



多孔介质中含溶解反应的互溶驱替过程格子Boltzmann研究 刘高洁 邵子宇 娄钦

A lattice Boltzmann study of miscible displacement containing dissolution reaction in porous medium Liu Gao-Jie Shao Zi-Yu Lou Qin

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 71, 054702 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20211851 在线阅读 View online: https://doi.org/10.7498/aps.71.20211851 当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

不可压幂律流体气--液两相流格子Boltzmann 模型及其在多孔介质内驱替问题中的应用

Lattice Boltzmann model of gas-liquid two-phase flow of incompressible power-law fluid and its application in the displacement problem of porous media

物理学报. 2019, 68(21): 214702 https://doi.org/10.7498/aps.68.20190873

倾斜多孔介质方腔内纳米流体自然对流的格子Boltzmann方法模拟

Numerical simulation of natural convection of nanofluids in an inclined square porous enclosure by lattice Boltzmann method 物理学报. 2020, 69(16): 164401 https://doi.org/10.7498/aps.69.20200308

使用条件生成对抗网络生成预定导热率多孔介质

Predetermined thermal conductivity porous medium generated by conditional generation adversarial network 物理学报. 2021, 70(5): 054401 https://doi.org/10.7498/aps.70.20201061

含少量气泡流体饱和孔隙介质中的弹性波

Propagation of elastic waves in saturated porous medium containing a small amount of bubbly fluid 物理学报. 2018, 67(11): 114301 https://doi.org/10.7498/aps.67.20180209

流体/准饱和多孔介质中伪Scholte波的传播特性

Propagation characteristics of pseudo-Scholte waves at the interface between finite-thickness fluid layer and quasi-saturated porous half-space

物理学报. 2018, 67(20): 204302 https://doi.org/10.7498/aps.67.20180853

自由流体层与多孔介质层界面的盐指现象的统一域法模拟

Numerical study on salt finger at interface between fluid layer and porous layer by single-domain approach 物理学报. 2020, 69(21): 214701 https://doi.org/10.7498/aps.69.20200351

多孔介质中含溶解反应的互溶驱替过程 格子 Boltzmann 研究^{*}

刘高洁1)2)† 邵子宇1)2) 娄钦1)2)

(上海理工大学能源与动力工程学院,上海 200093)
 (上海理工大学,上海市动力工程多相流动与传热重点实验室,上海 200093)

(2021年10月6日收到; 2021年11月15日收到修改稿)

采用格子 Boltzmann 方法研究了孔隙尺度下多孔介质内含流固溶解反应的互溶驱替过程,重点研究了 被驱替流体与驱替流体黏性差异较大的情况下,溶解反应引起的多孔介质内部结构变化对驱替过程的影响; 定量分析了不同达姆科勒数及佩克莱数下多孔介质孔隙率和驱替过程驱替效率随时间的演变.研究结果表 明:达姆科勒数较大时,溶解反应的发生会在多孔介质内部生成虫洞,导致一部分被驱替流体不能被波及,驱 替流体沿虫洞离开多孔介质,造成驱替效率的减少.在此基础上,随着达姆科勒数的增大,孔隙率变化越大, 生成的虫洞越宽,最终驱替效率变大,但仍小于无溶解反应时的驱替效率;随着佩克莱数的增大,指进增长速 度越快,孔隙率变化越小,驱替效率越小.

关键词: 多孔介质, 互溶驱替, 溶解反应, 格子 Boltzmann 方法 PACS: 47.11.-j, 47.56.+r, 47.20.Gv

DOI: 10.7498/aps.71.20211851

1 引 言

多孔介质中含流固溶解反应的互溶驱替过程 在地下水污染治理^[1]、二氧化碳埋存^[2]及温室气体 强化采油^[3]等领域广泛存在,是能源、环境等学科 共同关注的典型问题.如在地下水污染治理中,污 水会不断侵蚀和驱替地下水,同时污水中的酸根离 子会与地层中的岩石 (如方解石、白云石等)发生 溶解反应,使岩石结构发生显著变化,进而影响流 体流动.在此驱替过程中,流动、扩散以及化学反 应三者同时存在,相互耦合.如何有效地控制含溶 解反应下的驱替是相关领域的关键技术之一.

关于互溶驱替问题的研究由来已久. 当驱替流体黏性小于被驱替流体时,可能产生黏性指进现

象. Saffman 和 Taylor^[4] 采用 Hele-Shaw 装置对 多孔介质内的驱替问题进行实验研究,并提供了 黏性指进指端发展的数学模型; Zimmerman 和 Homsy^[6] 通过数值模拟研究了二维非均质多孔介 质中互溶驱替过程; Wit 和 Homsy^[6] 研究了多孔 介质中流体间化学反应与黏性指进的非线性相互 作用,发现反应会使指进形态特征和传播机制发生 显著的变化; 之后, Nagatsu 等^[7] 通过实验及理论 方法研究了流体间沉淀反应对指进的影响,并讨论 了渗透率变化与指进发展之间的关系. 需要指出的 是,上述研究涉及的化学反应均是流体与流体之间 的化学反应,少有对流体与多孔介质骨架之间存在 化学反应的互溶驱替现象的研究.

另一方面,研究人员采用不同方法研究了多孔 介质中含化学反应的各种问题. Békri 等^[8]率先将

© 2022 中国物理学会 Chinese Physical Society

^{*} 国家自然科学基金 (批准号: 51806142)、上海青年科技英才扬帆计划 (批准号: 18YF1418000) 和上海市自然科学基金 (批准号: 19ZR1435700) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: liugj@usst.edu.cn

随机模型和矩量法相结合以计算固体壁面处的反 应速率; Luo 等^[9]和 Oltéan 等^[10]通过 arbitrary-Lagrangian-Eulerian (ALE) 方法求解欧拉网格上 的物理问题(如溶质扩散、界面反应等),该方法需 要及时更新欧拉网格; Soulaine 等^[11]提出了一种 基于 Dancy-Brinkman-Stokes (DBS) 方程的方法 来模拟单相流动下固体的溶解反应,并通过实验验 证了该方法的有效性.由于孔隙尺度下多孔介质内 固体骨架形状复杂,尤其当固体骨架随着反应发生 而不断变化时,传统数值方法处理起来难度较大. 近三十年来,格子 Boltzamnn 方法 (lattice Boltzmann method, LBM) 作为一种介观的模拟方法, 可以更方便地处理复杂微观孔隙结构内流体与固 体之间、不同流体组分之间复杂的相互作用[12-14], 对于多孔介质内流动与反应耦合的问题, 也受到了 学者们的广泛关注.如 He 等^[15]将流体-壁面间的 表面反应与扩散机理相耦合,通过边界条件实现了 表面反应的产生; Kang 等^[16] 在 He 模型的基础上 建立了一种格子 Boltzmann 模型,模拟了多孔介 质中两种水合物的流动与反应过程,并考虑了多孔 介质几何形状的演化,该模拟结果与实验观察的现 象相符合: 之后又进一步研究了多组分溶液在多孔 介质中的反应性传输[17];张婷等[18]详细分析了各 无量纲参数对多孔介质内溶解和沉淀过程的影响; Ju 等^[19]提出了一种适用于不规则表面的反应边界 格式,并成功将其拓展至三维模型; Meng 等^[20] 从 多尺度分析了非均相反应对密度驱动流的影响,发 现界面的不稳定性由流体密度差、反应速率和孔隙 率变化三者共同决定.

综上所述,虽然目前的研究对于多孔介质互溶 驱替过程和多孔介质中含化学反应的问题均有充 足的认识,但对于多孔介质内含溶解反应的互溶驱 替过程研究尚不充分,此过程中的驱替规律尚待研 究.本文采用LBM对孔隙尺度下多孔介质内含溶 解反应的互溶驱替过程进行研究,着重分析驱替过 程中溶解反应对多孔介质结构和驱替效率造成的 影响,寻求控制流体驱替的方法,为地下水污染治 理,二氧化碳混相驱油等技术提供思路.

2 问题描述

2.1 物理问题

本文研究孔隙尺度下多孔介质中含溶解反应

的互溶流体驱替过程.其中,多孔介质固体骨架结构是通过对 CT 扫描得到的多孔介质灰度图进行 二值化处理而获得的,多孔介质区域宽度和高度分 别为 l_x 和 l_y , $l_x = l_y$.多孔介质孔隙率 ε 的定义为

$$\varepsilon = \frac{V_{\text{pore}}}{V_{\text{total}}},\tag{1}$$

其中V_{pore}为孔隙所占体积,V_{total}为多孔介质的总体 积.图1所示的多孔介质中,蓝黑色不规则部分代 表的是多孔介质固体骨架 B,该多孔介质初始孔隙 率ε₀为0.864,下标"0"表示初始时刻.





系统设置如图 1 所示. 在初始时刻, 0.05 $l_x \leq x \leq l_x$ 区域的多孔介质中充满了黏性为 μ_2 的被驱 替流体 (Fluid 2), 该流体处于静止状态. 剩余部分 的多孔介质中充满了黏性为 μ_1 的驱替流体 (Fluid 1), 然后从多孔介质左侧以恒定速度 u_0 持续注入该驱 替流体, 两流体等温, 可互溶, 且均为不可压缩流 体. 在驱替流体中含有溶质 A, 流体无量纲浓度为 $C_1 = 1$; 被驱替流体中不含该溶质, 流体无量纲浓 度 $C_2 = 0$. 在驱替过程中溶质 A 与固体骨架 B发 生溶解反应, $A + B \rightarrow P$, 反应产物 P 为溶于流体 的酸根离子.

2.2 数学描述

在孔隙尺度下,多孔介质内流体的流动可用如 下方程组来刻画:

$$\nabla \cdot \boldsymbol{u} = 0, \qquad (2)$$

$$\frac{\partial \boldsymbol{u}}{\partial t} + \boldsymbol{u} \cdot \nabla \boldsymbol{u} = -\nabla p + \nabla \cdot (\nu \nabla \boldsymbol{u}), \qquad (3)$$

其中 (2) 式为不可压流体的连续性方程, (3) 式为 不可压 Navier-Stokes 方程. u 为流体流过多孔介 质孔隙时的速度, t 为时间, p 为压力, ν 为流体的 运动黏度.

多孔介质内两种流体间溶质的扩散采用对流 扩散方程来描述.本文考虑的是流体与固体之间的 溶解反应,不包括流体之间的化学反应.因此,对 流扩散方程中不包含源项,即

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \boldsymbol{u}\nabla C = D\nabla^2 C, \qquad (4)$$

其中, *C*为流体中溶质的浓度, *D*为溶质间的扩散 系数.

系统边界条件如下:当x = 0时, $u = (u_0, 0)$, $C = C_1$;当 $x = l_x$ 时, $\frac{\partial u}{\partial t} + u_0 \frac{\partial u}{\partial x} = 0$, $\frac{\partial C}{\partial x} = 0$;上 下边界的速度场满足无滑移条件,对于上下边界的 浓度场,则有 $\nabla C = 0$.

此外,对于多孔介质固体骨架与溶质间的溶解 反应,也通过边界条件实现.考虑到实际工程中溶 质与固体间的溶解反应机理过于复杂,本文对该反 应进行简化处理,采用如下的线性反应边界条件^[18] 来描述:

$$D\frac{\partial C_w}{\partial \boldsymbol{n}} = k_{\rm r} \left(C_{\rm w} - C_{\rm eq} \right), \qquad (5)$$

其中, k_r为溶解反应的反应速率常数, n 为固体壁 面指向流体的法线方向, C_w 为固体壁面处流体的 浓度, C_{eq}代表平衡浓度, 本文中溶解反应是不可 逆的, C_{eq}设为 0.

该系统有 4 组无量纲参数, 分别为雷诺数 (Reynolds number, Re), Re = $u_0 l_x / \nu_2$; 佩克莱数 (Pèlcet number, Pe), Pe = $u_0 l_x / D$; 黏性比 (viscosity ratio, M) 定义为两流体的黏性之比, M = μ_2 / μ_1 ; 达姆科 勒数 (Damkohler number, Da), $Da = k_r l_y / D$. 在驱替过程中,由于两种流体互溶, 流体黏性与浓度相关,即

$$\mu(C) = \mu_2 \mathbf{e}^{-RC},\tag{6}$$

其中 $R = \ln M$.需要注意的是,当驱替流体黏性远 小于被驱替流体时,会产生明显的指进现象^[21,22]. 本文研究的驱替问题考虑的均是两互溶流体黏性 差异较大的情况,黏性比设定为M = 100.

3 格子 Boltzmann 方法

本文采用多孔介质中流体流动及扩散的耦合 格子 Boltzmann (lattice Boltzmann, LB) 模型^[23] 来求解 (2) 式—(4) 式组成的方程组. 该模型为双 分布模型, 用两组演化方程分别描述速度场和浓 度场.

3.1 耦合 LB 模型

速度场可用如下演化方程来描述:

$$f_i(\boldsymbol{x} + \boldsymbol{c}_i \delta_t, t + \delta_t) - f_i(\boldsymbol{x}, t) = \Omega_i(\boldsymbol{x}, t),$$

$$i = 0, 1, \cdots, q - 1,$$
 (7)

其中 q是离散速度的个数, $f_i(x,t)$ 是粒子在 t时刻 x处离散速度为 c_i 的分布函数, δ_t 为时间步长, Ω_i 是碰撞矩阵. 流体的密度和速度可以表示为

$$\rho = \sum_{i} f_{i}, \quad \rho_{0} \boldsymbol{u} = \sum_{i} \boldsymbol{c}_{i} f_{i}. \tag{8}$$

已有研究证明多松弛 (multiple-relaxtiontime, MRT) 模型在模拟孔隙尺度下多孔介质内流 动问题时,相比于 Bhatnagar-Gross-Krook (BGK) 模型,具有更好的数值稳定性^[24].故本文采用 MRT 模型求解流动方程.

MRT 模型的碰撞算子可表示为

$$\boldsymbol{\Omega}(\boldsymbol{x},t) = -\boldsymbol{M^{-1}S}\left[\boldsymbol{m}(\boldsymbol{x},t) - \boldsymbol{m}^{(\text{eq})}(\boldsymbol{x},t)\right], \quad (9)$$

其中 $m 和 m^{(eq)}$ 分别是矩向量和矩空间中的平衡态, M是将分布函数映射到矩空间的 $q \times q$ 的变换矩阵, $m = M \cdot f$, $S = \text{diag}(s_0, s_1, \dots, s_{q-1})$ 为松 弛矩阵.

本文考虑的是二维问题,采用二维九速 (D2Q9) 离散速度模型,该模型中离散速度 c_i定义为

$$\boldsymbol{c}_{i} = \begin{cases} (0,0), & i = 0, \\ \left(\cos\left[(i-1)\pi/2\right], \sin\left[(i-1)\pi/2\right]\right) c, & i = 1-4, \\ \left(\cos\left[(i-1)\pi/2 + \pi/4\right], \sin\left[(i-1)\pi/2 + \pi/4\right]\right)\sqrt{2} c, & i = 5-8, \end{cases}$$
(10)

其中 $c = \delta_x / \delta_t$, $\delta_x 和 \delta_t$ 分别为网格步长和时间步长, 本文取c = 1. 变换矩阵 **M** 为

	(1	1	1	1	1	1	1	1	1				
M =	_	4	-1	-1	-1	-1	2	2	2	2				
		4	-2	-2	-2	-2	1	1	1	1	,			
		0	1	0	-1	0	1	-1	-1	1			(
		0	-2	0	2	0	1	-1	-1	1				(11)
		0	0	1	0	-1	1	1	-1	-1				
		0	0	-2	0	2	1	1	-1	-1				
		0	1	-1	1	-1	0	0	0	0				
		0	0	0	0	0	1	-1	1	$^{-1}$)				

其对应的矩向量为

 $m = (\rho, e, \varepsilon, j_x, q_x, j_y, q_y, p_{xx}, p_{xy})^T$, (12) 其中 T 表示转置变换. (12) 式中的各个矩的物理 含义如下: ρ 是流体密度; $e \ \pi \varepsilon \ \beta$ 别是总能和能量 的平方; $j_x \ \pi j_y \ \beta$ 别为 $x \ \pi y \ \beta$ 量上的动量, $j_x = \rho u_x$, $j_y = \rho u_y$; $q_x \ \pi q_y$ 则是 $x \ \pi y \ \beta$ 量上的能量通 量; $p_{xx} \ \pi p_{xy} \ \beta$ 别为应力张量的对角线和非对角 线上的元素. 对于不可压流体, 流体密度近似为常 数, 记作 ρ_0 , 而密度波动为 $\delta \rho$, 从而有 $\rho = \rho_0 + \delta \rho$. 相应矩空间中的平衡态如下:

$$\boldsymbol{m}^{\text{eq}} = (\rho, \ -2\rho + 3\rho_0 u^2, \ \rho - 3\rho_0 u^2, \ \rho_0 u_x, -\rho_0 u_x, \\ \rho_0 u_y, \ -\rho_0 u_y, \ \rho_0 u_x^2 - \rho_0 u_y^2, \ \rho_0 u_x u_y)^{\text{T}},$$
(13)

其中, 流体密度 ρ 和动量 $j = \rho_0 u = (j_x, j_y)$ 是碰撞 守恒量. 而其他非守恒的平衡态是守恒量的函数, 具有如下形式:

$$e^{(\text{eq})} = -2\rho + 3\rho_0 u_x^2 + 3\rho_0 u_y^2 , \qquad (14)$$

$$\varepsilon^{(\text{eq})} = \rho - 3\rho_0 u_x^2 - 3\rho_0 u_y^2 ,$$
 (15)

$$q_x^{(\text{eq})} = -\rho_0 u_x , \qquad (16)$$

$$q_y^{(\text{eq})} = -\rho_0 u_y , \qquad (17)$$

$$p_{xx}^{(\text{eq})} = \rho_0 \left(u_x^2 - u_y^2 \right) , \qquad (18)$$

$$p_{xy}^{(\text{eq})} = \rho_0 u_x u_y . \tag{19}$$

此模型的松弛参数为

$$\boldsymbol{S} = \operatorname{diag}\left(s_{\rho}, s_{e}, s_{\varepsilon}, s_{j}, s_{q}, s_{j}, s_{q}, s_{\nu}, s_{\nu}\right).$$
(20)

注意到流体密度和动量在碰撞过程中守恒,这些矩 对应的松弛率 s_{ρ} 和 s_{j} 可取任意值.其他松弛率为 $s_{e} = s_{\varepsilon} = s_{\nu} = s_{\nu} = 1/\tau$, $s_{q} = 8(2 - s_{\nu})/(8 - s_{\nu})^{[24]}$, 其中 τ 与流体动力黏性 ν 相关,

$$\nu = \frac{1}{3} \left(\tau - \frac{1}{2} \right) \delta t. \tag{21}$$

浓度场则用另一组演化方程来描述:

 $g_i(\mathbf{x}+\mathbf{c}_i\delta t,t+\delta t) = g_i^{(eq)}(\mathbf{x},t), i=0,1,\cdots,8,$ (22) 其中 $g_i(\mathbf{x},t)$ 为浓度 C的分布函数, 离散速度和上 文中用于描述速度场的 MRT 模型中的离散速度 一致; 平衡态分布函数 $g_i^{(eq)}$ 为

$$g_i^{(\text{eq})} = \omega_i C \left(1 + \frac{\boldsymbol{c}_i \cdot \boldsymbol{u}}{c_s^2} \right) + \omega_i A \delta t \left(\boldsymbol{c}_i \cdot \nabla C \right), \quad (23)$$

其中 ω_i 为权系数, $\omega_0 = 4/9$, $\omega_{1-4} = 1/9$, $\omega_{5-8} = 1/36$,而 $c_s^2 = c^2/3$.参数 A 与扩散系数 D 相关:

$$D = c_s^2 \left(\tau_D - 1/2 - A \right) \delta t.$$
 (24)

对于扩散系数较小 (或 Pe 数较大) 的情况, 可通过 调整参数 A 来提高数值稳定性.

此模型中,浓度定义如下:

$$C(\boldsymbol{x},t) = \sum_{i} g_i(\boldsymbol{x},t).$$
 (25)

(23)式中的浓度梯度可由该点非平衡态函数的一阶矩得到,计算如下:

$$-c_s^2 \delta t \nabla C = \sum_i \boldsymbol{c}_i (g_i - g_i^{\text{eq}}), \qquad (26)$$

即

$$\nabla C = \frac{\sum_{i} c_{i}g_{i} - C\boldsymbol{u}}{c_{s}^{2}\delta t(A - \tau_{D})}.$$
(27)

3.2 边界处理

对于不同的边界条件,均需进行边界处理.其 中左右边界均采用非平衡外推格式进行处理^[25]. 对于上下边界和多孔介质内部的固体骨架,速度满 足无滑移条件,采用半反弹格式来处理^[26].标准反 弹格式固体边界位于格点上,而半反弹格式的固体 边界位于格点的中间,即 $(x_f + x_b)/2$ 处,其中 x_b 是 固体格点, x_f 是临近固体壁面的流体格点.

$$f_{\overline{\imath}}\left(\boldsymbol{x}_{\mathrm{f}}, t + \delta t\right) = f'_{i}\left(\boldsymbol{x}_{\mathrm{f}}, t\right), \qquad (28)$$

其中 δ t为时间步长, $c_{\bar{i}} = -c_i(c_i \pm \hbar)$, $f'_i(x_f, t)$ 为 $f_i(x_f, t)$ 碰撞后的值.

对于上下边界的浓度场, $\nabla C = 0$. 可用一种类 反弹格式来实现^[27]:

$$g_{\overline{i}}\left(\boldsymbol{x}_{\mathrm{f}}, t + \delta t\right) = g'_{i}\left(\boldsymbol{x}_{\mathrm{f}}, t\right), \qquad (29)$$

其中 g_i 是 g_i 碰撞后的分布函数, 定义见 (22) 式等 号右边.

多孔介质固体骨架与溶质间的溶解反应,用 (5)式来表示,采用修正半反弹格式^[28]来处理:

$$g_{\overline{i}} \left(\boldsymbol{x}_{\mathrm{f}}, t + \delta t \right) = -g_{i}' \left(\boldsymbol{x}_{\mathrm{f}}, t \right) + 2\omega_{i} C_{\mathrm{w}}, \qquad (30)$$

其中Cw可由有限差分格式得出:

$$\frac{\partial C_{\rm w}}{\partial \boldsymbol{n}} = \frac{C_{\rm f} - C_{\rm w}}{-0.5\boldsymbol{n} \cdot \boldsymbol{e}_i \delta \boldsymbol{x}},\tag{31}$$

其中, Cf 为固体壁面附近流体节点的浓度.

溶解反应在固相上的表现为固体体积的不断 变化,同时假定固体骨架主要由易溶盐矿物组成, 能够全部溶解.节点处固体体积随时间的变化规律 满足公式^[17]:

$$\frac{\partial V}{\partial t} = V_{\rm m} a_{\rm s} k_{\rm r} \left(C_{\rm eq} - C \right), \qquad (32)$$

其中, V表示多孔介质固体骨架的体积, Vm 表示其 摩尔体积, as表示化学计量数, 此处即反应表面积. 每个固体节点表示为一个控制体积, 初始时其大小 为1×1的单位网格单元. 在发生反应时, 固体节点 的体积在每个时刻依据以下式子更新:

 $V(t + \delta t) = V(t) + V_m a_m k_r (C_{eq} - C) \delta t.$ (33) 当固体节点的体积 V = 0时,说明该部分固体已被 完全溶解,节点被更新为流体节点,其浓度由附近 流体点浓度的平均值求得,而速度则取为 0.

3.3 模型验证

本节通过模拟两平板间的互溶驱替过程, 对所 使用的耦合 LB 模型进行验证. 如图 2 所示, 计算 区域为 0 $\leq x \leq l_x$, 0 $\leq y \leq l_y$; 初始时刻, 计算区 域内 0.1 $l_x \leq x \leq l_x$, 0 $\leq y \leq l_y$ 的部分充满了浓度 为 $C = C_2 = 0$, 动力黏度为 $\mu = \mu_2$ 的被驱替流体, 剩余部分充满了浓度为 $C = C_1 = 1$, 动力黏度为 $\mu = \mu_1$ 的驱替流体; 之后, 从计算区域左边界以速度 u = (0.005, 0)持续注入该驱替流体.本节采用的网





图 2 两平板间的互溶驱替问题初始状态示意图 Fig. 2. Schematic illustration of the initial status of the miscible displacement of two parallel plates.

在此驱替过程中,系统的控制方程为 (2) 式— (4) 式组成的方程组,本节的边界条件给定如下: 当x = 0时, $u = (u_0, 0)$, $c = c_1$;当 $x = l_x$ 时, $\frac{\partial u}{\partial t} + u_0 \frac{\partial u}{\partial x} = 0$, $\frac{\partial c}{\partial x} = 0$;上下边界为壁面,速度满足无 滑移条件,对于浓度场, $\nabla C = 0$.本节模拟了文 献[21]中的4种工况:1)M = 1,Pe = 5;2)M = 1, Pe = 262;3)M = 100,Pe = 5;4)M = 100, Pe = 262.模拟结果如图 3 所示,图中还给出了纵 截面的平均浓度分布图,通过对比可以发现与文献 中结果完全一致,即验证了该耦合 LB 模型模拟互 溶驱替过程的准确性.

4 数值结果与分析

4.1 网格无关性验证

为确保选取网格的计算精度和计算效率,在数 值模拟之前要进行网格无关性的验证.计算区域 的长和宽为 $l_x = l_y = 32$,分别选择512×512和 1024×1024的网格尺寸来描述图1中的多孔介质 系统.在本次模拟中,设定 $u_0 = (0.005,0)$, Re = 32, Pe = 262 及 Da = 0.为量化不同网格间的差异,选 取y = 16处的横截面作为观测面,图4为观测面上 流体的平均浓度和平均速度随时间的演变图.需要 注意的是,在本文的模拟中,特征时间 $\tau = l_y/u_0$, 无量纲时间 $t = \delta t N_{step}/\tau$,其中 N_{step} 为模拟所用时 间步,后文中t均为无量纲时间.如图4所示,在 512×512和1024×1024这两种网格下演化过程符合 良好,因此选取512×512的网格即可满足网格无关.

4.2 达姆科勒数的影响

在含溶解反应的驱替过程中, Da 数为表征溶 解反应速率的无量纲参数, 本节将研究 Da 数对驱 替过程的影响. 首先模拟了 3 种不同工况下的互溶



图 3 4种工况下的互溶驱替现象和平均浓度分布图

Fig. 3. Miscible displacement phenomena and the average concentration distributions of four different cases.





驱替过程,工况一为无溶解反应 (*Da* = 0)的互溶 驱替过程;工况二为含有溶解反应且反应速率较 小 (*Da* = 4)的互溶驱替;工况三中溶解反应速率 较大 (*Da* = 32). 雷诺数设定为*Re* = 32,佩克莱数 设定为*Pe* = 262,黏性比设定为*M* = 100.图5给 出了3种工况下不同时刻流体的浓度场图.需要指 出的是,浓度场图中蓝黑色不规则部分代表的是多 孔介质固体骨架 *B*,随着溶解反应的发生,部分固 体骨架被溶解,多孔介质结构随之发生改变.

如图 5(a) 所示, 在驱替过程早期 (t = 0.0488), 驱替流体刚进入多孔介质, 与多孔介质固体骨架的接触面积较小, 溶解反应的量也较小, 因此 3 种工况下流体的浓度场之间无明显差异.

随着驱替过程的进行 (*t* = 0.2441, 见图 5(b)), 受驱替流体和被驱替液流体间的黏性差异以及多 孔介质孔隙结构两种因素的影响, 在两流体界面上 产生黏性指进现象. 此外, 在工况二及工况三中, 驱替流体与多孔介质固体骨架发生流固溶解反应, 部分固体骨架逐渐被溶解,扩大了多孔介质的孔隙 率.但由于溶解反应的发生消耗了一部分溶质,因 此 Da 数较大时指进发展的速度相对较慢.总体上, 此时 3 种工况下流体的浓度场差异仍不大.

随后 (*t* = 0.4883, 见图 5(c)),随着驱替流体 不断向前推进,工况二和工况三中溶解反应沿指进 发展路径不断发生,从而在多孔介质内部形成裂 缝,使后续驱替流体沿裂缝前进.与此同时,在工 况三中,驱替流体与多孔介质固体骨架间持续发生 溶解反应,促进了裂缝的扩展,形成两条明显的通 道,即虫洞现象^[29–31],而工况二中由于溶解反应速 率较小,没有出现明显的虫洞.由此可以推测,存 在一个临界 *Da*_{cr}数,当 *Da* 数达到临界值时,互溶 驱替过程中由于流固溶解反应的发生会使多孔介 质中出现虫洞.工况二中由于 *Da* 数未达到临界值, 所以驱替过程和工况一类似.本文将在下文中对临 界 *Da*_{cr}数作进一步的讨论.此外,随着驱替的不断 进行,工况一和工况二中驱替流体仍以指状不断前



Fig. 5. Snapshots of the concentration field in porous media at different times under three cases.

进,且随着溶质的扩散,驱替流体与被驱替流体之间的界面逐渐增厚,与工况三形成明显差异.另外要注意的是,工况二和工况三中流固溶解反应的发生同时会降低驱替流体的浓度,减小驱替流体与被驱替流体间的黏性差异,从而减少黏性指进的持续发展.因此,工况二中指进的发展较工况一略有减少.

最后 (*t* = 0.7324, 见图 5(d)), 工况一和工况 二中驱替流体继续沿着指进的路径不断驱离多孔 介质区域, 且工况二中指进数量明显少于工况一; 而工况三中驱替流体则沿着虫洞通道驱离. 在 3 种 工况中, 随着溶质间的扩散仍不断进行, 指进和虫 洞均被不断拓宽.

为研究临界 Da_{cr} 数的存在,图 6 给出了 t = 0.7324 时刻 $Da = 4 \pi 8$ 的浓度场图.可以看出, Da = 4时由于反应速率较小,驱替过程中无明显 的虫洞现象;通过实验发现,当Da = 8时,驱替过 程中可见虫洞的形成.由此可推出,存在临界达姆 科勒数 Da_{cr} ,当 $Da \ge Da_{cr}$ 时,驱替过程中会有虫 洞现象生成.由于驱替现象会随着多孔介质结构的 改变而呈现出不同的细节,不同多孔介质下 Da_{er}的具体数值会有所差异.本节各工况中的多孔介质 结构见图 1,对应的Da_{er}≈8.



图 6 Da = 4, 8的浓度场图 (t = 0.7324)Fig. 6. Concentration contours for Da = 4, 8 at t = 0.7324.

下文以 Da_{cr} 为界, 讨论不同 Da 数下, 多孔介 质孔隙率 ε 和驱替效率 η 随时间的变化情况, 其余 无量纲数与 4.1 节保持一致. 图 7(a) 为Da = 0, 2, 4, 8时多孔介质孔隙率随时间的变化曲线. 可以看出, 当Da = 0, 即无溶解反应时, 多孔介质孔隙率保持 不变; 当Da = 2, 4, 8, 即溶解反应较小时, 由于反



图 7 不同 Da 数下, (a), (b) 多孔介质孔隙率和 (c), (d) 驱替效率随时间的变化图 Fig. 7. Time evolutions of (a), (b) the porosity and (c), (d) displacement efficiency for different Damkohler numbers.

应的发生,孔隙率随时间不断增大.且随着 Da 数的增大,同时刻多孔介质的孔隙率越大.图 7(b) 为Da = 16,32,160,320时多孔介质孔隙率随时间 的变化曲线,此时溶解反应会生成明显的虫洞.从 图 7(b) 可以看出, 与 Da 数较小时不同的是, 孔隙 率随时间的变化趋势为s型曲线.初始阶段,驱替 流体与多孔介质固体骨架接触面积小,溶解多孔介 质骨架的量小,多孔介质孔隙率缓慢增长;伴随驱 替流体的逐渐进入, 驱替流体与多孔介质接触面积 变大,溶解多孔介质骨架的量逐渐变多,多孔介质 孔隙率越来越大,且孔隙率的增长也逐渐加快,在 t = 0.35左右孔隙率的变化速率达到顶峰,此时为 驱替流体初次到达流场出口的时间;之后,由于大 量固体骨架已经被溶解,驱替流体只能持续性拓宽 虫洞周围,因此孔隙率变化较为缓慢,这在图 5(d) 中也可体现.此外,随着 Da 数的增大,同时刻多孔 介质的孔隙率越大,这与 Da 数较小时情况相同. 这是因为当Re数, Pe数和黏性比 M保持不变时, 增大 Da 数等价于增大反应速率常数 ki. 反应速率 越大,相同时间内溶解的多孔介质骨架越多,因此 孔隙率越大.具体地,当t=0.7324, Da=4时孔隙

率为 0.9122, 较初始孔隙率提高了 5.49%; 当*t* = 0.7324, *Da* = 32时孔隙率为 0.9421, 较初始时刻 孔隙率提高了 9.03%; 当*t* = 0.7324, *Da* = 320时 孔隙率为 0.9524, 较初始时刻孔隙率提高 10.22%, 说明此时 *Da* 数的影响已经减弱.

为了定量描述驱替效率,定义驱替效率

r

$$\eta = V(t)/V_{\text{total}},\tag{34}$$

其中V(t)表示在t时刻驱替流体所占的体积, V_{total} 为多孔介质的总体积.需要说明的是,驱替效率应为驱替流体所占体积与流体所占总体积之比.本文中溶解反应的发生会改变多孔介质结构,从而改变流体所占的总体积.为使驱替效率中所对比的量保持一致,本文设定驱替效率为驱替流体所占的体积与多孔介质总体积之比.此外,由于溶质间会发生扩散,此处定义溶质浓度 $C \ge 0.5$ 时为驱替流体.

图 7(c) 为 Da = 0,2,4,8 时驱替效率随时间的 变化曲线.该过程可以分前后两个部分进行讨论. 在 t = 0-0.35 时,驱替流体并未流出多孔介质区 域,驱替效率增长较快.由于此时 Da 数较小,不 同 Da 数下驱替效率相差不大.当t > 0.35 时,部 分驱替流体已流出多孔介质区域,驱替效率在微降 后缓慢增长.此阶段,随着 Da 数的增大,驱替效率 越小.这是因为 Da 数较大时,指进波及范围减少, 虫洞现象逐渐明显 (如图 6 所示),驱替效率越低.

图 7(d) 为 Da = 16,32,160,320 时驱替效率随 时间的变化曲线. 当t = 0-0.35时, 驱替效率同样 快速增长. Da 数越大, 驱替效率越小. 当t > 0.35 时驱替效率会有一个小幅下降的过程. 驱替效率出 现短时下降一方面是因为一部分驱替流体已经离 开了流场,另一方面是因为此时驱替流体波及范围 较广,溶解反应发生部位较多,反应消耗的驱替流 体较多,导致流入多孔介质驱替流体的量少于流出 的量加上反应的量, 驱替效率下降. 随着时间的发 展,如图 5 所示,驱替流体波及范围逐渐增大,驱 替效率会逐渐变大.另外,在驱替过程后期,随着 Da数的增大, 驱替效率也越大 (如图 7(d) 中插图 所示). 这是因为 Da 数越大, 生成的虫洞相对越宽, 驱替流体波及范围相对越广, 驱替效率越大. 具体 地,在t = 0.7324时刻,Da = 32时驱替效率为 0.3478, 而 Da = 320 的驱替效率为 0.3710. 可见虽 然 Da 数越大驱替效率相应越大, 但驱替效率增加 幅度不明显.

综上所述,当流场内未生成明显虫洞时, Da 数越大,驱替效率越小;当流场内生成明显虫洞时, 随着时间发展, Da 数越大,驱替效率会越大,但是 仍远小于无反应时的驱替效率.

4.3 佩克莱数的影响

Pe 数表征驱替过程中对流速率与扩散速率的 相对大小,具有重要研究意义.模拟中设定Da= 32, 通过改变 Pe 数来观察其对驱替过程的影响. 图 8 给出了 Pe=5, 65, 524, t=0.2441 时的浓度场 瞬时图.可以看出,在 Pe 数很小时 (Pe = 5,图 8(a)), 流体的扩散能力强,使得溶质可充分扩散,在两流 体间的界面上无法产生指进现象. 此时驱替流体以 平界面形式沿驱替方向溶解固体骨架,图中左半侧 的多孔介质骨架已被溶解. 随着 Pe 数的逐步增大 (Pe = 65, 图 8(b)), 流体间溶质的扩散减弱, 对流作用增强,开始产生指进现象,但此时指进个数较 少,多孔介质骨架被溶解的量也随之减少.而当 Pe数较大时 (Pe = 524, 图 8(c)), 出现了明显的 指进现象,一些指进被多孔介质骨架分裂开来, 形成一系列更小的指进,即发生了指进分裂现象. 其他研究人员也对此类现象进行了研究^[32].此外, 注意到此工况下多孔介质骨架被溶解的量最少.

图 9 为相应情形下多孔介质内水平方向上的 平均浓度图.可以看出, Pe = 5时,平均浓度的变 化十分平滑.随着 Pe 数的增大 (Pe = 65),浓度曲 线有了细微的波动,说明此时已有指进生成.当 Pe 数为 524 时,浓度曲线上出现了明显的波动,说明 高 Pe 数下驱替过程中产生大量指进,流体界面不 稳定性增加.



图 8 t = 0.2441时不同 Pe 数下的浓度场瞬时图 (a) Pe = 5; (b) Pe = 65; (c) Pe = 524

Fig. 8. Snapshots of the concentration field at t = 0.2441: (a) Pe = 5; (b) Pe = 65; (c) Pe = 524.



图 9 不同 Pe数下多孔介质内水平方向上的平均浓度 Fig. 9. Average concentration along the horizontal direction of the porous media for different Pèclet numbers.

接下来选取指进现象较为明显的情况作进一步讨论.图 10为 Pe = 131, 262, 524 时, 多孔介质的孔隙率和驱替效率随时间的变化情况.如图 10(a)所示, Pe 数越大, 同一时刻下孔隙率越小.

这是因为 Pe 数越大, 扩散的作用越小, 指进现象 越明显, 指进的增长速度也越快, 溶解的多孔介质 骨架越少, 孔隙率越小. 此外, 不同 Pe 数下孔隙率 的变化趋势相同, 均为 s 型曲线. 如图 10(b) 所示, 当 Pe 数越大时, 初始阶段驱替效率越大. 这是因 为 Pe 数越大, 同时刻下指进数量越多, 驱替流体 波及范围越广 (如图 10(b) 中插图①和②所示), 驱 替效率相应越大. 但随着时间的发展, Pe 数越小, 虫洞越宽, 且入口和虫洞附近溶解的固体骨架越 多 (如图 10(b) 中插图③和④所示), 驱替流体占据 更多的空间, 驱替效率越大.

4.4 多孔介质结构的影响

在上文的模拟中,所选取的多孔介质均如图1

所示.为验证上述结果具有普适性,本节选取同一 多孔介质 CT 扫描灰质图中的其他部分进行二值 化处理,所获取的多孔介质初始孔隙率分别为 $\varepsilon_0 = 0.8 \pm 0.75$,并分别模拟了两种多孔介质中含 溶解反应的驱替过程.图 11 为两种多孔介质下孔 隙率和驱替效率随时间的变化图.可以看出,孔隙 率的变化虽然会显著影响孔隙率和驱替效率的数 值大小,但并不会改变整体的变化趋势,即孔隙率 变化依然呈 s 型,驱替效率随时间先增大然后减小 最后增大.这表明上文研究的驱替过程的基本规律 在不同的孔隙率下仍然适用,研究结果不失一般性.

此外,如图 11(b)所示,随着多孔介质初始孔 隙率的增加,驱替效率也相应增加.这是由于同一 多孔介质中,初始孔隙率越大的部分,流体越容易





Fig. 10. Time evolutions of (a) porosity and (b) displacement efficiency for different Pèlcet numbers.



图 11 不同初始孔隙率下,多孔介质 (a) 孔隙率和 (b) 驱替效率随时间的变化情况

Fig. 11. Time evolutions of (a) porosity and (b) displacement efficiency for different initial porosities.

通过多孔介质,为驱替的进行创造更好的条件,从 而为溶解反应在流固界面的进行也提供了更多的 机会,使得驱替效率随之增加.因此不同多孔介质 结构对含溶解反应的驱替有着显著影响,初始孔隙 率较大的多孔介质中驱替效率也越高.

5 结 论

本文采用 LBM 模拟了孔隙尺度下多孔介质 内含有溶解反应的互溶驱替过程,观察了含流固溶 解反应时多孔介质内流体浓度场随时间的演化情况,并与不含溶解反应的工况进行对比,研究溶解 反应对驱替过程的影响;之后通过改变 Da 数和 Pe 数研究孔隙率和驱替效率的变化情况,得到如 下结论.

1) 在两流体黏性差异较大的前提下, 在驱替 过程早期, 溶解反应会消耗驱替流体的浓度, 抑制 指进的继续发展; 随着时间的增加, 溶解反应会不 断溶解多孔介质骨架, 在多孔介质内部生成虫洞, 驱替流体会直接沿着该虫洞离开多孔介质, 减小了 驱替效率.

2) 随着 Da 数的增大,反应速率变大,孔隙率 变化越大,所生成的虫洞越宽,驱替效率逐渐增大.

3) 随着 Pe 数的增大, 指进增长的速率越快, 反应的量越小, 孔隙率变化越小, 驱替效率也随之 变小.

4) 不同的多孔介质结构下获得的孔隙率和驱 替效率随时间的变化趋势一致, 说明以上结论具有 普适性. 此外, 初始孔隙率较大的多孔介质中驱替 效率也越高.

在互溶驱替过程中,若两种流体黏性差异较大 且无法避免流固溶解反应发生的情况下,为获取较 高的驱替效率,应选择与多孔介质发生溶解反应速 率高的驱替流体,但无需一味追求反应速率.此外, 系统的 Pe 数越小驱替效率越高.为减缓驱替,可 采取相反的策略.

参考文献

- Cubillas P, Kohler S, Prieto M, Causserand C, Oelkers E H 2005 Geochim. Cosmochim. Acta 69 5459
- [2] Chen Y, Valocchi A J, Kang Q, Viswanathan H S 2019 Water

Resour. Res. 55 11144

- [3] Smith M M, Sholokhova Y, Hao Y, Carroll S A 2013 Adv. Water Resour. 62 370
- [4] Saffman P G, Taylor G I 1958 Proc. R. Soc. London, Ser. A 245 312
- [5] Zimmerman W B, Homsy G M 1992 Phys. Fluids A 4 2348
- [6] Wit A D, Homsy G M 1999 Phys. Fluids. 11 949
- [7] Nagatsu Y, Ishii Y, Tada Y, Wit A D 2014 Phys. Rev. Lett. 113 024502
- [8] Békri S, ThoverT J F, Adler P M 1995 Chem. Eng. Sci. 50 2765
- [9] Luo H, Quintard M, Debenest G, Laouafa F 2012 Comput. Geosci. 16 913
- [10] Oltéan C, Golfier F, Buès M A 2013 J. Geophys. Res. 118 2038
- [11] Soulaine C, Roman S, Kovscek A, Tchelepi H A 2017 J. Fluid Mech. 827 457
- [12] Abadi R H H, Rahimian M H 2018 Int. J. Heat Mass Transfer 127 704
- [13] Lou Q, Li T, Yang M 2018 Acta Phys. Sin. 67 234701 (in Chinese) [娄钦, 李涛, 杨茉 2018 物理学报 67 234701]
- [14] Huo X L, Liang H, Wang H L 2020 Acta Phys. Sin. 69
 044701 (in Chinese) [胡晓亮, 梁宏, 王会利 2020 物理学报 69
 044701]
- [15] He X, Li N, Goldstein B 2000 Mol. Simul. 25 145
- [16] Kang Q, Zhang D, Chen S, He X 2002 Phys. Rev. E 65 036318
- [17] Kang Q, Lichtner P C, Zhang D 2006 J. Geophys. Res. 111 B05203
- [18] Zhang T, Shi B C, Chai Z H 2015 Acta Phys. Sin. 15 154701 (in Chinese) [张婷, 施保昌, 柴振华 2015 物理学报 15 154701]
- [19] Ju L, Zhang C H, Guo Z L 2020 Int. J. Heat Mass Transfer 150 119314
- [20] Meng X H, Sun H R, Guo Z L, Yang X F 2020 Adv. Water Resour. 142 103640
- [21] Rakotomalala N, Salin D, Watzky P 1997 J. Fluid Mech. 338 277
- [22] Islam M N, Azaier J 2007 J. Porous Media 10 357
- [23] Liu G J, Guo Z L, Shi B C 2016 Acta Phys. Sin. 65 014702 (in Chinese) [刘高洁, 郭照立, 施保昌 2016 物理学报 65 014702]
- [24] Pan C, Luo L S, Miller C T 2006 Comput. Fluids 35 898
- [25] Guo Z L, Zheng C G 2009 Theory and Applications of Lattice Boltzmann Method (Vol. 1) (Beijing: Science Press) p66 (in Chinese) [郭照立, 郑楚光 2009 格子Boltzmann方法的原理及 应用 (第一版) (北京: 科学出版社) 第66页]
- [26] Laddy A J C 1994 J. Fluid Mech. 271 285
- [27] Wang J, Wang D, Lallemand P, Luo L S 2013 Comput. Math. Appl. 65 262
- [28] Zhang T, Shi B C, Guo Z L, Chai Z H, Lu J H 2012 Phys. Rev. E 85 016701
- [29] Li C, Kang Q, Viswanathan H S, Tao W Q 2014 Water Resour. Res. 50 9343
- [30] Wang H, Alvarado V, Bagdonas D A, McLaughlin J F, Kaszuba J P, Grana D, Campbell E, Ng K 2021 Int. J. Greenhouse Gas Control 107 103283
- [31] Huo J X, Song H Z, Du J N, Guan Q C 2015 J. Rock. Mech. Eng. 5 1013 (in Chinese) [霍吉祥, 宋汉周, 杜京浓, 管清晨 2015 岩土力学与工程学报 5 1013]
- [32] Meng X H, Guo Z L 2016 Int. J. Heat Mass Transfer 100 767

A lattice Boltzmann study of miscible displacement containing dissolution reaction in porous medium^{*}

Liu Gao-Jie $^{1)2)\dagger}$ Shao Zi-Yu $^{1)2)}$ Lou Qin $^{1)2)}$

1) (School of Energy and Power Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

2) (Shanghai Key Laboratory of Multiphase Flow and Heat Transfer in Power Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

_____,

(Received 6 October 2021; revised manuscript received 15 November 2021)

Abstract

The miscible displacement with fluid-solid dissolution reaction in a porous medium is a typical process in many industrial applications, such as underground-water pollution decontamination, and oil recovery or geological sequestration of carbon dioxide. It is a significant problem in engineering and physics applications. As is well known, the dissolution reaction can change the structure of the porous medium, which will have a great influence on the miscible displacement process. However, the relationship between the displacement process and the dissolution reaction in a porous medium has not been fully studied. In this study, the miscible displacement with dissolution in a porous medium is simulated by a lattice Boltzmann method (LBM). The study focuses on the influence of the internal structure change on the displacement process, and the further quantitative analyzing of the changes of the porosity and displacement efficiency by changing the Damkohler number (Da) and the Pèlcet number (Pe). The results show that when Da is large enough, the dissolution reaction will generate a few wormholes in the porous medium, and the displacement fluid will leave the porous medium along the wormholes, resulting in the decrease of the displacement efficiency. As Da increases, the reaction goes faster, the rate of change in porosity increases, and the wormholes become wider, thereby indeed yielding a larger displacement efficiency. With the increase of Pe, the fingerings develop faster, the rate of change in porosity decreases, and the displacement efficiency decreases as well.

Keywords: porous medium, miscible displacement, dissolution reaction, lattice Boltzmann method PACS: 47.11.-j, 47.56.+r, 47.20.Gv DOI: 10.7498/aps.71.20211851

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51806142), the Shanghai Sailing Program, China (Grant No. 18YF1418000), and the Natural Science Foundation of Shanghai, China (Grant No. 19ZR1435700).

[†] Corresponding author. E-mail: liugj@usst.edu.cn