

# EVOLUCIÓN TEMPORAL DE LA POROSIDAD Y LA CONDUCTIVIDAD HIDRÁULICA DE UNA ROCA SOMETIDA A PROCESOS DE DISOLUCIÓN

Luis Guarracino<sup>1</sup> y Jesús Carrera<sup>2</sup>

<sup>1</sup> CONICET, Facultad de Cs. Astronómicas y Geofísicas (UNLP) – Paseo del Bosque s/n, (1900) La Plata, Buenos Aires, Argentina.

<sup>2</sup> CSIC, Instituto de Diagnóstico Ambiental y Estudios del Agua – Barcelona, España.

## RESUMEN

Los procesos de disolución pueden afectar las propiedades macroscópicas de las rocas y en consecuencia modificar los patrones de flujo a largo plazo. En este trabajo se presenta un modelo teórico para describir la evolución temporal de la porosidad y la conductividad hidráulica de una roca sometida a procesos de disolución. Para derivar el modelo, la porosidad de la roca se representa mediante un conjunto de poros cilíndricos de radio variable cuya distribución obedece a una ley fractal. En base a esta descripción y propiedades físicas conocidas se obtienen expresiones analíticas para la porosidad y la conectividad hidráulica en función del radio máximo y la dimensión fractal. Estas expresiones pueden combinarse para obtener una fórmula similar a la ecuación de Kozeny-Carman. Finalmente, asumiendo una disolución constante es posible derivar expresiones analíticas cerradas para la porosidad y la permeabilidad que dependen explícitamente del tiempo. Para validar el modelo propuesto se comparan las expresiones analíticas obtenidas con un ensayo de laboratorio realizado sobre una muestra de arenisca de baja porosidad.

Palabras claves: porosidad, conductividad hidráulica, disolución.

## ABSTRACT

Dissolution processes can affect the macroscopic properties of the rock and, as a consequence, modify the flow patterns at large time scale. In this study we present a theoretical model for describing temporal evolution of porosity and hydraulic conductivity during rock dissolution by reactive fluids. The derivation of the model is based on the assumption that the porosity of the rock can be

represented by a group of parallel capillary tubes with variable radius and a fractal cumulative size distribution. Using this fractal description and well-known physical properties we obtain analytical expressions for both porosity and hydraulic conductivity that depend on the maximum pore radius and the fractal dimension. These expressions can be easily combined to obtain a formula similar to the Kozeny-Carman equation. Finally, assuming a constant dissolution reaction it is possible to derive closed-form analytical expressions for porosity and hydraulic conductivity that depend explicitly on the time. The temporal evolution predicted by the proposed model is compared with a laboratory experiment performed on a low-permeability sandstone core.

Keywords: porosity, hydraulic conductivity, dissolution.

## INTRODUCCIÓN

La evolución temporal de la porosidad y la conductividad hidráulica de una roca sometida a procesos de disolución química resulta de interés en el análisis de distintos problemas hidrogeoquímicos como por ejemplo el almacenamiento de dióxido de carbono en acuíferos profundos (Holloway, 1997). El flujo de un soluto reactivo produce la disolución (o precipitación) de minerales a nivel poral que pueden traducirse en variaciones de la porosidad y la permeabilidad de la roca en la macroescala. La caracterización de estos parámetros resulta por lo tanto esencial para un adecuado modelado del transporte de sustancias reactivas. A pesar de los numerosos estudios experimentales y teóricos realizados no existe aún un modelo satisfactorio para predecir la evolución temporal de la porosidad y la conductividad hidráulica de un medio poroso (Civan, 2001).

En el presente trabajo se presenta un modelo teórico sencillo para predecir la evolución temporal de estos parámetros cuando se produce la disolución de la matriz sólida. Para derivar el modelo, la roca se describe como una matriz impermeable con poros cilíndricos circulares de radio variable cuya distribución obedece a una ley de tipo fractal. Por otra parte, se asume como hipótesis que el medio poroso se encuentra completamente saturado por un fluido que reacciona uniformemente con la superficie de los poros y que este proceso se desarrolla lejos del equilibrio químico local. En base a la descripción geométrica de la roca y de propiedades físicas conocidas se obtienen expresiones para la porosidad y la conductividad hidráulica en función del radio máximo y la dimensión fractal de la distribución. Estas expresiones pueden combinarse fácilmente para obtener una fórmula similar a la de Kozeny-Carman (Kozeny, 1927; Carman, 1937) para estimar la conductividad hidráulica a partir de la porosidad. Finalmente, se obtiene una ley de variación del radio poral que permite derivar expresiones analíticas cerradas para la evolución temporal de la porosidad y la conductividad hidráulica. Para validar el modelo propuesto se comparan las expresiones analíticas obtenidas con un ensayo de laboratorio realizado sobre una muestra de baja porosidad de la arenisca Fontainebleau saturada con hidróxido de sodio. Los resultados muestran que el modelo propuesto reproduce en forma satisfactoria los valores experimentales.

## MODELO CONCEPTUAL

Para derivar las expresiones de la porosidad y la conductividad hidráulica consideraremos un volumen representativo elemental (REV) conformado por un cubo de lado  $L$  (Figura 1).

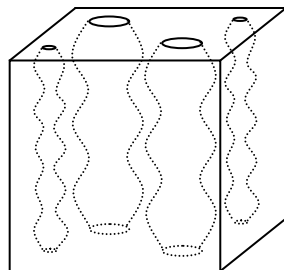


Figura 1: Modelo conceptual de medio poroso.

El medio poroso se representa como una matriz sólida con poros cilíndricos cuyos radios varían en forma periódica. La distribución de los radios medios de los poros sigue una ley fractal y varían entre un valor mínimo  $r_{\min}$  y un valor máximo  $R$ .

## Geometría poral

Supondremos que cada uno de los poros es un cilindro cuyo radio varía en forma periódica como ilustra la Figura 2.

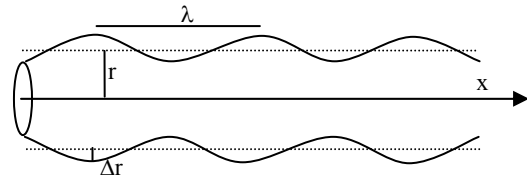


Figura 2: Geometría poral

La fluctuación del radio poral ( $r'$ ) la consideraremos sinusoidal:

$$r'(x) = r + \Delta r \sin(2\pi x / \lambda) \quad (1)$$

donde  $r$  es el radio medio del poro,  $\Delta r$  la amplitud de la fluctuación y  $\lambda$  su longitud de onda.

Definimos la razón de fluctuación ( $a$ ) como la relación entre la amplitud de la fluctuación y el radio medio:

$$a = \frac{\Delta r}{2r} \quad (2)$$

El parámetro definido por (2) varía en el rango  $0 < a < 0.5$  y puede ser utilizado para caracterizar la constricción del medio poroso. Cuando  $a=0$  los poros son cilindros rectos que permiten el flujo de agua en forma eficiente. Contrariamente, cuando  $a=0.5$  el conducto poral se cierra formando regiones aisladas que no permiten el flujo de agua.

El volumen de un poro de longitud  $L$  se calcula mediante la siguiente integral:

$$V_p = \int_0^L \pi [r'(x)]^2 dx \quad (3)$$

Reemplazando (1) y (2) en (3), y asumiendo que el tamaño del REV es lo suficientemente grande como

para que  $\lambda \ll L$  se obtiene la siguiente expresión para  $V_p$ :

$$V_p = \pi r^2 L [1 + 2a^2] \quad (4)$$

De forma análoga se calcula la superficie interna del poro cuya expresión es:

$$S_p = \pi r L \quad (5)$$

que resulta independiente del parámetro  $a$  para  $\lambda \ll L$ .

Para describir el flujo de agua a través del poro cilíndrico utilizaremos una aproximación de orden cero obtenida por Kitanidis y Dykaar (1997) para un canal periódico:

$$q = \frac{(1 - 4a)^{5/2}}{1 + 2a^2} \bar{q} \quad (6)$$

donde  $\bar{q}$  es flujo correspondiente a un cilindro de radio constante  $r$ .

### Distribución de tamaño poral

La distribución acumulativa del tamaño de los poros en el REV se asume que obedece a una ley fractal del tipo (Tyler y Whwatcraft, 1990; Yu et al., 2003; Guarracino, 2007):

$$N = C r^{-D}, \quad r_{\min} < r < R \quad (7)$$

siendo  $C$  una constante que depende del radio medio máximo y del tamaño del REV y  $D$  ( $1 < D < 2$ ) la dimensión fractal.

Luego, el número de poros cuyo radio medio se encuentra en el rango  $(r, r+dr)$  se obtiene diferenciando (7):

$$-dN = C D r^{-D-1} dr \quad (8)$$

donde el signo negativo implica que el número de poros decrece con el aumento de  $r$ .

### PROPIEADES MACROSCÓPICAS

La porosidad del REV se calcula en forma directa a partir de la definición de porosidad:

$$\phi = \frac{V_{poros}}{L^3} = \frac{1}{L^3} \int_{r_{\min}}^R V_p(r) dN \quad (9)$$

Reemplazando (4) y (8) en (9) se obtiene:

$$\phi = \frac{\pi C D (1 + 2a^2)}{(2 - D) L^2} (R^{2-D} - r_{\min}^{2-D}) \quad (10)$$

Para calcular la conductividad hidráulica saturada  $K_s$  supondremos que el REV se encuentra a una presión constante de modo que el flujo de agua se produce por gravedad. Bajo esta hipótesis y considerando la ley de Darcy se tiene que:

$$K_s = \frac{Q}{L^2} \quad (11)$$

siendo  $Q$  el flujo volumétrico de agua que atraviesa una sección transversal del REV.

Por otra parte, el flujo de agua en un tubo de radio constante  $r$  puede calcularse a partir de la ecuación de Hagen-Poiseuille (Bear, 1972):

$$\bar{q}(r) = \frac{\rho g}{8\mu} r^2 \quad (12)$$

siendo  $\rho$  la densidad,  $g$  la gravedad y  $\mu$  la viscosidad del agua. Luego el flujo volumétrico que atraviesa la sección transversal del REV puede calcularse a partir de (6), (12) y (8) del siguiente modo:

$$\begin{aligned} Q &= \int_{r_{\min}}^R q(r) \pi r^2 dN \\ &= \frac{\rho g \pi C D (1 - 4a^2)^{5/2}}{8\mu (4 - D) (1 + 2a^2)} (R^{4-D} - r_{\min}^{4-D}) \end{aligned} \quad (13)$$

Finalmente, combinando (11) y (13) se obtiene la siguiente expresión para  $K_s$  en términos de los radios de los poros:

$$K_s = \frac{\rho g \pi C D (1 - 4a^2)^{5/2}}{8\mu (4 - D) (1 + 2a^2) L^2} (R^{4-D} - r_{\min}^{4-D}) \quad (14)$$

La teoría fractal puede utilizarse para describir medios porosos reales siempre y cuando  $r_{\min} \ll R$  (Yu et al., 2003; Guarracino, 2007). Para la mayoría

de los medios porosos  $r_{\min}/R < 10^{-2}$  (Katz y Thompson, 1985; Yu y Li, 2001) por lo que la teoría presentada es aplicable a la mayoría de los casos. Bajo esta hipótesis las expresiones (10) y (14) se reducen a:

$$\phi = \frac{\pi CD(1+2a^2)}{(2-D)L^2} R^{2-D} \quad (15)$$

$$K_s = \frac{\rho g \pi CD(1-4a^2)^{5/2}}{8\mu(4-D)(1+2a^2)L^2} R^{4-D} \quad (16)$$

Las expresiones anteriores serán utilizadas para describir la evolución temporal de la porosidad y la conductividad hidráulica cuando la matriz sólida se encuentra sometida a procesos de disolución. Estas ecuaciones pueden combinarse fácilmente de modo de expresar  $K_s$  en términos de la porosidad:

$$K_s(\phi) = \frac{\rho g(2-D)^{(4-D)/(2-D)} L^{4(2-D)} (1-4a^2)^{5/2}}{8\mu(4-D)(\pi CD)^{2/(2-D)} (1+2a^2)^{(6-2D)/(2-D)}} \phi^{\frac{4-D}{2-D}} \quad (17)$$

Notar que cuando  $D$  tiende a 1, la expresión (17) es proporcional a la porosidad al cubo, exhibiendo una dependencia con este parámetro similar al de la conocida ecuación de Kozeny-Carman (Kozeny, 1927; Carman, 1937).

## VARIACIÓN TEMPORAL

Supondremos que el fluido que circula por el medio poroso es homogéneo y que la reacción fluido-mineral es lo suficientemente lenta como para encontrarse lejos del equilibrio local. Bajo estas condiciones la razón de disolución de un mineral ( $r_m$ ) suele expresarse del siguiente modo:

$$r_m = \alpha_m S_m \quad (18)$$

siendo  $S_m$  la superficie del mineral por volumen de roca ( $\text{cm}^{-1}$ ) y  $\alpha_m$  la razón de disolución del mineral normalizada por el área de la superficie reactiva ( $\text{mol cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ). El coeficiente  $\alpha_m$  suele expresarse del siguiente modo (Lasaga, 1981; 1984; Steefel y Van Cappellen, 1990):

$$\alpha_m = k_m \prod_{i=1}^{N_c+N_x} a_i^p \left| \left( \frac{Q_m}{K_m} \right)^M - 1 \right|^n \quad (19)$$

siendo  $Q_m$  el producto de actividad iónica;  $K_m$  la constante de equilibrio;  $k_m$  la constante de disolución del mineral;  $a_i$  actividad de la especie  $i$ ;  $N_c$  y  $N_x$  el número de especies primarias y secundarias;  $M$ ,  $p$  y  $n$  constantes positivas.

Si consideramos un único poro de radio  $R$ , la razón de disolución será:

$$\begin{aligned} r_m &= \frac{1}{V_m L^3} \frac{d}{dt} [V_p] = \frac{1}{V_m L^3} \frac{d}{dt} [\pi R^2 L(1+a^2)] \\ &= \frac{2\pi RL(1+a^2)}{V_m L^3} \frac{dR}{dt} \end{aligned} \quad (20)$$

siendo  $V_m$  el volumen molar del mineral ( $\text{cm}^3 \text{mol}^{-1}$ ).

Reemplazando (20) en (18) y asumiendo que la superficie reactiva coincide con la superficie del poro ( $S_m = S_p$ ) se obtiene la siguiente expresión para la variación temporal del radio:

$$\frac{dR}{dt} = \frac{V_m \alpha_m}{1+2a^2} \quad (21)$$

Finalmente, si suponemos que la razón de disolución del mineral normalizada por el área de la superficie reactiva ( $\alpha_m$ ) no varía con el tiempo tendremos que:

$$R(t) = R_0 + \frac{V_m \alpha_m}{1+2a^2} (t - t_0) \quad (22)$$

donde  $R_0 = R(t_0)$  y  $t_0$  es el tiempo inicial del proceso de disolución.

### Expresiones de $\phi(t)$ y $K_s(t)$

Las expresiones para la evolución temporal de la porosidad y la conductividad hidráulica se obtienen simplemente reemplazando (22) en (15) y (16):

$$\phi(t) = \phi_0 \left[ 1 + \frac{V_m \alpha_m}{R_0(1+a^2)} (t - t_0) \right]^{2-D} \quad (23)$$

$$K_s(t) = K_0 \left[ 1 + \frac{V_m \alpha_m}{R_0(1+a^2)} (t - t_0) \right]^{4-D} \quad (24)$$

donde  $\phi_0 = \phi(t_0)$  y  $K_0 = K_s(t_0)$  representan la porosidad y la conductividad hidráulica inicial.

Resulta importante resaltar que reemplazando (23) en (24) se puede obtener la expresión de una fórmula que es usualmente empleada para estimar la evolución de la permeabilidad de un medio poroso (Doyen, 1988):

$$K_s(t) = K_0 \left[ \frac{\phi(t)}{\phi_0} \right]^b \quad (25)$$

siendo  $b=(4-D)/(2-D)$ . En el trabajo de Doyen (1988) se sugiere un valor para el coeficiente  $b$  de 3.8 que corresponde a una dimensión fractal  $D=1,286$ .

### AJUSTE CON DATOS EXPERIMENTALES

En esta sección las expresiones (23) y (24) se utilizan para ajustar los datos experimentales obtenidos por Jovè Colon et al. (2004) para una muestra de la arenisca Fontainebleau de baja porosidad. La muestra está compuesta esencialmente por cuarzo y su porosidad inicial es de 0.051. El experimento tuvo una duración de 900 horas y se realizó a 80°C, lejos de las condiciones de equilibrio, utilizando una solución de hidróxido de sodio (NaOH). En este experimento se determinó un valor de velocidad de disolución del cuarzo  $\alpha_m=2.110^{-12}$  mol cm<sup>-2</sup>s<sup>-1</sup> y se consideró un volumen molar  $V_m=22.7$  cm<sup>3</sup>mol<sup>-1</sup>.

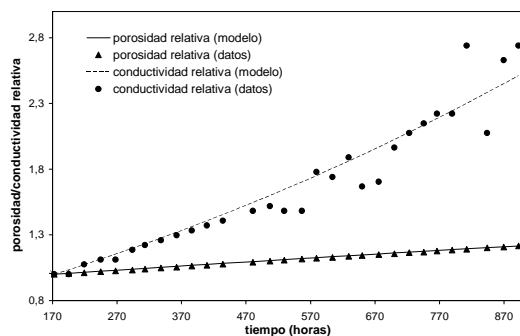


Figura 3: Ajuste del modelo a los datos experimentales

Realizando un ajuste por mínimos cuadrados entre el modelo y los datos se obtuvieron los siguientes parámetros:  $D=1.46$ ,  $R_0=7.7 \cdot 10^{-8}$  cm,  $\alpha=0.1$ . El

ajuste obtenido resulta altamente satisfactorio y se ilustra en la Figura 3.

### CONCLUSIONES

En el presente trabajo se ha presentado un modelo teórico sencillo para describir la evolución de la porosidad y la conductividad hidráulica de una roca sometida a procesos de disolución. La descripción de la roca se basa en conceptos de geometría fractal y se asume una condición de no equilibrio en el proceso de disolución. Las expresiones analíticas halladas presentan similitudes con modelos clásicos y para el caso particular de poros circulares rectos ( $\alpha=1$ ) coinciden con las expresiones obtenidas por Guarracino y Carrera (2010). Por otra parte, el modelo ajustó satisfactoriamente los datos de un experimento de laboratorio realizado sobre una muestra de arenisca de baja porosidad. No obstante ello, resulta necesario realizar un mayor número de comparaciones para avalar estos resultados y poder determinar la validez del modelo para otro tipo de rocas y soluciones reactivas.

### REFERENCIAS

- Bear J. 1972. Dynamics of fluids in porous media. American Elsevier Publishing Company, Inc.
- Carman P.C. 1937. Fluid Flow Through a Granular Bed, Trans. Of Instn. of Chem. Engrs, 15, 150.
- Civan F. 2001. Scale effect on porosity and permeability: kinetics, model and correlation, AIChE Journal, 47(2), 271-287.
- Doyen P.M. 1988. Permeability, conductivity, and pore geometry of sandstone, J. Geophys. Res 93, 7729-7740.
- Guarracino L. 2007. Estimation of saturated hydraulic conductivity  $K_s$  from the van Genuchten shape parameter  $\alpha$ , Water Resour. Res., 43, W11502, 2006WR005766.

Guarracino L. y Carrera J. 2010. Un modelo fractal para describir la evolución temporal de la porosidad y la permeabilidad de una roca sometida a procesos de disolución. En: Actas del 1er. Congreso Internacional de Hidrología de Llanuras, Tomo II, 489-492.

Holloway S. 1997. An overview of the underground disposal of carbon dioxide. *Energy Convers. Manag.* 38, 193–198.

Jové Colón F., Oelkers E.H. y Schott J. 2004. Experimental investigation of the effect of dissolution on sandstone permeability, porosity, and reactive surface area. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 68(4), 805–817.

Katz, A.J. y Thompson A.H. 1985. Fractal sandstone pores: implications for conductivity and pore formation, *Phys. Rev. Lett.*, 54, 1325-1328.

Kozeny J. 1927. *Über Kapillare Leitung des Wasser im Boden*, Sitzungsbericht der Akademie der Wissenschaften, Wien, 136, 271.

Kitanidis P.K. y Dykaar B.B. 1997. Stokes flow in a slowly varying two-dimensional periodic pore, *Transp. Porous Media*, 26, 89-98.

Lasaga A.C. 1981. Transition State Theory. *Rev. Min.* 8, 135–169.

Steeffel C.I. y Van Cappellen P. 1990. A new kinetic approach to modeling water-rock interaction: The role of nucleation, precursors, and Ostwald ripening. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 54, 2657-2677.

Tyler S.W. y Wheatcraft S.W. 1990. Fractal processes in soil water retention, *Water Resour. Res.*, 26(5), 1047-1054.

Yu B. y Li J. 2001. Some fractal characters of porous media, *Fractals*, 9(3), 365– 372.

Yu B., Li J., Li Z. y Zou M. 2003. Permeabilities of unsaturated fractal porous media, *Int. J. Multiphase Flow*, 29, 1625–1642.