



Experimental Investigation of Modified Iron Oxide Nanoparticles with Ascorbic Acid on Enhanced Oil Recovery

M. R. Hasani¹, B. Sabzi Dizajyekan², A. Jafari^{3*}

1- M. Sc. in Petroleum Engineering, Tarbiat Modares University

2- Ph. D. in Chemical Engineering, Tarbiat Modares University

3- Associate Professor of Petroleum Engineering, Tarbiat Modares University

Email: ajafari@modares.ac.ir

Abstract

The application of nanoparticles in Enhanced Oil Recovery (EOR) processes is one of the most widely used methods in recent studies by researchers. In this study, Fe₃O₄ nanoparticles were synthesized using the co-precipitation method. In order to stabilize the suspension of synthesized nanoparticles in water, the nanoparticles were surface modified using ascorbic acid. Various identification tests were performed. Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR) to investigate the formation of functional groups, field emission scanning electron microscopy (FESEM) to evaluate the morphology and size of nanoparticles and zeta potential to investigate the surface charge of synthesized nanoparticles. According to the results, surface modification has increased the size of nanoparticles, although this amount was reported to be very low. Also, following the test results of zeta potential, surface modification has increased the surface charge of nanoparticles and as a result has led to the stability of nanoparticles in water. Also, to study the effect of the presence of nanoparticles in the injected fluid in the EOR process, flooding experiments were performed in micromodel. The oil recovery factor in the presence of nanoparticles increased from 19.8% for water flood to 30.9% for surface-modified iron oxide nanoparticles using ascorbic acid, which shows an increase of 11%.

Received: 27 August 2022

Accepted: 20 September 2023

Page Number: 7-16

Keywords:

Enhanced Oil Recovery (EOR),
Iron Oxide Nanoparticle,
Ascorbic Acid,
Surface Modification,
Micromodel

Please Cite this Article Using:

Hasani, M. R., Sabzi Dizajyekan, B., & Jafari, A. (2024). Experimental Investigation of Modified Iron Oxide Nanoparticles with Ascorbic Acid on Enhanced Oil Recovery. *Iranian Chemical Engineering Journal*, 23(135), 7-16, [In Persian].



بررسی آزمایشگاهی تأثیر نانوذرات اکسید آهن اصلاح سطحی شده با آسکوربیک اسید در فرایند ازدیاد برداشت نفت

محمد رضا حسنی^۱، بهنام سبزی دیزجیکان^۲، آرزو جعفری^{۳*}

۱- کارشناس ارشد مهندسی نفت، دانشگاه تربیت مدرس

۲- دکتری مهندسی شیمی، دانشگاه تربیت مدرس

۳- دانشیار گروه مهندسی نفت دانشکده مهندسی شیمی، دانشگاه تربیت مدرس

پیام نگار: ajafari@modares.ac.ir

چکیده

بررسی به کارگیری نانوذرات در فرایندهای ازدیاد برداشت نفت، موضوع مطالعات جدید پژوهشگران متعددی بوده است. در تحقیق پیش رو، روش هم رسوبی برای سنتز نانوذرات Fe_3O_4 به کار رفت. برای دست یابی به سوسپانسیون پایداری از نانوذرات سنتز شده در آب، از آسکوربیک اسید برای اصلاح سطحی آن ها استفاده شد و آزمون های مختلف شناسایی شامل آزمون طیف سنج فرسوخ تبدیل فوریه (FTIR) به منظور بررسی تشکیل گروه های عاملی مربوط به مواد استفاده شده، میکروسکوپ الکترونی روبشی نشر میدانی به منظور مطالعه اندازه نانوذرات و ریخت شناسی آن ها، پتانسیل زتا به منظور بررسی بار سطحی نانوذرات سنتز شده، انجام شد. باتوجه به نتایج، اصلاح سطحی اندازه نانوذرات را افزایش داده است که البته این مقدار بسیار پایین گزارش شد. همچنین باتوجه به نتایج آزمایش پتانسیل زتا اصلاح سطحی منجر به افزایش بار سطحی نانوذرات و در نتیجه منجر به پایداری نانوذرات در آب شده است. همچنین آزمایش های سیلاب زنی در میکرومدل برای بررسی تأثیر حضور نانوذرات در سیال تزریقی در فرایند ازدیاد برداشت نفت به کار رفت. میزان بازیافت نفت در حضور نانوذرات در مقایسه با عدم حضور آن ها افزایش پیدا کرد و از ۱۹/۸ درصد به ۳۰/۹ درصد - برای نانوذرة اکسید آهن اصلاح سطح شده با استفاده از آسکوربیک اسید- رسید که افزایش ۱۱ درصدی را نشان می دهد.

تاریخ دریافت: ۱۴۰۱/۰۶/۰۵

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۲/۰۶/۲۹

شماره صفحات: ۷ تا ۱۶

کلیدواژه ها:

ازدیاد برداشت نفت (EOR)،

نانوذرة اکسید آهن،

آسکوربیک اسید،

اصلاح سطحی،

میکرومدل

* تهران، دانشگاه تربیت مدرس، دانشکده مهندسی شیمی، گروه مهندسی نفت

استناد به مقاله:

حسنى، محمد رضا، سبزی دیزجیکان، بهنام، و جعفری، آرزو. (۱۴۰۳). بررسی آزمایشگاهی تأثیر نانوذرات اکسید آهن اصلاح سطحی شده با آسکوربیک اسید در فرایند ازدیاد برداشت نفت، نشریه مهندسی شیمی ایران، ۲۳ (۱۳۵)، ۷-۱۶.

امروزه روندهای متفاوتی در روش‌های سیلاب‌زنی، گرمایی و شیمیایی برای دستیابی به هدف ازدیاد برداشت نفت از مخازن نفتی به کار گرفته می‌شود [۶-۱۱]. روش‌های جدید برای بهبود بازدهی فرایند ازدیاد برداشت نفت در سال‌های اخیر موضوع پژوهش‌ها بوده است [۹-۱۶]. تزریق نانوسیال برای ازدیاد برداشت نفت، علاوه بر این که کارایی فرایند را افزایش می‌دهد، از لحاظ هزینه‌های عملیاتی نیز نسبت به برخی روش‌های سنتی ازدیاد برداشت ارزان‌تر است. یکی دیگر از دلایل مهم که امروزه محققان به مطالعه تأثیر نانوسیالات در فرایندهای نفتی می‌پردازند، سازگاری بسیار بیشتر آن‌ها با محیط زیست نسبت به سایر مواد شیمیایی است [۱۰]. مطالعات نشان می‌دهد که نانوذرات به‌عنوان یک راهکار بالقوه برای حل مشکلات ناشی از روش‌های متداول ازدیاد برداشت نفت مانند، بازده جاروبی پایین، نفوذ مواد شیمیایی به سازند، هزینه‌های زیاد و آسیب‌سازندگی بالقوه، می‌تواند استفاده شود.

اینگارت و همکاران [۱۱] در پژوهش خود برای بررسی حضور نانوسیالات بر ازدیاد برداشت نفت از مغزه‌های ماسه‌سنگی دارای تراوایی مختلف استفاده کردند. در این پژوهش غلظت بهینه نانوسیال اندازه‌گیری شد و همچنین متغیرهایی مانند تغییر ترشوندگی و هم‌چنین کشش بین سطحی که بر سازوکار عمل فشار منفصل‌کننده تأثیر داشتند، بررسی شد. مغزه (Core Flood) مورد استفاده، بستر ماسه‌سنگی با تراوایی ۴۰۰ میلی‌داری بود و سه نوع نانوسیال سیلیکای آب‌دوست با غلظت‌های مختلف، در این پژوهش سنتز و سپس آزمایش شد. نتایج حاکی از این بود که با افزایش غلظت نانوسیال، کشش بین سطحی (Interfacial Tension) نفت و نانوسیال کاهش می‌یابد. این گروه در مطالعه دیگری نیز [۱۲، ۱۳] که فرایند مشابهی را در یک میکرومدل مطالعه کرده بودند، نشان دادند که اشباع نفت باقی‌مانده می‌تواند با تزریق نانوسیال کاهش یابد. سلیمانوف و همکاران [۱۴] اثر محلول آبی دارای آنیون‌های فعال سطحی و نانوذرات فلزی سبک غیر آهنی را بر میزان ازدیاد برداشت نفت مطالعه و سپس مشاهده کردند که حضور نانوذرات منجر به افزایش بیشتر کشش سطحی در حد ۷۰ تا ۹۰ درصد، درمقایسه با زمانی بود که محلول فقط دارای مواد فعال سطحی بود. نتایج نشان داد که استفاده از نانوسیال در فرایند

ازدیاد برداشت نفت، بازیافت نفت را تا ۱۷ درصد در محیط متخلخل همگن و تا ۲۲ درصد در محیط متخلخل ناهمگن افزایش داد. یحیی و همکاران [۱۵] با اعمال میدان مغناطیسی با فرکانس ۳۰ مگاهرتز، اثر تزریق نانوذره اکسید روی (ZnO) و نانوذره اکسید آهن (Fe_2O_3) را بررسی کردند. مشاهده شد که میزان بازیافت نفت در حالت تزریق نانوذره ZnO، ۲۲ درصد و در حالت تزریق نانوذره Fe_2O_3 ، ۳۳ درصد بود که افزایش حداقل ۱۰ درصدی را درمقایسه با شرایط بدون حضور میدان از خود نشان می‌داد.

برای سنتز نانوذرات روش‌های مختلفی وجود دارد؛ استفاده از روش‌های گوناگون برای سنتز نانوذرات می‌تواند بر روی مشخصات نانوذرات تولیدشده مؤثر باشد و ویژگی‌های آن‌ها را از جمله اندازه و ریختمان تعیین کند.

روش سنتز نانوذرات سوپرپارامغناطیسی بر کاربرد آن‌ها در ازدیاد برداشت نفت تأثیر می‌گذارد [۱۶]. روش‌های مختلف سنتز می‌تواند به نانوذراتی با خواص مختلف، مانند اندازه، شکل و خواص سطحی منتهی شود که تغییر در هر کدام از این ویژگی‌ها نیز می‌تواند در نهایت بر عمل کرد آن‌ها در فرایند ازدیاد برداشت نفت تأثیر بگذارد [۲۰-۱۷]. به‌عنوان مثال، روش سنتز احتراقی (CSM) که برای سنتز نانوذرات مغناطیسی Fe_3O_4 استفاده می‌شود، در فرایند امولسیون‌زدایی و نفت‌زدایی در امولسیون‌های نفت در آب کارایی بالایی از خود نشان داده است [۲۱]. روش سنتز هم‌چنین می‌تواند بر پایداری و امکان استفاده مجدد نانوذرات تأثیر بگذارد که مشخصه‌های مهمی در استفاده از آن‌ها در فرایندهای ازدیاد برداشت نفت هستند. بنابراین، روش سنتز نانوذرات باید به‌دقت انتخاب شود تا خواص آن‌ها و عمل کرد آن‌ها در فرایند ازدیاد برداشت نفت به حداکثر برسد.

یکی از بهترین روش‌ها برای سنتز نانوذرات سوپرپارامغناطیسی اکسید آهن، با در نظر گرفتن متغیرهای عملیاتی مانند امکان کنترل مشخصه‌های مؤثر در فرایند سنتز مانند سرعت هم‌زدن، نوع عامل بازی مورد استفاده، pH و دما و هم‌چنین سهولت در انجام کار روش هم‌رسوبی است که در پژوهش‌های متعددی نیز بررسی شده است [۲۲]. اساس این روش افزودن یک محلول بازی به محلول دارای نمک‌های آهن است.

شن و همکاران [۲۳] در پژوهش خود از نمک‌های کلرید

۲. مواد و روش‌ها

۱-۲ مواد

در این پژوهش برای سنتز و اصلاح سطح نانوذره اکسید آهن، نمک‌های $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ ، $FeCl_2 \cdot 4H_2O$ به‌عنوان پیش‌ماده و آمونیاک مایع با غلظت ۲۵ درصد به‌عنوان عامل رسوب‌دهنده از شرکت تتراکم تهیه شد و برای اصلاح سطحی آسکوربیک‌اسید با فرمول شیمیایی $(C_6H_8O_6)$ از شرکت لوباشیمی تهیه شد. جدول (۱) مشخصات مواد استفاده‌شده در این پژوهش را نشان می‌دهد.

جدول ۱. مشخصات مواد استفاده‌شده.

Table 1. Specifications of the used material.

Material	Producer	Note
$FeCl_3 \cdot 6H_2O$	Titrachem	Synthesis precursor
$FeCl_2 \cdot 4H_2O$	Titrachem	Synthesis precursor
Ammonia	Titrachem	Basic agent in Synthesis
Ascorbic acid	loba chemie	Surface modification agent in Synthesis
Distilled water	-	Synthesis, solvent and for washing
Toluene	Dr.mojallali	Porous media wettability alteration
Methanol	Dr.mojallali	Porous media wettability alteration

هم‌چنین نفت سنگین مورد استفاده در این مطالعه از یکی از میدان‌های نفتی غرب ایران تهیه شد که درجه API آن ۱۴/۰۷، چگالی 0.972 g/cm^3 و گرانروی آن ۱۰۱۰ cp است.

۲-۲ روش‌ها

۱-۲-۲ سنتز نانوذرات اکسید آهن

روش مورد استفاده در تحقیق بهارین و همکاران با اندکی اصلاحات برای سنتز استفاده شد [۲۶]. بدین‌منظور، ابتدا محلولی از ۵/۶۲ گرم نمک $FeCl_2 \cdot 4H_2O$ و ۱۵/۲۸ گرم نمک $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ در ۴۰۰ سی‌سی آب مقطر، ساخته و با همزن مکانیکی با دور بالا هم زده شد تا از انحلال کامل نمک‌ها اطمینان حاصل شود. در حین هم‌زدن گاز اکسیژن نیز در داخل محلول دمیده می‌شد تا از نبود

عامل قلیایی ($FeCl_3 \cdot 6H_2O$ و $FeCl_2 \cdot 4H_2O$) آهن استفاده کردند. عامل قلیایی مورد استفاده در این پژوهش محلول آبی NH_4OH با غلظت ۲۸ درصد بود و واکنش در دمای ۸۰ درجه سلسیوس انجام شد؛ به‌منظور حذف اکسیژن از محیط واکنش، از دمیدن گاز آرگون در محیط واکنش استفاده شد. شریعتی و همکاران [۲۴] نیز از نمک‌های کلرید آب‌دار به‌عنوان پیش‌ماده و از $NaOH$ به‌عنوان عامل بازی استفاده کردند. در این پژوهش ۴ گرم $FeCl_2 \cdot 4H_2O$ و ۱۰/۴ گرم $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ (نسبت مولی ۱ به ۲) و ۱/۷ میلی‌لیتر HCl ۱۲ مولار در ۵۰ میلی‌لیتر آب مقطر حل شد و محلول حاصل به مدت ۲۰ دقیقه تحت گاز نیتروژن اکسیژن‌زدایی شد. در یک ظرف دیگر نیز ۵۰۰ میلی‌لیتر محلول ۱/۵ مولار $NaOH$ به مدت ۱۵ دقیقه گاززدایی و دمای آن به ۸۰ درجه سلسیوس رسانده شد. در نهایت برای دستیابی به نانوذرات مد نظر، محلول حاوی کاتیون‌های آهن به آرامی، همراه با دمش گاز نیتروژن و تحت هم‌زدگی شدید (۱۰۰۰ دور در دقیقه) به محیط قلیایی اضافه شد. فرجی و همکاران [۲۵] از روش مشابهی استفاده کردند. در این پژوهش ۱۰/۴ گرم $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ و ۴ گرم $FeCl_2 \cdot 4H_2O$ و ۱/۷ میلی‌لیتر اسید ۱۲ مولار HCl در ۵۰ میلی‌لیتر آب مقطر حل شد. این محلول به مدت ۲۰ دقیقه با استفاده از گاز نیتروژن، اکسیژن‌زدایی شد و در ادامه محلول ۱/۵ مولار سدیم هیدروکسید با حجم ۵۰۰ میلی‌لیتر تهیه و تا دمای ۸۰ درجه سلسیوس گرم شد. محلول کاتیون‌های آهن در ادامه به آرامی به محلول قلیایی اضافه شد و در عین حال محیط نیز با استفاده از گاز نیتروژن، اکسیژن‌زدایی شد. نانوذرات تولیدشده در انتها ۴ بار با آب مقطر شسته شد و در دمای ۶۰ درجه سلسیوس در آون خلأ به مدت ۶ ساعت قرار داده شد تا خشک شود. در این مطالعه ابتدا نانوذرات اکسید آهن با استفاده از روش هم‌رسوبی سنتز و تهیه شد. سپس برای افزایش پایداری نانوذرات در سیال تزریقی و هم‌چنین کمک به تغییر خاصیت ترشوندگی از نفت‌دوست به آب‌دوست در محیط متخلخل و دستیابی به بازدهی جاروبی بالاتر فرایند اصلاح سطح نانوذرات اکسید آهن با استفاده از آسکوربیک اسید انجام گرفت. در پایان، آزمایش‌های سیلاب‌زنی در میکرومدل برای بررسی تأثیر حضور نانوذرات اکسید آهن در فرایند ازدیاد برداشت نفت، انجام و باز یافت نفت حساب شد.

هرگونه گاز اکسیژن در داخل محلول اطمینان حاصل شود. در ادامه، دمای محلول با استفاده از حمام آب ساخت شرکت بهداد به ۸۰ درجه سلسیوس رسانده شد و دمش حباب‌های ریز نیتروژن نیز در محلول ادامه یافت. پس از این که دمای محلول به ۸۰ °C رسید، مقدار ۱۵۰ سی سی از محلول آمونیاک به آرامی و به صورت قطرات منفصل در مدت ۶۰ دقیقه وارد محلول واکنش شد و در عین حال، هم‌زدن محلول با همزن مکانیکی ادامه یافت و pH محلول نیز در فواصل منظم اندازه‌گیری شد. پس از اتمام مرحله افزودن آمونیاک، محلول به مدت ۱۰ دقیقه دیگر تحت هم‌زدن شدید باقی ماند تا از تکمیل واکنش اطمینان حاصل شود. در نهایت، نانوذرات چندین مرتبه با آب مقطر شسته و با یک آهنربا با قدرت ۰/۴ تسلا از آب مقطر جدا شدند. پس از حصول اطمینان از حذف تمامی ناخالصی‌ها و مواد واکنش‌ن داده، نانوذرات داخل آون ۶۰ درجه سلسیوس به مدت ۶ ساعت قرار داده شدند تا به طور کامل خشک شوند.

۲-۲-۲ اصلاح سطحی نانوذرات اکسید آهن

اصلاح سطحی نانوذرات Fe_3O_4 به منظور پایدار کردن آن‌ها در محیط آبی انجام گرفت. بدین منظور از آسکوربیک‌اسید استفاده شد. آسکوربیک‌اسید به دلیل داشتن دو سر قطبی و غیرقطبی می‌تواند بر روی سطح نانوذرات قرار گیرد و خاصیت ترشوندگی نانوذرات را از نفت‌دوست به آب‌دوست تغییر دهد. در اصلاح سطحی با آسکوربیک‌اسید، به منظور دستیابی به نانوذرات با قطر هرچه کمتر، فرایند اصلاح سطحی به صورت پیوسته و بلافاصله بعد از تکمیل فرایند، سنتز و انجام شد.

نانوذرات مشابه روش گفته شده در بخش قبلی تولید شدند و سپس بدون این که خشک شوند، مقدار تولیدشده نظری از آن (با استفاده از محاسبات استوکیومتریکی) حساب شد و آسکوربیک‌اسید به میزان ۴۰ درصد وزنی نانوذرة تولیدشده در آب حل شد (محلول اسید ۱ مولار بود و لذا حجم آب استفاده شده برای تولید محلول اسید ۱۳/۶ میلی لیتر بود). دمای مخلوط آبی حاوی نانوذرات به ۸۵ درجه سلسیوس رسانده شد و در عین این که به شدت هم زده می‌شد، محلول آسکوربیک‌اسید به صورت قطره‌قطره در مدت زمان ۳۰ دقیقه به آن اضافه شد و پس از آن نیز هم‌زدن به مدت ۶۰ دقیقه ادامه یافت. در ادامه، نانوذرات اصلاح سطحی شده چندین مرتبه با آب مقطر، شسته و در پایان با استفاده از آهنربا از آب جداسازی شدند.

۲-۲-۳ آزمایش‌های شناسایی نانوذرة اکسید آهن

برای شناسایی نانوذرات سنتز شده، آزمون‌های مختلفی استفاده شدند که عبارت‌اند از طیف‌سنج فروسرخ تبدیل فوریه، پراش پرتو ایکس، میکروسکوپ الکترونی روبشی نشر میدانی و پتانسیل زتا.

۲-۲-۳-۱ آزمون طیف‌سنج فروسرخ تبدیل فوریه

برای شناسایی گروه‌های عاملی در نمونه آزمون از آزمون طیف‌سنج فروسرخ تبدیل فوریه استفاده شد. از دستگاه ساخت شرکت پرکین-المر آمریکا مدل فرانتیر برای انجام این آزمون استفاده شد. اساس این روش، عبور دادن پرتو فروسرخ از نمونه و بررسی جذب و عبور آن است. طیف حاصل از این آزمون، نشان‌دهنده پیوندهای موجود در ماده است. در پژوهش حاضر، این آزمون برای مطالعه تشکیل مولکول‌های Fe_3O_4 و قرارگیری مولکول‌های آسکوربیک اسید بر روی آن از راه شناسایی گروه‌های عاملی آسکوربیک‌اسید بر سطح نانوذرات، به کار رفت.

۲-۲-۳-۲ آزمون میکروسکوپ الکترونی روبشی نشر میدانی

برای انجام این آزمون از دستگاه نانواس‌ای ام ۴۵۰ اف‌ای‌آی ساخت آمریکا استفاده شد. این آزمون برای مطالعه ریخت‌شناسی و همچنین توزیع اندازه نانوذرات استفاده می‌شود و قدرت بزرگ‌نمایی آن تا ۴۰۰۰۰۰ برابر است.

۲-۲-۳-۳ پتانسیل زتا

برای انجام این آزمون از دستگاه ملورن پنالیستیکال استفاده شد. این آزمون برای اندازه‌گیری مقدار بار الکترواستاتیکی سطح نانوذرات استفاده می‌شود و نتایج حاصل از آن می‌تواند محک مناسبی برای بررسی پایداری نانوذرات در محیط آبی باشد.

۲-۲-۴ سیلاب‌زنی در میکرومدل

از میکرومدل ساخته شده از جنس شیشه برای بررسی مسیر حرکت سیالات تزریق شده و همچنین اندازه‌گیری مقدار باز یافت نفت استفاده شد. برای ساخت میکرومدل از طرح دولومیتی ناهمگن استخراج شده از تصاویر مقطع باریکی از سنگ دولومیت استفاده شد. مشخصات میکرومدل ساخته شده در جدول (۲) ارائه شده است. برای انجام آزمایش‌های سیلاب‌زنی در میکرومدل از رایانه، دوربین عکس برداری، منبع نور و پمپ سرنگی استفاده شد.

جدول ۲. مشخصات میکرومدل به کار رفته در پژوهش.

Table 2. Physical characteristics of the micromodel used in the research.

Property	Amount
Width (cm)	6
Length (cm)	6
Average depth (cm)	0.006
Porosity (%)	38
Net Volume (ml)	0.22
Permeability (mD)	890

شد، محلول مد نظر برای بازیابی نفت، با نرخ ۰/۰۵ میلی لیتر بر ساعت در آن تزریق شد و برای ثبت تغییرات، در بازه‌های زمانی ۳ دقیقه‌ای عکسی از میکرومدل گرفته شد. درانتهای آزمون، برای اندازه‌گیری میزان بازیافت، عکس‌ها پردازش شدند. تصویر مجموعه سیلاب‌زنی درون میکرومدل در شکل (۱) نشان داده شده‌است.

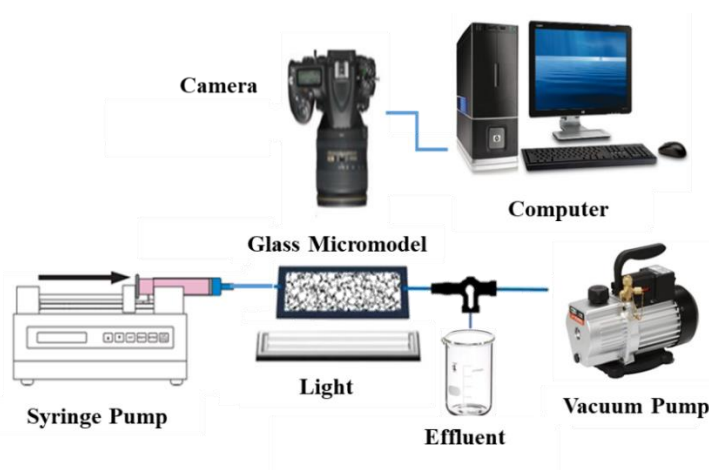
۳. بحث و نتایج

۳-۱-۳ آزمایش‌های شناسایی نانوذره اکسید آهن

۳-۱-۱-۳ آزمون طیف‌سنج تبدیل فوریه فرسرخ

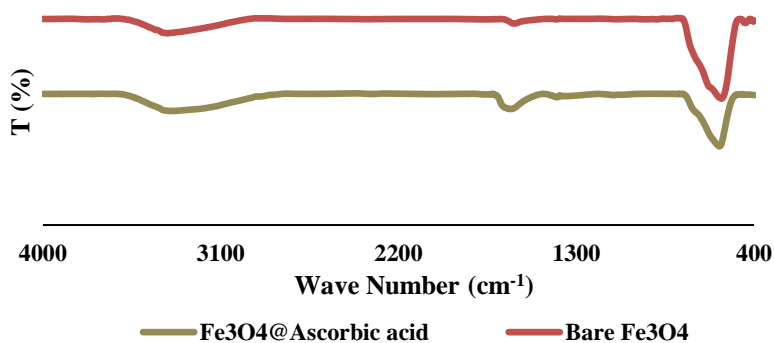
طیف حاصل از این آزمایش برای نانوذرات در شکل (۲) ارائه شده‌است. داده‌های حاصل با نتایج حاصل از پژوهش‌های قبلی مقایسه و پیک مرتبط با هر پیوند در جدول (۳) نشان داده شده‌است.

برای انجام سیلاب‌زنی، ابتدا میکرومدل با استفاده از تولوئن و آب مقطر، شسته و در ادامه، نفت دوست شد [۲۷]. سپس جهت اشباع میکرومدل از نفت، این ماده با نرخ تزریق ۳ سی سی بر ساعت در میکرومدل تزریق شد. پس از این که محیط میکرومدل از نفت اشباع



شکل ۱. تصویر سیلاب‌زنی میکرومدل.

Figure 1. The schematic diagram of micromodel flooding system.



شکل ۲. نمودار FTIR نانوذرات اکسید آهن بدون اصلاح سطحی و همچنین نانوذرات اصلاح سطحی شده.

Figure 2. FTIR diagram of Synthesized Fe_3O_4 nanoparticles and $Fe_3O_4@Ascorbic\ acid$ nanoparticles.

جدول ۳. مقایسه نتیجه آزمون طیف‌سنج تبدیل فوریه فرسرخ نانوذرات سنتز شده با مطالعات پیشین شناسایی پیوندها.

Table 3. The FTIR results comparison with literature results.

Functional group	Wave number (cm ⁻¹)	Refence
Fe-O	570	[28-32]
O-H	3300	[28-32]
C=O at COO	1600 and 1624	[33, 34]
C-O	1400	[34]

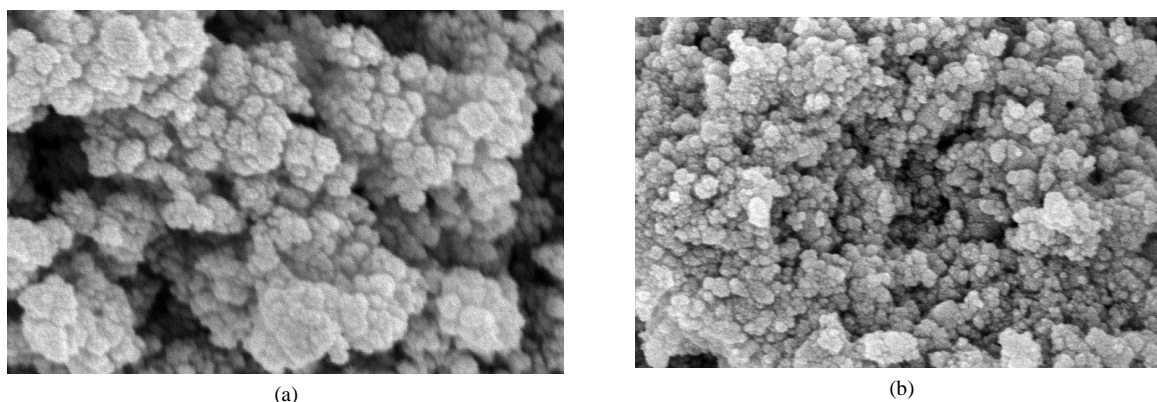
(با اصلاح سطحی و بدون اصلاح سطحی) تهیه شد. در محیط آبی با pH خنثی (برابر با ۷) مقدار این متغیر برای نانوذرات اصلاح نشده برابر با ۱۶/۹- و برای نانوذرات اصلاح شده با آسکوربیک اسید برابر با ۸۴/۷- به دست آمد. جایگاه‌های باردار بر روی مولکول‌های آسکوربیک، به عنوان عامل فعال سطحی عمل کرده، پایداری نانوذرات را در محلول آبی تسهیل می‌کند. عدد حاصل برای پتانسیل زتای نانوذرات اصلاح سطحی شده در محدوده مناسب برای ایجاد پراکنش پایداری از نانوذرات در آب است. لازم به ذکر است که در نانوسیال تهیه شده با غلظت ۰/۵ درصد وزنی بعد از گذشت بیش از ۳۰ روز نیز هیچ رسوبی مشاهده نشد که نشان از پایداری بالای نانوذرات اصلاح سطحی شده است.

۳-۱-۲ میکروسکوپ الکترونی روبشی نشر میدانی

آزمایش میکروسکوپ الکترونی روبشی نشر میدانی برای بررسی مشخصات ریخت‌شناسی و اندازه حدودی نانوذرات سنتز شده استفاده شد. نتایج حاصل از این آزمون برای نانوذرات سنتز شده در شکل (۳) ارائه شده است. شکل نانوذرات کروی است و اندازه حدودی نانوذرات با استفاده از این آزمون برابر با ۲۲ و ۲۸ نانومتر به ترتیب برای نانوذره آهن بدون اصلاح سطحی و اصلاح شده آسکوربیک اسید است که در مقایسه با نتایج مطالعات، سایز نانوذرات تولید شده در محدوده بسیار مناسبی است.

۳-۱-۳ پتانسیل زتا

برای اندازه‌گیری این متغیر، محلول‌هایی از نانوذرات سنتز شده



شکل ۳. تصویر FESEM نانوذرات آهن، (a) بدون اصلاح سطحی (b) اصلاح شده با آسکوربیک اسید.

Figure 3. FESEM results of Fe₃O₄ nanoparticles (a) Bare nanoparticles, (b) Surface modified nanoparticles.

۲-۳ آزمایش‌های سیلاب‌زنی درون میکرومدل

برای بررسی بازدهی سوسپانسیون پایدار حاوی نانوذرات اکسید آهن اصلاح‌شده با آسکوربیک‌اسید در فرایند ازدیاد برداشت نفت، آزمایش سیلاب‌زنی در غلظت ۰/۵ درصد وزنی- که باتوجه‌به مطالعات پیشین و آزمایش‌های انجام‌شده غلظت مناسبی است- انجام شد. در وهله نخست، آزمون تزریق آب اجرا شد که نتیجه نهایی، بازیافت برابر با ۱۹/۸ درصد بود. در ادامه، سیلاب‌زنی با استفاده از نانوسیال حاوی اکسید آهن اصلاح‌شده انجام گرفت. در غلظت ۰/۵ درصد از نانوذره اصلاح‌شده مقدار بازیافت نفت به ۳۰/۹ درصد رسید. بررسی تصاویر نشان داد که وجود نانوذرات، پدیده انگشتی شدن را کاهش داده و از این راه موجب افزایش بازیافت نفت شده است. دلیل این پدیده تغییر ترشوندگی سطح محیط متخلخل به دلیل حضور نانوذرات آب‌دوستی است که به وسیله آسکوربیک‌اسید اصلاح سطح

شده و ترشوندگی آن‌ها از نفت‌دوست به آب‌دوست تغییر کرده است. هم‌چنین افزایش نانوذرات اصلاح سطح شده منجر به افزایش گران‌روی سیال تزریقی می‌شوند که این عامل نیز در افزایش میزان بازیافت نهایی نفت مؤثر است. در شکل (۴) تصویر نهایی در توزیع فازها پس از تزریق یک حجم منفذ آب و هم‌چنین نانوسیال اکسید آهن اصلاح سطح شده نشان داده شده است. لازم به ذکر است که در میزان بازیافت نفت پس از زمان میان‌شکنی و زمان نهایی تفاوت چندانی مشاهده نشد.

وجود نانوذرات در سیال تزریقی، ضخامت لایه نفتی روی دیواره حفره‌های محیط متخلخل را کاهش می‌دهد و لذا موجب تغییر ترشوندگی میکرومدل از نفت‌دوست به آب‌دوست می‌شود. در شکل (۵) تصویر حفره‌ها پس از تزریق آب و محلول نانوسیال حاوی اکسید آهن اصلاح سطح شده نشان داده شده است.



شکل ۴. (a) میکرومدل با تزریق آب، (b) میکرومدل با تزریق نانوسیال اکسید آهن اصلاح سطح شده. Figure 4. Micromodel saturation after (a) Water flooding (b) Nanofluid ($Fe_3O_4@Ascorbic\ acid$) flooding.



شکل ۵. اثر حضور سیال تزریقی بر ضخامت لایه نفتی (a) آب، (b) نانوسیال اکسید آهن اصلاح شده به وسیله آسکوربیک‌اسید. Figure 5. The Effect of flooding on Oil layer thickness (a) Water (B) $Fe_3O_4! Ascorbic\ acid$ nanofluid.

- [3] Naghizadeh, A., Azin, R., Asfour, S., Fatehi, R., (2018), A Study of Nanoparticles Application in Different Oil and Gas Reservoir Rock Types, *Iranian Chemical Engineering Journal*, Vol. 17, No. 97, 32-43, In Persian.
- [4] Dorostkar, M. J., Mohebbi, A., Sarrafi, A., Soltani Goharizi, A., (2009), Experimental investigation of non-mixed alternating injection of hot water and hot carbon dioxide in enhanced oil recovery in a fractured model, *Iranian Chemical Engineering Journal*. Vol. 8, No. 43, 59-73, In Persian.
- [5] Momeni, A., Moradi B., Tangsiri fard J., (2009), A new empirical relationship for calculating the lowest mixing pressure in the mixing injection of hydrocarbon gases, *Iranian Chemical Engineering Journal*, 8(43), 25-31, In Persian.
- [6] Mokhtarian, M. A., Mokhtarian, N., (2024), Experimental study of the effect of different salts on the improvement of cationic surfactant performance from the dynamic interfacial tension of water and oil, *Iranian Chemical Engineering Journal*, 100-116, In Persian.
- [7] Idogun, A. K., Iyagba, E. T., Ukwotije-Ikwut, R. P., & Aseminaso, A. (2016). A Review Study of Oil Displacement Mechanisms and Challenges of Nanoparticle Enhanced Oil Recovery. *SPE Nigeria Annual International Conference and Exhibition*.
- [8] Krishnamoorti, R. (2006b). Technology Tomorrow: Extracting the Benefits of Nanotechnology for the Oil Industry. *Journal of Petroleum Technology*, 58(11), 24-26. <https://doi.org/10.2118/1106-0024-jpt>.
- [9] Zarei Ghobadlou, M., Ahmadiouydarab, M., Asadzadeh, N., (2024), Effect of temperature on enhanced oil recovery from a two-dimensional porous medium when injecting polyacrylamide polymer solution, *Iranian Chemical Engineering Journal*, 118-128, In Persian.
- [10] Krishnamoorti, R. (2006a). Extracting the benefits of nanotechnology for the oil industry. *Journal of petroleum technology*, 58(11), 24-26.
- [11] Hendraningrat, L., Li, S., & Torsæter, O. (2013). A coreflood investigation of nanofluid enhanced oil recovery. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 111, 128-138.
- [12] Torsater, O., Engeset, B., Hendraningrat, L., & Suwarno, S. (2012). Improved oil recovery by nanofluids flooding: an experimental study. *SPE Kuwait international petroleum conference and exhibition*.
- [13] Hendraningrat, L., Shidong, L., & Torsaeter, O. (2012). A glass micromodel experimental study of hydrophilic nanoparticles retention for EOR project. *SPE Russian Oil and Gas Exploration and Production Technical Conference and Exhibition*
- [14] Suleimanov, B., Ismailov, F., & Veliyev, E. (2011). Nanofluid for enhanced oil recovery. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 78(2), 431-437.

۴. نتیجه گیری

در این مطالعه، نانوذرات مغناطیسی اکسید آهن با استفاده از روش هم‌رسوبی سنتز شدند. هم‌چنین با استفاده از آسکوربیک‌اسید برای اصلاح سطحی نانوذرات استفاده شد. برای بررسی تأثیر سیلاب‌زنی نانوسیال حاوی نانوذرات سنتز و اصلاح سطح شده در فرایند ازدیاد برداشت نفت، آزمایش‌های سیلاب‌زنی در میکرومدل انجام شد. نتایج نشان داد که اصلاح سطحی نانوذرات تأثیر چندانی بر روی اندازه نانوذرات ندارد، از طرف دیگر براساس نتایج آزمایش پتانسیل زتا اصلاح سطحی نانوذرات با استفاده از آسکوربیک‌اسید موجب افزایش بار سطحی نانوذرات می‌شود و در نتیجه پایداری آن‌ها را در آب افزایش می‌دهد. باتوجه به آزمایش‌های سیلاب‌زنی در میکرومدل میزان بازیافت نفت با حضور نانوذرات با غلظت ۰/۵ درصد وزنی افزایش پیدا کرد و میزان بازیافت نفت در صورت استفاده از نانوذره اصلاح سطح شده به وسیله آسکوربیک‌اسید، در مقایسه با سیلاب‌زنی با استفاده از آب خالص از ۱۹/۸ به ۳۰/۹ افزایش پیدا کرد.

نتایج این پژوهش، تأییدکننده نتایجی است که در پژوهش‌های پیشین برای نانوذرات مغناطیسی به دست آمده است. نانوذرات اکسید آهن در پژوهش‌های مربوط به ازدیاد برداشت نفت کارایی خود را نشان داده‌اند. به عنوان مثال، نشان داده شده است که در عدم حضور میدان مغناطیسی، میزان افزایش بازیابی نفت در صورت استفاده از نانوذرات سوپراپارامغناطیسی حدود ۳۵٪ است که البته حضور میدان مغناطیسی این میزان را تا ۸۰ درصد افزایش داده است که این میزان افزایش به کاهش گرانروی نفت و کشش سطحی نسبت داده شده است [۳۵]. هم‌چنین نشان داده است که نانوذرات $Fe_3O_4@SiO_2$ میزان بازیابی نفت را تا ۹۰٪ افزایش داده‌اند [۳۶].

مراجع

- [1] Alomair, O. A., Matar, K. M., & Alsaed, Y. H. (2014). Nanofluids Application for Heavy Oil Recovery. *SPE Asia Pacific Oil & Gas Conference and Exhibition*.
- [2] Sarafzadeh, P., Khosravi, Z., Aram, F., Zeinolabedini Hezaveh, A., (2022). Laboratory Study of the Effect of Ionic liquids on the Growth Rate of Microorganisms Applicable in the MEOR and Bioremediation Processes, *Iranian Chemical Engineering Journal*. Vol. 21, No. 123, 59-73, In Persian.

- [15] Yahya, N., Kashif, M., Shafie, A., Soleimani, H., Zaid, H. M., & Latiff, N. R. A. (2014). Improved oil recovery by high magnetic flux density subjected to iron oxide nanofluids. *Journal of Nano Research*.
- [16] Yakasai, F., Jaafar, M. Z., Bandyopadhyay, S., Agi, A., & Sidek, M. A. (2022). Application of iron oxide nanoparticles in oil recovery—A critical review of the properties, formulation, recent advances and prospects. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 208, 109438.
- [17] Liu, Q., Zhang, Y., Zhao, X., Ye, H., & Luo, D. (2022). Enhanced oil recovery by foam flooding using foam stabilized with modified Fe₃O₄ nanoparticles. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 209, 109850
- [18] Ghahraman Afshar, M., Esmailpour, M., (2023), Preparation, characterization, and adsorption properties of bis-salophen schiff base ligand immobilized on Fe₃O₄@SiO₂ nanoparticles for removal of cadmium(II) from aqueous solutions, *Iranian Chemical Engineering Journal*, under press, In Persian.
- [19] Kohkan zadeh, S., Mobasherpour, I., Molaee, M., J., Salahi, E., Pazouki, M., (2023), Studying the effect of adsorption process variables on adsorption capacity and removal percentage of toluene from aqueous solutions by magnetic hydroxyapatite nanoparticles, *Iranian Chemical Engineering Journal*, under press, In Persian.
- [20] Mousavi, S., Movahedi, B., Zarrabi, A., (2016), Study of Magnetic Iron Oxide Nanoparticles Synthesis for Diagnosis-Therapeutic Applications, *Iranian Chemical Engineering Journal*. Vol. 15, No. 84, 6-16, In Persian.
- [21] Elmobarak, W. F., & Almomani, F. (2021). Application of magnetic nanoparticles for the removal of oil from oil-in-water emulsion: Regeneration/reuse of spent particles. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 203, 108591.
- [22] Wei, Y., Han, B., Hu, X., Lin, Y., Wang, X., & Deng, X. (2012). Synthesis of Fe₃O₄ nanoparticles and their magnetic properties. *Procedia Engineering*, 27, 632-637.
- [23] Shen, L., Laibinis, P. E., & Hatton, A. T. (1999). Bilayer Surfactant Stabilized Magnetic Fluids: Synthesis and Interactions at Interfaces. *Langmuir*, 15, 447-453.
- [24] Shariati, S., Faraji, M., Yamini, Y., & Rajabi, A. A. (2011). Fe₃O₄ magnetic nanoparticles modified with sodium dodecyl sulfate for removal of safranin O dye from aqueous solutions. *Desalination*, 270, 160-165.
- [25] Faraji, M., Yamini, Y., Tahmasebi, E., Saleh, A., & Nourmohammadian, F. (2010). Cetyltrimethylammonium bromide-coated magnetite nanoparticles as highly efficient adsorbent for rapid removal of reactive dyes from the textile companies' wastewaters. *Journal of the Iranian Chemical Society*, 7(2), S130-S144.
- [26] Baharin, S. N. A., Sarih, N. M., & Sharifah, M. (2016). Novel Functionalized Polythiophene-Coated Fe₃O₄ Nanoparticles for Magnetic Solid-Phase Extraction of Phthalates. *Polymers*, 8(5).
- [27] Ghalamizade Elyaderani, S. M., Jafari, A., & Razavinezhad, J. (2019). Experimental investigation of mechanisms in functionalized multiwalled carbon nanotube flooding for enhancing the recovery from heavy-oil reservoirs. *SPE Journal*, 24(06), 2, 681-682, 694.
- [28] Hong, R. Y., Li, J. H., Li, H. Z., Ding, J., Zheng, Y., & Wei, D. G. (2008). Synthesis of Fe₃O₄ nanoparticles without inert gas protection used as precursors of magnetic fluids. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 320, 1605-1614.
- [29] Yamini, Y., Faraji, M., & Adeli, M. (2015). Magnetic silica nanomaterials for solid-phase extraction combined with dispersive liquid-liquid microextraction of ultra-trace quantities of plasticizers. *Microchim Acta*, 182(7-8), 1491-1499.
- [30] Subrahmanyam, P. M. (2014). Synthesis and characterization of Fe₃O₄ and solid Solutionmg XFe (1-x) onano powdersfor bio medical Applications.
- [31] Mallakpour, S., & Javadpour, M. (2018). Sonochemical assisted synthesis and characterization of magnetic PET/Fe₃O₄, CA, AS nanocomposites: Morphology and physiochemical properties. *Ultrasonics Sonochemistry*, 40, 611-618.
- [32] Davari, N., Farhadian, M., Soleimaninazar, A., Homayunfal, M., (2016), Degradation of metronidazole drug from polluted waters through titanium oxide/iron oxide nanophotocatalyst based on clinoptilvalite zeolite, *Iranian Chemical Engineering Journal*. Vol. 15 - No. 89, 51-64, In Persian.
- [33] Răcuciu, M., Creangă, D., & Airinei, A. (2006). Citric-acid-coated magnetite nanoparticles for biological applications. *The European Physical Journal E*, 21(2), 117-121.
- [34] Mallakpour, S., & Javadpour, M. (2018b). Sonochemical assisted synthesis and characterization of magnetic PET/Fe₃O₄, CA, AS nanocomposites: Morphology and physiochemical properties. *Ultrasonics sonochemistry*, 40, 611-618.
- [35] Hasani, M., & Jafari, A. (2022). Electromagnetic field's effect on enhanced oil recovery using magnetic nanoparticles: Microfluidic experimental approach. *Fuel*, 307, 121718.
- [36] Elmobarak, W. F., & Almomani, F. (2021). A new insight into the separation of oil from oil/water emulsion by Fe₃O₄-SiO₂ nanoparticles. *Environmental Research*, 202, 111645.