

Д. И. Кудусов, К. А. Левин, С. Л. Малышев**ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ПРОЦЕССА ЭМУЛЬГИРОВАНИЯ
И ДЕЭМУЛЬГИРОВАНИЯ В СМЕСИ EXXSOL+ВОДА***Ключевые слова: дисперсная среда, деэмульгирование, многофазный поток, сепарация.*

Процессы эмульгирования и деэмульгирования широко применяются на практике в технологических процессах различных отраслей промышленности, в том числе нефтедобывающей и химической. С появлением на рынке многофазных расходомеров для измерений дебита углеводородных скважин возник вопрос создания эталонной базы для исследований их метрологических характеристик. В многофазных эталонах Российской Федерации в качестве измеряемой среды, имитирующей нефтегазоводяную смесь (скважинную жидкость), как правило, применяется смесь воды, имитатора воды (Exxsol D100) и атмосферного воздуха. Действующий Государственный первичный специальный эталон единицы массового расхода газожидкостных смесей ГЭТ 195-2011 основан на принципе циркуляции жидкой смеси заданного состава. Однако длительная подготовка для перехода на другое содержание компонентов в смеси потребовало разработки нового эталона, использующего принцип предварительной сепарации жидкой смеси с последующей раздельной подачей компонентов в смеситель измерительного участка. Такой принцип воспроизведения течения многофазной смеси реализован в большинстве зарубежных многофазных испытательных стендах, но при больших расходах возникает острая проблема качественной сепарации жидкой смеси, зависящая от производительности сепаратора. С целью исследований процесса смешивания и разделения двух жидкостей, изучения механизма, структуры течения и времени, необходимого для их полного расслоения, были созданы экспериментальные установки. В качестве рабочей среды в экспериментах использовалась жидкая смесь, состоящая из компонентов, применяемых на ГЭТ 195-2011. Результаты исследований использованы при разработке сепарационной установки в составе эталона массового расхода газожидкостных смесей.

D. I. Kudusov, K. A. Levin, S. L. Malyshev**EXPERIMENTAL STUDIES OF EMULSIFICATION AND DEMULSIFICATION PROCESS
IN EXXSOL+WATER MIXTURE***Keywords: dispersed medium, demulsification, multiphase flow, separation.*

Emulsification and demulsification processes are widely used in practice in technological processes of various industries, including oil and chemical industries. With the appearance on the market of multiphase flowmeters for measuring the flow rate of hydrocarbon wells, the question of creating a reference base for research of their metrological characteristics has arisen. In multiphase measurement standards of the Russian Federation, as a rule, a mixture of water, water simulant (Exxsol D100) and atmospheric air is used as a measured medium simulating oil-gas-water mixture (well fluid). The current State primary special standard of mass flow rate unit of gas-liquid mixtures GET 195-2011 is based on the principle of circulation of a liquid mixture of a given composition. However, the long preparation for the transition to a different content of components in the mixture required the development of a new standard, which uses the principle of pre-separation of the liquid mixture with the subsequent separate feeding of components into the mixer of the measuring section. Such principle of multiphase mixture flow reproduction is realized in most foreign multiphase test benches, but at high flow rates there is an acute problem of qualitative separation of liquid mixture depending on the separator capacity. In order to investigate the process of mixing and separation of two liquids, to study the mechanism, flow structure and the time required for their complete separation, experimental setups were created. As a working medium in the experiments was used a liquid mixture consisting of the components used in GET 195-2011. The research results were used in the development of a separation unit as part of the mass flow rate standard for gas-liquid mixtures.

Введение

В мировой практике для исследований метрологических характеристик многофазных расходомеров (МФР), широко применяемых для мониторинга нефтегазодобывающих скважин, разработаны испытательные эталоны и стенды [1]. В качестве рабочей измеряемой средой в этих установках применяются различные смеси жидкостей – водопроводной или соленой воды и нефтепродукты – масла, нефтяные растворители, включая скважинную жидкость. Для воспроизведения течения газовой фазы в основном используется воздух, а также азот и природный газ. Большинство эталонов и стендов как за рубежом, так и в России, при создании газожидкостной смеси в измерительном участке применяют раздельную

подачу жидких компонентов в смеситель, предполагающую их последующую сепарацию после прохождения через испытуемый МФР [2]. Если отделить газ от жидкости не составляет больших трудностей, то процесс разделения нефти (нефтепродукта) от воды весьма продолжителен и требует сложного и металлоемкого оборудования для его осуществления, особенно при больших расходах.

Постановка задачи

В России действующий Государственный первичный специальный эталон единицы массового расхода газожидкостных смесей ГЭТ 195-2011 [3] (далее – ГЭТ 195) основан на принципе циркуляции жидкой смеси воды и имитатора нефти (деароматизированного растворителя Exxsol D100) по заданным программой исследований

содержанием компонентов, максимальный массовый расход которого составляет 110 т/ч. При этом изменение соотношения компонентов в жидкой смеси занимает длительное время, из-за чего затягивается процесс испытаний, поверки и калибровки МФР, измерительных систем и компараторов для передачи единицы измерений расхода многофазного потока рабочим эталонам, всё это ведёт к удорожанию работ. В результате обсуждений проблемы было принято решение о создании эталонной установки в составе ГЭТ 195, реализующей принцип раздельной подачи компонентов жидкой смеси с её последующей сепарацией [4]. В создаваемой установке поставлена задача увеличения массового расхода жидкой смеси до 300 т/ч, в связи с чем возник вопрос разработки эффективного способа сепарации при такой значительной производительности. С этой целью на первоначальном этапе необходимо было исследовать процесс разделения рабочей среды, для чего проведены научные исследования, выполнены несколько опытно-конструкторских работ и созданы экспериментальные установки.

Функцией сепаратора многофазного эталона является качественное разделение газожидкостной смеси на составляющие компоненты. Если отделение газа, в качестве которого на ГЭТ 195 применяется воздух, не составляет особого труда из-за существенной разницы в плотности с жидкой смесью, то разделение жидкой фазы на компоненты при плотности Exxsol D100 около 840 кг/м³ представляет гораздо более длительный процесс. В применяемых на нефтяных месторождениях сепараторах устанавливаются специальные коалесцирующие элементы конструкции, интенсифицирующие процесс разделения воды и нефти. При этом каждый сепаратор, в зависимости от качественного состава нефтегазоводяной смеси, имеет предельную производительность по расходу, который ограничен временем разделения смеси. Для расчёта требуемого объёма проектируемого сепаратора, геометрии коалесцирующих пластин было необходимо провести ряд экспериментальных исследований, включая измерения времени полного разделения предварительно подготовленной жидкой смеси воды и Exxsol D100.

Экспериментальные исследования движения дисперсной фазы

Для проведения экспериментов на начальном этапе была создана установка по визуальному исследованию движения дисперсной фазы в процессе разделения смеси, схема и общий вид которой приведены на рис.1.

Установка состоит из рабочего резервуара 1 представляющего собой цилиндр диаметром 100 мм и высотой 2 м, изготовленного из прозрачного поликарбоната. Подача дисперсной фазы в резервуар производится из бака 2, находящегося на большей высоте. Превышение уровня жидкости в баке над уровнем жидкости в резервуаре позволяло обеспечивать необходимые значения расхода дисперсной фазы Exxsol D100 путем регулирования

положением крана 3. Одновременно степень открытия крана определяла поперечный размер струи подаваемой жидкости из канала диаметром 15 мм, при этом размер большинства образующихся капель составлял от 5 до 10 мм.

В ходе экспериментов Exxsol D100 подавался в нижнюю часть резервуара и сквозь прозрачную стенку визуально наблюдалось движение струи (капель) в большом объеме воды.

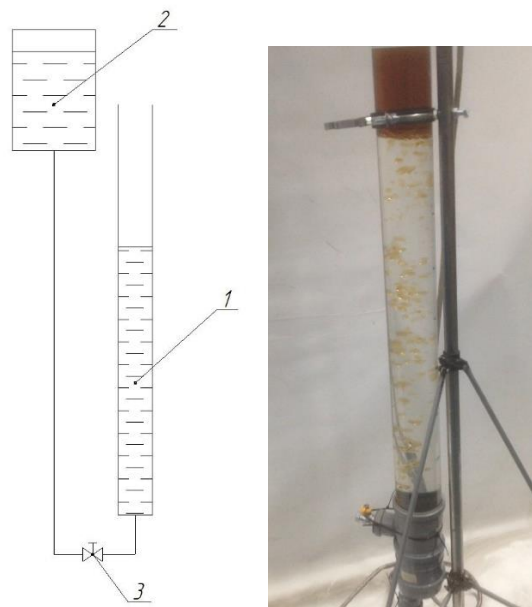


Рис. 1 – Экспериментальная установка исследования движения дисперсной фазы

Fig. 1 – Experimental setup for studying the movement of the dispersed phase

Согласно теории седиментационной устойчивости эмульсий [5] скорость движения всплывающих капель описывается формулой

$$U_{сод} = \frac{g(\rho - \rho_0)d^2}{18\eta}, \quad (1)$$

где $U_{сод}$ – установившаяся скорость всплытия капель дисперсной фазы, м/с; g – ускорение свободного падения, м/с²; ρ – плотность, кг/м³; d – диаметр капли, мм; η – динамическая вязкость несущей фазы, Па/с.

Расчет по формуле (1) при рабочих условиях среды показал, что средняя скорость всплытия капель диаметром около 5 мм равна ~2,7 м/с, для капель диаметра 10 мм расчетная скорость составила ~11 м/с.

Скорость всплытия капель определялась осреднением времени достижения ими органического слоя жидкости, измеренного секундомером. В пробирке не создавалось завихрений, поэтому капли приобретали округлую форму в начале движения и не деформировались при отсутствии их соударения. Размер капель оценивался фотофиксацией процесса по соотношению диаметра контролируемой капли к диаметру пробирки. Наблюдения за всплытием капель Exxsol D100

подтвердили удовлетворительное согласование с расчетом.

Следует вывод, что для эффективной сепарации жидкой смеси нефтепродукта и воды в эталонной установке следует не допускать в процессе их смешивания образования мелких капель дисперсной фазы [6,7].

В этой же установке исследовалось движение струи (капель) воды в объеме Exxsol D100. Для этого в резервуар, заполненный Exxsol D100, сверху подавалась струя воды. В экспериментах наблюдалась аналогичная картина движения капель воды: за доли секунды они проходили слой Exxsol D100 и достигали слоя воды на дне резервуара.

Для расчета скорости осаждающихся капель воды в данном случае применима формула, представленная в работе [8]:

$$v = \frac{6 \cdot 8}{65 - \frac{\Delta \rho}{\rho_i}} \cdot \sqrt{\frac{\sigma}{(3 \cdot \rho_i + 2 \cdot \rho_0)}} / \sqrt{d}, \quad (2)$$

где $\Delta \rho$ - разность плотностей, г/см³; ρ_i - плотность капельной фазы, г/см³; ρ_0 - плотность несущей фазы, г/см³; σ - величина поверхностного натяжения, дин/см; d - диаметр эквивалентной сферы капли, см.

Расчет по формуле (2) при рабочих условиях среды показал, что скорость осаждения капель диаметром около 5 мм равна ~11,2 м/с, для капель диаметром 10 мм расчетная скорость составила ~9,4 м/с.

Результаты экспериментальных исследований для различных органических жидкостей также подтверждают расчеты и выводы о том, что размер капель существенно влияет на их скорость.

Экспериментальные исследования процесса деэмульгирования смеси

В различных трактах и полостях эталонной установки в процессе ее работы, очевидно, будут происходить процессы смешения и разделения компонентов смеси [9,10]. В зависимости от режимных параметров, геометрии каналов, их ориентации в поле сил тяжести тот или иной процесс будет иметь преобладающий характер [11,12]. В первую очередь гидродинамическая картина течения смеси будет определять структуру эмульсии – размеры капель дисперсной фазы и закон их распределения. Соответственно, от этих параметров, в свою очередь, будет зависеть последующий процесс деэмульгирования смеси, характеризуемый главным фактором – временем разделения компонентов жидкой смеси. Здесь, в отличие от крупнодисперсной смеси, мелкодисперсная эмульсия представляет собой большую проблему при ее разделении на компоненты [13,14].

Экспериментальное исследование этих процессов (эмульгирования и деэмульгирования) проводилось на специально разработанной установке, схема которой представлена на рис. 2. Целью являлось определение времени разделения смеси для последующего расчета геометрии конструктивных

элементов проточной части проектируемого сепаратора и получения чистых исходных компонентов смеси.

Установка состоит из двух баков объемом по 50 л каждый, один из которых заполнен водой, второй – имитатором нефти Exxsol D100. При этом в верхних частях баков оставались воздушные полости, в которых компрессором создавалось избыточное давление определенной величины.

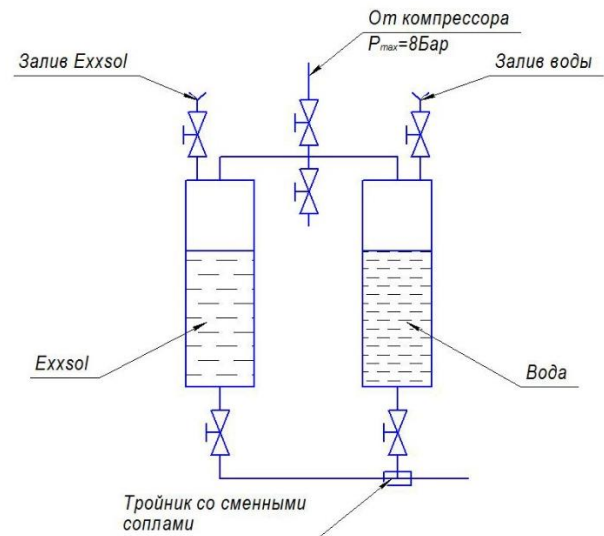


Рис. 2 – Схема установки для получения эмульсии

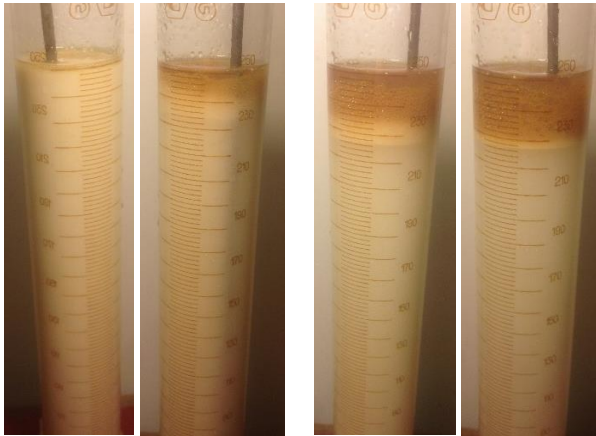
Fig. 2 – Installation diagram for producing emulsion

К нижним частям баков присоединялись трубы для подачи жидкостей в смеситель. Таким образом, имелась возможность создавать потоки жидкостей в каналах путем вытеснения их из баков. Величины расходов жидкостей определялись сечениями сопел, установленными в каналах за баками. На водной магистрали было установлено сопло диаметром 3 мм, на магистрали Exxsol D100 – 1 мм. На магистрали эмульсии на выходе из тройника установлено сопло диаметром 2 мм. Таким образом, в установке было достигнуто соотношение расходов ~90% воды и ~10% Exxsol D100 – пропорционально площадям сечений соответствующих сопел. Потоки компонентов после выхода из баков смешивались в тройнике и создавали эмульсию. Процесс смешения регулировался изменением давления в воздушных подушках, которое определяло скорости потоков в смесителе и, соответственно, размеры формирующихся капель дисперсной фазы, образующейся при соударении. После смешивания жидкостей поток направлялся в открытый бак-отстойник, при наливе в который происходил отбор проб в прозрачные мензурки объемом 250 см³. Отобранные пробы устанавливались на лабораторный стол, где наблюдалось расслоение смеси в течении времени (рис. 3).

Исходные параметры определялись следующим образом. Скорости истечения струй воды и Exxsol D100 из сопел в смеситель

$$U_B = B_B \sqrt{\frac{2 \cdot \Delta P}{\rho_e}}, \quad U_{Ex} = B_{Ex} \sqrt{\frac{2 \cdot \Delta P}{\rho_{Ex}}}, \quad (3)$$

где B – коэффициент истечения соответствующего сопла (определяется при калибровке); $\Delta P = P - P'$ – разность давлений перед и за соплами; P – давление перед соплами, которое определялось по сумме измеренного значения избыточного давления в подушке и давления, создаваемого столбом жидкости в соответствующем баке; P' – избыточное давление, измеренное в камере смешения.



а б в г

Рис. 3 – Структура эмульсии, образованной при давлении 8 атм в смесителе и легком перемешивании по истечении: а – 2 мин; б – 4 мин; в – 7 мин; г – 10 мин

Fig. 3 – The structure of the emulsion formed at a pressure of 8 atm in the mixer and lightly stirred after: a – 2 min; б – 4 min; в – 7 min; г – 10 min

Относительная скорость компонентов в условиях перпендикулярного их соударения:

$$\Delta U = \sqrt{U_B^2 + U_{Ex}^2}, \quad (4)$$

Оценка диаметров капель дисперсной фазы производилась по критическому числу Вебера [11]:

$$We = \frac{\Delta U^2 \cdot \rho_B \cdot d_{Ex}}{\sigma} = 17, \quad (5)$$

где σ – коэффициент поверхностного натяжения между компонентами смеси, вычисляемый по формуле $\sigma = \sigma_B - \sigma_{Ex} = 0,073 - 0,028 = 0,045$ Н/м. Значения коэффициентов взяты из табличных данных [16].

С учетом вышеприведенных условий, средний диаметр капель вычисляется по формуле

$$d_{Ex} = \frac{17 \cdot \sigma}{\Delta U^2 \cdot \rho_B}. \quad (6)$$

Исходя из закона Стокса скорость всплытия пузырька (падения капли) пропорциональна отношению Архимедовой силы (тяжести) и сил вязкости

$$W = \frac{\Delta \rho \cdot d^2 \cdot g}{18 \cdot \mu}, \quad (7)$$

где μ – кинематическая вязкость, мм²/с.

Параметры, характеризующие условия образования эмульсии и расчет времени её расслоения приведены в таблице 1.

Таблица 1 – Расчетное время расслоения смеси

Table 1 - Estimated time for mixture separation

Режим	P , ати	P' , ати	U_B , м/с	U_{Ex} , м/с	ΔU , м/с	d , мкм	τ , мин
1	1	0.86	5.3	5.9	7.9	12	4
2	2	1.73	7.3	8.1	10.9	6.4	7
3	8	6.92	14.7	16.2	21.9	1.6	20 (10*)

*- при легком перемешивании смеси.

В таблице 1 параметр τ – время расслоения смеси в мензурке. Под этим понималось время образования слоев воды и Exxsol D100 однородной консистенции и с четкой границей раздела, которые в дальнейшем визуально не менялись, по крайней мере, в течение десятков минут. В данном случае небольшая остаточная концентрация одной жидкости в другой не учитывалась, хотя на ее наличие указывала непрозрачность компонентов. Тем не менее, за контрольное время расслоение компонентов происходило до пропорций, близких к исходному соотношению.

Увеличение давления в воздушных подушках баков и, соответственно, скоростей компонентов при их смешивании, приводило к уменьшению размеров капель дисперсной фазы и увеличению времени расслоения полученной эмульсии. При этом помешивание тонкой спицей в мензурке способствовало интенсификации сепарации примерно в 2 раза, откуда следовал вывод о применении динамического метода разделения компонентов смеси. Для полного разделения смеси до прозрачного состояния компонентов потребовалось 10 часов, однако основное количество компонентов – до 99 % расслаивалось в течение нескольких минут.

Экспериментальные исследования процесса деэмульгирования смеси Exxsol D100 и воды, применяемых в качестве жидкой фазы рабочей измеряемой среды на ГЭТ 195, позволили получить среднее время разделения дисперсной фазы в зависимости от размера образовавшихся при смешивании капель. При этом наиболее медленно происходит всплытие мелких капель диаметром менее 5 мм. Полученные результаты будут впоследствии использованы при расчёте объёма сепаратора и геометрии проходных сечений коалесцирующих устройств.

Заключение

Таким образом, процесс деэмульгирования смеси воды и Exxsol D100 с точки зрения задачи разделения компонентов газожидкостной смеси на исходные компоненты при максимальных расходах воспроизведения проектируемой эталонной установкой в составе ГЭТ 195 является трудноосуществимой, но преодолимой проблемой, осуществимой при достаточном объеме сепарационной установки и применении конструктивных решений, не позволяющих допускать образования мелких капель дисперсной среды. Время прохождения компонентов смеси при

максимальном расходе по каналам деэмульгирования должно обеспечивать их полное разделение. Следует принять во внимание, что, если при подаче компонентов в смеситель эталонной установки не допускать сильного динамического воздействия (высокого градиента скоростей), а также применить эффективные коалесцирующие элементы в конструкции сепаратора, можно добиться существенного снижения габаритов и металлоемкости проектируемого сепаратора газожидкостных смесей.

Литература

1. Norwegian Society for Oil and Gas Measurement (NSOGM) and The Norwegian Society of Chartered Technical and Scientific Professionals. Tekna: *Handbook of Multiphase Metering*. Revision 2 (March 2005), ISBN 82-91341-89-3.
2. Компания Шлюмберже 3750 Briarpark Drive Houston, Texas 77042 www.slb.com *Основы многофазных измерений*, Ред.2. Компания Шлюмберже, Хьюстон, Техас, 2012. 146 с.
3. В. Г. Соловьев, В. Л. Варсегов, С. Л. Малышев, В. Н. Петров, *Вестник Казанского государственного технического университета им. А.Н. Туполева*, 3, 32-38 (2013).
4. Д. И. Кудусов, С. Л. Малышев, *Автоматизация, телемеханизация и связь в нефтяной промышленности*, 3, 53-58 (2021).
5. Ф. Шерман и др. *Эмульсии*. Л.: Химия, 1972. 448с.
6. G. Narsimhan. *Model for drop coalescence in a locally isotropic turbulent flow field*. *Journal of Colloid and Interface Science* 272:1, 197–209 (2004).
7. F. Mashayek et al. *Coalescence collision of liquid drops*. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 46, 77–89 (2003).
8. J. O. Hinze. *Fundamentals of the hydrodynamic mechanism of splitting in dispersion processes*. *AIChE Journal Volume 1*, Issue 3, 289–295 (1955).
9. G. H. Ko and H. S. Ryou. *Modeling of droplet collision-included breakup process*. *International Journal of Multiphase Flow*, 31 (6), 723-738 (2005).
10. С. И. Мартынов, *Известия РАН. Механика жидкости и газа*, 1, 84-91 (2004).
11. A. B. Liu, D. Mather, and R. D. Reitz. *Modeling the Effects of Drop Drag and Breakup on Fuel Sprays*. SAE Technical Paper 930072. 1993.
12. H. H. Hu *Direct simulation of flows of solid-liquid mixtures* *International Journal of Multiphase Flow*. V. 22, 2, 335-352 (1996).
13. C. Crowe, M. Sommerfield, and Yutaka Tsuji. *Multiphase Flows with Droplets and Particles*. CRC Press. 1998.
14. A. M. Chapman and J. J. L. Higdon. *Oscillatory Stokes flow in periodic porous media*. *Physics of Fluids A*. V. 4, 10. 2099-2116 (1992).
15. B. J. Yoon, S. Kim J. *A boundary collocation method for the motion of two spheroids in Stokes flow: hydrodynamic and colloidal interactions*. *Multiphase Flow*. V. 16, 4. 639-649 (1990).
16. А. Б. Крылов. *Поверхностное натяжение и связанные с ним явления*. Учебно-методическое пособие. Минск. БГМУ, 2008. 32 с.

References

1. Norwegian Society for Oil and Gas Measurement (NSOGM) and The Norwegian Society of Chartered Technical and Scientific Professionals. Tekna: *Handbook of Multiphase Metering*. Revision 2 (March 2005), ISBN 82-91341-89-3.
2. Schlumberger Company 3750 Briarpark Drive Houston, Texas 77042 www.slb.com *Fundamentals of Multiphase Measurements*, Rev. 2. Schlumberger Company, Houston, Texas, 2012. 146 p.
3. V. G. Soloviev, V. L. Varsegov, S. L. Malyshev, V. N. Petrov, *Bulletin of the Kazan State Technical University named after A.N. Tupolev*, 3, 32-38 (2013).
4. D. I. Kudosov, S. L. Malyshev, *Automation, telemechanization and communications in the oil industry*, 3, 53-58 (2021).
5. F. Sherman et al. *Emulsions*. L.: Chemistry, 1972. 448p.
6. G. Narsimhan. *Model for drop coalescence in a locally isotropic turbulent flow field*. *Journal of Colloid and Interface Science* 272:1, 197–209 (2004).
7. F. Mashayek et al. *Coalescence collision of liquid drops*. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 46, 77–89 (2003).
8. J. O. Hinze. *Fundamentals of the hydrodynamic mechanism of splitting in dispersion processes*. *AIChE Journal Volume 1*, Issue 3, 289–295 (1955).
9. G. H. Ko and H. S. Ryou. *Modeling of droplet collision-included breakup process*. *International Journal of Multiphase Flow*, 31 (6), 723-738 (2005).
10. S. I. Martynov, *Izvestiya RAS. Mechanics of liquid and gas, etc. Emulsions*. L.: Chemistry, 1, 84-91 (2004).
11. A. B. Liu, D. Mather, and R. D. Reitz. *Modeling the Effects of Drop Drag and Breakup on Fuel Sprays*. SAE Technical Paper 930072. 1993.
12. H. H. Hu *Direct simulation of flows of solid-liquid mixtures* *International Journal of Multiphase Flow*. V. 22, 2, 335-352 (1996).
13. C. Crowe, M. Sommerfield, and Yutaka Tsuji. *Multiphase Flows with Droplets and Particles*. CRC Press. 1998.
14. A. M. Chapman and J. J. L. Higdon. *Oscillatory Stokes flow in periodic porous media*. *Physics of Fluids A*. V. 4, 10. 2099-2116 (1992).
15. B. J. Yoon, S. Kim J. *A boundary collocation method for the motion of two spheroids in Stokes flow: hydrodynamic and colloidal interactions*. *Multiphase Flow*. V. 16, 4. 639-649 (1990).
16. A. B. Krylov. *Surface tension and related phenomena*. Educational and methodical manual. Minsk. BSMU, 2008. 32 p.

© Д. И. Кудусов – ведущий инженер НИО-9, ВНИИР – филиал ФГУП «ВНИИМ им. Д.И. Менделеева», Казань, Россия, genus15@yandex.ru, К. А. Левин – начальник НИО-9, ВНИИР – филиал ФГУП «ВНИИМ им. Д.И. Менделеева», lkavniir@gmail.com, С. Л. Малышев – старший научный сотрудник НИО-9, ВНИИР – филиал ФГУП «ВНИИМ им. Д.И. Менделеева», pamir.61@mail.ru.

© D. I. Kudosov – Leading Engineer, NIO-9, VNIIR–Affiliated Branch of D.I. Mendeleev Institute for Metrology, Kazan, Russia, genus15@yandex.ru, K.A. Levin – Head of the NIO-9, VNIIR – Affiliated Branch of D.I. Mendeleev Institute for Metrology, lkavniir@gmail.com, S. L. Malyshev – PhD (Technical Sci.), Senior Research, VNIIR – Affiliated Branch of D.I. Mendeleev Institute for Metrology, pamir.61@mail.ru.