=20\text{--}50$  Ом·м), по величине электрического сопротивления соответствующих породам глинистого состава (суглинки).

**Таблица 2.** Выделенные формы рельефа

**Table 2.** Selected landforms

Карстовые воронки Sinkholes	Пикет вертикального электрического зондирования Vertical electric sounding picket
1	10
2	21
3	30
4	35
5	47
6	43, 64–66

С глубиной поле закономерно меняется, характеризуясь общим увеличением сопротивления по площади и уменьшением содержания в составе пород глинистого материала, что указывает на появление в разрезе коренных пород. Морфология карстующихся отложений наиболее отчётливо прослеживается при трёхмерной визуализации области высоких сопротивлений при измерениях в ортогональном направлении (рис. 4), где выделяется ряд особенностей в районе пикетов 47К, 56К, 63К, связанных с изменением абсолютных отметок кровли пород.



**Рис. 4.** Трёхмерная визуализация кровли высокоомных карстующихся пород

**Fig. 4.** Three-dimensional visualization of the roof of high-resistance karst rocks

В соответствии с полученными ранее результатами полевых и лабораторных исследований дисперсных грунтов для данного региона [4] определены диапазоны изменений электрических свойств пород исследуемого участка (табл. 3).

Определение количественных характеристик изучаемого объекта и корреляция выделяемых инженерно-геологических элементов выполнены на основании интерпретации параметрических зондирований вблизи существующих скважин. Анализ полученных данных позволил выделить шестислойный разрез, где:

- первый геоэлектрический горизонт сопротивлением 56 Ом·м характеризует отложения почвенно-растительного слоя и суглинки;

- обвальнo-карстовые отложения объединяются во второй, третий и четвертый горизонт. При этом второй слой представлен отложениями суглинки и зоной разуплотнения в них. Сопротивление слоя составляет 27 Ом·м. Третий горизонт характеризуется более высокими значениями сопротивлений (87 Ом·м) за счет увеличения содержания дресвы коренных пород (известняка, мергеля, гипса) до 20 %. Четвертый геоэлектрический горизонт, обладающий сопротивлением 70 Ом·м, залегает в интервале глубин от 4 до 8 м и соответствует отложениям суглинки с включениями дресвы и зон разуплотнения;
- пятый горизонт относительно повышенного сопротивления объединяет вскрытую карстовую полость, заполненную суглинком с дресвой и щебнем сульфатно-карбонатного состава, гипсом, а также незаполненную карстовую полость в интервале глубин 14,5–16,7 м. Сопротивление пятого горизонта составляет 233 Ом·м;
- опорный седьмой горизонт, залегающий с глубины порядка 17 м, на данной кривой представлен отложениями гипса с прослоями ангидрита. Сопротивление слоя составляет 1560 Ом·м, что свидетельствует об увеличении плотности коренных пород и уменьшении их трещиноватости с глубиной.

**Таблица 3.** Диапазон изменения удельных электрических сопротивлений литологических разностей

**Table 3.** Range of variation of specific electrical resistances of lithological differences

Наименование инженерно-геологических элементов Name of engineering-geological elements	Диапазон изменения электрических сопротивлений, Ом·м Range of variation of electrical resistances, Ohms·m
Суглинок полутвердый Semi-solid loam	20–40
Суглинок твердый Solid loam	30–50
Суглинок с включениями дресвы и щебня Loam with inclusions of gravel and crushed stone	60–100
Гипс трещиноватый Cracked gypsum	200–1000
Гипс (ангидрит, известняк, доломит) Gypsum (anhydrite, limestone, dolomite)	1000–10000

Геоэлектрическая модель среды, представленная на рис. 5, получена по результатам количественной интерпретации электрических зондирований и характеризуется сильной дифференциацией свойств исследуемой толщ.

Диапазон изменений физических свойств верхней части разреза указывает на преобладание в ней отложений глинистого состава. В данном интервале дисперсных грунтов зоны повышенного сопротивления связаны как с возможным наличием зон разуплотнения, так и с увеличением содержания включений дресвы, щебня карбонатных (сульфатных) пород или



песчаного материала. Наряду с этим низкоомные области в толще, залегающей ниже, имеют корреляцию

с массопереносом и увеличением содержания глинистого материала, влажности отложений.

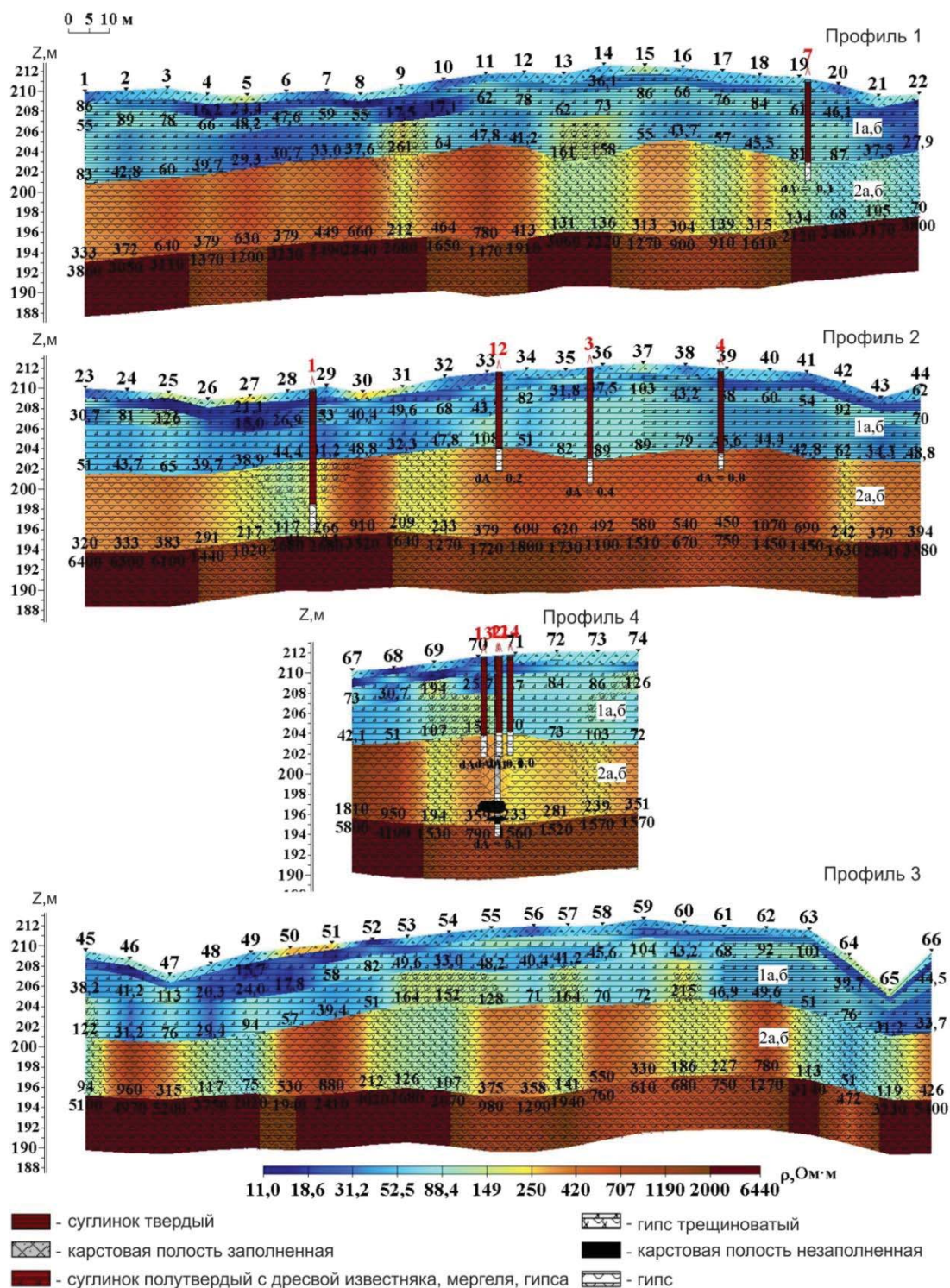


Рис. 5. Геоэлектрическая модель, построенная по результатам количественной интерпретации электрических зондирований

Fig. 5. Geoelectric model based on the results of quantitative interpretation of electrical soundings

Обвальнo-карстовые отложения объединяются во второй, третий и четвертый горизонты и представлены суглинком с включениями дресвы и щебня мергеля, гипса, известняка. Суглинки характеризуются изменением сопротивления от 30 до 60 Ом·м. Понижение со-

противлений суглинков до 11–20 Ом·м указывает на увеличение содержания глинистого материала, влажности отложений, возможное повышение минерализации, возможное засоление грунтов, а также разуплотнение пород. В районе ПК ВЭЗ 9, 13, 14, 25, 45, 53–55,

57, 60, 69, 70, 74 сопротивление толщ повышается до 120–260 Ом·м, что свидетельствует о наличии большого количества включений дресвы и щебня, а также о возможном включении глыбового материала.

В то же время кровля карстующихся сульфатных пород имеет вариации по вертикали с наибольшим изменением свойств в районе пикетов 9, 13, 19, 29, 42, 69, 49, 57, 63. На фоне высоких значений электрического сопротивления выделяются участки аномально повышенных значений УЭС, которые могут быть обусловлены карстовыми (незаполненными) полостями или присутствием более плотных пород сульфатно-карбонатного состава.

Следует обратить внимание на то, что в ряде случаев выделенных аномально отсутствует чёткая корреляция между обнаруженными карстовыми полостями и изменением физических свойств среды. Это можно объяснить тем, что причиной аномальных эффектов

являются вариации литологического состава или морфологии пород. В то же время неблагоприятные сценарии развития карстовых процессов в первую очередь связаны с наличием зон трещиноватости. Как правило, данные зоны отмечаются увеличением глинистого материала в поровом пространстве сульфатно-карбонатных пород. При этом секущие трещины в совокупности с наземными и подземными карстовыми формами сопровождаются резкими изменениями физических свойств среды [11, 22].

На основании вышеизложенного в качестве дополнительного критерия выявления карстово-суффозионных процессов использован коэффициент анизотропии. Для этой цели были произведены расчёты пространственного распределения данного параметра, которые представлены в виде различных проекций относительно поверхностных форм рельефа (рис. 6, а, б).

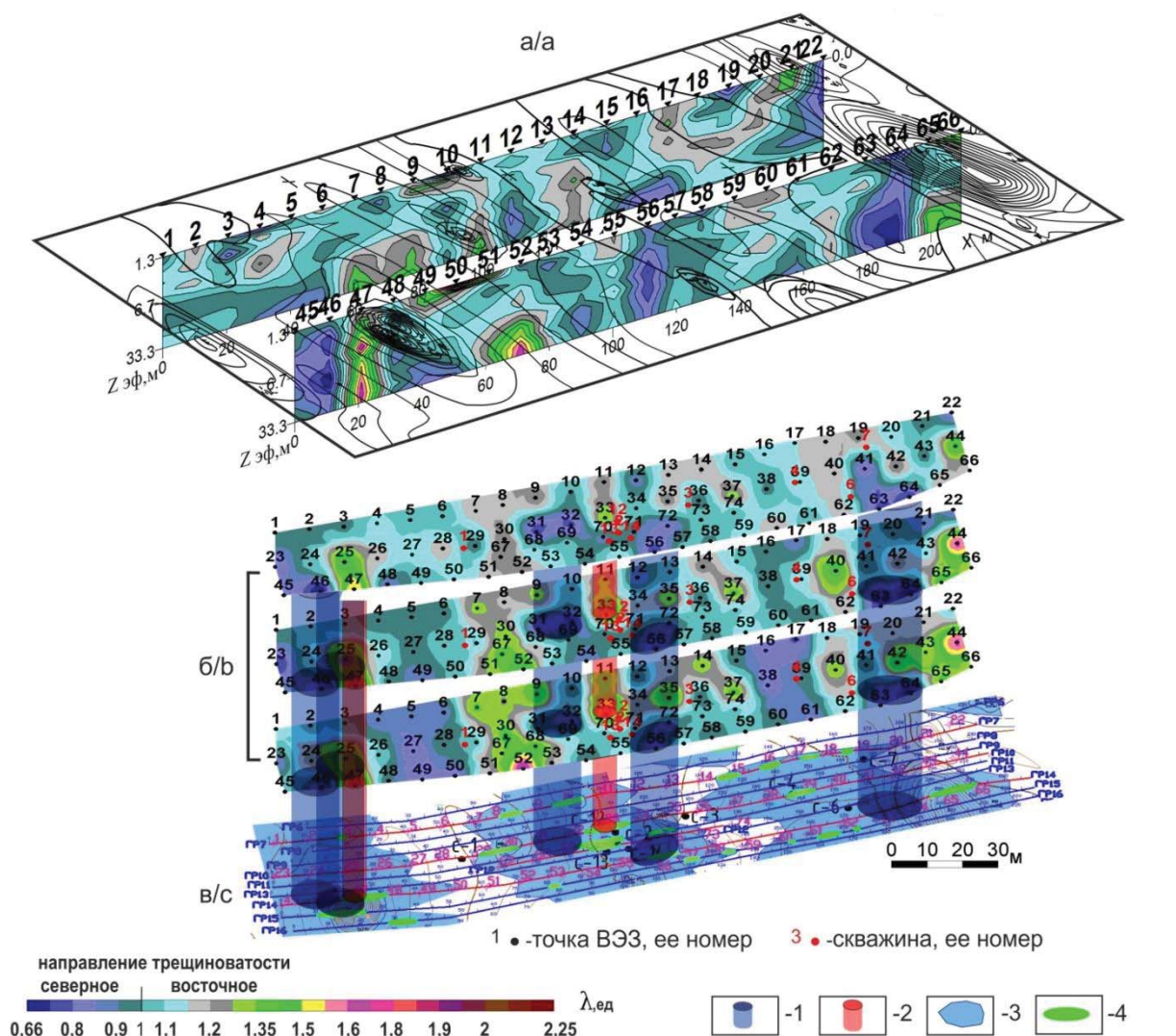


Рис. 6. Проекция отображения коэффициента анизотропии в различных плоскостях относительно поверхностных форм рельефа (а, б) и карта районирования карстово-суффозионной опасности (в) (1, 2 – области аномально низких и высоких значений коэффициента анизотропии; 3, 4 – зоны повышенной трещиноватости и разуплотнения пород)

Fig. 6. Projections of the anisotropy coefficient in various planes relative to surface relief forms (a, b) and the zoning map of karst-suffusion hazard (c) (1, 2 – areas of abnormally low and high values of the anisotropy coefficient; 3, 4 – zones of increased fracturing and decompression of rocks)



В ходе анализа анизотропных свойств выявлено, что диапазон изменений фоновых значений находится в интервале от 0,8 до 1,2 единиц. На отображаемых проекциях отчётливо прослеживаются закономерности аномального распределения коэффициента анизотропии.

Наименьшие значения коэффициента сосредоточены в центральной части и на периферии исследуемого массива пород. Выделенные области аномально пониженных значений указывают на преобладание трещиноватости в северном направлении. Кроме того, отмечается наличие локальных аномальных зон повышенной анизотропии на различных эффективных глубинах.

Комплексный анализ геофизических данных и результатов заверочного бурения позволил выполнить районирование и оконтурить потенциальные области для развития опасных карстово-суффозионных процессов (рис. 6, в). Конфигурация выделенных зон разуплотнения в совокупности с площадным изменением электрических и анизотропных свойств карстующихся отложений свидетельствует о преобладании зон трещиноватости субмеридионального направления, связанных с нарушением сплошности пород. Необходимо подчеркнуть, что вскрытые полости имеют корреляцию с местоположением аномальных зон анизотропии, сопровождающихся инверсией «знака», то есть наличием трещиноватости в двух направлениях. Дан-

ный факт указывает на возможность использования комплексных параметров для осуществления прогнозных оценок и ранжирования зон риска.

#### Заключение

Таким образом, в результате проведённых исследований рассмотрен подход для оценки и районирования карстологической опасности и активности суффозионных процессов на территориях, подверженных риску их возникновения. Основные принципы, рассмотренные выше, базируются на численном моделировании электрических характеристик в трёхмерных неоднородных средах и натуральных наблюдениях, выполняемых по нескольким азимутальным наблюдениям. Полученные данные указывают на принципиальную возможность выделения ослабленных зон и могут быть использованы как для теоретических расчётов прогнозируемых провалов, так и для выбора защитных мероприятий по укреплению пород или проектных решений [23].

*Авторы выражают благодарность коллективу ООО НИИППИД «Недра» за помощь в проведении экспериментальных исследований.*

*Исследования выполнены при финансовой поддержке Пермского научно-образовательного центра «Рациональное недропользование», 2021 г.*

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Болгаров А.Г., Меховников А.Г., Зайчикова Г.А. Геофизические методы при инженерно-геологических изысканиях на объектах гражданского и промышленного строительства (на примере г. Уфы) // Картоажник. – 2021. – № 5 (311). – С. 52–61.
2. Хоменко В.П., Криночкина О.К. Карстово-суффозионно-обвальное провалообразование и оценка его опасности для зданий и сооружений // Геоэкология. Инженерная геология, гидрогеология, геокриология. – 2022. – № 1. – С. 20–29.
3. Special issue on geoelectrical monitoring Foreward / R. Supper, J. Chambers, P. Tsourlos, J.H. Kim // Near Surface Geophysics. – 2014. – № 12 (1). – P. 1–3.
4. Geophysical techniques for monitoring carbonate karstic rocks / M. Guerriero, L. Capozzoli, G.D. Martino, V. Giampaolo, E. Rizzo, F. Canora, F. Sdao // Italian Journal of Engineering Geology and Environment. – 2019. – October. – P. 59–65.
5. Оценка карстовой опасности с применением геофизических методов в условиях складчатой зоны (на примере окрестностей г. Кентау, Казахстан) / Е.В. Дробинина, С.В. Щербakov, Д.Р. Золотарев и др. // Известия Уральского государственного горного университета. – 2022. – № 1 (65). – С. 28–45.
6. Капустин В.В., Истратов В.А., Бобачев А.А. Возможности комплекса методов скважинной сейсмоакустики и электрометрии при оценке закарстованности и суффозионной неустойчивости грунтов на застроенных территориях // Инженерные изыскания. – 2013. – № 5. – С. 72–77.
7. Татаркин А.В. Оценка системы «фундамент – грунтовое основание» // Геотехника. – 2019. – Т. XI. – № 3. – С. 52–62.
8. Аникеев А.В. Изучение карстово-суффозионных провалов на моделях из термопластических материалов // Геоэкология. Инженерная геология, гидрогеология, геокриология. – 2008. – № 5. – С. 420–435.
9. Gołębowski T., Jarońska E. Application of GPR and ERT methods for recognizing of gypsum deposits in urban areas // Acta Geophysica. – 2019. – October. – P. 12–28.
10. ERT-based investigation of a sinkhole in Greene County, Missouri / S.T. Kidanu, E.V. Torgashov, A.V. Varnavina, N.L. Anderson // AIMS Geosciences. – 2016. – V. 2. – P. 99–115.
11. Опыт геофизических исследований карста в Крыму / Г.Н. Амеличев, Г.В. Самохин, С.В. Токарев и др. // Ученые записки Крымского федерального университета имени В.И. Вернадского. География. Геология. – 2021. – Т. 7. – № 3. – С. 292–303.
12. Application of geophysical methods in the study of karst / S. Vyzhva, V. Onyshchuk, I. Onyshchuk, M. Reva, O. Shabaturova // Conference proceedings, geoinformatics: Theoretical and applied aspects. – Kyiv: Taras Shevchenko National University of Kyiv, 2020. – P. 1–5.
13. Methodological principles of geophysical studies of karst dangerous territories / S. Vyzhva, V. Onyshchuk, M. Reva, O. Shabaturova // Visnyk of Taras Shevchenko National University of Kyiv. Geology. – 2021. – V. 1 (92). – P. 24–34.
14. Multimethod geophysical investigation in karst areas: case studies from Silesia, Poland / I. Stan-Kłeczek, J. Pierwoła, A. Marciniak, K. Sutkowska, R. Tomaszewska // Bulletin of Engineering Geology and the Environment. – 2022. – V. 81. – P. 6–8.
15. Application of electrical resistivity method in steeply dipping karst terrane / M. Myat, A. Wamweya, O. Kavin, N. Anderson, J. Robison // Sinkholes and the engineering and environmental impacts of karst (GSP 183): Proceedings of 11th multidisciplinary Conference. – Tallahassee: American Society of Civil Engineers, 2008. – P. 91–97.
16. Моделирование проявления карстово-суффозионных провалов методом сопротивлений / В.А. Шевнин, П.К. Кастильянос, К.В. Кривошея, А.М. Павлова, А.А. Рыжов, А.А. Бобачев // Инженерная геофизика-2013: X международная научно-практическая конференция и выставка. – Геленджик, 2013. – С. 1–10.
17. Татаркин А.В., Гилева М.И., Филимончиков А.А. К вопросу определения удельного электрического сопротивления дисперсных грунтов в лабораторных условиях // Вестник Пермского университета. Геология. – 2014. – № 1 (22). – С. 44–48.
18. Програма трехмерной интерпретации данных метода сопротивлений и вызванной поляризации (наземный, скважинный и акваторный варианты) ZONDRES3D // Zond-geo.com. 2022. URL: <http://zond-geo.com/zfiles/Zondres3d.zip> (дата обращения 23.05.2022).
19. Матвеев Б.К., Татаркин А.В. Геофизические исследования карста и подземных вод в НУБ «Предуралье» // Геология и полезные ископаемые Западного Урала: Конференция. –

- Пермь: Пермский государственный университет, 1997. – С. 178–179.
20. Геоэлектрические исследования процессов подготовки провалов грунта / Е.Н. Волкова, П.А. Казначеев, А.Н. Камшилин, В.В. Попов // Геофизические исследования. – 2013. – Т. 14. – № 3. – С. 64–79.
21. Yeboah A., Whitman D. Geophysical flow analysis of anisotropy in a karst system: cases of snapper creek municipal well field, Miami // South Central Section GSA 48th Annual Meeting. – Fayetteville, 2014. – P. 77–79.
22. Шувалов В.М. Комплексное применение методов геофизики при решении задач по оценке местоположения, глубины залегания и формы локальных неоднородностей // Вестник Пермского университета. Геология. – 2012. – № 4 (17). – С. 63–67.
23. Хоменко В.П., Крашенинников В.С. Противокарстовая защита и признаки подготовки провалообразования // Промышленное и гражданское строительство. – 2020. – № 9. – С. 54–58.

Поступила 06.06.2022 г.  
Прошла рецензирование 10.07.2022 г.

#### Информация об авторах

**Татаркин А.В.**, доктор технических наук, профессор кафедры инженерной геологии и охраны недр геологического факультета Пермского государственного национального исследовательского университета.

**Красильников П.А.**, доктор геолого-минералогических наук, декан геологического факультета Пермского государственного национального исследовательского университета.

**Мещерякова О.Ю.**, кандидат технических наук, заместитель декана геологического факультета Пермского государственного национального исследовательского университета.

**Ермаков Д.В.**, начальник отдела охраны окружающей среды ООО НИПППД «Недра».



UDC 550.837:551.435.8:624.13.3

## TO ASSESS THE DANGER OF KARST-SUFFUSION PROCESSES

Alexey V. Tatarkin<sup>1</sup>,  
vsto08@mail.ru

Pavel A. Krasilnikov<sup>2</sup>,  
geolnauka@gmail.com

Olga Yu. Meshcheryakova<sup>3</sup>,  
olgam.psu@gmail.com

Denis V. Ermakov<sup>4</sup>,  
ermakov@nedra.perm.ru

<sup>1</sup> Perm State National Research University,  
15, Bukirev street, Perm, 614068, Russia.

<sup>2</sup> LLC NIPPPPD «Nedra»,  
13a, L. Shatrov street, Perm, 614064, Russia.

**The relevance** of the research is caused by the search for predictive parameters and criteria for changes in the electrical properties of rocks associated with the dissolution and removal of rock particles in areas with the spread of deposits of carbonate-sulfate composition. In addition, the use of geophysical methods with a one-sided approach to restoring the physical properties of a geological section does not always give an unambiguous assessment of the results obtained. The above facts indicate the need to search for and evaluate the possibilities of integrated solutions to increase the unambiguity of the interpretation of geophysical data and the reliability of forecast calculations. **The purpose** of the work consists in the development of scientific and methodological foundations of a method for assessing the danger of karst-suffusion processes.

**The object** is represented by an array of rocks in the area of karst-suffusion processes.

**The methods** used to achieve this goal are based on numerical modeling of electric fields, field observations by vertical electric sounding in various azimuthal directions, combined analysis of geological and geophysical data and laboratory studies. The AMS-1 hardware complex and the ZondRes3D, «Zond» software systems were used as tools. The study of electrical resistivity on rock samples was carried out using an original technique without disturbing the structure and humidity of monoliths.

**The research results** reflect a comprehensive analysis of geological and geophysical data, including theoretical calculations in three-dimensional inhomogeneous media, field experiment and verification of the forecast model. Based on a priori information and laboratory data on the properties of the medium, a physico-geological model with weakened areas associated with the removal and dissolution of rocks was compiled. The revealed patterns are the basis for zoning on geometrization of potential areas of development of dangerous karst-suffusion processes and further selection of protective measures to strengthen the rock mass or design solutions.

### Key words:

hazardous processes, modeling, karst, suffusion, physical properties, electrical exploration.

*The research was supported by the Perm Research and Education Centre for Rational Use of Subsoil, 2021.*

### REFERENCES

1. Bolgarov A.G., Mekhovnikov A.G., Zaichikova G.A. Geophysical methods for engineering and geological surveys at civil and industrial construction sites (on the example of Ufa). *Logger*, 2021, № 5 (311), pp. 52–61. In Rus.
2. Khomenko V.P., Krinochkina O.K. Karst-suffusion-collapse sinkhole formation and assessment its dangers for buildings and structures. *Geoecology. Engineering geology, hydrogeology, geocryology*, 2022, no. 1, pp. 20–29. In Rus.
3. Supper R., Chambers J., Tsourlos P., Kim J.H. Special issue on geoelectrical monitoring Foreward. *Near Surface Geophysics*, 2014, no. 12 (1), pp. 1–3.
4. Guerriero M., Capozzoli L., Martino G.D., Giampaolo V., Rizzo E., Canora F., Sdao F. Geophysical techniques for monitoring carbonate karstic rocks. *Italian Journal of Engineering Geology and Environment*, 2019, October, pp. 59–65.
5. Drobina E.V., Shcherbakov S.V., Zolotarev D.R. Assessment of karst hazard using geophysical methods in the conditions of a folded zone (on the example of the environs of Kentau, Kazakhstan). *Izvestiya Ural State Mining University*, 2022, no. 1 (65), pp. 28–45. In Rus.
6. Kapustin V.V., Istratov V.A., Bobachev A.A. Possibilities of a complex of methods of borehole seismoacoustics and electrometry in assessing the karstiness and suffusion instability of soils in built-up areas. *Engineering surveys*, 2013, no. 5, pp. 72–77.
7. Tatarkin A.V. Evaluation of the system «foundation – ground foundation». *Geotechnics*, 2019, vol. XI, no. 3, pp. 52–62. In Rus.
8. Anikeev A.V. Study of karst-suffusion dips on models made of thermoplastic materials. *Geoecology. Engineering geology, hydrogeology, geocryology*, 2008, no. 5, pp. 420–435. In Rus.
9. Gołębowski T., Jarośnińska E. Application of GPR and ERT methods for recognizing of gypsum deposits in urban areas. *Acta Geophysica*, 2019, October, pp. 12–28.
10. Kidanu S.T., Torgashov E.V., Varnavina A.V., Anderson N.L. ERT-based investigation of a sinkhole in Greene County, Missouri. *AIMS Geosciences*, 2016, vol. 2, pp. 99–115.
11. Amelichev G.N., Samokhin G.V., Tokarev S.V. Experience of geophysical research of karst in Crimea. *Scientific notes of the V.I. Vernadsky Crimean Federal University. Geography. Geology*, 2021, vol. 7, no. 3, pp. 292–303. In Rus.
12. Vyzhva S., Onyshchuk V., Onyshchuk I., Reva M., Shabaturova O. Application of geophysical methods in the study of karst. *Conference proceedings, geoinformatics: Theoretical and applied aspects*. Kyiv, Taras Shevchenko National University of Kyiv Publ., 2020. pp. 1–5.
13. Vyzhva S., Onyshchuk V., Reva M., Shabaturova O. Methodological principles of geophysical studies of karst dangerous territories.

- Visnyk of Taras Shevchenko National University of Kyiv. Geology*, 2021, vol. 1 (92), pp. 24–34.
14. Stan-Kleczek I., Pierwoła J., Marciniak A., Sutkowska K., Tomaszewska R. Multimethod geophysical investigation in karst areas: case studies from Silesia, Poland. *Bulletin of Engineering Geology and the Environment*, 2022, vol. 81, pp. 6–8.
  15. Myat M., Wamweya A., Kovin O., Anderson N., Robison J. Application of electrical resistivity method in steeply dipping karst terrane. *Proceedings of 11<sup>th</sup> multidisciplinary Conference. Sinkholes and the engineering and environmental impacts of karst (GSP 183)*. Tallahassee, American Society of Civil Engineers, 2008. pp. 91–97.
  16. Shevchin V.A., Castellanos P.K., Krivosheya K.V., Pavlova A.M., Ryzhov A.A., Bobachev A.A. Modelirovanie proyavleniya karstovo-suffuzionnykh provalov metodom soprotivleniy [Modeling of karst-suffusion dips by the method of resistances]. *Inzhenernaya geofizika-2013. X mezhdunarodnaya nauchno-prakticheskaya konferentsiya i vystavka [X International scientific and practical conference and exhibition. Engineering Geophysics-2013]*. Gelandzhik, 2013. pp. 1–10.
  17. Tatarkin A.V., Gileva M.I., Filimonchikov A.A. On the issue of determining the electrical resistivity of dispersed soils in laboratory conditions. *Bulletin of the Perm University. Geology*, 2014, no. 1 (22), pp. 44–48. In Rus.
  18. *Program of three-dimensional interpretation of the data of the method of resistances and induced polarization (ground, borehole and aquator variants) ZONDRES3D*. Available at: <http://zond-geo.com/zfiles/Zondres3d.zip> (accessed 23 May 2022).
  19. Matveev B.K., Tatarkin A.V. Geofizicheskie issledovaniya karsta i podzemnykh vod v NUB «Preduralie» [Geophysical studies of the karst and groundwater in the NUB «Preduralie»]. *Geologiya i poleznye iskopaemye Zapadnogo Urala. Konferentsiya [Conference. Geology and minerals of the Western Urals]*. Perm, Perm State University, 1997. pp. 178–179.
  20. Volkova E.N., Kaznacheev P.A., Kamshilin A.N., Popov V.V. Geoelectric studies of the processes of preparation of sinkholes. *Geophysical research*, 2013, vol. 14, no. 3, pp. 64–79. In Rus.
  21. Yeboah A., Whitman D. Geophysical flow analysis of anisotropy in a karst system: cases of snapper creek municipal well field, Miami. *South Central Section GSA 48th Annual Meeting*. Fayetteville, 2014. pp. 77–79.
  22. Shuvalov V.M. Complex application of geophysics methods in solving problems of estimating the location, depth and shape of local inhomogeneities. *Bulletin of Perm University. Geology*, 2012, no. 4 (17), pp. 63–67. In Rus.
  23. Khomenko V.P., Krashenninnikov V.S. Anti-karst protection and signs of failure formation preparation. *Industrial and civil construction*, 2020, no. 9, pp. 54–58. In Rus.

Received: 6 June 2022.  
Reviewed: 10 July 2022.

#### Information about the authors

**Alexey V. Tatarkin**, Dr. Sc., professor, Perm State National Research University.

**Pavel A. Krasilnikov**, Dr. S., Dean of the Geological Faculty, Perm State National Research University.

**Olga Yu. Meshcheryakova**, Cand. Sc., Deputy Dean of the Geological Faculty, Perm State National Research University.

**Denis V. Ermakov**, Head of the Environmental Protection Department, LLC NIPPPD «Nedra».

УДК 549.211:549.057

## ОБ АГРЕГИРОВАНИИ ИЗОМОРФНОЙ ПРИМЕСИ АЗОТА В СИНТЕТИЧЕСКИХ АЛМАЗАХ (СИСТЕМА Fe-Ni-C)

Бабич Юрий Васильевич<sup>1</sup>,  
babich@igm.nsc.ru

Жимулев Егор Игоревич<sup>1</sup>,  
ezhimulev@igm.nsc.ru

Чепуров Алексей Анатольевич<sup>1</sup>,  
acheurov@igm.nsc.ru

<sup>1</sup> Институт геологии и минералогии им. В.С. Соболева СО РАН,  
Россия, 630090, г. Новосибирск, пр. Коптюга, 3.

**Актуальность** исследования определяется значимостью азота как основной структурной примеси в алмазе, содержание и форма которой оказывают влияние на свойства алмаза, его цветовые характеристики и используются при анализе температурно-временных условия природного алмазообразования.

**Цель:** исследование особенностей агрегирования азота в синтетических алмазах, выращенных в системе Fe-Ni-C.

**Объект и методы.** Изученный образец синтетического монокристалла алмаза получен методом температурного градиента при высоких  $P$ ,  $T$ -параметрах в поле стабильности на многопуансонном аппарате высокого давления типа «разрезная сфера». Определение азота и степени его агрегации проводили с помощью ИК-Фурье спектрометра Bruker Vertex-70 с микроскопом Nuregon 2000. При анализе спектральных данных использовалась специализированная программа обработки ИК-спектров алмаза IR'nDi-Module.

**Результаты и выводы.** Проведено изучение характера образования парных ассоциатов изоморфной примеси азота (степени агрегирования) в октаэдрических секторах роста синтетического алмаза, полученного в металл-углеродной системе с высоким содержанием никеля (металл-растворитель  $Fe_{20}Ni_{80}$  ат. %). После постепенного достижения полной агрегации азота со стороны внешних областей кристалла зафиксирована прогрессирующая обратная деагрегация азота в его внутренних, ранее образованных, зонах. Установленный факт не может быть объяснен в рамках известной однонаправленной кинетики процесса агрегирования азота и указывает на наличие дополнительного фактора, влияющего на данную реакцию в алмазах с повышенным содержанием сопутствующей примеси никеля. Впервые высказано предположение о возможности деагрегации азота, инициированной перераспределением азота из азотных ассоциатов (A-дефектов) в никель-азотные комплексы (NE-центры).

### Ключевые слова:

алмаз, примеси, дефекты, азот, агрегирование.

### Введение

Количество и форма структурного азота в алмазе оказывает значительное влияние на физические и геммологические свойства алмаза, а кинетика его преобразования широко используется при термохронметрии условий природного алмазообразования [1–4]. При этом известно, что изоморфная примесь азота входит в структуру алмаза в дисперсной форме, в виде С-дефектов (одиночных замещающих углерод атомов). Впоследствии С-дефекты могут агрегировать, т. е. диффузионно трансформироваться с формированием ряда азотных ассоциатов в структуре алмаза [5, 6]. В частности, в синтетических алмазах, выращиваемых в поле стабильности при высоких давлениях и температурах, наблюдается образование двухатомных А-дефектов (два атома азота в соседних замещающих углерод положениях), формальная кинетика формирования которых достаточно хорошо изучена [7]. В октаэдрических алмазах, полученных в металл-углеродных системах с переходными металлами (Ni, Co), агрегирование азота происходит быстрее, что уже при обычных ростовых температурах приводит к формированию кинетического профиля реакции  $C \Rightarrow A$  трансформации, когда степень агрегирования (процентная доля А-дефектов) минимальна в припо-

верхностных зонах кристалла и постепенно возрастает в более глубоких его областях [8]. Однако в ряде случаев в алмазах фиксируются отклонения от данной тенденции, выражающиеся в обратном снижении степени агрегирования азота во внутренних областях кристаллов относительно внешних. Поскольку такие экспериментальные факты могут свидетельствовать о возможных нарушениях хода процесса  $C \Rightarrow A$  агрегирования азота, в данной работе один из таких образцов алмаза был исследован более подробно с целью верификации и фиксации данных наблюдений.

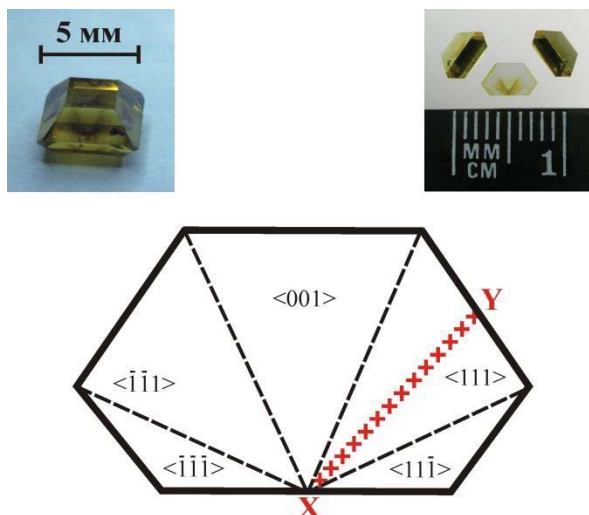
### Методика

Исследованная пластина алмаза (рис. 1) вырезана из монокристалла, полученного методом температурного градиента на многопуансонном аппарате высокого давления типа «разрезная сфера» в металл-углеродной системе Fe-Ni-C (металл-растворитель  $Fe_{20}Ni_{80}$  ат. %) при  $P=6,0-6,2$  ГПа,  $T=1435$  °С за 133 часа. Микроскопическое изучение образца проводилось на микроскопах МБС-10, Биолом-М. Изучение состава азотных дефектов проводили на ИК-Фурье спектрометре Bruker Vertex-70 с микроскопом Nuregon 2000 в соответствии с государственным заданием ИГМ СО РАН. Спектры поглощения записы-

вались локально с точностью позиционирования 1 мкм при использовании квадратной диафрагмы размером 50\*50 мкм и со спектральным разрешением 1 см<sup>-1</sup>. Их анализ проводили с помощью специализированной программы обработки ИК-спектров алмаза IR'nDi-Module [9]. При конечных расчетах абсолютных концентраций азотных дефектов в программе использовались переходные коэффициенты из работ [10–12].

#### Экспериментальные результаты и обсуждение

Исходный монокристалл алмаза имел кубоктаэдрический габитус с максимальным линейным размером около 5 мм при весе 0,78 карат (рис. 1). В сечении вырезанной по плоскости ромбододекаэдра пластины (толщиной 0,5 мм), проходящем вертикально через исходный центр роста, присутствуют один кубический и четыре октаэдрических сектора роста, которые, судя по параллельным граням зональности, фиксируемой микроскопически, сформированы обычным послойным тангенциальным механизмом роста.

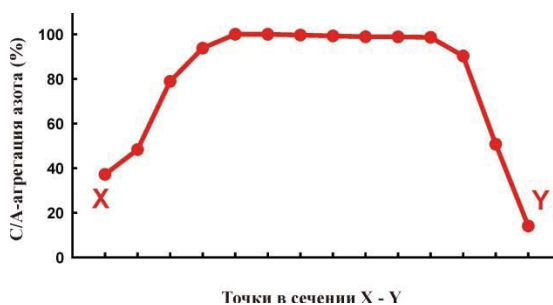


**Рис. 1.** Схема секториального строения пластины алмаза и расположения анализированного сечения в октаэдрическом секторе роста  $\langle 111 \rangle$ . Пунктиры – границы секторов роста, X – место расположения заправки. Расстояние между точками записи ИК-спектров в сечении X–Y составляет 200 мкм. На верхних боковых врезках показан монокристалл алмаза в исходном (слева) и разрезанном (справа) виде

**Fig. 1.** Scheme of the sector structure of the diamond plate with location of analyzed section in octahedral growth sector  $\langle 111 \rangle$ . Dashed lines are the boundaries of growth sectors, X is the point of seed location. The distance between the recording points of the IR spectra in the X–Y section is 200 microns. The upper side panels show a diamond single crystal in its original (left) and cut (right) views

По ИК-данным максимальное суммарное содержание азотных дефектов в изученной пластине алмаза составляет около 280 ppm. В кубическом секторе ро-

ста содержание азота менее 100 ppm, и он находится только в неагрегированной форме – в виде C-дефектов. В октаэдрических секторах роста наблюдается более широкое разнообразие состава и содержания азотных дефектов: максимальная концентрация C-дефектов доходит до 165 ppm, A-дефектов – до 265 ppm, также фиксируется фоновое присутствие азота в форме C+ (одиночных замещающих углерод атомов в зарядовом состоянии +1), в среднем 10–15 ppm. Последняя форма азота свидетельствует о присутствии в структуре алмаза ионов переходных металлов (в данном случае Ni<sup>+</sup>) [13], для которых азот в такой форме выступает в качестве объемного зарядового компенсатора [14, 15]. Это делает такой азот инертным, в частности, в отношении процесса агрегирования [16]. Степень агрегации азота в октаэдрических секторах данного кристалла также весьма вариабельна и в некоторых зонах достигает 100 %. Наблюдаемые в кристалле различия межсекториального распределения в составе азотных дефектов объясняются известной тенденцией перераспределения азота из кубических секторов в октаэдрические с повышением температуры роста [17] и более высокой скоростью агрегирования азота в октаэдрических секторах роста [7, 18]. И хотя в целом описанные общие особенности по составу и содержанию азотных дефектов достаточно типичны для подобных монокристаллов [8], в данном кристалле отмечается необычный характер изменения степени агрегирования азота. Рассмотрим подробнее вариацию степени агрегации азота на примере одного из наиболее развитых октаэдрических секторов роста – сектора  $\langle 111 \rangle$ . Подчеркнем при этом, что все отмеченные для данного сектора особенности, с несколько разной степенью выраженности, присутствуют во всех октаэдрических секторах пластины.

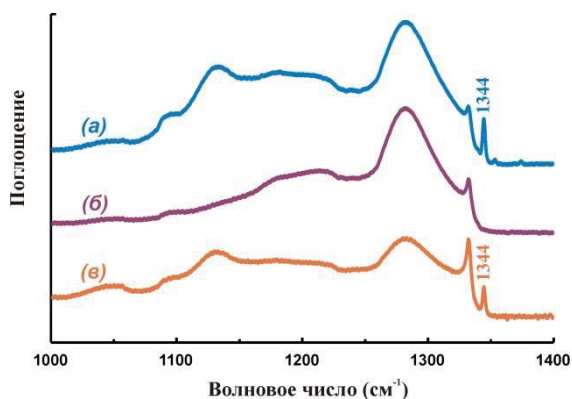


**Рис. 2.** Степень C/A-агрегирования азота в сечении X–Y октаэдрического сектора роста  $\langle 111 \rangle$  пластины монокристалла алмаза. Точки анализа равномерно расположены в сечении от внутренней околозаправочной (X) области к внешней (Y) его поверхности (рис. 1)

**Fig. 2.** Degree of C/A aggregation of nitrogen in the X–Y section of the  $\langle 111 \rangle$  octahedral growth sector of a diamond plate. The points of analysis are evenly spaced in the section from the inner near-seed (X) region to the outer (Y) surface (Fig. 1)

На рис. 2 показана определенная по ИК-данным степень C/A-агрегирования азота по центральному сечению октаэдрического сектора роста  $\langle 111 \rangle$ .





**Рис. 3.** Однофононные области ИК-спектров для трех точек различных частей исследованного сечения X–Y в образце алмаза (спектры разнесены по вертикали для наглядности, положение сечения показано на рис. 1): а) спектр из внешней части сечения (вторая точка со стороны Y), степень агрегации азота 51 %; б) спектр из средней части сечения, степень агрегации 100 %; в) спектр из внутренней части сечения (вторая точка со стороны X), степень агрегации азота 48 %. Хорошо видно, что неагрегированный азот в форме С-центров, индицируемый острым пиком при 1344 см<sup>-1</sup>, присутствует в спектре из внешней области сектора роста, исчезает в спектре из его средней части и вновь появляется в спектре внутренней части сектора

**Fig. 3.** One-phonon regions of IR spectra for three points of different parts of the studied diamond cross section X–Y (the spectra are vertically spaced for clarity, the cross section position is shown in Fig. 1): а) spectrum from the outer part of the cross section (second point from the Y side), the degree of nitrogen aggregation is 51 %; б) spectrum from the middle part of the section, degree of aggregation is 100 %; в) spectrum from the inner part of the section (the second point from the X side), the degree of nitrogen aggregation is 48 %. It can be seen that non-aggregated nitrogen in the form of C-centers, indicated by a sharp peak at 1344 cm<sup>-1</sup>, is present in the spectrum from the outer region of the growth sector, disappears in the spectrum from its middle part, and reappears in the spectrum of the inner part of the sector

Запись ИК-спектров данного линейного сечения проведена поточечно с шагом 200 мкм. Как видно из рисунка, области непосредственно у внешней поверхности сектора (со стороны Y на рис. 2) имеют наименьшую степень агрегирования азота. Это соответствует имеющимся представлениям о вхождении азота в структуру алмаза только в виде одиночных замещающих углерод атомов азота в форме С-дефектов. С переходом к точкам из более внутренних областей кристалла, находившимся все более продолжительное время при ростовых условиях, мы наблюдаем увеличение степени агрегирования, что отражает прогресс реакции перехода одиночных С-дефектов в парные А-дефекты за время роста кристалла. Как следует из графика (рис. 2), данный процесс довольно быстро достигает 100 % (С-дефекты исчезают) и сохраняется на этом предельном уровне

во всей средней части сектора роста. Эта часть описанного кинетического профиля реакции агрегирования хорошо согласуется с характером расчетных профилей, моделируемых для выращенных алмазов [19] на основе известных данных по кинетике реакции C=>A агрегирования [7]. Однако самая внутренняя часть сектора (точки со стороны X на рис. 2) демонстрирует обратное снижение степени агрегирования азота от 100 % до примерно 40 % с понижением и суммарной концентрации азота. Максимальное содержание С-дефектов в этой области весьма значимо и достигает 50 ppm. При этом данная тенденция плавно прогрессирует в направлении к исходному центру роста, т. е. с увеличением времени нахождения соответствующей области при высоких P, T-параметрах. Для спектральной иллюстрации наблюдаемых изменений на рис. 3 представлены однофононные фрагменты ИК-спектров, записанные в различных частях исследованного сечения сектора роста. На рисунке хорошо видно, что острый пик при 1344 см<sup>-1</sup>, относящийся к азоту в форме одиночных С-центров, присутствует в спектре из внешней области сектора роста, исчезает в спектре из его высокоагрегированной средней части и вновь появляется в спектре внутренней части сектора. Очевидно, что отмеченное появление в спектрах внутренней области кристалла пика поглощения С-дефектов и, соответственно, снижение степени агрегирования азота не являются следствием каких-либо нелинейных искажений спектров в этой области кристалла. Также при записи спектров исключается возможность захвата областей смежных секторов роста. В этом позволяет быть уверенным выбранное расположение сечения в средней части сектора, малый размер диафрагмы при ИК-съемке и отсутствие наклонных межсекториальных границ в пластине с данной ориентацией.

Таким образом, во внутренней части кристалла алмаза достоверно фиксируется прогрессирующая область более низкой степени агрегации азота относительно более внешних его частей. Учитывая непрерывность ростового процесса, данный факт не может быть объяснен с точки зрения температурно-временных параметров и известной кинетики C=>A агрегирования азота, что предполагает наличие дополнительного фактора или процесса, приводящего к появлению дисперсного азота в форме С-дефектов. При этом, как уже указывалось выше, в кристаллах алмаза, выращиваемых в никельсодержащих системах, в структуре также присутствует никель. Изначально, при росте, он входит в решетку алмаза в виде замещающих углерод атомов (центр W8), переходя затем в положение двойной полувакансии (центр NE4), и постепенно захватывает в своем окружении атомы азота [20]. Таким образом, одновременно с агрегированием азота в структуре алмаза формируется целый ряд никелевых центров с постепенно увеличивающимся содержанием азота (в скобках – количество атомов азота в центре): W8(0) => NE4(0) => NE7(1) => NE1(2), NE5(2) => NE2(3), NE3(3) => NE8(4) [21, 22]. Причем именно внутренние области таких кристаллов алмаза характеризуются повышенной концентрацией никель-

азотных центров с наиболее высоким в них содержанием азота [21]. Это позволяет высказать предположение, что в алмазах данного типа может инициироваться процесс перераспределения уже агрегированного азота (в данном случае из А-дефектов) в НЕ-комплексы. При этом происходит деградация части А-дефектов с появлением одиночных С-дефектов, что и приводит к наблюдаемому по ИК-данным снижению как степени агрегации, так и общей концентрации азота. Вполне вероятно, что именно сочетание повышенной концентрации никеля в структуре алмаза и относительно быстрая агрегация азота, характерные для алмазов, выращенных в системах с высоким содержанием переходных металлов, способствуют инициированию такого перераспределения азота. Сделанное предположение, вполне согласующееся с наблюдаемыми особенностями такого типа алмазов, все же требует дальнейших исследований для своего подтверждения и анализа механизмов реализации этого процесса. Возможно, это будет первым экспериментальным фактом относительно низкотемпературной деагрегации азота в форме А-дефектов, ранее установленной только при значительном повышении температуры – в области 2000 °С и выше [23]. Также отметим, что при подтверждении возможности перераспределения азота из азотных ассоциатов в азотно-никелевые комплексы в синтетических кристаллах эти данные и процессы могут иметь значение и для природных азотсодержащих алмазов, например, ультраосновного парагенезиса, характеризующихся относительно повышенным содержанием сопутствующей структурной примеси никеля [24].

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Speich L., Kohn S.C. QUIDDIT – quantification of infrared active defects in diamond and inferred temperatures // *Computers and Geosciences*. – 2020. – V. 144. – P. 1–7. DOI: 10.1016/j.cageo.2020.104558
2. Spectroscopic features of natural and HPHT treated yellow diamonds / M. Yan Lai, C.M. Breeding, T. Stachel, R.A. Stern // *Diam. Relat. Mater.* – 2020. – V. 101. – P. 1–9. DOI: 10.1016/j.diamond.2019.107642
3. Об образовании малоазотных алмазов в системе Fe–C–S / Е.И. Жимулев, Ю.В. Бабич, З.А. Карпович, А.И. Чепуров, Н.П. Похиленко // Доклады Российской Академии Наук. Науки о Земле. – 2020. – Т. 494. – № 1. – С. 39–42.
4. Nitrogen concentration and anisotropic effects on the EPR spectra of natural diamonds / I. Litvak, H. Cohen, Y. Anker, S. Ruthstein // *CrystEngComm*. – 2021. – V. 23. – Iss. 19. – P. 3453–3459. DOI: 10.1039/D0CE01653E
5. Chrenko R.M., Tuft R.E., Strong H.M. Transformation of the state of nitrogen in diamond // *Nature*. – 1977. – V. 270. – Iss. 5633. – P. 141–144.
6. Evans T., Qi Z. The kinetics of aggregation of nitrogen atoms in diamond // *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*. – 1982. – V. 381. – Iss. 1780. – P. 159–178.
7. Taylor W.R., Canil D., Milledge H.J. Kinetics of Ib to IaA nitrogen aggregation in diamond // *Geochimica et Cosmochimica Acta*. – 1996. – V. 60. – Iss. 23. – P. 4725–4733.
8. Babich Y.V., Feigelson B.N., Chepurov A.I. Distribution of H1a-centers in as-grown diamonds of Fe-Ni-C system: FTIR-mapping study // *Diam. Relat. Mater.* – 2016. – V. 69. – P. 8–12.
9. Бабич Ю.В., Бабич И.Ю. Пакетная обработка ИК-спектров алмаза для решения минералогическо-геохимических задач // *Геохимия*. – 2012. – Т. 50. – № 8. – С. 794–800.

#### Выводы

1. Методом локальной ИК-Фурье спектроскопии (FTIR, Bruker Vertex-70) проведено изучение вариации образования парных ассоциатов изоморфной примеси азота (агрегирования) в октаэдрических секторах роста синтетических алмазов, выращенных при высоких давлениях и температурах в металл-углеродной системе Fe-Ni-C с высоким содержанием никеля (Fe<sub>20</sub>Ni<sub>80</sub> ат. %).
2. В характере процесса агрегирования азота зафиксирована прогрессирующая обратная деагрегация азота во внутренних, ранее образованных областях монокристалла. Установленный факт не согласуется с имеющимися представлениями и не может быть объяснен в рамках известной однонаправленной кинетики процесса агрегирования азота, что указывает на наличие дополнительного фактора, оказывающего влияние на данную реакцию в алмазе.
3. Впервые высказано предположение о возможности деагрегации азота, инициированной переходом азота из азотных ассоциатов (А-дефектов) в никель-азотные комплексы (НЕ-центры). Реализации такой возможности, вероятно, способствует сочетание повышения концентрации сопутствующей примеси никеля в структуре алмаза с достаточно быстрой начальной агрегацией азота, характерных для алмазов, выращиваемых в системах с высоким содержанием в растворе-расплаве никеля.

*Авторы выражают благодарность Борису Николаевичу Фейгельсону за предоставленный для исследования образец. Алексей Анатольевич Чепуров благодарит за поддержку Российский научный фонд (грант № 21-17-00082).*

10. Boyd S.R., Kiflawi I., Woods G.S. The Relationship between infrared absorption and the A-defect concentration in diamond // *Philosophical Magazine (B)*. – 1994. – V. 69. – Iss. 6. – P. 1149–1153.
11. Infrared absorption by the single nitrogen and A defect centers in diamond / I. Kiflawi, A.E. Mayer, P.M. Spear, J.A. Van Wyk, G.S. Woods // *Philosophical Magazine (B)*. – 1994. – V. 69. – Iss. 6. – P. 1141–1147.
12. On the existence of positively charged single-substitutional nitrogen in diamond / S.C. Lawson, D. Fisher, D.C. Hunt, M.E. Newton // *J. Phys. Condens. Matter*. – 1998. – V. 10. – Iss. 27. – P. 6171–6180.
13. Fourier-transform and continuous-wave EPR studies of nickel in synthetic diamond: site and spin multiplicity / J. Isoya, H. Kanda, J.R. Norris, J. Tang, M.K. Bowman // *Phys. Rev. (B)*. – 1990. – V. 41. – Iss. 7. – P. 3905–3913.
14. Correlation between optical absorption and EPR in high-pressure diamond grown from a nickel solvent catalyst / A.T. Collins, H. Kanda, J. Isoya, C.A.J. Ammerlaan, J.A. van Wyk // *Diam. Relat. Mater.* – 1998. – V. 7. – Iss. 2–5. – P. 333–338.
15. Relationship between electronic states of nickel-containing centers and donor nitrogen in synthetic and natural diamond / V.A. Nadolinny, A.P. Yelissev, O.P. Yuryeva, A. Hofstaltter, B. Meyer, B.N. Feigelson // *Diam. Relat. Mater.* – 1998. – V. 7. – Iss. 10. – P. 1558–1561.
16. Бабич Ю.В., Фейгельсон Б.Н. Особенности объемного распределения азота в форме N<sup>+</sup> в монокристаллах синтетического алмаза // *Неорганические Материалы*. – 2009. – Т. 45. – № 6. – С. 673–677.
17. Difference in nitrogen concentration and aggregation among (111) and (100) growth sectors of large synthetic diamonds / S. Satoh, H. Sumiya, K. Tsuji, S. Yazu // *Science and Technology of New Diamond*. – Tokyo, Terra Scientific Publ., 1990. – P. 351–355.
18. Collins A.T., Kanda H., Burns R.C. The segregation of Ni-related optical centers in the octahedral growth sectors of synthetic dia-

- monds // Philosophical Magazine (B). – 1990. – V. 61. – Iss. 5. – P. 797–810.
19. Бабич Ю.В., Сурков Н.В. Моделирование распределения А-дефектов в кристаллах синтетического алмаза, полученных методом температурного градиента // Неорганические материалы. – 2000. – Т. 36. – № 6. – С. 710–714.
  20. Nadolinny V.A., Yelisseyev A.P. Structure and creature conditions of complex nitrogen-nickel defects in diamonds // Diam. Relat. Mater. – 1994. – V. 3. – P. 1196–1200.
  21. Spectroscopic features due to Ni-related defects in HPHT synthetic diamonds / A. Yelisseyev, V. Nadolinny, B. Feigelson, Yu. Babich // Int. J. of Modern Physics: B, Condensed Matter Physics. – 2002. – V. 16. – Iss. 6–7. – P. 900–905.
  22. Yelisseyev A.P., Kanda H. Optical centers related to 3d transition metals in diamond // New Diamond and Frontier Carbon Technology. – 2007. – V. 17. – Iss. 3. – P. 127–178.
  23. Brozel M.R., Evans T., Stephenson R.F. Partial dissociation of nitrogen aggregates in diamond by high temperature-high pressure treatments // Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences. – 1978. – V. 361. – Iss. 1704. – P. 109–127.
  24. Возможность диагностики парагенезиса алмазов по оптическим характеристикам / В.А. Надолинный, В.П. Афанасьев, Н.П. Похиленко, О.П. Юрьева, А.П. Елисеев, Э.С. Ефимова, А.М. Логвинова // Доклады Академии Наук. – 1995. – Т. 341. – № 4. – С. 516–519.

Поступила 30.03.2022 г.

Прошла рецензирование 06.09.2022 г.

#### Информация об авторах

**Бабич Ю.В.**, кандидат геолого-минералогических наук, старший научный сотрудник Института геологии и минералогии СО РАН им. В.С. Соболева.

**Жимулев Е.И.**, доктор геолого-минералогических наук, старший научный сотрудник Института геологии и минералогии СО РАН им. В.С. Соболева.

**Чепуров А.А.**, доктор геолого-минералогических наук, старший научный сотрудник Института геологии и минералогии СО РАН им. В.С. Соболева.

UDC 549.211:549.057

## ON AGGREGATION OF ISOMORPHOUS NITROGEN IMPURITY IN SYNTHETIC DIAMONDS (SYSTEM Fe-Ni-C)

**Yuri V. Babich<sup>1</sup>,**  
babich@igm.nsc.ru

**Egor I. Zhimulov<sup>1</sup>,**  
ezhimulev@igm.nsc.ru

**Aleksei A. Chepurov<sup>1</sup>,**  
achepurov@igm.nsc.ru

<sup>1</sup> Sobolev Institute of Geology and Mineralogy, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences,  
3, Koptyug avenue, Novosibirsk, 630090, Russia.

*The relevance of the research is determined by the importance of nitrogen as the main structural impurity in diamond, the content and form of which affect the properties of diamond, its color characteristics and are used in the analysis of the temperature-time conditions of natural diamond formation.*

*The purpose of this work is to study the features of nitrogen impurity aggregation in synthetic diamonds grown in the Fe-Ni-C system.*

**Object and methods.** *The studied sample of a synthetic single crystal of diamond was obtained in Fe-Ni-C system by the temperature gradient method at high P, T parameters in the field of stability on a multi-anvil high-pressure apparatus of the «split sphere» type. Determination of nitrogen and the degree of its aggregation were performed using a Bruker Vertex-70 IR Fourier spectrometer with a Hyperion 2000 microscope. When analyzing the spectral data, a specialized program for processing the IR spectra of diamond IR'nDi-Module was used.*

**Results and conclusions.** *The authors have studied the variation in formation of pair associates of isomorphous nitrogen impurity (degree of aggregation) in the octahedral growth sectors of synthetic diamond obtained with a high nickel content in metal-solvent (Fe<sub>20</sub>Ni<sub>80</sub> at. %). After the gradual achievement of complete aggregation of nitrogen in the outer regions of the crystal, a progressive reverse deaggregation of nitrogen was recorded in its internal, previously formed zones. The established fact cannot be explained within the framework of the known unidirectional kinetics of the nitrogen aggregation and indicates the presence of an additional factor affecting this reaction in diamonds with a high content of an accompanying impurity of nickel. The possibility of nitrogen deaggregation initiated by the redistribution of nitrogen from nitrogen associates (A-defects) to nickel-nitrogen complexes (NE-centers) was suggested for the first time.*

### Key words:

diamond, impurities, defects, nitrogen, aggregation.

*The authors are grateful to Boris N. Feigelson for the samples provided for research. Aleksey A. Chepurov appreciates the support of the Russian Science Foundation (grant no. 21-17-00082).*

### REFERENCES

- Speich L., Kohn S.C. QUIDDIT – quantification of infrared active defects in diamond and inferred temperatures. *Computers and Geosciences*, 2020, vol. 144, pp. 1–7. DOI: 10.1016/j.cageo.2020.104558
- YanLai M., Breeding C.M., Stachel T., Stern R.A. Spectroscopic features of natural and HPHT treated yellow diamonds. *Diamonds and Related Materials*, 2020, vol. 101, pp. 1–9. DOI: 10.1016/j.diamond.2019.107642
- Zhimulov E.I., Babich Y.V., Karpovich Z.A., Chepurov A.I., Pokhilenko N.P. On the low-nitrogen diamonds growth in the Fe-C-S system. *Reports of the Russian Academy of Science. Earth Sciences*, 2020, vol. 494, no. 1, pp. 696–698. DOI: 10.1134/S1028334X20090226
- Litvak I., Cohen H., Anker Y., Ruthstein S. Nitrogen concentration and anisotropic effects on the EPR spectra of natural diamond. *CrystEngComm*, 2021, vol. 23, Iss. 19, pp. 3453–3459. DOI: 10.1039/D0CE01653E
- Chrenko R.M., Tuft R.E., Strong H.M. Transformation of the state of nitrogen in diamond. *Nature*, 1977, vol. 270, Iss. 5633, pp. 141–144.
- Evans T., Qi Z. The kinetics of aggregation of nitrogen atoms in diamond. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 1982, vol. 381, Iss. 1780, pp. 159–178.
- Taylor W.R., Canil D., Milledge H.J. Kinetics of Ib to IaA nitrogen aggregation in diamond. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1996, vol. 60, Iss. 23, pp. 4725–4733.
- Babich Y.V., Feigelson B.N., Chepurov A.I. Distribution of H1a-centers in as-grown diamonds of Fe-Ni-C system: FTIR-mapping study. *Diamond and Related Materials*, 2016, vol. 69, pp. 8–12.
- Babich Yu.V., Babich I.Yu. Batch processing of diamond IR spectra for mineralogical-geochemical research. *Geochemistry International*, 2012, vol. 50, Iss. 8, pp. 711–717.
- Boyd S.R., Kiflawi I., Woods G.S. The Relationship between infrared absorption and the A-defect concentration in diamond. *Philosophical Magazine (B)*, 1994, vol. 69, Iss. 6, pp. 1149–1153.
- Kiflawi I., Mayer A.E., Spear P.M., Van Wyk J.A., Woods G.S. Infrared absorption by the single nitrogen and A defect centers in diamond. *Philosophical Magazine (B)*, 1994, Iss. 6, vol. 69, pp. 1141–1147.
- Lawson S.C., Fisher D., Hunt D.C., Newton M.E. On the existence of positively charged single-substitutional nitrogen in diamond. *J. Phys. Condens. Matter.*, 1998, vol. 10, Iss. 27, pp. 6171–6180.
- Isoya J., Kanda H., Norris J.R., Tang J., Bowman M.K. Fourier-transform and continuous-wave EPR studies of nickel in synthetic diamond: site and spin multiplicity. *Phys.Rev. B*, 1990, vol. 41, Iss. 7, pp. 3905–3913.
- Collins A.T., Kanda H., Isoya J., Ammerlaan C.A.J., vanWyk J.A. Correlation between optical absorption and EPR in high-pressure diamond grown from a nickel solvent catalyst. *Diam. Relat. Mater.*, 1998, vol. 7, Iss. 2–5, pp. 333–338.
- Nadolinny V.A., Yelissev A.P., Yuryeva O.P., Hofstaltter A., Meyer B., Feigelson B.N. Relationship between electronic states of nickel-containing centers and donor nitrogen in synthetic and natural diamond. *Diam. Relat. Mater.*, 1998, vol. 7, Iss. 10, pp. 1558–1561.
- Babich Yu.V., Feigelson B.N. Distribution of N<sup>+</sup> centers in synthetic diamond single crystals. *Inorganic Materials*, 2009, vol. 45, Iss. 6, pp. 616–619.



17. Satoh S., Sumiya H., Tsuji K., Yazu S. Difference in nitrogen concentration and aggregation among (111) and (100) growth sectors of large synthetic diamonds. *Science and Technology of New Diamond*. Eds. S. Saito, O. Fukunaga, M. Yoshikawa. Tokyo, Terra Scientific Publishers, 1990. pp. 351–355.
18. Collins A.T., Kanda H., Burns R.C. The segregation of Ni-related optical centers in the octahedral growth sectors of synthetic diamonds. *Philosophical Magazine (B)*, 1990. vol. 61, Iss. 5, pp. 797–810.
19. Babich Yu.V., Surkov N.V. Modeling of the A-defect distribution in diamond crystals grown by the temperature–gradient method. *Inorganic Materials*, 2000, vol. 36, Iss. 6, pp. 587–590.
20. Nadolinny V.A., Yelisseyev A.P. Structure and creature conditions of complex nitrogen-nickel defects in diamonds. *Diam. Relat. Mater.*, 1994, vol. 3, pp. 1196–1200.
21. Yelisseyev A., Nadolinny V., Feigelson B., Babich Yu. Spectroscopic features due to Ni-related defects in HPHT synthetic diamonds. *Int.J. of Modern Physics: B, Condensed Matter Physics*, 2002, vol. 16, Iss. 6–7, pp. 900–905.
22. Yelisseyev A.P., Kanda H. Optical centers related to 3d transition metals in diamond. *New Diamond and Frontier Carbon Technology*, 2007, vol. 17, Iss. 3, pp. 127–178.
23. Brozel M. R., Evans T., Stephenson R. F. Partial dissociation of nitrogen aggregates in diamond by high temperature-high pressure treatments. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 1978, vol. 361, Iss. 1704, pp. 109–127.
24. Nadolinny V.A., Afanas'ev V.P., Pokhilenko N.P., Yur'eva O.P., Yelisseyev A.P., Efimova E.S., Logvinova A.M. On possible diagnostics of diamond assemblage from optical characteristics. *Reports of the Academy of Science*, 1995, vol. 341, no. 4, pp. 516–519. In Rus.

*Received: 30 March 2022.  
Reviewed: 6 September 2022.*

#### Information about the authors

**Yuri V. Babich**, Cand. Sc., senior researcher, Sobolev Institute of Geology and Mineralogy, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences.

**Egor I. Zhimulov**, Dr. Sc., senior researcher, Sobolev Institute of Geology and Mineralogy, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences.

**Aleksei A. Chepurov**, Dr. Sc., senior researcher, Sobolev Institute of Geology and Mineralogy, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences.

УДК 662.276:550.8.013

## ПОДХОД К МАТЕМАТИЧЕСКОМУ МОДЕЛИРОВАНИЮ ПРОЦЕССА РАСТВОРЕНИЯ ПЛАСТОВОЙ СОЛИ, ПРИМЕНЯЕМЫЙ В ГИДРОДИНАМИЧЕСКОМ СИМУЛЯТОРЕ TECSCHEME

Малюгин Роман Владиславович<sup>1</sup>,  
roma\_malyugin@mail.ru

Ходанович Дмитрий Александрович<sup>1</sup>,  
khodanovich\_da@surgutneftegas.ru

<sup>1</sup> Тюменское отделение «СургутНИПИнефть», ПАО «Сургутнефтегаз»,  
Россия, 625003, г. Тюмень, ул. Розы Люксембург, 12/7.

**Актуальность** исследования обусловлена необходимостью моделирования процесса растворения пластовой соли при заводнении углеводородных месторождений с учетом зависимости фильтрационно-емкостных свойств породы коллектора от количества нерастворенной соли и физических свойств водной фазы от количества растворенной в ней соли.

**Цель** заключалась в разработке математической модели процесса фильтрации флюидов в коллекторах, учитывающей растворение пластовой соли в водной фазе и предусматривающей возможность нахождения солевого раствора в водной фазе в насыщенном и ненасыщенном состояниях.

**Объектом** исследования является решение уравнения трехмерной фильтрации флюида в коллекторах, содержащих в своем составе нерастворенную соль, которая сопровождается изменением плотности и вязкости водной фазы в зависимости от количества растворенной в ней соли и изменением пористости и проницаемости породы коллектора при растворении пластовой соли.

**Методы:** численное решение систем дифференциальных уравнений модели нелетучей нефти Маскета–Мереса с использованием Implicit Pressure Explicit Saturation метода.

**Результаты.** С использованием разработанной математической модели растворения соли проведен расчет тестовой задачи, в ходе которого определялись геологические запасы растворенной соли, минерализация пластовой воды, количество нерастворенной соли и средняя концентрация солевого раствора в водной фазе при изменении таких входных параметров, как константа скорости растворения соли и максимально допустимые минерализация и концентрация солевого раствора. Показано, что результаты численного моделирования корректно описывают происходящие при растворении пластовой соли процессы и не противоречат физическим представлениям об указанном процессе.

### Ключевые слова:

Математическая модель, гидродинамика, численные методы, деформируемые пористые среды, фильтрация, растворение соли.

### Введение

Коллектора углеводородных месторождений могут содержать в своем поровом пространстве как высокоминерализованные пластовые воды, так и соль в нерастворенном виде [1]. Заводнение таких коллекторов с целью поддержания пластового давления приводит к тому, что помимо смешения вод с разной степенью минерализации (пластовая и закачиваемая вода) происходит также и растворение имеющейся в пласте твердой соли. Растворение присутствующей в породе-коллекторе пластовой соли сопровождается увеличением плотности и вязкости водной фазы, изменением таких фильтрационно-емкостных свойств (ФЕС) породы, как пористость и проницаемость, также со временем возможно снижение скорости растворения пластовой соли ввиду увеличения ее концентрации в водной фазе.

Минерализацию водной фазы и процесс растворения пластовой соли, в связи с их влиянием на протекающие в пласте процессы фильтрации, необходимо принимать во внимание при гидродинамическом моделировании сценариев разработки месторождений, предусматривающих закачку в пласт пресной воды, что позволит повысить точность проводимых расчетов [1].

Многие коммерческие гидродинамические симуляторы (например, tNavigator [2–4] и ECLIPSE [5, 6])

позволяют в рамках модели нелетучей нефти Маскета–Мереса (black oil model) учитывать минерализацию водной фазы и пересчитывают ее плотность и вязкость в зависимости от концентрации растворенной соли. Основным недостатком применяемых в указанных симуляторах подходов к учету минерализации водной фазы заключается в том, что количество растворенной в водной фазе соли характеризуется только концентрацией солевого раствора, в связи с чем солевой раствор в составе водной фазы может находиться только в насыщенном состоянии. Это допущение справедливо для случаев, когда скорость растворения велика по сравнению со скоростью отвода растворенной соли от поверхности растворения и поэтому не позволяет корректно учитывать минерализацию солевого раствора и растворение пластовой соли в водной фазе.

Создание программных комплексов, позволяющих осуществлять гидродинамическое моделирование процессов разработки месторождений с коллекторами, содержащими соль в нерастворенном виде, результаты которых адекватно описывали бы происходящие в пластовых условиях физические процессы, является в настоящее время достаточно актуальной задачей. Развитие подобных программных комплексов необходимо как с научной, так и с прикладной точки зрения.

В данной статье рассматривается подход к математическому моделированию процесса растворения пластовой соли, применяющийся в отечественном гидродинамическом симуляторе TecScheme (Тюменское отделение «СургутНИПИнефть» ПАО «Сургутнефтегаз») [7–9]. Количество растворенной в водной фазе соли характеризуется не только концентрацией солевого раствора в водной фазе, но и минерализацией солевого раствора, т. е. количеством растворенной в солевом растворе соли. При таком подходе солевой раствор может находиться в насыщенном и ненасыщенном состояниях, что позволит более адекватно описывать происходящие в пластовых условиях процессы.

#### Физическая и математическая постановка задачи

Считалось, что в пористой среде содержатся три фазы: водная ( $w$ ), жидкая углеводородная (нефтяная) ( $o$ ) и газообразная углеводородная (газовая) ( $g$ ), являющиеся гомогенными ньютоновскими жидкостями. Водная фаза состоит из двух компонентов – воды и примеси в виде растворенной пластовой соли; жидкая углеводородная фаза (нефть) и газообразная углеводородная фаза (газ) – из смеси  $i$  углеводородных компонент. Процесс фильтрации рассматривался с использованием системы уравнений следующего вида:

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \varphi \frac{S_w}{B_w} \right) = \nabla \cdot (\mathbf{K} \lambda_w (\nabla p_w - \rho_w g \nabla D)) - q_w, \quad (1)$$

$$\begin{aligned} & \frac{\partial}{\partial t} \left( \varphi \left( \frac{S_o}{B_o} + R_v \frac{S_g}{B_g} \right) \right) = \\ & = \nabla \cdot \left( \begin{array}{l} \mathbf{K} \lambda_o (\nabla p_o - \rho_o g \nabla D) + \\ + R_v \mathbf{K} \lambda_g (\nabla p_g - \rho_g g \nabla D) \end{array} \right) - q_o, \quad (2) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \frac{\partial}{\partial t} \left( \varphi \left( \frac{S_g}{B_g} + R_s \frac{S_o}{B_o} \right) \right) = \\ & = \nabla \cdot \left( \begin{array}{l} \mathbf{K} \lambda_g (\nabla p_g - \rho_g g \nabla D) + \\ + R_s \mathbf{K} \lambda_o (\nabla p_o - \rho_o g \nabla D) \end{array} \right) - q_g, \quad (3) \end{aligned}$$

$$\sum_1^h S_{io} = S_o, \quad \sum_1^h S_{ig} = S_g,$$

$$\lambda_\alpha = \frac{1}{B_\alpha \mu_\alpha}, \quad \alpha = \{w, o, g\}, \quad i = \{1 \dots h\}, \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \rho_\alpha &= \sum_1^h m_{i\alpha} \rho_{i\alpha}, \quad \mu_\alpha = M_\alpha / (\sum_1^h m_{i\alpha} M_{i\alpha} / \mu_{i\alpha}), \\ \alpha &= \{o, g\}, \quad i = \{1 \dots h\}, \quad (5) \end{aligned}$$

$$\rho_w = \sum_{k=\{fw,sw\}} m_k \rho_k, \quad \mu_w = M_w / \sum_{k=\{fw,sw\}} m_k M_k / \mu_k,$$

$$p_w = p_o + p_{cwo}, \quad p_g = p_o + p_{cgo}, \quad (6)$$

$$\sum_{\alpha=\{w,o,g\}} S_\alpha = 1, \quad (7)$$

$$\mathbf{u}_\alpha = -\mathbf{K} \frac{f_\alpha}{\mu_\alpha} (\nabla p_\alpha - \rho_\alpha g \nabla D), \quad \alpha = \{w, o, g\}, \quad (8)$$

$$q_w = \sum_{k=\{fw,sw\}} q_k, \quad q_k = Q f_w m_k \frac{\xi_k}{\mu_k} \Delta_w, \quad k = \{fw, sw\}, \quad (9)$$

$$\begin{aligned} q_\alpha &= \sum_1^h q_{i\alpha}, \quad q_{i\alpha} = Q f_\alpha m_{i\alpha} \frac{\xi_{i\alpha}}{\mu_{i\alpha}} \Delta_\alpha, \\ \alpha &= \{o, g\}, \quad i = \{1 \dots h\}, \quad (10) \end{aligned}$$

$$Q = Q(x) = WI \cdot \delta(m - m_{|p|}),$$

$$\Delta_\alpha = U - p_\alpha - \gamma_\alpha (D_U - D), \quad \alpha = \{w, o, g\}.$$

где  $t$  – время;  $\varphi$  – пористость;  $S_\alpha$  – насыщенность фазой  $\alpha$ ;  $B_\alpha$  – коэффициент объемного расширения фазы

$\alpha$ ;  $\mathbf{K}$  – тензор абсолютной проницаемости;  $\mu_{i\alpha}$  – динамическая вязкость  $i$ -го компонента фазы  $\alpha$ ;  $p_\alpha$  – давление в фазе  $\alpha$ ;  $\rho$  – плотность;  $g$  – ускорение свободного падения;  $D$  – глубина (вертикальная ось  $Z$  направлена вниз);  $p_{cwo}$  – капиллярное давление системы нефть вода;  $p_{cgo}$  – капиллярное давление системы газ нефть;  $R_v$  – коэффициент растворимости нефти в газе;  $R_s$  – коэффициент растворимости газа в нефти;  $\mathbf{u}$  – скорость фильтрации;  $f_\alpha$  – относительная фазовая проницаемость фазы  $\alpha$ ;  $q_{i\alpha}$  – плотность притока в скважину  $i$ -го компонента, переносимого фазой  $\alpha$ ;  $m_{i\alpha} = \xi_{i\alpha} / \xi_\alpha$  – молярная доля  $i$ -го компонента фазы  $\alpha$ ;  $\xi_\alpha$  – молярная плотность фазы  $\alpha$ ;  $\xi_{i\alpha} = \rho_{i\alpha} / M_{i\alpha}$  – молярная плотность  $i$ -го компонента в фазе  $\alpha$ ;  $M_{i\alpha}$  – молярная масса  $i$ -го компонента фазы  $\alpha$ ;  $\delta(m)$  – дельта функция Дирака [10];  $WI = WI(x)$  – коэффициент продуктивности скважины;  $U$  – забойное давление;  $\gamma_\alpha = \rho_\alpha g$  – вес фазы  $\alpha$ ;  $g$  – ускорение свободного падения;  $D_U$  – глубина забоя скважины, индекс  $fw$  соответствует пресной воде (fresh water),  $sw$  – водному раствору соли (salt water).

Уравнения состояния, учитывающие закономерности влияния пластового давления на ФЕС пласта и флюидов, а именно сжимаемость порового объема и компонентов, входящих в жидкую и газообразную углеводородные фазы, считаются известными.

Система уравнений (1)–(10) решалась IMPES (Implicit Pressure Explicit Saturation) методом [11–13]. При аппроксимации системы уравнений по времени использовалась неявная разностная схема. Линеаризация первичных переменных проводилась с помощью метода Ньютона–Рафсона [14]. Максимальная величина невязки на каждом итерационном шаге для давления, молярных долей углеводородных компонентов и насыщенности водной фазы составляла не более  $10^{-2}$ . Более подробно математическая модель трехфазной фильтрации, ее реализация в гидродинамическом симуляторе TecScheme и верификация представлены в работе [7].

Достоверность получаемых с использованием гидродинамического симулятора TecScheme результатов расчетов подтверждается использованием непротиворечивой консервативной замкнутой системы уравнений фильтрации и всесторонним тестированием вычислительных алгоритмов на тестовых задачах, рекомендованных Центральной комиссией ресурсов (ЦКР) Российской Федерации [15], а также тестах SPE (Society of Petroleum Engineers) [16–19]. Частично результаты верификации представлены в работах [7, 20].

Используемые в гидродинамическом симуляторе TecScheme уравнения допускают неравновесность пластовой системы. Данное предположение сделано из соображений, что при ограниченном контакте нефти с газом процесс установления фазового равновесия может быть достаточно продолжительным. При численном решении дифференциальной задачи и представлении определяющих уравнений в разностном виде условия локального термодинамического равновесия, выполняющиеся в точках контакта нефти с газом, могут не выполняться для всей расчетной

ячейки. Это связано с тем, что область контакта может занимать незначительную часть порового объема, и равновесные соотношения компонентов, выраженные в усредненных по поровому объему величинах, могут сильно отклоняться от их аналогов, полученных усреднением только по области газонефтяного контакта [20]. Аналогичный подход, позволяющий учитывать наличие неравновесных состояний, применяется и для учета минерализации пластовой воды (ненасыщенное состояние солевого раствора).

При математическом моделировании процесса растворения пластовой соли были приняты следующие ограничения и допущения:

1. Основной механизм растворения соли – молекулярная концентрационная диффузия, т. е. растворение соли в пограничных слоях и ее последующая диффузия в остальную часть раствора. Влияние бародиффузии и конвективной диффузии на процесс растворения пластовой соли считается несущественным, а термодиффузия отсутствует в связи с тем, что математическая модель является изотермической.
2. Солевой раствор может находиться в ненасыщенном состоянии, т. е. соль растворяется в водной фазе до тех пор, пока минерализация солевого раствора (количество растворенной соли, кг/м<sup>3</sup>) не достигнет максимально возможного значения, после чего солевой раствор считается насыщенным и дальнейшее растворение соли возможно только за счет увеличения концентрации солевого раствора в водной фазе, имеющей предельно допустимое значение.

3. Сжимаемость нерастворенной соли и горной породы совпадают.

Водная фаза условно делилась на пресную воду и солевой раствор, который характеризовался двумя параметрами: минерализацией солевого раствора ( $M_{salt}$ , кг/м<sup>3</sup>) и концентрацией солевого раствора в водной фазе ( $C_{salt}$ ). Максимально возможные значения этих параметров ( $M_{salt}^{max}$  и  $C_{salt}^{max}$ ) выставляются пользователем через интерфейс гидродинамического симулятора или могут быть заданы исходя из условий термодинамического равновесия [21, 22].

Считается, что если текущая минерализация солевого раствора ( $M_{salt}$ ) в расчетной ячейке меньше предельно допустимого значения ( $M_{salt}^{max}$ ), то растворение пластовой соли в первую очередь приводит к увеличению его минерализации, т. е. повышению количества растворенной соли в единице объема солевого раствора (рис. 1, а). Дальнейшее растворение пластовой соли, после достижения минерализацией значения  $M_{salt}^{max}$ , приводит к увеличению концентрации солевого раствора ( $C_{salt}$ ) в водной фазе (рис. 1, б), изменение которой возможно в диапазоне  $0 \leq C_{salt} \leq C_{salt}^{max}$ , где  $C_{salt}^{max} \leq 1$ . В общем виде эту зависимость можно представить следующим образом:

$$C_{salt} \cdot \frac{dM_{salt}}{dt} + M_{salt} \cdot \frac{dC_{salt}}{dt} = K, \quad (11)$$

где  $K$  – скорость растворения пластовой соли. Первое слагаемое в левой части уравнения (11) отвечает за изменение минерализации солевого раствора, второе слагаемое – за изменение его концентрации в водной фазе.

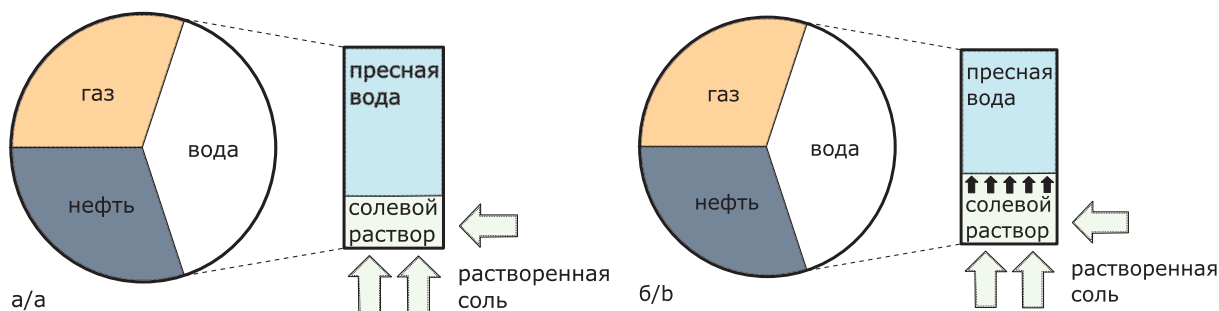


Рис. 1. Изменение минерализации (а) и концентрации (б) солевого раствора в водной фазе

Fig. 1. Change of mineralization (a) and concentration (b) of the salt solution in the aqueous phase

Таким образом процесс растворения пластовой соли в водной фазе можно разделить на несколько этапов:

- I) На начальном этапе при растворении соли происходит увеличение минерализации солевого раствора до максимально возможного значения, при этом концентрация солевого раствора в водной фазе не изменяется, т. е.  $C_{salt} \cdot dM_{salt}/dt = K$ ,  $M_{salt} \cdot dC_{salt}/dt = 0$ . Этот этап продолжается до тех пор, пока солевой раствор не станет насыщенным, содержащим максимально возможное при данных термодинамических условиях количество растворенной соли. Условием перехода к следующему этапу является насыщение раствора ( $M_{salt} = M_{salt}^{max}$ ), после чего растворение

соли за счет изменения минерализации раствора уже невозможно и поэтому будет сопровождаться изменением концентрации солевого раствора в водной фазе.

- II) Дальнейшее растворение соли приводит к изменению концентрации раствора в водной фазе, т. е. происходит изменение доли солевого раствора в водной фазе  $C_{salt} \cdot dM_{salt}/dt = 0$ ,  $M_{salt} \cdot dC_{salt}/dt = K$ .

Условием перехода к следующему этапу является либо равенство нулю массы нерастворенной соли, когда вся имеющаяся в пласте соль уже находится в растворенном состоянии, либо достижение концентрацией солевого раствора в водной фазе ее максимального значения  $C_{salt}^{max}$ .



III) После того, как концентрация раствора достигнет максимального значения, либо вся соль перейдет в водную фазу, процесс растворения пластовой соли прекращается, ни минерализация, ни концентрация солевого раствора уже не изменяются, т. е.  $C_{salt} \cdot dM_{salt}/dt = 0, M_{salt} \cdot dC_{salt}/dt = 0$ .

Использование указанного подхода потребовало провести замену переменной в уравнении переноса растворенной соли: концентрация  $C_{salt}$  была заменена на произведение концентрации и минерализации ( $C_{salt} \cdot M_{salt}$ ), т. к. изменение количества растворенной соли в водной фазе оказывает влияние на оба этих параметра. Нормирование этой переменной происходит на максимально возможное количество растворенной в воде соли, являющееся произведением  $C_{salt}^{max}$  и  $M_{salt}^{max}$ , в результате чего диапазон, в котором происходит изменение новой переменной, будет ограничен интервалом [0, 1]:

$$X_{salt} = C_{salt} \cdot M_{salt} / (C_{salt}^{max} \cdot M_{salt}^{max}).$$

С учетом принятых допущений уравнение переноса растворенной соли выглядит следующим образом:

$$\frac{d}{dt}(V_p S_w \xi_w X_{salt}) = \nabla(X_{salt} \xi_w \mathbf{u}_w),$$

где  $V_p$  – поровый объем.

Для моделирования процесса растворения пластовой соли необходимы следующие данные: плотность пластовой соли в стандартных условиях; PVT-свойства минерализованной воды, содержащие зависимости свойств воды от количества растворенной в ней соли; константа скорости растворения пластовой соли в воде; максимально допустимые концентрация и минерализация солевого раствора в водной фазе в зависимости

от термодинамических параметров; зависимость пористости и проницаемости коллектора от количества нерастворенной пластовой соли; зависимость проницаемости от пористости породы; начальное распределение пластовой соли и ее плотность.

При моделировании процесса растворения пластовой соли принимались во внимание следующие эффекты, сопутствующие этому процессу:

1. Для определения влияния количества растворенной в водной фазе соли на ее плотность и вязкость использовались уравнения [23]:

$$\rho = \rho_0 + n \cdot (A_1 + A_2 \cdot T + A_3 \cdot n), \quad (12)$$

$$\mu = \mu_0 \cdot \exp[n \cdot (B_0 + B_1 \cdot T + B_2 \cdot n + B_3 \cdot T^2)], \quad (13)$$

где  $\rho_0, \mu_0$  – плотность и вязкость пресной воды;  $T$  – температура;  $n$  – массовая доля соли в водной фазе, значения коэффициентов  $A_1, A_2, A_3, B_0, B_1, B_2, B_3$  для солей NaCl, KCl и CaCl<sub>2</sub> представлены в табл. 1.

2. Скорость растворения пластовой соли определялась из закона действующих масс, при котором граничное условие для концентрации растворенного вещества на поверхности породы-коллектора соответствует поверхностной реакции первого порядка [1, 24, 25]:

$$K = -K_p(C_s - C_{salt}),$$

где  $C_s$  – концентрация соли, при которой раствор находится в равновесном состоянии;  $C_{salt}$  – текущая концентрация соли в растворе;  $K_p$  – константа скорости растворения, являющаяся постоянной величиной, поскольку скорость растворения соли не зависит от времени контакта твердой соли с водной фазой.

**Таблица 1.** Коэффициенты уравнений (12) и (13) для расчета плотности и вязкости солевых растворов [23]

**Table 1.** Coefficients of equations (12) and (13) for calculating the density and viscosity of salt solutions [23]

	$A_1$	$A_2$	$A_3$	$B_0 \cdot 10^3$	$B_1 \cdot 10^4$	$B_2 \cdot 10^5$	$B_3 \cdot 10^6$
NaCl	7,2181	-0,0057	0,0188	13,953	0,769	27,44	-0,2
KCl	5,0868	0,0130	-0,0170	-9,375	3,473	12,18	-1,3
CaCl <sub>2</sub>	8,5647	0,0008	0,0260	17,282	1,063	70,95	-1,4

3. Растворение пластовой соли приводит к изменению объема пустот в пористой среде, поэтому пористость и проницаемость породы-коллектора необходимо пересчитывать на каждом временном шаге. Из многообразия экспериментальных и аналитических зависимостей, характеризующих взаимосвязь между пористостью и проницаемостью, можно выделить несколько наиболее широко используемых – это классическая модель Kozeny–Carman (KC) [26, 27] и расширенная модель Verma–Pruess (VP) [28].

Уравнение KC имеет следующий вид:

$$\frac{k}{k_0} = \left(\frac{\varphi}{\varphi_0}\right)^3 \left(\frac{1-\varphi_0}{1-\varphi}\right)^2,$$

где  $k_0$  и  $\varphi_0$  – начальная проницаемость и пористость, соответственно.

Расширенное уравнение VP:

$$\frac{k}{k_0} = \left(\frac{\varphi - \varphi_c}{\varphi_0 - \varphi_c}\right)^{1,8},$$

где  $\varphi_c$  – значение «критической» пористости, при которой проницаемость стремится к нулю.

По сравнению с уравнением VP, которое приводит к небольшому снижению проницаемости при изменении пористости, в уравнении KC зависимость проницаемости от пористости более существенна, в связи с чем уравнение KC более согласовано с наблюдаемым на практике и в лабораторных экспериментах значительным изменением проницаемости (рис. 2) [29, 30].

#### Численное решение тестовой задачи

В качестве тестовой задачи рассматривалась модель, не имеющая рабочих скважин, продуктивность аквифера, граничащего с боковыми поверхностями пласта и моделируемого с помощью водоносного горизонта Фетковича [31], считалась минимальной и имела значение  $10^{-5} \text{ м}^3/(\text{сут} \cdot \text{МПа})$ . На верхней и нижней границах пласта задавались условия непротекания. Таким образом было исключено воздействие на пласт внешних сил, рассматривался только процесс растворения твердой соли. Сам моделируемый пласт

имел размеры 750×750×25 м и представлял собой пять пропластков по вертикали с проницаемостью равной 0,2, исходная водо-, нефте- и газонасыщенность пропластков представлена в табл. 2. Расчетная сетка имела размер 5×5×5. Расчет начального состояния пласта происходил из условия его капиллярно-гравитационного равновесия.

В качестве начальных данных задавалась концентрация солевого раствора в водной фазе и его минерализация, равные 0,01 и 250 кг/м<sup>3</sup>, соответственно. Минерализация пластовой воды составляла 20 кг/м<sup>3</sup>, объемная доля нерастворенной соли в поровом пространстве – 0,1.

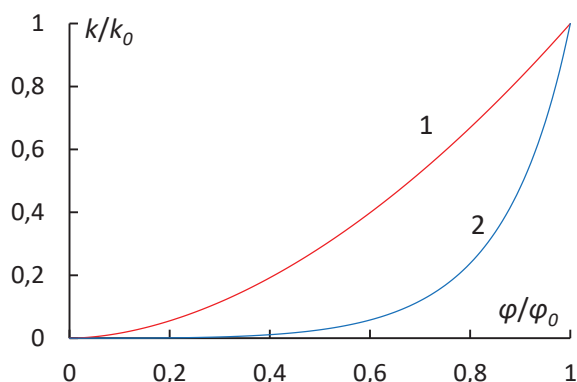


Рис. 2. Зависимости, характеризующие взаимосвязь между пористостью и проницаемостью; 1 – модель VP, 2 – модель KC

Fig. 2. Dependencies characterizing the relationship between porosity and permeability; 1 – VP model, 2 – KC model

Таблица 2. Исходная водо-, нефте- и газонасыщенность пропластков

Table 2. Initial water, oil and gas saturation of reservoirs

№№ слоя/layer number	$S_w$	$S_o$	$S_g$
1	0,273	0	0,727
2	0,346	0,654	0
3	0,408	0,592	0
4	0,583	0,417	0
5	1	0	0

В ходе тестирования варьировались все три параметра, влияющие на процесс растворения пластовой соли –  $M_{salt}^{max}$ ,  $C_{salt}^{max}$ ,  $K_p$ . При проведении расчетов определялись такие параметры, как геологические запасы нерастворенной соли ( $G_{salt}$ ), минерализация пластовой воды ( $M_{salt}$ ), количество растворенной соли ( $G_{solid}$ ), средняя концентрация солевого раствора в водной фазе ( $C_{salt}$ ).

1.  $M_{salt}^{max}$ : максимально допустимое значения минерализации солевого раствора изменялось в диапазоне от 250 до 500 кг/м<sup>3</sup> с шагом 50 кг/м<sup>3</sup>, при этом  $C_{salt}^{max} = 0,7$ ,  $K_p = 0,01$  кг/(сут·м<sup>3</sup>). Результаты расчетов приведены на рис. 3, а–г.

Из рис. 3, а–г видно, что с увеличением максимально возможного значения минерализации солевого раствора процесс растворения проходит более интенсивно и соответственно большее количество соли

переходит из твердого состояния в водную фазу. На начальном этапе растворение соли направленно на увеличение минерализации солевого раствора, а после достижения максимально допустимого значения  $M_{salt}^{max}$  растворение соли происходит за счет увеличения концентрации солевого раствора в водной фазе. При равенстве исходной минерализации солевого раствора и его максимально допустимого значения (250 кг/м<sup>3</sup>) растворение соли возможно только за счет повышения концентрации солевого раствора в водной фазе. Этот эффект можно проследить на рисунках 2, б, г, на них видно, что несмотря на растворение твердой соли минерализация водной фазы не изменяется, происходит изменение только концентрации солевого раствора в водной фазе (кривая 1).

При увеличении  $M_{salt}^{max}$  с 250 до 500 кг/м<sup>3</sup>  $G_{salt}$  уменьшилась на 72,1 %, величина  $G_{solid}$  увеличилось на 72,9 %, а  $C_{salt}$  уменьшилась на 67,7 %, при этом возросла интенсивность процесса растворения соли, что видно по углу наклона кривых рис. 2, в.

2.1.  $C_{salt}^{max}$ : предельное значение концентрации солевого раствора в водной фазе изменялось в диапазоне от 0,1 до 0,7 с шагом 0,1, при этом  $M_{salt}^{max} = 250$  кг/м<sup>3</sup> (т. е. максимально допустимая минерализация водной фазы считалась равной исходной минерализации солевого раствора),  $K_p = 0,01$  кг/(сут·м<sup>3</sup>). Результаты расчетов представлены на рис. 4, а–г.

Как видно из рис. 4, а–г, увеличение  $C_{salt}^{max}$  приводит к уменьшению  $G_{salt}$  в 8,26 раз, увеличению величины  $G_{solid}$  в 9 раз и возрастанию  $C_{salt}$  в 6,38 раз.

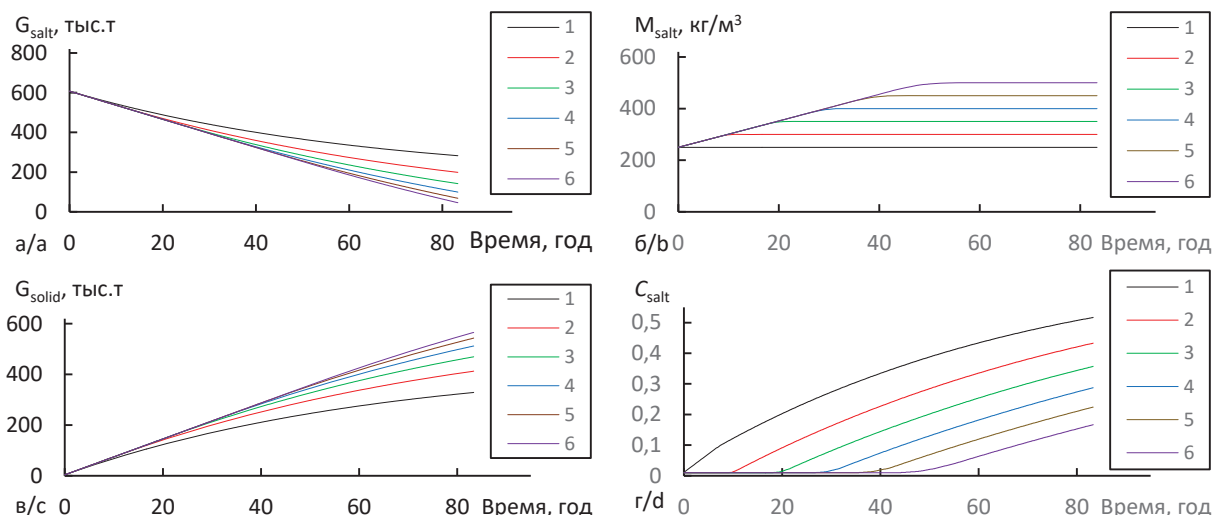
2.2.  $C_{salt}^{max}$ : предельное значение концентрации солевого раствора в водной фазе изменялось в диапазоне от 0,1 до 0,7 с шагом 0,1, при этом  $M_{salt}^{max} = 350$  кг/м<sup>3</sup> (т. е. максимально допустимая минерализация водной фазы выше исходной минерализации солевого раствора),  $K_p = 0,01$  кг/(сут·м<sup>3</sup>). Результаты расчетов приведены на рис. 5, а–г.

С увеличением  $C_{salt}^{max}$  с 0,1 до 0,7 кг/м<sup>3</sup> при  $M_{salt}^{max} = 350$  кг/м<sup>3</sup>  $G_{salt}$  уменьшилось в 5,8 раз, при этом величина  $G_{solid}$  увеличилась в 5,3 раза, а  $C_{salt}$  увеличилось в 35,7 раз.

3.  $K_p$ : константа скорости растворения изменялась в диапазоне от  $5 \cdot 10^{-3}$  до  $40 \cdot 10^{-3}$  кг/(сут·м<sup>3</sup>) с шагом  $5 \cdot 10^{-3}$  кг/(сут·м<sup>3</sup>), при этом  $M_{salt}^{max} = 350$  кг/м<sup>3</sup>,  $C_{salt}^{max} = 0,5$ . Результаты расчетов представлены на рис. 6, а–г.

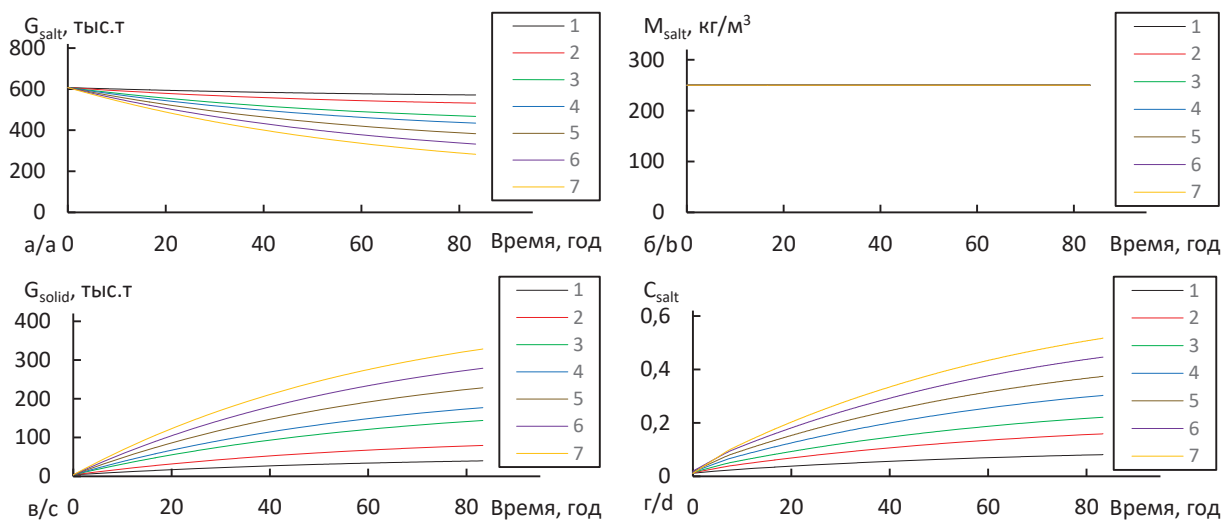
Результаты расчетов, представленные на рис. 6, а–г показывают, что увеличение константы скорости растворения приводит к более интенсивному растворению соли. Увеличение константы скорости растворения соли с  $5 \cdot 10^{-3}$  до  $40 \cdot 10^{-3}$  кг/(сут·м<sup>3</sup>) приводит к снижению  $G_{salt}$  в 2,8 раз, возрастанию  $G_{solid}$  в 2,82 раз и увеличению  $C_{salt}$  в 6,75 раз.

Таким образом, можно утверждать, что результаты расчетов процесса растворения соли соответствуют закладываемой в его описание теории, условия прекращения растворения соли при достижении минерализации солевого раствора или его концентрации в водной фазе предельных значений реализованы корректно.



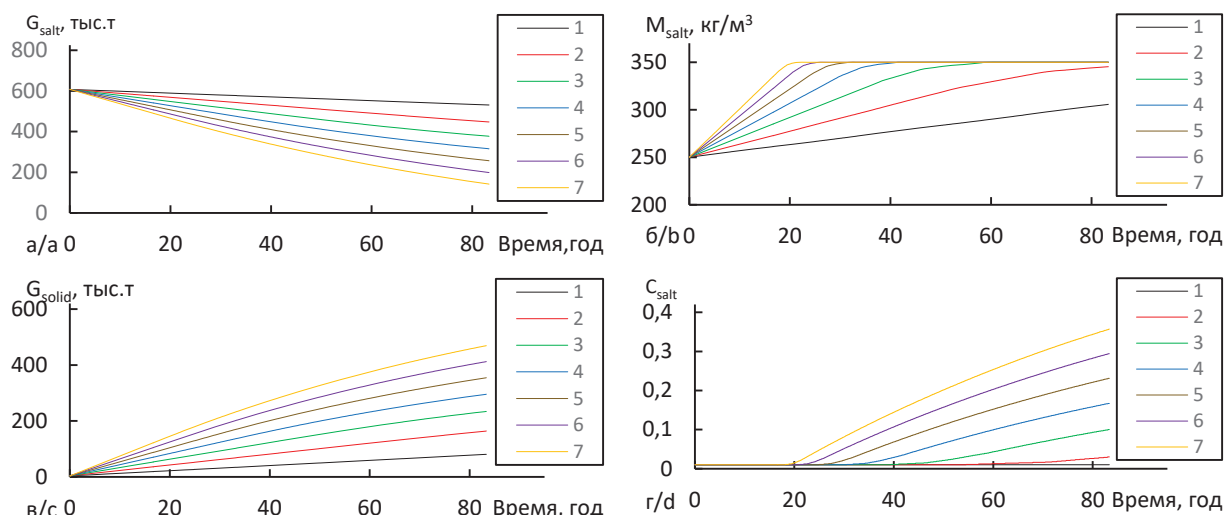
**Рис. 3.** Результаты расчетов: динамика изменения геологических запасов нерастворенной соли (а), минерализации пластовой воды (б), количества растворенной соли (в), средняя концентрация солевого раствора в водной фазе (г) при изменении максимально допустимого значения минерализации солевого раствора; 1 –  $M_{salt}^{max}=250$  кг/м<sup>3</sup>, 2 –  $M_{salt}^{max}=300$  кг/м<sup>3</sup>, 3 –  $M_{salt}^{max}=350$  кг/м<sup>3</sup>, 4 –  $M_{salt}^{max}=400$  кг/м<sup>3</sup>, 5 –  $M_{salt}^{max}=450$  кг/м<sup>3</sup>, 6 –  $M_{salt}^{max}=500$  кг/м<sup>3</sup>

**Fig. 3.** Results of calculations: dynamics of changes in geological reserves of undissolved salt (a), salinity of formation water (b), amount of dissolved salt (c), average concentration of dissolved salt in the aqueous phase (d) with a change in the maximum allowable value of mineralization of the salt solution; 1 –  $M_{salt}^{max}=250$  kg/m<sup>3</sup>, 2 –  $M_{salt}^{max}=300$  kg/m<sup>3</sup>, 3 –  $M_{salt}^{max}=350$  kg/m<sup>3</sup>, 4 –  $M_{salt}^{max}=400$  kg/m<sup>3</sup>, 5 –  $M_{salt}^{max}=450$  kg/m<sup>3</sup>, 6 –  $M_{salt}^{max}=500$  kg/m<sup>3</sup>



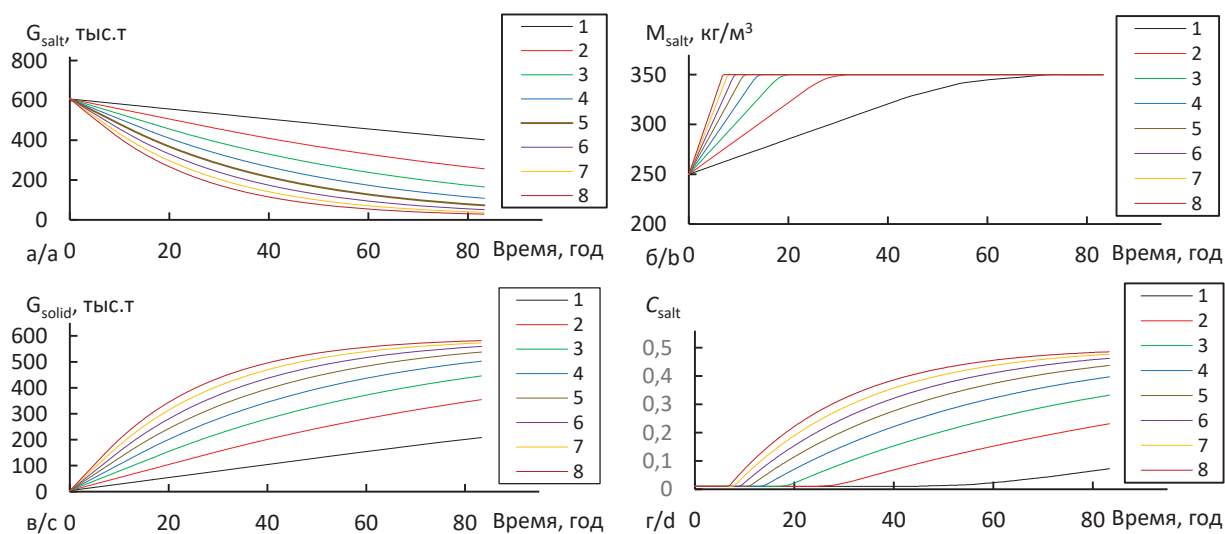
**Рис. 4.** Результаты расчетов: динамика изменения геологических запасов нерастворенной соли (а), минерализации пластовой воды (б), количества растворенной соли (в), средняя концентрация солевого раствора в водной фазе (г) при изменении предельного значения концентрации солевого раствора в водной фазе;  $M_{salt}^{max}=250$  кг/м<sup>3</sup>: 1 –  $C_{salt}^{max}=0,1$ , 2 –  $C_{salt}^{max}=0,2$ , 3 –  $C_{salt}^{max}=0,4$ , 4 –  $C_{salt}^{max}=0,5$ , 5 –  $C_{salt}^{max}=0,5$ , 6 –  $C_{salt}^{max}=0,6$ , 7 –  $C_{salt}^{max}=0,7$

**Fig. 4.** Results of calculations, dynamics of changes in geological reserves of undissolved salt (a), salinity of formation water (b), amount of dissolved salt (c), average concentration of dissolved salt in the aqueous phase (d) with a change in the limit value of the salt solution concentration in the aqueous phase;  $M_{salt}^{max}=250$  kg/m<sup>3</sup>: 1 –  $C_{salt}^{max}=0,1$ , 2 –  $C_{salt}^{max}=0,2$ , 3 –  $C_{salt}^{max}=0,4$ , 4 –  $C_{salt}^{max}=0,5$ , 5 –  $C_{salt}^{max}=0,5$ , 6 –  $C_{salt}^{max}=0,6$ , 7 –  $C_{salt}^{max}=0,7$



**Рис. 5.** Результаты расчетов, динамика изменения геологических запасов нерастворенной соли (а), минерализации пластовой воды (б), количества растворенной соли (в), средняя концентрация солевого раствора в водной фазе (г) при изменении предельного значения концентрации солевого раствора в водной фазе;  $M_{salt}^{max}=350$  кг/м<sup>3</sup>: 1 –  $C_{salt}^{max}=0,1$ , 2 –  $C_{salt}^{max}=0,2$ , 3 –  $C_{salt}^{max}=0,4$ , 4 –  $C_{salt}^{max}=0,5$ , 5 –  $C_{salt}^{max}=0,5$ , 6 –  $C_{salt}^{max}=0,6$ , 7 –  $C_{salt}^{max}=0,7$

**Fig. 5.** Results of calculations, dynamics of changes in geological reserves of undissolved salt (a), salinity of formation water (b), amount of dissolved salt (c), average concentration of dissolved salt in the aqueous phase (d) with a change in the limiting value of the concentration of salt solution in the aqueous phase;  $M_{salt}^{max}=350$  kg/m<sup>3</sup>: 1 –  $C_{salt}^{max}=0,1$ , 2 –  $C_{salt}^{max}=0,2$ , 3 –  $C_{salt}^{max}=0,4$ , 4 –  $C_{salt}^{max}=0,5$ , 5 –  $C_{salt}^{max}=0,5$ , 6 –  $C_{salt}^{max}=0,6$ , 7 –  $C_{salt}^{max}=0,7$



**Рис. 6.** Результаты расчетов, динамика изменения геологических запасов нерастворенной соли (а), минерализации пластовой воды (б), количества растворенной соли (в), средняя концентрация солевого раствора в водной фазе (г) при изменении константы скорости растворения; 1 –  $K_p=5 \cdot 10^{-3}$  кг/(сут·м<sup>3</sup>), 2 –  $K_p=10 \cdot 10^{-3}$  кг/(сут·м<sup>3</sup>), 3 –  $K_p=15 \cdot 10^{-3}$  кг/(сут·м<sup>3</sup>), 4 –  $K_p=20 \cdot 10^{-3}$  кг/(сут·м<sup>3</sup>), 5 –  $K_p=25 \cdot 10^{-3}$  кг/(сут·м<sup>3</sup>), 6 –  $K_p=30 \cdot 10^{-3}$  кг/(сут·м<sup>3</sup>), 7 –  $K_p=35 \cdot 10^{-3}$  кг/(сут·м<sup>3</sup>), 8 –  $K_p=40 \cdot 10^{-3}$  кг/(сут·м<sup>3</sup>)

**Fig. 6.** Results of calculations, dynamics of changes in geological reserves of undissolved salt (a), salinity of formation water (b), amount of dissolved salt (c), average concentration of dissolved salt in the aqueous phase (d) with a change in the dissolution rate constant; 1 –  $K_p=5 \cdot 10^{-3}$  kg/(day·m<sup>3</sup>), 2 –  $K_p=10 \cdot 10^{-3}$  kg/(day·m<sup>3</sup>), 3 –  $K_p=15 \cdot 10^{-3}$  kg/(day·m<sup>3</sup>), 4 –  $K_p=20 \cdot 10^{-3}$  kg/(day·m<sup>3</sup>), 5 –  $K_p=25 \cdot 10^{-3}$  kg/(day·m<sup>3</sup>), 6 –  $K_p=30 \cdot 10^{-3}$  kg/(day·m<sup>3</sup>), 7 –  $K_p=35 \cdot 10^{-3}$  kg/(day·m<sup>3</sup>), 8 –  $K_p=40 \cdot 10^{-3}$  kg/(day·m<sup>3</sup>)

## Выводы

В данной работе рассмотрена проблема численно-го моделирования процесса растворения пластовой соли в водной фазе в рамках изотермической модели «black oil», возникающая при заводнении углеводо-

родных месторождений, коллектора которых содержат нерастворенную пластовую соль.

Представлен разработанный и программно-реализованный в виде дополнительного модуля к отечественному гидродинамическому симулятору TecScheme подход к математическому моделирова-



нию процесса растворения соли, принимающий во внимание процесс смешения вод с разной степенью минерализации. Представленная математическая модель процесса растворения пластовой соли может применяться для гидродинамического моделирования процессов разработки месторождений, к ее преимуществу перед существующими моделями можно отнести возможность учета наличия ненасыщенного состояния солевого раствора в водной фазе.

На примере тестовой модели, при условии отсутствия воздействия на пласт внешних сил, показано, что количество растворенной соли при увеличении максимальной минерализации солевого раствора в водной фазе с 250 до 500 кг/м<sup>3</sup> возрастает на 72,9 %, при увеличении предельного значения концентрации

солевого раствора в водной фазе с 0,1 до 0,7 при максимальной минерализации солевого раствора в водной фазе 250 кг/м<sup>3</sup> – в 9 раз (при максимальной минерализации солевого раствора в водной фазе 350 кг/м<sup>3</sup> – в 5,3 раза), а при увеличении константы скорости растворения соли с  $5 \cdot 10^{-3}$  до  $40 \cdot 10^{-3}$  кг/(сут·м<sup>3</sup>) – в 2,82 раз.

В дальнейшем после тестирования алгоритма учета растворения пластовой соли с учетом воздействия внешних сил (наличия нагнетательных и добывающих скважин, притока из aquifera) планируется использовать представленный подход как прототип для учета наличия в водной фазе полимеров с целью гидродинамического моделирования полимерного заводнения.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Богданов А.В., Исмаилов Т.А. Оценка константы скорости растворения галита в открытом объеме и в пористой среде // Научно-технический сборник. Вести газовой науки. – 2017. – Т. 30. – № 2. – С. 208–213.
2. Применение симулятора tNavigator для оценки влияния засоления пласта на разработку нефтегазоконденсатного месторождения / А.Л. Ковалев, И.Ю. Корчажкина, Н.В. Савченко, Е.Л. Фомин, Е.В. Шеберстов, А.А. Кузовков // Научно-технический сборник. Вести газовой науки. – 2017. – Т. 30. – № 2. – С. 14–23.
3. Богачев К.Ю., Милютин С.В., Назаров В. Численное моделирование растворения пластовой соли с помощью полностью неявной численной схемы на базе изотермической композиционной модели // Российская нефтегазовая техническая конференция SPE. – М., 2018. – SPE-191623-18RPTC-RU.
4. Богачев К.Ю., Милютин С.В., Дзюба В.И. Численное моделирование заводнения засоленных коллекторов пресной водой // Российская техническая нефтегазовая конференция и выставка SPE по разведке и добыче. – М., 2012. – SPE-162091.
5. Гидродинамическое моделирование эффекта рассоления терригенных коллекторов при заводнении пресной водой / Р.Р. Шакиров, Н.Н. Шелест, С.Б. Комалов, И.М. Сафьянников, А.Р. Розова // Нефть. Газ. Новации. – 2020. – Т. 231. – № 2. – С. 12–16.
6. ECLIPSE. Technical Description. Version 2014.1. – P. 51–67.
7. Бахтий Н.С. Некоторые аспекты моделирования многофазной многокомпонентной фильтрации и тестирования вычислительных алгоритмов, индуцированные программным комплексом «Техсхема»: дис. ... канд. тех. наук. – Тюмень, 2012. – 136 с.
8. Батурич Ю.Е., Бахтий Н.С., Сафиуллина М.В. Исследование погрешности определения продуктивности скважин в гидродинамической модели // Нефть и газ. – 2012. – № 2. – С. 43–48.
9. Гидродинамическое моделирование основных месторождений ОАО «Сургутнефтегаз» с использованием суперкомпьютерных технологий / Н.С. Бахтий, А.А. Аристов, Д.А. Ходанович, М.В. Мишарин, М.С. Тупицин // Нефтяное хозяйство. – 2017. – № 5. – С. 64–67.
10. Биджиев Р.Х., Шумилова Е.Ю. Дельта-функция Дирака: элементы теории обобщенных функций // Университетская наука. – 2019. – № 2. – С. 124–127.
11. Азиз Х., Сеттари Э. Математическое моделирование пластовых систем / перевод с английского А.В. Королева, В.П. Кестнера. – М.: Недра, 1982. – 416 с.
12. A fully mass conservative numerical method for multiphase flow in fractured porous reservoirs / H. Cai, P. Li, M. Feng, Y. Hao, D. Lu, Y. Xian // Transport in porous media. – 2021. – V. 139. – P. 171–184.
13. Numerical simulation of two-phase flows in 2-D petroleum reservoirs using a very high-order CPR method coupled to the MPFA-D finite volume scheme / G. Galindez-Ramirez, F.R.I. Contreras, D.K.E. Carvalho, P.R.M. Lyra // Journal of petroleum science and engineering. – 2020. – V. 192. – Article number 107220.
14. Использование метода Ньютона-Рафсона при многокомпонентном математическом моделировании разработки месторождений жидких и газообразных углеводородов / И.В. Афанаскин, С.Г. Вольпин, А.В. Королев, П.В. Ялов // Вестник кибернетики. – 2018. – № 2. – С. 32–42.
15. Некрасов А.А. Тесты и методики испытания программного обеспечения разработки месторождений // Вестник ЦКР Роснедра. – 2008. – № 1. – С. 54–64.
16. Odeh A. Comparison of solutions to a three dimensional black-oil reservoir simulation problem // Journal of Petroleum Technology. – 1981. – № 33. – P. 13–25.
17. Firoozabadi A., Thomas K.L. Sixth SPE comparative solution project: dual porosity simulators // Journal of Petroleum Technology. – 1990. – № 42. – P. 710–715.
18. Nghiem L., Collins D.A., Sharma R. Seventh SPE comparative solution project: modeling of horizontal wells in reservoir simulation // 11th SPE Symposium on Reservoir simulation. – Anaheim, California, USA, 1991. – SPE 21221. – P. 195–207.
19. Christie M.A., Blunt M.J. Tenth SPE comparative solution project: a comparison of upscaling techniques // SPE Reservoir Simulation Symposium. – Houston, Texas, USA, 2001. – SPE 66599.
20. Батурич Ю.Е., Майер В.П. Гидродинамическая модель трехмерной трехфазной фильтрации «Техсхема» // Нефтяное хозяйство. – 2002. – № 3. – С. 38–42.
21. Bodnar R.J. Synthetic fluid inclusions: XII. The system H<sub>2</sub>O-NaCl. Experimental determination of the halite liquidus and isochores for 40 wt% NaCl solution // Geochemica et Cosmochimica Acta. – 1994. – V. 58. – № 3. – P. 1053–1063.
22. Sterner S.M., Hall D.L., Bodnar R.J. Synthetic fluid inclusions: V. Solubility relations in the system NaCl-KCl-H<sub>2</sub>O under vapor-saturated conditions // Geochemica et Cosmochimica Acta. – 1988. – V. 52. – P. 989–1055.
23. Aseyev G.G. Electrolytes Supramolecular interactions and non-equilibrium phenomena in concentrated solutions. – Boca Raton: LLC CRC Press by Taylor & Francis Group. 2015. – 362 p.
24. Гайдуков Л.А. Подходы к гидродинамическому моделированию в условиях аномального проявления геологических эффектов при разработке нестандартных коллекторов // Нефтепромысловое дело. – 2020. – № 9. – С. 5–13.
25. Гайдуков Л.А. Моделирование изменения проницаемости околоскважинной зоны добывающей скважины при фильтрации высокоминерализованного раствора хлористого натрия // Нефтяное хозяйство. – 2021. – № 2. – С. 82–85.
26. Jin M., Ribeiro A., Mackay E. Geochemical modeling of formation damage risk during CO<sub>2</sub> injection in saline aquifers // Journal of Natural Gas Science and Engineering. – 2016. – V. 35. – Part A. – P. 703–719.
27. Shaibu R., Sokama-Neuyam Y.A., Ursin J.R. A theoretical study of the effect of salt precipitation on CO<sub>2</sub> injectivity // SPE International conference and exhibition on formation damage control. – Lafayette, Louisiana, USA, 2018 – SPE-189470-MS.
28. Verma A., Pruess K. Thermohydrological conditions and silica redistribution near highlevel nuclear wastes emplaced in saturated geological formations // Journal of Geophysical Research. – 1988. – V. 93. – Iss. B2. – P. 1159–1173.

29. Xu T., Pruess K. Numerical simulation of injectivity effects of mineral scaling and clay swelling in a fractured geothermal reservoir. – Berkeley: Lawrence Berkeley National Laboratory, 2004. – 14 p.
30. Carman P.C. Flow of gases through porous media. – London: Butterworth, 1956. – 187 p.
31. Fetkovich M.J. A simplified approach to water influx calculation - finite aquifer systems // Journal of Petroleum Technology. – 1971. – V. 23. – № 7. – P. 814–828.

*Поступила 25.05.2022 г.  
Прошла рецензирование 05.09.2022 г.*

#### **Информация об авторах**

**Малюгин Р.В.**, кандидат физико-математических наук, ведущий инженер научно-исследовательской лаборатории вычислительной гидродинамики научно-исследовательского отдела математического моделирования нефтегазовых месторождений Тюменского отделения «СургутНИПИнефть».

**Ходанович Д.А.**, начальник научно-исследовательского отдела математического моделирования нефтегазовых месторождений Тюменского отделения «СургутНИПИнефть», ПАО «Сургутнефтегаз».

UDC 662.276:550.8.013

## APPROACH TO MATHEMATICAL MODELING OF RESERVOIR SALT DISSOLUTION USED IN THE HYDRODYNAMIC SIMULATOR TECSCHEME

Roman V. Malyugin<sup>1</sup>,  
roma\_malyugin@mail.ru

Dmitriy A. Khodanovich<sup>1</sup>,  
khodanovich\_da@surgutneftegas.ru

<sup>1</sup> Tyumen Branch of SurgutNIPIneft, PJSC Surgutneftegas,  
12/7, Rosa Luksemburg street, Tyumen, 625003, Russia.

**The relevance** of the research is caused by the need to modeling the process of dissolution reservoir salt during flooding of hydrocarbon deposits, taking into account changes in the filtration-capacitance properties of the reservoir rock on the amount of undissolved salt and the physical properties of the aqueous phase on the amount of salt dissolved in it.

**The main aim** of the research is to develop a mathematical model of fluid filtration in reservoirs, taking into account the reservoir salt dissolution in the aqueous phase and providing for the possibility of finding a salt solution in the aqueous phase in saturated and unsaturated states.

**The object** of the research is the solution of the equation of three-phase three-dimensional fluid filtration in reservoirs containing undissolved salt, accompanied by the change in the density and viscosity of the aqueous phase depending on the amount of salt dissolved in it and the change in the porosity and permeability of the reservoir rock when the reservoir salt is dissolved.

**Methods:** numerical solution of differential equations systems of the Masket–Meres non-volatile oil model using the implicit pressure explicit saturation method.

**Results.** Using the developed mathematical model of salt dissolution, a test problem was calculated, during which the geological reserves of undissolved salt, the mineralization of reservoir water, amount of dissolved salt and average concentration of dissolved salt in the aqueous phase were determined when changing input parameters such as the salt dissolution rate constant and the maximum allowable salinity and concentration of salt solution. It is shown that the results of numerical modeling correctly describe the processes occurring during the dissolution of the reservoir salt and do not contradict the physical concepts of this process.

### Key words:

Mathematical model, hydrodynamics, numerical methods, deformable porous media, filtration, salt dissolution.

### REFERENCES

- Bogdanov A.V., Ismajilov T.A. Estimation of the rate constant of halite dissolution in an open volume and in a porous medium. *Scientific and technical collection. News of gas science*, 2017, vol. 30, no. 2, pp. 208–213. In Rus.
- Kovalev A.L., Korchazhkina I.Yu., Savchenko N.V., Fomin E.L., Sheberstov E.V., Kyzovkov A.A. Application of the tNavigator simulator to assess the impact of salinization of the reservoir on the development of an oil and gas condensate field. *Scientific and technical collection. News of gas science*, 2017, vol. 30, no. 2, pp. 14–23. In Rus.
- Bogachev K., Milyutin S., Nazarov V. Numerical simulation of reservoir salt dissolution using fully implicit scheme within isothermal compositional model of hydrocarbon filtration. *SPE Russian Petroleum Technology Conference and Exhibition*. Moscow, 2018. Article number SPE-191623-18RPTC-MS.
- Bogachev K.Yu., Milyutin S.V., Dzuba V.I. Numerical modelling of salty reservoir water-flooding with fresh water. *SPE Russian Oil & Gas Exploration & Production Technical Conference and Exhibition*. Moscow, 2012. Article number SPE-162091.
- Shakirov R.R., Shelest N.N., Komalov S.B., Safiannikov I.M., Rozova A.R., Gidrodinamicheskoe modelirovanie effekta rassoleniya terrigenykh kolektorov pri zavodnenii presnoy vodoy [Hydrodynamic modeling of the effect of settlement of terrigenous reservoirs during flooding with fresh water]. *Neft. Gaz. Novatsii*, 2020, vol. 231, no. 2, pp. 12–16.
- ECLIPSE. Technical Description*. Version 2014.1. P. 51–67.
- Bakhty N.S. *Nekotorye aspekty modelirovaniya mnogofaznoy mnogokomponentnoy filtratsii i testirovaniya vychislitelnykh algoritmov, indusirovannye programmy kompleksom «Tekhskhema»*. Diss. Kand. nauk [Some aspects of modeling of multiphase multicomponent filtering and testing of computational algorithms induced by the «Techshema» software package. Cand. Diss.]. Tyumen, 2012. 136 p.
- Baturin Yu.E., Bakhty N.S., Safiyllina M.V. Issledovanie pogreshnosti opredeleniya produktivnosti skvazhin v gidrodinamicheskoy modeli [Investigation of the error in determining the productivity of wells in the hydrodynamic model]. *Neft i gas*, 2012, no. 2, p. 43–48.
- Bakhty N.S., Aristov A.A., Khodanovich D.A., Misharin M.V., Tupicin M.S. Reservoir simulation of major oil fields in Surgutneftegas OJSC using high performance computing. *Oil industry*, 2017, no. 5, pp. 64–67. In Rus.
- Bigdiev R.Kh., Shumilova E.Yu. Delta-funktsiya Diraka: elementy teorii obobshchennykh funktsiy [Dirac delta function: elements of the theory of generalized functions]. *Universitetskaya nauka*, 2019, no. 2, pp. 124–127.
- Aziz K., Settari A. *Petroleum reservoir simulation*. London, Applied Science publisher Ltd, 1979.
- Cai H., Li P., Feng M., Hao Y., Lu D., Xian Y. A fully mass conservative numerical method for multiphase flow in fractured porous reservoirs. *Transport in porous media*, 2021, vol. 139, pp. 171–184.
- Galindez-Ramirez G., Contreras F.R.I., Carvaiho D.K.E., Lyra P.R.M. Numerical simulation of two-phase flows in 2-D petroleum reservoirs using a very high-order CPR method coupled to the MPFA-D finite volume scheme. *Journal of petroleum science and engineering*, 2020, vol. 192, article number 107220.
- Afanaskin I.V., Volpin S.G., Korolev A.V., Yalov P.V. Ispolzovanie metoda Nyutona–Rafsona pri mnogokomponentnom matematicheskom modelirovanii razrabotki mestorozhdeniy zhidkikh i gazoobraznykh uglevodorodov [The use of the Newton–Raphson method in multicomponent mathematical modeling of the development of deposits of liquid and gaseous hydrocarbons]. *Vestnik kibernetiki*, 2018, no. 2, pp. 32–42.
- Nekrasov A.A. Testy i metodiki ispytaniya programmogo obespecheniya razrabotki mestorozhdeniy [Tests and methods for testing field development software]. *Vestnik Rosnedra*, 2008, no. 1, pp. 54–64.

16. Odeh A. Comparison of solutions to a three dimensional black-oil reservoir simulation problem. *Journal of Petroleum Technology*, 1981, no. 33, pp. 13–25.
17. Firoozabadi A., Thomas K.L. Sixth SPE comparative solution project: dual porosity simulators. *Journal of Petroleum Technology*, 1990, no. 42, pp. 710–715.
18. Nghiem L., Collins A. D., Sharma R. Seventh SPE comparative solution project: modeling of horizontal wells in reservoir simulation. *11<sup>th</sup> SPE Symposium on Reservoir simulation*. Anaheim, California, USA, 1991. Article number SPE 21221. pp. 195–207.
19. Christie M.A., Blunt M.J. Tenth SPE comparative solution project: a comparison of upscaling techniques. *SPE Reservoir Simulation Symposium*. Houston, Texas, USA, 2001. Article number SPE 66599.
20. Baturin Yu.E., Majer V.P. Hydrodynamic model of three-dimensional three-phase filtration «Techshema». *Oil industry*, 2002, no. 3, pp. 38–42. In Rus.
21. Bodnar R.J. Synthetic fluid inclusions: XII. The system H<sub>2</sub>O-NaCl. Experimental determination of the halite liquidus and isochores for 40 wt. % NaCl solution. *Geochemica et Cosmochimica Acta*, 1994, vol. 58, no 3, pp. 1053–1063.
22. Sterner S.M., Hall D.L., Bodnar R.J. Synthetic fluid inclusions: V. Solubility relations in the system NaCl-KCl-H<sub>2</sub>O under vapor-saturated conditions. *Geochemica et Cosmochimica Acta*, 1988, vol. 52, pp. 989–1055.
23. Aseyev G.G. *Electrolytes Supramolecular interactions and non-equilibrium phenomena in concentrated solutions*. Boca Raton, LLC CRC Press by Taylor & Francis Group, 2015. 362 p.
24. Gaydukov L.A. Podkhody k gidrodinamicheskomu modelirovaniyu v usloviyakh anomal'nogo proyavleniya geologo-tekhnologicheskikh effektov pri razrabotke nestandartnykh kollektorov [Approaches to hydrodynamic modeling under conditions of anomalous geological and technological effects in the development of non-standard reservoirs]. *Neftpromyslovoe delo*, 2020, no. 9, pp. 5–13.
25. Gaydukov L.A. Modeling of changes in the permeability of the near-well zone of an oil reservoir during filtration of highly mineralized salt solution NaCl. *Oil industry*, 2021, no. 2, pp. 82–85. In Rus.
26. Jin M., Ribeiro A., Mackay E. Geochemical modeling of formation damage risk during CO<sub>2</sub> injection in saline aquifers. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 2016, vol. 35, Part A, pp. 703–719.
27. Shaibu R., Sokama-Neuyam Y.A., Ursin J.R. A theoretical study of the effect of salt precipitation on CO<sub>2</sub> injectivity. *SPE International Conference and Exhibition on Formation Damage Control*. Lafayette, Louisiana, USA, 2018. Article number SPE 189470.
28. Verma A., Pruess K. Thermohydrological conditions and silica redistribution near highlevel nuclear wastes emplaced in saturated geological formations. *Journal of Geophysical Research*, 1988, vol. 93, Iss. B2, pp. 1159–1173.
29. Xu T., Pruess K. *Numerical simulation of injectivity effects of mineral scaling and clay swelling in a fractured geothermal reservoir*. Berkeley, Lawrence Berkeley National Laboratory, 2004. 14 p.
30. Carman P.C. *Flow of gases through porous media*. London, Butterworth, 1956. 187 p.
31. Fetkovich M.J. A simplified approach to water influx calculation – finite aquifer systems. *Journal of Petroleum Technology*, 1971, pp. 814–828.

Received: 25 May 2022.  
Reviewed: 5 September 2022.

#### Information about the authors

**Roman V. Malyugin**, Cand. Sc., leading engineer, Tyumen Branch of SurgutNIPIneft, PJSC Surgutneftegas.

**Dmitriy A. Khodanovich**, head of the research department, Tyumen Branch of SurgutNIPIneft, PJSC Surgutneftegas.



УДК 504.455(504.4.062.2)

## ГИДРОХИМИЧЕСКАЯ ИЗМЕНЧИВОСТЬ РЕКИ АНГАРЫ ПРИ СОЗДАНИИ БОГУЧАНСКОГО ВОДОХРАНИЛИЩА (РОССИЯ)

Полетаева Вера Игоревна<sup>1,2</sup>,  
alieva@igc.irk.ru

<sup>1</sup> Институт геохимии им. А.П. Виноградова СО РАН,  
Россия, 664033, г. Иркутск, ул. Фаворского, 1а.

<sup>2</sup> Иркутский национальный исследовательский технический университет,  
Россия, 664074, г. Иркутск, ул. Лермонтова, 83.

**Актуальность** исследования обусловлена необходимостью контроля за гидрохимическими параметрами крупной пресной водной экосистемы для объективной оценки трансформации водоема, находящегося под антропогенным воздействием.

**Цель:** изучить пространственно-временную динамику концентраций основных ионов в водах р. Ангары и Богучанском водохранилище.

**Объекты:** р. Ангара до ее зарегулирования плотинами Богучанской ГЭС (2007 г.) и Богучанское водохранилище в период его заполнения (2013, 2014 гг.) и стабилизации уровня (2015, 2017 гг.).

**Методы.** Химический анализ образцов воды проведен в Центре коллективного пользования «Изотопно-геохимических исследований» ИГХ СО РАН (г. Иркутск, Россия). Измерение концентрации  $\text{Na}^+$  и  $\text{K}^+$  в воде выполнено эмиссионным пламенно-фотометрическим методом,  $\text{Ca}^{2+}$  и  $\text{Mg}^{2+}$  – методом атомно-абсорбционной спектроскопии,  $\text{SO}_4^{2-}$  – турбидиметрическим методом,  $\text{Cl}^-$  – меркуриметрическим методом,  $\text{HCO}_3^-$  – титриметрическим методом.

**Результаты.** В пространственно-временном аспекте изучены концентрации катионов ( $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ) и анионов ( $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Cl}^-$ ). Результаты исследования показали близкие значения TDS в воде мониторинговых станций р. Ангары (140,7–154,6 мг/л) и Богучанского водохранилища (139,1–172,3 мг/л). Однако увеличение уровня водоема приводит к изменению в соотношении концентраций главных ионов. По сравнению с р. Ангарой, в начальный период функционирования Богучанского водохранилища в воде увеличиваются концентрации  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ , уменьшаются концентрации  $\text{HCO}_3^-$  и  $\text{Ca}^{2+}$ . Ионный состав вод Богучанского водохранилища определяется прежде всего вкладом из области, расположенной выше по потоку (сток из Усть-Илимского водохранилища). К антропогенным факторам относятся сточные воды и само создание водохранилища, оказывающие влияние на гидрохимию главных ионов.

### Ключевые слова:

мониторинг, антропогенные эффекты, заполнение водохранилища, гидрохимия, главные ионы.

### Введение

Ярким примером воздействия человеческой деятельности на поверхностные водные ресурсы является создание водохранилищ, которые используются в основном для снабжения человека питьевой и оросительной водой, а также производства электроэнергии. Создание водохранилищ нарушает естественные характеристики реки и создает ряд экологических проблем (изменение климата, загрязнение воды, разрушение водных и прилегающих наземных экосистем и т. д.) как во время их строительства, так и во время функционирования [1, 2].

В XX в. создание водохранилищ приобрело планетарный характер. По данным [3] в мире насчитывается более 45000 больших плотин с водохранилищами. В России гидротехническое строительство стало активно развиваться с середины XX в., а в настоящее время насчитывается 102 крупных ГЭС и большое количество мелких ГЭС [4]. К крупным рекам России, ландшафт речных бассейнов которых преобразован за счет их зарегулирования, относится р. Ангара (длина 1779 км) – единственный сток чистейшего пресного озера Байкал (рис. 1). В 50–70-е гг. XX в. на р. Ангаре создано Иркутское, Братское и Усть-Илимское водохранилища, которые изменили ее гидрологические характеристики на протяжении более 1000 км. В начале XXI в. при созда-

нии четвертого в каскаде Ангарских ГЭС Богучанского водохранилища трансформации подвергся еще один участок р. Ангары протяженностью 375 км. В результате строительства четырех плотин на р. Ангаре образовалась крупнейшая система хранения воды в мире [5]. Систематические гидрохимические данные по Иркутскому, Братскому и Усть-Илимскому водохранилищам получены в разные периоды их функционирования [6–8]. Результаты исследования состава вод р. Ангары в зоне создания Богучанского водохранилища относятся к 70–80-м гг. XX в. [9]. Позднее разработана прогнозная математическая модель для учета возможных изменений общего содержания растворенных солей (total dissolved solids (TDS)) и концентрации органических веществ в воде р. Ангара после ее зарегулирования плотинами Богучанской ГЭС [10]. Показано, что при заполнении Богучанского водохранилища в среднем ожидается повышение TDS вод до 20–40 мг/л. Вместе с этим чтобы объективно ответить на вопрос, справится ли р. Ангара с антропогенной нагрузкой при создании четвертого водохранилища, необходимо проведение мониторинговых исследований всех компонентов экосистемы водоема. В первую очередь, должно быть проведено изучение гидрохимических характеристик созданного природно-техногенного водоема, которые являются надежными показателями при оценке эволюции водных объектов. В связи с этим целью работы является изучение пространственно-

временной динамики основных ионов в водах р. Ангара до ее зарегулирования плотиной Богучанской ГЭС и Богучанского водохранилища в период его наполнения и стабилизации уровня (режим эксплуатации).

#### Объект исследования

Река Ангара входит в состав крупнейшего в России бассейна р. Енисей, впадающего в Карское море Северного Ледовитого океана. Положение р. Ангара в центре материка определяет резко континентальный климат с большими колебаниями температур на территории ее бассейна. В бассейне Богучанского водохранилища среднегодовая температура воздуха колеблется в пределах от  $-2,6$  до  $-4,3$  °С, среднемесячная температура июля от  $+18,1$  до  $+18,8$  °С, января – от  $-24,4$  до  $-27,4$  °С [11]. Территория расположена в

юго-западной части Сибирской платформы и сложена терригенно-карбонатными породами кембрия и ордовика, терригенно-угленосными отложениями карбона, перми и юры, туфолововыми образованиями триаса и интрузиями траптов. Почти повсеместно развиты четвертичные отложения разного генезиса [12]. Особенностью подзолистых, дерново-подзолистых и торфяно-глеевых почв, преобладающих на территории, является обедненность гумусом и слабое развитие подзолообразовательного процесса, что связано с высокой степенью карбонатности многих почвообразующих пород и неблагоприятным гидротермическим режимом [12]. До создания Богучанского водохранилища русло р. Ангара из-за множества островов разделялось на два равнозначных рукава (рис. 1).

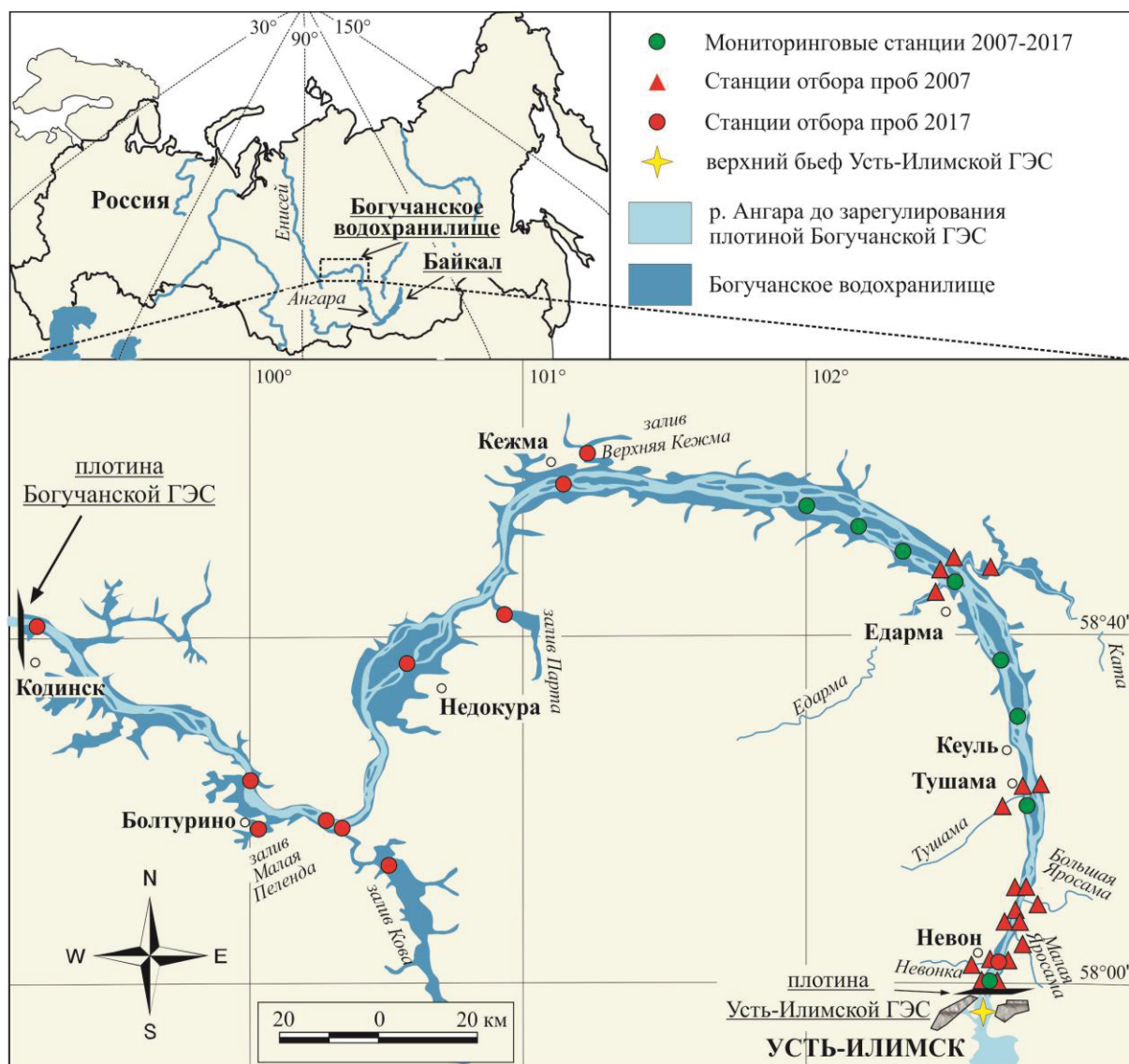


Рис. 1. Карта-схема района исследований

Fig. 1. Map of the study area

Строительство Богучанской ГЭС началось в 1980 г., а в 1987 г. было остановлено. Работы по строительству плотины Богучанской ГЭС продолжены в

2006 г. В 2012 г. началось заполнение водохранилища. В августе 2013 г. уровень воды в водохранилище составил 188 м БС, 2014 г. – 203 м БС. До проектной

отметки, соответствующей 208 м БС, Богучанское водохранилище заполнено в мае 2015 г. В августе 2015 г. уровень водохранилища составлял 207,6 м БС, 2017 г. – 207,0–207,5 м БС. На отметке 208 м над уровнем моря площадь водохранилища составляет 2326 км<sup>2</sup>, длина – 375 км, максимальная глубина – 75 м, средняя глубина – 45 м. Приток воды в Богучанское водохранилище, определяется водами, поступающими из верхнего бьефа в нижний бьеф Усть-Илимской ГЭС и боковой приточностью.

#### Методы исследования

Изучение пространственно-временной динамики концентраций главных ионов в воде р. Ангары и Богучанского водохранилища выполнено в разные стадии функционирования водоемов:

- 2007 г. – р. Ангара до зарегулирования плотиной Богучанской ГЭС;
- 2013, 2014 гг. – Богучанское водохранилище в стадии подъема уровня при заполнении;
- 2015, 2017 гг. – Богучанское водохранилище в стадии стабилизации уровня и становления водоема.

В 2007, 2013, 2014 и 2015 гг. работы проводились на мониторинговых точках, приуроченных к верхней части Богучанского водохранилища (1–120 км ниже плотины Усть-Илимской ГЭС). В 2017 г. – по всей акватории Богучанского водохранилища (от Усть-Илимской ГЭС до Богучанской ГЭС), включая основные заливы водоема (рис. 1). Для изучения факторов формирования гидрохимического состава отобранны пробы воды на станции, расположенной в верхнем бьефе Усть-Илимской ГЭС, пробы вод основных притоков и вод р. Ангары выше и ниже впадения. Станции отбора проб нижнего бьефа Усть-Илимской ГЭС расположены в середине, а также по левому и правому берегам водоема.

В р. Ангаре и ее притоках (глубина не более 4 м) отбор проб воды осуществлен с поверхностного слоя воды (глубина 0,6 м). В Богучанском водохранилище по мере увеличения глубин (5 и более м) с двух горизонтов: поверхностного – с глубины 0,6 м и придонного – в метровом слое от дна. Пробы воды верхнего бьефа Усть-Илимской ГЭС отобраны с поверхностного (0,6 м) и придонного (100 м) слоя, а также с глубины 5, 10, 15, 25, 40, 50, 60 и 75 м. Отбор образцов воды осуществлен батометром Ocean Test 110А. Образцы собраны в предварительно очищенные емкости, которые перед отбором трижды ополаскивались отбираемой водой.

Основные ионы в образцах вод определены в ЦКП «Изотопно-геохимических исследований» ИГХ СО РАН (г. Иркутск, Россия). Измерение концентрации  $\text{Na}^+$  и  $\text{K}^+$  в воде выполнено эмиссионным пламенно-фотометрическим методом,  $\text{Ca}^{2+}$  и  $\text{Mg}^{2+}$  – методом атомно-абсорбционной спектрометрии,  $\text{SO}_4^{2-}$  – турбидиметрическим методом,  $\text{Cl}^-$  – меркуриметрическим методом,  $\text{HCO}_3^-$  – титриметрическим методом. Предел обнаружения (ПО) для  $\text{Ca}^{2+}$  составляет 0,2 мг/л,  $\text{Mg}^{2+}$  – 0,04 мг/л,  $\text{Na}^+$  – 1 мг/л,  $\text{K}^+$  – 1 мг/л,  $\text{Cl}^-$  – 1 мг/л,  $\text{SO}_4^{2-}$  – 10 мг/л,  $\text{HCO}_3^-$  – 6 мг/л. Для всех

анализов использовались реагенты высокой чистоты и вода milli-Q. Возможное загрязнение во время отбора проб проверялось по холостым образцам, предварительно подготовленным с использованием стандартной процедуры. Для проверки точности химического анализа каждой пробы между катионами и анионами была рассчитана процентная ошибка баланса ионов (ОБИ). ОБИ находилась в пределах  $\pm 5\%$ .

#### Результаты

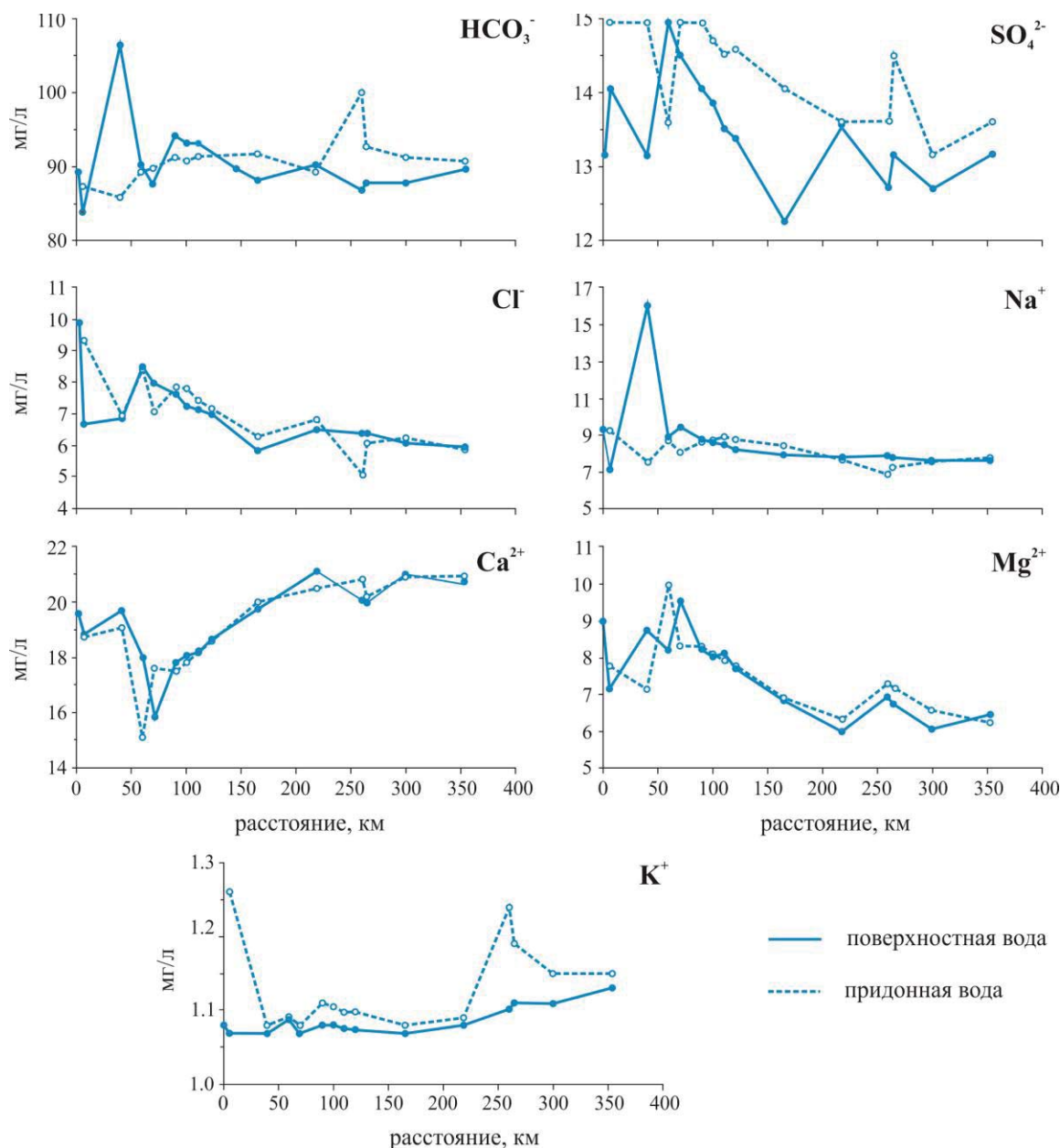
Концентрация основных ионов в воде р. Ангары и Богучанского водохранилища

Значение минерализации в воде Богучанского водохранилища в 2017 г. изменяется в пределах от 139,1 до 172,3 мг/л. Концентрации основных ионов в его русловой части представлены на рис. 2 и в табл. 1. Результаты исследований показывают, что вариации в концентрации главных ионов наблюдаются как по глубине, так и по длине водохранилища. В воде верхней части водохранилища более высокие концентрации  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  (рис. 2). Концентрации  $\text{Ca}^{2+}$ , напротив, возрастают в нижней части водоема. В поверхностной и придонной воде большинства станций наблюдений концентрации  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{HCO}_3^-$  и  $\text{Cl}^-$  близки между собой. По сравнению с поверхностной, в придонной воде повышены концентрации  $\text{SO}_4^{2-}$ .

Концентрации главных ионов в основных заливах и русловой части водохранилища близки между собой (табл. 1, 2). Исключением является придонная вода зал. Кова, в которой более чем в 2 раза, по сравнению с поверхностной, повышены концентрации  $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ .

На мониторинговых станциях в воде р. Ангары до зарегулирования (2007 г.) концентрации  $\text{HCO}_3^-$  изменяются от 87,1 до 96,5 мг/л,  $\text{SO}_4^{2-}$  – от 9,9 до 18,9 мг/л,  $\text{Cl}^-$  – от 5,0 до 7,5 мг/л,  $\text{Ca}^{2+}$  – от 20,3 до 23,6 мг/л,  $\text{Mg}^{2+}$  – от 5,0 до 5,9 мг/л,  $\text{Na}^+$  – от 6,6 до 7,3 мг/л,  $\text{K}^+$  – от 1,02 до 1,13 мг/л. В воде Богучанского водохранилища (2013, 2014, 2015 и 2017 гг.) наблюдается межгодовая динамика концентраций главных ионов (рис. 3). Изменение речного режима водоема на режим водохранилища мало отразилось только на  $\text{K}^+$ , концентрации которого весь период опробования изменялись от 1,02 до 1,30 мг/л. За весь период исследования наиболее близкими являются средние концентрации  $\text{HCO}_3^-$ , которые в 2007 г. составляют 93,0 мг/л, в 2013 г. – 85,8 мг/л, в 2014 г. – 85,3 мг/л, в 2015 г. – 87,0 мг/л и в 2017 г. – 90,3 мг/л. В 2007 и 2013 гг. близки между собой концентрации  $\text{Ca}^{2+}$  (от 20,3 до 23,6 мг/л) и  $\text{Mg}^{2+}$  (от 4,9 до 6,3 мг/л). По сравнению с водой р. Ангары, в воде Богучанского водохранилища в 2013 г. возрастают средние концентрации  $\text{Cl}^-$  (7,6 мг/л),  $\text{SO}_4^{2-}$  (20,2 мг/л), в меньшей степени  $\text{Na}^+$  (7,3 мг/л). По сравнению с 2013 г., в 2014 и 2015 гг. средние концентрации  $\text{SO}_4^{2-}$  (15,7 и 13,3 мг/л, соответственно) уменьшаются, а  $\text{Cl}^-$  (8,6 и 8,6 мг/л, соответственно) и  $\text{Na}^+$  (8,6 и 8,9 мг/л, соответственно) увеличиваются. На мониторинговых точках в 2017 г., по сравнению с 2007 г., средние концентрации  $\text{SO}_4^{2-}$  (14,0 мг/л),  $\text{Cl}^-$  (7,5 мг/л),  $\text{Na}^+$  (8,9 мг/л),  $\text{Mg}^{2+}$  (7,9 мг/л) выше, а  $\text{Ca}^{2+}$  (18,6 мг/л) – ниже.





**Рис. 2.** Распределение главных ионов в воде Богучанского водохранилища в 2017 г.  
**Fig. 2.** Distribution of major ions in Boguchany reservoir water samples measured in 2017

**Боковой приток**

Левобережные притоки (р.р. Невонка, Тушамы, Едарма) и р. Малая Ярославка имеют более высокую TDS (263-373 мг/л), чем р. Ангара (табл. 1, 3). Правобережные притоки (р.р. Большая Ярославка, Ката) содержат меньшее количество растворенных веществ. По сравнению с правобережными, левобережные притоки содержат более высокие концентрации  $\text{HCO}_3^-$  (от 232 до 265 мг/л) и  $\text{Na}^+$  (от 36,5 до 49,1 мг/л). В концентрации других главных ионов не прослеживаются каких-либо значимых отличий у правобережных и левобережных притоков р. Ангары.

**Концентрация главных ионов в верхнем бьефе УИ ГЭС**

В верхнем бьефе УИ ГЭС в 2014 и 2017 гг. только концентрации  $\text{K}^+$  находятся в близком интервале (от 1,0 до 1,5 г/л). Распределение других ионов неодно-

родно по глубине (рис. 4). В 2014 и 2017 гг. на глубинах от 0 до 40 м концентрация  $\text{HCO}_3^-$  в воде составляет 74,7–81,0 мг/л,  $\text{SO}_4^{2-}$  – 11,6–16,0 мг/л,  $\text{Cl}^-$  – 3,1–4,1 мг/л,  $\text{Ca}^{2+}$  – 17,6–21,9 мг/л,  $\text{Mg}^{2+}$  – 4,5–6,6 мг/л,  $\text{Na}^+$  – 4,7–5,4 мг/л. TDS изменяется от 123,9 до 135,3 мг/л при среднем значении 127,8 мг/л. На глубинах от 40 до 100 м в воде верхнего бьефа УИВ TDS повышается от 135,3 до 359,3 мг/л. В 2014 г. в большей степени изменяются концентрации  $\text{Cl}^-$  (до 35,19 мг/л),  $\text{Na}^+$  (до 14,9 мг/л) и  $\text{Mg}^{2+}$  (до 11,2 мг/л), в меньшей степени – концентрации  $\text{HCO}_3^-$  (до 87,8 мг/л),  $\text{SO}_4^{2-}$  (до 19,0 мг/л),  $\text{Ca}^{2+}$  (до 24,0 мг/л). В 2017 г. большая вариабельность отмечена для всех главных ионов:  $\text{HCO}_3^-$  (от 82,0 до 139,1 мг/л),  $\text{SO}_4^{2-}$  (от 13,5 до 24,1 мг/л),  $\text{Cl}^-$  (от 4,9 до 87,5 мг/л),  $\text{Ca}^{2+}$  (от 22,0 до 34,2 мг/л),  $\text{Mg}^{2+}$  (от 5,2 до 12,3 мг/л),  $\text{Na}^+$  (от 6,4 до 59,0 мг/л).

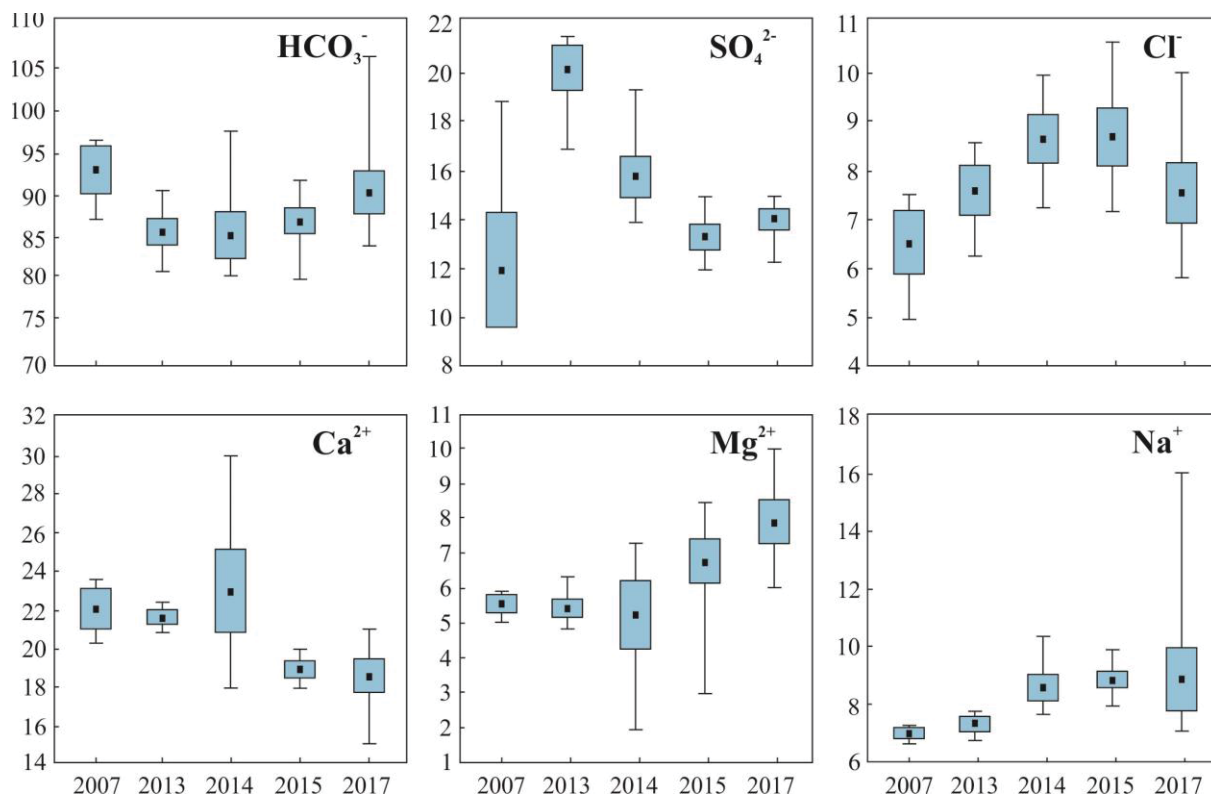


**Таблица 1.** *Гидрохимический состав оз. Байкал, р. Ангары и водохранилищ Ангарского каскада ГЭС, мг/л*  
**Table 1.** *Hydrochemical composition of Lake Baikal, Angara River and its reservoirs. The values are in mg L<sup>-1</sup>*

Водоем/Pond	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Cl <sup>-</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	TDS	Источник References
Озеро Байкал /Lake Baikal	66,3	5,5	0,44	16,4	3,0	3,3	1,0	~96	[13]
Исток р. Ангары Angara River source	66,2	5,70	0,60	15,4	3,3	4,2		95,6	[14]
Иркутское водохранилище Irkutsk reservoir	66,5	5,6	0,9	16,1	3,6	3,8		96,5	[7]
Братское водохранилище Bratsk reservoir	71,9	11,3	3,0	19,8	3,9	4,0	1,0	101,2–127,7	[15]
Усть-Илимское водохранилище Ust-Ilimsk reservoir	79,6	16,2	5,5	19,1	6,5	6,3	1,1	134,7	[16]
Верхний бьеф Усть-Илимской ГЭС UST-Ilimsk HPP headwater	77,8(100,0)*	13,9(18,7)	3,6(34,3)	20,3(25,7)	5,1(8,7)	5,0(22,8)	1,0(1,3)	127,1(212,0)	настоящее исследование this study
р. Ангара в районе Богучанского водохранилища (мониторинговые станции, 2007 г.) Angara River close to Boguchany reservoir (monitoring stations, 2007)	<u>87,1–96,5</u> ** 93,0	<u>9,9–18,9</u> 11,9	<u>5,0–7,5</u> 6,5	<u>20,3–23,6</u> 22,1	<u>5,0–5,9</u> 5,6	<u>6,6–7,3</u> 7,0	<u>1,0–1,1</u> 1,1	<u>140,7–154,6</u> 147,8	
Богучанское водохранилище (мониторинговые станции, 2017 г.) Boguchany reservoir (monitoring stations, 2017)	<u>83,9–106,4</u> 90,3	<u>12,2–14,9</u> 14,0	<u>5,8–9,9</u> 7,5	<u>15,1–21,1</u> 18,6	<u>6,0–10,0</u> 7,9	<u>7,1–16,0</u> 8,9	<u>1,1–1,3</u> 1,1	<u>139,1–172,3</u> 150,1	

Примечание: \* – средняя концентрация в слое воды от 0 до 40 м (средняя концентрация в слое воды от 40 до 100 м); \*\* – в числителе – минимальное-максимальное значения, в знаменателе – среднее значение.

Note: \* – mean concentration in 0–40 m water layer (mean concentration in the 40–100 m water layer); \*\* – numerator – the minimum and maximum values, denominator – mean value



**Рис. 3.** Концентрация основных ионов (мг/л) в воде мониторинговых станций р. Ангары (2007 г.) и Богучанского водохранилища (2013–2017 гг.). Прямоугольник – стандартная ошибка, точка в прямоугольнике – среднее значение, усы – максимальное и минимальное значение.

**Fig. 3.** Concentrations of major ions at monitoring stations on the Angara River (2007) and Boguchany reservoir (2013–2017). Concentrations are given in mg L<sup>-1</sup>. The boxes represent standard deviations, the points in the boxes represent mean values, and the whiskers indicate maximum and minimum values

**Таблица 2.** Концентрации главных ионов и величина минерализации в заливах Богучанского водохранилища, мг/л  
**Table 2.** Major ion concentrations and mineralization in bays of the Boguchany reservoir. The values are in  $\text{mg L}^{-1}$

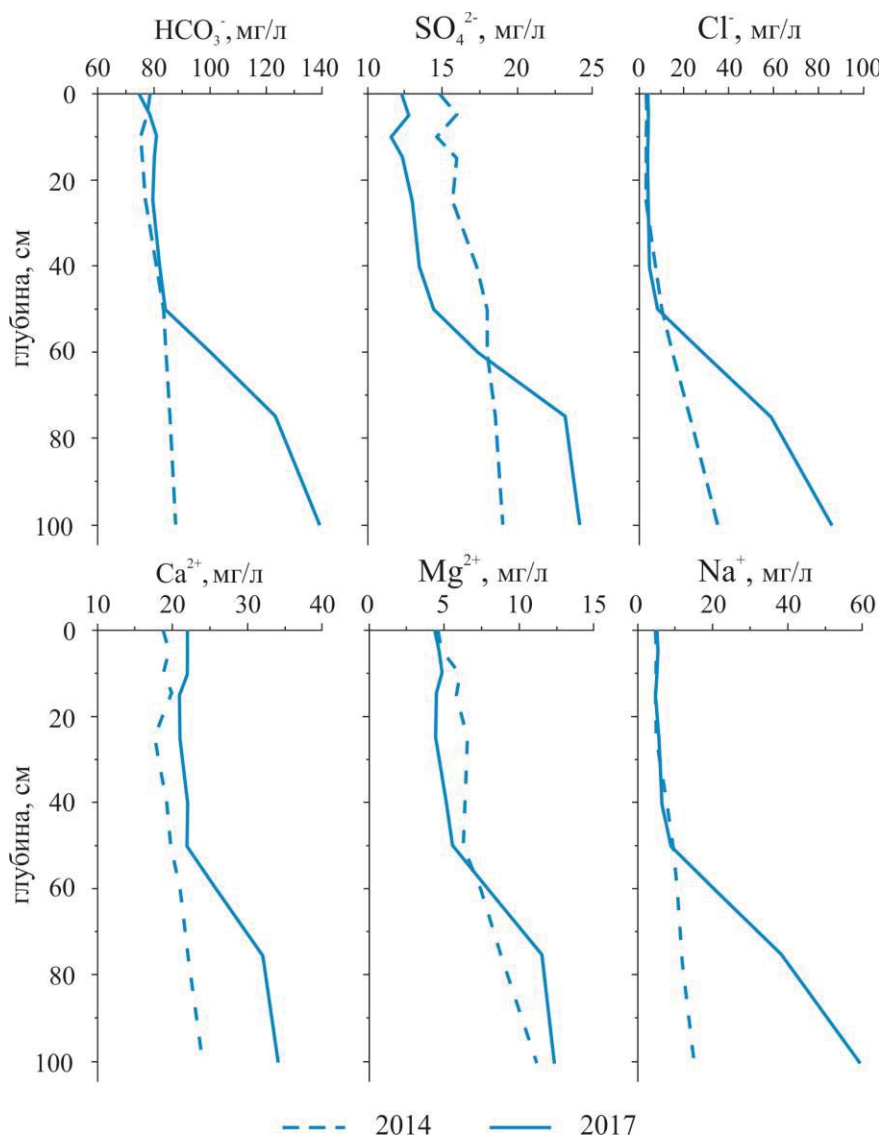
Станция/Stations	$\text{HCO}_3^-$	$\text{Cl}^-$	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{Na}^+$	$\text{K}^+$	TDS
зал. Кежма/Kezhma Bay (1)	90,3	6,3	13,1	17,6	8,1	8,1	1,08	144,8
зал. Кежма/Kezhma Bay (2)	92,2	6,7	13,6	16,7	8,9	8,6	1,11	148,1
зал. Парга/Parta Bay (1)	92,5	5,9	13,1	20,8	6,1	8,2	1,12	148,0
зал. Парга/Parta Bay (2)	107,8	4,6	12,1	21,8	6,3	9,7	1,38	164,6
зал. Кова/Kova Bay (1)	88,8	4,8	13,5	20	6,6	6,4	1,27	141,8
зал. Кова/Kova Bay (2)	194,7	2,7	13,7	49,7	5,2	9,1	2,07	278,9
Зал. Малая Пеленда/Malaya Pelenda Bay (1)	92,7	6,3	13,1	20,9	6,0	7,6	1,12	148,1
зал. Малая Пеленда/Malaya Pelenda Bay (2)	87,8	6,7	12,7	21,2	6,2	7,8	1,55	144,3

Примечание: \* – 1 – поверхностная вода, 2 – придонная вода.  
 Note: \* – 1 – surface water, 2 – bottom water.

**Таблица 3.** Гидрохимический состав притоков р. Ангары, мг/л

**Table 3.** Water geochemistry of the Angara River tributaries. The values are in  $\text{mg L}^{-1}$

Станция/Stations	$\text{HCO}_3^-$	$\text{Cl}^-$	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{Na}^+$	$\text{K}^+$	TDS
р. Малая Ярослав/ Malaya Yarosama River	175	7,8	15,8	38,2	10,8	13,9	<1	263
р. Большая Ярослав/Bolshaya Yarosama River	126	<1	4,3	19,6	7,1	11,9	<1	170
р. Ката/Kata River	99	6,0	13,3	22,7	4,7	11,7	1,0	159
р. Невонка/Nevonka River	232	2,4	6,2	31,6	9,9	36,5	<1	320
р. Тушам/ Tushama River	262	8,6	9,6	42,8	11,1	37,0	1,2	373
р. Едарма/Edarma River	265	5,4	8,3	33,5	9,4	49,1	1,2	372



**Рис. 4.** Распределение главных ионов в воде верхнего бьефа УИ ГЭС

**Fig. 4.** Distribution of the major ions in water samples from the Ust-Ilimsk HPP headwater

## Обсуждение

При изучении химического состава вод к основным источникам растворенных солей относят морские соли, выветривание минералов, а также антропогенное воздействие [17, 18]. Внутриконтинентальное расположение Богучанского водохранилища (рис. 1) позволяет пренебречь вкладом морских солей. Большое влияние на формирование гидрохимического состава оказывает водный режим водоема. И. Бочкаревым (1959) определено, что отличительной особенностью р. Ангары до зарегулирования, определяющей гидрохимический состав реки на всем протяжении, является ее питание из оз. Байкал. Доля байкальского стока в устье реки составляет 45 %. В связи с этим на формирование гидрохимического состава Богучанского водохранилища и р. Ангары влияют байкальские воды, поступающие на входной створ водохранилища через плотину УИ ГЭС. Еще одной составляющей приходной части водного баланса водохранилища является боковой приток. Относительная важность источников растворенных солей для Богучанского водохранилища обсуждается ниже.

Сток оз. Байкал, трансформированный  
в вышерасположенных водохранилищах

Гидрохимический состав оз. Байкал характеризуется постоянством концентраций основных ионов и низкой минерализацией (около 96 мг/л) [13]. Вода р. Ангары и Богучанского водохранилища также имеет низкую минерализацию, несколько повышенную относительно воды озера (табл. 1). Тенденция доминирования анионов в воде оз. Байкал, истока р. Ангары, Иркутского, Братского и Усть-Илимского водохранилищ сохраняется и в воде Богучанского водохранилища:  $\text{HCO}_3^- > \text{SO}_4^{2-} > \text{Cl}^-$  (табл. 1). В распределении катионов в оз. Байкал и водохранилищах р. Ангары наблюдается общая закономерность: концентрации  $\text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{Na}^+ > \text{K}^+$ . Для Богучанского водохранилища ведущим катионом остается  $\text{Ca}^{2+}$ . Концентрации  $\text{Na}^+$  увеличиваются и в большинстве образцов вод становятся больше концентраций  $\text{Mg}^{2+}$ . В воде водохранилища средние концентрации главных ионов выше, чем в оз. Байкал, истоке р. Ангары и водохранилищах Ангарского каскада (табл. 1). Исключением является  $\text{SO}_4^{2-}$ , средняя концентрация которого в Богучанском водохранилище выше, чем в воде оз. Байкал, истока р. Ангары, Иркутского и Братского водохранилищ, но ниже, чем в Усть-Илимском водохранилище. Изменение режима основных ионов по течению р. Ангары до ее зарегулирования происходило под влиянием горных пород, распространенных в пределах водосборного бассейна, и в меньшей степени с поступлением вод притоков различного генезиса [19].

Детальное исследование вод, поступающих в Богучанское водохранилище через плотину УИ ГЭС, показало, что концентрации главных ионов в слое от 0 до 40 м, сопоставимые между собой (рис. 4), отражают сток оз. Байкал, трансформированный в Иркутском, Братском и Усть-Илимском водохранилищах (табл. 1). На глубинах от 40 до 100 м концентрации главных ионов значительно повышаются. Химиче-

ский состав глубинных слоев воды верхнего бьефа УИ ГЭС претерпевает существенные преобразования за счет подтока высокоминерализованных подземных вод хлоридно-натриевого состава [16]. В связи с этим на входном створе Богучанского водохранилища концентрации главных ионов, особенно  $\text{Cl}^-$  и  $\text{Na}^+$  (рис. 3), повышены относительно средних по Усть-Илимскому водохранилищу.

## Выветривание

Для понимания доминирующих факторов, контролирующей химию природных вод, используется диаграмма Гиббса [20]. На диаграмме все образцы воды Богучанского водохранилища попадают в зону взаимодействия воды и породы, вклад испарения и атмосферных осадков минимален (рис. 5). Наиболее распространенными породами водосбора являются карбонаты (доломиты, известняки) и обогащенные карбонатами силикаты (песчаники, аргиллиты, алевролиты, мергели и др.) [12]. Эти породы обогащают воду  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$  и  $\text{HCO}_3^-$ .

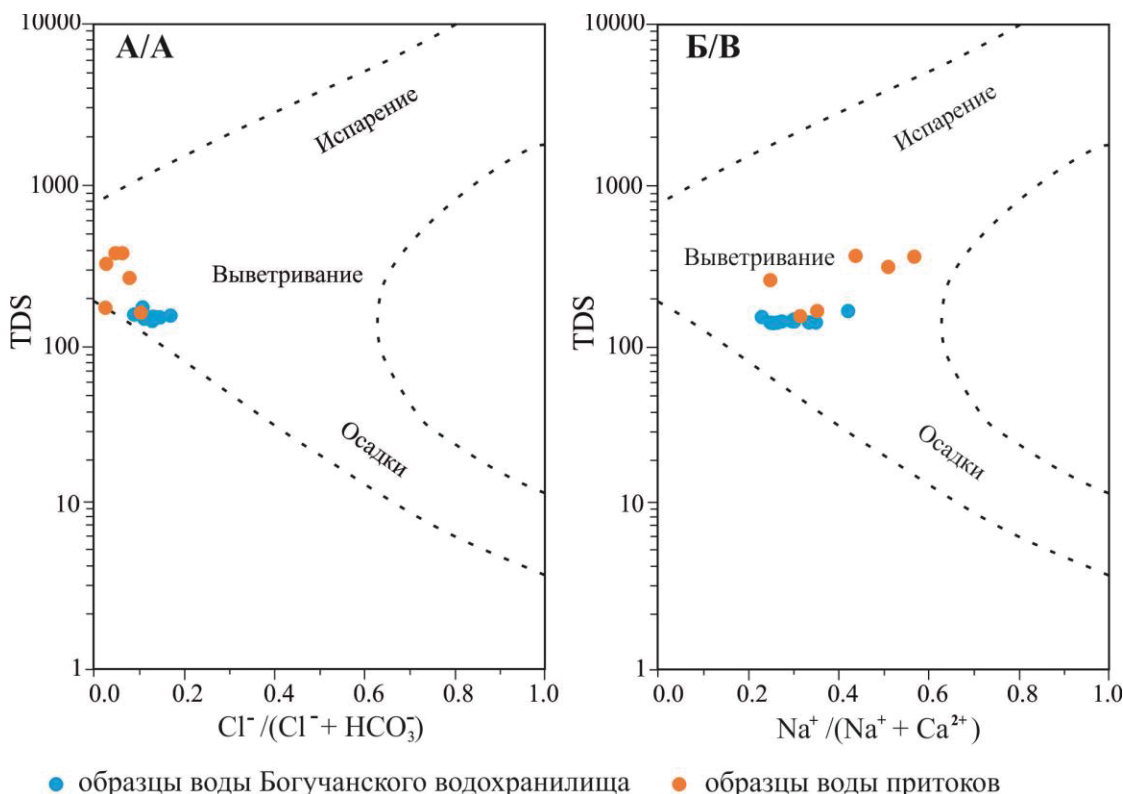
## Боковой приток

В анионном составе всех притоков доминирующим является  $\text{HCO}_3^-$ , далее  $\text{SO}_4^{2-}$  и  $\text{Cl}^-$  (табл. 4). В катионном составе рек Невонка и Едарма концентрации  $\text{Na}^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+$ , рек Малая Яросама, Большая Яросама, Ката, Тушама –  $\text{Ca}^{2+} > \text{Na}^+ > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+$ . В соответствии с диаграммой Гиббса, к основным факторам их формирования также относится влияние горных пород (рис. 5). Для всех рек наблюдается положительная зависимость между концентрациями  $\text{HCO}_3^-$  и  $\text{Na}^+$  ( $r=0,93$ ,  $p<0,01$ ),  $\text{Ca}^{2+}$  ( $r=0,77$ ,  $p<0,05$ ) и  $\text{Mg}^{2+}$  ( $r=0,81$ ,  $p<0,05$ ), а также  $\text{Cl}^-$  и  $\text{SO}_4^{2-}$  ( $r=0,79$ ,  $p<0,05$ ). Формирование гидрохимического состава притоков р. Ангары, впадающих ниже Усть-Илимской ГЭС, определяет снеговое (62–72 %) и грунтовое (25–28 %) питание. В связи с этим вариации в воде притоков концентраций  $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$  и  $\text{Mg}^{2+}$  отражают субаквальную разгрузку гидрокарбонатных щелочноземельных, щелочноземельно-натриевых и натриево-щелочноземельных грунтовых вод, формирующихся в бассейнах рек [12].

До зарегулирования р. Ангары воды притоков влияли на концентрацию основных ионов в воде реки вдоль берега их впадения, влияние боковой приточности в центральной части и у противоположного берега не определено. Концентрации основных ионов в наиболее близких от притоков русловых точках верхней части Богучанского водохранилища показывают, что при увеличении уровня воды влияние боковой приточности также не прослеживается в центральной части водоема. В нижней части отмечено увеличение концентраций  $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  в придонном слое воды в районе устья зал. Кова (260 км, рис. 2) и ниже от него (265 км, рис. 2). В самом заливе также обнаружены повышенные концентрации  $\text{HCO}_3^-$  и  $\text{Ca}^{2+}$  (табл. 2). Гидрокарбонатно-кальциевые воды р. Кова в период межени могут изменять тип воды за счет фильтрации в русло реки подземных вод с содержанием сульфатного иона до 300 мг/л и минерализацией до 2000 мг/л.

Помимо подземного питания повышение концентраций  $\text{Ca}^{2+}$  в придонных водах залива и прилегающей к нему русловой части водохранилища отражает влия-

ние попавших в зону затопления торфяных болот, которые характеризуются высоким содержанием обменного кальция (74,0–90,0 мг-экв/100 г почвы) [21].



**Рис. 5.** Диаграмма Гиббса для вод Богучанского водохранилища и его притоков: (А) общее количество растворенных твердых веществ (TDS) в зависимости от соотношения эквивалентности  $\text{Na}^+(\text{Na}^+ + \text{Ca}^{2+})$ ; (Б) отношение TDS к соотношению эквивалентности  $\text{Cl}^-(\text{Cl}^- + \text{HCO}_3^-)$ .

**Fig. 5.** Gibbs diagram of water samples from the Boguchany reservoir and its tributaries: (A) total dissolved solids (TDS) vs. equivalence ratio of  $\text{Na}^+(\text{Na}^+ + \text{Ca}^{2+})$ ; (B) TDS vs. equivalence ratio of  $\text{Cl}^-(\text{Cl}^- + \text{HCO}_3^-)$

#### Антропогенные факторы

На гидрохимический состав р. Ангары и ее водохранилищ выше Богучанского водохранилища влияют крупные промышленные комплексы гг. Иркутск, Ангарск, Усолье-Сибирское, Братск, Усть-Илимск [15, 22]. В Богучанское водохранилище по левому берегу (1 км ниже плотины УИ ГЭС) поступают сточные воды «Иркутскэнерго» и ливневых канализационных стоков г. Усть-Илимска, в составе которых из загрязняющих веществ выделены сульфаты и хлориды [23]. По правому берегу (12 км ниже плотины УИ ГЭС) – сточные воды Усть-Илимского лесопромышленного комплекса, поступающие через глубоководный выпуск и содержащие высокие концентрации  $\text{Cl}^-$  и  $\text{SO}_4^{2-}$  (463 и 65,4 мг/л, соответственно) [23]. Для Богучанского водохранилища показателем поступления сточных вод является увеличение концентраций  $\text{Cl}^-$  в поверхностных и придонных водах в 1 км ниже УИ ГЭС, а также  $\text{SO}_4^{2-}$  в придонных водах на участке 1–40 км ниже УИ ГЭС (рис. 2).

К антропогенному воздействию на водоем относятся и само образование водохранилища. Важными компонентами, контролирующими продуктивность водоема во время функционирования водохранилищ, являются растворенный кислород, соединения азота и

фосфора [24]. Происходит и изменение гидрохимии главных ионов. При этом наибольшие вариации в концентрации этих компонентов в воде наблюдаются на первых этапах эволюции новых природно-техногенных водоемов. Так, в водохранилище, созданном на реке Бигхорн (США), концентрации  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Na}^+$  и  $\text{SO}_4^{2-}$  в первый год снижаются, а в последующий – увеличиваются [25]. Создание водохранилища на р. Тиста (Гималаи) вызвало снижение в воде концентраций  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  и увеличение  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  [26]. В водохранилище Даньцзянкоу (Китай) наблюдается ежегодное увеличение антропогенных маркеров – концентраций  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Na}^+$  и  $\text{K}^+$  [27]. После зарегулирования р. Ангары концентрации главных ионов также подвержены вариациям (рис. 3). Повышение уровня воды в первый год заполнения водохранилища приводит к увеличению концентраций  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Cl}^-$  и  $\text{Na}^+$  и уменьшению концентраций  $\text{HCO}_3^-$ . В период дальнейшего подъема и стабилизации уровня водохранилища концентрации  $\text{SO}_4^{2-}$  уменьшаются, а концентрации  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  и  $\text{Na}^+$  еще более увеличиваются. В 2017 г. только средняя концентрация  $\text{HCO}_3^-$  приближается к таковой до зарегулирования реки. Средние концентрации  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  и  $\text{Na}^+$  остаются повышенными относительно 2007 г. Рас-



считанные коэффициенты корреляции за весь период исследований указывают на взаимосвязь уровня водохранилища и концентраций  $\text{Na}^+$  ( $r=0,60$ ,  $p<0,01$ ),  $\text{Cl}^-$  ( $r=0,50$ ,  $p<0,01$ ),  $\text{Mg}^{2+}$  ( $r=0,47$ ,  $p<0,01$ ),  $\text{HCO}_3^-$  ( $r=-0,52$ ,  $p<0,01$ ),  $\text{Ca}^{2+}$  ( $r=-0,57$ ,  $p<0,01$ ) в поверхностной воде, а также  $\text{Na}^+$  ( $r=0,63$ ,  $p<0,01$ ) и  $\text{SO}_4^{2-}$  ( $r=-0,94$ ,  $p<0,01$ ) в придонной воде.

Определение взаимосвязей между главными ионами в водах мониторинговых станций р. Ангары и Богучанского водохранилища проведено на основе расчета коэффициентов парной корреляции (табл. 4). Определено, что до зарегулирования р. Ангары  $\text{Ca}^{2+}$  положительно коррелирует с  $\text{HCO}_3^-$  ( $r=0,57$ ,  $p<0,01$ ) и отрицательно с  $\text{Mg}^{2+}$  ( $r=-0,71$ ,  $p<0,01$ ). Выделенная зависимость между этими компонентами характерна для пресных гидрокарбонатных кальциевых вод [28]. Результаты корреляционного анализа в годы заполнения водохранилища выявили положительную корреляцию между  $\text{HCO}_3^-$  и  $\text{Ca}^{2+}$  в 2014 г. ( $r=0,76$ ,  $p<0,01$ ),  $\text{HCO}_3^-$  и  $\text{Na}^+$  в 2014 г. ( $r=0,88$ ,  $p<0,01$ ), в 2015 г. ( $r=0,65$ ,  $p<0,01$ ), в 2017 г. ( $r=0,89$ ,  $p<0,01$ ),  $\text{Ca}^{2+}$  и  $\text{Na}^+$  в 2014 г. ( $r=0,79$ ,  $p<0,01$ ),  $\text{Cl}^-$  и  $\text{Na}^+$  в 2013 г. ( $r=0,87$ ,  $p<0,01$ ), 2014 г. ( $r=0,63$ ,  $p<0,05$ ), 2015 г. ( $r=0,92$ ,  $p<0,01$ ), которая демонстрирует их общие источники поступления. Как показано выше, из выделенных элементов, часть концентраций  $\text{HCO}_3^-$  и  $\text{Ca}^{2+}$  в воде Богучанского водохранилища связаны с водовмещающими карбонатными породами, на активизацию выветривания которых в приурезовой зоне влияет увеличение уровня воды. При отсутствии в бассейне водовмещающих пород, содержащих  $\text{Cl}^-$  и  $\text{Na}^+$  (галиты, сильвиниты и т. д.), повышение концентраций этих элементов в водной среде связывают с влиянием деятельности человека [29]. Однако результаты исследования 2017 г. показывают, что поступление сточных вод повышает концентрацию  $\text{Cl}^-$  в воде водохранилища только в районе их впадения, а концентрация  $\text{Na}^+$  вблизи выпуска сточных вод близка к средней по всему водоему (рис. 2).

Одним из последствий, связанных с повышением уровня воды, является изменение гидрогеологических условий в бассейне водоема [30, 31]. Масштаб и направленность таких изменений отражают величину подпора уровня, интенсивность вертикального водообмена в днище долины реки, а также особенности гидрогеологического режима. Так, до создания водо-

охранилища Силуоду (Китай) подземные воды пополняли речную воду, а после создания водохранилища эта связь изменилась на обратную [32]. Противоположная зависимость была обнаружена в зоне подпора Братского водохранилища, в процессе наполнения которого существенно изменились условия разгрузки артезианских вод [33]. Результатом увеличения уровня воды стало внедрение высокоминерализованных вод глубокой циркуляции по зонам повышенной трещиноватости, что привело к увеличению концентраций  $\text{Cl}^-$  и  $\text{Na}^+$  в воде зоны подпора Братского водохранилища.

В верхней части бассейна Богучанского водохранилища формирование режима грунтовых вод тесно связано с наличием тектонических разломов и зон повышенной трещиноватости. На этом участке водохранилища водоносные комплексы приурочены к отложениям катской и тушамской свит карбона (правый берег) и отложениям мамырской свиты ордовика и бадарановской и ийской свит нижнего ордовика (левый берег). Гидрогеологическая съемка, проведенная до зарегулирования реки [12], показала, что существенное воздействие на разгрузку подземных вод на этой территории оказывают сильно трещиноватые пластовые интрузии траппов, к которым приурочены все крупнейшие водопоявления (родники до 150 л/с). Грунтовые воды гидрокарбонатные кальциевые или магниевые, напорные воды гидрокарбонатные натриевые, сменяющиеся вниз по разрезу на сульфатно-хлоридные или хлоридные натриевые. До зарегулирования р. Ангары соленые хлоридные воды выходили на ее побережье в виде источников. На данном этапе исследования можно предположить, что при увеличении уровня воды в водохранилище произошло изменение гидрогеохимической обстановки, определившее смену уровня грунтовых вод. Вследствие этого по зонам повышенной трещиноватости могли внедриться воды более глубоких слоев гидрохимического разреза. С этим явлением может быть связано увеличение концентраций сульфат-иона в 2013 г. и их последующее уменьшение в 2014 и 2015 гг., последовательное увеличение концентраций ионов хлора и натрия с 2013 г. (рис. 4), а также совместное поступление  $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$  и  $\text{Cl}^-$  (табл. 4), изменяющееся по мере увеличения и стабилизации уровня водохранилища.

**Таблица 4.** Статистические значимые коэффициенты корреляции между основными ионами в воде р. Ангары и верхней части Богучанского водохранилища

**Table 4.** Statistical significant correlations between concentrations of major ions in the Angara River and Boguchany reservoir water

Параметры Parameters	Коэффициент корреляции/Correlation coefficient				
	2007 (n=15)	2013 (n=11)	2014 (n=14)	2015 (n=16)	2017 (n=16)
$\text{HCO}_3^-$	(+)Ca <sup>2+</sup> **	–	(+)Ca <sup>2+</sup> **, (+)Na <sup>+</sup> **, (–)K <sup>+</sup> *	(+)Na <sup>+</sup> **, (+)Cl <sup>–</sup> *	(+)Na <sup>+</sup> **
Cl <sup>–</sup>	–	(+)Na <sup>+</sup> **, (+)K <sup>+</sup> *	(+)Na <sup>+</sup> *	(+)Na <sup>+</sup> **, (+)HCO <sub>3</sub> <sup>–</sup> *	(+)Mg <sup>2+</sup> *
SO <sub>4</sub> <sup>2–</sup>	–	–	–	–	–
Ca <sup>2+</sup>	(+)HCO <sub>3</sub> <sup>–</sup> **, (–)Mg <sup>2+</sup> **	(–)Mg <sup>2+</sup> *	(+)HCO <sub>3</sub> <sup>–</sup> **, (+)Na <sup>+</sup> **, (–)Mg <sup>2+</sup> **	–	(–)Mg <sup>2+</sup> **
Mg <sup>2+</sup>	(–)Ca <sup>2+</sup> **	(–)Ca <sup>2+</sup> *	(–)Ca <sup>2+</sup> **, (+)K <sup>+</sup> , (–)Na <sup>+</sup> *	–	(–)Ca <sup>2+</sup> **, (+)Cl <sup>–</sup> *
Na <sup>+</sup>	–	(+)Cl <sup>–</sup> **	(+)HCO <sub>3</sub> <sup>–</sup> **, (+)Ca <sup>2+</sup> **, (+)Cl <sup>–</sup> *, (–)Mg <sup>2+</sup> *	(+)HCO <sub>3</sub> <sup>–</sup> **, (+)Cl <sup>–</sup> **	(+)HCO <sub>3</sub> <sup>–</sup> **
K <sup>+</sup>	–	(+)Cl <sup>–</sup> *	(+)Mg <sup>2+</sup> *, (–)HCO <sub>3</sub> <sup>–</sup> *	–	–

\* –  $p<0,05$ ; \*\* –  $p<0,01$ .

### Заключение

Мониторинговые гидрохимические исследования позволили изучить пространственно-временное распределение главных ионов в воде р. Ангары до ее зарегулирования плотиной Богучанской ГЭС и Богучанского водохранилища в период его заполнения и стабилизации уровня. Результаты исследования показали низкое значение TDS в воде р. Ангары и Богучанского водохранилища на всех этапах его формирования. Основным анионом в воде является  $\text{HCO}_3^-$ , катионом –  $\text{Ca}^{2+}$ . С точки зрения природных факторов, на формирование режима главных ионов в воде Богучанского водохранилища большое влияние оказывает сток оз. Байкал, трансформированный в вышерасположенных водохранилищах р. Ангары, и выветривание пород, представленных в основном карбонатами или обогащенными карбонатами силикатами. Боковой приток не оказывает значительного влияния на концентрацию главных ионов в русловой части Богучанского водохранилища. С точки зрения антропогенных факторов, на гидрохимию Богучанского водохранилища влияют производственные сточные воды Усть-Илимской промышленной зоны, которые увеличивают концентрации главных ионов в воде водоема в районе их впадения. Ниже по течению концентрации элементов антропогенного происхождения уменьшаются до средних по водохранилищу значений.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ligon F.K., Dietrich W.E., Trush W.J. Downstream ecological effects of dams // *Bioscience*. – 1995. – V. 45. – № 3. – P. 183–192.
2. Ghosh S., Guchhait S.K. Hydrogeomorphic variability due to dam constructions and emerging problems: a case study of Damodar River, West Bengal, India // *Environment, Development and Sustainability*. – 2014. – V. 16. – № 3. – P. 769–796.
3. Dams and development. A new framework for decision-making. The report of World Commission on Dams. – London: Earthscan Publications Ltd, 2000. – 448 p.
4. Возобновляемая энергия. Гидроэлектростанции России. Справочник / М.И. Дворецкая, А.П. Жданова, О.Г. Лушников, И.В. Слива. – СПб.: Изд-во Политехн. ун-та, 2018. – 224 с.
5. Jaguś A., Rzętała M.A., Rzętała M. Water storage possibilities in Lake Baikal and in reservoirs impounded by the dams of the Angara River cascade // *Environmental Earth Sciences*. – 2015. – V. 73 – P. 621–628.
6. Верболова Н.В. Формирование гидрохимического режима Братского водохранилища // Формирование планктона и гидрохимия Братского водохранилища. – Новосибирск: Наука, 1973. – С. 78–119.
7. Карнаухова Г.А. Гидрохимия Ангары и водохранилищ Ангарского каскада // *Водные ресурсы*. – 2008. – Т. 35. – № 1. – С. 71–79.
8. Изменение гидрохимического состава заливов Братского водохранилища в результате лесозаготовительных работ / В.И. Полетаева, М.В. Пастухов, Н.А. Загорюлько, Г.А. Белоголова // *Водные ресурсы*. – 2018. – Т. 45. – № 3. – С. 278–288.
9. Стрижева Т.А. Условия и особенности формирования гидрохимического режима, состава и качества вод искусственных водоемов Восточной Сибири (на примере Усть-Илимского водохранилища): автореф. дис. ... канд. географ. наук. – Иркутск, 1985. – 19 с.
10. Savichev O.G., Matveenko I.A. Evaluation of chemical composition changes of surface water in Boguchan Reservoir (Siberia, Russia) // *Hydrological Sciences Journal*. – 2013. – V. 58. – № 3. – P. 706–715.
11. Вольничков А.Н. Богучанская ГЭС – пусковой объект российской гидроэнергетики // *Гидротехническое строительство*. – 2010. – № 10. – С. 30–37.
12. Богучанское водохранилище. Подземные воды и инженерная геология территории / под ред. М.М. Одинцова. – Новосибирск: Наука, 1979. – 157 с.
13. Current chemical composition of Lake Baikal water / T.V. Khodzher, V.M. Domyshveva, L.M. Sorokovikova, M.V. Sakirko, I.V. Tomberg // *Inland Waters*. – 2017. – V. 7. – № 3. – P. 250–258.
14. The cyclicity in the changes in the chemical composition of the water source of the Angara River (Baikal Stock) in 2017–2018 in comparison with the last 20 years of data / V.I. Grebenshchikova, M.I. Kuzmin, A.A. Doroshkov, O.A. Proydakova, S.B. Tsydyypova // *Environmental Monitoring and Assessment*. – 2019. – V. 191. – 728.
15. Poletaeva V.I., Tirsikh E.N., Pastukhov M.V. Hydrochemistry of sediment pore water in the Bratsk reservoir (Baikal region, Russia) // *Scientific Reports*. – 2021. – V. 11. – 11124.
16. Полетаева В.И., Долгих П.Г., Пастухов М.В. Особенности формирования гидрохимического режима Усть-Илимского водохранилища // *Вода: химия и экология*. – 2017. – № 10. – С. 11–17.
17. Berner E.K., Berner R.A. *Global environmental: water, air and geochemical cycles*. – New York: Prentice-Hall, 1996. – 376 p.
18. Hydrochemical characteristics and irrigation suitability of surface water in the Syr Darya River, Kazakhstan / W. Zhang, L. Ma, J. Abuduwaili, Y. Ge, G. Issanova, G. Saparov // *Environmental Monitoring and Assessment*. – 2019. – V. 191. – 572.
19. Бочкарев П.Ф. Гидрохимия рек восточной Сибири. – Иркутск: Вост. Сиб. изд-во, 1959. – 156 с.
20. Gibbs R.J. *Mechanisms controlling world water chemistry* // *Science, New Series*. – 1970. – V. 170. – № 3962. – P. 1088–1090.
21. Карпенко Л.В. Характеристика затопленной торфяной залежи и оценка ее влияния на качество воды в Богучанском водохранилище // *Водное хозяйство России: проблемы, технологии, управление*. – 2012. – № 2. – С. 80–90.
22. Poletaeva V.I., Pastukhov M.V., Tirsikh E.N. Dynamics of trace element composition of bratsk reservoir water in different periods of anthropogenic impact (Baikal Region, Russia) // *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*. – 2021. – V. 80. – P. 531–545.
23. Государственный доклад «О состоянии и об охране окружающей среды Иркутской области в 2013 году». – Иркутск: Изд-

- во Института географии им. В.Б. Сочавы СО РАН, 2014. – 389 с.
24. Gemelgo M.C.P., Mucci J.L.N., Navas-Pereira D. Population dynamics: seasonal variation of phytoplankton functional group in Brazilian reservoir (Bilings and Gaurapiranga, Sao Paulo) // *Brazil Journal of Biology*. – 2009. – V. 69. – № 4. – P. 1001–1013.
  25. Soltero R.A., Wright J.C., Horpestad A.A. Effects of impoundment on the water quality of the Bighorn river // *Water Research*. – 1973. – V. 7. – № 3. – P. 343–354.
  26. Reservoir's impact on the water chemistry of the Teesta river mountain course (Darjeeling Himalaya) / L. Wiejaczka, P. Prokop, R. Kozłowski, S. Sarkar // *Ecological Chemistry and Engineering S.* – 2018. – V. 25. – № 1. – 73–88.
  27. Li S., Ye C., Zhang Q. 11-Year change in water chemistry of large freshwater Reservoir Danjiangkou, China // *Journal of Hydrology*. – 2017. – V. 551. – P. 508–517.
  28. Wetzel R.G. *Limnology: lakes and river ecosystems*. – San Diego: Academic Press, 2001. – 1006 p.
  29. Rashid I., Romshoo S.A. Impact of anthropogenic activities on water quality of Lidder River in Kashmir Himalayas // *Environmental Monitoring and Assessment*. – 2013. – V. 185. – P. 4705–4719.
  30. Wildi W. Environmental hazards of dams and reservoirs // *NEAR curriculum in Natural Environmental Science, Terre & Environment*. – 2010. – V. 88. – P. 199–204.
  31. Bahir M., Ouazar D., Ouhamdouch S. Dam effect on groundwater characteristics from area under semi-arid climate: case of the Zerrar dam within Essaouira basin (Morocco) // *Carbonates and Evaporites*. – 2019. – V. 34. – P. 709–720.
  32. The hydrochemical and isotopic evolution of the surface water and groundwater for impoundment in the Xiluodu Reservoir, Jinsha River, China / Z. Zhou, Z. Zhou, H. Xu, M. Li // *Sustainability*. – 2020. – V. 12. – № 14. – 580.
  33. Овчинников Г.И., Павлов С.Х., Тржицинский Ю.Б. Изменение геологической среды в зоне влияния Ангаро-Енисейских водохранилищ. – Новосибирск: Наука. Сибирская издательская фирма РАН, 1999. – 254 с.

Поступила 17.06.2022 г.

Прошла рецензирование 22.06.2022 г.

#### Информация об авторах

**Полетаева В.И.**, кандидат геолого-минералогических наук, старший научный сотрудник Института геохимии им. А.П. Виноградова СО РАН; доцент кафедры прикладной геологии, геофизики и геоинформационных систем Иркутского национального исследовательского технического университета.

UDC 504.455(504.4.062.2)

## ANGARA RIVER HYDROCHEMICAL VARIABILITY WHEN BUILDING THE BOGUCHANY RESERVOIR (RUSSIA)

Vera I. Poletaeva<sup>1,2</sup>,  
alieva@igc.irk.ru

<sup>1</sup> Vinogradov Institute of Geochemistry SB RAS,  
1a, Favorsky street, Irkutsk, 664033, Russia.

<sup>2</sup> Irkutsk National Research Technical University,  
83, Lermontov street, Irkutsk, 664074, Russia.

**The relevance** of the research is caused by the necessity of controlling hydrochemical parameters of large freshwater ecosystem for the objective estimation of waterbody transformation under the anthropogenic impact.

**The main aim** of the research is to examine the spatial and temporal variability in major ion concentrations in Angara River water before regulating its flow by the Boguchany hydropower plants dam, as well as in Boguchany reservoir water during filling and water level stabilization.

**Objects** of the research are the Angara River before regulating its flow by the Boguchany HPP dam (2007), and Boguchany reservoir during filling (2013, 2014) and water level stabilization (2015, 2017).

**Methods.** Chemical analyses in the water samples were determined in the Centre for Collective Use «Isotope-Geochemical Research» of the IGC SB RAS (Irkutsk, Russia). Flame emission spectrophotometry was used in the analysis of Na<sup>+</sup> and K<sup>+</sup>, atomic absorption spectrometry was applied to analyse Ca<sup>2+</sup> and Mg<sup>2+</sup>, the turbidimetric method was used to measure SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, the titrimetric method was employed in the analysis of HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> and the mercurimetric method was applied to study Cl<sup>-</sup>.

**Results.** The spatial and temporal variability in the concentrations of cations (Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, Na<sup>+</sup>, and K<sup>+</sup>) and anions (HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, and Cl<sup>-</sup>) was examined. The results of the study show that the increase in the water level led to changes in the major ion concentration ratio. In comparison with the Angara River, in the Boguchany reservoir operation, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, Cl<sup>-</sup>, Na<sup>+</sup>, and Mg<sup>2+</sup> concentrations increased, while HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> and Ca<sup>2+</sup> concentrations decreased in the initial period of reservoir operation. The ionic composition of water in the Boguchany reservoir resulted primarily from the contribution from the area located upstream (runoff from the Ust-Ilimsk reservoir). Anthropogenic factors include wastewater and reservoir creation, which affect the hydrochemistry of major ions.

### Key words:

monitoring, anthropogenic effects, reservoir filling, hydrochemistry, major ions.

The author is grateful to Mikhail V. Pastukhov and Natalya A. Zagorulko for the help in the field work and commentaries contributing to better comprehension and reasoning of conclusions.

### REFERENCES

- Ligon F.K., Dietrich W.E., Trush W.J. Downstream ecological effects of dams. *Bioscience*, 1995, vol. 45, no. 3, pp. 183–192.
- Ghosh S., Guchhait S.K. Hydrogeomorphic variability due to dam constructions and emerging problems: a case study of Damodar River, West Bengal, India. *Environment, Development and Sustainability*, 2014, vol. 16, no. 3, pp. 769–796.
- Dams and development. A new framework for decision-making. The report of World Commission on Dams.* London, Earthscan Publications Ltd, 2005. 448 p.
- Dvoretzkaya M.I., Zhdanova A.P., Lushnikov O.G., Sliva I.V. *Vozobnovlyаемая энергия. Гидроэлектростанции России. Справочник* [Renewable energy. Hydroelectric power plants of Russia. Reference book]. St. Petersburg, Polytechnic University Publ. house, 2018. 224 p.
- Jaguś A., Rzętała M.A., Rzętała M. Water storage possibilities in Lake Baikal and in reservoirs impounded by the dams of the Angara River cascade. *Environmental Earth Sciences*, 2015, vol. 73, pp. 621–628.
- Verbolova N.V. Formirovanie gidrokhimicheskogo rezhima Bratskogo vodokhranilishcha [Formation of the hydrochemical regime of the Bratsk reservoir]. *Formirovanie planktona i gidrokhimiya Bratskogo vodokhranilishcha* [Formation of plankton and hydrochemistry of the Bratsk reservoir]. Novosibirsk, Nauka Publ., 1973. pp. 78–119.
- Karnaukhova G.A. Hydrochemistry of the Angara and reservoirs of the Angara cascade. *Water Resources*, 2008, vol. 35, no. 1, pp. 71–79. In Rus.
- Poletaeva V.I., Pastukhov M.V., Zagorulko N.A., Belogolova G.A. Changes in water hydrochemistry in bays of the Bratsk Reservoir caused by forest harvesting operations. *Water Resources*, 2018, vol. 45, no. 3, pp. 369–378. In Rus.
- Strizheva T.A. *Usloviya i osobennosti formirovaniya gidrokhimicheskogo rezhima, sostava i kachestva vod iskusstvennykh vodoemov Vostochnoy Sibiri (na primere Ust-Ilimskogo vodokhranilishcha)*. Avtoreferat Dis. Kand. nauk [Conditions and features of the formation of the hydrochemical regime, composition and quality of waters of artificial reservoirs in Eastern Siberia (on the example of the Ust-Ilimsk reservoir). Cand. Diss.]. Irkutsk, 1985. 19 c.
- Savichev O.G., Matveenko I.A. Evaluation of chemical composition changes of surface water in Boguchan Reservoir (Siberia, Russia). *Hydrological Sciences Journal*, 2013, vol. 58, no. 3, pp. 706–715.
- Volynchikov A.N. Boguchanskaya GES – puskovoy obyekt rossiyskoy gidroenergetiki [Boguchan HPP-the starting object of the Russian hydropower industry]. *Hydrotechnical construction*, 2010, no. 10, pp. 30–37.
- Boguchanskoe vodokhranilishche. Podzemnye vody i inzhenernaya geologiya territorii* [Boguchany reservoir. Groundwater and engineering geology of the area]. Ed. by M.M. Odintsov. Novosibirsk, Nauka Publ., 1979. 157 p.
- Khodzher T.V., Domysheva V.M., Sorokovikova L.M., Sakirko M.V., Tomberg I.V. Current chemical composition of Lake Baikal water. *Inland Waters*, 2017, vol. 7, no. 3, pp. 250–258.
- Grebenshchikova V.I., Kuzmin M.I., Doroshkov A.A., Proydakova O.A., Tsydytova S.B. The cyclicity in the changes in the chemical composition of the water source of the Angara River (Baikal Stock) in 2017–2018 in comparison with the last 20 years of data. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2019, vol. 191, 728.



15. Poletaeva V.I., Tirsikh E.N., Pastukhov M.V. Hydrochemistry of sediment pore water in the Bratsk reservoir (Baikal region, Russia). *Scientific Reports*, 2021, vol. 11, 11124.
16. Poletaeva V.I., Dolgikh P.G., Pastukhov M.V. Osobennosti formirovaniya gidrokhimicheskogo rezhima Ust-Ilimskogo vodokhranilishcha [Features of the formation of the hydrochemical regime of the Ust-Ilimsk reservoir]. *Voda: khimiya i ekologiya*, 2017, no. 10, p. 11–17.
17. Berner E.K., Berner R.A. *Global environmental: water, air and geochemical cycles*. New York, Prentice-Hall, 1996. 376 p.
18. Zhang W., Ma L., Abuduwaili J., Ge Y., Issanova G., Saparov G. Hydrochemical characteristics and irrigation suitability of surface water in the Syr Darya River, Kazakhstan. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2019, vol. 191, 572.
19. Bochkarev P.F. *Gidrokimiya rek vostochnoy Sibiri* [Hydrochemistry of the rivers in Eastern Siberia]. Irkutsk, East Siberian Publishing House, 1959. 156 p.
20. Gibbs R.J. Mechanisms controlling world water chemistry. *Science, New Series*, 1970, vol. 170, no. 3962, pp. 1088–1090.
21. Karpenko L.V. Kharakteristika zatoplennoy torfyanoy zalezhi i otsenka ee vliyaniya na kachestvo vody v Boguchanskom vodokhranilishche [The flooded peat deposit characteristic and assessment of its impact upon water quality in the Boguchansk reservoir]. *Vodnoe hozyaystvo Rossii: problemy, tekhnologii, upravlenie*, 2012, no. 2, pp. 80–90.
22. Poletaeva V.I., Pastukhov M.V., Tirsikh E.N. Dynamics of trace element composition of bratsk reservoir water in different periods of anthropogenic impact (Baikal Region, Russia). *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2021, vol. 80, pp. 531–545.
23. *Gosudarstvenny doklad «O sostoyanii i ob okhrane okruzhayushchey sredy Irkutskoy oblasti v 2013 godu»* [State report «On the state and protection of the environment of the Irkutsk region in 2013»]. Irkutsk, V.B. Sochava Institute of Geography SB RAS Publ. house, 2014. 389 p.
24. Gemelgo M.C.P., Mucci J.L.N., Navas-Pereira D. Population dynamics: Seasonal variation of phytoplankton functional group in Brazilian reservoir (Bilings and Gaurapiranga, Sao Paulo). *Brazil Journal of Biology*, 2009, vol. 69, no. 4, pp. 1001–1013.
25. Soltero R.A., Wright J.C., Horpestad A.A. Effects of impoundment on the water quality of the Bighorn river. *Water Research*, 1973, vol. 7, no. 3, pp. 343–354.
26. Wiejaczka Ł., Prokop P., Kozłowski R., Sarkar S. Reservoir's impact on the water chemistry of the Teesta river mountain course (Darjeeling Himalaya). *Ecological Chemistry and Engineering. S*, 2018, vol. 25, no. 1, pp. 73–88.
27. Li S., Ye C., Zhang Q. 11-Year change in water chemistry of large freshwater reservoir Danjiangkou, China. *Journal of Hydrology*, 2017, vol. 551, pp. 508–517.
28. Wetzel R.G. *Limnology: lakes and river ecosystems*. San Diego, Academic Press, 2001. 1006 p.
29. Rashid I., Romshoo S.A. Impact of anthropogenic activities on water quality of Lidder River in Kashmir Himalayas. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2013, vol. 185, pp. 4705–4719.
30. Wildi W. Environmental hazards of dams and reservoirs. *NEAR curriculum in Natural Environmental Science, Terre & Environment*, 2010, vol. 88, pp. 199–204.
31. Bahir M., Ouazar D., Ouhamdouch S. Dam effect on groundwater characteristics from area under semi-arid climate: case of the Zerzar dam within Essaouira basin (Morocco). *Carbonates and Evaporites*, 2019, vol. 34, pp. 709–720.
32. Zhou Z., Zhou Z., Xu H., Li M. The hydrochemical and isotopic evolution of the surface water and groundwater for impoundment in the Xiluodu Reservoir, Jinsha River, China. *Sustainability*, 2020, vol. 12, no. 14, 5805.
33. Ovchinnikov G.I., Pavlov S.Kh., Trzhitsinsky Yu.B. *Izmenenie geologicheskoy sredy v zone vliyaniya Angaro-Eniseyskikh vodokhranilishch* [Changes in the geological environment in the zone of influence of the Angara-Yenisei reservoirs]. Novosibirsk, Siberian Publishing Company of the Russian Academy of Sciences, 1999. 254 p.

Received: 17 June 2022.

Reviewed: 22 June 2022.

#### Information about the authors

**Vera I. Poletaeva**, Cand. Sc., senior researcher, Vinogradov Institute of Geochemistry SB RAS; associate professor, Irkutsk National Research Technical University.

УДК 622.279

## СОЗДАНИЕ И ЭКСПЛУАТАЦИЯ ИНТЕГРИРОВАННОЙ МОДЕЛИ, УЧИТЫВАЮЩЕЙ ОСОБЕННОСТИ ГАЗОКОНДЕНСАТНОЙ ЗАЛЕЖИ

**Зипир Владислав Геннадьевич<sup>1</sup>,**  
Vladislav.Zipir@lukoil.com

**Менгалиев Александр Генрихович<sup>1,2</sup>,**  
mengaliev.alexandr@gmail.com

**Рясный Александр Геннадьевич<sup>3</sup>,**  
RyasnyiAG@tmn.lukoil.com

**Курбатова Марина Николаевна<sup>3</sup>,**  
KurbatovaMN@tmn.lukoil.com

**Рудая Оксана Михайловна<sup>3</sup>,**  
RudayaOM@tmn.lukoil.com

<sup>1</sup> ТПП «Ямалнефтегаз» ООО «ЛУКОЙЛ–Западная Сибирь»,  
Россия, 629008, г. Салехард, ул. Матросова, 24.

<sup>2</sup> Пермский национальный исследовательский политехнический университет,  
Россия, 614990, г. Пермь, пр. Комсомольский, 29.

<sup>3</sup> Филиал ООО «ЛУКОЙЛ-Инжиниринг» «КогалымНИПИнефть» в г. Тюмени,  
Россия, 625026, г. Тюмень, ул. Республики, 143А.

**Актуальность** исследования обусловлена тем, что на современном этапе развития нефтегазовой отрасли основные подходы при прогнозировании уровней добычи углеводородов и принятии концептуальных проектных решений по активам основываются на использовании интегрированных моделей, учитывающих полный процесс добычи и транспортировки углеводородов от пласта до пунктов подготовки, а иногда и до точки экспорта в магистральный трубопровод. При этом важно не превзойти реальный потенциал основного узла – гидродинамической модели, особенно на трудноразрабатываемых автономных арктических месторождениях, где ошибка проектирования может обойтись многократно дороже относительно классических месторождений.

**Цель:** создать интегрированную модель газоконденсатного промысла, обладающую удовлетворительной прогнозной способностью с учетом особенностей конкретного месторождения и получить реальный эффект от использования расчетов на базе интегрированной модели.

**Объект:** газоконденсатная залежь сортымской свиты одного из арктических месторождений.

**Методы:** аналитическое моделирование разработки газоконденсатной залежи, вероятностные подходы к параметрам неопределенности геологической модели, использование гидродинамического симулятора Schlumberger Eclipse, интегрированное моделирование газоконденсатного актива арктического месторождения.

**Результаты.** Описаны подходы по созданию и актуализации гидродинамической модели газоконденсатной залежи, позволяющей воспроизвести темпы снижения пластового давления, продуктивности и выполнить расчет уровней добычи УВ с учетом существующих рисков. Также на созданной интегрированной модели выполнены расчеты, учитывающие неопределенности геологического строения залежи. Выполнено сравнение предыдущей версии интегрированной модели и новой с учетом комплексирования использованных подходов. При помощи расчетов на интегрированной модели обоснована номинальная производительность дожимной компрессорной станции.

### **Ключевые слова:**

Интегрированная модель, постоянно действующая геолого-технологическая модель, адаптация модели, долгосрочное планирование уровней добычи углеводородов, газоконденсатное месторождение, материальный баланс, гидродинамические исследования пластов и скважин.

### **Введение**

Сегодня все передовые нефтегазовые компании применяют интегрированное моделирование для выполнения как оперативных, так и стратегических расчетов по наиболее перспективным месторождениям [1–8]. Основу интегрированной модели всегда составляет модель пласта, в частности постоянно действующая геолого-технологическая модель (ПДГТМ). В данной статье речь пойдет о полноценной неупрощенной модели для задач стратегических долгосрочных расчетов. Данный узел является основополагаю-

щим, наиболее трудоёмким, с наибольшими геологическими неопределенностями. Модель пласта позволяет решать множество задач [9–12]. Поэтому именно подход к созданию и адаптации ГДМ имеет ключевую роль при прогнозировании добычи углеводородов.

Фильтрационная модель (ФМ) газовых и газоконденсатных пластов должна воспроизводить исторический темп снижения пластового давления как в целом по залежи, так и индивидуально по каждой скважине, при этом важно выполнить точную адаптацию факти-

ческих замеров по гидродинамическим исследованиям (ГДИ), дополнительно нужно проверить модель на нефизичный характер поведения тренда пластового давления (чередование роста и падения, резкие провалы давления при запуске, остановке или изменении режима работы скважины). Также гидродинамическая модель должна прогнозировать внедрение пластовой воды в коллектор, особенно для массивных залежей. В расчетах на прогноз при заданных ограничениях адекватно настроенная модель воспроизводит темп снижения дебитов добывающих скважин.

#### Объект исследования

Исследуемым объектом выступает гидродинамическая модель газоконденсатной залежи БУ<sub>18</sub><sup>1-2</sup> сортовой свиты меловой системы. Терригенный, поровый коллектор представляет собой низкопроницаемый песчаник со средним значением 4 мД и высокой начальной водонасыщенностью. Залежь пластовая, сводовая. Лучшие фильтрационно-емкостные свойства (ФЕС), обуславливающие высокие начальные дебиты добывающих скважин, находятся в купольной части объекта. Также пласты характеризуются неоднородностью свойств как по площади, так и по разрезу.

По состоянию на 01.01.2021 г. объект практически полностью разбурен и находится на стадии интенсивного снижения пластового давления и добычи газа спустя 4 года после ввода в промышленную эксплуатацию. Для разработки объекта используются скважины сложной конструкции – многозабойные и горизонтальные с многостадийным гидравлическим разрывом пласта (МГРП). В результате весь объект охвачен воздействием в процесс дренирования. Высокие отборы в начальный период эксплуатации рассматриваемой сложнопостроенной низкопроницаемой залежи оказали негативное воздействие на энергетическую характеристику системы, темп снижения

добычи и, как следствие, привели к возникновению дополнительных проблем при эксплуатации скважин и газовых шлейфов.

В работе рассматривается применение альтернативного подхода по созданию и адаптации ГДМ с целью формирования достижимых и научно обоснованных прогнозных уровней добычи газа.

#### Применение метода материального баланса

На начальной стадии разработки газовых и газоконденсатных месторождений важно правильно оценить объем запасов газа, от которого будет зависеть темп снижения пластового давления и величина отборов газа. В научной работе в качестве альтернативного метода по оперативной оценке запасов газа применена методика материального баланса. Механизм вытеснения флюидов до конца не ясен (влияние геостатического давления, активный или неактивный напор воды, упругий режим), однако для качественного понимания диапазона значений запасов данная методика показывает удовлетворительные результаты. Суть методики заключается в построении графической зависимости накопленной добычи газа от замеров пластового давления по скважинам с корректировкой на коэффициент сверхсжимаемости газа и дальнейшая экстраполяция значений. Таким образом, методика применима только при наличии исторических замеров пластового давления, и точность рассматриваемой методики зависит от количества данных замеров. График материального баланса имеет преимущество перед оценкой запасов объемным методом, позволяя оценить как геологические, так и извлекаемые запасы в зависимости от нижнего значения давления – атмосферного или конечного при разработке [13–15].

Для оценки использовались все имеющиеся актуальные данные по материалам ГДИ и промысловой добыче. Аналитическая модель представлена на рис. 1.

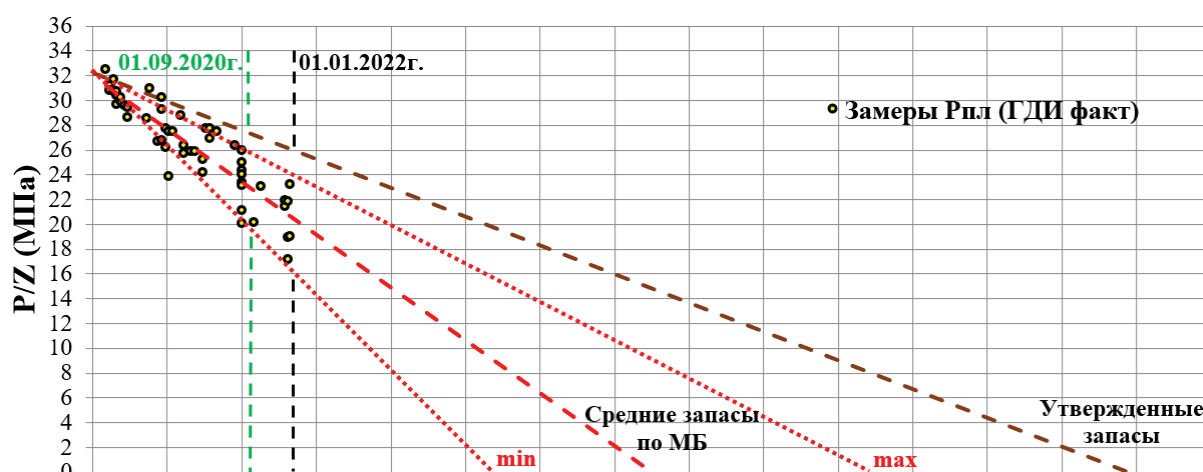


Рис. 1. График материального баланса газоконденсатного объекта БУ<sub>18</sub><sup>1-2</sup> нефтегазоконденсатного месторождения  
 Fig. 1. Material balance graph of gas condensate layer БУ<sub>18</sub><sup>1-2</sup> of oil-gas condensate field

Применение аналитической модели позволило выявить неопределенности по геологическим запасам газа, которые могут быть меньше в среднем на 44 %

от утвержденных. При этом разброс значений достаточно большой, и вероятное снижение запасов может находиться в интервале от 29 до 62 %. Однако приме-

нение метода материального баланса для оценки величины запасов (п. 60 «Методических рекомендаций по применению Классификации запасов...») возможно при выработке более 30 %. На данный момент количество исследований по рассматриваемому месторождению не позволяет однозначно судить о необходимости снижения запасов, поэтому принято решение выполнить построение альтернативной геологической и гидродинамической модели с целью подтверждения выдвинутой гипотезы.

Гидродинамическая модель настроена на 01.09.2020 г., спустя год актуализированная гидродинамическая модель подтвердила материальный баланс, что говорит о правильности выбранного подхода.

#### Корректировка газоводяного контакта

В ряде скважин объекта БУ<sub>18</sub> при эксплуатации выявлены высокие дебиты воды, в результате выдвинут ряд вероятных причин появления воды в продукции скважин:

- межпластовые перетоки после гидравлического разрыва пласта (ГРП). На некоторых скважинах, вскрывших верхнюю часть залежи, проводился МГРП. Между пластами БУ<sub>17</sub> и БУ<sub>18</sub> в разрезе выделяется небольшая глинистая перемычка. Так как вышележащий пласт БУ<sub>17</sub> в районе данных скважин водонасыщен, возможны межпластовые перетоки (рис. 2). Однако проведенные промыслово-геофизические исследования с ГНКТ указали, что данная версия не нашла своего подтверждения, поскольку притока воды из верхних интервалов ГРП не получено (заколонные перетоки не выявлены);

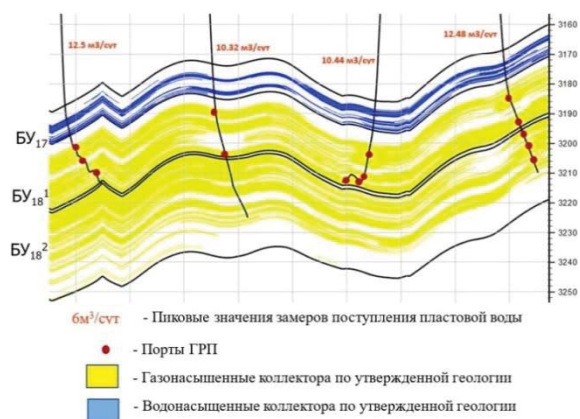


Рис. 2. Разрез по кубу насыщенности

Fig. 2. Saturation cube section

- фильтрация остаточной воды. Пласты характеризуются высокой начальной водонасыщенностью (до 0,8 д.ед). Вероятно, остаточная вода подвижна с начала разработки, критическая водонасыщенность равна начальной;
- неопределенность флюидального контакта. Газоводяной контакт (ГВК) по пластам БУ<sub>18</sub> принимался по результатам испытания поисково-разведочных скважин, однако эти испытания противоречивы: местами получена смесь газоконденсата с водой от планируемого ГВК. Смоделирова-

ны различные версии уровня ГВК в альтернативной модели для вариативности анализа оценки притока воды на практике и выбора глубины контакта, который позволит настроить фактическую добычу воды по скважинам, а также не противоречит геологической информации и результатам испытания. Неопределенность контакта по скважинам связана также с высоким значением удельного электрического сопротивления.

Одновременно с уточнением запасов стоит задача воспроизведения добычи пластовой воды. Поэтому принято решение в альтернативной геологической модели учесть возможное изменение глубины газоводяного контакта с целью настройки фактической добычи пластовой воды.

В результате выбран наиболее подходящий вероятный ГВК, который позволяет более точно воспроизвести фактические дебиты воды.

#### Пересмотр относительных фазовых проницаемостей

При детальном гидродинамическом моделировании газоконденсатных залежей необходимо учитывать процессы ретроградной конденсации (выпадения газоконденсата в пласте). При снижении пластового давления в призабойных зонах скважин образуются скопления газоконденсата (конденсатные пробки), которые дополнительно ухудшают фильтрацию газа к забоям добывающих скважин, снижая насыщенность по газу. Это является дополнительным фактором, влияющим на темп снижения дебита добывающих скважин.

Долгосрочные стратегические расчеты на интегрированной модели подразумевают значительную выработку запасов, поэтому важно понимать, сколько в газоконденсатной залежи геологических запасов, а сколько подвижных и извлекаемых.

Чтобы решить выше обозначенные задачи, выполнялся пересмотр подхода задания относительных фазовых проницаемостей. Собственных исследований в целом на месторождении относительно немного.

На первом шаге корректировки нормировались все исследования по определению относительных фазовых проницаемостей на керне по месторождению для оценки возможного диапазона разброса фазовых проницаемостей. Далее выделили пласты сортынской свиты со значением проницаемости не более 30 мД, которое для данных залежей является практически максимальной величиной согласно результатам керновых и гидродинамических исследований. По этим данным были построены итоговые кривые относительных фазовых проницаемостей (ОФП) с помощью аппроксимации Corey, соответствующие средним значениям пластов БУ. Кривые относительных фазовых проницаемостей в системе «конденсат–газ» представлены на рис. 3, для системы «конденсат–вода» процесс создания ОФП аналогичен. По зависимости критической газонасыщенности от проницаемости для данной свиты задано ее среднее значение, а также другие концевые точки. Остаточная нефтенасыщенность и реликтовая водонасыщенность заданы с помощью зависимостей от абсолютной проницаемости.



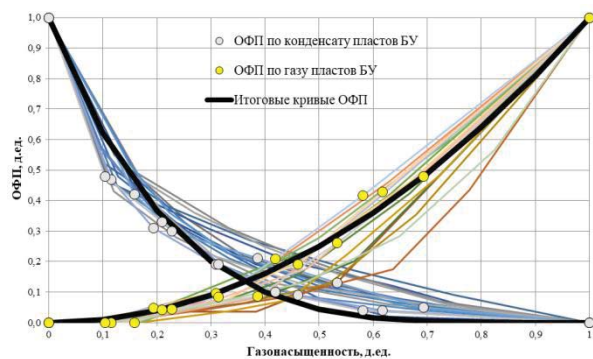


Рис. 3. Кривые относительных фазовых проницаемостей в системе «конденсат–газ»

Fig. 3. Relative phase permeability curves in the «condensate–gas» system

### Создание и адаптация гидродинамической модели

В результате комплексного анализа выполнено построение и адаптация альтернативной версии геолого-гидродинамической модели пластов БУ<sub>18</sub>. В качестве исходных данных применялись результаты интерпретации ГДИ, замеры пластовых давлений, мероприятия на скважинах и фактическая добыча углеводородов. Модель с высокой прогнозной способностью должна удовлетворять требованиям к качеству настройки, воспроизводить и адекватно прогнозировать темп снижения пластового давления и добычи газа в целом по объекту, а также индивидуально по каждой скважине. В случае отсутствия прямых замеров пластового давления можно воспользоваться методикой [16]. Для целей интегрированного моделирования в ГДМ каждая скважина настраивалась на замер пластового давления с отклонением не более 3 % за последние 12 месяцев и не более 10 % за весь пе-

риод разработки. Забойное давление на дату актуализации адаптируется с погрешностью не более 3 %. По суммарной добыче газа отклонения не допускаются.

Начальным этапом настройки модели газовых объектов является воспроизведение исторической добычи по скважинам и в целом по месторождению, которая является управляющим параметром. При невозможности отборов корректируется абсолютная проницаемость пласта, относительные фазовые проницаемости, параметры вскрытия.

Следующим этапом идет корректировка общего темпа снижения пластового давления по залежи – модифицируют параметры законтурной области, скжимаемость коллектора. Далее идет детальная адаптация темпов снижения давления индивидуально по каждой скважине. В отличие от нефтяных моделей необходимо найти баланс между корректировкой проницаемости и порового объема, поскольку добиться удовлетворительного темпа снижения пластового давления за счет корректировки только проницаемости не представляется возможным. Корректировка производится по оценочной области дренирования скважин. Данная область определяется как половина расстояния между забоями скважин при хорошей сообщаемости пласта, геологическими нарушениями, с помощью методики Э.Б. Чекалюка или по гидродинамическим исследованиям. Важна не только сходимость исторических замеров, но и само поведение давления, без «разрывных нарушений» и необоснованных скачков. На рис. 4 представлены примеры настройки пластового давления. Альтернативная корректировка позволила уйти от хаотичного поведения пластового давления и его роста в процессе работы скважины.

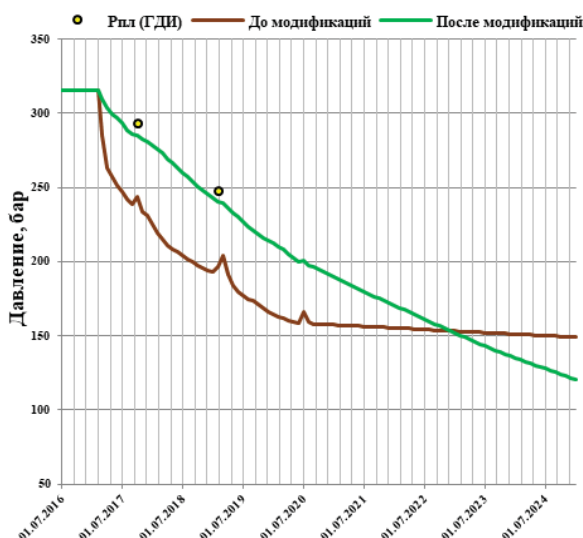
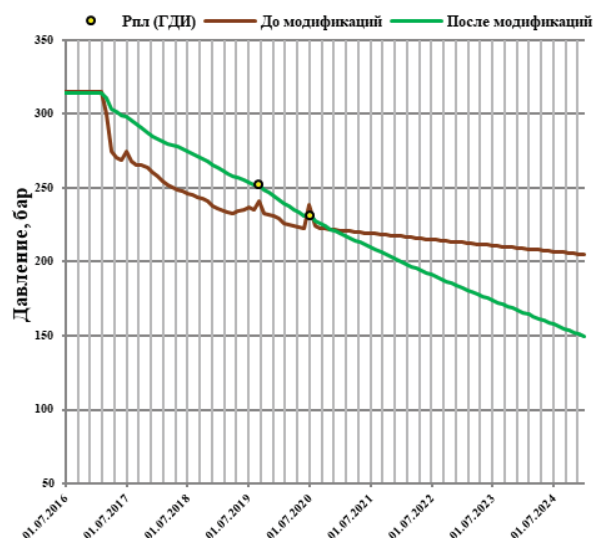


Рис. 4. Результаты адаптации пластовых давлений по скважинам

Fig. 4. Results of reservoir pressure adaptation by wells

На последнем этапе производится настройка продуктивности на результаты актуальных ГДИ. В случае полноценных замеров с найденными коэффициентами фильтрационного сопротивления А и В со-

здаются искусственные ГДИ с различными режимами (рис. 5), корректируется множитель проводимости и угол наклона индикаторной диаграммы, выбор режимов делается исходя из ожидаемых минимальных и

максимальных дебитов. Например, для гидродинамического симулятора Eclipse компании Schlumberger за это отвечают ключевые слова WPIMULT и WDFAC. Если исследование проводилось с одним стабильным режимом, то модель настраивается на единственный режим.

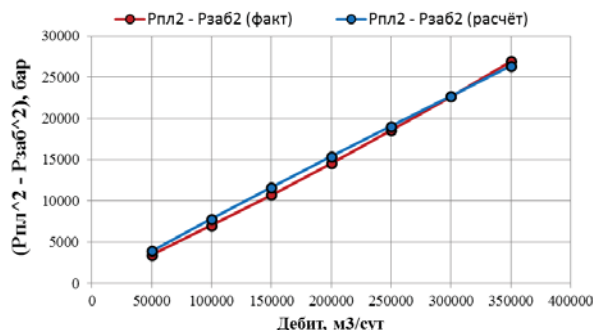


Рис. 5. Настройка индикаторной диаграммы газовой скважины

Fig. 5. Correction of the inflow performance curve of a gas well

Опыт эксплуатации рассматриваемого газоконденсатного месторождения подтверждает интенсивное

снижение продуктивности добывающих скважин со временем. Под продуктивностью в данном случае понимается отношение дебита газа к разности квадратов пластового и забойного давления. Проводился анализ продуктивности скважин на прогноз с заданными ограничениями, в ходе которого установлен рост продуктивности. Однако без проведения каких-либо мероприятий по интенсификации добычи на скважинах с учетом выпадения конденсата в призабойной зоне пласта (ПЗП) это недопустимо. Для решения данной проблемы использовалась таблица уплотнения породы ROCKTAV. Поскольку на объекте отсутствует необходимая выборка из результатов ГДИ, а также керновые исследования, на данном этапе развития модели принято решение использовать зависимость множителя проводимости от давления таким образом, чтобы параметр продуктивности не возрастал на прогноз. Также учитывался терригенный тип разреза и поровая структура пустотного пространства, т. к. для карбонатов зависимость имеет другой вид [17, 18].

Настроенная альтернативная ГДМ представлена на рис. 6.

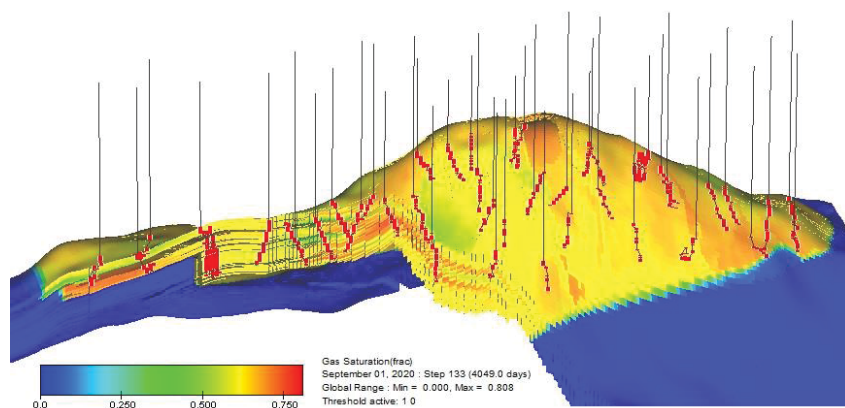


Рис. 6. Внешний вид геолого-гидродинамической модели объекта БУ<sub>18</sub> на примере куба текущей газонасыщенности

Fig. 6. Exterior view of the geological and hydrodynamic model of the BU<sub>18</sub> object by the example of the current gas saturation cube

В результате проделанной работы по созданию и актуализации ГДМ выполнена:

- экспресс-оценка запасов газа методом материального баланса;
- корректировка запасов в модели путем пересмотра ГВК и порового объема в межскважинном пространстве;
- трансформация подхода к определению и заданию кривых ОФП;
- настройка темпа снижения пластового давления и продуктивности на прогнозный период.

#### Интегрированное моделирование

Настроенная фильтрационная модель удовлетворяет всем вышеуказанным требованиям и может быть использована в составе интегрированной модели для дальнейшей оценки прогнозной способности в рамках ретроспективного анализа.

Интегрированная модель с учетом прогнозного периода 10 лет состоит из 6 гидродинамических моделей (2 эксплуатируемых объекта разработки и 4 проектных), моделей скважин и модели сети сбора. Модели добывающих скважин настроены на результаты ГДИ, при этом настраивается градиент давления и температуры по стволу во время стабильного режима перед закрытием на КВД.

В случае наличия записи градиента давления и температуры по стволу подбирались обоснованные опытом настройки корреляция с поправочными коэффициентами и воспроизводилось распределение параметров по ГДИ до удовлетворительной погрешности [19–21]. При отсутствии замеренных по стволу скважины градиентов давления и температуры настройка модели выполнялась на фактическую замеренную точку на глубине исследования. При прочих равных условиях необходимо отдавать предпо-

чение той корреляции, которая учитывает проскальзывание газа, поскольку даже если на сегодняшний день скважина безводная, то на дальний горизонт планирования ситуация поменяется, и, вероятно, будет завышена добыча газа со скважины при выборе корреляции без эффекта проскальзывания.

Газосборная сеть спроектирована по коллекторно-лучевой схеме для оптимальной загрузки трубопроводов и снижения металлоемкости. Конечной точкой сети является цех запорно-переключающей аппаратуры, представляющий собой гребенку из задвижек и трубопроводов, позволяющий объединить потоки со

всех эксплуатируемых коллекторов и распределить потоки по цехам подготовки газа. Модель газосборной сети (ГСС) настроена на фактический режим, сопоставлялись давления и температуры на кустовых площадках, выгруженные из телемеханической системы промысла, а также дебиты по скважинам и в целом.

Корректность и удовлетворительная прогнозная способность созданной интегрированной модели оценивалась по выполненному ретроспективному анализу как в целом по месторождению, так и по каждой скважине в отдельности. На рис. 7, 8 показана сходимость интегрированной модели.

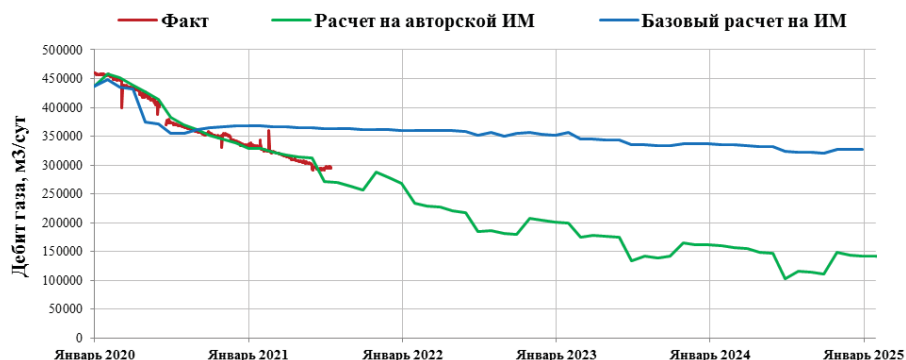


Рис. 7. Ретроспективный анализ по одной из газоконденсатных скважин

Fig. 7. Retrospective analysis for one of the gas condensate wells

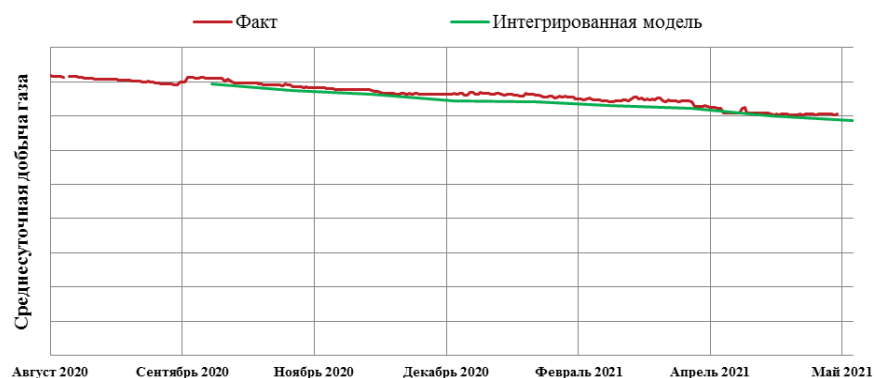


Рис. 8. Сравнение суточной добычи газа

Fig. 8. Comparison of daily gas production

В прогнозных расчетах учитывался парковый коэффициент, который входит в общий коэффициент эксплуатации. Парковый коэффициент на газоконденсатных объектах возникает по причине разницы в суммарных замерах дебитов скважин и выходной добыче на пункте измерения расхода газа (ПИРГ), поскольку на скважинах замеряется газоконденсатная смесь, а на ПИРГ – подготовленный сухой газ. В ГДМ извлекается газоконденсатная смесь, поэтому прогнозную добычу из модели необходимо умножать на парковый коэффициент. На данный момент парковый коэффициент составляет 3–4 %.

Созданная интегрированная модель воспроизводит добычу газа за 9 месяцев в пределах погрешности 1–3 %. Следовательно, можно сделать вывод, что адаптированная модель готова к долгосрочным концептуальным расчетам для планирования добычи и поиска принятия проектных решений.

#### Выполнение прогнозных расчетов

Прогнозный расчет выполнялся на период длительностью 10 лет, в котором учитывалась актуальная программа ввода скважин и принятые проектные решения. Схема интегрированной модели в программном комплексе IAM Schlumberger представлена на рис. 9.

Выполненные расчеты позволили определить производительность проектируемой ДКС. В результате создания альтернативной модели рассчитан максимальный годовой уровень добычи газа и темп падения пластового давления.

При расчете компрессорного оборудования с выбранной номинальной производительностью учитывалось возможное неподтверждение добычи по второстепенным объектам как в меньшую, так и в большую сторону. При снижении добычи газа ниже но-

минальной подачи на 31 % существует возможность замены сменной проточной части (СПЧ) на узел с меньшей производительностью и дальнейшая эксплуатация ДКС. При увеличении добычи на 27 % относительно номинальной предполагается изменить схему работы газоперекачивающих агрегатов. Расчет на новой ИМ позволил обоснованно определить объем газа для компримирования на ДКС с учетом возможных рисков.

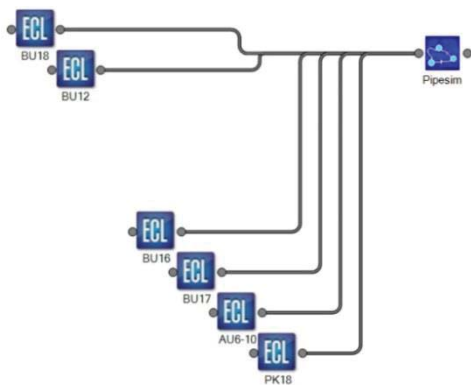


Рис. 9. Интегрированная модель газовой части нефтегазоконденсатного месторождения

Fig. 9. Integrated model of the gas part of oil-gas condensate field

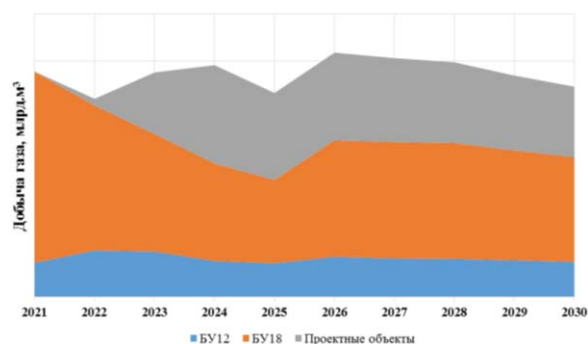


Рис. 10. Профиль добычи природного газа по объектам на новой интегрированной модели

Fig. 10. Natural gas production profile by objects based on the new integrated model

Рассматриваемый объект разработки является основным по запасам месторождения. Вклад добычи газа основного объекта в общем профиле добычи представлен на рис. 10. Согласно расчетам, объект БУ<sub>18</sub> обеспечивает добычу от 41 до 85 % от всего объема в

зависимости от года, поэтому требует значительного внимания при актуализации и эксплуатации моделей.

Выполненные долгосрочные расчеты позволили определить, что на одном из участков газосборной сети – шлейфе № У – значительно снижается нагрузка по сравнению с проектными значениями, данное уточнение позволит скорректировать проектные решения по строительству нового шлейфа при детальной проработке вопроса.

Созданная интегрированная модель позволила уточнить уровни добычи газа, при этом учитывая необходимое количество гидродинамических исследований для доизучения потенциала газовой части исследуемого арктического нефтегазоконденсатного месторождения.

#### Заключение

- Опыт эксплуатации газоконденсатных объектов Большехетской впадины позволил пересмотреть подходы по созданию интегрированной модели для целей долгосрочного планирования уровней добычи углеводородов.
- Выполнена оценка рисков, создана альтернативная постоянно действующая геолого-технологическая модель по основному объекту разработки, которая позволила учесть особенности эксплуатации объекта и существующие неопределенности.
- При создании альтернативной гидродинамической модели использовались следующие допущения и корректировки: вероятностная оценка запасов методом материального баланса, корректировка газоземного контакта и запасов газа, пересмотр относительных фазовых проницаемостей.
- Созданная гидродинамическая модель настроена с требуемой погрешностью и использована в составе интегрированной модели для оценки прогнозной способности на основании фактического опыта эксплуатации актива.
- Согласно ретроспективному анализу интегрированная модель подтвердила свою прогнозную способность.
- Планируется ежегодная актуализация интегрированной модели с учетом получения новых исследований по скважинам.
- Модель нашла своё применение при выполнении долгосрочных расчетов уровней добычи, а также для повышения точности принимаемых решений в рамках проектирования дожимной компрессорной станции.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Интегрированная модель как фундамент для выбора способа эксплуатации на месторождении с высоким содержанием газа / К.И. Повышев, С.А. Вершинин, А.Н. Блябляс, О.С. Верниковская // Экспозиция Нефть и Газ. – 2019. – № 4. – С. 60–63.
2. Almedallah M.K., Branch G., Walsh S.D.C. Combined well path, submarine pipeline network, route and flow rate optimization for shallow-water offshore fields // Journal of Applied Ocean Research. – 2020. – V. 105 (4).
3. Применение интегрированного моделирования в нефтегазовой отрасли / Е.В. Филиппов, Г.Н. Чумаков, И.Н. Пономарева, Д.А. Мартюшев // Недропользование. – 2020. – Т. 20. – № 4. – С. 386–400.
4. Development of an integrated dynamic model for supply security and resilience analysis of natural gas pipeline network systems / H. Su, E. Zio, Z.-J. Zhang et al. // Petroleum Science. – 2022. – V. 19. – P. 761–773.
5. Решение комплексных задач на интегрированной модели с применением средств алгоритмизации процессов / Д.Н. Жигалов, А.В. Беслик, К.Е. Кордик, О.Ю. Забродин, В.И. Шаламова, И.В. Вершинина, А.В. Елизаров, А.А. Ахмадеев // Геология, геофизика и разработка нефтяных и газовых месторождений. – 2021. – № 10. – С. 41–46.



6. An integrated model for asphaltene deposition in wellbores/pipelines above bubble pressure / Q. Guan, A. Goharzadeh, J.C. Chai, F.M. Vargas, S.L. Biswal, W.G. Chapman, M. Zhang, Y.F. Yap // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2018. – V. 169. – P. 353–373.
7. Практическое применение интегрированных моделей для решения задач оптимизации процессов добычи нефти и газа / К.В. Андреев, М.А. Агупов, И.А. Кадыков, Е.Н. Рязанова // Нефтепромысловое дело. – 2021. – № 1. – С. 55–57.
8. Методика обоснования технологических режимов газовых и газоконденсатных скважин с применением интегрированных моделей / А.Н. Харитонов, Т.А. Поспелова, О.А. Лознюк, Ю.А. Архипов, М.А. Скоробогач, А.Ю. Юшков, А.В. Стрекалов, А.С. Заборина, В.П. Павлов, А.Л. Назаров // Нефтепромысловое дело. – 2020. – № 4. – С. 41–47.
9. Horsholt S., Nick H.M., Jorgensen J.B. Oil production optimization of BlackOil models by integration of Matlab and Eclipse E300 // IFAC-Papers Online. – 2018. – V. 51. – P. 88–93.
10. Гереш Г.М., Гафаров А.Ш., Исхаров Р.Р. Использование результатов гидродинамического моделирования для оценки прогнозного состояния газовой залежи // Научно-технический сборник Вести газовой науки. – 2014. – № 4. – С. 45–49.
11. Комплексный подход к оценке эффективности проектируемой соляно-кислотной обработки с использованием результатов лабораторных исследований и гидродинамического моделирования / С.Н. Кривошеков, Н.Д. Козырев, К.А. Вяткин, К.А. Равелев // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2021. – Т. 332. – № 7. – С. 43–53.
12. Modeling temperature-based oil-water relative permeability by integrating advanced intelligent models with grey wolf optimization: application to thermal enhance oil recovery process / N.A. Menad, Z. Noureddine, A. Hemmati-Sarapardeh, S. Shamshirband // Fuel. – 2019. – V. 242. – P. 649–663.
13. Анализ выработки запасов газа и конденсата Западно-Яряхинского лицензионного участка / С.И. Шиян, Х.Н. Нассер, П.А. Суховерова, И.И. Шаблий // Нефтепромысловое дело. – 2021. – № 9. – С. 5–17.
14. Havlena D., Odeh A.S. The material balance as an equation of a straight line // Journal of petroleum technology. – 1963. – V. 15. – P. 896–900.
15. Reservoir performance analysis using material balance method in gas field / I. Widiyaningsih, P.S. Widiatoro, S. Suwardi, R.F.N. Karimah // Journal of Petroleum and Geothermal Technology. – 2021. – V. 2. – P. 75–87.
16. Зипир В.Г. Виртуальный замер пластового давления в режиме реального времени // Нефтегазовое дело. – 2020. – Т. 18. – № 3. – С. 37–42.
17. Обоснование режимов эксплуатации скважин сеноманской газовой залежи Харампурского месторождения по результатам геомеханического моделирования / В.А. Павлов, Н.А. Павлюков, М.Д. Субботин, А.П. Коваленко, А.Н. Янтудин, В.С. Абдуллин, Р.С. Шехонин, А.Ю. Головинин // Экспозиция Нефть и Газ. – 2021. – № 2. – С. 41–46.
18. Мартюшев Д.А. Оценка влияния напряженного состояния горных пород на проницаемость карбонатных коллекторов // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2020. – Т. 331. – № 8. – С. 24–33.
19. Менгалиев А.Г., Зипир В.Г. Применение модели добывающей скважины для верификации гидродинамических исследований // Проблемы разработки месторождений углеводородных и рудных полезных ископаемых: XIII Всероссийская конференция. – Пермь: Пермский национальный исследовательский политехнический университет, 2020. – С. 272–278.
20. Mukherjee H., Brill J.P. Pressure drop correlations for inclined two-phase flow // Journal of Energy Resources Technology. – 1985. – V. 107 (4). – P. 549–554.
21. Modified Mukherjee–Brill prediction model of pressure gradient for multiphase flow in wells / Y. Lei, R. Liao, M. Li, Y. Li, W. Luo // International Journal of Heat and Technology. – 2017. – V. 35 (1). – P. 103–108.

Поступила 26.04.2022 г.

Прошла рецензирование 21.06.2022 г.

#### Информация об авторах

**Зипир В.Г.**, руководитель группы внедрения и сопровождения интегрированной модели ТПП «Ямалнефтегаз» ООО «ЛУКОЙЛ–Западная Сибирь»

**Менгалиев А.Г.**, ведущий инженер группы внедрения и сопровождения интегрированной модели ТПП «Ямалнефтегаз» ООО «ЛУКОЙЛ–Западная Сибирь»; аспирант кафедры нефтегазовых технологий Пермского национального исследовательского политехнического университета.

**Рясный А.Г.**, начальник управления гидродинамического моделирования филиала ООО «ЛУКОЙЛ–Инжиниринг» «КогалымНИПИнефть» в г. Тюмени.

**Курбатова М.Н.**, начальник отдела моделирования газовых и газоконденсатных объектов филиала ООО «ЛУКОЙЛ–Инжиниринг» «КогалымНИПИнефть» в г. Тюмени.

**Рудая О.М.**, ведущий специалист отдела моделирования газовых и газоконденсатных объектов филиала ООО «ЛУКОЙЛ–Инжиниринг» «КогалымНИПИнефть» в г. Тюмени.

UDC 622.279

## CREATION AND EXPLOITATION OF THE INTEGRATED MODEL, TAKING INTO ACCOUNT THE FEATURES OF THE GAS CONDENSATE DEPOSIT

**Vladislav G. Zipir**<sup>1</sup>,  
Vladislav.Zipir@lukoil.com

**Alexandr G. Mengaliev**<sup>1,2</sup>,  
mengaliev.alexandr@gmail.com

**Alexandr G. Ryasny**<sup>3</sup>,  
RyasnyiAG@tmn.lukoil.com

**Marina N. Kurbatova**<sup>3</sup>,  
KurbatovaMN@tmn.lukoil.com

**Oksana M. Rudaya**<sup>3</sup>,  
RudayaOM@tmn.lukoil.com

<sup>1</sup> TPP «Yamalneftegaz» LLC «LUKOIL-Western Siberia»,  
24, Matrosov street, Salekhard, 629008, Russia.

<sup>2</sup> Perm National Research Polytechnic University,  
29, Komsomolskiy avenue, Perm, 614990, Russia.

<sup>3</sup> Branch of LLC «LUKOIL-Engineering» «KogalymNIPIneft» in Tyumen,  
143A, Respubliki street, Tyumen, 625026, Russia.

**The relevance** of the study is caused by the fact that at the present stage of the oil and gas industry evolution the main approaches to forecasting hydrocarbon production levels and making conceptual design decisions on assets are based on using the integrated models, taking into account the full process of hydrocarbon production and transportation from reservoir to preparation points, and sometimes to the point of export to the main pipeline. At the same time, it is important not to exceed the real potential of the main node – the hydrodynamic model, especially on the hard-to-develop autonomous Arctic fields, where the design error can cost many times more relative to the classic fields.

**The main aim** of the research is to create an integrated model of the gas condensate field, which has a satisfactory predictive ability of the specific field and get a real effect from the use of calculations based on the integrated model.

**Object** of the research is the gas condensate deposit of the Sortym formation of one of the Arctic fields.

**Methods:** analytical simulation of the gas condensate reservoir development, probabilistic approaches to the geological model uncertainty parameters, using the Schlumberger Eclipse hydrodynamic simulator, integrated simulation of the gas condensate asset of the arctic field.

**Results.** The work describes approaches to create and update the hydrodynamic model of the gas condensate reservoir, which allows reproducing the rate of declining reservoir pressure, productivity and performing calculations of hydrocarbon production levels, taking into account the existing risks. Using this integrated model the calculations were made, taking into account the uncertainty of the geological structure of the reservoir. The previous version of the integrated model was compared with the new one, considering the combination of the used approaches. Using the calculations of the integrated model, the nominal capacity of the gas compressor unit for the designed booster compressor station was substantiated.

### Key words:

Integrated model, permanent geological and technological model, model adaptation, long-term planning of hydrocarbon production levels, gas condensate field, material balance, well tests.

### REFERENCES

- Povyshv K.I., Verzhinina S.A., Blyabyas A.N., Vernikovskaya O.S. Integrated model as a foundation for choosing the method of operation at a gas-rich field. *Exposition Oil and Gas*, 2019, no. 4, pp. 60–63. In Rus.
- Almedallah M.K., Branch G., Walsh S.D.C. Combined well path, submarine pipeline network, route and flow rate optimization for shallow-water offshore fields. *Journal of Applied Ocean Research*, 2020, vol. 105 (4).
- Filippov E.V., Chumakov G.N., Ponomareva I.N., Martyshev D.A. Application of Integrated Modeling in the Oil and Gas Industry. *Perm Journal of Petroleum and Mining Engineering*, 2020, vol. 20, no. 4, pp. 386–400. In Rus.
- Su H., Zio E., Zhang Z.-J. Development of an integrated dynamic model for supply security and resilience analysis of natural gas pipeline network systems. *Petroleum Science*, 2022, vol. 19, pp. 761–773.
- Zhigalov D.N., Beslik A.V., Kordik K.E., Zabrodin O.Y., Shalomo V.I., Verzhinina I.V., Elizarov A.V., Akhmadeev A.A. Solution of complex problems on an integrated model using process algorithmization means. *Geology, geophysics and development of oil and gas fields*, 2021, no. 10, pp. 41–46. In Rus.
- Guan Q., Goharzadeh A., Chai J.C., Vargas F.M., Biswal S.L., Chapman W.G., Zhang M., Yap Y.F. An integrated model for asphaltene deposition in wellbores/pipelines above bubble pressure. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2018, vol. 169, pp. 353–373.
- Andreev K.V., Agupov M.A., Kadykov I.A., Ryazanova E.N. Practical application of integrated models for solving the problems of optimization of oil and gas production processes. *Oilfield engineering*, 2021, no. 1, pp. 55–57. In Rus.
- Kharitonov A.N., Pospelova T.A., Loznyuk O.A., Arkhipov Y.A., Skorobogach M.A., Yushkov A.Y., Strekalov A.V., Zavorina A.S., Pavlov V.P., Nazarov A.L. Procedure for justifying process condi-

- tions of gas and gas condensate wells using integrated models. *Oilfield engineering*, 2020, no. 4, pp. 41–47. In Rus.
9. Horsholt S., Nick H.M., Jorgensen J.B. Oil production optimization of BlackOil models by integration of Matlab and Eclipse E300. *IFAC-Papers Online*, 2018, vol. 51, pp. 88–93.
  10. Geresh G.M., Gafarov A.S., Iskhakov R.R. Use of hydrodynamic modeling results for evaluation of the forecast condition of the gas deposit at the latest development stage. *Scientific-Technical Collection book Vesti gazovoy nauki*, 2014, no. 4, pp. 45–49. In Rus.
  11. Krivoshechekov S.N., Kozyrev N.D., Vyatkin K.A., Ravelev K.A. Complex approach to estimating the efficiency of the designed hydrochloric acid treatment using the results of laboratory studies and hydrodynamic simulation. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2021, vol. 332, no. 7, pp. 43–53. In Rus.
  12. Menad N.A., Noureddine Z., Hemmati-Sarapardeh A., Shamsheirband S. Modeling temperature-based oil-water relative permeability by integrating advanced intelligent models with grey wolf optimization: application to thermal enhance oil recovery process. *Fuel*, 2019, vol. 242, pp. 649–663.
  13. Shiyani S.I., Nasser H.N., Sukhoverova P.A., Shably I.I. Analysis of gas and condensate reserves development of the Zapando-Yaroyakhinsky license area. *Oilfield engineering*, 2021, no. 9, pp. 5–17. In Rus.
  14. Havlena D., Odeh A.S. The material balance as an equation of a straight line. *Journal of petroleum technology*, 1963, vol. 15, pp. 896–900.
  15. Widiyaningsih I., Widiyanto P.S., Suwardi S., Karimah R.F.N. Reservoir performance analysis using material balance method in gas field. *Journal of Petroleum and Geothermal Technology*, 2021, vol. 2, pp. 75–87.
  16. Zipir V.G. Reservoir pressure calculation on a real time basis. *Petroleum engineering*, 2020, vol. 18, no. 3, pp. 37–42. In Rus.
  17. Pavlov V.A., Pavlyukov N.A., Subbotin M.D., Kovalenko A.P., Yantudin A.N., Abdullin V.S., Shekhonin R.S., Goloviznin A.Y. Justification of the wells production conditions of the cenomanian gas reservoir of the Kharampurskoe field based on the results of geomechanical modeling. *Exposition Oil and Gas*, 2021, no. 2, pp. 41–46. In Rus.
  18. Martuyushev D.A. Rock stress state influence on permeability of carbonate reservoirs. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 8, pp. 24–33. In Rus.
  19. Mengaliev A.G., Zipir V.G. Primenenie modeli dobyvayushey skvazhiny dlya verifikatsii gidrodinamicheskikh issledovaniy [Application of the production well model for well test verification]. *XIII Vserossiiskaya konferentsiya. Problemy razrabotki mestorozhdeniy uglevodородnykh i rudnykh poleznykh iskopaemykh* [XIII All-Russian Conference. Problems of mining of carbonaceous and ore-bearing deposits]. Perm, Perm National Research Polytechnic University Publ., 2020. pp. 272–278.
  20. Mukherjee H., Brill J.P. Pressure drop correlations for inclined two-phase flow. *Journal of Energy Resources Technology*, 1985, vol. 107 (4), pp. 549–554.
  21. Lei Y., Liao R., Li M., Li Y., Luo W. Modified Mukherjee-Brill prediction model of pressure gradient for multiphase flow in wells. *International Journal of Heat and Technology*, 2017, vol. 35 (1), pp. 103–108.

Received: 26 April 2022.

Reviewed: 21 June 2022.

#### Information about the authors

**Vladislav G. Zipir**, head of the integrated model implementation and maintenance group, TPP «Yamalneftegaz» LLC «LUKOIL-West Siberia».

**Alexandr G. Mengaliev**, leading engineer of the integrated model implementation and maintenance group, TPP «Yamalneftegaz» LLC «LUKOIL-West Siberia»; postgraduate student, Perm National Research Polytechnic University.

**Alexandr G. Ryasny**, head of hydrodynamic modeling direction, branch of LLC «LUKOIL-Engineering» «KogalymNIPIneft» in Tyumen.

**Marina N. Kurbatova**, head of gas and gas condensate objects modeling department, branch of LLC «LUKOIL-Engineering» «KogalymNIPIneft» in Tyumen.

**Oksana M. Rudaya**, leading specialist of gas and gas condensate objects modeling department, branch of LLC «LUKOIL-Engineering» «KogalymNIPIneft» in Tyumen.

UDC 532.13, 532.54

## STUDY OF CHANGES IN HYDRODYNAMIC PARAMETERS PATTERNS OF VISCOUS FLUID FLOW IN A FLAT DIFFUSER

**Arestak A. Sarukhanyan<sup>1</sup>,**  
asarukhanyan51@mail.ru

**Yeghiazar V. Vardanyan<sup>1</sup>,**  
info@nuaca.am

**Garnik B. Vermishyan<sup>1</sup>,**  
vermishyan.garnik@gmail.com

<sup>1</sup> National University of Architecture and Construction of Armenia,  
105, Teryan street, 0009, Yerevan, Armenia.

**The relevance.** Diffusers, either as nozzles or constituent elements, are frequently used in many mechanisms and machines. In this regard, the study of viscous fluid flow in diffusers aims to discover patterns of changes in the flow's hydrodynamic parameters, allowing better understanding of the nature of flow as a function of Reynolds number. Following the results of the analysis of the study, conditions for the proper construction of the mechanism unit, ensuring its reliable and durable operation will be revealed.

**The main aim** of this study is to determine the velocity profiles in the flat diffuser for a viscous incompressible fluid by integrating the simplified Navier–Stokes differential equations under the established initial and boundary conditions, as well as the bifurcation point's dependence on the opening angle and Reynolds number of the diffuser.

**Objects:** a flat diffuser in which viscous incompressible fluid moves. At the same time, revealing the patterns of changes of the hydrodynamic parameters of the flow is of defining value when choosing the structural dimension of devices and mechanisms, the main part of which is the flat diffuser.

**Methods.** To reveal the patterns of changes of the hydrodynamic parameters of the flow in a flat diffuser, the study is based on the fundamental nonlinear differential equations of viscous fluid mechanics, which in a general case are not subject to an exact mathematical solution. For integration in the nonlinear differential equations, due to the smallness, the nonlinear-convective terms are neglected, and the inertial terms are also partially simplified. Such a simplification is justified if the velocities are very small or if the dynamic coefficient of viscosity of the fluid is very large. A method for solving the boundary value problem was developed, and regularities for changing the flow parameters were obtained. According to the derived regularities, graphs of the change in velocity, pressure and shear stresses on the wall of the fixed channel were plotted and the coordinates of the separation point were determined.

**Results.** Depending on the angle of the diffuser opening and the Reynolds number, a general solution of the approximating Navier–Stokes equations was given. In accordance with the nature of the motion, the boundary conditions of the problem were established and the boundary value problem was stated. A method for integrating a boundary value problem was developed, and regularities for the change in velocities along the length of the diffuser were obtained for a parabolic distribution of velocities in the inlet sections. Graphs of the change in radial velocities along the length and at a fixed value of the opening angle were constructed, a flow pattern and the transition of a single-mode flow to multimode operation were obtained. For a fixed opening angle and Reynolds number, the conditions for flow separation from a fixed wall were derived, where the flow velocity changes the sign.

### Key words:

diffuser, velocity profile, pressure distribution, breaking point, viscous fluid, fluid flow.

### Introduction

Diffusers are widely used in various mechanisms and machines, either in the form of a nozzle or as an integral part. In this regard, the study of the viscous fluid flow in the diffusers is aimed at identifying patterns of changes in the hydrodynamic parameters, which enables to understand the nature of the flow depending on the Reynolds number. Based on the results of the analysis, the conditions for the correct design of the mechanism assembly, which ensures its reliable and durable operation, will be revealed. Due to the great practical significance, this problem has attracted the attention of many researchers.

The classical problem statement was first formulated by G.B. Jeffery [1] and G. Hamel [2], who proposed the solution of equations of viscous fluid motion in diffusers, taking into account squares of components of velocities and their product multiplication. In further studies, justifications about the effectiveness of this approach were made and solutions were proposed based on the results of

the experimental data. The problems of studying the patterns of changes in the hydrodynamic parameters of the viscous incompressible fluid in flat diffusers were studied by S. Targ [3] and N. Slezkin [4].

However, the solution to such problems was reduced to a system of nonlinear transcendental equations with a complicated integration. Such an approach did not allow making effective calculations for specific parameters of the diffuser. Therefore, the authors proposed more suitable methods for integrating the differential equations of motion in the flat diffuser area. The main point of the studies conducted is that a boundary value problem is formulated and its analytical solution is obtained using Navier–Stokes approximation. Following the solution analysis results, the separation conditions of the flow from the fixed channel are obtained. It should be noted that when deriving these solutions, it was assumed that the velocity on the diffuser axis cannot be equal to zero. However, it became viable to find a class of zero velocity



flows on the diffuser axis when solving this problem. Nevertheless, by analyzing the results of these solutions, it became possible to establish that the flows in the diffuser shall experience bifurcation.

L.D. Akulenko et al. [5–9] studied the generalization of the Jeffrey–Hamel problem solution, obtained conditions for asymmetric stationary flows, and gave one-, two-, and three-mode bifurcation solutions. Conditions for ensuring stationary asymmetric and multi-mode solutions were found for specific intervals of Reynolds numbers and opening angles. Authors of [10] generalized the Jeffrey–Hamel problem solution and deduced conditions of stationary asymmetrical and multi-mode solutions for certain ranges of Reynolds numbers and the diffuser opening angles.

In [11], the author is studying the evolution of the main single-mode stationary flow of the viscous incompressible fluid in the flat diffuser. The Jeffrey–Hamel problem solution is obtained based on the opening angle of the diffuser and Reynolds number. It is established that starting from some critical value of the Reynolds number, the existence of a stationary single-mode flow is impossible. The results of examining several laminar flow regimes in a flat diffuser/confuser with a small opening angle were presented by the authors in [12]. Consequently, patterns of changes in the hydrodynamic parameters of a viscous incompressible fluid was obtained through numerical modeling based on the solution of Navier–Stokes equations. The areas of existence and transitions of flow regimes from stationary-symmetric to stationary-asymmetric and non-stationary ones in the diffuser and confuser, depending on the Reynolds number are found. The values of the Reynolds number, which determine the ranges of the existence of these fluid flow regimes for Newtonian and non-Newtonian fluids are given.

In [13], the author studied the flow regimes in a flat diffuser with a small opening angle, based on the numerical solution of the Navier–Stokes equations for a viscous incompressible fluid. The existence of stationary and non-stationary flow regimes was determined, depending on the Reynolds number. The conditions for the transition of flow regimes in the diffuser from symmetric stationary to asymmetric stationary and then to non-stationary asymmetric ones are obtained. The ranges of the Reynolds numbers for the existence of these regimes are given.

In [14, 15], F. Durst et al. present the results of an experimental study of the flow in a symmetrical expanding channel. Experimental data on flow patterns and velocity profiles in a channel with symmetrical expansion are presented. The authors of [14] experimentally show that the flow in an asymmetric channel with rectilinear expansion can have a stationary and asymmetric nature at low Reynolds numbers.

The fluid flow in diffusers most often occurs in non-stationary and turbulent regimes, therefore, a significant part of the theoretical and experimental studies are devoted to these very regimes in flat diffusers [16, 17]. R.W. Fox and S.J. Kline in [18] give the results of an experimental study of turbulent flows in curvilinear diffusers, which is a continuation and generalization of C. Moore and S.J. Kline's paper [19], where the turbulent flows in diffusers with flat walls were studied.

In [20], the authors obtained the criteria for classifying separations in flat diffusers, as well as diagrams for determining them. Flows in channels and in the diffuser with a small opening angle and at low Reynolds numbers have similar features. Free-jet flows and flows in rapidly expanding channels are margin circumstances of the flow in diffusers. The identification of the condition for violation of the flow symmetry in the flat diffuser and channel, as well as bifurcations in the Jeffrey–Hamel problem were performed in [21].

In [22], the idealized solution of the Jeffrey–Hamel problem for an expanding channel is proposed. Numerical results for a two-dimensional flow in a wedge bounded by two circles are given. The outflow and bifurcation conditions, depending on the Reynolds number are shown. A mathematical model has been created based on studies of changes in the hydrodynamic parameter pattern of a viscous incompressible fluid in the transitional sections of flat pipes, which allowed obtaining results with acceptable accuracy indicating motion dynamics patterns [23]. Water absorption capacity of Irind mine pumice depending on the particle size and absorption time is presented in the paper [24].

Despite a large number of works on the hydrodynamics of a viscous incompressible fluid, new approaches are required to investigate the change in patterns of hydrodynamic flow parameters in flat diffusers. Qualitative characteristic parameters that determine the properties of the motion of a viscous incompressible fluid in the flat diffuser subject to the condition of constant flow rate are the opening angle and the Reynolds number of the diffuser.

#### Main part

The study of the patterns of change in hydrodynamic parameters of the fluid flow in a flat diffuser with a given velocity profile in its initial section is of great practical interest. Let us consider the problem of viscous fluid flow development in the flat diffuser. The flat diffuser consists of two flat surfaces inclined towards each other at an angle of  $2\alpha$  (Fig. 1), directed along the  $x$  axis to infinity. The motion in a flat diffuser will be considered in cylindrical coordinates  $r, \varphi$  starting with the zero point (Fig. 1).

Let's assume that the patterns of radial distribution of the liquid velocity at the inlet section of the diffuser is parabolic, i. e.  $v_r = A(1 - \varphi^2)$ , at  $r = r_0$ . The viscous fluid flow in a flat diffuser is considered to be plane-parallel and steady. We will assume, that  $\frac{\partial v_r}{\partial r}$  is negligibly small

compared to  $\frac{\partial^2 v_r}{\partial \varphi^2}$ . Assuming also that  $v_\varphi \ll v_r$  and the

derivatives of  $v_r$  to  $r$  will be small compared to the derivatives by  $\varphi$ . Discarding the indicated number in the equations of motion [3, 4], we obtain a system of approximate equations:

$$v_r \frac{\partial v_r}{\partial r} + \frac{v_\varphi}{r} \cdot \frac{\partial v_r}{\partial \varphi} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial r} + \frac{\nu}{r^2} \frac{\partial^2 v_r}{\partial \varphi^2}, \quad (1)$$

$$-\frac{\partial p}{\partial \varphi} + \frac{2\mu}{r} \frac{\partial v_r}{\partial \varphi} = 0, \quad (2)$$

$$\frac{\partial v_r}{\partial r} + \frac{v_r}{r} + \frac{1}{r} \frac{\partial v_\varphi}{\partial \varphi} = 0, \quad (3)$$

where  $\nu$  and  $\mu$  are the kinematic and dynamic viscosity coefficients, respectively,  $v_r$  is the fluid velocity in radial directions (Fig. 1). All the notations are well known [3, 4].

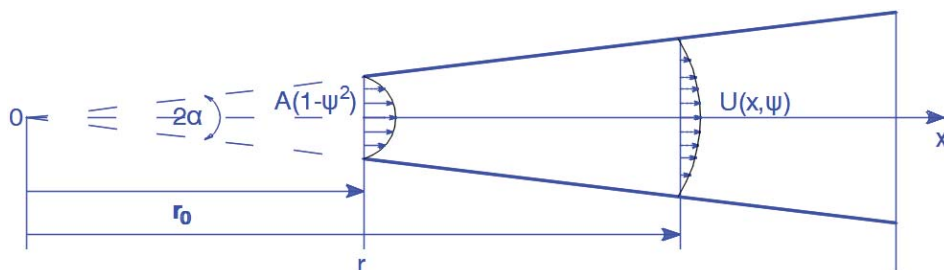


Fig. 1. Calculation scheme of a flat diffuser

Рис. 1. Расчетная схема плоского диффузора

Having in mind, that  $v_\varphi$  is a negligibly small value, we can take  $v_\varphi=0$ , and the value  $v_r$  can be replaced for a given section with an average flow rate  $U$ :

$$U = \frac{Q}{2\alpha r}.$$

Here  $Q$  is the fluid consumption through each section. The condition of fluid flow constancy is derived as:

$$Q = \int_{-\alpha}^{\alpha} v_r \cdot r d\varphi. \quad (4)$$

Substituting the regularity of the initial distribution of the radial velocity in (4) we obtain:

$$Q = \int_{-\alpha}^{\alpha} v_r \cdot r_0 d\varphi = 2Ar_0\alpha \left(1 - \frac{\alpha^2}{3}\right).$$

The average flow rate in the initial section of the diffuser will be:

$$U_0 = A \left(1 - \frac{\alpha^2}{3}\right).$$

Then equation (1) can be written as:

$$U \frac{\partial v_r}{\partial r} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial r} + \frac{\nu}{r^2} \frac{\partial^2 v_r}{\partial \varphi^2}. \quad (5)$$

Equations (2), (3) and (5) constitute a system of approximate equations of fluid flow to identify patterns of changes in the hydrodynamic parameters of a viscous fluid in a flat diffuser. The characteristic flow rate  $U$  is taken to be the rate included in the Reynolds number formula [3]:

$$Re = \frac{Ur\alpha}{\nu}.$$

Based on the condition in this mode, maintaining a constant value of the number  $Re$  leads to dependence of  $U$  on  $r$ :

$$U = \frac{U_0 r_0}{r} = \frac{A \left(1 - \frac{\alpha^2}{3}\right) r_0}{r}.$$

To obtain universal solutions to the problem, we introduce dimensionless variables  $u, v, \psi, x, \bar{p}$ , assuming:

$$u = \frac{v_r}{U_0}, \quad V = \frac{v_\varphi}{\alpha U_0}, \quad \psi = \frac{\varphi}{\alpha}, \quad x = \frac{r}{r_0}, \quad \bar{p} = \frac{p}{\rho U_0^2}, \quad (6)$$

where  $U_0 = \frac{Q}{2\alpha r_0}$  is the average rate in the inlet sections of the diffuser.

Equations (2), (3) and (5) for the new variables (6) (will take the form:

$$\begin{cases} \frac{1}{x} \frac{\partial u}{\partial x} = -\frac{\partial \bar{p}}{\partial x} + \frac{\nu}{r_0 U_0 \alpha^2} \frac{\partial^2 u}{x^2 \partial \psi^2} \\ -\frac{\partial \bar{p}}{\partial \psi} + \frac{2\nu}{U_0 r_0 x} \frac{\partial u}{\partial \psi} = 0 \\ \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{u}{x} + \frac{1}{x} \frac{\partial V}{\partial \psi} = 0. \end{cases} \quad (7)$$

From the second equation of system (10), after integration over the angle  $\psi$ , the equation is defined:

$$\bar{P}(x, \psi) = \frac{2\nu}{U_0 r_0} \frac{u}{x} + C(x), \quad (8)$$

where  $C(x)$  is an unknown function of  $x$ .

Differentiating (8) by  $x$ , we get:

$$\frac{\partial \bar{P}(x, \psi)}{\partial x} = 2 \frac{\nu}{U_0 r_0} \frac{\partial}{\partial x} \left( \frac{u}{x} \right) + \frac{dC(x)}{dx}. \quad (9)$$

If we substitute the expression (6) into the right side of the first equation (9) and discard the member containing the value  $\frac{\partial}{\partial x} \left( \frac{u}{x} \right)$  as a member of a lower order, the system of equations (7) is finally transformed to the form:

$$\begin{cases} \frac{1}{x} \frac{\partial u}{\partial x} = \frac{a^2}{x^2} \frac{\partial^2 u}{\partial \psi^2} - \frac{dC(x)}{dx} \\ \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{u}{x} + \frac{1}{x} \frac{dV}{d\psi} = 0 \end{cases}, \quad (10)$$

where designated  $a^2 = \frac{\nu}{r_0 \alpha^2 U_0}$ .

To integrate the system of equations (10), the boundary conditions are established:

1) conditions for adhesion between the liquid and the wall's surface:

$$x > 0, \psi = \pm 1, u = 0, V = 0, \quad (11)$$

2) conditions for the symmetry of the velocity profile along the flow section:

$$\psi = 0, \quad \frac{\partial u}{\partial \psi} = 0,$$

3) conditions for the radial velocity distribution over the input arc section are presented by some function  $f(\psi)$ , i. e. when

$$x = 0, -1 \leq \psi \leq 1, u(1, \psi) = A(1 - \psi^2). \quad (12)$$

From the solution of the equation of system (10) we get the form of the sum, i. e.

$$u(x, \psi) = \sum_{k=1}^{\infty} F_k(x) \cos \lambda_k \psi + \sum_{k=1}^{\infty} W_k(x) \cos \lambda_k \psi. \quad (13)$$

where  $F_k(x)$  and  $W_k(x)$  are continuous functions to be determined. The value  $F_k(1)$  can be calculated from the boundary condition (12), so we will have:

$$A(1 - \psi^2) = \sum_{k=1}^{\infty} F_k(1) \cos \lambda_k \psi. \quad (14)$$

By multiplying both parts of equation (14) by  $\cos \lambda_n \psi$  and integrating in the interval  $(-1; 1)$  we get:

$$\begin{aligned} & A \int_{-1}^1 (1 - \psi^2) \cos \lambda_n \psi d\psi = \\ & = \sum_{k=1}^{\infty} F_k(1) \int_{-1}^1 \cos \lambda_k \psi \cos \lambda_n \psi d\psi. \end{aligned} \quad (15)$$

Using the orthogonality property of the function  $\{\cos \lambda_n \psi\}$ , i. e.

$$\int_{-1}^1 \cos \lambda_k \psi \cos \lambda_n \psi d\psi = \begin{cases} 0, & \lambda_k \neq \lambda_n \\ 1, & \lambda_k = \lambda_n \end{cases},$$

and calculating the integral value on the left side of the equation (15):

$$A \int_{-1}^1 (1 - \psi^2) \cos \lambda_n \psi d\psi = \frac{4(-1)^{n+1}}{\lambda_k^3}$$

we can get

$$F_k(1) = C_k = \frac{4(-1)^{k+1}}{\lambda_k^3},$$

where  $\lambda_k = (2k - 1)\frac{\pi}{2}$  are the eigenvalues, the roots of the eigenfunctions:  $\cos \lambda_k \psi = 0$ .

The first equation of system (10), taking into account (13), will be rewritten in the form:

$$\begin{aligned} & \sum_{k=1}^{\infty} F_k'(x) \cos \lambda_k \psi + \sum_{k=1}^{\infty} W_k'(x) \cos \lambda_k \psi = \\ & = -\frac{a^2}{x} \sum_{k=1}^{\infty} \lambda_k^2 F_k(x) \cos \lambda_k \psi - \\ & - \frac{a^2}{x} \sum_{k=1}^{\infty} \lambda_k^2 W_k(x) \cos \lambda_k \psi - x C'(x). \end{aligned} \quad (16)$$

We can expand the function  $C'(x)$  in a series as eigenfunctions:

$$C'(x) = \sum_{k=1}^{\infty} A_k(x) \cos \lambda_k \psi,$$

where

$$A_k(x) = \int_0^1 \sum_{k=1}^{\infty} C'(x) \cos \lambda_k \psi d\psi = \frac{(-1)^{k+1}}{\lambda_k} C'(x). \quad (17)$$

From equations (16), taking into account (17), we can find:

$$\begin{aligned} F'(x) + \frac{\beta_k^2}{x} F(x) = - \left[ W_k'(x) + \frac{\beta_k^2}{x} W_k(x) + x A_k(x) \right], \\ (\beta_k^2 = a^2 \lambda_k^2). \end{aligned}$$

We choose an arbitrary function  $W_k(x)$  in a way, to satisfy the conditions:

$$W_k'(x) + \frac{\beta_k^2}{x} W_k(x) = -x A_k(x), \quad (18)$$

$$F'(x) + \frac{\beta_k^2}{x} F(x) = 0. \quad (19)$$

Solving equation (18), we get:

$$W_k(x) = x^{-\beta_k^2} B_k(x), \quad (20)$$

where  $B_k(x)$  is the arbitrary constant to be determined.

Solving equations (20) and together, we obtain:  $B_k'(x) = -x^{\beta_k^2+1} A_k(x)$ , whence

$$B_k(x) = -\frac{(-1)^{k+1}}{\lambda_k} \int_1^x t^{\beta_k^2+1} C'(t) dt. \quad (21)$$

Solving equations (19), we get:

$$F_k(x) = C_k x^{-\beta_k^2}. \quad (22)$$

Substituting the value of the functions  $B_k(x)$  and  $A_k(x)$  from equations (21) and (22) into (13) we will have:

$$\begin{aligned} u(x, \psi) = \sum_{k=1}^{\infty} A C_k x^{-\beta_k^2} \cos \lambda_k \psi - \\ - x \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\partial}{\partial x} \left[ \frac{(-1)^{k+1}}{\lambda_k} x^{-\beta_k^2} \int_1^x t^{\beta_k^2+1} C'(t) dt \right] \cos \lambda_k \psi = \\ = \sum_{k=1}^{\infty} \left[ A C_k - \frac{(-1)^{k+1}}{\lambda_k} \int_1^x t^{\beta_k^2+1} C'(t) dt \right] x^{-\beta_k^2} \cos \lambda_k \psi. \end{aligned} \quad (23)$$

Substituting the value  $u(x, \psi)$  from (23) into the second equation of system (10) for determining the  $V(x, \psi)$  function, we get the equation:

$$\begin{aligned} -\frac{\partial V(x, \psi)}{\partial \psi} = \\ = x \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\partial}{\partial x} \left[ A C_k - \frac{(-1)^{k+1}}{\lambda_k} \int_1^x t^{\beta_k^2+1} C'(t) dt \right] x^{-\beta_k^2} \cos \lambda_k \psi + \\ + \sum_{k=1}^{\infty} \left[ A C_k - \frac{(-1)^{k+1}}{\lambda_k} \int_1^x t^{\beta_k^2+1} C'(t) dt \right] x^{-\beta_k^2} \cos \lambda_k \psi. \end{aligned}$$

After simple transformations, the last equation will take the form:

$$\frac{\partial V(x, \psi)}{\partial \psi} = \sum_{k=1}^{\infty} (\beta_k^2 - 1) x^{-\beta_k^2} \left[ \frac{4A(-1)^{k+1}}{\lambda_k^3} - \frac{(-1)^{k+1}}{\lambda_k} \times \int_1^x t^{\beta_k^2+1} C'(t) dt - \frac{x^{\beta_k^2+2}}{\beta_k^2 - 1} C'(x) \right] \cos \lambda_k \psi.$$

We choose an arbitrary function  $C(x)$  so that to satisfy the condition:

$$\int_1^x t^{\beta_k^2+1} C'(t) dt - \frac{x^{\beta_k^2+2}}{\beta_k^2 - 1} C'(x) = 0. \quad (24)$$

Denoting  $t^{\beta_k^2+1} C'(t) = y(x)$  the last equation is transformed into the form:

$$\int_1^x y(t) dt - \frac{x}{\beta_k^2 - 1} y(x) = 0.$$

Differentiating it with  $x$ , we get:

$$xy'(x) - (\beta_k^2 - 2)y(x) = 0 \text{ or } \frac{d}{dx}(\ln y(x)) = \frac{(\beta_k^2 - 2)}{x},$$

from where  $y(x) = x^{\beta_k^2 - 2}$ .

Taking in mind the value  $y(x)$  for  $C'(x)$  the equation is defined as:

$$C'(x) = x^{-3},$$

where

$$C(x) = C(1) + \frac{x^2 - 1}{2x^2}. \quad (25)$$

Taking into account conditions (24), the equation for determining the function  $v(x, \psi)$  will take the form:

$$\frac{\partial V(x, \psi)}{\partial \psi} = \sum_{k=1}^{\infty} (\beta_k^2 - 1) x^{-\beta_k^2} \frac{4A(-1)^{k+1}}{\lambda_k^3} \cos \lambda_k \psi.$$

Integrating this equation in the interval  $(-1; \psi)$  and keeping in mind the boundary conditions (11), it can be expressed as:

$$V(x, \psi) = \sum_{k=1}^{\infty} x^{-\beta_k^2} \frac{4A(-1)^{k+1} (\beta_k^2 - 1)}{\lambda_k^4} [\sin \lambda_k \psi + (-1)^{k+1}],$$

when  $-1 \leq \psi \leq 0$ , (26)

$$V(x, \psi) = \sum_{k=1}^{\infty} x^{-\beta_k^2} \frac{4A(-1)^{k+1} (\beta_k^2 - 1)}{\lambda_k^4} [(-1)^k - \sin k \psi],$$

when  $0 \leq \psi \leq 1$ . (27)

Substituting the eigenvalues into equations (26) and (27), we finally get:

$$V(x, \psi) = -\frac{64A}{\pi^4} \sum_{k=1}^{\infty} x^{-\beta_k^2} \frac{(\beta_k^2 - 1)}{(2k - 1)} [(-1)^{k+1} \sin(k - 0.5)\pi\psi + 1],$$

when  $-1 \leq \psi \leq 0$ ,

$$V(x, \psi) = -\frac{64A}{\pi^4} \sum_{k=1}^{\infty} x^{-\beta_k^2} \frac{(\beta_k^2 - 1)}{(2k - 1)} [1 - (-1)^{k+1} \sin(k - 0.5)\pi\psi],$$

when  $0 \leq \psi \leq 1$ .

For the function  $u(x, \psi)$ , taking into account the values  $C_k$  and  $C'(x)$ , the formula will be expressed as:

$$u(x, \psi) = \sum_{k=1}^{\infty} \left[ \frac{4A(-1)^{k+1}}{\lambda_k^3} - \frac{(-1)^{k+1}}{\lambda_k} \frac{x^{\beta_k^2 - 1} - 1}{\beta_k^2 - 1} \right] x^{-\beta_k^2} \cos \lambda_k \psi.$$

Taking into account the value of the eigenvalues  $\lambda_k = (2k - 1)\frac{\pi}{2}$ , we finally get:

$$u(x, \psi) = \sum_{k=1}^{\infty} \left[ \frac{4Ax^{-\beta_k^2}}{\pi^3(k - 0.5)^3} - \frac{x^{-1} - x^{-\beta_k^2}}{\pi(k - 0.5)(\beta_k^2 - 1)} \right] \times (-1)^{k+1} \cos[(k - 0.5)\pi]\psi. \quad (28)$$

The resulting solution satisfies all boundary conditions. We can calculate the patterns of pressure change from (7), (25) and (28):

$$\bar{p}(x, \psi) = \frac{2\nu}{U_0 r_0} \sum_{k=1}^{\infty} \left[ \frac{4Ax^{-\beta_k^2}}{\pi^3(k - 0.5)^3} - \frac{x^{-1} - x^{-\beta_k^2}}{\pi(k - 0.5)(\beta_k^2 - 1)} \right] \times (-1)^{k+1} \cos[(k - 0.5)\pi]\psi + C(1) + \frac{x^2 - 1}{2x^2}. \quad (29)$$

The value of constant integration is calculated from the initial condition, at  $x = 1$ ,  $\bar{p}(x, \psi) = \bar{p}_0$ , and we get:

$$C(1) = \bar{p}_0(1, 0) - \frac{2\nu}{U_0 r_0} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{4A(-1)^{k+1}}{\lambda_k^3}. \quad (30)$$

As

$$\sum_{k=1}^{\infty} \frac{4A(-1)^{k+1}}{\lambda_k^3} = \frac{32A}{\pi^3} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{(-1)^{k+1}}{(2k - 1)^3} = A,$$

From (30) we can get:

$$C(1) = \bar{p}_0(1, 0) - \frac{2\nu A}{U_0 r_0}. \quad (31)$$

Substituting the value  $C(1)$  from (31) into (29) we finally get the pattern of pressure change along the length of the flat diffuser:

$$\bar{p}(x, \psi) - \bar{p}(1, 0) = \frac{2\nu}{U_0 r_0} \left\{ A - \sum_{k=1}^{\infty} \left[ \frac{4x^{-\beta_k^2}}{\pi^3(k - 0.5)^3} - \frac{x^{-1} - x^{-\beta_k^2}}{\pi(k - 0.5)(\beta_k^2 - 1)} \right] \times \right. \\ \left. \times (-1)^{k+1} \cos[(k - 0.5)\pi]\psi + \frac{x^2 - 1}{2x^2} \right\}$$

On the wall of the stationary channel, due to the velocity gradient and viscosity, shear stresses are formed, which is determined by the formula [4]:

$$\tau_{r, \varphi} = \mu \left( \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial v_r}{\partial \varphi} + \frac{\partial v_\varphi}{\partial r} - \frac{v_\varphi}{r} \right). \quad (32)$$

In view of the negligible transverse velocity component  $v_\varphi$ , compared to the derivative of  $v_r$ , tangential stress on the angle of  $\varphi$ , the shear stress on the diffuser (32) wall will be determined by the formula:

$$\tau = \frac{\mu}{r} \cdot \left( \frac{\partial v_r}{\partial \varphi} \right)_{\varphi=\alpha}$$



or dimensionless form:

$$\bar{\tau} = \frac{\nu}{\alpha U_0 r_0} \cdot \frac{1}{x} \cdot \frac{\partial u}{\partial \psi} \Big|_{\psi=1}. \quad (33)$$

Substituting the expression for the radial velocity (28) into (33) we obtain the formula for determining the dimensionless shear stress on the diffuser wall:

$$\bar{\tau} = -\frac{\nu}{\alpha U_0 r_0} \cdot \sum_{k=1}^{\infty} \left[ \frac{x^{-2} - x^{-\beta_k^2 - 1}}{(\beta_k^2 - 1)} - \frac{4Ax^{-\beta_k^2 - 1}}{\pi^2(k - 0.5)^2} \right] \times (-1)^{k+1} \text{Sin}[(k - 0.5)\pi] \Big|_{\psi=1}. \quad (34)$$

Based on the expression obtained, we get the place of flow separation from the diffuser wall in accordance with the condition, that separation occurs at the place, where the shear stresses become zero:

$$(\bar{\tau})_{\psi=1} = 0.$$

From the last equation, taking into account (34), for determination of the unknown parameter, we obtain:

$$\frac{x^{-2} - x^{-\beta_k^2 - 1}}{(\beta_k^2 - 1)} - \frac{4Ax^{-\beta_k^2 - 1}}{\pi^2(k - 0.5)^2} = 0.$$

#### Discussion of the results

Based on the solutions obtained, we study the nature of the flow features in a flat diffuser. From the obtained equations for the distribution of velocities  $u(x, \psi)$  and  $V(x, \psi)$  it follows that for  $x \rightarrow \infty$ ,  $u(\infty, \psi) \rightarrow 0$  and  $V(\infty, \psi) \rightarrow 0$ . These conditions are fully consistent with the condition of constant flow.

The graphs were plotted in order to visualize the patterns of changes in the radial velocity  $u(x, \psi)$  along the transverse section and along the length of a flat diffuser, as well as the shear stress on the wall of a fixed channel, depending on the opening angle  $\alpha=20^\circ$ ,  $10^\circ$ ,  $5^\circ$  and the Reynolds number  $Re=20, 40, 60, 80, 100, 110$ . Fig. 2–5 show the indicated graphs for cases  $\alpha=20^\circ$  and  $5^\circ$  at  $Re=60$  and  $Re=70$ .

Numerical calculations were carried out at a constant value:  $A=0.7$ .

The separation point is a special point for the shear stress function (32) where

$$\beta_k^2 - 1 = 0 \text{ or } \lambda_k^2 = \alpha \text{ Re}. \quad (35)$$

Under condition (35), the value  $\bar{\tau}$  is undefined. The indeterminacy is found according to the L'Hopital's rule [6]. As a result, it turns out:

$$\sum_{k=1}^{\infty} \lim_{\beta_k^2 \rightarrow 1} \left[ \frac{x^{-2} - x^{-\beta_k^2 - 1}}{(\beta_k^2 - 1)} - \frac{2.8\alpha \text{ Re } x^{-\beta_k^2 - 1}}{\beta_k^2} \right] (-1)^{k+1} = 0,$$

whence follows the condition

$$x^{-1} \left( \frac{2.8}{\alpha \text{ Re}} - \ln x \right) = 0 \text{ or } x = \exp \frac{2.8}{\alpha \text{ Re}}. \quad (36)$$

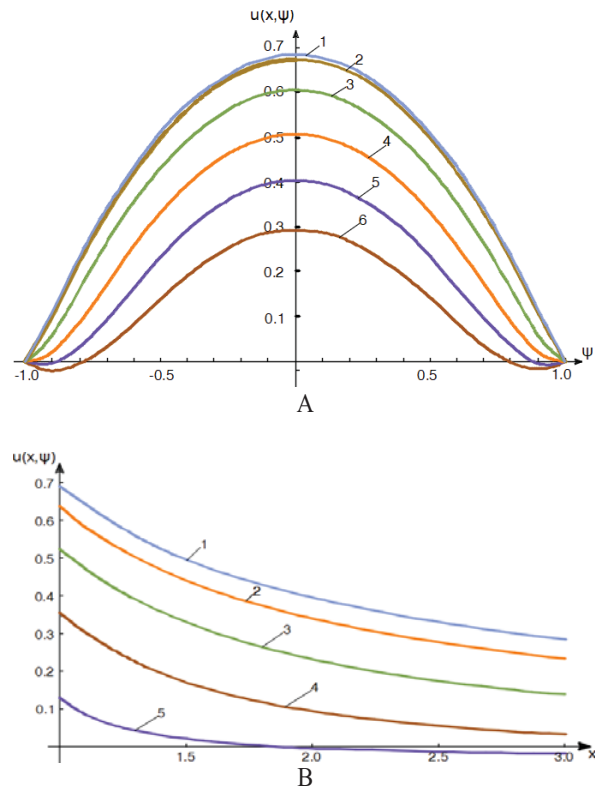


Fig. 2. Graphs of changes in the radial velocity  $u(x, \psi)$  in a flat diffuser at an opening angle  $\alpha=20^\circ$  and the Reynolds number  $Re=60$ : A) along the cross-section at 1.  $x=1.03$ , 2.  $x=1.05$ , 3.  $x=1.2$ , 4.  $x=1.5$ , 5.  $x=2.0$ , 6.  $x=3.0$ ; B) lengthwise at 1.  $\psi=0.1$ , 2.  $\psi=0.3$ , 3.  $\psi=0.51$ , 4.  $\psi=0.7$ , 5.  $\psi=0.9$

Рис. 2. Графики изменения радиальной скорости  $u(x, \psi)$  в плоском диффузоре при угле раствора  $\alpha=20^\circ$  и числе Рейнольдса  $Re=60$ : А) по поперечному сечению при 1.  $x=1.03$ , 2.  $x=1.05$ , 3.  $x=1.2$ , 4.  $x=1.5$ , 5.  $x=2.0$ , 6.  $x=3.0$ ; В) по длине при 1.  $\psi=0.1$ , 2.  $\psi=0.3$ , 3.  $\psi=0.51$ , 4.  $\psi=0.7$ , 5.  $\psi=0.9$

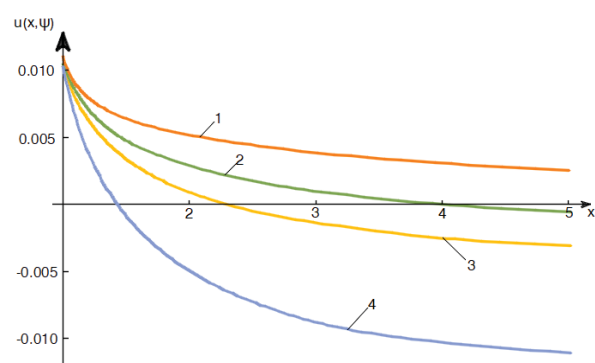
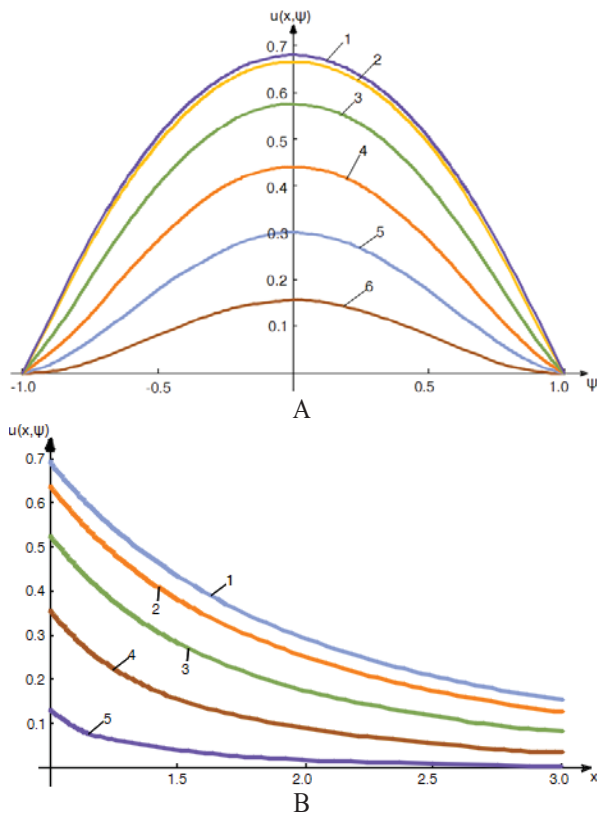


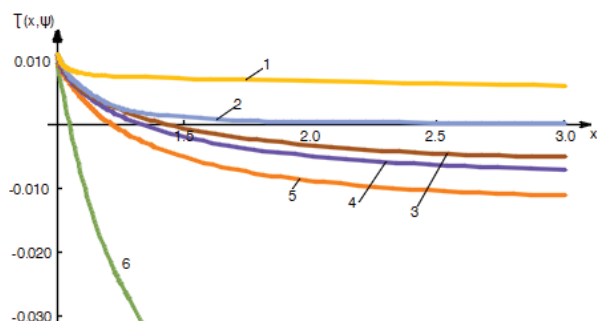
Fig. 3. Graph of changes in shear stresses in a flat diffuser at  $\alpha=20^\circ$  and Reynolds numbers 1.  $Re=10$ , 2.  $Re=20$ , 3.  $Re=30$ , 4.  $Re=40$

Рис. 3. График изменения касательных напряжений в плоском диффузоре при  $\alpha=20^\circ$  и числах Рейнольдса 1.  $Re=10$ , 2.  $Re=20$ , 3.  $Re=30$ , 4.  $Re=40$



**Fig. 4.** Graphs of changes in the radial velocity  $u(x, \psi)$  in a flat diffuser at an opening angle  $\alpha=5^\circ$  and the Reynolds number  $Re=60$ : A) along the cross-section at 1.  $x=1.03$ , 2.  $x=1.05$ , 3.  $x=1.2$ , 4.  $x=1.5$ , 5.  $x=2.0$ , 6.  $x=3.0$ ; B) lengthwise at 1.  $\psi=0.1$ , 2.  $\psi=0.3$ , 3.  $\psi=0.51$ , 4.  $\psi=0.7$ , 5.  $\psi=0.9$

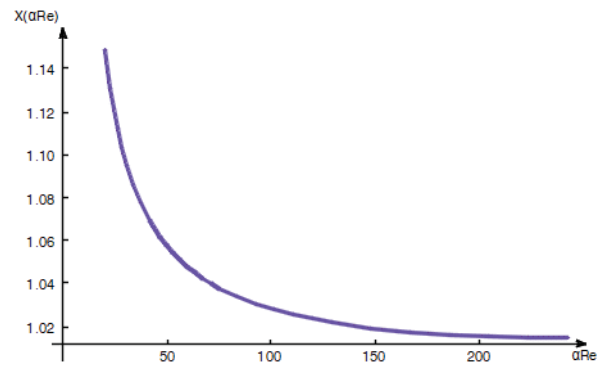
**Рис. 4.** Графики изменения радиальной скорости  $u(x, \psi)$  в плоском диффузоре при угле раствора  $\alpha=5^\circ$  и числе Рейнольдса  $Re=60$ : A) по поперечному сечению при 1.  $x=1.03$ , 2.  $x=1.05$ , 3.  $x=1.2$ , 4.  $x=1.5$ , 5.  $x=2.0$ , 6.  $x=3.0$ ; B) по длине при 1.  $\psi=0.1$ , 2.  $\psi=0.3$ , 3.  $\psi=0.51$ , 4.  $\psi=0.7$ , 5.  $\psi=0.9$



**Fig. 5.** Graph of changes in shear stresses in a flat diffuser at  $\alpha=5^\circ$  and Reynolds numbers 1.  $Re=10$ , 2.  $Re=20$ , 3.  $Re=30$ , 4.  $Re=40$ , 5.  $Re=50$ , 6.  $Re=60$

**Рис. 5.** График изменения касательных напряжений в плоском диффузоре при  $\alpha=5^\circ$  и числах Рейнольдса 1.  $Re=10$ , 2.  $Re=20$ , 3.  $Re=30$ , 4.  $Re=40$ , 5.  $Re=50$ , 6.  $Re=60$

For a visual representation of the place of separation, a graph of the function  $x$  from  $\alpha Re$  is shown in Fig. 6.



**Fig. 6.** Function graph  $x$  from  $\alpha Re$   
**Рис. 6.** График функции  $x$  от  $\alpha Re$

The analysis of the numerical calculation results are presented in the form of graphs (Fig. 2, B; 3; 4, B; 5; 6) showed that the coordinates of the separation points were determined depending on the opening angle and Reynolds number. The viscous liquid flow to the separating point is considered stationary and strictly flat-parallel and, according to the results of calculations, the hydrodynamic parameters are strictly symmetrical (Fig. 2, 4). The nature of the flow is disturbed after the separation point, and the obtained solutions do not provide accurate results. However, they can be used for qualitative analysis. At the separation points, the sign of the shear stress and radial velocity change. However, they can be used for qualitative analysis. At the separation points, the sign of the shear stress and radial velocity change.

It can be seen from the graph that the coordinates of the separation point exactly match the data determined from the graphs. In addition, it can be seen that the conditions for continuous flow in a flat diffuser at small opening angles are possible at significantly higher Reynolds numbers. As a result, the single-mode stationary flow is sharply reduced (Fig. 2, 3), as a result of which the stationary regime is disturbed. Multimode flow starts, accompanied by various pulsation processes and unstable operation of the diffuser, where the obtained solutions are invalid. The main goal of diffuser design is to ensure a steady mode of operation, which can be achieved by choosing the optimum dimensions.

### Conclusion

Based on the study results, the following conclusions were formulated:

- the features of the viscous fluid flow in flat diffusers are determined;
- the method for solving a boundary value problem was developed, and formulas for calculating radial and transverse velocities, shear stresses on the wall of a fixed channel, and pressure along the length of the diffuser were obtained;
- the graphs of changes in the flow's hydrodynamic parameters and shear stress on the channel wall were designed;
- the coordinate of the flow separation point was determined using the opening angle and the Reynolds number, which is the main parameter of the diffuser.

The obtained solutions of the approximating Navier–Stokes equations for identifying the patterns of changes in hydrodynamic parameters in a flat channel, make it possible to identify the main point of ongoing processes and determine the bifurcation point coordinates from the diffuser opening angle and the Reynolds number. The critical values of the Reynolds number are also determined in case the regime transfers from symmetrical to asymmetrical. The pressure and shear stress regularities of varia-

tions on the fixed channel's wall are found along the length of the flat diffuser, and the coordinates of the separation point are defined, as it is shown on the graphs.

Based on the results of the studies obtained, it is possible to correctly design a flat diffuser, to choose the opening angle and its length according to the condition of continuous movement. Flat diffusers are the main part in many technological equipment for exploration, mining, transportation and processing of geo-resources.

## REFERENCES

1. Jeffery G.B. The two-dimensional steady motion of a viscous fluid. *Philosophical Magazine*, 1915, Ser. 6, vol. 29, no. 172, pp. 455–465.
2. Hamel G. Spiralförmige Bewegungen zäher Flüssigkeiten [Spiral movements of viscous liquids]. *Jahresbericht der Deutschen Mathematiker-Vereinigung*, 1917, no. 25, pp. 34–60.
3. Targ S.M. *Osnovnyye zadachi teorii laminarnykh techeniy* [The basic problems of the theory of laminar flow]. Moscow, Gostekhizdat Publ., 1951. 420 p.
4. Slezkin N.A. *Dinamika vyazkoy neszhimayemoy zhidkosti* [Dynamics of a viscous incompressible fluid]. Moscow, Gostekhizdat Publ., 1955. 519 p.
5. Tikhonov A.N., Samarski A.G. *Upravneniya matematicheskoy fiziki* [Equation of mathematical physics]. Moscow, Nauka Publ., 1972. 735 p.
6. Akulenko L.D., Kumakshev S.A. Bifurkatsiya techeniya vyazkoy zhidkosti v ploskom diffuzore [Bifurcation of a viscous fluid flow in a flat diffuser]. *Doklady Akademii nauk*, 2004, vol. 396, no. 4, pp. 480–484.
7. Akulenko L.D., Kumakshev, S.A. Bifurkatsiya osnovnogo statsionarnogo techeniya vyazkoy zhidkosti v ploskom diffuzore [Bifurcation of the main stationary flow of a viscous fluid in a flat diffuser]. *Izvestiya Rossiyskoy akademii nauk. Mekhanika zhidkosti i gaza*, 2005, no. 3, pp. 25–36.
8. Akulenko L.D., Kumakshev S.A. Mnogomodovaya bifurkatsiya techeniya vyazkoy zhidkosti v ploskom diffuzore [Multimode bifurcation of a viscous fluid flow in a flat diffuser]. *Doklady Akademii nauk*, 2004, vol. 399, no. 5, pp. 620–624.
9. Akulenko L.D., Kumakshev S.A. Bifurkatsiya mnogomodovykh techeniy vyazkoy zhidkosti v ploskom diffuzore [Bifurcation of multimode flows of a viscous fluid in a flat diffuser]. *Prikladnaya matematika i mekhanika*, 2008, vol. 72, no. 3, pp. 431–441.
10. Akulenko L.D., Kumakshev S.A. Bifurcation of multimode flows of a viscous fluid in a plane diverging channel. *Journal of Applied Mathematics and Mechanics*, 2008, vol. 72, no. 3, pp. 296–302. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.jappmathmech.2008.07.007> (accessed 10 May 2022).
11. Kumakshev S.A. Flat diffuser: Steady state flow of a viscous incompressible fluid. *Science and Innovations*, 2020, vol. 7, no. 103, pp. 1–13. Available at: <http://dx.doi.org/10.18698/2308-6033-2020-7-1993> (accessed 10 May 2022).
12. Volkov E., Fedyushkin A. Symmetry of the flow of Newtonian and non-Newtonian fluid in a flat diffuser and confuser. *Physical-Chemical Kinetics in Gas Dynamics*, 2019, vol. 20, no. 2. Available at: <http://chemphys.edu.ru/issues/2019-20-2/articles/791/> (accessed 10 May 2022).
13. Fedyushkin A.I. The transition flows of a viscous incompressible fluid in a plane diffuser from symmetric to asymmetric and to non-stationary regimes. *Physical-Chemical Kinetics in Gas Dynamics*, 2016, vol. 17, no. 3, pp. 1–17. Available at: <http://chemphys.edu.ru/issues/2016-17-3/articles/638/> (accessed 10 May 2022).
14. Durst F., Melling A., Whitelaw J.H. Low Reynolds number flow over a plane symmetric sudden expansion. *Journal of Fluid Mechanics*, 1974, vol. 64, no. 01, pp. 111–128.
15. Cherdron W., Durst F., Whitelaw J.H. Asymmetric flows and instabilities in symmetric ducts with sudden expansions. *Journal of Fluid Mechanics*, 1978, vol. 84, no. 1, pp. 13–31. Available at: <https://doi.org/10.1017/S0022112078000026> (accessed 10 May 2022).
16. Shapeev A.V. Nestatsionarnoe avtomodelnoe techenie vyazkoy neszhimaemoy zhidkosti v ploskom diffuzore [Unsteady self-similar flow of a viscous incompressible fluid in a flat diffuser]. *Izvestiya Rossiyskoy akademii nauk. Mekhanika zhidkosti i gaza*, 2004, no. 1, pp. 41–46.
17. Samy M. El-Behery, Mofreh H. Hamed. A comparative study of turbulence models performance for separating flow in a planar asymmetric diffuser. *Computers & Fluids*, 2011, vol. 44, no. 1, pp. 248–257.
18. Fox R.W., Kline S.J. Flow regimes in curvilinear subsonic diffusers. *Technical mechanics*, 1962, no. 3, pp. 3–19.
19. Moore C.A., Kline S.J. *Some effects of vanes and of turbulence in two-dimensional wide-angle subsonic diffusers*. Report. Washington, NACA TN 4080, 1958.
20. Gerasimenko V.P., Tkachuk A.S., Yatsyshin A.A. O polyarakh ploskikh diffuzorov [On the polars of flat diffusers]. *Energeticheskie i teplotekhnicheskie protsessy i oborudovanie*, 2012, no. 8, pp. 137–142.
21. Goldshtik M., Hussain F., Shtern, V. Symmetry breaking in vortex-source and Jeffery–Hamel flows. *Journal of Fluid Mechanics*, 1991, vol. 232, pp. 521–566.
22. Haines P.E., Hewitt R.E., Hazel A.L., The Jeffery–Hamel similarity solution and its relation to flow in a diverging channel. *Journal of Fluid Mechanics*, 2011, vol. 687, pp. 404–430. DOI: 10.1017/jfm.2011.362
23. Sarukhanyan A., Vartanyan A., Vermishyan G., Tokmayan V. The study of hydrodynamic processes occurring on transition of sudden expanding of hydraulic section of plane – parallel full pipe flow. *TEM Journal: Technology, Education, Management, Informatics*, 2020, vol.9, no. 4, pp. 1494–1501.
24. Kalantaryan M.A., Arzumanyan A.A. Water absorption capacity of Irind mine pumice. *Journal of Architectural and Engineering Research*, 2021, vol. 1, no. 1, pp. 32–35.

Received: 17 May 2022.

Reviewed: 17 September 2022.

## Information about the authors

**Arestak A. Sarukhanyan**, Dr. Sc., professor, head of the Hydraulics Department, National University of Architecture and Construction of Armenia.

**Yeghiazar V. Vardanyan**, Dr. Sc., professor, rector, National University of Architecture and Construction of Armenia.

**Garnik B. Vermishyan**, Cand. Sc., associate professor, National University of Architecture and Construction of Armenia.

УДК 532.13,532.54

## ИССЛЕДОВАНИЕ ИЗМЕНЕНИЯ ЗАКОНОМЕРНОСТЕЙ ГИДРОДИНАМИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ ТЕЧЕНИЯ ВЯЗКОЙ ЖИДКОСТИ В ПЛОСКОМ ДИФфуЗОРЕ

**Саруханян Арестак Арамаисович<sup>1</sup>,**  
asarukhanyan51@mail.ru

**Варданян Егиазар Ваграмович<sup>1</sup>,**  
info@nuasa.am

**Вермишян Гарник Бахшоевич<sup>1</sup>,**  
vermishyan.garnik@gmail.com

<sup>1</sup> Национальный университет архитектуры и строительства Армении,  
Республика Армения, 0009, г. Ереван, ул. Терьяна, 105.

**Актуальность.** В различных механизмах и машинах широко используются диффузоры, либо в виде насадки, либо в качестве составной части. В связи с этим исследование движения вязкой жидкости в диффузорах направлено на выявление закономерностей изменения гидродинамических параметров потока, что позволит лучше понять характер движения в зависимости от числа Рейнольдса. По результатам анализов исследования выявятся условия по правильному конструированию узла механизма, обеспечивающего его надежную и долговечную работу.

**Целью** настоящей работы является исследование закономерностей изменения гидродинамических параметров вязкой несжимаемой жидкости в плоском диффузоре и определение параметров потока в фиксированном сечении.

**Объекты:** плоский диффузор, в котором движется вязкая несжимаемая жидкость. При этом выявление закономерностей изменения гидродинамических параметров потока имеет определяющее значение при выборе конструктивных размеров аппаратов и механизмов, основной частью которых является плоский диффузор.

**Методы.** В основу исследования по выявлению закономерностей изменения гидродинамических параметров потока в плоском диффузоре заложены фундаментальные нелинейные дифференциальные уравнения механики вязкой жидкости, которые в общем случае не поддаются точному математическому решению. С целью интегрирования в нелинейных дифференциальных уравнениях, ввиду малости, отброшены нелинейно-конвективные члены, а также упрощены инерционные члены. Такое упрощение оправдано, если скорости весьма малы или если динамический коэффициент вязкости жидкости весьма велик. Разработан метод решения краевой задачи, получены закономерности изменения параметров потока. По выведенным закономерностям построены графики изменения скорости, давления и касательных напряжений на стенке неподвижного канала и определены координаты точки отрыва.

**Результаты.** В зависимости от угла раствора диффузора и числа Рейнольдса дано общее решение аппроксимирующих уравнений Навье–Стокса. В соответствии с характером движения установлены граничные условия задачи и сформулирована краевая задача. Разработан метод интегрирования краевой задачи, получены закономерности изменения скоростей по длине диффузора при параболическом распределении скоростей во входном сечении. Построены графики изменения радиальных скоростей по длине и при фиксированном значении угла раствора, получена картина течения и переход однофазного течения к многофазным режимам. При фиксированном значении угла раствора и числа Рейнольдса выведены условия отрыва потока от неподвижной стенки, при которых скорость потока меняет знак.

### **Ключевые слова:**

диффузор, профиль скорости, распределение давления, предел устойчивости, вязкая жидкость, течение жидкости.

### **Информация об авторах**

**Саруханян Арестак Арамаисович**, доктор технических наук, профессор, заведующий кафедрой водных систем, гидротехники и гидроэнергетики Национального университета архитектуры и строительства Армении.

**Варданян Егиазар Ваграмович**, доктор технических наук, профессор, ректор Национального университета архитектуры и строительства Армении.

**Вермишян Гарник Бахшоевич**, кандидат физико-математических наук, доцент кафедры высшей математики и физики Национального университета архитектуры и строительства Армении.

Поступила 17.05.2022 г.  
Прошла рецензирование 17.09.2022 г.



УДК 553.988

## ОПРЕДЕЛЕНИЕ РЕЗОНАНСНЫХ ЧАСТОТ ШАРОВОЙ КАПЛИ ВОДЫ В МАСЛЯНОЙ СРЕДЕ

Филипас Александр Александрович<sup>1</sup>,  
filipas@tpu.ru

Исаев Юсуп Ниязбекович<sup>1</sup>,  
isaev@tpu.ru

Кучман Алёна Владимировна<sup>1</sup>,  
avm82@tpu.ru

<sup>1</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет,  
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

**Актуальность.** Одним из приоритетных направлений нефтегазового сектора отечественной экономики является повышение эффективности и рентабельности процессов подготовки товарной нефти, однако научные результаты, полученные в данной области, являются недостаточными для современных технологических требований. Не решены вопросы недостатка данных для разработки достоверных математических моделей процессов разрушения нефтяной эмульсии, а также входных сигналов для регулирования процессов управления технологическим оборудованием для подготовки нефти. Нефть, добываемая на месторождениях, представляет собой водомасляную эмульсию прямого или обратного типа с уникальным дисперсным составом для каждой скважины. В настоящее время анализ размеров капель нефтяной эмульсии на промысле проводят с помощью классического лабораторного метода, имеющего низкую скорость получения результатов анализа, тогда как распределение глобул по размерам несет информацию о таких свойствах дисперсной системы, как скорость деградации, долговременная стабильность, вязкость и другие. Зная распределение капель по размерам конкретной нефтяной эмульсии, можно подобрать наиболее рациональные способы её разрушения, необходимые технические параметры устройств, используемых для реализации этих способов. В частности, при воздействии на каплю с частотой, близкой к её собственной, возможны интенсификация разрушения или синтез эмульсии. В связи с этим актуальным и необходимым является вывод аналитического выражения для резонансной частоты капли эмульсии и уравнений свободных колебаний.

**Цель:** заключается в определении резонансных частот шаровой капли воды в масляной среде и оценки воздействия демпфирующих свойств среды на колебания поверхности капли.

**Объект:** водомасляная эмульсия.

**Методы:** математическое моделирование, ортогональные разложения, термодинамические потенциалы.

**Результаты.** Получено аналитическое выражение для резонансной частоты водной капли, а также уравнение свободных колебаний капли в виде неконсервативной системы.

### Ключевые слова:

нефтяная эмульсия, резонансная частота колебаний капли эмульсии, термодинамический потенциал, свободная энергия, ортогональные разложения.

### Введение

Нефть, добываемая на месторождениях, представляет собой водомасляную эмульсию с уникальным дисперсным составом для каждой скважины [1]. Эмульсии на промысле могут быть образованы нефтью, водой, газом и твердыми частицами. В нефтегазовой промышленности они классифицируются как эмульсии типа «масло-в-воде» или «вода-в-масле», в зависимости от жидкости, которая становится сплошной фазой [2].

Поиск эффективных и простых способов разрушения устойчивых водонефтяных эмульсий, образующихся при добыче и подготовке нефти, является важнейшей задачей нефтяной промышленности. В настоящее время для деэмульсации применяют физические (механическая, термическая, электрообработка), химические (применение реагентов-деэмульгаторов и деэмульгаторов на основе различных наночастиц), биологические (применение биодеэмульгаторов) и комбинированные методы [3–5].

Использование различных деэмульгаторов приводит к образованию промежуточных слоев эмульсии, которые считаются отходами и требуют утилизации.

Для таких эмульсий очень сложно, а иногда и невозможно, полностью отделить нефть от воды традиционными методами. Для снижения негативного воздействия промежуточных слоев эмульсии на окружающую среду необходимо постоянно сбрасывать их в шламонакопители и перерабатывать.

Другой способ повышения энергетической эффективности и интенсификации процессов разрушения нефтяной эмульсии – применение акустических излучателей звуковой и ультразвуковой частоты. Акустическое воздействие в нефтяной промышленности используется во многих технологических процессах, от нефтедобычи до нефтепереработки: для увеличения нефтеотдачи, для снижения вязкости добываемой тяжелой нефти, в процессе подготовки месторождений и для интенсификации процессов переработки [6, 7].

В частности, для операций деэмульсации было установлено два ультразвуковых эффекта, влияющих на отделение воды от нефти. Это образование стоячих волн и кавитация [8–10]. Кавитация зависит от того, как применяется ультразвуковая обработка, и может либо усиливать образование капель в жидкостях, содержащих несмешивающиеся жидкие фазы, либо

стимулировать эмульгирование. Кавитация при мощном ультразвуковом воздействии может привести к тому, что более крупные капли рассыплются на более мелкие за счет микроструйной активности, разрушающей капли, что приводит к эмульгированию [11]. С другой стороны, в определенных условиях и типах жидкости кавитация может стимулировать коагуляцию капель вместо их фрагментации, тем самым усиливая разделение воды и сырой нефти [8].

Таким образом, целью исследования является определение резонансных частот шаровой капли воды в масляной среде.

Рассмотрим систему, состоящую из масляной и водной фаз и границы раздела, представляющей собой шаровую поверхность (рис. 1) [12].

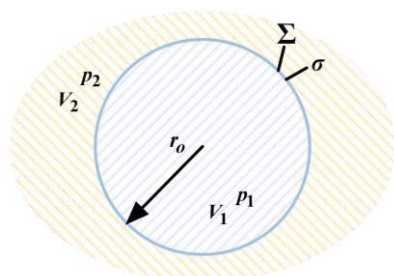


Рис. 1. Система, состоящая из масляной и водной фаз и границы раздела

Fig. 1. System consisting of oil and water phases and an interface

Результирующая свободная энергия системы равна сумме свободных энергий масляной и водной фаз и поверхностного слоя [13–15]:

$$F = F_1 + F_2 + F_{\text{поверх}} = -ST - p_1V_1 - p_2V_2 + \sigma \Sigma, \quad (1)$$

где  $F$ , Дж – результирующая свободная энергия системы;  $F_1$ , Дж – свободная энергия водной фазы;  $F_2$ , Дж – свободная энергия масляной фазы;  $F_{\text{поверх}}$ , Дж – свободная энергия поверхностного слоя;  $S$ , Дж/К – энтропия системы;  $T$ , К – температура системы;  $p_1$ , Па – давление в водной фазе;  $V_1$ , м<sup>3</sup> – объем воды;  $p_2$ , Па – давление в масляной фазе;  $V_2$ , м<sup>3</sup> – объем масла;  $\sigma$ , Н/м – поверхностное натяжение;  $\Sigma$ , м<sup>2</sup> – площадь поверхности границы раздела фаз.

Любая термодинамическая система стремится к минимуму свободной энергии. Учитывая, что система находится в положении термодинамического равновесия при температуре  $T$ , найдем минимум свободной энергии системы. Свободная энергия  $F$  – термодинамический потенциал с собственными переменными, которые представляют собой объем, площадь поверхности раздела фаз и температуру. Учитывая, что суммарный объем системы равен сумме объемов масляной и водной фаз, из выражения (1) получаем:

$$dF = -(p_1 - p_2)dV_1 + \sigma_1 d\Sigma_1 = 0. \quad (2)$$

Основываясь на том, что площадь поверхности и объем шара определяются выражениями:

$$\Sigma_1 = 4\pi r^2, \quad V_1 = \frac{4}{3}\pi r^3,$$

можно записать следующее выражение:

$$\frac{d\Sigma_1}{dV_1} = \frac{d(4\pi r^2)}{d\left(\frac{4}{3}\pi r^3\right)} = \frac{2rdr}{\frac{1}{3}3r^2 dr} = \frac{2}{r}. \quad (3)$$

Подставляя выражение (3) в (2), получаем уравнение, связывающее разницу давлений сред и поверхностное натяжение:

$$p_1 - p_2 = \frac{2\sigma}{r}. \quad (4)$$

Снаружи шаровой поверхности давление меньше, чем внутри, на величину поверхностного давления, при этом жидкости, из которых состоит система, имеют высокую плотность и являются несжимаемыми. Поэтому при воздействии акустического возмущения на каплю воды в масле, она не сжимается, но при этом деформируется: радиус сферической поверхности не сохраняется и происходит изменение формы капли. Таким образом, выражение (4) принимает следующий вид:

$$p_1 - p_2 = 2\sigma \left( \frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2} \right), \quad (5)$$

где  $r_1, r_2$ , м – радиусы кривизны поверхностей водной и масляной фазы, расположенные во взаимно перпендикулярных плоскостях (изменяется форма границы раздела фаз) [16, 17].

Рассмотрим левую часть выражения (5) – отклонения давления от давления на поверхности  $p = p_2 - p_1$ . Запишем уравнение Эйлера для капиллярной волны, не учитывающее влияние гравитационных сил, и добавим уравнение непрерывности [17]:

$$\begin{cases} \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + (\mathbf{v}\nabla)\mathbf{v} = -\nabla \frac{p}{\rho}; \\ \text{div} \mathbf{v} = 0. \end{cases} \quad (6)$$

Введем понятие потенциала скорости  $\psi$ , тогда выражение (6) принимает вид

$$\begin{cases} \mathbf{v} = \nabla \psi = \text{grad}(\psi); \\ \text{div} \mathbf{v} = \nabla \nabla \psi = \Delta \psi = 0. \end{cases} \quad (7)$$

Заметим, что потенциал скорости удовлетворяет уравнению Лапласа, с учетом чего получаем простое выражение, связывающее давление и потенциал скорости:

$$\frac{\partial \nabla \psi}{\partial t} + \nabla \psi \Delta \psi = -\nabla \frac{p}{\rho} \rightarrow p + \rho \frac{\partial \psi}{\partial t} = 0. \quad (8)$$

Из последнего уравнения видно, что конвективная составляющая  $(\mathbf{v}\nabla)\mathbf{v}$  в уравнении (7) не принимает участия.

Теперь рассмотрим правую часть уравнения (5). В рассматриваемой системе происходит отклонение от сферической поверхности, поэтому разложим это выражение в окрестности поверхности сферы. С учетом того, что отклонения будут небольшими, раскладывая правую часть уравнения (5) в ряд Тейлора в сферических координатах получаем:

$$\left(\frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2}\right) = \frac{2}{r} - \frac{2\zeta}{r^2} - \frac{1}{r^2} \left\{ \frac{1}{\sin^2(\theta)} \frac{\partial^2 \zeta}{\partial \varphi^2} + \frac{1}{\sin(\theta)} \frac{\partial}{\partial \theta} \left( \sin(\theta) \frac{\partial}{\partial \theta} \zeta \right) \right\}, \quad (9)$$

где  $\zeta$  – координаты отклонения от фиксированного значения радиуса шара;  $\theta$  – угол между осью OZ и вектором  $r_0$ ;  $\varphi$  – угол между осью OX и вектором  $r_0$  (рис. 2).

Соберем левые и правые части уравнения (4). С учетом (8) и (9) получаем:

$$\rho \frac{\partial \psi}{\partial t} + p = 0 \rightarrow \rho \frac{\partial \psi}{\partial t} + \sigma \left[ \frac{2}{r_0} - \frac{2\zeta}{r_0^2} - \frac{1}{r_0^2} \left\{ \frac{1}{\sin^2(\theta)} \frac{\partial^2 \zeta}{\partial \varphi^2} + \frac{1}{\sin(\theta)} \frac{\partial}{\partial \theta} \left( \sin(\theta) \frac{\partial}{\partial \theta} \zeta \right) \right\} \right] = 0. \quad (10)$$

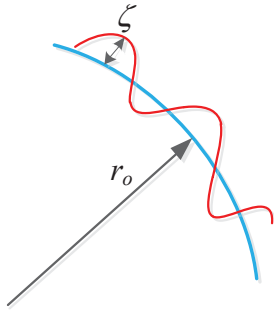


Рис. 2.  $\zeta$ -искажения поверхности шаровой капли, вызванные влиянием внешних возмущений

Fig. 2.  $\zeta$ -distortions of a spherical drop surface caused by the influence of external disturbances

Производная координаты отклонения от фиксированного значения радиуса шара по отношению к времени представляет собой радиальную скорость. Учитывая выражение (7), получаем:

$$v_r = \frac{\partial \psi}{\partial r} = \frac{\partial \zeta}{\partial t}. \quad (11)$$

Дифференцируя выражение (10) по времени, получаем волновое уравнение:

$$\rho \frac{\partial^2 \psi}{\partial t^2} - \frac{\sigma}{r_0^2} \frac{\partial}{\partial r} \times \left[ 2\psi + \left\{ \frac{1}{\sin^2(\theta)} \frac{\partial^2 \psi}{\partial \varphi^2} + \frac{1}{\sin(\theta)} \frac{\partial}{\partial \theta} \left( \sin(\theta) \frac{\partial}{\partial \theta} \psi \right) \right\} \right] = 0. \quad (12)$$

Найдем решение уравнения (12) в виде стоячей волны в факторизованном виде [18]:

$$\psi(t, r, \varphi, \theta) = e^{-j\omega t} f(r, \varphi, \theta). \quad (13)$$

Подставим выражение (13) в уравнение (12) и, производя сокращение на экспоненциальный множитель, получим:

$$\rho \omega^2 f + \frac{\sigma}{r_0^2} \left[ 2 \frac{\partial}{\partial r} f + \frac{\partial}{\partial r} \left\{ \frac{1}{\sin^2(\theta)} \frac{\partial^2 f}{\partial \varphi^2} + \frac{1}{\sin(\theta)} \frac{\partial}{\partial \theta} \left( \sin(\theta) \frac{\partial}{\partial \theta} f \right) \right\} \right] = 0. \quad (14)$$

Заметим, что функция  $f$  удовлетворяет уравнению Лапласа, поэтому найдем её решения в виде комбинаций радиального множителя и объемных шаровых функций Лапласа:

$$f(r, \varphi, \theta) = r^l Y_{l,m}(\varphi, \theta). \quad (15)$$

Шаровые функции Лапласа выражаются через известные присоединенные полиномы Лежандра  $l$ -го порядка [19]:

$$Y_{l,m}(\varphi, \theta) = P_l^m(\cos(\theta)) e^{im\varphi},$$

$$P_l^m(\cos(\theta)) = \sin^m(\theta) \frac{d^m P_l(\cos(\theta))}{d(\cos \theta)^m}. \quad (16)$$

Как известно,  $l$  пробегает все целые положительные числа, включая нуль, при фиксированном  $l$  значения  $m=0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm l$ . Учитывая, что шаровые функции Лапласа – это собственные функции углового оператора [19], получаем

$$\frac{1}{\sin^2(\theta)} \frac{\partial^2 Y_{l,m}}{\partial \varphi^2} + \frac{1}{\sin(\theta)} \frac{\partial}{\partial \theta} \left( \sin(\theta) \frac{\partial}{\partial \theta} Y_{l,m} \right) = -l(l+1) Y_{l,m}. \quad (17)$$

Подставляя выражение (17) в (14), с учетом (15) и (16) получаем

$$\rho \omega^2 Y_{l,m} r^l + \frac{\sigma}{r_0^2} (2 - l(l+1)) Y_{l,m} \frac{d}{dr} r^l = 0 \rightarrow$$

$$\rightarrow \rho \omega^2 Y_{l,m} r^l + \frac{\sigma}{r_0^2} (2 - l(l+1)) l \cdot Y_{l,m} r^{l-1} = 0. \quad (18)$$

На границе  $r=r_0$  из (18) получаем

$$\rho \omega^2 Y_{l,m} + \frac{\sigma}{r_0^3} (2 - l(l+1)) l Y_{l,m} = 0 \rightarrow$$

$$\rightarrow \left[ \rho \omega^2 + \frac{\sigma}{r_0^3} (2 - l(l+1)) l \right] Y_{l,m} = 0 \rightarrow$$

$$\rightarrow \rho \omega^2 + \frac{\sigma}{r_0^3} (2 - l(l+1)) l = 0. \quad (19)$$

Таким образом, из (19) получаем выражение для резонансной частоты:

$$\omega^2 = - \frac{\sigma}{\rho r_0^3} (2 - l(l+1)) l = \frac{\sigma}{\rho r_0^3} l(l+2)(l-1). \quad (20)$$

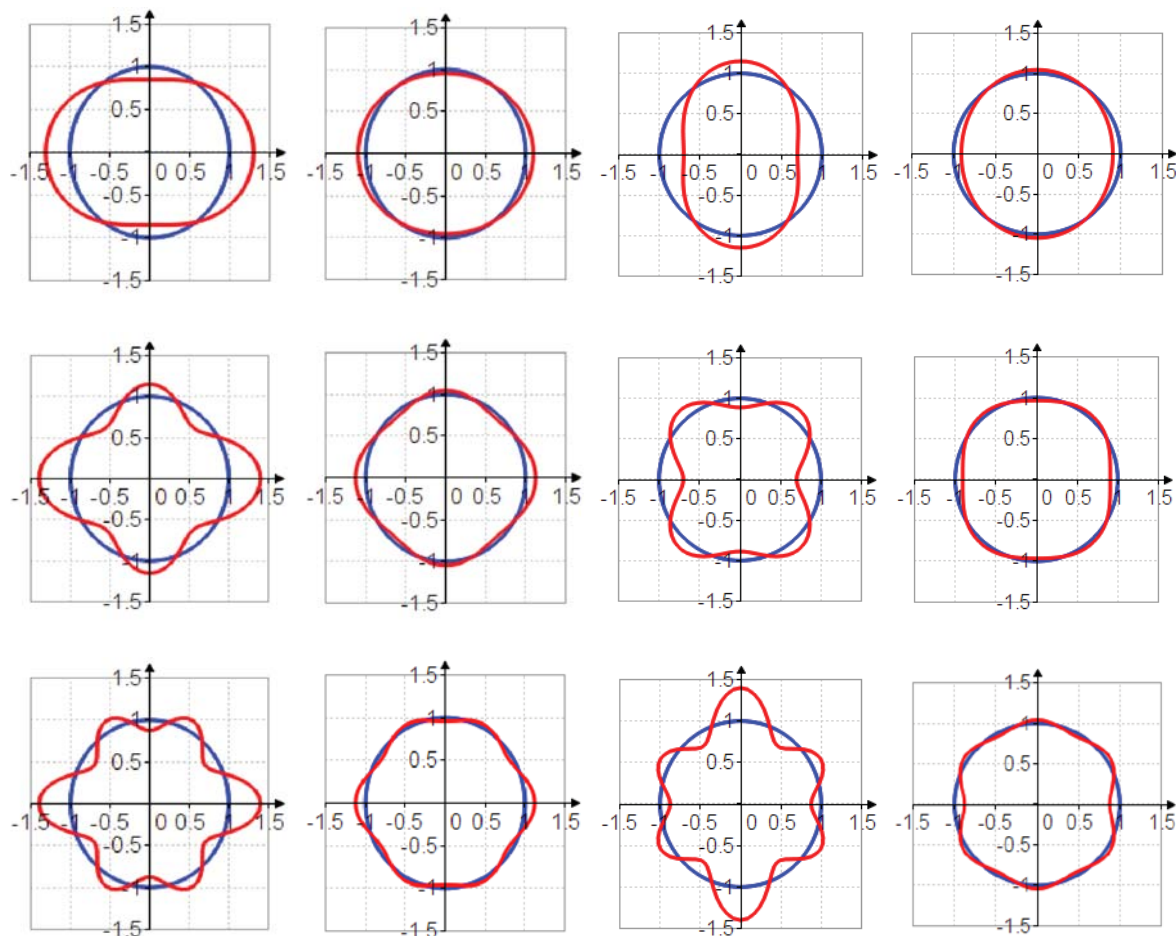
Значения параметра  $l$  при  $l=0, l=1$  отражают сжатие капли по радиусу и сдвиг как поступательное перемещение капли. Они не представляют интереса, поскольку рассматриваемые жидкости являются несжимаемыми. Подставляя  $l=2$  в (20), получаем резонансную частоту:

$$\omega^2 = \frac{\sigma}{\rho r_0^3} 2(2+2) = \frac{8\sigma}{\rho r_0^3}. \quad (21)$$

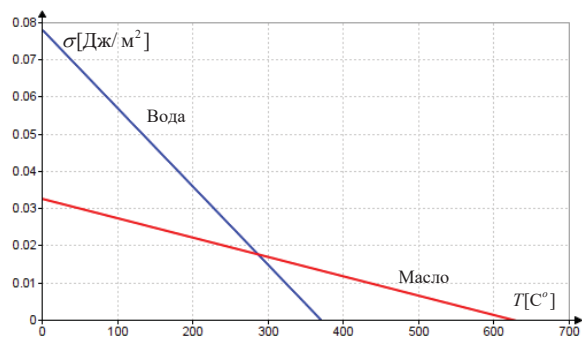
На рис. 3 показаны три первых колебания при  $l=2$ ,  $l=4$ ,  $l=6$ .

Изобразим на графике зависимости частоты  $f$  от радиуса  $r$  шаровой капли (рис. 5) и частоты от по-

верхностного натяжения  $\sigma$  (рис. 6) (21) с помощью графических зависимостей поверхностного натяжения воды и масла от температуры (рис. 4), заимствованных из литературы [14].

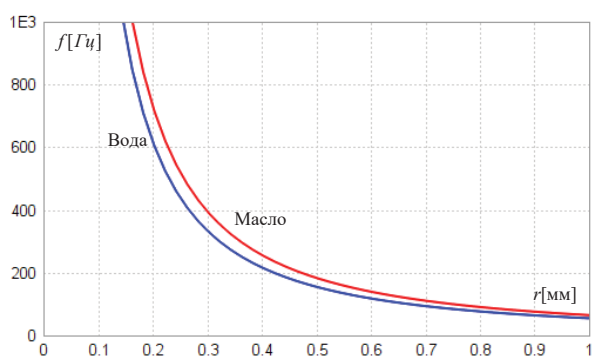


**Рис. 3.** Стоячие волны давления на поверхности шара (красные линии). Синяя окружность – капля воды радиуса  $r$   
**Fig. 3.** Standing pressure waves on the surface of a sphere (red lines). The blue circle is a water drop with radius  $r$



**Рис. 4.** Зависимость поверхностного натяжения от температуры  $\sigma$  [Дж/м<sup>2</sup>]  
**Fig. 4.** Temperature dependence of surface tension  $\sigma$  [J/m<sup>2</sup>]

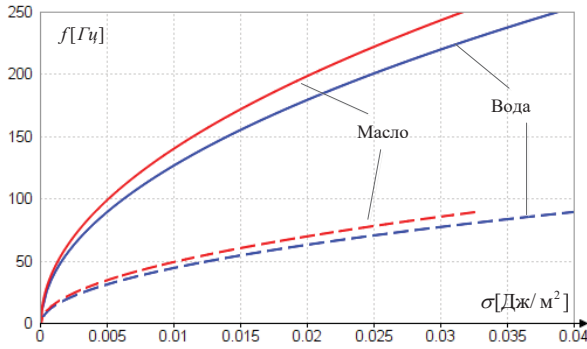
**Fig. 4.** Temperature dependence of surface tension  $\sigma$  [J/m<sup>2</sup>]



**Рис. 5.** Зависимость частоты колебаний от радиуса капли при температуре  $t=23$  °C  
**Fig. 5.** Oscillation frequency dependence on a drop radius at  $t=23$  °C

**Fig. 5.** Oscillation frequency dependence on a drop radius at  $t=23$  °C





**Рис. 6.** Зависимость частоты колебаний от поверхностного натяжения для воды при радиусе  $r=0,5$  мм (сплошные линии) и  $r=1$  мм (пунктирные линии)

**Fig. 6.** Oscillation frequency dependence on surface tension for water at radius  $r=0,5$  mm (solid lines) and  $r=1$  mm (dashed lines)

#### Оценочная модель с демпфированием

Рассмотренная выше модель колебания сферической частицы является консервативной и не учитывает вязкости среды и потерь энергии. Введем вязкость среды, представляя сферическую частицу как механическую систему. Для этого найдем потенциальную и кинетическую энергию колеблющейся капли.

Используем разложение отклонения поверхности шаровой капли от ее сферической формы  $\zeta$  (рис. 2) по полиномам Лежандра

$$r = r_0 + \zeta = \sum_l a_l(t) P_l(\mu) = a_0 + a_1(t) P_1(\mu) + \dots + a_l(t) P_l(\mu) + \dots \quad (22)$$

Здесь  $\mu = \cos(\theta)$ .

Для определения поверхности потенциальной энергии нужно вычислить поверхностную площадь капли S:

$$S = 2\pi \int r \sin(\theta) \left\{ r^2 + \left( \frac{\partial r}{\partial \theta} \right)^2 \right\}^{1/2} d\theta = 2\pi \int \left\{ r^2 + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial r}{\partial \theta} \right)^2 \right\} \sin(\theta) d\theta. \quad (23)$$

С учетом ортогональности полиномов Лежандра  $P_l(\mu)$  и ортогональности их производных  $\frac{\partial P_l(\mu)}{\partial \mu}$  [19] получаем выражение для поверхности (23) и потенциальной энергии (24) с учетом поверхностного натяжения.

$$S(t) = 4\pi a_0^2 + 2\pi \sum (l-1)(l+2)(2l+1)^{-1} a_l(t)^2, \quad (23)$$

$$U(t) = \sigma 2\pi \sum (l-1)(l+2)(2l+1)^{-1} a_l(t)^2. \quad (24)$$

Раскладывая потенциал скорости по полиномам Лежандра, получим выражение:

$$\psi = \beta_0 + \beta_1(t) r P_1(\mu) + \beta_2(t) r^2 P_2(\mu) + \dots + \beta_l(t) r^l P_l(\mu) + \dots \quad (25)$$

Учитывая (25), кинетическая энергия определяется в виде выражения:

$$K = \frac{1}{2} \rho \iint \psi \frac{\partial \psi}{\partial r} r_0^2 d\varphi d\mu = 2\pi \rho r_0^2 \sum (2l+1) l r_0^{2l-1} \beta_l^2. \quad (26)$$

Вспомня, что радиальная скорость частицы определяется соотношением (11) и учитывая выражения (22) и (26), получаем уравнения коэффициентов для каждой из трансформант разложения и выражение для кинетической энергии:

$$n r_0^{l-1} \beta_l(t) = \frac{d}{dt} a_l(t) \rightarrow K = 2\pi \rho r_0^3 \sum (2l^2 + l)^{-1} \left( \frac{da_l(t)}{dt} \right)^2. \quad (27)$$

Поведение механической системы можно описать с помощью функции Лагранжа [20]:

$$L(\dot{a}, a) = K(\dot{a}) - U(a). \quad (28)$$

Здесь точкой обозначена производная по времени. Тогда при отклонении систем от положения равновесия можно записать уравнения:

• для консервативного случая, без потерь энергии (без вязкости), с учетом (27) и (28):

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{a}} - \frac{\partial L}{\partial a} = \frac{d}{dt} \frac{\partial K}{\partial \dot{a}} - \frac{\partial U}{\partial a} = 0 \rightarrow \frac{d}{dt} \frac{\partial K}{\partial \dot{a}} = \frac{\partial U}{\partial a},$$

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial K}{\partial \dot{a}} = 2\pi \rho r_0^3 \sum (2n^2 + n)^{-1} 2 \left( \frac{d^2 a_n(t)}{dt^2} \right),$$

$$\frac{\partial U}{\partial a} = 2\pi \sigma \sum (l-1)(l+2)(2l+1)^{-1} 2 a_l(t),$$

$$\frac{d^2 a_n(t)}{dt^2} = \frac{\sigma (l-1)(l+2)(2l^2 + l)}{\rho r_0^3 (2l+1)} a_l(t) \rightarrow$$

$$\rightarrow \frac{d^2 a_l(t)}{dt^2} + (l-1)(l+2) l \frac{\sigma}{\rho r_0^3} a_l(t) = 0 \rightarrow$$

$$\rightarrow \frac{d^2 a_l(t)}{dt^2} + \omega_0(l)^2 a_l(t).$$

• для неконсервативного случая. Вводим диссипативную функцию Релея, учитывающую потери энергии

$$\Phi(\dot{a}) = \left( \dot{a} \right)^2 \gamma. \quad (29)$$

Здесь коэффициент  $\gamma$  учитывает вязкость системы. Тогда можно переписать уравнение системы с учетом потерь энергии [20], с учетом (29):

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{a}} - \frac{\partial L}{\partial a} = - \frac{\partial \Phi}{\partial \dot{a}} \rightarrow \frac{d}{dt} \frac{\partial K}{\partial \dot{a}} - \frac{\partial U}{\partial a} = - \frac{\partial \Phi}{\partial \dot{a}},$$

$$\frac{d^2 a_l(t)}{dt^2} + 2\gamma \frac{d^2 a_l(t)}{dt^2} + \omega_0(l)^2 a_l(t) = 0.$$

Таким образом, мы получили уравнение свободных колебаний неконсервативной системы. Эти уравнения справедливы для каждой трансформанты разложения (22). Частота колебаний консервативной системы теперь определяется выражением:

$$\omega = \sqrt{\omega_0(l)^2 - \gamma^2}.$$

### Заключение

В ходе математического моделирования (аналитических расчетов математической модели) было получено выражение для резонансной частоты водной капли. Получена формула уточнения частоты при наличии в системе вязкости (трения). Было выявлено, что резонансная частота зависит от поверхностного натяжения  $\sigma$ , радиуса капли  $r_0$  и плотности  $\rho$ . Выявленная зависимость позволит определить полосу ча-

стот внешнего акустического импульса, с которой необходимо воздействовать на водную каплю с целью интенсификации коагуляции дисперсной фазы или с целью синтеза водомасляной эмульсии. Представленные графические зависимости показывают необходимый диапазон частотной полосы настройки воздействующего импульса. Приведенные оценочные формулы позволяют определить коэффициенты ортогонального разложения отклонения поверхности шаровой капли от ее сферической формы по полиномам Лежандра.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Oil emulsions and the different recent demulsification techniques in the petroleum industry – a review / S.M. Abed, N.H. Abdurahman, R.M. Yunus, H.A. Abdulbari, S. Akbari // IOP Conf. Series: Material Science and Engineering. – 2019. – V. 702 [012060].
2. Abdulredha M.M., Siti Aslina H., Luqman C.A. Overview of petroleum emulsions, formation, influence and demulsification treatment techniques // Arabian Journal of Chemistry. – 2020. – V. 89. – P. 3403–3428.
3. Akbari N., Biria D. Investigation of the activity of Acinetobacter calcoaceticus biodemulsifier to break stable water in oil emulsions // Journal of Environmental Chemical Engineering. – 2018. – V. 6. – P. 4144–4150.
4. Demulsification techniques of water-in-oil and oil-in-water emulsions in petroleum industry / R. Zolfaghari, A. Fakhru'l-Razi, L.C. Abdullah, S.S.E.H. Elnashaie, A. Pendashteh // Separation and Purification Technology. – 2016. – V. 170. – P. 377–408.
5. Oil-in-water separation with graphene-based nanocomposite membranes for produced water treatment / A. Alammar, S.H. Park, C.J. Williams, B. Derby, G. Szekely // Journal of Membrane Science. – 2020. – V. 603 [118007].
6. Sonochemical approaches to enhanced oil recovery / V.O. Abramov, A.V. Abramova, V.M. Bayazitov, L.K. Altunina, A.S. Gerasin, D.M. Pashin, T.J. Mason // Ultrasonics Sonochemistry. – 2015. – V. 25. – P. 76–81.
7. Check G.R., Mowla D. Theoretical and experimental investigation of desalting and dehydration of crude oil by assistance of ultrasonic irradiation // Ultrasonics Sonochemistry. – 2013. – V. 20. – P. 378–385.
8. Aryafard E., Farsi M., Rahimpour M.R. Modeling and simulation of crude oil desalting in an industrial plant considering mixing valve and electrostatic drum // Chemical Engineering and Processing: Process Intensification – 2015. – V. 95. – P. 383–389.
9. Ultrasonic assisted ultrafiltration process for emulsification of oil field produced water treatment / A. Agi, R. Junin, A.Y.M. Alqatta, A. Gbadamosi, A. Yahya, A. Abbas // Ultrasonics Sonochemistry. – 2019. – V. 51. – P. 214–222.
10. Desalting and dewatering of crude oil in ultrasonic standing wave field / G. Ye, X. Lu, P. Han, X. Shen // Journal of Petroleum Science and Engineering – 2010. – V. 70. – P. 140–144.
11. A computational and experimental study on acoustic pressure for ultrasonically formed oil-in-water emulsion / T.J. Tiong, J.K. Chu, L.Y. Lim, K.W. Tan, Y.H. Yap, U.A. Asli // Ultrasonics Sonochemistry – 2019. – V. 56. – P. 46–54.
12. Мигель А.В., Филипас А.А. Определение резонансных частот шаровой капли воды в масляной среде // I Всероссийская с международным участием молодежная конференция «Бутаковские чтения». – Томск: Томский политехнический университет, 2021. – С. 169–173.
13. Сычев В.В. Дифференциальные уравнения термодинамики. – М.: ИД МЭИ, 2010. – 250 с.
14. Сычев В.В. Сложные термодинамические системы. – М.: Энергоатомиздат, 1986. – 207 с.
15. Левич В.Г. Курс теоретической физики. Статистическая физика. – М.: Физматгиз, 1962. – 695 с.
16. Позняк Э.Г., Шикин Е.В. Дифференциальная геометрия. – М.: Изд-во МГУ, 1990. – 384 с.
17. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Теоретическая физика. Т. 5. Статистическая физика. – М.: Наука, 1988. – 733 с.
18. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Теоретическая физика. Т. 6. Гидродинамика. – М.: Наука, 1988. – 733 с.
19. Тихонов А.Н., Самарский А.А. Уравнения математической физики. – М.: Изд-во МГУ, 1999. – 799 с.
20. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Теоретическая физика. Т. 1. Механика. – М.: Наука, 1998. – 215 с.

Поступила 27.09.2022 г.

Прошла рецензирование 11.10.2022 г.

### Информация об авторах

**Филипас А.А.**, кандидат технических наук, доцент отделения автоматизации и робототехники Инженерной школы информационных технологий и робототехники Национального исследовательского Томского политехнического университета.

**Исаев Ю.Н.**, доктор физико-математических наук, профессор отделения автоматизации и робототехники Инженерной школы информационных технологий и робототехники Национального исследовательского Томского политехнического университета.

**Кучман А.В.**, аспирант отделения автоматизации и робототехники Инженерной школы информационных технологий и робототехники Национального исследовательского Томского политехнического университета.

UDC 553.988

## DETERMINATION OF A GLOBAL WATER DROP RESONANT FREQUENCIES IN OIL MEDIUM

Alexander A. Filipas<sup>1</sup>,  
filipas@tpu.ruYusup N. Isaev<sup>1</sup>,  
isaev\_yusup@mail.ruAlyona V. Kuchman<sup>1</sup>,  
avm82@tpu.ruNational Research Tomsk Polytechnic University,  
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

**The relevance.** Increasing the efficiency and profitability of commercial oil preparation is one of the priority tasks of the oil and gas sector of the domestic economy, but the scientific achievements in this area require further development. The issues of lack of data for the development of reliable mathematical models of oil emulsion destruction, as well as input signals for regulating the control processes of oil preparation apparatuses, have not been resolved. The oil produced in the fields is a water-oil emulsion with a unique dispersion composition for each well. Today, the analysis of the disperse composition in the field is carried out using a classic laboratory method that has a low speed of obtaining analysis results, while the distribution of droplets by size carries information about the properties of the emulsion in such aspects as degradation rate, long-term stability, viscosity, and others. Knowing the droplets size distribution of a particular oil emulsion, it is possible to choose the most rational methods for its destruction, as well as the necessary technical settings for the devices used in these methods. In particular, when a drop is exposed to a frequency close to its own, destruction can be intensified or an emulsion can be synthesized. In this regard, the derivation of an analytical expression for the resonant frequency of an emulsion drop and the equations of free vibrations are relevant and necessary.

**The main aim** consists in determining the resonant frequencies of a spherical water drop in an oily medium and assessing the effect of the damping properties of the medium on oscillations of the drop surface.

**Results.** The authors obtained the analytical expression for a water drop resonant frequency, as well as an equation of a drop free oscillations presented as a non-conservative system.

**Key words:**

oil emulsion, resonant frequency of emulsion drop oscillations, thermodynamic potential, free energy, orthogonal decomposition.

## REFERENCES

1. Abed S.M., Abdurahman N.H., Yunus R.M., Abdulbari H.A., Akbari S. Oil emulsions and the different recent demulsification techniques in the petroleum industry – a review. *IOP Conf. Series: Material Science and Engineering*, 2019, vol. 702 [012060].
2. Abdulredha M.M., Siti Aslina H., Luqman C.A. Overview of petroleum emulsions, formation, influence and demulsification treatment techniques. *Arabian Journal of Chemistry*, 2020, vol. 89, pp. 3403–3428.
3. Akbari N., Biria D. Investigation of the activity of Acinetobacter calcoaceticus biodemulsifier to break stable water in oil emulsions. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2018, vol. 6, pp. 4144–4150.
4. Zolfaghari R., Fakhru'l-Razi A., Abdullah L.C., Elnashaie S.S.E.H., Pendashteh A. Demulsification techniques of water-in-oil and oil-in-water emulsions in petroleum industry. *Separation and Purification Technology*, 2016, vol. 170, pp. 377–408.
5. Alammar A., Park, S.H., Williams C.J., Derby, B., Szekely G. Oil-in-water separation with graphene-based nanocomposite membranes for produced water treatment. *Journal of Membrane Science*, 2020, vol. 603 [118007].
6. Abramov V.O., Abramova A.V., Bayazitov V.M., Altunina L.K., Gerasin A.S., Pashin D.M., Mason T.J. Sonochemical approaches to enhanced oil recovery. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2015, vol. 25, pp. 76–81.
7. Check G.R., Mowla D. Theoretical and experimental investigation of desalting and dehydration of crude oil by assistance of ultrasonic irradiation. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2013, vol. 20, pp. 378–385.
8. Aryafard E., Farsi M., Rahimpour M.R. Modeling and simulation of crude oil desalting in an industrial plant considering mixing valve and electrostatic drum. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 2015, vol. 95, pp. 383–389.
9. Agi A., Junin R., Alqatta A.Y.M., Gbadamosi A., Yahya A., Abbas A. Ultrasonic assisted ultrafiltration process for emulsification of oil field produced water treatment. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2019, vol. 51, pp. 214–222.
10. Ye G., Lu X., Han P., Shen X. Desalting and dewatering of crude oil in ultrasonic standing wave field. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2010, vol. 70, pp. 140–144.
11. Tiong T.J., Chu J.K., Lim L.Y., Tan K.W., Yap Y.H., Asli U.A. A computational and experimental study on acoustic pressure for ultrasonically formed oil-in-water emulsion. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2019, vol. 56, pp. 46–54.
12. Migel A.V., Filipas A.A. Opredelenie rezonansnykh chastot sharovoy kapli vody v maslyanoy srede [Determination of a global water drop resonant frequencies in oil medium]. *I Vserossiyskaya molodezhnaya konferentsiya s mezhdunarodnym uchastiem. Butakovskie chteniya* [I All-Russian youth conference with international participation. Butakov Readings]. Tomsk, Tomsk Polytechnic University Publ. house, 2021. pp. 169–173.
13. Sychev V.V. *Differentsialnye uravneniya termodinamiki* [Differential equations of thermodynamics]. Moscow, MPEI Publ., 2010. 250 p.
14. Sychev V.V. *Slozhnye termodinamicheskie sistemy* [Complex thermodynamic systems]. Moscow, Energoatomizdat Publ., 1986. 207 p.
15. Levich V.G. *Kurs teoreticheskoy fiziki. Statisticheskaya fizika* [Course of theoretical physics. Statistical physics]. Moscow, Fizmatgiz Publ., 1962. 695 p.
16. Poznyak E.G., Shikin E.V. *Differentsialnaya geometriya* [Differential geometry]. Moscow, MSU Publ., 1990. 384 p.
17. Landau L.D., Lifshic E.M. *Teoreticheskaya fizika. T. 5. Statisticheskaya fizika* [Theoretical physics. Vol. 5. Statistical physics]. Moscow, Nauka Publ., 1988. 733 p.
18. Landau L.D., Lifshic E.M. *Teoreticheskaya fizika. T. 6. Gidrodinamika* [Theoretical physics. Vol. 6. Hydrodynamics]. Moscow, Nauka Publ., 1988. 733 p.

19. Tikhonov A.N., Samarskiy A.A. *Uravneniya matematicheskoy fiziki* [Equations of mathematical physics]. Moscow, MSU Publ., 1999. 799 p.
20. Landau L.D., Lifshic E.M. *Teoreticheskaya fizika. T. 1. Mekhanika* [Theoretical physics. Vol. 1. Mechanics]. Moscow, Nauka Publ., 1998. 215 p.

*Received: 27 September 2022.*

*Reviewed: 11 October 2022.*

#### **Information about the authors**

**Alexander A. Filipas**, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

**Yusup N. Isaev**, Dr. Sc., professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

**Alyona V. Kuchman**, graduate student, National Research Tomsk Polytechnic University.



УДК 622.276.6: 622.245.54

## ВЛИЯНИЕ АКУСТИЧЕСКОГО ВОЗДЕЙСТВИЯ НА ПРОНИЦАЕМОСТЬ ПОРИСТЫХ СРЕД (ОБЗОР)

Гатауллин Рустем Наилевич<sup>1</sup>,  
rustem.acadrome@mail.ru

Галимзянова Алия Ринатовна<sup>1</sup>,  
galimzyanova\_aliy@mail.ru

Марфин Евгений Александрович<sup>1</sup>,  
marfin\_ea@mail.ru

<sup>1</sup> Институт энергетики и перспективных технологий ФИЦ Казанский научный центр РАН,  
Россия, 420111, г. Казань, ул. Лобачевского, 2/31.

**Актуальность** работы обусловлена необходимостью решения проблем, возникающих при разработке нефтяных месторождений: снижение темпов добычи; ухудшение фильтрационных свойств пласта; увеличение обводненности добываемой нефти. Воздействие на пласт упругими колебаниями в широком частотном диапазоне рассматривается как перспективная технология стимулирования и увеличения добычи нефти. Однако широкомасштабное внедрение таких методов сдерживается недостаточным пониманием физики протекающих при этом процессов.

**Цель:** выявление механизмов улучшения проницаемости пористых сред и продуктивных пластов при акустическом воздействии на них на основе теоретических и экспериментальных исследований, промышленных испытаний; обозначение приоритетов будущих научных и практических разработок в области применения акустических технологий для интенсификации добычи нефти.

**Методы.** Анализ результатов лабораторных исследований и обобщение опыта применения в промышленной практике методов акустического и ультразвукового воздействия на продуктивные пласты с целью интенсификации добычи нефти.

**Объекты:** продуктивные пласты нефтяных месторождений; загрязненная призабойная зона скважин; образцы пористых сред терригенных и карбонатных коллекторов.

**Результаты.** Представлен обзор результатов теоретических, лабораторных и промышленных исследований методов повышения эффективности добычи нефти на счет волнового воздействия на среду упругими колебаниями. Проанализированы явления, возникающие при таком воздействии в продуктивных пластах. Отмечается, что большинство исследований в этой области относится к ультразвуковому воздействию и в основном в лабораторных условиях. Рассмотрены явления, приводящие к увеличению проницаемости пористых сред при таком воздействии. В частности, распространение упругих колебаний способствует предотвращению выпадения органических и неорганических осадков, восстановлению и увеличению проницаемости насыщенных пористых сред, удалению пробок и различных отложений в карбонатных и терригенных коллекторах. Сформулированы направления перспективных исследований, даны рекомендации по совершенствованию добычи нефти за счет акустического воздействия. Проведенный анализ и обобщение результатов исследований подтверждают, что воздействие упругими колебаниями в широком диапазоне частот активизирует различные химические и физические процессы, влияет на фильтрационно-емкостные свойства продуктивных пластов, способствует интенсификации добычи нефти.

### Ключевые слова:

Проницаемость, пористая среда, упругие волны, ультразвук, нефть, керны, добыча нефти.

### Введение

Падение добычи нефти представляет собой серьезную проблему, поскольку мировой спрос на углеводороды непрерывно растет. Следовательно, важно разработать и внедрить новые методы, которые позволят интенсифицировать фильтрацию углеводородов через пористые среды и тем самым увеличить добычу. Снижение добычи обусловлено главным образом уменьшением естественного пластового давления или повреждением пласта в призабойной зоне скважины. Под повреждением пласта понимают состояние, вызванное проникновением бурового раствора в пласт, отложением асфальтено-смолистых веществ и парафина в породе или другими факторами [1–4]. Такое повреждение продуктивного пласта значительно снижает производительность скважины, и его негативное влияние на добычу неизбежно. Для устранения повреждений пласта в призабойной зоне скважи-

ны часто используются такие методы, как гидроразрыв пласта под высоким давлением или нагнетание в залежи кислот и растворителей [5–8]. Такие традиционные методы, как правило, дорогостоящие, требуют широкого спектра наземного оборудования, приостановки действия скважины и связаны с негативным воздействием на окружающую среду. Поэтому поиск новых эффективных методов всегда был очень важен. Применение акустических методов в широком частотном диапазоне от инфра- до ультразвуковых колебаний является перспективным направлением совершенствования добычи углеводородов [9–11]. Ультразвуковая техника нашла широкое применение в нефтегазовой промышленности, например, для обследования трубопроводов, измерения скорости жидкости и повышения нефтеотдачи пластов. В отношении механизма, лежащего в основе повышения нефтеотдачи с помощью упругих волн, были представлены различные гипотезы:

- изменение смачиваемости. Высокочастотные волны вызывают вибрацию скелета пород и насыщаемых ее жидкостей. Однако, поскольку скорость и ускорение вибрации породы и жидкости различны, возникает относительное движение на границе раздела жидкой и твердой фаз. При определенной интенсивности такого движения возникает так называемая «тенденция к смятию», в результате чего силы натяжения между жидкостью и породой уменьшаются, и жидкость отрывается от поверхности породы [12, 13];
- изменение вязкости. Воздействие упругой волны на горную породу вызывает периодическое изменение напряжения сдвига и акустического давления. Для насыщаемых ее жидкостей, например, таких как тяжелые углеводороды, их вязкость уменьшается с увеличением напряжения сдвига. Более того, нагрев породы за счет поглощения энергии ультразвуковой волны также приводит к снижению вязкости. В условиях ультразвуковой кавитации высвобождается большое количество тепловой энергии в процессе схлопывания пузырьков [14–16]. Однако существуют определенные условия, при которых после ультразвуковой обработки вязкость нефти повышается [17];
- уменьшение толщины поверхностного слоя в результате теплового эффекта ультразвукового воздействия, а также деаглоляции крупных молекул углеводородов. Это может быть вызвано рядом причин, таких как кавитация пузырьков, трение и эффект механического воздействия ультразвука. Механическая вибрация от волн высокой частоты вызывает относительное движение различных молекул из-за разницы в их ускорении, что приводит к разрушению тяжелых молекул [18];
- повышение пористости и проницаемости в результате деформации пор, удаления мелких пробок, растворения парафина и асфальтено-смолистых веществ и т. д. [19, 20];
- эмульгирование и деэмульгирование, вызванное интенсивными звуковыми колебаниями. Тепловой эффект ультразвука может снизить вязкость эмульсии и вызвать разрушение самих эмульсий, особенно в коллекторах с тяжелой нефтью [21–24].

Ультразвуковые технологии широко используются в нефтяной промышленности. Ультразвуковые волны уменьшают повреждения пласта, вызванные набуханием глины. [5]. При добыче тяжелой нефти ультразвуковые волны могут вызвать реакцию аквагермолиза для снижения ее вязкости, что в конечном итоге приведет к увеличению добычи нефти [25]. Некоторые исследователи указывают, что ультразвуковые волны подходят для удаления закупоривающих материалов, вызванных буровым раствором или парафином вблизи ствола скважины, и демонстрируют преимущество по стоимости с традиционными методами, включая гидроразрыв пласта и закачку кислот [26]. В последнее время на промысле ультразвуковые волны активно применяются в комбинации с традиционными методами повышения нефтеотдачи пластов для

дальнейшего улучшения нефтеотдачи. Например, некоторые экспериментальные исследования доказали, что ультразвуковые волны позволяют снизить неустойчивость фронта вытеснения от эффекта образования вязких пальцев и повысить эффективность зачистки во время операции по заводнению, закачке CO<sub>2</sub> за счет снижения межфазного натяжения [27, 28].

В связи с растущим интересом к акустическим технологиям и продолжающимися исследовательскими работами предыдущие обзоры по тематике проницаемости пористых сред представляются ограниченными по своему содержанию. В данной работе представлены последние достижения и предлагаемые решения по повышению нефтеотдачи, достигнутые с помощью методов воздействия упругими волнами, с целью помочь исследователям оценить масштабы разработок в этой области. В работе проведен обзор лабораторных исследований влияния ультразвука на извлечение нефти, повреждение пласта, проницаемость насыщенных сред и фильтрационных особенностей течения флюидов. Также представлены промышленные исследования таких процессов с целью интенсификации нефтедобычи за счет увеличения проницаемости среды и рассмотрены наиболее совместимые с ультразвуком технологии.

#### Лабораторные исследования

##### Природные и синтетические пористые среды

Проницаемость пород нефтяных коллекторов обычно варьируется от 0,1 до 1000 мД и более при типичных значениях пористости от 5 до 30 %, но чаще всего – от 10 до 20 % [29]. Разработка нефтяных месторождений с низкопроницаемыми коллекторами особенно актуальна, поскольку в них содержится большое количество нефти, но извлечь ее довольно сложно. Необходимо приложить больше усилий для выявления механизма ультразвукового повышения нефтеотдачи в низкопроницаемых коллекторах, поскольку и свойства флюидов, и характеристики пласта отличаются от традиционных коллекторов.

Классификация кернов, особенно с низкой проницаемостью, сама по себе сложная задача, но если оптимизировать и сгруппировать их по параметрам и характеристикам, то можно сократить время и затраты на экспериментальные исследования. Ранее при исследовании обычно классифицировали образцы керна по проницаемости [30]. Однако такой эмпирический метод группировки имеет серьезные ограничения из-за разнообразия свойств [31]. Помимо проницаемости, пористость и смачиваемость также являются важными факторами, влияющими на извлечение нефти из низкопроницаемых коллекторов [32]. С появлением передовых вычислительных технологий перспективным инструментом для решения проблемы группировки может стать метод компьютерного обучения. В работах [33, 34] предлагается алгоритм кластеризации, который может одновременно учитывать различные свойства коллектора и оптимизировать количество кластеров, а также компоненты внутри каждого кластера.

В исследовании [13] был использован алгоритм кластеризации, учитывающий пористость, проницаемость и угол смачиваемости, а также позволяющий классифицировать образцы керна на определенные категории. Результаты исследования подтвердили положительный эффект применения ультразвуковых волн, особенно в нефтеносных и слабообводненных кернах. При этом отмечается, что ультразвуковая волна не может существенно повлиять на компоненты легкой нефти, как на компоненты тяжелой нефти, но все же такие изменения способствуют снижению вязкости нефти и изменению поверхностного натяжения системы «нефть–вода». В работе [35] также подтверждается, что ультразвуковое воздействие способно эффективно снижать вязкость тяжелой нефти за счет реакции аквафермолиза, но такой эффект менее значим для легкой нефти. Было доказано, что ультразвуковое воздействие также изменяет относительную проницаемость нефти в низкопроницаемых коллекторах. Проведенными экспериментальными исследова-

ниями показано, что ультразвуковая волна изменяет микроструктуру коллекторов и улучшает связи между порами, в том числе за счет образования микротрещин [27, 36, 37]. Отмечается, что необходимо проведение дополнительных исследований для оптимизации частоты ультразвукового воздействия.

В работе [38] исследовалось влияние ультразвукового воздействия на структуру пор. Авторы работы исследовали образцы карбоната и песчаника с различной текстурой породы, чтобы определить влияние ультразвуковых волн на течения жидкости и микроскопическую структуру пор с помощью теста на абсолютную проницаемость, изображений сканирующего электронного микроскопа (СЭМ) и петрографии. Эксперименты показали, что ультразвуковые волны могут влиять на структуру пор посредством инициирования микротрещин и/или отрыва частиц породы. В качестве примера на рис. 1 показаны значения проницаемости трех образцов индианского и трех образцов оолитового известняка до и после ультразвукового воздействия на них.

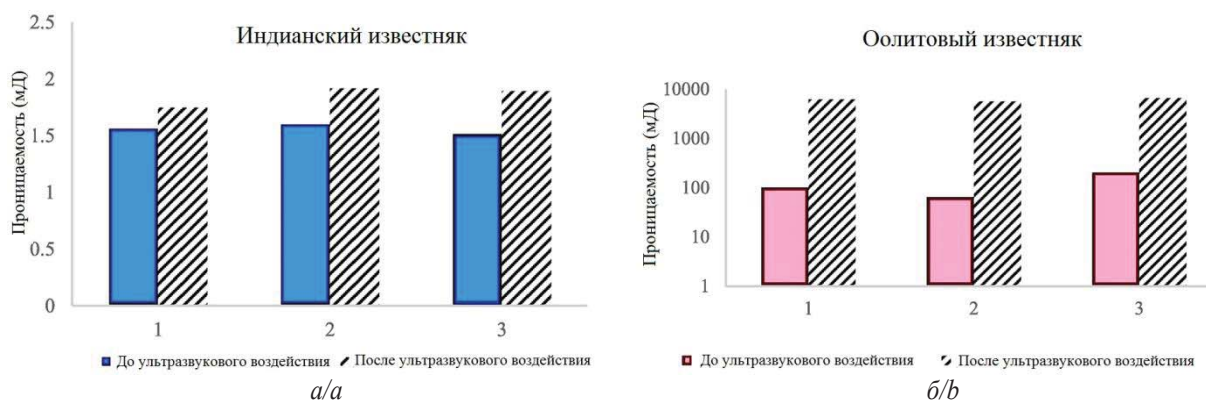


Рис. 1. Изменение абсолютной проницаемости образцов индианского (а) и оолитового (б) известняка в результате ультразвуковой обработки [38]

Fig. 1. Absolute permeability alteration of Indiana (a) and Oolitic (b) limestone as a result of ultrasonic treatment [38]

Для низкопроницаемого образца индианского известняка увеличение проницаемости достигло 25,17 %. При относительно высокой начальной проницаемости оолитового известняка и его хрупкой текстуры при ультразвуковой обработке проницаемость образцов увеличилась более чем в 30 раз. Сделан вывод, что ультразвуковые волны могут изменить поровую структуру известняков двумя механизмами: через расширение сети микротрещин [3, 39, 40] и за счет разрушения и удаления частиц в поровом пространстве [1, 38]. Более того, из-за высокой начальной проницаемости и пористости отделившиеся частицы оолитового известняка легче извлекались, увеличивая проницаемость и пористость (рис. 2).

В доломитовых образцах из-за неоднородности и кристаллической и компактной текстуры ультразвуковые волны не смогли эффективно расширить сеть трещин и увеличить проницаемость. Это означает, что если микроразрывы начнутся, то они не будут эффективными из-за отсутствия хорошей внутренней связности в результате высокой гетерогенности доломитовых образцов. Следовательно, ультразвуковая обработка ухудшает процесс тонкой миграции, что

может привести к закрытию порового горла и снижению проницаемости [38].

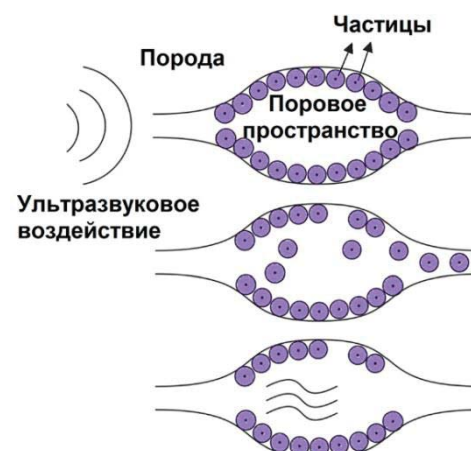


Рис. 2. Схема ультразвукового воздействия на известняк: увеличение проходного сечения поровых каналов [38]

Fig. 2. Schematic of ultrasonic effect on limestone: increased flow cross section of the pore throats [38]



В работе [41] отмечено системное увеличение эффективной проницаемости вследствие динамического напряжения, вызванного колебаниями порового давления инфразвуковой частоты (0,05 Гц). Применялись относительно небольшие колебания давления (от  $10^{-2}$  до  $10^{-1}$  МПа); выявлено повышение эффективной проницаемости до 50 % в образцах с преобладанием трещин. При воздействии на керны ультразвуком движение мелких частиц может приводить как к расширению, так и к сужению трещин. Авторы отмечают, что увеличение и уменьшение проницаемости связано с механическими процессами, а не с механизмами необратимых процессов, наблюдаемых при ультразвуковом воздействии. При этом эффекты динамического напряжения также предполагают, что проницаемость является динамически управляемой переменной [41].

О динамической проницаемости сообщалось более 30 лет назад. В работе [42] представлена теория динамической проницаемости в флюидонасыщенных пористых средах. Авторы рассматривали реакцию ньютоновской жидкости, насыщающей поровое пространство жесткой изотропной пористой среды, на бесконечно малый колебательный градиент давления в образце. Выведенная ими аналитически функция проницаемости от частоты имеет вид:

$$\tilde{k}(\omega) = \frac{k_0}{\left(1 - \frac{4i\alpha_\infty^2 k_0^2 \rho_f \omega}{\eta \Lambda^2 \phi^2}\right)^{\frac{1}{2}} - \frac{i\alpha_\infty k_0 \rho_f \omega}{\eta \phi}}, \quad (1)$$

где  $k_0$  – проницаемость при отсутствии возмущений,  $\text{м}^2$ ;  $\alpha_\infty$  – извилистость поровых каналов;  $\rho_f$  – плотность флюида,  $\text{кг/м}^3$ ;  $\phi$  – пористость, д. ед.;  $\eta$  – вязкость флюида,  $\text{Па}\cdot\text{с}$ ;  $\Lambda$  – отношение объема пор к площади поверхности зерен, м. Зависимость (1) представлена в комплексном виде, однако практическое значение имеет ее действительная часть ( $\text{Re}(\tilde{k}(\omega))$ ). Мы оценили влияние частоты возмущений и начальной проницаемости на изменение динамической проницаемости (рис. 3). Из рисунка видно, что при низкой начальной проницаемости влияние возмущений слабое. Однако при больших значениях начальной проницаемости  $k_0 > 1$  Дарси с увеличением частоты возмущений значение динамической проницаемости резко снижается. Таким образом, согласно теории динамической проницаемости [42], малые возмущения приводят к снижению проницаемости для высокопроницаемых пористых сред. К сожалению, данная теория не объясняет увеличения проницаемости при колебаниях большой амплитуды, которое наблюдается в многочисленных лабораторных и промысловых исследованиях. Очевидно, что при больших амплитудах имеют место нелинейные процессы, а уравнение (1) соответствует линейной ситуации. Для объяснения явления увеличения проницаемости в работе [43] предложено использовать в уравнении (1) дополнительный коэффициент, учитывающий степень очистки порового пространства от отложений. Такой подход позволил автору разработать методику прогнози-

рования изменения дебита добывающих скважин терригенных пластов.

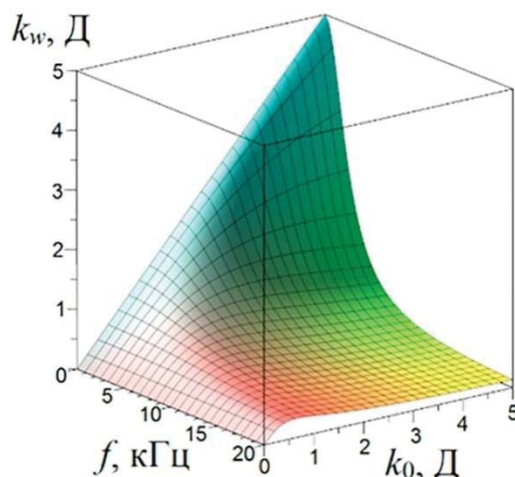


Рис. 3. Зависимость динамической проницаемости  $k_w$  от частоты акустического воздействия  $f$  и начальной проницаемости  $k_0$

Fig. 3. Dependence of dynamic permeability  $k_w$  on the frequency of acoustic action  $f$  and initial permeability  $k_0$

В работе [44] на основе экспериментальных исследований установлено, что в явлении увеличения проницаемости под действием сейсмических волн важным фактором, влияющим на этот процесс, является скорость потока. Полученные результаты позволили авторам предположить, что проницаемость пласта можно регулировать путем наложения волнового поля и изменения скорости фильтрации.

Другим аспектом динамической проницаемости является то, что в пористых средах имеет место медленная продольная волна – волна Био, которая проявляется в основном на частотах ультразвукового диапазона. В работе [45] исследовали затухание упругих волн в плотных нефтяных породах (алевролитах). Ультразвуковые измерения в породах, насыщенных газом и водой, показывают, что затухание упругих волн уменьшается с увеличением водонасыщенности в плотных нефтяных алевролитах. Иное поведение наблюдается в карбонатах и песчаниках, где затухание обычно увеличивается с ростом водонасыщенности.

В работе [46] представлены результаты исследования образца терригенного керна. Изучен образец с пористостью 23,7 % и проницаемостью 0,6 Д. На основе рентгеновской микротомографии керна была создана цифровая 3D-модель пористого образца. Численное моделирование течения жидкости в поровом пространстве с наложенными колебаниями давления (имитация акустического воздействия) позволило выявить особенности гидродинамики потока (рис. 4). Было установлено, что наложенные колебания приводят к возникновению дополнительного направленного течения с характеристиками, зависящими от параметров наложенных колебаний. Другими словами, при акустическом воздействии имеет место «надбавка» к значению проницаемости, измеренной для стационарных условий.



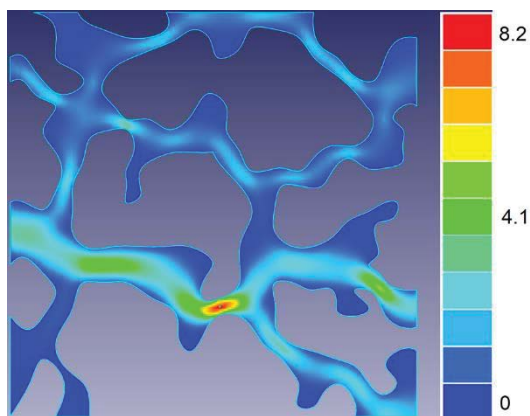


Рис. 4. Распределение скоростей установившегося потока в поперечном сечении порового пространства [46]

Fig. 4. Velocity distribution of steady flow in the cross-section of pore space [46]

В исследовании [47] было проанализировано влияние ультразвуковых волн на течение нефти при свободном гравитационном дренаже. Авторы исследования смоделировали пористую среду в виде пакета стеклянных шариков для проведения испытания в условиях ультразвукового воздействия и без воздействия. Результаты данного исследования показали, что воздействие ультразвуковыми волнами значительно повышает коэффициент фильтрации при рассматриваемом режиме течения флюида. Кроме того, проницаемость как смачивающей, так и несмачивающей фазы увеличилась под воздействием излучения ультразвуковых волн.

Следуя методологии исследования [47], Н. Arabzadeh и М. Amani провели серию аналогичных экспериментов на трех различных образцах, чтобы подтвердить или опровергнуть выводы этого исследования [48]. В результате исследований установлено, что волновое воздействие позволяет интенсифицировать процесс извлечения нефти на режиме гравитационного дренажа. Такой вид дренажа является доминирующим в процессе добычи для неасфальтеновой сырой нефти в трещиноватых продуктивных пластах. При продолжительном времени волнового воздействия авторы отмечают, что в образцах, содержащих асфальтены, увеличивается вязкость нефти и как следствие снижается её скорость извлечения. Авторы за-

метили, что увеличение размеров стеклошариков в неасфальтеновых образцах приводит к повышению темпа извлечения нефти под воздействием ультразвуковой обработки, а в асфальтеновых образцах наблюдается обратный эффект [48].

В работе [49] проведены исследования взаимосвязи нелинейной динамической жесткости с проницаемостью трещин гранита Вестерли. Совместные измерения скорости звуковых волн и проницаемости при колебаниях порового давления и нормальных напряжениях показали, что нелинейность и проницаемость трещин модулируется амплитудой колебаний и возрастает с увеличением частоты колебаний. Исследования другого гранита также отражены в работе [50], где установлено, что изменения проницаемости связаны с образованием и расширением трещин при внешнем воздействии.

В исследовании [51] в качестве гипотезы акустического воздействия предложено следующее. Флюид в нефтяной залежи состоит из легкой и тяжелой углеводородных фаз, находящихся в термодинамическом равновесии. Внешние воздействия могут сместить точку равновесия таким образом, что тяжелая фракция может либо отложиться на стенках пор, либо раствориться, изменяя проницаемость призабойной зоны вокруг скважины. Разработанная модель позволяет воспроизвести характерные особенности фильтрации до и после акустического воздействия, в том числе и интенсификации нефтеотдачи коллектора.

Об изменении проницаемости пористой среды говорится также в работе [52]. Эксперименты с синтетическими образцами пористых сред с проницаемостями от 180 до 245 мД показали, что максимально увеличение проницаемости происходит при непрерывном воздействии с интенсивностью 4 Вт/см<sup>2</sup> (рис. 5). Увеличение интенсивности до 7 Вт/см<sup>2</sup> приводит к уменьшению эффекта воздействия, а еще большее увеличение интенсивности сопровождается снижением проницаемости – эффект отрицательный. Исследования спектров акустической эмиссии, возникающей при фильтрации флюида, до и после ультразвукового воздействия свидетельствуют о структурных изменениях пористой среды, проявляющихся в том, что характерные частоты спектра увеличиваются.

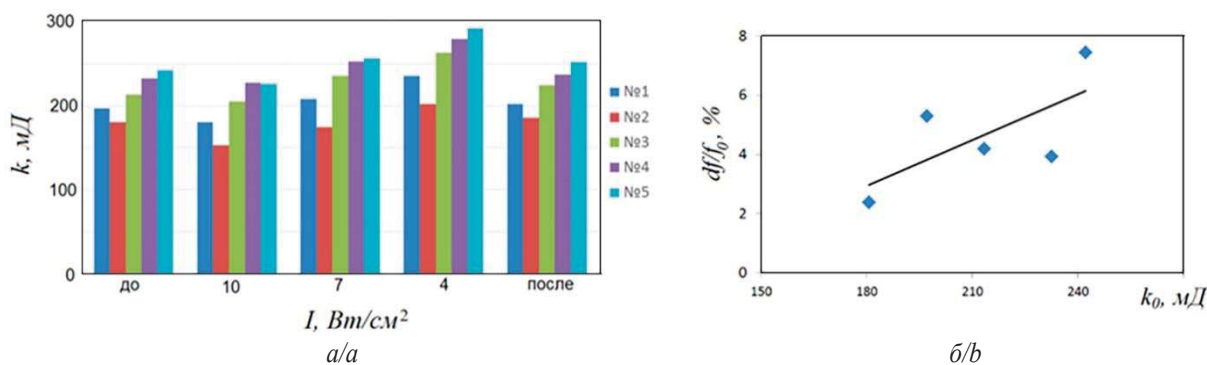


Рис. 5. Изменение проницаемости (а) и относительной частоты фильтрационных шумов (б) при ультразвуковом воздействии [52]

Fig. 5. Change of permeability (a) and relative frequency of filtration noise (b) under ultrasonic influence [52]

#### Поврежденные пористые среды

Продуктивный пласт подвержен снижению проницаемости на протяжении всего срока эксплуатации скважины, начиная с прохождения бурового долота и заканчивая стадией ликвидации скважины. Под повреждением пласта понимают снижение проницаемости породы-коллектора вблизи ствола скважины. При этом производительность скважины уменьшается, а вместе с ней и общий доход отрасли [53]. Нефтяные компании заинтересованы в снижении себестоимости добычи углеводородов и устранении причин падения производительности скважин. В последнее время в связи с энергетическим кризисом на первый план выходит выявление повреждений пласта и восстановление нарушенной проницаемости. Снижение проницаемости в продуктивном пласте может быть вызвано закупоркой пор и перфораций, химическими отложениями и механической деформацией пласта под действием давлений, а также несовместимостью нефтяных флюидов с нагнетаемыми жидкостями или флюида с породой [53].

В работе [54] исследованием микрофлюидики потока показано, что миграция частиц и засорение приводят к тому, что закупоренные поры меняют локальный поток и способствуют дальнейшему закупориванию близлежащих пор. Моделирование сети пор показало, что такое «зависимое засорение» сильнее снижает проницаемость пористой среды, по сравнению с независимым засорением в случайных местах.

Многие пласты теряют свою естественную проницаемость при взаимодействии с водой из-за эффекта глины, и это нарушение проницаемости пласта, содержащего глину, связывают с ионным составом и рН-показателем нагнетаемых флюидов в пласт [55]. Естественно, что до начала проникновения бурового долота система «порода-коллектор» и содержащийся в ней флюид вместе с входящими в состав минералами находятся в физико-химическом равновесии. Однако установившееся равновесие может быть нарушено из-за взаимодействия чужеродного флюида в процессе бурения, цементирования и заводнения. Вследствие этого чувствительные к воде частицы глины разбухают и увеличиваются в размерах, нарушая естественные процессы фильтрации жидкости. В результате эти частицы могут попасть в поток и двигаться вниз по течению, где они могут закупорить пористую среду и вызвать серьезное нарушение проницаемости [55]. Все это значительно снижает фильтрационные свойства пласта и приводит к снижению добычи нефти. В свою очередь, при интенсивном ультразвуковом воздействии на нефтяной пласт в процессе распространения упругой волны формируется большое ускорение, которое может разрушить структуру частиц нефтяного пласта и увеличить его проницаемость [56].

По мнению исследователей [56, 57], ультразвуковая технология добычи нефти подразумевает использование упругих волн для обработки околоскважинных нефтяных пластов в нагнетательных и добывающих скважинах за счет изменения физических

свойств и состояния жидкости в пласте, улучшения условий циркуляции и проницаемости на забое скважины. Решением проблемы приемистости нагнетательных скважин достигается цель – увеличение добычи нефти, скорости закачки воды и нефтеотдачи [56].

В работе [1] авторы использовали ультразвуковые волны с различной частотой – от 10 до 100 кГц – для воздействия на керн, загрязненный буровым раствором. Результаты их исследования показывают, что проницаемость керна значительно (в 3–7 раз) увеличивается под воздействием ультразвуковых волн. Также в работе [1] исследовано влияние звуковых волн того же частотного диапазона на образцы песчаника и карбоната, которые были загрязнены буровым раствором и твердыми частицами, и было показано, что применение упругих волн позволило увеличить проницаемость образцов в 4 и 1,5 раза соответственно.

В работе [2] проведено экспериментальное исследование влияния ультразвуковых волн на асфальтовые отложения. Авторы отмечают, что ультразвуковая кавитация и тепловое воздействие являются фундаментальными причинами снижения вязкости сырой нефти и повышения пропускной способности сырой нефти, и предлагают этот механизм для объяснения эффекта ультразвукового тампонирования. Проницаемость пласта повышается после удаления асфальтовых отложений, тем самым увеличивается скорость фильтрации нефти [2]. Теоретические расчеты и компьютерное моделирование показали, что расположение скважинного ультразвукового инструмента вблизи боковой стенки скважины приводит к более однородному распределению акустического поля и более широкому проникновению акустических волн.

Р.М. Roberts и др. [58, 59] изучали влияние частоты и интенсивности упругих волн на процент восстановления проницаемости поврежденной породы. Было показано, что рост частоты повышает только скорость восстановления проницаемости, в то время как рост мощности упругих волн увеличивает глубину проникновения волн в пласт. В 2004 г. S.A. Shedid [3] исследовал влияние ультразвуковых волн на разрушение асфальта в керне. Он утверждал, что основными механизмами, которые улучшают проницаемость в его экспериментах, были удаление отложений и инициирование микротрещин.

К повреждению пласта могут привести также неорганические отложения. Так, осаждение хлорида натрия (NaCl), особенно в газодобывающих скважинах, является одной из проблем повреждения пласта, ухудшающих проницаемость. В работе [60] приведено исследование влияния ультразвуковых волн на эффективность удаления отложений NaCl. Двадцать образцов керна с различной проницаемостью были насыщены NaCl. После осаждения NaCl в керне образцы сначала подвергались закачке воды, а затем закачке воды с воздействием ультразвуковых волн. На каждом этапе измерялась и регистрировалась проницаемость кернов. Результаты экспериментов показали, что применение ультразвуковых волн восстанавлива-

ет проницаемость кернов в большей степени, чем только закачка воды. В частности, в образцах с проницаемостью ниже 20, 30–100, 100–700 мД и кернах с проницаемостью выше 1000 мД ультразвуковые волны восстанавливают проницаемость до 80, 42, 87 и 81 %, соответственно. В отличие от нагнетания воды с ультразвуковым воздействием, нагнетание в образцы только воды повышает проницаемость до 29, 18,5, 62 и 77 % соответственно. Таким образом, явно виден положительный эффект от применения ультразвуковых волн (рис. 6).

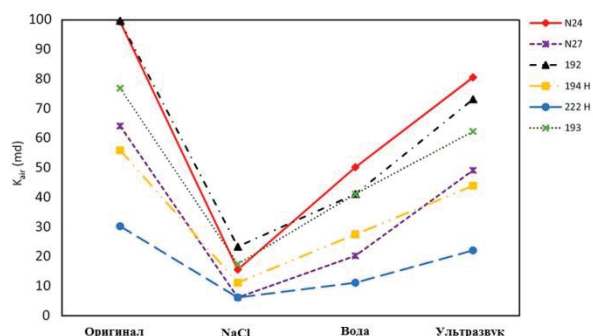


Рис. 6. Изменения проницаемости образцов на каждом этапе эксперимента [60]

Fig. 6. Sample permeabilities in each stage of experiment [60]

Изображения поверхности кернов, полученные с помощью сканирующей электронной микроскопии, показывают, что ультразвуковые волны разрушают структуру отложений хлорида натрия. Разрушение отложений обусловлено распространением упругих волн и повышением температуры в окружающей среде, что приводит к увеличению растворимости NaCl. После воздействия ультразвуковых волн отложения хлорида натрия внутри кернов могли быть удалены из трещины, тогда как закачка только воды не могла вымыть и удалить отложения из трещины. Согласно результатам работы [60], ультразвуковые волны могут быть использованы в качестве новой и эффективной технологии в нефтяных и газовых скважинах для удаления неорганических отложений в призабойной зоне скважины.

В исследовании [5] предложен комбинированный способ воздействия на поврежденные образцы керна. Способ заключался в совместной обработке кернов ультразвуком и химическими реагентами. С целью восстановления проницаемости в экспериментальной работе на трех видах поврежденных образцах керна были и независимо, и одновременно применены метод кислотной обработки и метод ультразвукового воздействия. Оптимальные частота и мощность ультразвуковых волн были определены как 20 кГц и 1000 Вт, которые обеспечили максимальное восстановление проницаемости на 19,5, 21,7 и 22,3 % в соответствующих образцах керна 30, 80 и 150 мД. Совместное воздействие ультразвука и кислот (смесь плавиковой и соляной кислот) в течение 100 минут привело к восстановлению проницаемости на 44,2, 45,8 и 43,1 % для соответствующих трех образцов

керна. Отмечается, что на такой частоте и мощности генерации упругих волн наблюдаются резонансные явления. Восстановление проницаемости при продолжительности воздействия более 100 минут не наблюдалось. Установлено, что основными механизмами увеличения проницаемости являются кавитация и тепловой эффект.

Подобная работа, в которой представлено экспериментальное исследование влияния различных режимов воздействия на проницаемость кернов, проведена Z. Wang и J. Huang [7]. Результаты показали, что на низких частотах ультразвука и высокой мощности генерации повышается проницаемость кернов за счет удаления из них воды, однако с увеличением продолжительности обработки эффект заметно снижается. Оптимальные значения частот ультразвукового воздействия определены в 30 кГц и 1000 кГц. Несмотря на то, что химическая обработка оказалась немного эффективнее, чем применение ультразвуковых волн, для повышения проницаемости керна применение ультразвука выглядит перспективнее в связи с его стоимостью и экологической безопасностью. В целом комбинированный метод ультразвуковой и химической обработки дал лучший эффект для удаления чувствительности воды, чем использование ультразвуковой или только химической обработки, как показано на рис. 7.

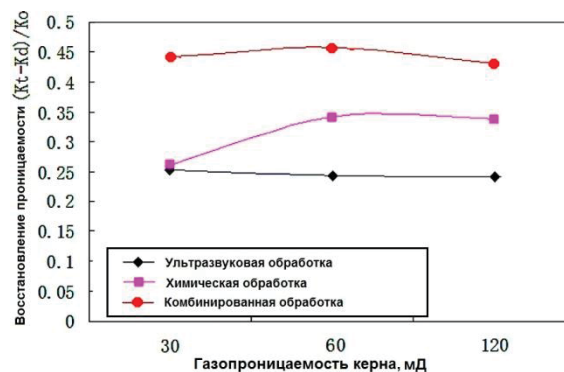


Рис. 7. Сравнение проницаемости образцов при ультразвуковой, химической и комбинированной обработке [7]

Fig. 7. Comparison of the permeability of samples with ultrasonic, chemical and combined treatment [7]

Использование традиционных методов, таких как обработка паром, циклическая закачка пара для долгосрочной добычи тяжелой нефти, как правило, наносит повреждение пласту, в основном из-за отложения парафина вблизи ствола скважины и проникновения внешних жидкостей и твердых частиц при различных видах эксплуатационных операций [57]. Выпадение в порах коллектора парафина и других веществ снижает проницаемость пласта. Ультразвуковой метод удаления парафиновых осадков, требующий меньших затрат энергии и мощности, является альтернативой традиционным методам воздействия и не требует закачки растворителей. Был проведен эксперимент по ультразвуковому удалению парафиновых осадков с использованием моделирования ультразвуковой ди-



намической экстракции и искусственных кернов, поврежденных парафиновыми осадками [4]. Результаты показали, что частота преобразователя, время ультразвуковой обработки, температура и начальная проницаемость керна влияют на эффект удаления парафиновых осадков. Темп осаждения парафина снижается с увеличением частоты преобразователя, температуры и времени обработки. Кроме того, были проведены эксперименты по удалению парафиновых осадков с помощью ультразвуковой волны, химического агента и комбинированного метода ультразвука и химии соответственно. Эксперименты доказывают, что при волновой обработке удаление парафиновых осадков лучше, чем при химическом методе, а эффект совместного применения явно лучше, чем при использовании только одного метода.

В другом исследовании [61] приведены результаты лабораторных экспериментов на образцах керна для изучения способности ультразвуковых волн мобилизовать дополнительную нефть. Заводнение керна проводилось в горизонтальном и вертикальном направлениях, а волновая стимуляция применялась при исходном состоянии нефти и при остаточной нефтенасыщенности после проведения первоначального заводнения. Авторами определена относительная проницаемость системы «нефть–вода» и скорость извлечения нефти в условиях волнового воздействия и без него. Результаты исследования подтверждают, что за счет применения ультразвуковых волн темп вытеснения нефти возрастает, а взаимодействие генерируемых упругих волн с флюидами в пористой среде способствует изменению скорости фильтрации и относительной проницаемости. Воздействие ультразвуком на образцы уже после проведения заводнения оказалась более эффективным, чем в случае с исходной нефтью. Это говорит о том, что целесообразнее использовать ультразвук на такие нефтяные коллекторы, которые уже подвергались различным методам добычи. Кроме того, не рекомендуется проводить волновую обработку на образцах керна, полученных под давлением менее 1 МПа, поскольку происходит разрушение образца. Авторы также отмечают, что при применении вертикальных скважин с обсаженными стволами и селективной перфорацией волновая стимуляция рекомендуется в коллекторах, в которых проницаемость уменьшается с увеличением глубины залегания залежи [61].

#### Промысловые исследования

Систематические исследования воздействия упругими колебаниями на процесс добычи нефти в промышленных условиях начинаются с середины прошлого столетия [11, 62]. Хотя еще раньше нефтяники России и Америки заметили, что природная и техногенная сейсмичность влияет на дебит скважин. Так, после землетрясений или после прохождения поездов по железной дороге вблизи месторождений увеличивалась добыча нефти, повышался уровень жидкости в скважинах. Эти наблюдения привели к разработке технологий и методов воздействия на пласты как с поверхности земли, так и через скважины. В систематическом обзоре I.A. Veresnev и P.A. Johnson [63] бы-

ли собраны и проанализированы исследования по методам добычи нефти с помощью ультразвуковых и сейсмических волн. В этой работе был сделан вывод, что в независимости от частоты упругие волны способны увеличить проницаемость пористой среды и добычу нефти из нее.

В работе [64] представлены результаты экспериментов и промысловых данных, которые продемонстрировали увеличение проницаемости, вызванное сейсмическими волнами при землетрясении. Однако несколько экспериментов выявили, что после сейсмической активности значительно снизилась проницаемость трещиноватых песчаников, расположенных на небольшой глубине. Авторы связывают такие изменения с закупориванием трещин.

V.O. Abramov и др. [65] исследовали 85 скважин с различными диапазонами проницаемости и пористости. Ультразвуковая обработка улучшила добычу скважин, проницаемость и пористость которых превышали 20 мД и 15 % соответственно. Для скважин с более низкой проницаемостью и пористостью комбинация ультразвукового и химического методов могла повысить дебит скважин более чем в три раза. Такой результат сопоставим с кислотной обработкой низкопроницаемой породы, на эффективность которой влияют фильтрационно-емкостные свойства призабойной зоны пласта [66].

Результаты приведенного промыслового исследования [67] показывают, что использование упругих колебаний может интенсифицировать процесс добычи нефти. Так, сочетание волнового воздействия с внутрискважинным горением может увеличить скорость добычи нефти и снизить обводненность извлекаемой продукции. Объектом были участки Мордово-Кармалынского месторождения природных битумов со следующими характеристиками: глубина залегания углеводородов 80–95 м, пористость 20–35 %, нефтенасыщенность 70–90 %, проницаемость  $0,5 \cdot 10^{-12}$  м<sup>2</sup>. Используя скважинный излучатель на различных частотах, удалось существенно повысить проницаемость пористой среды, снизить обводненность извлекаемой продукции и удельные энергетические затраты [68]. Режим волнового воздействия в 1000 Гц обеспечил повышение дебита в два раза, а на частоте 2000 Гц достигалось пятикратное увеличение показателей добычи нефти.

В работе [2] представлен разработанный метод воздействия, который был опробован на горизонтальной скважине в Западной Сибири. Скважина характеризовалась высокой обводненностью. На основании геофизических исследований были обработаны только зоны с низкой обводненностью и высокой добычей нефти, что привело к снижению обводненности на 20 % и увеличению добычи нефти на 91 % после обработки тестовой скважины. Обработка пласта проводилась магнитострикционным скважинным излучателем, его рабочая частота составляла 18 кГц.

Для увеличения нефтеотдачи на месторождениях с разной проницаемостью предлагаются различные химические реагенты для блокирования высокопроницаемых зон нефтеносного пласта, предварительно

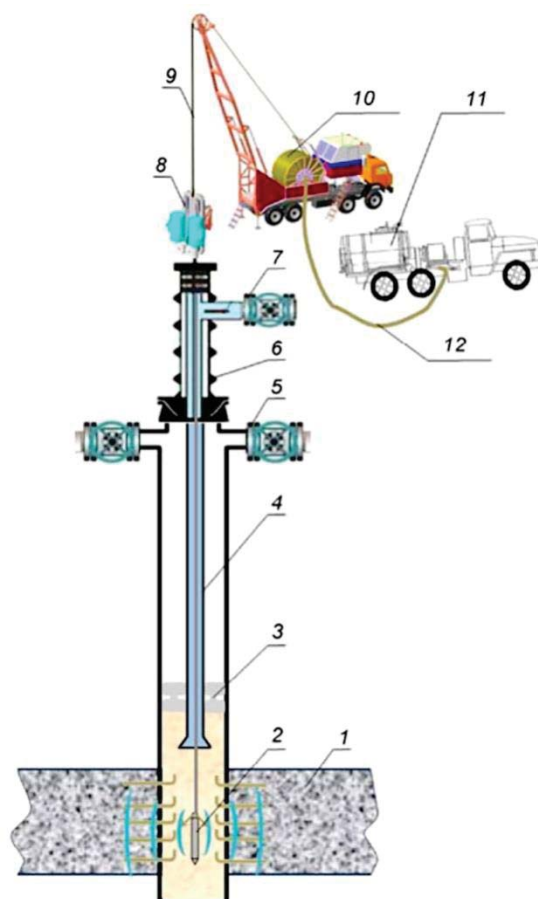


промытых водой. Например, в работе [69] в качестве таких реагентов предлагаются композиции на основе карбамида и уротропина. При этом акустическое воздействие при закачке реагентов может способствовать более глубокому их проникновению в высокопроницаемые зоны пласта, увеличивая зону охвата и коэффициент вытеснения нефти [62].

В работе [70] отмечается, что метод воздействия упругими волнами может быть применим как дополнение после использования на месторождении различных способов физико-химической очистки. Причем за счет применения волновых методов должна интенсифицироваться очистка зоны обработки от различных твердых частиц и продуктов химических реакций. Авторами, на основе успешной реализации волновых технологий на углеводородных месторождениях Татарстана и Западной Сибири [67, 71], разработан способ воздействия на пласт техническими средствами на основе магнитострикционных эффектов. Воздействие осуществляется с поверхности земли путем передачи через специальный кабель в пласт электрической энергии мощностью до 5 кВт. Установлено, что максимальный эффект волнового воздействия проявился при плотности акустической мощности 20 кВт/м<sup>2</sup>, оптимальное время воздействия 4–12 часов, а генерируемая частота колебаний должна быть в диапазоне 10–20 кГц, что соответствует условиям обеспечения возникновения резонанса.

В работе [65] описывается новый метод ультразвукового повышения нефтеотдачи пластов с низкопродуктивными скважинами. Технология включает в себя спуск источника мощного ультразвука, выполненного на основе магнитострикционных преобразователей, на устье скважины для кратковременной обработки (СП-42/1300) либо в качестве постоянного размещения для периодического применения (СП-102/1270). Оборудование для комбинированной ультразвуковой и химической обработки состоит из двух частей – наземного генератора и скважинного ультразвукового инструмента. Наземное оборудование позволяет генерировать колебания на частотах от 18 до 27 кГц с выходной мощностью 10 кВт. Эти инструменты обеспечивают радиальные колебания через излучающие поверхности. Рабочая частота скважинных излучателей – 25 кГц. Мощность СП-42/1300 составляет 5 кВт, а мощность СП-102/1270 – 10 кВт.

В скважинах, где проницаемость превышает 20 мД, а пористость более 15 %, ультразвуковая обработка может увеличить добычу нефти на 50 %, а в некоторых случаях и больше. В скважинах с более низкой проницаемостью и пористостью ультразвуковая обработка сама по себе менее успешна, но высокие темпы добычи могут быть достигнуты, если ультразвук применяется в сочетании с химическими реагентами. На рис. 8 представлена схема, где раствор химических реагентов закачивается по НКТ в призабойную зону за счет создания высокого давления от насосной установки. Затем излучатель спускается в скважину через НКТ и проводится ультразвуковая обработка околоскважинной зоны с одновременной подачей химических реагентов через специальный шлангокабель [72].



**Рис. 8.** Расположение элементов оборудования при комбинированной обработке призабойной зоны скважины волновым воздействием и химическими реагентами: 1 – нефтяной пласт; 2 – излучатель; 3 – пакер; 4 – НКТ; 5 – затрубная задвижка; 6 – лубрикатор; 7 – выкидная линия; 8 – податчик шлангокабеля; 9 – шлангокабель; 10 – каротажный подъемник ПКС-5Г-Т; 11 – насосный агрегат типа СИН-32; 12 – шлангокабель подачи химических реагентов [72]

**Fig. 8.** Arrangement of the elements of equipment during combined treatment of the near-wellbore region using ultrasonic irradiation and chemical reagents: 1 – oil formation; 2 – downhole tool; 3 – packer; 4 – tubing; 5 – casing valve; 6 – lubricator; 7 – discharge line; 8 – feeder for an umbilical cable; 9 – umbilical cable; 10 – well logging truck hoist PKS-5G-T; 11 – pumping unit SIN-32; 12 – hose pipe for supplying chemical reagents [72]

Среднее увеличение производительности почти в 3 раза было достигнуто для этого типа скважин при использовании комбинированной технологии ультразвуковой и химической обработки. Исследование показало, что ультразвуковая технология при этом может повысить нефтеотдачу на 40 % и более на скважинах с проницаемостью более 20 мД и пористостью более 15 % (месторождения Западной Сибири и Самарской области). Авторы утверждают, что применяемый способ ультразвуковой обработки прост и экологически безопасен. Ультразвуковая обработка обладает эффектом последействия, который длится от 3 до 12 месяцев и более. Метод повышает проницае-

мость призабойной зоны и может ослабить кольматацию при наличии минеральных частиц [65, 72]. На коллекторах с более низкой проницаемостью и пористостью ультразвуковая обработка оказалась неэффективной. Для таких скважин был разработан метод, сочетающий ультразвук с химическими веществами, который был испытан на добывающих и нагнетательных скважинах. Дебит таких скважин стал значительно выше после комбинированной обработки ультразвуком и химикатами по сравнению с ультразвуковой или химической обработкой по отдельности [65].

Силовое акустическое воздействие на керны и в скважинах является источником сейсмоакустической эмиссии. В работе [73] показано, что волновое воздействие увеличивает проницаемость по сравнению с первоначальным значением, а вызванная таким воздействием акустическая эмиссия насыщенной пористой среды служит надежным источником информации о ее фильтрационно-емкостных свойствах.

В работе [74] исследовано влияние ультразвукового воздействия с различными параметрами на процесс удаления неорганических отложений. Затем на основе полученных результатов были проведены промышленные эксперименты с использованием разработанного ультразвукового оборудования высокой мощности. Результаты показали, что частота и мощность преобразователя, время ультразвуковой обработки и начальная проницаемость керна влияют на эффект удаления неорганических отложений. Эффект удаления пробок улучшается с повышением частоты и мощности преобразователя. Оптимальное время обработки составляет около 80–120 мин (рис. 9). Полевые испытания, проведенные в низкопроницаемых коллекторах в северной Шэньси и на месторождении Дацин, показали, что ультразвуковая обработка может значительно увеличить добычу и закачку, что подтверждается результатами лабораторных исследований. Так, после обработки ультразвуковой системой суточная добыча нефти увеличивается вдвое (на 0,64 т). Кроме того, хорошие результаты наблюдались в нагнетательных скважинах – отмечено снижение давления и увеличение закачки воды [74]. Результаты показывают, что ультразвуковая обработка может способствовать удалению парафиновых осадков.

В работе [75] проведен анализ существующего акустического оборудования, работающего в ультразвуковом диапазоне частот, и технологий его использования при добыче нефти. В основу данных приборов положен принцип преобразования электрической энергии в механические колебания. Проведенный сравнительный анализ использования методов интенсификации добычи нефти показал высокую эффективность применения акустического воздействия. Использование ультразвуковых излучателей целесообразно не только для воздействия на пласт, но и для обработки высоковязкой нефти при подготовке ее к транспорту [76].

В работе [77] представлены результаты испытания акустического воздействия на нефтяной пласт совместно с технологией поддержания пластового давления на Первомайском нефтяном месторождении в Татарстане. Результаты промышленных исследований подтвердили эффективность предлагаемой техноло-

гии в килогерцовом диапазоне работы устройства на основе струйного осциллятора Гельмгольца [78]: дебит нефти на эксплуатационных участках повысился примерно на 11 %. Также стоит отметить эффект последствия акустического воздействия на пласт с продолжительностью до нескольких месяцев. Наиболее важным результатом применения акустического воздействия стоит признать восстановление приемистости нагнетательной скважины за счет увеличения проницаемости загрязненной призабойной зоны.

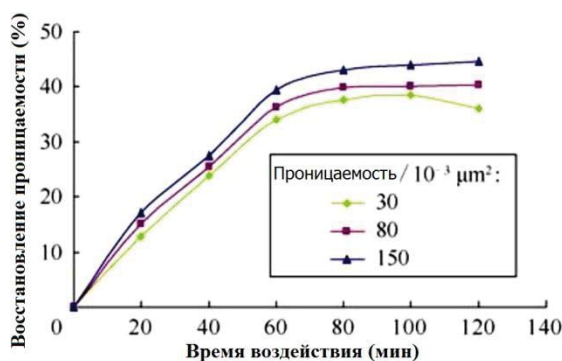


Рис. 9. Влияние продолжительности ультразвуковой обработки на проницаемость образцов [74]

Fig. 9. Effect of ultrasonic treatment duration on the permeability of the samples [74]

Z. Wang и др. [37] утверждают, что ультразвуковая технология извлечения нефти имеет очевидные преимущества по сравнению с традиционными термическими и химическими методами добычи. Применение ультразвука значительно повышает коэффициент извлечения при снижении стоимости добычи, а простота технологии и отсутствие загрязнения нефтяного пласта свидетельствуют о ее больших перспективах. В работе [37] представлены последние достижения в области разработки ультразвуковых устройств для повышения нефтеотдачи в Китае.

Проанализировав публикации по влиянию упругих волн на проницаемость пористых сред, мы представляем сводную краткую информацию в таблице. Видно, что большее количество исследований посвящено воздействию в ультразвуковом диапазоне частот.

Таким образом, анализ литературы свидетельствует о том, что акустическое воздействие на пласт позволяет очистить призабойную зону скважины и увеличить проницаемость продуктивного пласта. Такие изменения фильтрационно-емкостных свойств коллектора способствуют увеличению добычи нефти.

#### Заключение

В последнее время повышение нефтеотдачи пластов с помощью акустических технологий стало предметом повышенного интереса из-за интенсификации процесса добычи, низкой себестоимости и энергопотребления, высокой адаптивности, селективности применения и отсутствия загрязнения. Отмечаются активные промышленные испытания и разработка скважинных волновых технических средств для повышения нефтеотдачи пластов, особенно в России.

**Таблица.** Экспериментальные и промысловые исследования при акустическом воздействии на пористые среды и продуктивные пласты

**Table.** Experimental and field studies of acoustic impact on porous media and reservoirs

Ключевой эффект при волновом воздействии Key effect observed at wave action	Частота (интенсивность) воздействия Frequency (intensity) range	Время воздействия Duration of exposure	Тип исследования (объект воздействия, начальная проницаемость) Type of research (object of influence; initial permeability)	Ссылка Reference
Увеличение проницаемости образцов в 3–7 раз Increase in sample permeability by 3–7 times	10–100 кГц/kHz	0–2000 мин/minutes	Эксперимент (берейский песчаник и известняк) Experiment (Berea sandstone and limestone)	[1]
Повышение эффективности химической обработки и восстановление проницаемости зерна Increasing the efficiency of chemical treatment and recovery of core permeability	18–50 кГц (60–1000 Вт) Оптимально: 20 кГц (1000 Вт) 18–50 kHz (60–1000 W) Optimal: 20 kHz (1000 W)	60–120 мин/minutes	Эксперимент (поврежденные образцы зерна с газопроницаемостью 30, 80 и $100 \cdot 10^{-3} \text{ мкм}^2$ ) Experiment (damaged core samples with gas permeability of 30, 80 and $100 \cdot 10^{-3} \text{ } \mu\text{m}^2$ )	[5]
Повышение проницаемости на 3–9 % и пористости образцов Increase of permeability by 3–9 % and porosity of samples	15, 18, 20, 25, 28 кГц/kHz	Циклы по 5 минут Cycles of 5 minutes each	Эксперимент (керна с сырой нефтью; $0,02 \cdot 10^{-3}$ – $3,1 \cdot 10^{-3} \text{ мкм}^2$ ) Experiment (cores with crude oil; $0,02 \cdot 10^{-3}$ to $3,1 \cdot 10^{-3} \text{ } \mu\text{m}^2$ )	[13]
Увеличение проницаемости образцов известняка: индианский – на 12–25 %, оолитовый – на 3000–8000 % Increase in permeability of limestone samples: indiana – by 12–25 %, oolitic – by 3000–8000 %	20 кГц (300 Вт) 20 kHz (300 W)	10 мин/minutes	Эксперимент (индианский: 1,51–1,6 мД и оолитовый известняк: 64–205 мД) Experiment (indiana: 1,51–1,6 mD and oolitic limestone: 64–205 mD)	[38]
Улучшение проницаемости трещиноватых пористых систем до 50 % Improvement of permeability of fractured porous systems up to 50 %	0,05 Гц/Hz	20–1800 сек/seconds	Эксперимент (берейский песчаник; $1\text{--}1,6 \cdot 10^{-15} \text{ м}^2$ ) Experiment (Berea sandstone; $1\text{--}1,6 \cdot 10^{-15} \text{ м}^2$ )	[41]
Повышение проницаемости образцов на ~5 % Increase in sample permeability by ~5 %	22 кГц (80 Вт) 22 kHz (80 W)	–	Моделирование (образцы из стеклошариков: проницаемость – 30, 38, 43 Д) Modelling (glass bead samples: permeability – 30, 38, 43 D)	[48]
Восстановление проницаемости образцов на 80, 42, 87, 81 % и удаление неорганических отложений Restoration of sample permeability by 80, 42, 87, 81 % and removal of inorganic deposits	22 кГц (1000 Вт) 22 kHz (1000 W)	до 80 минут up to 80 minutes	Эксперимент (низкопроницаемые керны: 20, 30–100, 100–700, >1000 мД) Experiment (low-permeability cores: 20, 30–100, 100–700, >1000 mD)	[60]
Повышение проницаемости; увеличение дебита скважин в 3 раза (комбинация ультразвукового и химического методов) Increase of permeability; increase of well flow rate by 3 times (combination of ultrasonic and chemical methods)	25 кГц (5–10 кВт) 25 kHz (5–10 kW)	10 месяцев/months	Промысел (пласты с проницаемостью 20 мД и пористостью 15 %) Field (reservoirs with permeability of 20 mD and porosity of 15 %)	[65]
Повышение проницаемости пласта; увеличение дебита скважин в 2–8 раз (комбинация волнового метода и внутрипластового горения) Increase of formation permeability; increase of well flow rate by 2–8 times (combination of wave method and in-situ combustion)	1000 Гц/Hz 2000 Гц/Hz 2800 Гц/Hz	36 месяцев/months	Промысел (пласт песчаника с проницаемостью 500 мД и пористостью 20–35 %) Field (sandstone formation with permeability 500 mD and porosity 20–35%)	[67]
Повышение проницаемости и очистка пласта от химической обработки Increase of permeability and cleaning the formation from chemical treatment	10–20 кГц (до 5 кВт) 10–20 kHz (up to 5 kW)	4–12 ч/hours	Эксперимент (модель пласта) Experiment (Reservoir model)	[70]
Повышение проницаемости; увеличение закачки и дебита скважин в 2 раза Increase of permeability; increase of injection and well flow rate by 2 times	5–30 кГц (10 кВт) 5–30 kHz (10 kW)	~14 месяцев ~ 14 months	Эксперимент и промысел (керна с сырой нефтью; 30, 80 и $150 \cdot 10^{-3} \text{ мкм}^2$ ) Experiment and field (cores with crude oil; 30, 80 and $150 \cdot 10^{-3} \text{ } \mu\text{m}^2$ )	[74]

В данной работе обобщены исследования и практика применения методов и технических средств повышения нефтеотдачи пластов с точки зрения предотвращения выпадения органических и неорганических осадков под воздействием упругих волн, восстановления проницаемости насыщенных пористых сред, ультразвуковой де-

эмульсации/дегидратации, удаления пробок и различных отложений. Представлен широкий спектр работ по восстановлению проницаемости на образцах (кернх) с различным содержанием органических и неорганических примесей. Большинство работ подчеркивают положительное воздействие колебаний на процессы филь-



трации через такие среды. В частности, ультразвуковая технология воздействия на пласт имеет очевидные преимущества по сравнению с традиционными термическими и химическими методами добычи нефти. Ее применение повышает коэффициент извлечения при значительном снижении стоимости добычи, а простота конструкции и отсутствие загрязняющего фактора предоставляют ей большие перспективы. Для широкомасштабного применения таких технологий необходимо акцентировать внимание на следующем:

- практически все виды оптимизационных исследований механизма упругих волн на добычу нефти достигли больших успехов в лабораторных условиях и не были широкомасштабно применены к промышленной добыче нефти. Поскольку лабораторные эксперименты не в состоянии полностью повторить пластовые условия, необходимо увеличить количество промысловых испытаний;
- в настоящее время акустическая технология извлечения нефти играет большую роль только в низкопроницаемых пластах с высоковязкой нефтью. В будущем необходимо рассматривать возможность применения этой технологии для извлечения нефти из сланцевых пород и при разра-

ботке сланцевого газа и метана угольных пластов. Данное направление развития имеет большие перспективы в будущем;

- ультразвуковая технология имеет большой эффект для увеличения добычи, но она ограничена радиусом действия. В будущих исследованиях необходимо рассматривать ультразвуковую технологию в сочетании с другими технологиями, например, с термическими методами и методами добычи нефти с использованием химических реагентов, для получения максимальной выгоды, а также проводить исследования в акустическом и инфразвуковом диапазоне частот;
- помимо положительных эффектов воздействия (успешности порядка 80 %), проявляются также и отрицательные результаты. Поэтому актуальной задачей в будущем является необходимость изучить причины и выявить условия снижения проницаемости пористых сред и увеличения вязкости нефтей для оптимизации режимов воздействия на жидкие и пористые среды.

*Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 22-29-01174, <https://rscf.ru/project/22-29-01174/>.*

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Venkittaraman A., Roberts P.M., Sharma M.M. Ultrasonic removal of near-wellbore damage caused by fines and mud solids // SPE Drilling & Completion. – 1995. – V. 10. – P. 193–197. DOI: 10.2118/27388-PA
2. Selective ultrasonic treatment of perforation zones in horizontal oil wells for water cut reduction / V.O. Abramov, A.V. Abramova, V.M. Bayazitov, A.V. Marnosov, S.P. Kuleshov, A.S. Gerasin // Applied Acoustics. – 2016. – V. 103. – P. 214–220. DOI: 10.1016/j.apacoust.2015.06.017
3. Shedid S.A. An ultrasonic irradiation technique for treatment of asphaltene deposition // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2004. – V. 42. – P. 57–70. DOI: 10.1016/j.petrol.2003.11.001
4. Wang Z., Xu Y. Review on application of the recent new high-power ultrasonic transducers in enhanced oil recovery field in China // Energy. – 2015. – V. 89. – P. 259–267. DOI: 10.1016/j.energy.2015.07.077
5. Permeability recovery of damaged water sensitive core using ultrasonic waves / N. Khan, C. Pu, X. Li, Y. He, L. Zhang, C. Jing // Ultrasonics Sonochemistry. – 2017. – V. 38. – P. 381–389. DOI: 10.1016/j.ultsonch.2022.105949
6. Zhenjun W., Yuanming X., Bajracharya S. Research status and development trend of ultrasonic oil production technique in China // Ultrasonics Sonochemistry. – 2015. – V. 26. – P. 1–8. DOI: 10.1016/j.ultsonch.2015.01.014
7. Wang Z., Huang J. Research on removing reservoir core water sensitivity using the method of ultrasound-chemical agent for enhanced oil recovery // Ultrasonics Sonochemistry. – 2018. – V. 42. – P. 754–758. DOI: 10.1016/j.ultsonch.2017.12.046
8. Сургучев М.И. Вторичные и третичные методы увеличения нефтеотдачи пластов. – М.: Недра, 1985. – 308 с.
9. Волновые технологии и их использование при разработке месторождений нефти с трудноизвлекаемыми запасами / В.П. Дыбленко, Е.Ю. Марчуков, И.А. Туфанов, Р.Я. Шарифуллин, В.С. Евченко. – М.: РАЕН, 2012. – 344 с.
10. Кузнецов О.Л., Ефимова С.А. Применение ультразвука в нефтяной промышленности. – М.: Недра, 1983. – 192 с.
11. Гатауллин Р.Н., Кадыйров А.И. Интенсификация добычи нефти методами волнового воздействия на продуктивные пласты // Научные труды НИПИНефтегазГНКАР. – 2020. – № 2. – С. 78–90. DOI: 10.5510/OGP20200200434
12. Application of ultrasonic treatment for demulsification of stable water-in-oil emulsions / Y. Romanova, T. Maryutina, N. Musina, B. Spivakova // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2022. – V. 209. – 109977. DOI: 10.1016/j.petrol.2021.109977
13. Study on frequency optimization and mechanism of ultrasonic waves assisting water flooding in low-permeability reservoirs / X. Li, C. Pu, X. Chen, F. Huang, H. Zheng // Ultrasonics Sonochemistry. – 2021. – V. 70. – 105291. DOI: 10.1016/j.ultsonch.2020.105291
14. Razavifar M., Qajar J. Experimental investigation of the ultrasonic wave effects on the viscosity and thermal behaviour of an asphaltene crude oil // Chemical Engineering and Processing – Process Intensification. – 2020. – V. 153. – 107964. DOI: /10.1016/j.ccep.2020.107964
15. The mechanism of ultrasonic irradiation effect on viscosity variations of heavy crude oil / J. Gao, C. Li, D. Xu, P. Wu, W. Lin, X. Wang // Ultrasonics Sonochemistry. – 2021. – V. 81. – 105842. DOI: 10.1016/j.ultsonch.2021.105842
16. Hua Q. Experimental studies on viscosity reduction of heavy crude oil by ultrasonic irradiation // Acoustical Physics. – 2020. – V. 66 (5). – P. 495–500. DOI: 10.1134/S106377102005005X
17. Features of rheological behavior of crude oil after ultrasonic treatment / A. Kadyirov, J. Karaeva, E. Barskaya, E. Vachagina // Brazilian Journal of Chemical Engineering. – 2022. DOI: 10.1007/s43153-022-00226-6
18. Hamidi H., Ephraim A.S.H., Otumudia W. Recent applications of ultrasonic waves in improved oil recovery: a review of techniques and results // Ultrasonics. – 2021. – V. 110. – 106288. DOI: 10.1016/j.ultras.2020.106288
19. Adeyemi I., Meribout M., Khezzer L. Recent developments, challenges, and prospects of ultrasound-assisted oil technologies // Ultrasonics Sonochemistry. – 2022. – V. 82. – 105902. DOI: 10.1016/j.ultsonch.2021.105902
20. Changes in permeability caused by transient stresses: field observations, experiments, and mechanisms / M. Manga, I. Beresnev, E.E. Brodsky, J.E. Elkhoury, D. Elsworth, S.E. Ingebritsen, D.C. Mays, C.-Y. Wang // Reviews of Geophysics. – 2012. – V. 50 (2). – RG 2004. DOI: 10.1029/2011RG000382
21. Optimization of acoustic parameters for ultrasonic separation of emulsions with different physical properties / X. Luo, H. Gong, H. Yin, Z. He, L. He // Ultrasonics Sonochemistry. – 2020. – V. 68. – 105221. DOI: 10.1016/j.ultsonch.2020.105221
22. Исследование влияния температуры и скорости течения на вязкость нефтяных эмульсий / И.Ш. Мингулов, М.Д. Валеев,



- В.В. Мухаметшин, Ш.Г. Мингулов, Л.С. Кулешова // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2021. – Т. 332. – № 10. – С. 69–76. DOI: 10.18799/24131830/2021/10/3029
23. Поплыгин В.В., Уирсигроч М. Исследование эффективности комплексного нестационарного воздействия на залежь с высоковязкой нефтью // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2020. – Т. 331. – № 1. – С. 7–12. DOI: 10.18799/24131830/2021/10/3029
  24. Experimental and mechanism study: partially hydrolyzed polyacrylamide gel degradation and deplugging via ultrasonic waves and chemical agents / N. Khan, J. Pu, C. Pu, H. Xu, X. Gu, Z. Lei, F. Huang, M.A. Nasir, R. Ullah // *Ultrasonics Sonochemistry*. – 2019. – V. 56. – P. 350–360. DOI: 10.1016/j.ulsonch.2019.04.018
  25. Xu H., Pu C. Experimental study of heavy oil underground aquathermolysis using catalyst and ultrasonic // *Journal of Fuel Chemistry and Technology*. – 2011. – V. 39. – P. 606–610. DOI: 10.1016/S1872-5813(11)60037-6
  26. Meribout M. On using ultrasonic-assisted Enhanced Oil Recovery (EOR): recent practical achievements and future prospects // *IEEE Access*. – 2018. – V. 6. – P. 51110–51118. DOI: 10.1109/ACCESS.2018.2859774.
  27. Ultrasound-assisted CO<sub>2</sub> flooding to improve oil recovery / H. Hamidi, A.H. Sharifi, E. Mohammadian, R. Rafati, A. Azdarpour, P. Ghahri, P. Ombewa, T. Neuert, A. Zink // *Ultrasonics Sonochemistry*. – 2017. – V. 35. – P. 243–250. DOI: 10.1016/j.ulsonch.2016.09.026.
  28. Comparative study of ultrasound assisted water and surfactant flooding/ A. Agi, R. Junin, R. Shirazi, G. Afeez, N. Yekeen // *Journal of King Saud University, Engineering Sciences*. – 2019. – V. 31. – P. 296–303. DOI: 10.1016/j.jksues.2018.01.002 1018-3639
  29. Effects of sonication radiation on oil recovery by ultrasonic waves stimulated water-flooding / E. Mohammadian, R. Junin, O. Rahmani, A.K. Idris // *Ultrasonics*. – 2013. – V. 53. – P. 607–614. DOI: 10.1016/j.ultras.2012.10.006
  30. Oil recovery enhancement in low permeable and severe heterogeneous oil reservoirs via gas and foam flooding / P. Wei, W. Pu, L. Sun, Y. Pu, S. Wang, Z. Fang // *Journal of Petroleum Science and Engineering*. – 2018. – V. 163. – P. 340–348. DOI: 10.1016/j.petrol.2018.01.011
  31. Dongqi W., Daiyin Y., Yazhou Z. Fine classification of ultra-low permeability reservoirs around the Placanticline of Daqing oilfield (PR of China) // *Journal of Petroleum Science and Engineering*. – 2019. – V. 174. – P. 1042–1052. DOI: 10.1016/j.petrol.2018.12.008
  32. The visual and quantitative study of remaining oil micro-occurrence caused by spontaneous imbibition in extra-low permeability sandstone using computed tomography / X. Gu, C. Pu, N. Khan, F. Wu, F. Huang, H. Xu // *Fuel*. – 2019. – V. 237. – P. 152–162. DOI: 10.1016/j.fuel.2018.09.014
  33. Teichgraeber H., Brandt A.R. Clustering methods to find representative periods for the optimization of energy systems: an initial framework and comparison // *Applied Energy*. – 2019. – V. 239. – P. 1283–1293. DOI: 10.1016/j.apenergy.2019.02.012
  34. Luchi D., Loureiro R.A., Varejao F.M. Sampling approaches for applying DBSCAN to large datasets // *Pattern Recognition Letters*. – 2019. – V. 117. – P. 90–96. DOI: 10.1016/j.patrec.2018.12.010
  35. Taheri-Shakib J., Shekarifard A., Naderi H. The experimental investigation of effect of microwave and ultrasonic waves on the key characteristics of heavy crude oil // *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*. – 2017. – V. 128. – P. 92–101. DOI: 10.1016/j.jaap.2017.10.021
  36. Agi A., Junin R., Chong A.S. Intermittent ultrasonic wave to improve oil recovery // *Journal of Petroleum Science and Engineering*. – 2018. – V. 166. – P. 577–591. DOI: 10.1016/j.petrol.2018.03.097
  37. Wang Z., Fang R., Guo H. Advances in ultrasonic production units for enhanced oil recovery in China // *Ultrasonics Sonochemistry*. – 2020. – V. 60. – P. 104791. DOI: 10.1016/j.ulsonch.2019.104791
  38. Experimental investigation of ultrasonic treatment effectiveness on pore structure / A. Ghamartale, M. Escrochi, M. Riazi, A. Faghhi // *Ultrasonics Sonochemistry*. – 2019. – V. 51. – P. 305–314. DOI: 10.1016/j.ulsonch.2018.10.002
  39. Michlmayr G., Cohen D., Or D. Sources and characteristics of acoustic emissions from mechanically stressed geologic granular media – a review // *Earth-Science Reviews*. – 2012. – V. 112. – P. 97–114. DOI: 10.1016/j.earscirev.2012.02.009
  40. Simulation of the crack development in coal without confining stress under ultrasonic wave treatment / Q. Shi, Y. Qin, J. Li, Z. Wang, M. Zhang, X. Song // *Fuel*. – 2017. – V. 205. – P. 222–231. DOI: 10.1016/J.FUEL.2017.05.069
  41. Laboratory observations of permeability enhancement by fluid pressure oscillation of in situ fractured rock / J.E. Elkhoury, A. Niemeijer, E.E. Brodsky, C. Marone // *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*. – 2011. – V. 116 (B2). – P. B02311. DOI: 10.1029/2010JB007759
  42. Johnson D.L., Koplik J., Dashen R. Theory of dynamic permeability and tortuosity in fluid-saturated porous media // *Journal of Fluid Mechanics*. – 1987. – V. 176. – P. 379–402. DOI: 10.1017/S0022112087000727
  43. Рябконов Е.П. Методика прогнозирования изменения дебита добывающих скважин при распространении упругих колебаний в призабойной зоне терригенных коллекторов // *Нефтяное хозяйство*. – 2020. – № 6. – С. 76–78. DOI: 10.24887/0028-2448-2020-6-66-79
  44. Flow rate dictates permeability enhancement during fluid pressure oscillations in laboratory experiments / T. Candela, E.E. Brodsky, C. Marone, D. Elsworth // *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*. – 2015. – V. 120 (4). – P. 2037–2055. DOI: 10.1002/2014JB01151
  45. Ultrasonic wave attenuation dependence on saturation in tight oil siltstones / J. Ba, R. Ma, J.M. Carcione, S. Picotti // *Journal of Petroleum Science and Engineering*. – 2019. – V. 179. – P. 1114–1122. DOI: 10.1016/j.petrol.2019.04.099
  46. Simulation of fluid flow in the pore space of the core obtained by x-ray microtomography / E. Marfin, D. Chachkov, A. Abdrashitov, A. Kadyrov // *AIP Conference Proceedings: Computational Mechanics and Modern Applied Software Systems (CMMASS2019)*. – 2019. – 020013. DOI: 10.1063/1.5135673
  47. Investigating the role of ultrasonic wave on two-phase relative permeability in a free gravity drainage process / B. Keshavarzi, R. Karimi, I. Najafi, C. Ghotbi, M.H. Ghazanfari // *Scientia Iranica, Transaction C: Chemistry & Chemical Engineering*. – 2014. – V. 21. – P. 763–771.
  48. Arabzadeh H., Amani M. Application of a novel ultrasonic technology to improve oil recovery with an environmental viewpoint // *Journal of Petroleum & Environmental Biotechnology*. – 2017. – V. 8. – Iss. 2. – P. 1000323. DOI: 10.4172/2157-7463.1000323
  49. Dynamic stressing of naturally fractured rocks: on the relation between transient changes in permeability and elastic wave velocity / P. Shokouhi, J. Jin, C. Wood, J. Riviere, B. Madara, D. Elsworth, C. Marone // *Geophysical Research Letters*. – 2020. – V. 47 (116). – e2019GL083557. DOI: 10.1029/2019GL083557
  50. Permeability evolution during shear zone initiation in low-porosity rocks / C. Kluge, G. Blöcher, A. Barnhoorn, J. Schmittbuhl, D. Bruhn // *Rock Mechanics and Rock Engineering*. – 2021. – V. 54 (10). – P. 5221–5244. DOI: 10.1007/s00603-020-02356-0
  51. Maximov G.A., Radchenko A.V. Modeling of the intensification of oil production by an acoustic action on the oil pool from the borehole // *Acoustical Physics*. – 2005. – V. 51. – P. 118–131. DOI: 10.1134/1.2133958
  52. Metelev I., Marfin E. Changes in the properties of a porous medium by ultrasound exposure. 6th Scientific Conference. Tyumen, European Association of Geoscientists and Engineers (EAGE), 2019. 148133. DOI: 10.3997/2214-4609.201900559
  53. Ezenweichu C.L., Laditan O.D. The causes, effects and minimization of formation damage in horizontal wells // *Petroleum and Coal*. – 2015. – V. 57. – P. 169–184.
  54. Liu Q., Zhao B., Santamarina J.C. Particle migration and clogging in porous media: a convergent flow microfluidics study // *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*. – 2019. – V. 124 (9). – P. 9495–9504. DOI: 10.1029/2019JB017813
  55. Water sensitivity of sandstones containing swelling and non-swelling clays / K.K. Mohan, R.N. Vaidya, M.G. Reed, H.S. Fogler // *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. – 1993. – V. 73. – P. 237254. DOI: 10.1016/0927-7757(93)80019-B
  56. Mullakaev M.S., Abramov V.O., Abramova A.V. Ultrasonic automated oil well complex and technology for enhancing marginal well productivity and heavy oil recovery // *Journal of Petroleum Science and Engineering*. – 2017. – V. 159. – P. 1–7. DOI: 10.1016/j.petrol.2017.09.019

57. Moshin M., Meribout M. Antenna array design for enhanced oil recovery under oil reservoir constraints with experimental validation // *Energy*. – 2016. – V. 66. – P. 868–880. DOI: 10.1016/j.energy.2014.01.002
58. Roberts P.M., Adinathan V., Sharma M.M. Ultrasonic removal of organic deposits and polymer-induced formation damage // *SPE Drilling & Completion*. – 2000. – V. 15. – P. 19–24. DOI: 10.2118/62046-PA
59. High-power/high-frequency acoustic stimulation: a novel and effective wellbore stimulation technology / S.-W. Wong, F. van der Bas, P. Zuiderwijk, B. Birchak, W. Han, K. Yoo, D. van Batenburg // *SPE Production & Facilities*. – 2004. – V. 19. – P. 183–188. DOI:10.2118/84118-MS
60. Using ultrasonic as a new approach for elimination of inorganic scales (NaCl): an experimental study / J. Taheri-Shakib, H. Naderi, Y. Salimidelshad, A. Teymouri, A. Shekarifard // *Journal of Petroleum Exploration and Production Technology*. – 2018. – V. 8. – P. 553–564. DOI: 10.1007/s13202-017-0369-4
61. Alhomadhi E., Amro M., Almobarkey M. Experimental application of ultrasound waves to improved oil recovery during waterflooding // *Journal of King Saud University – Engineering Sciences*. – 2014. – V. 26 (1). – P. 103–110. DOI: 10.1016/j.jksues.2013.04.002
62. Кузнецов О.Л., Симкин Э.М., Чилингар Дж. Физические основы вибрационного и акустического воздействия на нефтяные пласты. – М.: Мир, 2001. – 260 с.
63. Beresnev I.A., Johnson P.A. Elastic-wave stimulation of oil production: a review of methods and results // *Geophysics*. – 1994. – V. 59 (6). – P. 1000–1017. DOI: 10.1190/1.1443645
64. Seismic waves could decrease the permeability of the shallow crust / Y. Shi, X. Liao, D. Zhang, C.-P. Liu // *Geophysical Research Letters*. – 2019. – V. 46 (12). – P. 6371–6377. DOI: 10.1029/2019GL081974
65. Ultrasonic technology for enhanced oil recovery from failing oil wells and the equipment for its implementation / V.O. Abramov, M.S. Mullakaev, A.V. Abramova, I.B. Esipov, T.J. Mason // *Ultrasonics Sonochemistry*. – 2013. – V. 20. – P. 1289–1295. DOI: 10.1016/j.ultsonch.2013.03.004
66. Дорфман М.Б., Сентемов А.А. Влияние фильтрационно-емкостных свойств призабойной зоны пласта на эффективность кислотной обработки // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2020. – Т. 331. – № 2. – С. 124–130. DOI: 10.18799/24131830/2020/2/2488
67. Elastic-wave effect on oil production by in situ combustion: field results / E.A. Marfin, Y.I. Kravtsov, A.A. Abdrashitov, R.N. Gataullin, A.R. Galimzyanova // *Petroleum Science and Technology*. – 2015. – V. 33 (15–16). – P. 1526–1532. DOI: 10.1080/10916466.2015.1037923
68. Гатауллин Р.Н. Технические средства волнового воздействия на продуктивные пласты // *Технологии нефти и газа*. – 2021. – № 2 (133). – С. 34–41. DOI: 10.32935/1815-2600-2021-133-2-34-41
69. Манжай В.Н., Ульянюк М.П., Рождественский Е.А. Перспективная технология для увеличения нефтеотдачи на месторождениях с разной проницаемостью пластов // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2021. – Т. 332. – № 9. – С. 92–99. DOI: 10.18799/24131830/2021/9/3356
70. Исследование ультразвукового воздействия на нефтяной пласт / Д.Н. Гуляев, Н.Е. Лазуткина, Ю.Ф. Жуйков, А.В. Ильинский, А.А. Рухман, А.Е. Шиканов, Е.А. Шиканов // *Нефтяное хозяйство*. – 2018. – № 8. – С. 60–63. DOI: 10.24487/0028-2448-2018-8-60-63
71. Mullakaev M.S., Abramov V.O., Abramova A.V. Ultrasonic piezoceramic module and technology for stimulating low-productivity wells // *Journal of Petroleum Science and Engineering*. – 2017. – V. 158. – P. 529–534. DOI: 10.1016/j.petrol.2017.08.067
72. Опыт применения ультразвукового воздействия для восстановления продуктивности нефтяных скважин Западной Сибири и Самарской области / В.О. Абрамов, М.С. Муллакаев, В.М. Баязитов, Э.О. Тимашев, С.П. Кулешов, В.О. Прокопцев // *Нефтепромысловое дело*. – 2013. – № 6. – С. 26–31.
73. Дрягин В.В. Использование вызванной акустической эмиссии коллекторов для обнаружения и извлечения углеводородов // *Георесурсы*. – 2018. – Т. 20. – № 3 (2). – С. 246–260. DOI: 10.18599/grs.2018.3.246-260
74. Technology of removing near wellbore inorganic scale damage by high power ultrasonic treatment / C. Pu, D. Shi, S. Zhao, H. Xu, H. Shen // *Petroleum Exploration and Development*. – 2011. – V. 38 (2). – P. 243–248. DOI: 10.1016/S1876-3804(11)60030-X
75. Анализ существующего акустического оборудования и технологий его применения для повышения нефтеотдачи / М.С. Муллакаев, А.А. Салтыков, Ю.А. Салтыков Р.М. Муллакаев, А.Р. Раянов, В.Г. Прачкин // *Геология, геофизика и разработка нефтяных и газовых месторождений*. – 2019. – № 10. – С. 60–70. DOI: 10.30713/2413-5011-2019-10(334)-60-70
76. Математическое моделирование ультразвукового излучателя резонансного типа для подготовки высоковязкой нефти к транспорту / А.А. Азин, Е.П. Богданов, Н.Н. Марицкий, С.А. Пономарев, С.В. Пономарев // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2021. – Т. 332. – № 11. – С. 161–169. DOI: 10.18799/24131830/2021/11/3433
77. Marfin E.A., Gataullin R.N., Abdrashitov A.A. Acoustic stimulation of oil production by a downhole emitter based on a jet-driven Helmholtz oscillator // *Journal of Petroleum Science and Engineering*. – 2022. – 110705. DOI: 10.1016/j.petrol.2022.110705
78. Abdrashitov A.A., Marfin E.A. Short cylindrical nozzles in a jet-driven Helmholtz oscillator // *Physics of Fluids*. – 2020. – V. 32 (7). – 077103. DOI: 10.1063/5.0006845

Поступила 27.06.2022 г.

Прошла рецензирование 14.07.2022 г.

#### Информация об авторах

**Гатауллин Р.Н.**, кандидат технических наук, старший научный сотрудник лаборатории теплофизики и волновых технологий Института энергетики и перспективных технологий ФИЦ Казанский научный центр РАН.

**Галимзянова А.Р.**, младший научный сотрудник лаборатории теплофизики и волновых технологий Института энергетики и перспективных технологий ФИЦ Казанский научный центр РАН.

**Марфин Е.А.**, кандидат технических наук, ведущий научный сотрудник лаборатории теплофизики и волновых технологий Института энергетики и перспективных технологий ФИЦ Казанский научный центр РАН.

UDC 622.276.6: 622.245.54

**ACOUSTIC INFLUENCE EFFECT ON POROUS MEDIA PERMEABILITY (REVIEW)**

**Rustem N. Gataullin**<sup>1</sup>,  
rustem.acadrome@mail.ru

**Aliya R. Galimzyanova**<sup>1</sup>,  
galimzyanova\_aliy@mail.ru

**Evgeny A. Marfin**<sup>1</sup>,  
marfin\_ea@mail.ru

<sup>1</sup> Institute of Power Engineering and Advanced Technologies, FRC Kazan Scientific Center, Russian Academy of Sciences, 2-31, Lobachevsky street, Kazan, 420111, Russia.

**The relevance** of the work is caused by the need to solve the problems arising in the development of oil fields: reducing the production rate; deterioration of reservoir filtration properties; increasing water cut of produced oil. The impact on the formation of elastic vibrations in a wide frequency range is considered a promising technology to stimulate and increase oil production. However, the large-scale introduction of such methods is constrained by insufficient understanding of the physics of the processes involved. **Objective:** to identify mechanisms of improving the permeability of porous media and reservoirs under acoustic influence on them based on theoretical and experimental studies, field tests; to identify priorities for future scientific and practical developments in the application of acoustic technologies to intensify oil production. **Methods:** analysis of the results of laboratory studies and generalization of experience in the application of acoustic and ultrasonic impact methods on productive formations to intensify oil production. **Objects:** productive formations of oil fields; contaminated bottomhole zone of wells; samples of porous medium from terrigenous and carbonate reservoirs. **Results.** The paper introduces the review of the results of theoretical, laboratory, and field studies of methods to improve the efficiency of oil production due to the wave action on the environment by elastic oscillations. The authors analyzed the phenomena occurring during this action in the productive formation. It is noted that most studies in this area refer to the ultrasonic exposure and mainly in laboratory conditions. The paper considers the phenomenon leading to increase in porous media permeability under this impact. In particular, the propagation of elastic vibrations contributes to the prevention of deposition of organic and inorganic sediments, restoration and increase of permeability of saturated porous media, removal of plugs and various deposits in carbonate and terrigenous reservoirs. The directions of promising research are formulated; recommendations for improving oil production through acoustic impact are given. The conducted analysis and generalization confirm that the impact of elastic oscillations in a wide range of frequencies activates various chemical and physical processes, affects the filtration-capacitive properties of productive formations and contributes to oil production intensification.

**Key words:**

Permeability, porous medium, elastic waves, ultrasound, oil, cores, oil production.

The research was funded with the grant of the Russian Science Foundation no. 22-29-01174, <https://rscf.ru/project/22-29-01174/>.

**REFERENCES**

- Venkitaraman A., Roberts P.M., Sharma M.M. Ultrasonic removal of near-wellbore damage caused by fines and mud solids. *SPE Drilling & Completion*, 1995, vol. 10, pp. 193–197, SPE 27388. DOI: 10.2118/27388-PA
- Abramov V.O., Abramova A.V., Bayazitov V.M., Marnosov A.V., Kuleshov S.P., Gerasin A.S. Selective ultrasonic treatment of perforation zones in horizontal oil wells for water cut reduction. *Applied Acoustics*, 2016, vol. 103, pp. 214–220. DOI: 10.1016/j.apacoust.2015.06.017
- Shedid S.A. An ultrasonic irradiation technique for treatment of asphaltene deposition. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2004, vol. 42, pp. 57–70. DOI: 10.1016/j.petrol.2003.11.001
- Wang Z., Xu Y. Review on application of the recent new high-power ultrasonic transducers in enhanced oil recovery field in China. *Energy*, 2015, vol. 89, pp. 259–267. DOI: 10.1016/j.energy.2015.07.077
- Khan N., Pu C., Li X., He Y., Zhang L., Jing C. Permeability recovery of damaged water sensitive core using ultrasonic waves. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2017, vol. 38, pp. 381–389. DOI: 10.1016/j.ulsonch.2022.105949
- Zhenjun W., Yuanming X., Bajracharya S. Research status and development trend of ultrasonic oil production technique in China. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2015, vol. 26, pp. 1–8. DOI: 10.1016/j.ulsonch.2015.01.014
- Wang Z., Huang J. Research on removing reservoir core water sensitivity using the method of ultrasound-chemical agent for enhanced oil recovery. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2018, vol. 42, pp. 754–758. DOI: 10.1016/j.ulsonch.2017.12.046
- Surguchev M.L. *Vtorichnye i tretichnye metody uvelicheniya nefteodachi plastov* [Secondary and tertiary methods of enhanced oil recovery]. Moscow, Nedra Publ., 1985. 308 p.
- Dyblenko V.P., Marchukov E.Yu., Tufanov I.A., Sharifullin R.Ya., Evchenko V.S. *Volnovye tekhnologii i ikh ispolzovanie pri razrabotke mestorozhdeni ynefti s trudnoizvlekaemymi zapasami* [Wave technologies and their use in the development of oil fields with hard-to-recover reserves]. Moscow, RAEN Publ., 2012. 344 p.
- Kuznetsov O.L., Efimova S.A. *Primenenie ultrazvuka v nefyanyy promyshlennosti* [The use of ultrasound in the oil industry]. Moscow, Nedra Publ., 1983. 192 p.
- Gataullin R.N., Kadiyrov A.I. Intensifying oil extraction by wave action methods on productive layers. *SOCAR Proceedings*, 2020, no. 2, pp. 78–90. In Rus. DOI: 10.5510/OGP20200200434
- Romanova Y., Maryutina T., Musina N., Spivakova B. Application of ultrasonic treatment for demulsification of stable water-in-oil emulsions. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2022, vol. 209, 109977. DOI: 10.1016/j.petrol.2021.109977
- Li X., Pu C., Chen X., Huang F., Zheng H. Study on frequency optimization and mechanism of ultrasonic waves assisting water flooding in low-permeability reservoirs. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2021, vol. 70, 105291. DOI: 10.1016/j.ulsonch.2020.105291
- Razavifar M., Qajar J. Experimental investigation of the ultrasonic wave effects on the viscosity and thermal behaviour of an asphaltic crude oil. *Chemical Engineering and Processing – Process Intensification*, 2020, vol. 153, 107964. DOI: 10.1016/j.ccep.2020.107964



15. Gao J., Li C., Xu D., Wu P., Lin W., Wang X. The mechanism of ultrasonic irradiation effect on viscosity variations of heavy crude oil. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2021, vol. 81, 105842. DOI: 10.1016/j.ulsonch.2021.105842
16. Hua Q. Experimental studies on viscosity reduction of heavy crude oil by ultrasonic irradiation. *Acoustical Physics*, 2020, vol. 66 (5), pp. 495–500. DOI: 10.1134/S106377102005005X
17. Kadyrov A., Karaeva J., Barskaya E., Vachagina E. Features of rheological behavior of crude oil after ultrasonic treatment. *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, 2022. DOI: 10.1007/s43153-022-00226-6
18. Hamidi H., Ephraim A.S.H., Otumudia W. Recent applications of ultrasonic waves in improved oil recovery: a review of techniques and results. *Ultrasonics*, 2021, vol. 110, 106288. DOI: 10.1016/j.ultras.2020.106288
19. Adeyemi I., Meribout M., Khezzer L. Recent developments, challenges, and prospects of ultrasound-assisted oil technologies. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2022, vol. 82, 105902. DOI: 10.1016/j.ulsonch.2021.105902
20. Manga M., Beresnev I., Brodsky E.E., Elkhoury J.E., Ingebritsen S.E., Elsworth D., Mays D.C., Wang C.-Y. Changes in permeability caused by transient stresses: field observations, experiments, and mechanisms. *Reviews of Geophysics*, 2012, vol. 50, no. 2, RG 2004. DOI: 10.1029/2011RG000382
21. Luo X., Gong H., Yin H., He Z., He L. Optimization of acoustic parameters for ultrasonic separation of emulsions with different physical properties. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2021, vol. 68, 105221. DOI: 10.1016/j.ulsonch.2020.105221
22. Mingulov I.Sh., Valeev M.D., Mukhametshin V.V., Mingulov S.G., Kuleshova L.S. Study of temperature and flow rate influence on the viscosity of oil emulsions. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2021, vol. 332, no. 10, pp. 69–76. In Rus. DOI: 10.18799/24131830/2021/10/3029
23. Poplygin V.V., Wiercigroch M. Research of efficiency of complex non-stationary impact on layer with high-quality oil. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 1, pp. 7–12. In Rus. DOI: 10.18799/24131830/2021/10/3029
24. Khan N., Pu J., Pu C., Xu H., Gu X., Lei Z., Huang F., Nasir M.A., Ullah R. Experimental and mechanism study: Partially hydrolyzed polyacrylamide gel degradation and deplugging via ultrasonic waves and chemical agents. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2019, vol. 56, pp. 350–360. DOI: 10.1016/j.ulsonch.2019.04.018
25. Xu H., Pu C. Experimental study of heavy oil underground aquathermolysis using catalyst and ultrasonic. *Journal of Fuel Chemistry and Technology*, 2011, vol. 39, pp. 606–610. DOI: 10.1016/S1872-5813(11)60037-6
26. Meribout M. On using ultrasonic-assisted Enhanced Oil Recovery (EOR): recent practical achievements and future prospects. *IEEE Access*, 2018, vol. 6, pp. 51110–51118. DOI: 10.1109/ACCESS.2018.2859774
27. Hamidi H., Sharifi A., Mohammadian E., Rafati R., Azdarpour A., Ghahri P., Ombewa P., Neuert T., Zink A. Ultrasound-assisted CO<sub>2</sub> flooding to improve oil recovery. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2017, vol. 35, pp. 243–250. DOI: 10.1016/j.ulsonch.2016.09.026
28. Agi A., Junin R., Shirazi R., Afeez G., Yekeen N. Comparative study of ultrasound assisted water and surfactant flooding. *Journal of King Saud University – Engineering Sciences*, 2019, vol. 31, pp. 296–303. DOI: 10.1016/j.jksues.2018.01.002 1018-3639
29. Mohammadian E., Junin R., Rahmani O., Idris A.K. Effects of sonication radiation on oil recovery by ultrasonic waves stimulated water-flooding. *Ultrasonics*, 2013, vol. 53, pp. 607–614. DOI: 10.1016/j.ultras.2012.10.006
30. Wei P., Pu W., Sun L., Pu Y., Wang S., Fang Z. Oil recovery enhancement in low permeable and severe heterogeneous oil reservoirs via gas and foam flooding. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2018, vol. 163, pp. 340–348. DOI: 10.1016/j.petrol.2018.01.011
31. Dongqi W., Daiyin Y., Yazhou Z. Fine classification of ultra-low permeability reservoirs around the Placanticline of Daqing oilfield (PR of China). *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2019, vol. 174, pp. 1042–1052. DOI: 10.1016/j.petrol.2018.12.008
32. Gu X., Pu C., Khan N., Wu F., Huang F., Xu H. The visual and quantitative study of remaining oil micro-occurrence caused by spontaneous imbibition in extra-low permeability sandstone using computed tomography. *Fuel*, 2019, vol. 237, pp. 152–162. DOI: 10.1016/j.fuel.2018.09.014
33. Teichgraber H., Brandt A.R. Clustering methods to find representative periods for the optimization of energy systems: an initial framework and comparison. *Applied Energy*, 2019, vol. 239, pp. 1283–1293. DOI: 10.1016/j.apenergy.2019.02.012
34. Luchi D., Loureiros Rodrigues A., Miguel Varejão F. Sampling approaches for applying DBSCAN to large datasets. *Pattern Recognition Letters*, 2019, vol. 117, P. 90–96. DOI: 10.1016/j.patrec.2018.12.010
35. Taheri-Shakib J., Shekarifard A., Naderi H. The experimental investigation of effect of microwave and ultrasonic waves on the key characteristics of heavy crude oil. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, 2017, vol. 128, pp. 92–101. DOI: 10.1016/j.jaap.2017.10.021
36. Agi A., Junin R., Chong A.S. Intermittent ultrasonic wave to improve oil recovery. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2018, vol. 166, pp. 577–591. DOI: 10.1016/j.petrol.2018.03.097
37. Wang Z., Fang R., Guo H. Advances in ultrasonic production units for enhanced oil recovery in China. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2020, vol. 60, 104791. DOI: 10.1016/j.ulsonch.2019.104791
38. Ghamartale A., Escrochi M., Riazhi M., Faghhi A. Experimental investigation of ultrasonic treatment effectiveness on pore structure. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2019, vol. 51, pp. 305–314. DOI: 10.1016/j.ulsonch.2018.10.002
39. Michlmayr G., Cohen D., Or D. Sources and characteristics of acoustic emissions from mechanically stressed geologic granular media – a review. *Earth-Science Reviews*, 2012, vol. 112, pp. 97–114. DOI: 10.1016/j.earscirev.2012.02.009
40. Shi Q., Qin Y., Li J., Wang Z., Zhang M., Song X. Simulation of the crack development in coal without confining stress under ultrasonic wave treatment. *Fuel*, 2017, vol. 205, pp. 222–231. DOI: 10.1016/J.FUEL.2017.05.069
41. Elkhoury J.E., Niemeijer A., Brodsky E.E., Marone C. Laboratory observations of permeability enhancement by fluid pressure oscillation of in situ fractured rock. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 2011, vol. 116 (2), B02311. DOI: 10.1029/2010JB007759
42. Johnson D.L., Koplik J., Dashen R. Theory of dynamic permeability and tortuosity in fluid-saturated porous media. *Journal of Fluid Mechanics*, 1987, vol. 176, pp. 379–402. DOI: 10.1017/S0022112087000727
43. Riabokon E.P. Methodology for forecasting the oil rate change while elastic wave propagation in the near-wellbore zone of elastic reservoirs. *Neftyanoe khozyaystvo – Oil Industry*, 2020, no. 6, pp. 76–78. In Rus. DOI: 10.24487/0028-2448-2020-6-66-79
44. Candela T., Brodsky E.E., Marone C., Elsworth D. Flow rate dictates permeability enhancement during fluid pressure oscillations in laboratory experiments. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 2015, vol. 120, no. 4, pp. 2037–2055. DOI: 10.1002/2014JB011511
45. Ba J., Ma R., Carcione J.M., Picotti S. Ultrasonic wave attenuation dependence on saturation in tight oil siltstones. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2019, vol. 179, pp. 1114–1122. DOI: 10.1016/j.petrol.2019.04.099
46. Marfin E., Chachkov D., Abdrashitov A., Kadyrov A. Simulation of fluid flow in the pore space of the core obtained by x-ray microtomography. *AIP Conference Proceedings: Computational Mechanics and Modern Applied Software Systems (CMMASS'2019)*, 2019, 020013. DOI: 10.1063/1.5135673
47. Keshavarzi B., Karimi R., Najafi I., Ghotbi C., Ghazanfari M.H. Investigating the role of ultrasonic wave on two-phase relative permeability in a free gravity drainage process. *Scientia Iranica, Transaction C: Chemistry & Chemical Engineering*, 2014, vol. 21, pp. 763–771.
48. Arabzadeh H., Amani M. Application of a novel ultrasonic technology to improve oil recovery with an environmental viewpoint. *Journal of Petroleum & Environmental Biotechnology*, 2017, vol. 8 (2), 1000323. DOI: 10.4172/2157-7463.1000323
49. Shokouhi P., Jin J., Wood C., Riviere J., Madara B., Elsworth D., Marone C. Dynamic stressing of naturally fractured rocks: on the relation between transient changes in permeability and elastic wave velocity. *Geophysical Research Letters*, 2020, vol. 47 (116), e2019GL083557. DOI: 10.1029/2019GL083557
50. Kluge C., Blöcher G., Barnhoorn A., Schmittbuhl J., Bruhn D. Permeability evolution during shear zone initiation in low-porosity rocks. *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 2021, vol. 54 (10), pp. 5221–5244. DOI: 10.1007/s00603-020-02356-0



51. Maximov G.A., Radchenko A.V. Experimental studies on viscosity reduction of heavy crude oil by ultrasonic irradiation. *Acoustical Physics*, 2005, vol. 51, pp. 118–131. DOI: 10.1134/1.2133958
52. Metelev I., Marfin E. Changes in the properties of a porous medium by ultrasound exposure. *6th Scientific Conference*. Tyumen, European Association of Geoscientists and Engineers (EAGE), 2019. 148133. DOI: 10.3997/2214-4609.201900559
53. Ezenweichu C.L., Laditan O.D. The causes, effects and minimization of formation damage in horizontal wells. *Petroleum and Coal*, 2015, vol. 57, pp. 169–184.
54. Liu Q., Zhao B., Santamarina J.C. Particle migration and clogging in porous media: a convergent flow microfluidics study. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 2019, vol. 124 (9), pp. 9495–9504. DOI: 10.1029/2019JB017813
55. Mohan K.K., Vaidya R.N., Reed M.G., Fogler H.S. Water sensitivity of sandstones containing swelling and non-swelling clays. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 1993, vol. 73, 237254. DOI: 10.1016/0927-7757(93)80019-B
56. Mullakaev M.S., Abramov V.O., Abramova A.V. Ultrasonic automated oil well complex and technology for enhancing marginal well productivity and heavy oil recovery. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2017, vol. 159, pp. 1–7. DOI: 10.1016/j.petrol.2017.09.019
57. Moshin M., Meribout M. Antenna array design for enhanced oil recovery under oil reservoir constraints with experimental validation. *Energy*, 2016, vol. 66, pp. 868–880. DOI: 10.1016/j.energy.2014.01.002
58. Roberts P.M., Adinathan V., Sharma M.M. Ultrasonic removal of organic deposits and polymer-induced formation damage. *SPE Drilling & Completion*, 2000, vol. 15, pp. 19–24. DOI: 10.2118/62046-PA
59. Wong S.-W., Van der Bas F., Zuidervijk P., Birchak B., Han W., Yoo K., Van Batenburg D. High-power/high-frequency acoustic stimulation: a novel and effective wellbore stimulation technology. *SPE Production & Facilities*, 2004, vol. 19, pp. 183–188. DOI: 10.2118/84118-MS
60. Taheri-Shakib J., Naderi H., Salimidelshad Y., Teymouri A., Shekarifard A. Using ultrasonic as a new approach for elimination of inorganic scales (NaCl): an experimental study. *Journal of Petroleum Exploration and Production Technology*, 2018, vol. 8, pp. 553–564. DOI: 10.1007/s13202-017-0369-4
61. Alhomadhi E., Amro M., Almobarky M. Experimental application of ultrasound waves to improved oil recovery during waterflooding. *Journal of King Saud University – Engineering Sciences*, 2014, vol. 26 (1), pp. 103–110. DOI: 10.1016/j.jksues.2013.04.002
62. Kuznetsov O.L., Simkin E.M., Chilingar J. *Fizicheskie osnovy vibratsionnogo i akusticheskogo vozdeystviya na neftegazovye plasty* [Physical bases of vibration and acoustic effects on oil reservoirs]. Moscow, Mir Publ., 2001. 260 p
63. Beresnev I.A., Johnson P.A. Elastic-wave stimulation of oil production: a review of methods and results. *Geophysics*, 1994, vol. 59 (6), pp. 1000–1017. DOI: 10.1190/1.1443645
64. Shi Y., Liao X., Zhang D., Liu C.-P. Seismic waves could decrease the permeability of the shallow crust. *Geophysical Research Letters*, 2019, vol. 46 (12), pp. 6371–6377. DOI: 10.1029/2019GL081974
65. Abramov V.O., Mullakaev M.S., Abramova A.V., Esipov I.B., Mason T.J. Ultrasonic technology for enhanced oil recovery from failing oil wells and the equipment for its implementation. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2013, vol. 20, pp. 1289–1295. DOI: 10.1016/j.ultsonch.2013.03.004
66. Dorfman M.B., Sentemov A.A. Influence of reservoir properties of the bottomhole zone on acidizing efficiency. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 2, pp. 124–130. In Rus. DOI: 10.18799/24131830/2020/2/2488
67. Marfin E.A., Kravtsov Y.I., Abdrashitov A.A., Gataullin R.N., Galimzyanova A.R. Elastic-wave effect on oil production by in situ combustion: field results. *Petroleum Science and Technology*, 2015, vol. 33 (15–16), pp. 1526–1532. DOI: 10.1080/10916466.2015.1037923
68. Gataullin R.N. Technical means of wave action on reservoirs. *Oil and gas technologies*, 2021, no. 2, pp. 34–41. In Rus. DOI: 10.32935/1815-2600-2021-133-2-34-41
69. Manzhay V.N., Ulyanyuk M.P., Rozhdestvensky E.A. Promising technology for enhanced oil recovery of oilfields with different reservoir permeability. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2021, vol. 332, no. 9, pp. 92–99. In Rus. DOI: 10.18799/24131830/2021/9/3356
70. Gulyaev D.N., Lazutkina N.E., Zhuikov Yu.F., Ilyinskiy A.V., Rukhman A.A., Shikanov A.E., Shikanov E.A. Research of ultrasonic treatment of an oil reservoir. *Oil Industry*, 2018, vol. 4, no. 8, pp. 60–63. In Rus. DOI: 10.24887/0028-2448-2018-8-60-63
71. Mullakaev M.S., Abramov V.O., Abramova A.V. Ultrasonic piezoceramic module and technology for stimulating low-productivity wells. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2017, vol. 158, pp. 529–534. DOI: 10.1016/j.petrol.2017.08.067
72. Abramov V.O., Mullakaev M.S., Bayazitov V.M., Timashev E.O., Kuleshov S.P., Prokoptsev V.O. Experience of using ultrasound technology to restore productivity of oil wells in West Siberia and Samara region. *Neftepromyslovoe delo*, 2013, no. 6, pp. 26–31. In Rus.
73. Dryagin V.V. Use of induced acoustic emission of reservoirs for the detection and recovery of hydrocarbons. *Georesources*, 2018, vol. 20, no. 3, P. 2, pp. 246–260. DOI: 10.18599/grs.2018.3.246-260
74. Pu C., Shi D., Zhao S., Xu H., Shen H. Technology of removing near wellbore inorganic scale damage by high power ultrasonic treatment. *Petroleum Exploration and Development*, 2011, vol. 38 (2), pp. 243–248. DOI: 10.1016/S1876-3804(11)60030-X
75. Mullakaev M.S., Saltykov A.A., Saltykov Y.A., Mullakaev R.M., Rayanov A.R., Prachkin V.G. Analysis of the existing acoustic equipment and technologies of its application to enhanced oil recovery. *Geology, geophysics and development of oil and gas field*, 2019, no. 10, pp. 60–70. In Rus. DOI: 10.30713/2413-5011-2019-10(334)-60-70
76. Azin A.V., Bogdanov E.P., Maritsky N.N., Ponomarev S.A., Rikkonen S.V. Mathematical modeling of a resonant-type ultrasonic emitter for preparing high-viscosity oil for transport. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2021, vol. 332, no. 11, pp. 161–169. In Rus. DOI: 10.18799/24131830/2021/11/3433
77. Marfin E.A., Gataullin R.N., Abdrashitov A.A. Acoustic stimulation of oil production by a downhole emitter based on a jet-driven Helmholtz oscillator. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2022, 110705. DOI: 10.1016/j.petrol.2022.110705
78. Abdrashitov A.A., Marfin E.A. Short cylindrical nozzles in a jet-driven Helmholtz oscillator. *Physics of Fluids*, 2020, vol. 32, no. 7, 077103. DOI: 10.1063/5.0006845

Received: 27 June 2022.

Reviewed: 14 July 2022.

#### Information about the authors

**Rustem N. Gataullin**, Cand. Sc., senior researcher, Institute of Power Engineering and Advanced Technologies, FRC Kazan Scientific Center, Russian Academy of Sciences.

**Aliya R. Galimzyanova**, junior researcher, Institute of Power Engineering and Advanced Technologies, FRC Kazan Scientific Center, Russian Academy of Sciences.

**Evgeny A. Marfin**, Cand. Sc., leading researcher, Institute of Power Engineering and Advanced Technologies, FRC Kazan Scientific Center, Russian Academy of Sciences.

УДК 622.276:681.5

## МНОГОРЕЖИМНАЯ ЧАСТОТНАЯ ОПТИМИЗАЦИЯ ДЛЯ СКВАЖИН С ЭЛЕКТРОЦЕНТРОБЕЖНЫМ НАСОСОМ

Соловьев Илья Георгиевич<sup>1,2</sup>,  
igsolovyev123@gmail.com

Константинов Иван Владимирович<sup>1</sup>,  
ivkonstantinov95@yandex.ru

Говорков Денис Александрович<sup>1</sup>,  
dagovorkov@mail.ru

<sup>1</sup> Федеральный исследовательский центр Тюменский научный центр СО РАН,  
Россия, 625026, г. Тюмень, ул. Малыгина, 86.

<sup>2</sup> Тюменский индустриальный университет,  
Россия, 625000, г. Тюмень, ул. Володарского, 38.

**Актуальность** исследования связана с повышением ресурсно-энергетической эффективности частотных методов много-режимного управления производительностью скважин с погружными электроцентробежными насосами. На практике частотное управление всё больше применяется не только как средство оперативного реагирования на действия осложняющих факторов эксплуатации, но и как инструмент реализации политики предприятия в обстоятельствах квотировании отборов или компенсации недоборов.

Введение многорежимных регламентов работы видоизменяет критерии и методы назначения базового технологического режима и параметров оборудования.

**Цель:** формализация задачи оптимизации многорежимного регламента работы и параметров оборудования скважин с электроцентробежными насосами по приведённому суточному критерию прибыли полного жизненного цикла эксплуатации силовой установки, определяющему баланс между производительностью, долговечностью и энергопотреблением.

**Объекты:** скважина с частотно-регулируемым электроцентробежным насосом.

**Методы:** материального и теплового балансов, гидростатики, линеаризованной кинетики потерь напора в сегментах подъёмника, факторного анализа риска отказа, многопараметрической оптимизации с восстановлением «поверхности» откликов по технологиям параллельного счёта.

**Результаты исследования и выводы.** На основе типизации временных диаграмм многорежимной эксплуатации и выделения приведённого критерия суточной прибыли полного жизненного цикла работы электроцентробежного насоса дана обновлённая формализация задачи оптимизации технологических режимов и параметров оборудования скважин по типизированным программам многорежимной работы. Результаты вычислительного анализа на примере термобарической модели скважины с параметрами для объектов среднего Приобья и экспертными настройками цен и коэффициентов чувствительности модели ресурса электроцентробежного насоса подтвердили, что в принятых ограничениях оптимальные решения доставляют более высокие показатели прибыли в сравнении с практикой синтеза на потенциал производительности при реализации любых многорежимных программ. Состоятельность многорежимной оптимизации иллюстрируется расчётами упущенных прибылей, когда на оптимальных решениях одних режимов реализуются другие программы регулирования. Долевой контроль факторов ускоренного старения с переходом к критерию приведённой суточной прибыли позволяет рассчитывать оптимальные решения для любого потенциала наработки без явной информации о его значении.

### Ключевые слова:

Модель, цель, оптимизация, многорежимная эксплуатация, потенциал производительности, потенциал наработки, электроцентробежный насос, прибыль, ресурсно-энергетические затраты.

### Постановка задачи

Оптимизация технологических режимов эксплуатации и параметров оборудования скважин электроцентробежными насосами (ЭЦН) – актуальное направление развития цифровых технологий нефтепрома [1, 2]. В отличие от популярных нейросетевых решений по обобщению положительного опыта (лучших практик) эксплуатации скважин на предприятиях нефтедобычи [3, 4], представленные результаты анализа основаны на классических схемах системного синтеза [5–7], когда конструируемые решения используют физико-математические модели управляемых термобарических процессов [8] для организации желаемых свойств поведения, отраженных целевыми

показателями критерия оптимальности [9]. Данная работа развивает технику оптимального конструирования с использованием факторной модели риска отказов, изложенную в [10], для случаев применения инструментов регулирования подачи при помощи частоты по командам верхнего уровня управления [11, 12]. Речь идёт о реализации политики компенсации недоборов и/или квотирования отборов по «внешним» причинам. Как будет показано ниже, реализация политики введением варьируемых отборов видоизменяет не только настройки оптимальных решений, но и схему формализации задачи оптимального выбора.

В новых условиях важно учитывать два обстоятельства:

- 1) повышенные ресурсно-энергетические затраты работы системы на смещённых частотах.
- 2) восстанавливаемые объёмы недоборов и сокращаемые квоты добычи на начальный момент выбора технологического режима и параметров обустройства строго не определены. А это значит, что объёмы варьируемой подачи можно учитывать неявно в долях относительно искомого уровня добычи базового (доминирующего) режима.

Следуя [9, 10], задачу оптимального конструирования представим как экстремальную:

$$\mathbf{x}_* = \arg \max J(\mathbf{x}), \quad \mathbf{x} \in X, \quad (1)$$

по поиску максимума критерия прибыли  $J(\mathbf{x})$ , доставляемого выбранным ЭЦН-м, на полном жизненном цикле  $T(\mathbf{x})$  его эксплуатации [сут]. Искомый вектор параметров  $\mathbf{x}=[q\omega H_N P_2^0(j)]^T$  включает:  $q$  – базовый режим работы скважинной системы по производительности (тех режим) [м<sup>3</sup>/сут];  $\omega$  – относительную частоту питающего напряжения, обеспечивающую базовый режим;  $H_N$  – глубину подвески насоса по вертикали [м];  $j$ -й типоразмер погружного электродвигателя (ПЭД) с номинальной мощности на валу  $P_2^0(j)$  [МПа м<sup>3</sup>/сут].

Переход к многорежимной производительности предлагается осуществлять введением долевых пар:

$$\langle \tau(l), \delta(l) \rangle \quad l \in L = \{1, 2, \dots, nL\}, \quad (2)$$

где  $nL$  – априорно заданное количество дополнительных (возмущённых) режимов работы  $q(l)$ , обеспеченных частотами  $\omega(l)$ , отличными от базового состояния  $\langle q(0), \omega(0) \rangle$  с доминирующей длительностью воспроизведения:

$$q(l) = \delta(l)q(0),$$

где  $\delta(l) \in [0, 5; 1, 3]$  – доли от производительности базового режима;  $\tau(l) > 0$  – доли длительности от периода полного жизненного цикла установки с суммарным временем воспроизводства каждого дополнительного режима:

$$T(l) = \tau(l)T, \quad \tau(1) + \dots + \tau(nL) \leq 0, 5.$$

Характерные примеры диаграмм возможного распределения возмущённых режимов работы с  $nL=5$  по долям относительно базового уровня и долям суммарной длительности воспроизведения представлены на рис. 1.

Здесь и далее рассматриваются следующие режимы:

- «моно» режим с единственным значением номинальной частоты на всем сроке службы установки;
- «симметричный» режим, отвечающий гибкому выбору производительности на сниженных и повышенных частотах;
- режим квотирования с переходами на пониженные расходы;
- режим компенсации недоборов с возможной частотной интенсификацией производительности.

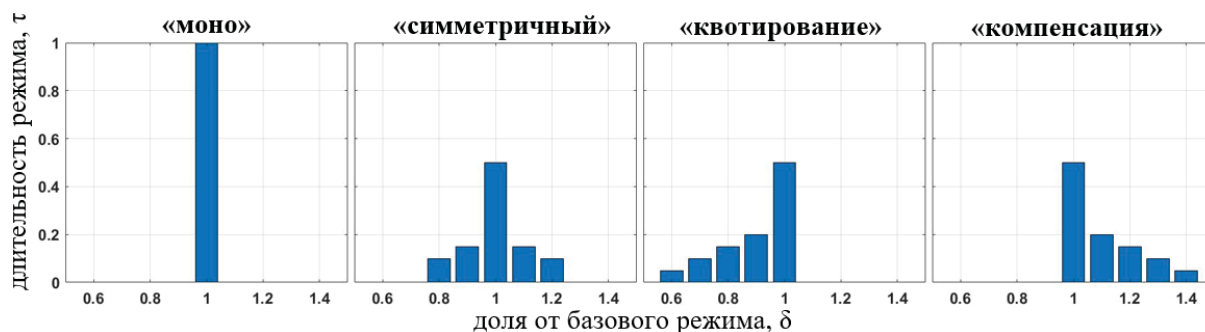


Рис. 1. Распределение длительностей возмущённых режимов эксплуатации скважин

Fig. 1. Duration diagrams of the disturbed well operation modes

Если, по аналогии с [10], суммарный показатель критерия прибыли режима стационарной эксплуатации на периоде наработки представить выражением

$$J(\mathbf{x}) = T(\mathbf{x}) \cdot \Delta J(\mathbf{x}) - c_0(\mathbf{x}),$$

где показатель суточной прибыли

$$\Delta J(\mathbf{x}) = c_1(1-\beta) \cdot q - c_2 \cdot q - c_3 P_1(j, \omega | q) \quad (3)$$

учитывает главные компоненты:  $c_1(1-\beta)q$  – доход от продажи нефти;  $c_2q$  – средние по предприятию эксплуатационные затраты, приведённые к объёму добычи жидкости;  $c_3 P_1(j, \omega | q)$  – индивидуальные по скважине затраты на энергопотребление, то, в условиях многорежимной эксплуатации (2) исчисление прибыли полного периода наработки видоизменяется

$$J(\mathbf{x}) = T(\mathbf{x}) \sum_{l=0}^{nL} \tau(l) \Delta J(\mathbf{x}, l) - c_0(\mathbf{x}), \quad (4)$$

равно как и уточняется факторная модель [10] оценки риска отказа

$$T(\mathbf{x}) = T^0 \delta T(\mathbf{x}), \quad (5)$$

где  $T(\mathbf{x})$  – расчётное время наработки на отказ, а

$$\delta T(\mathbf{x}) = 1 / \sum_0^{nL} \tau(l) E_z(\mathbf{x}, l)$$

есть его кратное снижение по отношению к потенциалу  $T^0$  для номинальных условий по статистике производителя ЭЦН.

Здесь

$\langle q(0), \omega(0), \tau(0) \rangle = \langle q, \omega, 1 - \tau(1) - \dots - \tau(nL) \rangle$  – параметры базового режима работы системы, а

$$E_z(\mathbf{x}, l) = \frac{\gamma q(l)}{\gamma_0 q^0} + a_1 E_p(\mathbf{x}, l) + a_2 E_\theta(\mathbf{x}, l) + a_3 E_U(\mathbf{x}, l) + a_4 E_H(\mathbf{x}, l) \quad (6)$$

есть суммарный фактор интенсивности износа ЭЦН при реализации  $l$ -го возмущённого режима (2).

С учётом (5) перейдем к показателю потенциала суточной прибыли. Для этого подставим (5) в обновлённый критерий прибыли, а результат разделим на потенциал наработки  $T^0$ . В итоге, с учетом (6), получим

$$\delta J(\mathbf{x}) = \delta J_0(\mathbf{x}) - c_0(\mathbf{x})/T^0, \quad (7)$$

где

$$\delta J_0(\mathbf{x}) = \frac{\sum_{l=0}^{nL} \tau(l) \Delta J(\mathbf{x}, l)}{\sum_{l=0}^{nL} \tau(l) E_{\Sigma}(\mathbf{x}, l)}$$

есть основная доля показателя в критерии приведённой суточной прибыли многорежимной программы (2), а

$$c_0(\mathbf{x}) = c_4 \gamma_0 q^0 h^0 T^0 + (c_{50} + c_{51} H_N(\mathbf{x}))$$

есть показатель (стоимость) разовых затрат на владение силовой установкой (первое слагаемое), на демонтаж отказавшей и монтаж новой системы (второе слагаемое).

Для (4) и (7) задача оптимального конструирования (1) представляется в виде отношений

$$\mathbf{x}_* = \arg \max J(\mathbf{x}) = \arg \max \delta J(\mathbf{x}), \quad \mathbf{x} \in X. \quad (8)$$

Учитывая, что потенциал наработки  $T^0$ , обеспечиваемый материалами, конструктивными решениями, технологиями производства и прочими факторами, трудно прогнозировать, задачу (8) рассмотрим в «укороченной» постановке, оставляя лишь первое – главное – слагаемое суммы (7)

$$\mathbf{x}_* = \arg \max \delta J_0(\mathbf{x}), \quad \mathbf{x} \in X. \quad (9)$$

В новом определении малая доля приведённых разовых затрат  $c_0(\mathbf{x})/T^0$ , содержащая неопределённость  $T^0$ , игнорируется.

Если область допустимых значений  $X$  вектора  $\mathbf{x}$  для номинала полезной мощности  $P_2^0(j)$  определяется номенклатурой производимых погружных асинхронных двигателей  $j \in J = \{1, \dots, m\}$  [13], относительные частоты  $\omega = \Omega/\Omega_0$  соответствуют дискретам отрезка  $\Omega \in [25; 65]$  [Гц] с периодом квантования в 0,1 [Гц] [14] ( $\Omega_0 = 50$  [Гц] – несущая частота напряжения в линии), то диапазон возможных значений для пары  $\langle q, H_N \rangle$  взаимобусловлен и зависит от конструктивно-прочностных ограничений ствола скважины по заглублению  $H_N \leq \overline{H_N}$  [15], а также от лимитов на динамические уровни и доли свободного газа у приёма насоса

$$\overline{H_N}(q) = \arg \left\{ \left( \beta_{GN}(q) \leq \beta^{LIM} \right) \wedge \left( h(4, q) \geq h^{LIM} \right) \right\}. \quad (10)$$

Здесь  $\beta_{GN}(q)$  – объёмная доля свободного газа у первой ступени насоса, а  $h(4, q)$  – уровень столба жидкости над приёмом насоса в затрубном пространстве [9, 10]. В расчётах принято:  $\beta^{LIM} \approx 0,25$  – предельно допустимый уровень доли свободного газа на первой ступени с типовым исполнением по насосу и сепаратору, а  $h^{LIM} \approx 100$  м – предельный уровень снижения жидкости над приемом насоса, принятый в расчётах.

Пренебрегая дискретной природой множества производимых типоразмеров центробежных насосов (ЦН), выбор пары  $\langle q^0, h^0 \rangle$  – номинальная производительность [м<sup>3</sup>/сут] и напор [м], в условиях упрощённой барометрической модели подъёмника и притока [10]

$$\begin{cases} q = \frac{h^0 \omega_N^2 \lambda_0(i) - H_R + (p(1) - p_L) / \gamma}{\omega_N \frac{h^0}{q} \lambda_1(i) + r_U + r_N + r_K}, \\ q = w_R \frac{p(1)(p_R - p(1))}{p(1) + \mu_R(1)(p_{GO} - p(1))_+}, \end{cases}$$

осуществляется по выражениям:

$$\begin{aligned} q^0(\omega_N) &= \frac{q}{\omega_N}, \quad h^0(\omega_N) = \frac{1}{\omega_N^2} h^0(1), \\ h^0(1) &= r_1 q + H_R - \frac{1}{\gamma} (p(1) - p_L), \end{aligned}$$

когда при  $\omega_N \in [\omega_{\eta L}, \omega_{\eta R}]$  обеспечивается максимальный КПД насоса  $\eta_N$

$$\begin{cases} \eta_N(\omega_N) = \eta_N^0 / (1 + \Delta \eta_N(\omega_N)), \\ \Delta \eta_N(\omega_N) = \alpha_{\eta L} (\omega_{\eta L} - \omega_N)_+ + \alpha_{\eta R} (\omega_N - \omega_{\eta R})_+. \end{cases}$$

Здесь  $\omega_N = (1-s)\omega$  – чуть сниженная вследствие скольжения  $S$  частота вращения вала двигателя  $j$ -го типоразмера под нагрузкой насоса с производительностью  $q$ , а  $\alpha_{\eta L}$ ,  $\alpha_{\eta R}$  – настройки, отражающие интенсивность снижения КПД ЦН от номинала  $\eta_N^0$  за границами указанной зоны «нечувствительности» (в интервале от  $\omega_{\eta L}$  до  $\omega_{\eta R}$ ).

В обновлённых выражениях факторной модели ресурса (5) и критерия (7) приняты следующие обозначения [10]:

- $\gamma_0$  – удельный вес воды и  $\gamma$  – удельный вес восходящего потока газожидкостной смеси средний по стволу подъёмника [МПа/м];
- факторная функция ускоренного механического износа ЭЦН на режиме  $\langle q(l), \omega(l) \rangle$  при повышенных скоростях и нагрузках

$$E_P(\mathbf{x}, l) = \left( \frac{P_2(\mathbf{x}, l)}{P_2^0(j)} - 1 \right)_+ + \left( \frac{N_1(\mathbf{x}, l)}{N_1^0(\mathbf{x})} - 1 \right)_+$$

с реальной мощностной нагрузкой на валу ПЭД  $P_2(\mathbf{x}, l) = N_2(\mathbf{x}, l)$  и их номиналами  $P_2^0(j)$ ,  $N_1^0(\mathbf{x})$  по выбранным типоразмерам;

- факторная функция ускоренного старения изоляции ПЭД из-за перегрева на режиме  $\langle q(l), \omega(l) \rangle$

$$E_\theta(\mathbf{x}, l) = \left( \frac{\theta_P(\mathbf{x}, l)}{\theta_{P+}} - \delta\theta_1 \right)_+ + \alpha_\theta \left( \frac{\theta_P(\mathbf{x}, l)}{\theta_{P+}} - \delta\theta_2 \right)_+,$$

где  $\delta\theta_1$ ,  $\delta\theta_2$ ,  $\theta_{P+}$ ,  $\alpha_\theta$  – настроечные параметры, а  $\theta_P(\mathbf{x}, l)$  – средняя температура нагрева силового блока и плоского кабеля;

- факторная функция риска пробоя изоляции на режиме  $\langle q(l), \omega(l) \rangle$  от перенапряжения частотно управляемого ПЭД с линейным регулятором:  $U_P(j, l) = \omega(l) U_P^0(j)$  [В]



$$E_U(j, l) = (1 + \alpha_{U0}(j - j_U)_+) \times ((\omega(l) - 1)_+ + \alpha_{U1}(\omega(l) - \omega_U)_+),$$

где  $j_U, \omega_U, \alpha_{U0}, \alpha_{U1}$  – настраиваемые коэффициенты, а  $U_P^0(j)$  – номинальное для  $j$ -го типоразмера напряжение питания;

- фактор ускоренного износа силового блока, работающего с частотой  $\omega_N(l)$ , и изоляции кабеля от полученных упруго-пластичных изгибов и трения при заглублении ЭЦН в искривлённый ствол скважины

$$E_H(x, l) = \omega_N(l) \sum_m \alpha_{Hm+} \left( \frac{H_N}{H_R} - \delta H_m \right)_+,$$

где  $\alpha H_m, \delta H_m, H_R$  – настраиваемые параметры, отражающие меры приращения угла кривизны ствола скважины, с соответствующими относительными отметками глубин;

- суточная прибыль режима  $\langle q(l), \omega(l) \rangle$ , согласно (3), оценивается по выражению

$$\Delta J(x, l) = c_1(1 - \beta)q(l) - c_2q(l) - c_3P_1(j, \omega(l) | q(l)). \quad (11)$$

Температурный режим зоны теплообмена ЭЦН, включая температуру входного  $\theta(2|x, l)$ , омывающего  $\theta(3|x, l)$  потоков и нагрева силового блока  $\theta_p(x, l)$ , будем оценивать системой уравнений чуть отличной от указанной в [10]:

$$\begin{aligned} (1 + \alpha_1 q) \theta(2) &= \theta_H(3) + \alpha_1 q \cdot \theta_R, \\ \left(1 + \alpha_3 \frac{q}{P_1^0}\right) \theta(3) &= \theta_H(3) + \alpha_3 \frac{q}{P_1^0} \theta(2) + \alpha_4 \frac{\delta P_1}{P_1^0}, \\ \theta_p &= \theta(3) + \frac{\alpha_5}{1 - \alpha_{51} \beta_G(3)} \frac{\delta P_1}{P_1^0}, \end{aligned}$$

Таблица 1. Параметрические настройки термобарической модели

Table 1. Parameters of the thermobaric model

Параметры модели скважины/Well model parameters										
Параметр/Parameter	$H_R$	$p_R$	$p_L$	$w_R$	$\beta$	$G$	$\theta_R$	$\theta_H$	$\alpha_3$	
Значение/Value	3000	26	1,5	7,246	0,3	200	95	63,3	3,33	
Ед. измерения/Units	м/м	МПа/МПа	МПа/МПа	м <sup>3</sup> /(МПа·сут) м <sup>3</sup> /(MPa·day)	ед. units	м <sup>3</sup> /м <sup>3</sup> m <sup>3</sup> /m <sup>3</sup>	°C	°C	ед. units	
Настройки параметров критерия и интенсивностей влияния факторов Target criteria parameters and factors intensity settings										
Параметр/Parameter	$c_1$	$c_2$	$c_3$	$c_4$	$c_{50}$	$c_{51}$	$a_1$	$a_2$	$a_3$	$a_4$
Значение/Value	0,0053	0,00011	0,00104	$8,4 \cdot 10^{-8}$	3	0,004	1,11	0,8	0,1	1,2
Ед. измерения/Units	ед./units									
Настройки параметров моделей факторов/Parameters of factor models										
Параметр/Parameter	$\delta\theta_1$	$\delta\theta_2$	$\alpha_\theta$	$\alpha_{U0}$	$\alpha_{U1}$	$\omega_U$	$j_U$			
Значение/Value	80	100	0,75	0,33	1,75	1,1	3			
Параметры ствола скважины (фактор кривизны сегментов)/Wellbore parameters (segment curvature factor)										
Параметр/Parameter	$\alpha_{H1}$	$\delta H_1$	$\alpha_{H2}$	$\delta H_2$	$\alpha_{H3}$	$\delta H_3$				
Значение/Value	0,5	500	0,8	1200	1	1800				
Ед. измерения/Units	ед./units									

Результаты оптимального синтеза для диаграмм возмущённых режимов эксплуатации (рис. 1), дополненные вариантом настроек по потенциалу производительности, сведены в табл. 2.

Сопоставление прибылей свидетельствует (рис. 2, график 4), что при прочих равных условиях настройки по потенциалу производительности  $x(0)$ , ориентиро-

ванной:  $\alpha_1 = \alpha_{10}/(H_R - H_N)$ ,  $\alpha_3, \alpha_4, \alpha_{51}$  – настраиваемые теплофизические параметры;  $\theta_R \approx \alpha_{H1} H_R$ ,  $\theta_H \approx \alpha_{H1} H_N$  – температуры [°C] по геотермалу на глубине пласта  $H_R$  и подвески  $H_N$ ;  $P_1^0$  – номинальная мощность потребления;  $\beta_G(3)$  – доля свободного газа в потоке на уровне подвески.

Энергетические потери, определяющие нагрев ЭЦН, оцениваются выражением

$$\delta P_1(\omega, s) = P_1(\omega, s) - \gamma q \cdot h_N(\omega_N, q),$$

где скольжение  $s$  есть результат баланса мощностей на валу ЦН–ПЭД

$$s = \arg \left\{ \begin{aligned} &P_2(\omega, s) = \gamma \frac{q^0 h^0}{\eta_N^0} (1 + \Delta \eta_N(\omega_N)) \times \\ &\times \omega_N^2 \left( \omega_N \lambda_2(i) + \lambda_3(i) \frac{q}{q^0} \right) \end{aligned} \right\}.$$

Более полное описание задействованных в анализе параметров и переменных состояний скважинной системы приводится в [9, 10].

### Результаты вычислительного анализа

Основные параметрические настройки термобарической модели тестируемой скважины, типовые для объектов среднего Приобья, ценовые настройки критерия и параметры чувствительности модели ресурса сведены в табл. 1.

Взаимосвязь и изменчивость главных компонент режимных состояний, воспроизводимых термобарической моделью с параметрами обустройства  $x(0)$ , приближенными из области допустимых значений (10) к состоянию потенциала производительности скважины [15], при вариации частоты в диапазоне  $\omega \in [0,8; 1,1]$  иллюстрируется графиками на рис. 2 (графики 1–3).

ванному на интенсификацию отборов, доставляют меньшую прибыль на полном жизненном цикле (ПЖЦ) работы ЭЦН ( $\delta J_0(1|\omega) = 0,176$ ), чем прибыль оптимального моно-решения  $\delta J_0(1|\omega) = 0,1939$ ). Упущенная выгода потенциального решения  $x(0)$  подтверждается при реализации любых (рис. 1) возмущённых режимов, о чём свидетельствует табл. 3 (первая строка).

**Таблица 2.** Настройки и состояния по потенциалу производительности и результаты многорежимных оптимальных решений

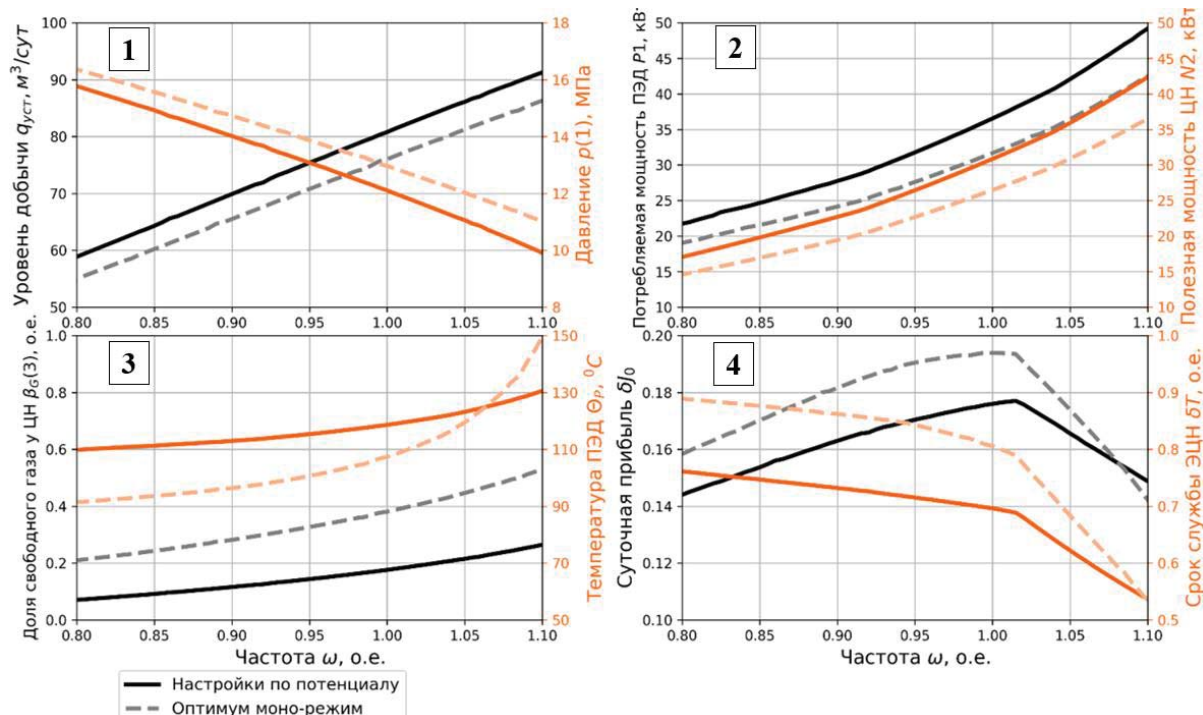
**Table 2.** Results of productivity potential and multimode optimal solutions

Настройки и состояния Settings and states	Настройки по потенциалу Potential mode settings	Моно Mono	Симметричный Symmetric	Квотирование Quotas	Компенсация Compensation
$\delta T$	0,696	0,806	0,827	0,811	0,808
$\delta l_0$	0,176	0,193	0,183	0,184	0,179
$q$	80,8	76	70	80	64
$\omega$	1	1	0,89	1	0,84
$H_N$	2700	2025	2000	2050	2100
$P_2^0$	8	8	8	8	8
$q^0$	80	77,15	79,94	80,11	77,4
$h^0$	2300	2040	2352,3	2106	2400

**Таблица 3.** Проценты упущенных прибылей на ПЖЦ ЭЦН при использовании параметров обустройства с названием строки при реализации режима столбца.

**Table 3.** Percentage of lost profits on the full run-life of the ESP

Режимы/Modes	Моно Mono	Симметричный Symmetric	Квоти- рование Quotas	Компенсация Compensation
Настройки по потенциалу Potential mode settings	-9,2	-10,7	-10,7	-23,4
Моно/Mono	0	-9,7	-0,9	-28,5
Симметричный Symmetric	-2,9	0	-5,4	-11,1
Квотирование Quotas	-0,2	-10,9	0	-31,1
Компенсация Compensation	-9,9	-5,2	-12,7	0



**Рис. 2.** Графики частотной изменчивости режимных состояний тестируемой скважины с параметрическими настройками по потенциалу производительности и настройками оптимального моно-режима (табл. 2)

**Fig. 2.** Charts of frequency variability of the operating conditions of the tested well with productivity potential-mode settings and optimal mono mode settings (Table 2)

Например, выбирая оптимальные настройки моно-режима (столбец «Моно» в табл. 2) и реализуя программу «Компенсация» (рис. 1, четвертый режим) на данных настройках, получаем снижение прибыли по заявленному критерию на 28,5 % от оптимального уровня моно-режима.

### Выводы

В принятых предположениях полученные результаты свидетельствуют о следующем:

1. Оптимальные ресурсно-энергетические решения по технологическому режиму и параметрам обустройства скважин ЭЦН с разной структурой априорно заданных программ частотных регули-

ровок (рис. 1) существуют и для одной и той же скважины неодинаковы.

2. Сопоставление достижимых прибылей разных режимных диаграмм (табл. 2) отражает потенциалы эффективности запланированных регламентов частотного управления эксплуатации скважин и не несут смысла экономических предпочтений выбора.
3. Обращает на себя внимание следующий факт. Структуры оптимальных настроек для режимов «симметричный» и «компенсация недоборов» с резервированием роста потенциала производительности (рис. 1) реализуются завышенным выбором типоразмера насоса, например,  $q^0=77,4$ , от-

- носителем оптимального (базового) технологического режима  $q=64$ . Работа на базовом режиме осуществляется на пониженной частоте  $\omega=0,84$ , а переход на предельные потенциалы производительности реализуется посредством перевода ЭЦН в номинально частотное состояние:  $\omega \rightarrow 1$ . Такой результат свидетельствует, что относительное снижение динамики износа на пониженных частотах экономически более оправдано, чем сопутствующий рост удельных энергетических затрат на единицу объёма добычи за счёт снижения КПД ЦН. Однако структура оптимального решения может поменяться, если относительная стоимость энергопотребления для другого предприятия окажется выше, чем в рассмотренном варианте цен критерия прибыли (11) (табл. 1).
4. Состоятельность и различимость оптимальных решений с разными программами режимных возмущений показательно иллюстрируется табл. 3, устанавливающей проценты упущенной прибыли, если на оптимальной конструкции  $x^*(i)$  режима  $i$  по факту реализуется программа другого  $j$ -го типа. Немалые объёмы возможных потерь при нарушении заявленных регулировок указывают, что вопросы предиктивного управления [16] режимами эксплуатации скважин и контроля их исполнения экономически важны и требуют отдельного анализа.
  5. В отличие от ранее опубликованных схем оптимизации режима и параметров обустройства скважин ЭЦН, выделение критерия приведённой суточной прибыли полного жизненного цикла эксплуатации силовой установки позволяет получить результаты оптимального синтеза, не привязанные к потенциалу наработки  $T^0$ . Это важно, так как изделия разных производителей, типов исполнений и типоразмеров имеют разные плохо предсказуемые потенциалы наработки  $T^0$ , что в условиях (9) не переносится на неопределённость результатов синтеза  $x^*(i)$ .
  6. Современные методики определения режима и параметров обустройства скважин ЭЦН на основе нейросетевых алгоритмов, обученных по статистике «лучших практик» ведущих нефтяных компаний, авторитетны и привлекательны [17, 18]. Однако доступность и широкое обсуждение примеров и готовых решений упрощают освоение и применение инноваций, не требуя от проектантов и пользователей понимания физики реализуемых новейших решений и технологий управления [19, 20]. «Негласное соглашение» о лучшем решении, доставляемом «искусственным интеллектом», по сути, подменяет проблемы совершенствования технологий задачами улучшения организационных и информационных механизмов управления проектно-производственными структурами. Обобщение «лучших практик» никак не отвечает на фундаментальные вопросы о сути и целях совершенствования регламентов нефтедобычи; утрачиваются навыки и знания о том, как были получены эти «лучшие практики» до того, как стали работать технологии нейронного выбора, и как их совершенствовать.
  7. Представленные результаты развивают классические подходы системно-аналитического конструирования [21, 22] на основе определения и формализации фундаментальных для отрасли целевых условий управления процессами нефтедобычи с использованием термобарических моделей, связывающих контрольно-регулирующие потенциалы управления с основными режимными состояниями работающей системы. Введение факторной модели динамики освоения эксплуатационного ресурса с контролем доли периода наработки относительно потенциала  $T^0$  расширяет круг разделений оптимальных решений, устанавливая пропорции между многорежимной производительностью, долговечностью и энергопотреблением с учётом текущей конъюнктуры рынка нефтепродуктов, индивидуальной экономики предприятия и характеристик скважин.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Improving the efficiency of oil production through the introduction of digitalization / V.N. Ivanovskiy, A.A. Sabirov, A.V. Degovtsov, I.N. Gerasimov, S.V. Merkushev, D.N. Krasnoborov // *Oil Industry*. – 2021. – № 7. – С. 118–124. URL: <https://doi.org/10.24887/0028-2448-2021-7-118-124> (дата обращения 01.02.2022)
2. A machine-learning methodology using domain-knowledge constraints for well-data integration and well-production prediction / J. Guevara, B. Zadrozny, A. Buoro, Lu Ligang, J. Tolle, J.W. Limbeck, H. Detlef // *SPE reservoir evaluation & engineering*. – 2019. – № 22. – Р. 1185–1200. URL: <https://doi.org/10.2118/195690-PA> (дата обращения 01.02.2022).
3. A machine learning approach to reduce the number of simulations for long-term well control optimization / D. Santos, A. Fioravanti, A. Santos, D. Schiozer // *SPE annual technical conference & exhibition – USA*, 2020. URL: <https://doi.org/10.2118/201379-MS> (дата обращения 01.02.2022).
4. Development and practical application of an analytical well failure model that improves well safety and production efficiency / S. Girling, J. McIntosh, P. Lumbye, H.-H. Nielsen, S. Patterson, P. Lutzen // *SPE Norway subsurface conference – Norway*, 2020. URL: <https://doi.org/10.2118/200744-MS> (дата обращения 01.02.2022).
5. Моисеев Н.Н. Математические задачи системного анализа. – М.: Наука, 1981. – 488 с.
6. Растринин Л.А. Современные принципы управления сложными объектами. – М.: Сов. радио, 1980. – 232 с.
7. Соловьев И.Г. Структурно-функциональный анализ системы оптимального управления для осложненного фонда скважин с ЭЦН // *Автоматизация, телемеханизация и связь в нефтяной промышленности*. – 2019. – № 8. – С. 14–19. URL: [https://doi.org/10.33285/0132-2222-2019-8\(553\)-14-19](https://doi.org/10.33285/0132-2222-2019-8(553)-14-19) (дата обращения 01.02.2022).
8. Сарачева Д.А., Вахитова Р.И., Уразаков К.Р. Зависимость теплового состояния электроцентробежного насоса от частоты вращения двигателя // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2019. – Т. 330. – № 12. – С. 103–110. URL: <https://doi.org/10.18799/24131830/2019/12/2406> (дата обращения 01.02.2022).
9. Соловьев И.Г., Константинов И.В., Говорков Д.А. Оптимизация параметров обустройства и режима эксплуатации скважины с ЭЦН в условиях осложнений // *Автоматизация, телемеханизация и связь в нефтяной промышленности*. – 2019. – № 9. – С. 28–35. URL: [https://doi.org/10.33285/0132-2222-2019-9\(554\)-28-35](https://doi.org/10.33285/0132-2222-2019-9(554)-28-35) (дата обращения 01.02.2022).
10. Соловьев И.Г., Константинов И.В., Говорков Д.А. Ресурсно-энергетическая эффективность обустройства скважин с ча-

- стотно-регулируемой подачей насоса. // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2021. – Т. 332. – № 6. – С. 60–72. URL: <https://doi.org/10.18799/24131830/2021/6/3236> (дата обращения 01.02.2022).
11. Use of advanced process control for automating conventional oil-field operations / K. Patel, A. Bakhurji, H. Salloum, H. Kim, M. Winamo, S. Mubarak // SPE production & operations. – 2019. – № 34. – P. 678–692. URL: <https://doi.org/10.2118/192393-PA> (дата обращения 01.02.2022).
  12. Case study toward digital oil field: how the ESP operation is changing by using automatic well models in PDO's ESP fields / A. Bimani, R. Kulkarni, C. Lee, V. Giuliani, M. Musallami, A. Awaid, N. Kamyani, N. Kumar, R. Gala // SPE Gulf Coast section electric submersible pumps symposium. – USA, 2019. <https://doi.org/10.2118/194414-MS>
  13. Электродвигатели погружные серии ПЭД ТУ 3381-001-93436026-2006. Электронный ресурс. URL: <https://www.pretomark.ru/userfiles/files/Katalog-GURT-PED-2012-v2.1.pdf> (дата обращения 01.02.2022).
  14. Станции управления (ПЭД) серии «ЭЛЕКТОН», сопутствующие приборы и оборудование. Электронный ресурс. URL: <https://www.elekton.ru/catalog.shtml> (дата обращения 01.02.2022).
  15. Методика подбора установок погружных центробежных насосов к нефтяным скважинам. Электронный ресурс. URL: <http://autotechnologist.com/menu-styles/metodiki> (дата обращения 01.02.2022).
  16. Пути повышения энергоэффективности установок электроцентробежных насосов добычи нефти с применением цифровых двойников / Д.С. Архипов, Б.М. Латыпов, Д.В. Сильнов, Р.М. Еникеев, А.В. Пензин, Л.В. Веллахметов // Нефтегазовое дело. – 2021. – № 1. – С. 42–50. URL: <https://doi.org/10.17122/ngdelo-2021-1-42-50> (дата обращения 01.02.2022).
  17. A comprehensive review of smart/intelligent oilfield technologies and applications in the oil and gas industry / C. Temizel, C. Canbaz, T. Palabiyik, D. Putra, A. Asena, R. Ranjith // SPE Middle east oil and gas show and conference – Kingdom of Bahrain, 2019. URL: <https://doi.org/10.2118/SPE-195095-MS> (дата обращения 01.02.2022).
  18. Successful standardization and sustainable well management system for ESP well surveillance & optimization across PDO / A. Al-Bimani, R. Kulkarni, H. Al-Muqbali et al. // SPE electric submersible pump symposium. – USA, 2017. URL: <https://doi.org/10.2118/185135-MS> (дата обращения 01.02.2022).
  19. Dowling M. Reality vs. expectations for ESP reliability analysis // SPE Gulf coast section electric submersible pumps symposium. – USA, 2019. URL: <https://doi.org/10.2118/194398-MS> (дата обращения 01.02.2022).
  20. Celemin A., Estupinan D.A., Ricardo N. Model comparison for ESP run-life prediction: classic statistics vs. machine learning // SPE annual technical conference and exhibition. – UAE, 2021. URL: <https://doi.org/10.2118/206028-MS> (дата обращения 01.02.2022).
  21. Летов А.М. Аналитическое конструирование регуляторов // Автоматика и телемеханика. – 1960. – Т. 22. – № 4. – С. 425–435.
  22. Месарович М., Такахара Я. Общая теория систем: математические основы / под ред. С.В. Емельянова. – М.: Мир, 1978. – 312 с.

Поступила 08.02.2022 г.

Прошла рецензирование 27.06.2022 г.

#### Информация об авторах

**Соловьев И.Г.**, кандидат технических наук, доцент, старший научный сотрудник, Федеральный исследовательский центр Тюменский научный центр СО РАН; доцент, Тюменский индустриальный университет.

**Константинов И.В.**, аспирант кафедры кибернетических систем Тюменского индустриального университета.

**Говорков Д.А.**, кандидат технических наук, доцент кафедры кибернетических систем Тюменского индустриального университета.



UDC 622.279:681.5

## MULTI-MODE OPTIMIZATION OF ELECTRIC SUBMERSIBLE PUMP SPEED FOR OIL WELLS

Ilya G. Solovyev<sup>1,2</sup>,  
solovyev@ikz.ruIvan V. Konstantinov<sup>1</sup>,  
ivkonstantinov95@yandex.ruDenis A. Govorkov<sup>1</sup>,  
dagovorkov@mail.ru<sup>1</sup> Tyumen Industrial University,  
38, Volodarsky street, Tyumen, 625000, Russia.<sup>2</sup> Tyumen Scientific Centre SB RAS,  
86, Malygin street, Tyumen, 625000, Russia.

**The relevance** of the research is associated with the means to increase the resource and energy efficiency of production modes of wells equipped with electric submersible pump with variable speed drive. Pump speed control is increasingly being used not only as a means of quickly responding to the complicating factors impact, but also as a tool for implementing enterprise policy in the circumstances of production quota or shortfalls compensation. The introduction of multi-mode control procedures modifies the criteria and methods for assigning base operating mode and well completion parameters.

**The main scope** of the article is to formalize the optimization problem for the multi-mode operation schedule and electric submersible pump well completion parameters according to the daily profit criterion for the full life cycle of the submersible power unit, which determines the balance between performance, durability and energy consumption.

**Object** of the research is the well equipped with electric submersible pump with variable speed drive.

**Methods:** material and heat balances, hydrostatics, linearized kinetics of pressure losses in lift segments, factor analysis of failure risk, multi-parameter optimization with assessment of the responses surface using parallel computing technologies.

**Results and summary.** The typification of operational mode diagrams and formation of the daily profit given criterion of electric submersible pump operation on its full run-life allowed formalizing the optimization problem of operating modes and well completion parameters using multi-mode operation programs. The results of computational analysis on the example of a thermobaric well model with parameters for the Middle Ob oil fields alongside with expert estimations for prices and sensitivity coefficients of the electric submersible pump resource model confirmed that, within the accepted constraints, optimal solutions deliver higher profits compared to the productivity potential schemes when implementing any multi-mode programs. The consistency of proposed optimization scheme is illustrated by the calculation of lost profits in situations when the selected control programs differ from the estimated optimal solutions for the same modes. The control of the factors of submersible unit accelerated wear and the use of the daily profit criterion makes it possible to calculate optimal solutions for any operating life-time potential without explicit information about its value.

**Key words:**

Models, goal, optimization, multi-mode operating, productivity potential, run-time potential, electric centrifugal pump, profit, resource and energy costs.

**REFERENCES**

- Ivanovskiy V.N., Sabirov A.A., Degovtsov A.V., Gerasimov I.N., Merkushev S.V., Krasnoborov D.N. Improving the efficiency of oil production through the introduction of digitalization. *Oil Industry*, 2021, no. 7, pp. 118–124. Available at: <https://doi.org/10.24887/0028-2448-2021-7-118-124> (accessed 1 February 2022).
- Guevara J., Zadrozny B., Buoro A., Lu Ligang, Tolle J., Limbeck J.W., Detlef H. A machine-learning methodology using domain-knowledge constraints for well-data integration and well-production prediction. *SPE reservoir evaluation & engineering*, 2019, no. 22, pp. 1185–1200. Available at: <https://doi.org/10.2118/195690-PA> (accessed 1 February 2022).
- Santos D., Fioravanti A., Santos A., Schiozer D. A machine learning approach to reduce the number of simulations for long-term well control optimization. *SPE Annual Technical Conference & Exhibition*. USA, 2020. Available at: <https://doi.org/10.2118/201379-MS> (accessed 1 February 2022).
- Girling S., McIntosh J., Lumbye P., Nielsen H.-H., Patterson S., Lutzen P. Development and practical application of an analytical well failure model that improves well safety and production efficiency. *SPE Norway Subsurface Conference*. Norway, 2020. Available at: <https://doi.org/10.2118/200744-MS> (accessed 1 February 2022).
- Moiseev N.N. *Matematicheskie zadachi sistemnogo analiza* [Mathematical problems of system analysis]. Moscow, Nauka Publ., 1981. 488 p.
- Rastrigin L.A. *Sovremennye printsipy upravleniya slozhnymi ob'yektami* [Modern principles of managing complex objects]. Moscow, Sov. Radio Publ., 1980. 232 p.
- Solovyev I.G. Structural-functional analysis of the optimal control system for complicated fund of wells with ESP. *Automation, telemechanization and communication in oil industry*, 2019, no. 8, pp. 14–19. In Rus. Available at: [https://doi.org/10.33285/0132-2222-2019-8\(553\)-14-19](https://doi.org/10.33285/0132-2222-2019-8(553)-14-19) (accessed 1 February 2022).
- Saracheva D.A., Vakhitova R.I., Urazakov K.R. Dependence of an electric-centrifugal pump heat state on engine rotation frequency. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2019, vol. 330, no. 12, pp. 103–110. In Rus. Available at: <https://doi.org/10.18799/24131830/2019/12/2406> (accessed 1 February 2022).
- Solovyev I.G., Konstantinov I.V., Govorkov D.A. Optimization of equipment parameters and a well operational mode with ESP under conditions of complications. *Automation, telemechanization and communication in oil industry*, 2019, no. 9 (554), pp. 28–35. In Rus. Available at: [doi.org/10.33285/0132-2222-2019-9\(554\)-28-35](https://doi.org/10.33285/0132-2222-2019-9(554)-28-35) (accessed 1 February 2022).
- Solovyev I.G., Konstantinov I.V., Govorkov D.A. Resource-energy efficiency of artificial lift selection for wells with frequen-

- cy controlled pump. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2021, vol. 332, no. 16, pp. 60–72. Available at: <https://doi.org/10.18799/24131830/2021/6/3236> (accessed 1 February 2022).
11. Patel K., Bakhurji A., Salloum H., Kim H., Winarno M., Mubarak S. Use of advanced process control for automating conventional oil-field operations. *SPE production & operations*, 2019, no. 34, pp. 678–692. Available at: <https://doi.org/10.2118/192393-PA> (accessed 1 February 2022).
  12. Bimani A., Kulkarni R., Lee C., Giuliani V., Musallami M., Awaid A., Kamyani N., Kumar N., Gala R. Case study toward digital oil field: how the ESP operation is changing by using automatic well models in PDO's ESP fields. *SPE Gulf Coast section electric submersible pumps symposium*. USA, 2019. Available at: <https://doi.org/10.2118/194414-MS> (accessed 1 February 2022).
  13. *Elektrovigateli pogruzhnye serii PED TU 3381-001-93436026-2006* [Submersible electric motors series PED TU 3381-001-93436026-2006]. Available at: <https://www.petromarkt.ru/userfls/files/Katalog-GURT-PED-2012-v2.1.pdf> (accessed 1 February 2022).
  14. *Stantsii upravleniya (PED) serii «ELEKTON», sopolstvuyushchie pribory i oborudovanie* [Control stations of the «ELEKTON» series, related instruments and equipment]. Available at: <https://www.elekton.ru/catalog.shtml> (accessed 1 February 2022).
  15. *Metodika podbora ustanovok pogruzhnykh tsentrobezhnykh nasosov k neftyanym skvazhinam* [Methodology for the selection of installations of submersible centrifugal pumps for oil wells]. Available at: <http://autotechnologist.com/menu-styles/metodiki> (accessed 1 February 2022).
  16. Arkhipov D.S., Latypov B.M., Silnov D.V., Enikeev R.M., Penzin A.V., Valiakhmetov L.V. Ways to improve the energy efficiency of electric submersible pump units for oil production using digital twins. *Petroleum engineering*, 2021, no. 1, pp. 42–50. In Rus. Available at: <https://doi.org/10.17122/ngdelo-2021-1-42-50> (accessed 1 February 2022).
  17. Temizel C., Canbaz C., Palabiyik T., Putra D., Asena A., Ranjith R., A comprehensive review of smart/intelligent oilfield technologies and applications in the oil and gas industry. *SPE Middle east oil and gas show and conference*. Kingdom of Bahrain, 2019. Available at: <https://doi.org/10.2118/SPE-195095-MS> (accessed 1 February 2022).
  18. Al-Bimani A., Kulkarni R., Al-Muqbali H. Successful standardization and sustainable well management system for ESP well surveillance & optimization across PDO. *SPE electric submersible pump symposium*. USA, 2017. Available at: <https://doi.org/10.2118/185135-MS> (accessed 1 February 2022).
  19. Dowling M. Reality vs. expectations for ESP reliability analysis. *SPE Gulf coast section electric submersible pumps symposium*. USA, 2019. Available at: <https://doi.org/10.2118/194398-MS> (accessed 1 February 2022).
  20. Celemin A., Estupinan D.A., Ricardo N. Model comparison for ESP run-life prediction: classic statistics vs. machine learning. *SPE annual technical conference and exhibition*. UAE, 2021. Available at: <https://doi.org/10.2118/206028-MS> (accessed 1 February 2022).
  21. Letov A.M. Analiticheskoe konstruirovaniye regulyatorov [Analytical design of regulators]. *Automation and telemechanics*, 1960, vol. 22, no. 4, pp. 425–435.
  22. Mesarovich M., Takakhara Y. *Obshchaya teoriya sistem: matematicheskie osnovy* [General theory of systems: mathematical foundations]. Moscow, Mir Publ., 1978. 312 p.

Received: 8 February 2022.

Reviewed: 27 June 2022.

#### Information about the authors

**Ilya G. Solovyev**, Cand. Sc., associate professor, Tyumen Industrial University; senior researcher, Tyumen Scientific Centre SB RAS.

**Ivan V. Konstantinov**, graduate student, Tyumen Industrial University.

**Denis A. Govorkov**, Cand. Sc., associate professor, Tyumen Industrial University.

УДК 622.276

## ЭМПИРИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ НЕСМЕШИВАЮЩЕГОСЯ ВОДОГАЗОВОГО ВОЗДЕЙСТВИЯ И ПРОГНОЗИРОВАНИЕ ТРЕТИЧНЫХ МЕТОДОВ УВЕЛИЧЕНИЯ НЕФТЕОТДАЧИ В УСЛОВИЯХ КАРБОНАТНЫХ КОЛЛЕКТОРОВ

Соромотин Андрей Витальевич<sup>1</sup>,  
mrsavip@gmail.com

Бартов Дмитрий Олегович<sup>1</sup>,  
bartov1999@mail.ru

Сюзёв Андрей Викторович<sup>1</sup>,  
aandrei.syuzev@girngm.ru

Илюшин Павел Юрьевич<sup>1</sup>,  
pavel.ilushin@girngm.ru

<sup>1</sup> Пермский национальный исследовательский политехнический университет, Россия, 614990, г. Пермь, Комсомольский пр., 29.

**Актуальность.** Потребление нефтепродуктов растет во всем мире, повышается доля трудноизвлекаемых запасов, поэтому традиционные технологии не позволяют извлечь остаточную нефть. Приоритетным направлением в нефтедобыче является развитие современных методов увеличения нефтеотдачи, которые смогут обеспечить высокий коэффициент нефтеотдачи на уже разрабатываемых, а также новых месторождениях. Такими методами являются водогазовое воздействие, полимерное заводнение и вытеснение нефти растворами поверхностно-активных веществ. Интерес к данным технологиям обусловлен повышением коэффициента нефтеизвлечения в условиях высоковязкой нефти и низкопроницаемых коллекторов.

**Цель:** оценка эффективности технологии с помощью экспериментальных исследований вытеснения нефти водой, вытеснения нефти азотом и чередующегося метода водогазового воздействия.

**Объект:** карбонатные модели пласта турнейского объекта Волго-Уральской нефтегазоносной провинции.

**Методы:** исследования коэффициента вытеснения нефти с использованием фильтрационной установки высокого давления УИК-5ВГ: вытеснение водой, вытеснение азотом и чередующийся метод водогазового воздействия с циклическостью 0,2 порового объема. В опытах корректно воспроизведены пластовые начальные нефтенасыщенности и получены сопоставимые со средними проектными значениями коэффициенты вытеснения нефти водой.

**Результаты.** Проведены экспериментальные исследования вытеснения нефти водой, вытеснения нефти азотом и чередующийся метод водогазового воздействия. Доказана перспективность технологии несмешивающегося чередующегося водогазового воздействия при маловязкой и вязкой нефти в условиях карбонатного коллектора. Выполнено прогнозирование и сравнение эффекта повышения нефтеотдачи при вытеснении растворами полимеров и поверхностно-активных веществ с эффективностью несмешивающегося чередующегося водогазового воздействия. Предложена методика прогнозирования эффективности несмешивающегося водогазового воздействия с помощью пересчетных коэффициентов.

### Ключевые слова:

коэффициент вытеснения, несмешивающееся водогазовое воздействие, методы увеличения нефтеотдачи, вытеснение азотом, полимерное заводнение

### Введение

Технология водогазового воздействия (Water-Alternating-Gas – WAG) предлагается как метод, который может сочетать повышенную эффективность микроскопического вытеснения цикла закачки газа с улучшенной эффективностью макроскопического охвата цикла закачки воды [1]. В работе [2] проанализировано 60 проектов WAG и обнаружено увеличение нефтеотдачи на 5–10 %. Авторами [3] изучено 59 практик WAG со средним приростом нефтеотдачи 10 %. Результаты, полученные в результате испытаний водогазового воздействия, показали увеличение коэффициента извлечения нефти на 7 % [4]. Проанализировано 14 проектов WAG в Северном море за 30-летний период и отмечено несмешиваемое водогазовое воздействие на месторождении Статфьорд с прогнозируемым приростом нефтеотдачи 7–13 % [5].

В работе [6] исследована точность ряда трехфазных гистерезисных моделей относительной проницаемости. Предложено использование трехфазного капиллярного давления, оцененного на основе данных двухфазного капиллярного давления, при моделировании несмешивающегося водогазового воздействия [7]. Опытные промышленные испытания демонстрируют успех смешивающейся и несмешивающейся технологии процессов водогазового воздействия [8]. Циклическая закачка воды и газа отличается улучшенной микроскопической эффективностью вытеснения газом, улучшенным контролем подвижности и эффективностью объемного вытеснения водой [9, 10]. Одним из способов этого является образование зоны трехфазного смешения, охватывающей большую часть коллектора по сравнению с непрерывной закачкой газа [11]. При этом понижается относительная проницаемость по газу, что делает его менее подвижным при

прохождении через нефтяную фазу, и как следствие снижает вероятность образования прорывов флюидов [12–15]. В условиях тяжелой нефти и карбонатного коллектора прирост дополнительной добычи нефти составил 4 % [16]. Результаты экспериментов несмешивающегося водогазового воздействия показывают, что коэффициент извлечения нефти может достигать 74 %. Моделирование заводнения ядра показывает, что закачка IWAG (несмешивающееся ВГВ) имеет потенциал до 7 % дополнительной нефтеотдачи, а также до 2 % благодаря эффекту гистерезиса от чередующейся водогазовой технологии [17]. Пилотная закачка N2-WAG была проведена на месторождении Маракайбо, содержащем легкую нефть, и было достигнуто увеличение нефтеотдачи на 4,4 % по сравнению с заводнением [18]. По результатам моделирования PAG (polymer-alternating-gas/полимер-газовое воздействие) увеличивает нефтеотдачу до 14,3 %, что на 7,0 % выше, чем при закачке WAG [19]. В однородных коллекторах с проницаемостью выше, чем 500 мД, процесс PAG дал на 7–15 % более высокую нефтеотдачу, чем закачка WAG [20].

### Методология

На образцах ядра были проведены фильтрационные исследования: вытеснение нефти водой, вытеснение нефти азотом и чередующийся метод водогазового воздействия с цикличностью 0,2 порового объема.

В опытах корректно воспроизведены пластовые начальные нефтенасыщенности и получены сопоставимые со средними проектными значениями коэффициенты вытеснения водой. Для исследований отобраны карбонаты турнейского яруса Волго-Уральской нефтегазоносной провинции.

В табл. 1, 2 отражены фильтрационно-емкостные параметры карбонатных керновых моделей месторождений А и Б.

На рис. 1 представлена схема проведения лабораторных исследований водогазового воздействия на ядре.

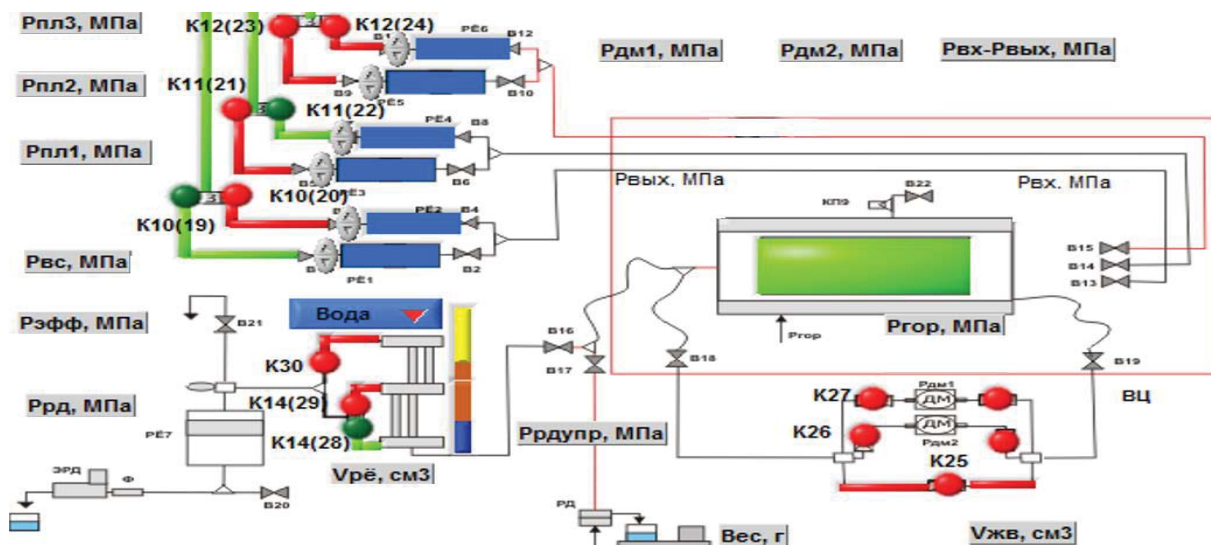


Рис. 1. Схема проведения лабораторных исследований водогазового воздействия на ядре  
 Fig. 1. Scheme of laboratory studies of water-gas exposure on the core

Проведение фильтрационных опытов осуществлялось с использованием фильтрационной установки высокого давления УИК-5ВГ. Определение коэффициента проницаемости по жидкости и фазовых проницаемостей основано на измерении перепада давления на образце ядра  $P_{DM}$  при известном расходе жидкости  $Q_{ж}$  (одной или двух фаз) или измерении расхода жидкости при заданном поддерживаемом перепада давления.

Таблица 1. Список образцов пород

Table 1. List of rock samples

Модель Core model	Глубина, м Depth, m	$K_{п}$ , % Porosity, %
А карбонат A carbonate	1750,09	14,02
	1751,76	13,70
	1745,45	13,89
	1760,08	13,59
Б карбонат B carbonate	1449,90	6,42
	1444,57	13,26
	1413,07	13,1
	1443,16	9,73

Таблица 2. Фильтрационно-емкостные параметры карбонатных моделей турнейского пласта А и Б

Table 2. Filtration and capacitance parameters of the carbonate models of the Tournaisian formation А, В

Модель Core model	$K_{пр}$ , мкм <sup>2</sup> Permeability, $\mu m^2$	Длина, см Length, cm	Диаметр, см Diameter, cm	Объем модели, см <sup>3</sup> Core volume, $cm^3$	Объем пор, см <sup>3</sup> Porosity volume, $cm^3$	$K_{п}$ , % Porosity, %
А карбонат A carbonate	48,3	12,15	2,97	84,13	11,76	13,55
	31,4					
	17,8					
	14,1					
Б карбонат B carbonate	10,68	12,03	3,02	86,13	9,11	10,61
	10,68					
	5,64					
	4,36					



Подача жидкости обеспечивается насосами высокого давления Н1 и Н2. Подача второй фазы жидкости или газа обеспечивается насосами высокого давления Н3 и Н4. Насосы высокого давления также выполняют функцию замера поданных объемов. Перепад давления на керне измеряется двумя дифференциальными манометрами ( $P_{\text{дм1}}$  и  $P_{\text{дм2}}$ ). Дифференциальный манометр  $P_{\text{дм2}}$  при повышении предельно допустимой нагрузки автоматически блокируется клапаном К26. Дифференциальный манометр  $P_{\text{дм1}}$  при повышении предельно допустимой нагрузки автоматически блокируется клапаном К27, и перепад давления на керне фиксируется по разности датчиков давления  $P_{\text{вх}}$  и  $P_{\text{вых}}$ . Расчетное значение падения давления на керне определяется при включённом дифманометре  $P_{\text{дм2}}$  как  $P_{\text{дм}} = P_{\text{дм1}}$ , при отключённом  $P_{\text{дм1}}$  как  $P_{\text{дм}} = P_{\text{вх}} - P_{\text{вых}}$ .

Измерение объема газа, лёгкой и тяжелой фаз жидкости на выходе из кернодержателя в пластовых условиях обеспечивается сепаратором-измерителем. Поддержание постоянного противодействия обеспечивается регулятором давления РД по показаниям датчика давления на выходе из керна  $P_{\text{рд}}$ . Для стабилизации работы РД применяется разделительная ёмкость, обеспечивающая разделения флюидов на выходе из кернодержателя КД и рабочей жидкости регулятора давления – дистиллированной воды. Расчёт коэффициента проницаемости  $K_{\text{прж}}$  ведётся программно в непрерывном режиме (при известной вязкости жидкости и размерах образца керна). Датчики давления  $P_{\text{пл1}}$ ,  $P_{\text{пл2}}$  и  $P_{\text{пл3}}$  обеспечивают измерение давления на входе в кернодержатель КД. Датчик давления  $P_{\text{рдупр}}$  обеспечивает измерение управляющего давления на регуляторе давления РД. Насосы, пневматические клапаны и датчики давления обеспечивают создание давления в кернодержателе КД (горного давления), измеряемого датчиками давления  $P_{\text{вс}}$  и  $P_{\text{гор}}$ .

В табл. 3 приведены свойства керновых моделей месторождений А и Б при фильтрации флюидов.

**Таблица 3.** Свойства керновых моделей месторождений А и Б

**Table 3.** Properties of core models of deposits A and B

Параметр Parameter	А карбонат A carbonate	Б карбонат B carbonate
Проницаемость при ОВ, мД Permeability at residual water saturation, mD	4,35	0,998
Нефтенасыщенность, д. Ед Oil saturation, unit fraction	0,853	0,774
Пластовое давление, МПа Reservoir pressure, MPa	13,8	14,2
Вязкость нефти, мПа·с Oil viscosity, mPa·s	9	47,6
Расход, мл/мин/Flow, ml/min	0,05	0,03
Пористость, д. Ед Porosity, unit fraction	13,55	10,61

На керновых моделях были проведены исследования по определению зависимости коэффициента вытеснения от поровых объемов закачиваемого агента. Керновая модель А представляет собой месторождение с карбонатным коллектором и маловязкой нефтью ( $\mu_n=10$  мПа·с). Керновая модель Б представляет собой месторождение с карбонатным коллектором и вязкой нефтью ( $\mu_n=50$  мПа·с).

#### Материалы

График зависимости коэффициента вытеснения от поровых объемов закачиваемого агента можно разделить на два участка – до перегиба и после. Первый участок описывается линейной зависимостью  $y=k \cdot x$ , второй – логарифмической:  $y=k_1 \cdot \ln(x)+c$ .

На рис. 2 представлен пример данной зависимости.



**Рис. 2.** Пример зависимости коэффициента вытеснения от поровых объемов закачиваемого агента

**Fig. 2.** Example of a dependency of the recovery factor on the pore volume of the injected agent

Зависимость коэффициента вытеснения от порового объема закачиваемого агента можно прогнозировать путем изменения коэффициентов  $k$ ,  $k_1$  и  $c$ . На керновых моделях были проведены опыты по закачке воды, азота и воды + азота. На рис. 3 представлена зависимость коэффициента вытеснения нефти от прокачиваемых по-

ровых объемов оторочек воды и азота для моделей А и Б, а также их сравнение с вытеснением водой.

На рис. 4 представлена зависимость коэффициента вытеснения нефти от прокачиваемых поровых объемов оторочек воды и азота для моделей А и Б, а также их сравнение с вытеснением водой.

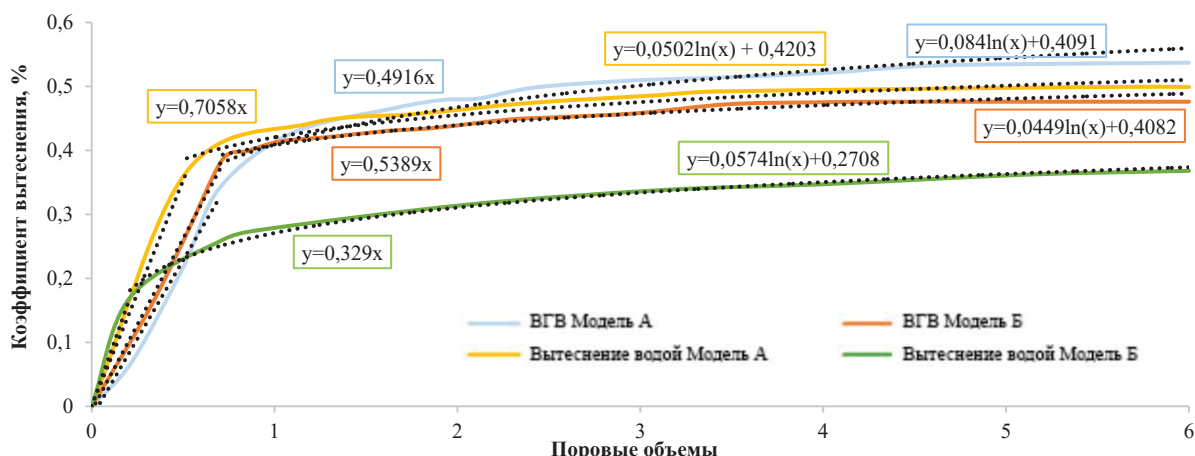


Рис. 3. Вытеснение нефти оторочками воды и азота

Fig. 3. Oil displacement by water-alternating-gas

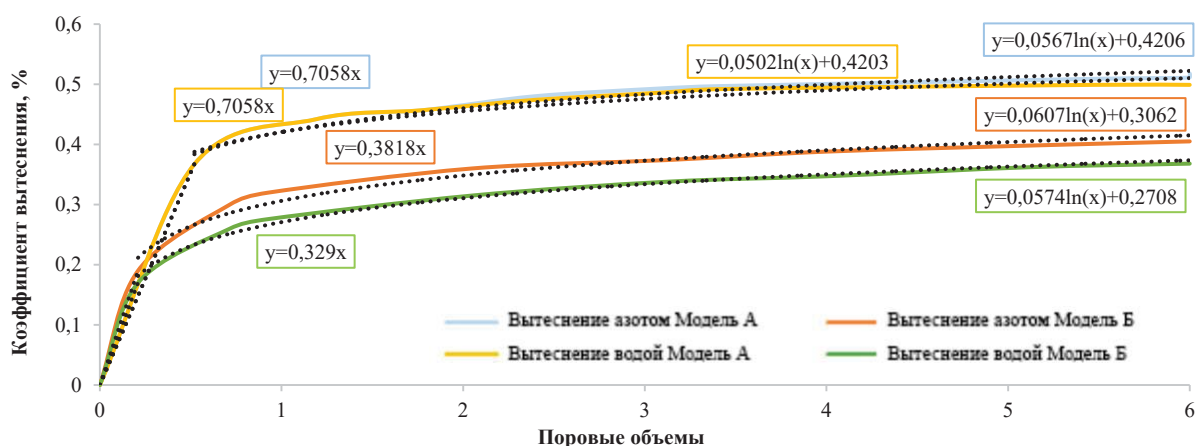


Рис. 4. Вытеснение нефти азотом

Fig. 4. Oil displacement by nitrogen

В качестве прогнозируемых технологий повышения нефтеотдачи пластов выбраны технологии: заводнение растворами полимеров и заводнение растворами неионогенных поверхностно-активных веществ на основе физико-химических свойств нефтей и фильтрационно-емкостных свойств объекта. Для моделей А и Б были построены предположительные зависимости вытеснения нефти растворами неионогенных поверхностно-активных веществ (НПАВ). Растворы НПАВ снижают поверхностное натяжение на границе вода–нефть, что способствует образованию водонефтяной эмульсии типа «нефть в воде». Оптимальной концентрацией НПАВ в воде считают 0,05–0,1 %.

На рис. 5 представлена зависимость коэффициента вытеснения нефти от прокачиваемых поровых объемов растворов НПАВ для моделей А и Б, а также их сравнение с вытеснением водой. При построении зависимости было принято, что растворы НПАВ повысят коэффициент вытеснения относительно воды на 4 %.

Для моделей А и Б были построены предположительные зависимости вытеснения нефти полимерными растворами на основе полиакриламида (ПАА). Данный вид заводнения заключается в том, что в воде растворяется ПАА, обладающий способностью даже при малых концентрациях (0,025–0,5 %) существенно повы-

шать вязкость воды, снижать ее подвижность и за счет этого повышать охват пластов заводнением. Основное и самое простое свойство полимеров заключается в загущении воды. Это приводит к такому же уменьшению соотношения вязкостей нефти и воды в пласте и сокращению условий прорыва воды, обусловленных различием вязкостей или неоднородностью пласта.

На рис. 7 представлена зависимость коэффициента вытеснения нефти от прокачиваемых поровых объемов растворов полиакриламида для моделей А и Б, а также их сравнение с вытеснением водой. При построении зависимости на основе статистических данных анализа применения технологии вытеснения растворами полимеров на объектах аналогах медианное значение прироста коэффициента вытеснения составило 10 % (рис. 6).

В табл. 4 представлены уравнения, описывающие зависимость коэффициента вытеснения от прокачиваемых поровых объемов для моделей А и Б.

Получив зависимость коэффициента вытеснения от прокачиваемых поровых объемов воды, можно сделать предположение о том, какой будет зависимость для других закачиваемых агентов. Достичь этого можно путем пересчета коэффициентов  $k$ ,  $k_1$  и  $c$ .

В табл. 5 представлены пересчетные коэффициенты для моделей А и Б.

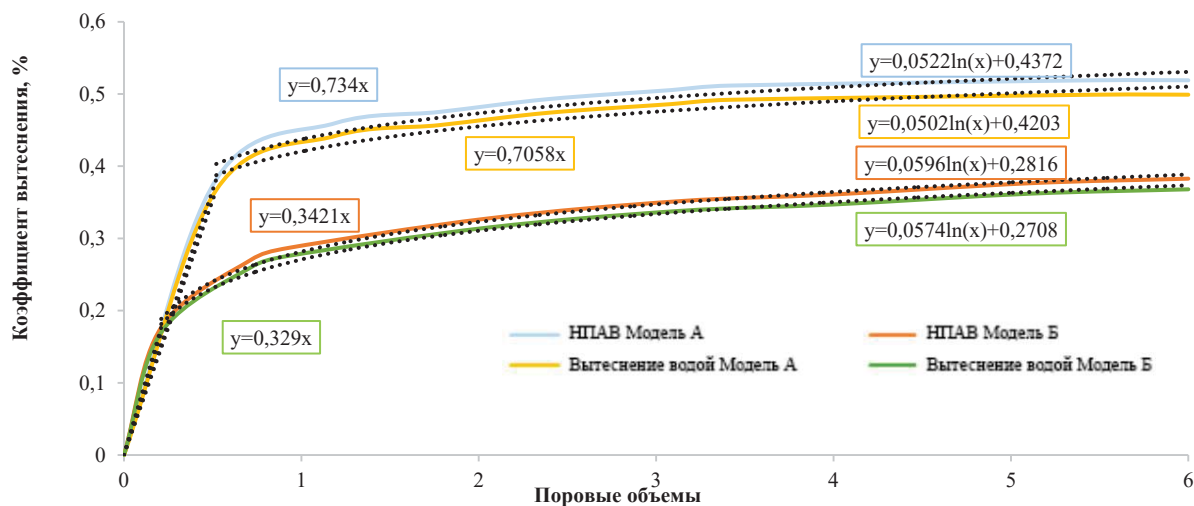


Рис. 5. Вытеснение нефти растворами НПАВ

Fig. 5. Oil displacement by surfactant solutions

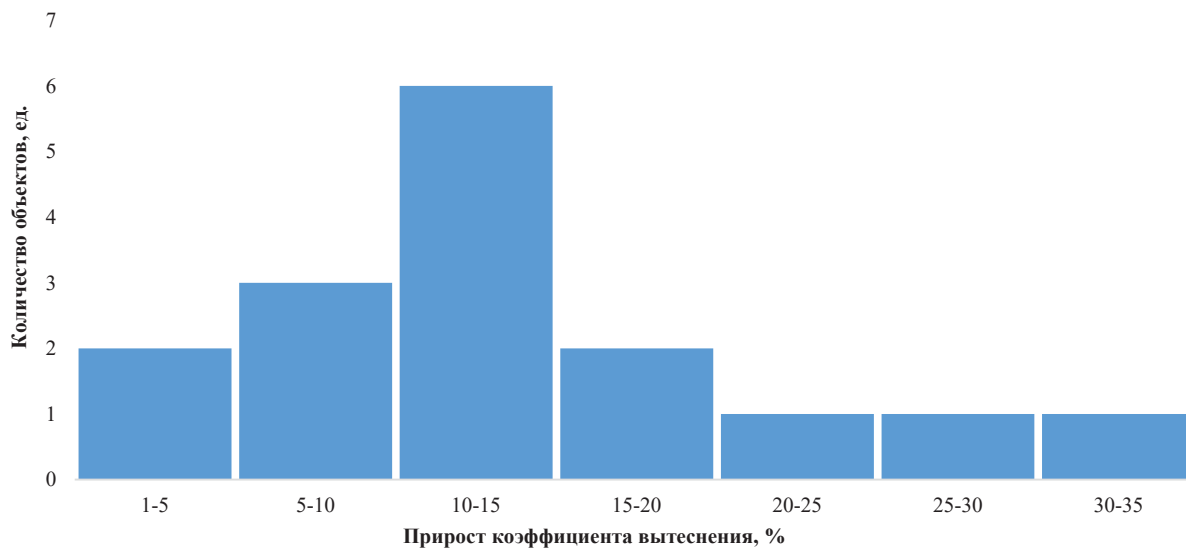


Рис. 6. Распределение прироста коэффициента вытеснения при заводнении растворами полимеров на объектах аналогах

Fig. 6. Distribution of the displacement coefficient increase during flooding with polymer solutions on analog objects

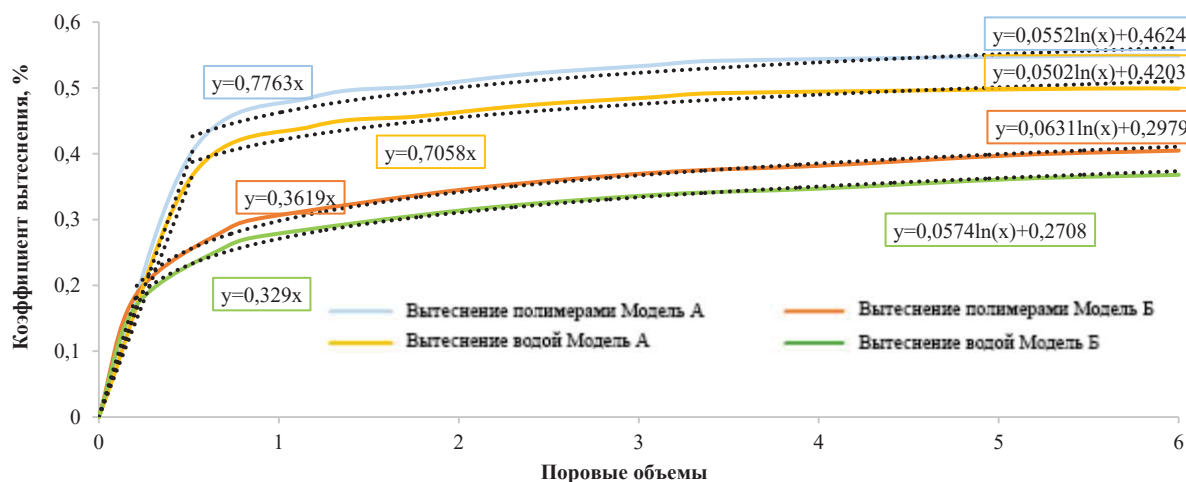


Рис. 7. Вытеснение нефти растворами полимеров

Fig. 7. Oil displacement by polymer solutions

**Таблица 4.** Уравнения ядерных моделей А и Б

**Table 4.** Equations of the core model A, B

Модель Core model	Закачиваемый агент Injected agent	Уравнение до перегиба Equation before inflection	Уравнение после перегиба Equation after inflection	Конечный Квйт, д. ед. Final displacement coefficient, unit fraction
А карбонат A carbonate	Вода/Water	$y=0,7058x$	$y=0,0502\ln(x)+0,4203$	0,499
	ВГВ/WAG	$y=0,4916x$	$y=0,084\ln(x)+0,4091$	0,537
	Азот/Nitrogen	$y=0,7058x$	$y=0,0567\ln(x)+0,4206$	0,518
	Растворы НПAB/Surfactants	$y=0,734x$	$y=0,0522\ln(x)+0,4372$	0,519
	Растворы полимеров Polymers	$y=0,7763x$	$y=0,0552\ln(x)+0,4624$	0,549
Б карбонат B carbonate	Вода/Water	$y=0,329x$	$y=0,0574\ln(x)+0,2708$	0,368
	ВГВ/WAG	$y=0,5389x$	$y=0,0449\ln(x)+0,4082$	0,476
	Азот/Nitrogen	$y=0,3818x$	$y=0,0607\ln(x)+0,3062$	0,405
	Растворы НПAB/Surfactants	$y=0,3421x$	$y=0,0596\ln(x)+0,2816$	0,383
	Растворы полимеров Polymers	$y=0,3619x$	$y=0,0631\ln(x)+0,2979$	0,405

**Таблица 5.** Пересчетные коэффициенты моделей А и Б

**Table 5.** Conversion coefficients of model A, B

Модель Core model	Закачиваемый агент Injected agent	Пересчетные коэффициенты Conversion coefficients		
		$k$	$k_1$	$c$
А карбонат A carbonate	ВГВ/WAG	0,697	1,673	0,973
	Азот/Nitrogen	1,000	1,129	1,001
	Растворы НПAB Surfactants	1,040	1,040	1,040
	Растворы полимеров Polymers	1,100	1,040	1,100
Б карбонат B carbonate	ВГВ/WAG	1,638	0,782	1,507
	Азот/Nitrogen	1,160	1,057	1,131
	Растворы НПAB Surfactants	1,040	1,038	1,040
	Растворы полимеров Polymers	1,100	1,099	1,100

Прогнозировать зависимость коэффициента вытеснения от прокачиваемых объемов агента можно путем умножения коэффициентов  $k$ ,  $k_1$  и  $c$  на соответствующие пересчетные коэффициенты.

#### Результаты и обсуждение

В табл. 6 представлена эффективность различных закачиваемых агентов в сравнении с водой.

Для ядерной карбонатной модели турнейского пласта месторождения А с маловязкой нефтью наибольшую эффективность показали закачиваемые растворы полимеров на основе ПАА, прирост в сравнении с вытеснением по воде составил 10,02 %.

Для ядерной карбонатной модели турнейского пласта месторождения Б с вязкой нефтью наибольшую эффективность показали закачиваемые оторочки воды и азота, прирост в сравнении с вытеснением по воде составил 29,35 %. Данный результат свидетельствует о высокой эффективности применения чередующегося водогазового воздействия на карбонатных залежах с вязкой нефтью.

Для оценки прогнозирования вытеснения при водогазовом воздействии выбрана ядерная модель турнейского объекта с проницаемостью 54 мД и вязкостью нефти 15 мПа·с. Пересчетные коэффициенты определены с помощью линейной интерполяции эмпирических пересчетных коэффициентов в зависимости от коэффициента подвижности. В табл. 7 пред-

ставлены пересчетные коэффициенты прогнозируемого объекта.

**Таблица 6.** Эффективность различных закачиваемых агентов в сравнении с водой

**Table 6.** Efficiency of various injected agents in comparison with water

Модель Core model	А карбонат A carbonate		Б карбонат B carbonate		
	Закачиваемый агент Injection agent	Конечный Квйт, д. ед. Final displacement coefficient, unit fraction	Эффективность, % Efficiency, %	Конечный Квйт, д. ед. Final displacement coefficient, unit fraction	Эффективность, % Efficiency, %
Вода/Water		0,499	0	0,368	0
ВГВ/WAG		0,537	7,62	0,476	29,35
Азот/Nitrogen		0,518	3,81	0,405	10,05
Растворы НПAB Surfactants	0,519		4,01	0,383	4,08
Растворы полимеров Polymers	0,549		10,02	0,405	10,05

**Таблица 7.** Пересчетные коэффициенты прогноза

**Table 7.** Recalculated forecast coefficients

Модель Core model	Вязкость нефти, мПа·с Oil viscosity, mPa·s	Проницаемость модели, мД Permeability, mD	Коэффициент подвижности, Па·с/Д Mobility coefficient, Pa·s/D	$k$	$k_1$	$c$
А карбонат A carbonate	9	27,9	3,1	0,697	1,673	0,973
Б карбонат B carbonate	47,6	7,84	0,16	1,638	0,782	1,507
$X_{(prognosis)}$ $X_{(predict)}$	15	54	3,6	0,535	1,826	0,881

На рис. 8 представлены характеристики вытеснения нефти водой, оторочками газа и воды и прогноз характеристики вытеснения нефти для карбонатной модели турнейского объекта на основе предлагаемой методики. Прогнозируемая эффективность составляет ~4 % (RMSE=0,015;  $R^2=0,99$ ).



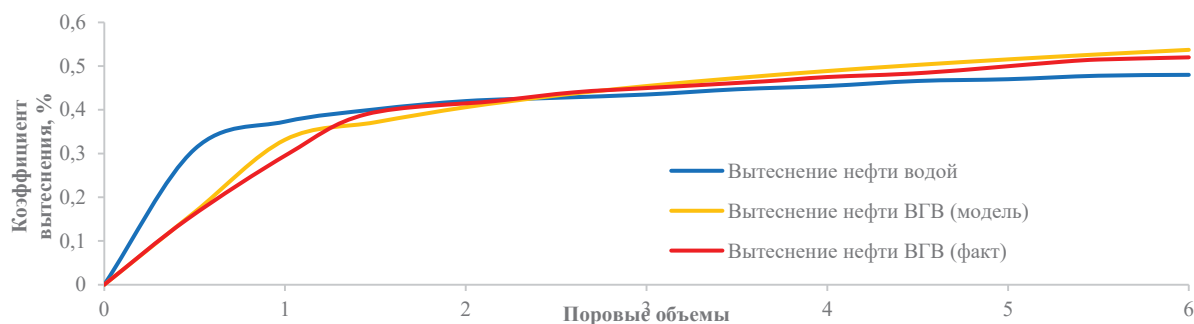


Рис 8. Прогнозирование характеристики вытеснения при несмешивающемся водогазовом воздействии

Fig 8. Prediction of displacement characteristics under immiscible water-gas exposure

#### Выводы

1. Проведены экспериментальные исследования вытеснения нефти водой, вытеснения нефти азотом и чередующийся метод водогазового воздействия. Доказана перспективность технологии несмешивающегося чередующегося водогазового воздействия при маловязкой и вязкой нефти в условиях карбонатного коллектора.
2. Выполнено прогнозирование и сравнение эффекта повышения нефтеотдачи при вытеснении раство-

- рами полимеров и поверхностно-активных веществ с эффективностью несмешивающегося чередующегося водогазового воздействия.
3. Предложена методика прогнозирования эффективности несмешивающегося водогазового воздействия с помощью пересчетных коэффициентов.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Правительства Пермского края в рамках научного проекта № С-26/861.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Surguchev L.M., Korbol R., Krakstad O.S. Optimum water alternate gas injection schemes for stratified reservoirs. *SPE Annual Technical Conference and Exhibition*. Washington, 1992, pp. 167–168.
2. Christensen J.R., Stenby E.H., Skauge A. Review of WAG field experience. *SPE Reservoir Evaluation & Engineering*, 2001, vol. 4 (02), pp. 97–106.
3. Skauge A., Stensen J.A. Review of WAG field experience. *1st International conference and exhibition, modern challenges in oil recovery*. Moscow, 2003. pp. 2–8.
4. Ganesan N., Nor Aidil B. Anua, Ashok S., Ramil B. Ibrahim. Water-Alternating-Gas (WAG) pilot implementation. *SPE Asia Pacific Oil and Gas Conference and Exhibition*. Perth, Australia, 2003, pp. 1–4.
5. Awan A.R., Teigland R., Kleppe J. A survey of North Sea enhanced-oil-recovery projects initiated during the years 1975 to 2005. *SPE Res Eval & Eng*, 2008, vol. 11 (3), pp. 497–512.
6. Spiteri E.J., Juanes R. Impact of relative permeability hysteresis on the numerical simulation of WAG injection. *J. Pet. Sci. Eng*, 2006, vol. 50 (2), pp. 115–139.
7. Skauge A., Dale E.I. Progress in immiscible WAG modeling. *Proceedings of the SPE 111435 presented at the SPE/EAGE Reservoir Characterization and Simulation Conference*. Abu Dhabi, UAE, 2007. pp. 1–5.
8. Koottungal L. Worldwide EOR survey. *Oil and Gas Journal*, 2012, vol. 110 (4), pp. 57–69.
9. Chen B., Reynolds A.C. Ensemble-based optimization of the water-alternating-gas-injection process. *Proceedings of the SPE-173217-PA*, 2016, vol. 21 (3), pp. 786–798.
10. Talabi O.A., Moreno J.E., Malhotra R.K. Practical upscaling of immiscible WAG hysteresis parameters from core to full field scale. *SPE Oil and Gas India Conference and Exhibition*. Mumbai, India, 2019. pp. 1–7.
11. Namani M., Souraki Y., Kleppe J. Scaled experimental and simulation study of segregation in water-above-gas injection. *Proceedings of the SPE-185183-PA*, 2017, vol. 20 (4), pp. 809–819.
12. Hoare G., Coll C. Effect of small/medium scale reservoir heterogeneity on the effectiveness of water, gas and water alternating gas WAG injection. *Proceedings of the SPE-190855-MS Europec featured at the 80th EAGE Conference and Exhibition*. Copenhagen, Denmark, 2018. pp. 1–14.
13. Pal M., Pedersen R.B., Gilani S.F. Challenges and learnings from operating the largest off-shore WAG in the giant Al-Shaheen field and ways to optimize future WAG developments. *Proceedings of the SPE-190343-MS EOR Conference at Oil and Gas West Asia*. Muscat, Oman, 2018. pp. 1–24.
14. Ahmed Elfeel M., Al-Dhahli A., Jiang Z. Effect of rock and wettability heterogeneity on the efficiency of WAG flooding in carbonate reservoirs. *Proceedings of the SPE-166054-MS Reservoir Characterization and Simulation Conference and Exhibition*. Abu Dhabi, UAE, 2013. pp. 1–15.
15. Kumar J., Agrawal P., Draoui E. A case study on miscible and immiscible gas-injection pilots in a middle east carbonate reservoir in an offshore environment. *Proceedings of the SPE-181758-PA Res Eval & Eng*, 2017, vol. 20 (1), pp. 19–29.
16. Holtz M.H. Immiscible Water Alternating Gas (IWAG) EOR: current state of the art. *Proceedings of the SPE Improved Oil Recovery Conference*. Oklahoma, 2016. pp. 1–16.
17. Khanifar A., Raub M.R.A., Tewari R.D., Zain Z.M., Sedaralit M.F. Designing of successful Immiscible Water Alternating Gas (IWAG) coreflood experiment. *International Petroleum Technology Conference*. Qatar, 2015. pp. 1–14.
18. Alvarez C., Manrique E., Alvarado V., Saman A., Surguchev L., Eilertsen T. WAG pilot at VLE field and IOR opportunities for mature fields at Maracaibo Lake. *SPE Asia Pacific Improved Oil Recovery Conference*. Malaysia, 2001. pp. 1–4.
19. Li W., Dong Z., Sun J., Schechter D.S. Polymer-alternating-gas simulation: a case study. *SPE EOR Conference at Oil and Gas West Asia*. Oman, 2014. pp. 3–15.
20. Li W., Schechter D.S. Using polymer alternating gas to maximize CO<sub>2</sub> flooding performance. *Proceedings of the SPE-169942-MS Energy Resources Conference, Port of Spain*. Trinidad and Tobago, 2014. pp. 2–6.

Поступила 17.06.2022 г.

Прошла рецензирование 25.07.2022 г.

#### Информация об авторах

**Соромотин А.В.**, аспирант Пермского национального исследовательского политехнического университета.

**Бартов Д.О.**, студент Пермского национального исследовательского политехнического университета.

**Сюзёв А.В.**, аспирант Пермского национального исследовательского политехнического университета.

**Илюшин П.Ю.**, кандидат технических наук, доцент кафедры нефтегазовых технологий Пермского национального исследовательского политехнического университета.

UDC 622.276

## EMPIRICAL STUDY OF IMMISCIBLE WATER-GAS EFFECTS AND PREDICTION OF TERTIARY METHODS FOR INCREASING OIL RECOVERY IN CARBONATE RESERVOIRS

**Andrey V. Soromotin**<sup>1</sup>,  
mrsavip@gmail.com

**Dmitriy O. Bartov**<sup>1</sup>,  
bartov1999@mail.ru

**Andrey V. Suzev**<sup>1</sup>,  
andrei.syuzev@girngm.ru

**Pavel Yu. Ilyushin**<sup>1</sup>,  
pavel.ilushin@girngm.ru

<sup>1</sup> Perm National Research Polytechnic University,  
29, Komsomolsky avenue, Perm, 614990, Russia

**The relevance.** *The consumption of petroleum products is growing all over the world, the share of hard-to-recover reserves is increasing, so traditional technologies do not allow the extraction of residual oil. The priority direction in oil production is the development of modern methods of increasing oil recovery, which will be able to provide a high oil recovery coefficient at already developed, as well as at new fields. Such methods are water-gas exposure, polymer flooding and oil displacement by solutions of surfactants. The interest in these technologies is due to increase in the oil recovery coefficient in conditions of high-viscosity oil and low-permeability reservoirs.*

**The main aim:** *evaluation of the effectiveness of the technology using experimental studies of oil displacement by water, oil displacement by nitrogen and alternating method of water-gas exposure.*

**Object:** *carbonate reservoir models of the Tournaisian object of the Volga-Ural oil and gas province.*

**Methods:** *studies of the oil displacement coefficient using a high-pressure filtration unit UIK-5VG: displacement by water, displacement by nitrogen and an alternating method of water-gas exposure with a cyclicity of 0,2 pore volume. In the experiments, the reservoir initial oil saturation was correctly reproduced and the coefficients of oil displacement by water comparable to the average design values were obtained.*

**Results.** *Experimental studies of oil displacement by water, oil displacement by nitrogen and the alternating method of water-gas exposure have been carried out. The prospects of the technology of immiscible alternating water-gas exposure with low-viscosity and viscous oil in the conditions of a carbonate reservoir are proved. The prediction and comparison of the effect of enhanced oil recovery during displacement by solutions of polymers and surfactants with the efficiency of immiscible alternating water-gas exposure is carried out. A method for predicting the effectiveness of immiscible water-gas exposure using conversion coefficients is proposed.*

**Key words:**

*displacement coefficient, immiscible water-gas effect, enhanced oil recovery, nitrogen flooding, polymer flooding*

*The reported study was partially supported by the Government of Perm Krai, research project no. C-26/861.*

**Information about the authors**

**Andrey V. Soromotin**, graduate student, Perm National Research Polytechnic University.

**Dmitriy O. Bartov**, student, Perm National Research Polytechnic University.

**Andrey V. Suzev**, graduate student, Perm National Research Polytechnic University.

**Pavel Yu. Ilyushin**, Cand. Sc., associate professor, Perm National Research Polytechnic University.

*Received: 17 June 2022.*

*Reviewed: 25 July 2022.*

Компьютерная верстка *О.Ю. Аршинова*  
Корректура и перевод на английский язык *С.В. Жаркова*  
Дизайн обложки *Т.В. Буланова*

Фотографии на обложке взяты из личного архива  
*Валерия Касаткина*

Руководство для авторов и образец оформления статьи: [izvestiya.tpu.ru](http://izvestiya.tpu.ru)

Подписано к печати 28.10.2022. Дата выхода журнала: 30.10.2022.  
Формат 60x84/8. Бумага «Снегурочка».  
Печать XEROX. Усл. печ. л. 25,59. Уч.-изд. л. 23,14.  
Заказ 242-22. Тираж 500 экз. Цена свободная.



**Издательство**

ТОМСКИЙ ПОЛИТЕХНИЧЕСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ

Адрес учредителя, редакции, издателя, типографии:  
634050, г. Томск, пр. Ленина, 30, каб. 139.



TOMSK POLYTECHNIC UNIVERSITY



ТОМСКИЙ ПОЛИТЕХНИЧЕСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ