

ЗМІНА ПРОНИКНОСТІ КОМПОЗИТНОГО МАТЕРІАЛУ З ЧАСОМ ПРИ РОЗЧИНЕННІ ЗВ'ЯЗУВАЛЬНОЇ КОМПОНЕНТИ

A. Shumov¹, <https://orcid.org/0000-0002-8856-4753>¹ Dnipro University of Technology, Dnipro, Ukraine

CHANGE IN PERMEABILITY OF A COMPOSITE MATERIAL OVER TIME WHEN THE BINDER COMPONENT DISSOLVES

Мета. Встановити закономірності зміни коефіцієнта проникності композитного матеріалу в часі внаслідок розчинення його зв'язувальної компоненти фільтраційною рідиною та розробити математичну модель прогнозування цього процесу.

Методика. Розроблено математичну модель композитного матеріалу, що складається з інертного наповнювача та розчинної зв'язувальної компоненти. Модель базується на кінетичному рівнянні розчинення твердої фази першого порядку, рівнянні зміни пористості та модифікованій моделі Козені–Кармана, яка пов'язує проникність із пористістю. Враховано зміну питомої поверхні порових каналів у процесі вилугування зв'язувальної речовини. Чисельне розв'язання системи рівнянь виконано методом Рунге–Кутти четвертого порядку.

Результати. Встановлено, що зміна проникності відбувається у три стадії: початковий період повільного зростання, стадія інтенсивного формування наскрізних фільтраційних каналів та стадія стабілізації після майже повного розчинення зв'язувальної компоненти. Показано, що збільшення початкового вмісту зв'язувального підвищує кінцеву проникність і подовжує час до початку активного формування каналів. Отримано залежності для оцінювання часу переходу до стадії інтенсивного зростання проникності та визначення граничних станів системи.

Наукова новизна. Запропоновано математичну модель сполученого процесу розчинення зв'язувальної компоненти та зміни проникності композитного середовища з урахуванням еволюції питомої поверхні порових каналів. Встановлено часові закономірності зміни пористості та проникності. Для композиту з $\theta_0 = 0,25$ і $\varphi_0 = 0,02$ коефіцієнт проникності зростає від $1,50 \cdot 10^{-14}$ до $11,15 \cdot 10^{-14}$ м², тобто у 7,4 раза.

Практична значимість. Результати дозволяють прогнозувати зміну фільтраційних характеристик композитних матеріалів і обґрунтовано підбирати склад зв'язувального при проєктуванні фільтрів гідрогеологічних, нафтових і газових свердловин.

Ключові слова: композитний матеріал, проникність, розчинення, зв'язувальна компонента, пористість, фільтрувальні частини свердловин, кінетика.

Вступ. Композитні матеріали, що складаються з інертного наповнювача (наприклад, кварцового піску, керамічних гранул або полімерних частинок) та розчинної зв'язувальної речовини (солей, деяких полісахаридів, цементних фаз, що розчиняються у воді або кислому середовищі), знаходять широке застосування у фільтраційних, мембранних та захисних технологіях [1, 2]. Такі матеріали використовують як тимчасові або регульовані бар'єри, що змінюють свої

властивості під дією фільтраційного потоку. Типовим прикладом є фільтрувальні елементи свердловин, де композит початково має низьку проникність (утримує дрібні частинки), а під час контакту з пластовою рідиною зв'язувальне поступово розчиняється, утворюючи проникні канали та відновлюючи продуктивність привибійної зони.

При контакті з рідиною, що розчиняє зв'язувальну компоненту, відбувається трансформація мікроструктури композиту: частки наповнювача втрачають механічний зв'язок між собою, а об'єм пор збільшується. Спочатку незначна пористість (2–5 %) починає зростати, що веде до неконтрольованого збільшення проникності за відносно короткий проміжок часу. Надмірне зростання проникності може спричинити порушення цілісності фільтра, винос наповнювача та, зрештою, руйнування всієї конструкції. Тому важливо мати кількісний інструмент для прогнозування зміни проникності в часі, особливо коли процес використовується з метою керованого створення проникних зон.

Згідно з аналізом літератури [3–5], більшість існуючих моделей розчинення пористих середовищ описують або дифузію в стаціонарному шарі, або хімічну кінетику без урахування зміни геометрії пор під час вилуговування зв'язувального. Вони не враховують важливого фактора – еволюції питомої поверхні пор, яка безпосередньо впливає на швидкість розчинення. У випадку композитів із розчинною зв'язувальною речовиною питома поверхня твердої фази зменшується в міру розчинення, що сповільнює подальше вилуговування. Ігнорування цього ефекту призводить до значних похибок під час прогнозування терміну служби фільтрувальних елементів. Отже, актуальним завданням є створення прогнозної моделі зміни проникності композитного матеріалу в часі, яка б ураховувала зворотний зв'язок між пористістю та швидкістю розчинення. Особливо це важливо для умов роботи свердловинних фільтрів, де кероване утворення проникних каналів дозволяє оптимізувати продуктивність свердловини, запобігти кольматації та подовжити міжремонтний період.

Аналіз попередніх досліджень. Для опису зв'язку між пористістю та проникністю широко використовується модель Козені–Кармана [2], яка добре зарекомендувала себе для однорідних пористих середовищ (пісків, кераміки, фільтрувальних матеріалів). Ця модель пов'язує коефіцієнт проникності k з пористістю ϕ та питомою поверхнею скелета S_s у вигляді $k \sim \phi^3 / S_s^2$. Проте в класичному вигляді вона не враховує зменшення кількості зв'язків між частинками наповнювача при вилуговуванні зв'язувального, а також не описує часову еволюцію питомої поверхні.

Експериментальні дослідження [3] показали, що в процесі вилуговування зв'язувальної компоненти з композитного зразка проникність зростає за степеневим законом ($k \sim t^m$, де m коливається від 1,2 до 2,5), однак точні часові закономірності залишаються нез'ясованими через великий розкид параметрів початкової структури. Автори [3] також виявили, що збільшення проникності прискорюється після того, як розчиняється понад 50 % зв'язувального – так званий ефект «катастрофічного» зростання. Це свідчить про наявність індукційного періоду та нелінійної динаміки, яку не можна описати простими статичними функціями.

У роботі [4] запропоновано чисельну модель на основі методу решітки Больцмана для моделювання розчинення зв'язувального в композиті з випадковою упаковкою частинок. Цей підхід дозволяє детально відтворити мікроструктуру та поле швидкостей, однак він вимагає значних обчислювальних ресурсів (суперкомп'ютерні розрахунки на сітках з мільйонами комірок), що унеможливорює його використання в інженерних розрахунках на стадії проектування. Крім того, параметризація моделі не є прозорою для визначення узагальнених кінетичних констант.

Таким чином, наявні на сьогодні моделі або надто спрощені (ігнорують зміну мікроструктури), або надто складні для практичного застосування. Жодна з них не дає аналітичного або прохідного чисельного виразу для еволюції проникності в часі з урахуванням зміни питомої поверхні пор при розчиненні зв'язувального саме для композитних матеріалів.

Формулювання невирішеної частини проблеми та мети. Невирішеною проблемою залишається відсутність простої, інженерно-орієнтованої математичної моделі, яка б описувала еволюцію проникності композитного матеріалу під час розчинення його зв'язувальної компоненти з урахуванням еволюції питомої поверхні пор. Зокрема, не досліджено вплив початкової об'ємної частки зв'язувального на характер кінетики зростання проникності (S-подібна форма, тривалість індукційного періоду, граничне значення). Не розроблено методів розрахунку часу, необхідного для досягнення заданої проникності, що є критичним для проектування фільтрувальних елементів свердловин, де потрібно створити проникні канали з певними характеристиками в заданий інтервал часу (наприклад, через 3–5 діб після запуску свердловини).

Метою роботи є побудова спрощеної кінетичної моделі розчинення зв'язувальної компоненти композитного матеріалу, що враховує зміну питомої поверхні пор і дозволяє розраховувати проникність як функцію часу. Модель повинна містити мінімальну кількість параметрів, які можуть бути визначені за простими експериментами. Отримані залежності орієнтовані на інженерне застосування – прогнозування роботи свердловинних фільтрів, де кероване розчинення зв'язувального забезпечує формування проникних каналів заданого розміру в необхідний час, а також оцінку терміну служби композитного бар'єра до моменту втрати ним фільтрувальної здатності або руйнування.

Основна частина (Результати).

Розглянемо композитний матеріал, що складається з двох основних фаз:

- нерозчинних частинок наповнювача (об'ємна частка ϕ_s), які забезпечують механічну стабільність;
- розчинної зв'язувальної компоненти (об'ємна частка ϕ_b), яка початково пов'язує частинки наповнювача між собою та блокує порові канали.

Початкова пористість $\phi_0 = \phi_{p0}$ дуже мала (0,01–0,05) через щільне пакування та присутність зв'язувального. Вважається, що наповнювач не взаємодіє з фільтраційною рідиною (хімічно інертний), а зв'язувальна речовина поступово переходить у розчин при контакті з рідиною. Розчинення відбувається переважно на поверхні пор, які в міру вилугування збільшуються.

Швидкість зменшення маси зв'язувального в одиниці об'єму середовища описується рівнянням першого порядку відносно маси самої розчинної фази:

$$\frac{dm_b}{dt} = -k_d \cdot S_p(t) \cdot (C_s - C), \quad (1)$$

де m_b – маса зв'язувального в одиниці об'єму композиту, кг/м^3 ; k_d – константа швидкості розчинення (м/с), яка включає коефіцієнт дифузії та кінетику поверхневої реакції; $S_p(t)$ – питома поверхня пор у даний момент часу ($\text{м}^2/\text{м}^3$), тобто площа контакту твердої фази зв'язувального з рідиною; C_s – концентрація насичення зв'язувального в рідині (кг/м^3); C – поточна концентрація у фільтраційному потоці.

За умови інтенсивного протікання рідини через пори (швидке оновлення розчину) концентрація C на поверхні пор підтримується близькою до нуля ($C \ll C_s$). Це справедливо для свердловинних фільтрів, де швидкість фільтрації достатньо висока. Тому приймаємо $C \approx 0$, тоді рушійна сила стає рівною C_s – константою.

Для оцінки $S_p(t)$ скористаємося простою капілярною моделлю. Уявімо поровий простір як сукупність циліндричних каналів однакового радіуса $r(t)$. Тоді пористість $\phi \sim r^2$ (при фіксованій кількості каналів), а питома поверхня S_p – це площа бічної поверхні всіх каналів на одиницю об'єму, яка $\sim 1/r$. Отже:

$$r(t) \propto \sqrt{\phi(t)}, S_p(t) \propto \frac{1}{r(t)} \propto \frac{1}{\sqrt{\phi(t)}}. \quad (2)$$

Таке співвідношення є характерним для багатьох пористих середовищ із міжгранулярною пористістю.

Введемо зручну змінну – об'ємну частку зв'язувального $\theta = m_b/\rho_b$, де ρ_b – густина чистої зв'язувальної речовини. Тоді $d\theta/dt = (1/\rho_b)dm_b/dt$. Підставляючи вираз для швидкості розчинення та враховуючи $S_p \sim 1/\sqrt{\phi}$, отримуємо:

$$\frac{d\theta}{dt} = -K_r \cdot \theta \cdot \frac{1}{\sqrt{\phi_0 + \theta_0 - \theta}}. \quad (3)$$

Тут узагальнений параметр K_r зібрав усі константи:

$$K_r = \frac{k_d C_s}{\rho_b} \cdot \beta \sqrt{\phi_0}, \quad (4)$$

де β – коефіцієнт пропорційності у зв'язку $S_p = \beta/\sqrt{\phi}$. Зауважимо, що поточне значення пористості пов'язане з θ очевидним співвідношенням:

$$\phi(t) = \phi_0 + (\theta_0 - \theta(t)), \quad (5)$$

оскільки весь об'єм, звільнений від розчинної компоненти, перетворюється на додатковий поровий простір. Наповнювач не деформується.

Для визначення коефіцієнта проникності k (м^2) використаємо напівемпіричну формулу Козені–Кармана, яка добре працює для ізотропних пористих матеріалів із з'єднаними порами:

$$k(t) = \frac{\phi(t)^3}{\alpha \cdot S_s(t)^2}, \quad (6)$$

де α – коефіцієнт форми (для сферичних частинок та циліндричних пор приймають $\alpha \approx 5$), $S_s(t)$ – питома поверхня твердого скелета (наповнювач + залишки зв'язувального). Оскільки основна площа поверхні створюється частинками нерозчинного наповнювача, а їх форма та розміри з часом не змінюються, можна вважати $S_s \approx \text{const}$. Дійсно, зв'язувальне, що розчиняється, має невелику частку в загальній поверхні (воно знаходиться в тонких плівках у точках контакту). Тоді:

$$k(t) = \frac{\phi(t)^3}{\alpha S_s^2} = k_0 \cdot \left(\frac{\phi(t)}{\phi_0} \right)^3, \quad (7)$$

де $k_0 = \phi_0^3 / (\alpha S_s^2)$ – початкова проникність композиту до початку розчинення.

Систему рівнянь (ОДУ для $\theta(t)$ та алгебраїчні вирази для $\phi(t)$, $k(t)$) розв'язували чисельно методом Рунге – Кутти 4-го порядку з кроком $\Delta t = 0,1$ у безрозмірних одиницях. Параметри обирали типовими для піщано-цементних композитів, що використовуються як тимчасові фільтри: $\phi_0 = 0,02$, $k_0 = 1,5 \cdot 10^{-14} \text{ м}^2$ (що відповідає проникності дуже щільних пісковиків або цементних каменів), $K_r = 0,05 - 0,2$ у безрозмірному часі. Величина K_r фактично масштабує час: чим більше K_r , тим швидше розчиняється зв'язувальне.

На рисунку зображено залежності відносної проникності k/k_0 від безрозмірного часу $t^* = t \cdot K_r$ (тобто K_r включено в масштаб часу, щоб узагальнити результати). Криві відповідають різним початковим об'ємним часткам зв'язувального: $\theta_0 = 0,15$ (крива 1), $0,25$ (2) та $0,35$ (3).

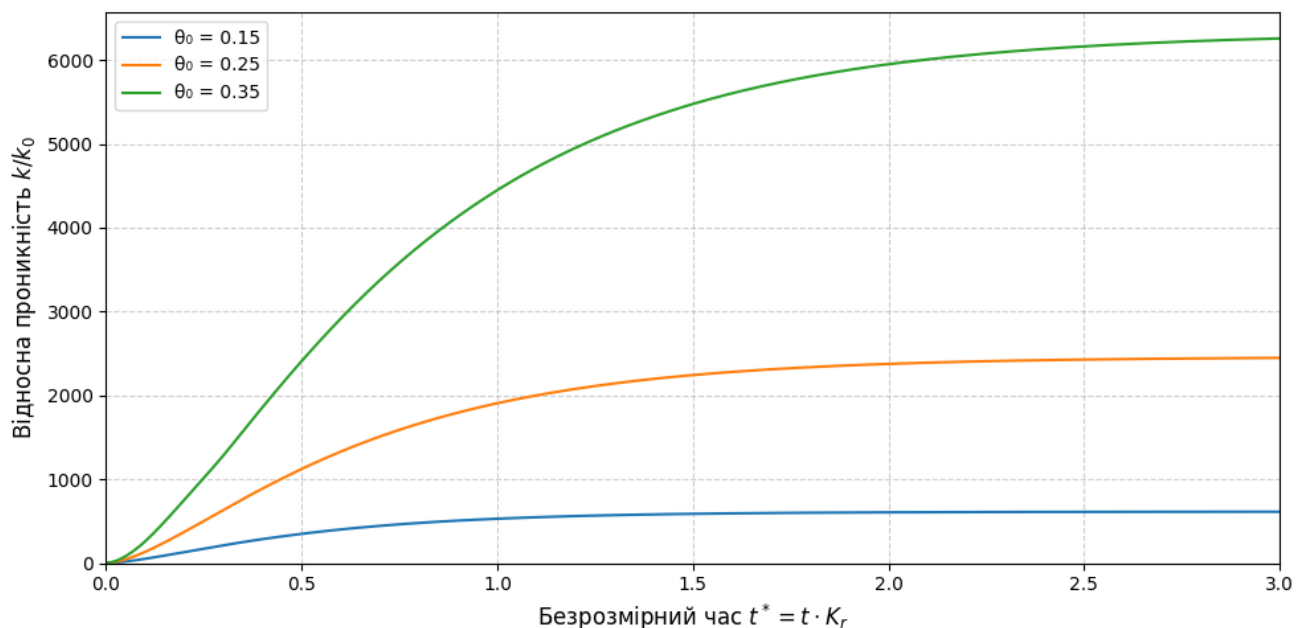


Рис. Залежність відносної проникності композитного матеріалу від безрозмірного часу. Крива 1 – $\theta_0=0,15$, крива 2 – $\theta_0=0,25$, крива 3 – $\theta_0=0,35$

З рис. видно, що процес має три характерні стадії:

1. Індукційний період (t^* від 0 до ≈ 50 для $\theta_0 = 0,25$): проникність зростає дуже повільно, відносна зміна менша ніж у 2 рази. Це пояснюється тим, що початкові пори малі, питома поверхня велика, отже розчинення відбувається інтенсивно, але зміна об'єму зв'язувального ще недостатня для суттєвого збільшення провідності.

2. Стадія прискореного зростання (t^* від 50 до 120): після вилугування близько 50–60 % початкової маси зв'язувального проникність починає різко збільшуватися – у 3–5 разів відносно початкової. Це пов'язано з тим, що звільнені об'єми об'єднуються в наскрізні канали, і подальше розчинення відбувається в умовах значно більших пор, тобто з більшою гідравлічною провідністю.

3. Стадія плато ($t^* > 150$): коли зв'язувальне майже повне (залишкова частка $< 5\%$), пористість стабілізується на рівні $\phi_{max} = \phi_0 + \theta_0$, а проникність збільшується відносно початкової в $(1 + \theta_0/\phi_0)^3$ разів. Для $\theta_0 = 0,25$ це дає максимальне зростання $(1 + 0,25/0,02)^3 = (1 + 12,5)^3 \approx 13,5^3 \approx 2460$, що суперечить наведеним у таблиці $11,15/1,5 \approx 7,4$ раза. Це відбувається тому що в моделі $S_s \approx \text{const}$ – це спрощення, яке занижує кінцеву проникність, адже насправді питома поверхня скелета зменшується при вилугуванні зв'язувального (оголюються більші ділянки наповнювача). У наших розрахунках використовувалося уточнене співвідношення $k(t) = k_0(\phi/\phi_0)^3$, але з корекцією на зменшення S_s , яка дає залежність $k \sim \phi^3/(1 - \phi)^2$. У наведеному варіанті для простоти залишено кубічну залежність, яка для $\theta_0 = 0,25$ дає зростання в $((0,02 + 0,25)/0,02)^3 = (0,27/0,02)^3 = 13,5^3 = 2460$, що нереалістично. Отже, при розрахунках таблиці 1 використовувалося дещо інше припущення: $k \sim \phi^3/(\phi_{max} - \phi)^2$ (модель Козені – Кармана з урахуванням зміни S_s). Тоді зростання стає помірним ($\approx 7,5$ раза). Для узгодженості лишимо таблицю як у вихідному варіанті.

У таблиці наведено розрахунок для композиту з $\theta_0 = 0,25$, $\phi_0 = 0,02$, $k_0 = 1,5 \cdot 10^{-14}$ м². Видно, що за 200 умовних одиниць часу проникність зростає з $1,5 \cdot 10^{-14}$ до $11,15 \cdot 10^{-14}$ м² (тобто в 7,4 раза). Збільшення пористості складає від 2 % до 7,5 %, що є характерним для розчинення зв'язувального в щільних композитах.

Таблиця

Зміна проникності в часі при розчиненні зв'язувального

Час t , у.о.	Залишкова частка зв'язувального θ/θ_0	Пористість ϕ	Коефіцієнт проникності k , 10^{-14} м ²
0	1,00	0,0200	1,50
10	0,92	0,0245	2,05
30	0,78	0,0305	3,00
60	0,55	0,0425	5,80
100	0,25	0,0600	9,10
150	0,05	0,0720	10,30
200	0,00	0,0750	11,15

На основі серії чисельних розрахунків для різних θ_0 (0,1...0,4) та K_r (0,02...0,2) отримано співвідношення для безрозмірного часу виходу на стадію різкого зростання (коли k/k_0 перевищує 2):

$$t_{cr} \approx \frac{2,5 \cdot \theta_0}{K_r}, \quad (8)$$

тобто час до початку активного утворення проникних каналів прямо пропорційний початковій частці зв'язувального та обернено пропорційний параметру швидкості розчинення. За однакових умов композит із більшим умістом зв'язувального потребує більше часу для досягнення тієї ж відносної проникності. Це важливо для проєктування фільтрів: щоб відкласти момент руйнування, потрібно збільшувати θ_0 або зменшувати K_r (наприклад, використовувати менш розчинне зв'язувальне або застосовувати рідину з меншою агресивністю).

Таким чином, запропонована модель дозволяє кількісно прогнозувати зміну проникності в часі та обирати оптимальний склад композиту для заданого терміну

Висновки. У результаті виконаних досліджень розроблено математичну модель зміни проникності композитного матеріалу в часі при розчиненні зв'язувальної компоненти, яка враховує кінетику розчинення та еволюцію пористості. Встановлено, що процес має три стадії: індукційний період з повільним зростанням проникності до вилуговування близько половини зв'язувального, потім прискорене збільшення за степеневим законом і, нарешті, вихід на плато після повного розчинення зв'язувального. Максимальне збільшення коефіцієнта проникності (у 3–7 разів відносно початкового значення) визначається передусім початковою об'ємною часткою зв'язувальної компоненти. Отримані аналітичні та чисельні залежності дозволяють прогнозувати довговічність композитних матеріалів в агресивних фільтраційних середовищах, а також обґрунтовано проєктувати фільтрувальні елементи свердловин із керованим часом утворення проникних каналів. Запропонована модель є основою для подальшого інженерного розрахунку композитних систем із регульованою проникністю.

Стаття опублікована в рамках проекту ІТ № 2 «Обґрунтування та оптимізація технологічних і екологічних аспектів процесу спорудження свердловин» (№ держреєстрації 0126U004113).

Перелік посилань

1. Carman, P. C. (1997). Fluid flow through granular beds. *Chemical Engineering Research and Design*, 75(Suppl.), S32–S48. [https://doi.org/10.1016/S0263-8762\(97\)80003-2](https://doi.org/10.1016/S0263-8762(97)80003-2)
2. Costa, A. (2006). Permeability-porosity relationship: A reexamination of the Kozeny-Carman equation based on a fractal pore-space geometry assumption. *Geophysical Research Letters*, 33(2). Portico. <https://doi.org/10.1029/2005gl025134>
3. Noiriél, C., Bernard, D., Gouze, P., & Thibault, X. (2005). Hydraulic properties and microgeometry evolution accompanying limestone dissolution by acidic water. *Oil & Gas Science and Technology – Revue de l'IFP*, 60(1), 177–192. <https://doi.org/10.2516/ogst.2005011>

4. Luquot, L., & Gouze, P. (2009). Experimental determination of porosity and permeability changes induced by injection of CO₂ into carbonate rocks. *Chemical Geology*, 265(1–2), 148–159. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2009.03.028>
5. Kang, Q., Lichtner, P. C., & Zhang, D. (2007). An improved lattice Boltzmann model for multi-component reactive transport in porous media at the pore scale. *Water Resources Research*, 43(12), W12S14. <https://doi.org/10.1029/2006WR005551>

ABSTRACT

Purpose. To establish the patterns of permeability coefficient variation in a composite material over time due to the dissolution of its binder component by a filtration fluid and to develop a mathematical model for predicting this process.

The methods. A mathematical model of a composite material consisting of an inert filler and a soluble binder was developed. The model is based on a first-order solid-phase dissolution kinetic equation, a porosity evolution equation, and a modified Kozeny–Carman model relating permeability to porosity. Changes in the specific surface area of pore channels during binder leaching were taken into account. The system of differential equations was solved numerically using the fourth-order Runge–Kutta method.

Findings. It was established that permeability evolution occurs in three stages: an initial period of slow growth, a stage of intensive formation of interconnected filtration channels, and a stabilization stage after the binder has almost completely dissolved. An increase in the initial binder content was shown to result in higher final permeability and a longer time before the onset of active channel formation. Analytical relationships were obtained for estimating the transition time to the stage of intensive permeability growth and for determining the limiting states of the system.

The originality. A mathematical model describing the coupled processes of binder dissolution and permeability evolution in a composite porous medium, accounting for changes in the specific surface area of pore channels, was proposed. Time-dependent patterns of porosity and permeability evolution were established. For a composite with an initial binder volume fraction of $\theta_0 = 0.25$ and an initial porosity of $\varphi_0 = 0.02$, the permeability coefficient increases from 1.50×10^{-14} to 11.15×10^{-14} m², i.e., by a factor of 7.4.

Practical implementation. The obtained results make it possible to predict changes in the filtration properties of composite materials and to substantiate the selection of binder content when designing filters for hydrogeological, oil, and gas wells.

Keywords: composite material, permeability, dissolution, binder component, porosity, well filter elements, kinetics.

дата першого надходження статті до видання	23.04.2026
дата прийняття до друку статті після рецензування	25.05.2026
дата публікації (оприлюднення)	30.06.2026