УДК 532.13+622.276.66+620.179

ВОЗДЕЙСТВИЕ УЛЬТРАЗВУКА НА ВЯЗКОСТЬ ТЯЖЕЛОЙ НЕФТИ

© 2020 r. Shiyi Lv¹, Sen Peng², Rongjun Zhang¹, Zhen Guo¹, Weichao Du^{1, 3}, Jie Zhang^{1, 3}, Gang Chen^{1, 3}, *

¹College of Chemistry and Chemical Engineering, Shaanxi Province Key Laboratory of Environmental Pollution Control and Reservoir Protection Technology of Oilfields, Xi'an Shiyou University, Xi'an, 710065 China

²Henan Petroleum Exploration Bureau Co., Ltd., Nanyang, 473000 China

³State Key Laboratory of Petroleum Pollution Control, CNPC Research Institute of Safety and Environmental Technology, Beijing, 102206 China

**E-mail: gangchen@xsyu.edu.cn* Поступила в редакцию 10.01.2020 г. После доработки 16.04.2020 г. Принята к публикации 12.05.2020 г.

Определено влияние ультразвуковой волны на вязкость и температуру застывания тяжелой нефти. Установлены зависимости продолжительности, температуры и интенсивности воздействия на вязкость. В результате показана высокая эффективность ультразвуковой обработки с целью уменьшения вязкости тяжелой нефти с месторождения Цзинхэ. При этом максимальное уменьшение вязкости составило 87.2%. Кроме того, при оптимальных условиях обработки температура застывания нефти снижается на 4.8°C. На основании анализа структуры кристаллов парафинов до и после обработки, а также того факта, что вязкость нефти частично восстанавливается после ультразвукового воздействия, сформулирован механизм уменьшения вязкости и температуры застывания нефти.

Ключевые слова: тяжелая нефть, ультразвуковая волна, вязкость, температура застывания, механизм **DOI:** 10.31857/S0028242120050196

С сокращением извлекаемых запасов традиционной нефти все большее значение приобретает поиск и разработка запасов тяжелой нефти. В связи с этим при добыче и транспортировке нефти с такой высокой вязкостью возникают трудности, обусловленные их аномальными реологическими свойствами (Бингамовские жидкости) [1]. Крупные месторождения тяжелой нефти широко распространены по всей территории Китая. Однако высокая вязкость и низкая текучесть тяжелой нефти значительно влияют на затраты и прибыль от эксплуатации месторождения, а также создают значительные трудности при ее добыче и транспортировке [2]. В настоящее время все методы уменьшения вязкости тяжелой нефти подразделяются на две категории: химические и физические методы, при этом ультразвуковую обработку можно отнести ко второй группе методов.

В некоторых развитых странах ультразвук применялся при промышленной добыче нефти еще в 1960-х годах. Тогда и была показана возможность достижения желаемых результатов. Однако внедрение технологии ультразвуковой добычи нефти в Китае началось позднее, и финансирование исследований в этой области велось только на протяжении последнего десятилетия. Применение ультразвуковой обработки для уменьшения вязкости тяжелой нефти также является новой технологией, которая быстро развивается в последние годы [3]. Многие ученые исследовали процесс ультразвуковой обработки тяжелой нефти [4, 5]. В результате было установлено, что ультразвук оказывает определенное влияние на тяжелую нефть: исходная вязкость снижается на 20-30%. Столкнувшись с малым количеством данных по воздействию ультразвука на сверхтяжелую нефть, а также недостаточным пониманием механизма уменьшения вязкости, мы провели данное исследование.

МЕТОДИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

Материалы. Для исследования использовали образец тяжелой нефти JH17-P11, не содержащий взвешенных частичек песка, полученный с месторождения Цзинхэ. Физические свойства образца приведены в табл. 1. Ультразвуковой генератор (OM-250SP, 150 W) приобретен в компании Shanghai Oumeng Industrial Co. Ltd.

Влияние ультразвука на вязкость и температуру застывания тяжелой нефти [6-8]. Вязкость тяжелой нефти определяли в соответствии с промышленным стандартом Китайской национальной нефтегазовой корпорации "Определение вязкости сы-

Температура застывания <i>T</i> , °С	р ²⁰ , г см ⁻³	Насыщенные углеводороды, %	Ароматические углеводороды <i>w</i> , %	Смолы w, %	Асфальтены w, %
24.0	0.92	39.75	28.55	22.65	8.15

Таблица 1. Характеристики тяжелой нефти

рой нефти – Равновесный метод с помощью ротационного вискозиметра" (SY/T0520-2008). До начала испытания тяжелую нефть в закрытой емкости нагревали на водяной бане до 70°С и выдерживали в течение 1 ч. Около 30 г тяжелой нефти поместили в мерный цилиндр, нагретый до 70°С в течение 10 мин. Вязкостно-температурные кривые образцов получены как до ультразвукового воздействия, так и после него. Для этого использована вязкость тяжелой нефти, измеренная при различных температурах с помощью ротационного вискозиметра. Температуру застывания определяли в соответствии с промышленным стандартом Китайской национальной нефтегазовой корпорации "Метод определения температуры застывания сырой нефти" (SY/T0541-2009).

Микроскопия. Насыщенные углеводороды выделяли методом колоночной хроматографии в соответствии с промышленным стандартом Китайской национальной нефтегазовой корпорации SY/T 5119. Кристаллы парафинов в насыщенных углеводородах тяжелой нефти до и после воздействия исследовали с помощью поляризационного микроскопа Olympus BH-2 [9].

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Исследование эффекта уменьшения вязкости

Влияние времени обработки на вязкость тяжелой нефти. Образцы тяжелой нефти JH17-P11 подвергали воздействию ультразвука в течение 0, 10, 20, 30 и 40 мин при 70%-ной мощности излучения и температуре 60°С. Вязкость измеряли в водяной бане с постоянной температурой при



Рис. 1. Зависимость вязкости тяжелой нефти от времени ультразвуковой обработки при 50°С.

50°С; результаты показаны на рис. 1. Легко заметить, что при увеличении времени воздействия вязкость тяжелой нефти линейно снижается и принимает постоянное значение после 30 мин, при этом вязкость на 56.3% меньше исходной. Именно поэтому во всех последующих экспериментах время ультразвуковой обработки составляло 30 мин.

Влияние температуры на вязкость тяжелой нефти. Влияние температуры ультразвуковой обработки в течение 30 мин на вязкость при 70%-ной мощности излучения исследовали в диапазоне 50~80°С. Вязкость тяжелой нефти JH17-P11 после обработки, измеренная в интервале температур от 40 до 80°C с шагом 5°C, показана на рис. 2. Температура оказывает значительное влияние на вязкость тяжелой нефти, что подтверждается приведенными зависимостями. Перед ультразвуковой обработкой вязкость слишком высока, чтобы ее можно было измерить при температуре ниже 50°С, в то время как после ультразвуковой обработки ее вязкость можно определить даже при 40°С. По мере увеличения температуры обработки, вязкость тяжелой нефти заметно снижается. Вязкость нефти при более высоких температурах незначительно изменяется после ультразвуковой обработки, особенно при температурах выше 60°С. Измеренная при 55°С вязкость образца, обработанного ультразвуком при 70°С, на 80.6% ниже вязкости необработанной нефти при той же температуре. Однако необходимо учитывать фактор испарения тяжелой нефти при высоких температурах, что также значительно влияет на вязкость. Под действием ультразвуковой волны данный эффект усиливается: при высоких температурах ультразвук интенсифицирует испарение тяжелой нефти в большей степени, чем при низких температурах на поверхности нефти появляются заметные глазу пузырьки.

Влияние мощности ультразвукового излучения на вязкость тяжелой нефти. Тяжелую нефть подвергали воздействию ультразвуковой волны различной мощности при температуре 70°С. Полученные вязкостно-температурные кривые приведены на рис. 3. Как видно из рисунка, по мере увеличения мощности вязкость тяжелой нефти постепенно снижается. При 50°С вязкость нефти, обработанной ультразвуком с 90%-ной мощностью, уменьшилась на 87.2%. Причина заключается в том, что при увеличении мощности ультразвука увеличивается и количество энергии, передава-

НЕФТЕХИМИЯ том 60 № 5 2020



Рис. 2. Зависимость вязкости нефти от температуры ультразвуковой обработки.



Рис. 3. Зависимость вязкости нефти от мощности ультразвуковой волны при температуре 70°С.

емой ультразвуком; длинноцепочечные молекулы тяжелой нефти в таких условиях расщепляются на короткоцепочечные углеводороды, соответственно растет концентрация легких углеводородов в нефти [10]. Помимо этого, разрушаются сложные структурные единицы, присутствующие в нефти. Чем выше мощность ультразвука, тем интенсивней распадаются эти агрегированные частицы, при этом высвобождаются легкие углеводороды, концентрация которых в общей массе нефти увеличивается. Именно поэтому вязкость тяжелой нефти постепенно снижается.

Вязкость тяжелой нефти после ультразвуковой обработки. Тяжелую нефть в данной части работы обрабатывали при оптимальных условиях, определенных выше, вязкость образцов измеряли ежедневно при 50°С. В ходе эксперимента зафиксировано незначительное повышение вязкости после обработки, как показано на рис. 4. В результате химического воздействия ультразвука макромолекулы тяжелой нефти расщепляются на маленькие молекулы, что является необратимым процессом. Это означает, что вязкость, уменьшенная

НЕФТЕХИМИЯ том 60 № 5 2020

по химическому механизму, не будет восстанавливаться после обработки. При физическом воздействии упаковка и межмолекулярные связи макромолекул разрушаются ультразвуковой волной, однако они могут восстанавливаться после обработки, благодаря чему вязкость впоследствии незначительно повышается. Но она все еще ниже вязкости исходной нефти, что можно объяснить изменением ее молекулярной структуры под воздействием ультразвуковой волны, которое приводит к необратимому уменьшению вязкости тяжелой нефти [1–3]. Обобщая вышесказанное, можно сказать, что ультразвуковая волна вызывает уменьшение вязкости в результате как химического, так и физического воздействия.

Влияние ультразвука на температуру застывания тяжелой нефти

В табл. 2 показано влияние мощности ультразвуковой волны на температуру застывания. Максимальное снижение температуры застывания, которое составляет 4.8°С, наблюдается для образца, обработанного при 70°С, и мощности



Рис. 4. Зависимость вязкости тяжелой нефти от времени ультразвуковой обработки.

ультразвуковой волны, равной 90%. Это происходит потому, что ультразвук может в некоторой степени разрушать слабые химические взаимодействия в молекулярном скелете макромолекул. В то же время, разрыв С-С-связей приводит к превращению макрокомпонентов в более мелкие алкановые и ароматические углеводороды, тем самым снижая содержание тяжелых фракций в нефти.

Структура кристаллов парафинов

Охлаждение нефти ниже температуры застывания приводит к выделению твердых парафинов из раствора с последующим ростом кристаллов, имеющих склонность к засорению трубопроводов и фильтров [11]. Насыщенные углеводороды из тяжелой нефти ЈН17-Р11 до и после обработки ультразвуком при описанных выше условиях выделили для микроскопического анализа с помощью колоночной хроматографии. Как по химическому, так и по физическому механизму уменьшения вязкости, ультразвуковая обработка может изменять размер кристаллов парафина или приводить к образованию более мелких кристаллов с большей удельной площадью поверхности из-за кавитации, механических колебаний и теплового эффекта. На рис. 5а изображены парафиновые кристаллы насыщенных углеводородов тяжелой

Таблица 2. Влияние ультразвука на температуру застывания тяжелой нефти

Мощность ультразвуковой волны, %	Понижение температуры застывания, Δ°С		
10	1.2		
30	2.4		
60	3.6		
70	4.3		
90	4.8		

нефти JH17-P11 без обработки. Упорядоченная структура кристаллов и их близкое расположение благоприятствует дальнейшей агрегации и формированию трехмерной сетки [12]. На рис. 5б представлено изображение парафиновых кристаллов насыщенных углеводородов тяжелой нефти JH17-P11 после обработки ультразвуком. Количество парафиновых кристаллов в данном образце меньше, чем в образце до обработки, а форма этих кристаллов нерегулярная. С точки зрения морфологии, ультразвуковая волна может изменять размер и форму кристаллов парафина, и, как следствие, подавлять образование крупных кристаллических решеток парафина [13].

Механизм распространения ультразвуковой волны. Распространение ультразвуковой волны в жидкой среде не только сопровождается кавитацией, но приводит к интенсификации механических колебаний молекул и разогреву среды. При прохождении ультразвуковой волны определенной частоты через жилкость, в ней активируются мелкие зародыши. Когда звуковое давление достаточно велико, ядра пузырьков расширяются под отрицательным давлением звуковой волны: а под действием положительного звукового давления ядра сжимаются, формируя ряд динамических процессов, таких как колебание, рост, сжатие и схлопывание пузырьков. Когда пузырь схлопывается, в небольшой области вокруг него температура резко возрастает до 10000°С. Мгновенное давление может достигать нескольких тысяч или даже десятков тысяч атмосфер, в результате чего формируется сильная ударная волна со скоростью распространения около 400 км/ч [14, 15]. В таких условиях ультразвуковая волна изменяет структуру парафиновых и коллоидных частиц, а также строение асфальтенов, входящих в состав тяжелой нефти, за счет разрыва длинноцепочечных молекул парафиновых углеводородов и молекул асфальтенов [15, 16].

Таким образом, в работе определено влияние ультразвуковой волны на вязкость и температуру застывания тяжелой нефти. Показано, что ультразвуковая волна оказывает положительное влияние на вязкостные свойства тяжелой нефти из месторождения Цзинхэ, наибольшее наблюдаемое уменьшение вязкости составило 87.2%. Максимальное снижение температуры застывания составило 4.8°С. На основании анализа структуры кристаллов парафинов до и после обработки, а также того факта, что вязкость нефти частично восстанавливается после ультразвукового воздействия, сформулирован механизм уменьшения вязкости и температуры застывания нефти, который заключается в химическом и физическом воздействии ультразвуковой волны.



Рис. 5. Структура кристаллов парафинов в тяжелой нефти (до (а) и после (б) ультразвуковой обработки).

ФИНАНСИРОВАНИЕ

Работа была поддержана Программой научных исследований, финансируемой Департаментом образования провинции Шэньси (18JC025) и Национальным научным фондом Китая (50874092). Также мы благодарим за работу Современный Центр Анализа и Тестирования Сианьского нефтехимического университета.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов, требующего раскрытия в данной статье.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

Rongjun Zhang, Prof. ORCID: https://orcid.org/0000-0001-8297-210X

Shiyi Lv, Master, student. ORCID: https://orcid.org/0000-0001-9781-653X

Sen Peng, Prof. ORCID: https://orcid.org/0000-0002-6011-0610

Weichao Du, Master student. ORCID: https://orcid.org/0000-0002-4006-0417

Jie Zhang, Prof. ORCID: https://orcid.org/0000-0001-5520-4906

Gang Chen, Prof. ORCID: https://orcid.org/0000-0002-3711-4250

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Kadyirov A., Karaeva J. //* Energies. 2019. V. 12. P. 3084.

- Abramov V.O., Mullakaev M.S., Abramova A.V., Esipov I.B., Mason T.J. // Ultrason. Sonochem. 2013. V. 20. P. 1289.
- 3. *Mullakaev M.S., Abramov V.O., Abramova A.V.* // J. Pet. Sci. Eng. 2015. V. 125. P. 201.
- Makarev D.I., Rybyanets A.N., Sukhorukov V.L. // J. Sci. Technol. 2016. V. 9. P. 1.
- Pliss A.A., Zolotov V.P., Yakimov A.V. // Interval. 2007. V. 3. P. 36.
- 6. Chen G., Cheng C., Zhang J., Sun Y., Hu Q., Qu C., Dong S. // J. Pet. Sci. Eng. 2019. V. 183. P. 106420.
- Chen G., Lin J., Hu W., Cheng C., Gu X., Du W., Zhang J., Qu C. // Fuel. 2018. V. 218. P. 213.
- Chen G., Yuan W., Bai Y., Zhao W., Zhang J., Wu Y., Gu X., Chen S., Yu H. // Petrol. Chemistry. 2018. V. 58. № 1. P. 85.
- 9. Dirand M., Chevallier V., Provost E., Bouroukba M., Petitjean D. // Fuel. 1998. V. 77. P. 1253.
- 10. Sun H., Liu X., Zhang Z., Gao H. // China Pet. Process. Petrochemicals. 2017. V. 48. P. 29.
- 11. Chen G., Yuan W., Zhang F., Gu X., Du W., Zhang J., Li J., Qu C. // J. Pet. Sci. Eng. 2018. V. 165. P. 1049.
- Gu X., Zhang F., Li Y., Zhang J., Chen S., Qu C., Chen G. // J. Pet. Sci. Eng. 2018. V. 164. P. 87.
- Abramov V.O., Mullakaev M.S., Abramova A.V., Esipov I.B., Mason T.J. // Ultrason. Sonochem. 2013. V. 20. № 5. P. 1289.
- 14. *Mohammadian E., Junin E., Eahmani O., Idris A.* // Ultrason. 2013. V. 53. № 2. P. 607.
- 15. *Salehzadeh M., Akherati A., Ameif F., Dabir B.* // Can. J. Chem. Eng. 2016. V. 94. № 11. P. 2202.
- 16. Mullakaev M.S., Asylbaev D.F., Prachkin V.G., Volkova G.I. // Chem. Pet. Eng. 2014. V. 49. P. 584.