

Научная статья

Численное исследование конвективного растворения флюида CO_2 в воде при его захоронении в подземном пористом образовании

*Е.Б. Соболева**Институт проблем механики им. А.Ю. Ишлинского РАН, Москва, Российская Федерация*

Исследование направлено на решение важной экологической проблемы, связанной с вредным воздействием парниковых газов на температуру и климат Земли и необходимостью уменьшения антропогенных выбросов углекислого газа в атмосферу. Рассматривается односторонняя концентрационная конвекция внутри пористого образования, развивающаяся при растворении сверхкритического флюида CO_2 в воде, в технологии захоронения диоксида углерода в подземных водонасыщенных пластах. Гидродинамическая модель включает уравнения неразрывности, движения (на основе закона Дарси), конвекции–диффузии и нелинейное уравнение состояния, связывающее плотность жидкой среды с концентрацией CO_2 ; жидкая среда описывается как однофазная двухкомпонентная, с переменной вязкостью. На основе имеющихся в литературе данных определены физические свойства системы $\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}$ в диапазонах температуры $307.7 \div 342.8$ К и давления $8.07 \div 31.42$ МПа и проведено численное моделирование гидродинамических процессов в ней с помощью созданного конечно-разностного вычислительного кода. В частности, изучено, как меняются характеристики конвективного растворения в зависимости от температуры и давления. Получено, что при увеличении последних конвективное растворение флюида CO_2 в воде происходит интенсивнее. Так, время, в течение которого половина CO_2 растворяется в воде и отводится вглубь конвективным течением, сокращается почти вдвое. Таким образом, более высокие температура и давление способствуют повышению надежности захоронения диоксида углерода в подземных водонасыщенных пластах.

Ключевые слова: водонасыщенный пласт, геологическое захоронение диоксида углерода, растворение, концентрационная конвекция, численное моделирование, конечно-разностный метод

Получение: 11.03.2026 / Публикация онлайн: 05.08.2026

УДК 532.546:519.63

1. Введение

Ежегодные выбросы в атмосферу парниковых газов, образующихся в результате как природных процессов, так и деятельности человека, выросли с 11 млрд тонн в 1960-х годах до 36,6 млрд тонн в 2022 году [1]. Парниковые газы оказывают вредное воздействие на температуру и климат Земли, поэтому уменьшение их выбросов в атмосферу является важной экологической проблемой. В рамках ее решения развиваются технологии захоронения углекислого газа — закачивание под землю в истощенные месторождения нефти и газа, базальтовые образования и гидраты, неразработанные угольные пласты и засоленные водоносные горизонты [1, 2], а также нагнетание в нефтяные пласты для повышения их нефтеотдачи [3, 4]. Однако последняя процедура может иметь ограниченную применимость с точки зрения утилизации углерода [5]. Температура и давление увеличиваются по мере погружения в недра Земли и на глубине 800 м углекислый газ переходит в сверхкритическое жидкоподобное состояние, плотность флюида существенно возрастает. Обычно CO_2 закачивают на глубину 0.8–3 км, но и на таких глубинах плотность сверхкритического флюида оказывается меньше плотности окружающей его поровой воды или нефти, поэтому флюид имеет тенденцию всплывать. Выделяют несколько механизмов удержания CO_2 под землей: статическое или структурное улавливание, когда флюид CO_2 попадает под крышку из низкопроницаемой породы; остаточное улавливание, при котором капли CO_2 удерживаются капиллярными силами между зернами твердой породы; улавливание за счет минерализации, возникающее из-за вступления CO_2 в химические реакции и образования твердых карбонатных минералов; улавливание благодаря конвективному растворению CO_2 в поровой воде или нефти (растворению в условиях конвекции компонентов) [1, 6, 7].

В данной работе исследуется растворение CO_2 в поровой воде и возникающее естественно-конвективное движение. Флюид CO_2 растворяется в воде, плотность раствора становится несколько больше, чем плотность окружающей воды. Состояние слоя раствора неустойчиво в поле силы тяжести: он стремится опуститься, деформируется, развивается направленная вниз односторонняя концентрационная конвекция. Конвективное течение способствует интенсификации растворения флюида CO_2 , его переносу в глубокие горизонты и, следовательно, более надежному долгосрочному хранению.

В литературе имеется значительное количество работ по данной теме, обзоры методов и результатов исследований можно найти в [1, 2, 6–9]. В работах [10–13] проводилось численное моделирование в рамках упрощенного представления: флюид CO_2 считался источником растворимой примеси и его наличие учитывалось только в граничных условиях. Применялась более полная модель, в рамках которой изучалась динамика флюида CO_2 , воды и образующегося раствора. В последнем случае характерной особенностью являлось использование нелинейного уравнения состояния [14–16], то есть нелинейной зависимости плотности жидкой фазы от количества растворенного CO_2 . Полагалось, что при росте его концентрации от нуля плотность раствора увеличивается, доходит до максимума, затем уменьшается. Успешное моделирование образования диффузионного слоя и формирования в нем опускающихся конвективных «пальцев» раствора показало эффективность предложенной модели.

Следует заметить, что естественная конвекция, обусловленная изменением плотности, например, в результате химических реакций, которую обычно называют хемоконвекцией, исследовалась, в частности, при протекании реакции нейтрализации [17, 18], что актуально для фотополимеризации, сепарации руд и фармацевтических технологий. Математическое описание в [17, 18] строится в рамках модели многокомпонентной среды, учитывается массообмен между компонентами, коэффициенты диффузии реагентов сильно зависят от их концентрации. При захоронении диоксида углерода его растворение в воде протекает много быстрее, чем развиваются гидродинамические процессы (охватывающие десятки и сотни лет), поэтому в данном случае важен конечный результат, который дает однозначную зависимость плотности жидкой среды от концентрации реагентов.

Численное моделирование в [14–16] направлено в основном на качественное воспроизведение картины односторонней конвекции в пористом образовании. В [14, 15] математическое представление неполное — не приведена зависимость плотности жидкой среды от концентрации растворенного CO_2 . Кроме того, работа [15] ориентирована на растворение CO_2 в нефти, которое также сопровождается увеличением плотности раствора, но характеризуется другими параметрами. В [16] использованы модельные параметры и показано, что чем больше значение концентрации, при котором плотность достигает максимума на кривой уравнения состояния, тем больше диоксида углерода переносится вниз конвективными «пальцами». Количественное описание конвективного движения и массопереноса, по которому можно судить об эффективности растворения и удержания CO_2 на глубине, является актуальной задачей.

Целью настоящей работы является численное исследование возникновения и развития односторонней естественной конвекции в пористой среде при растворении CO_2 в воде с учетом реальных физических свойств. Поскольку температура и давление с глубиной увеличиваются и могут меняться под действием других факторов, то в зависимости от окружающих условий меняются свойства залегающих жидкостей. Из литературных источников собраны и проанализированы данные о плотности, вязкости и коэффициенте диффузии в системе «сверхкритический флюид CO_2 + вода», которые используются для изучения суммарного влияния температуры и давления на характеристики конвективного растворения.

2. Постановка задачи

В пористой среде под твердой непроницаемой границей расположен слой сверхкритического флюида CO_2 , снизу к нему примыкает вода. В начальный момент жидкости неподвижны и имеют плотность $\rho_{\text{H}_2\text{O}}$ (вода) и ρ_{CO_2} (флюид CO_2). Считается, что $\rho_{\text{H}_2\text{O}} > \rho_{\text{CO}_2}$, поэтому система устойчива. Молекулы CO_2 начинают диффундировать в воду, формируется диффузионный слой, плотность которого больше плотности воды. Этот слой теряет устойчивость, и развивается направленная вниз естественная концентрационная конвекция. Вода в малых количествах тоже растворяется в CO_2 , стратификация этого раствора остается устойчивой. Жидкая фаза состоит из компонентов 1 (вода) и 2 (CO_2). Динамика и массоперенос в жидкой фазе описываются системой уравнений, которая включает уравнения неразрывности, движения (на основе закона Дарси), конвекции–диффузии концентрации компонента 2, а также уравнение состояния:

$$\begin{aligned}\nabla \cdot \mathbf{U} &= 0, \\ \mathbf{U} &= -\frac{k}{\mu(C)}(\nabla P - \rho g \mathbf{e}), \\ \phi \frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{U} \cdot \nabla C &= \nabla \cdot (\phi D \nabla C), \\ \rho &= \rho(C).\end{aligned}\tag{1}$$

Здесь символами t , $\mathbf{U}$, P , ρ , C , $\mu(C)$, D , k , ϕ , g , $\mathbf{e}$ обозначены соответственно: время; вектор скорости фильтрации; давление; плотность; концентрация вещества 2; вязкость жидкой фазы (зависит от C); коэффициент диффузии (считается постоянным); проницаемость и пористость твердой фазы; ускорение свободного падения; единичный вектор, сонаправленный с силой тяжести. Плотность жидкой фазы ρ представляет собой сумму $\rho = \rho_1 + \rho_2$, где ρ_1 (или ρ_2) — суммарная масса молекул компонента 1 (или 2) в единичном объеме жидкой смеси. Под концентрацией C понимается отношение плотностей компонента 2 в смеси и чистого: $C = \rho_2 / \rho_{\text{CO}_2}$. Коэффициенты вязкости воды — $\mu_{\text{H}_2\text{O}}$, и флюида CO_2 — μ_{CO_2} , отличаются друг от друга в несколько раз; вязкость жидкой фазы μ полагается переменной.

При небольших концентрациях диоксид углерода полностью растворяется в воде, образуется гомогенный раствор; это наблюдается до тех пор, пока не достигается концентрация насыщения — C_m . Если $C > C_m$, растворение не происходит, имеется двухфазная жидкая смесь, состоящая из насыщенного раствора CO_2 в H_2O и чистого флюида CO_2 . Однако и при $C > C_m$ жидкая смесь будет описываться как однофазная двухкомпонентная с эффективной плотностью ρ . Такое приближение оправдывается тем, что в формирующихся конвективных «пальцах» концентрация близка к C_m (так как плотность близка к максимальной), поэтому чистого флюида CO_2 здесь очень мало, и эффекты двухфазности практически не проявляются.

Для решения системы (1) требуется задание функций $\rho(C)$ и $\mu(C)$. На рисунке 1 показан вид зависимостей, принятых работе. В [19] представлены экспериментальные данные о плотности и вязкости раствора CO_2 в H_2O в зависимости от количества CO_2 при высоких давлениях и температурах, соответствующих условиям в пластах

Земли. Согласно этим сведениям, плотность увеличивается с концентрацией линейно, поэтому зависимость $\rho(C)$ при $C < C_m$ линейная (Рис. 1а). При концентрации C_m достигается максимальное значение ρ_m — это плотность насыщенного раствора. При $C > C_m$ плотность рассчитывается как линейная комбинация ρ_m и ρ_{CO_2} и, следовательно, линейно уменьшается с ростом концентрации CO₂. Эксперименты [19] показывают, что при растворении CO₂ в H₂O вязкость раствора также несколько линейно увеличивается; на рисунке 1б — это участок роста от μ_{H_2O} (чистая вода) до μ_m (насыщенный раствор) при $C < C_m$. При $C > C_m$ значение вязкости представляет собой линейную комбинацию μ_m и μ_{CO_2} и линейно убывает с возрастанием C .

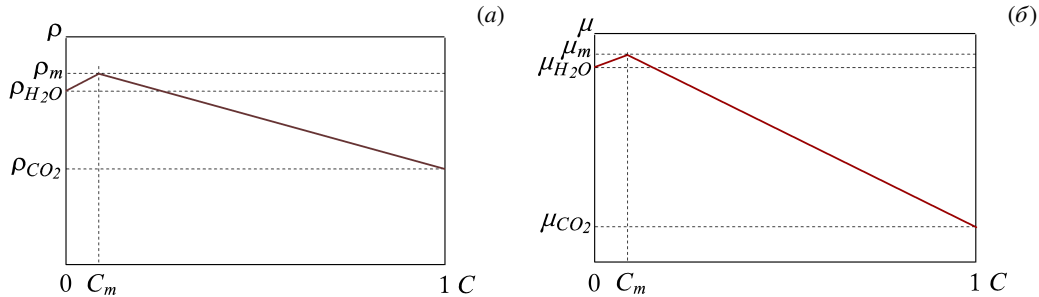


Рис. 1. Зависимости плотности жидкой фазы ρ (а) и ее вязкости μ (б) от концентрации CO₂

Система уравнений (1) преобразуется. В условиях гидростатического равновесия уравнение движения, записанное для жидкости 1, сводится к равенству $\nabla P^0 = \rho_{H_2O} g e$, которое вычитается из второго уравнения в (1). Здесь P^0 — гидростатическое давление в жидкости 1. Уравнения приводятся к безразмерному виду с использованием следующих масштабов: H — высота расчетной области, D/H — скорость, H^2/D — время, $(\rho_m - \rho_{H_2O})$ — плотность, $(\rho_m - \rho_{H_2O})gH$ — давление, μ_{H_2O} — вязкость, k_* — проницаемость. Индекс «*» указывает на среднюю по пространству величину. В качестве масштаба плотности берется разность $(\rho_m - \rho_{H_2O})$, поскольку именно она определяет интенсивность естественной конвекции. Безразмерные переменные скорости, давления, плотности, вязкости и проницаемости обозначаются, соответственно, как u , Π , S , f_μ , K . Переменные $S = (\rho - \rho_{H_2O})/(\rho_m - \rho_{H_2O})$ и $\Pi = (P - P^0)/((\rho_m - \rho_{H_2O})gH)$ представляют собой отклонения плотности и давления от значений в гидростатическом равновесии.

С учетом преобразований получается система уравнений:

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \mathbf{u} &= 0, \\ \mathbf{u} &= -\text{Ra} \frac{\phi_* K}{f_\mu} (\nabla \Pi - S e), \\ \phi \frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla C &= \nabla \cdot (\phi \nabla C), \\ S &= \begin{cases} C/C_m, & C \in [0, C_m], \\ 1 - (1 + \sigma_d)(C - C_m)/(1 - C_m), & C \in [C_m, 1], \end{cases} \\ f_\mu &= \begin{cases} 1 + (\sigma_\mu - 1)C/C_m, & C \in [0, C_m], \\ \sigma_\mu - (\sigma_\mu - \Sigma_\mu)(C - C_m)/(1 - C_m), & C \in [C_m, 1]. \end{cases} \end{aligned} \quad (2)$$

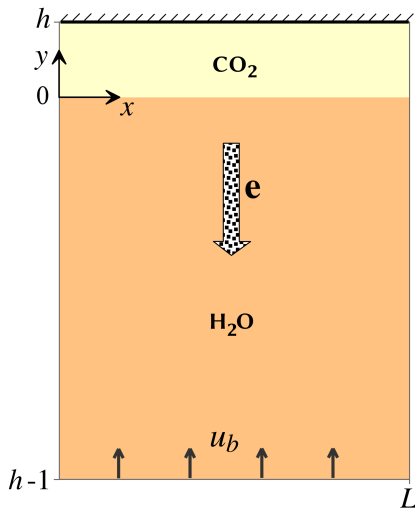


Рис. 2. Схема задачи

В уравнениях (2) присутствуют безразмерные параметры:

$$\begin{aligned} \text{Ra} &= \frac{k_* (\rho_m - \rho_{H_2O}) g H}{\phi_* \mu_{H_2O} D}, \quad \phi_*, \quad C_m, \\ \sigma_d &= \frac{\rho_{H_2O} - \rho_{CO_2}}{\rho_m - \rho_{H_2O}}, \quad \Sigma_\mu = \frac{\mu_{CO_2}}{\mu_{H_2O}}, \quad \sigma_\mu = \frac{\mu_m}{\mu_{H_2O}}. \end{aligned} \quad (3)$$

Здесь Ra — число Рэлея–Дарси, параметры σ_d , Σ_μ , σ_μ определяются уравнением состояния и зависимостью вязкости от концентрации.

Уравнения (2) записываются в декартовой системе координат (x, y) , ось ординат направлена вверх. Вектор скорости представляется в виде: $\mathbf{u} = (u_x, u_y)$. Схема, поясняющая постановку задачи, показана на рисунке 2. В начальный момент граница раздела жидкостей расположена на уровне $y=0$, толщина слоя CO₂ в безразмерных переменных составляет h . Длина расчетной области обозначена как L , высота равна 1. Жидкости неподвижны и находятся в гидростатическом равновесии; при этом

распределение давления, обозначенное как Π^0 , описывается формулой:

$$\Pi^0 = \begin{cases} 0, & y \in [h-1, 0], \\ \sigma_d y, & y \in [0, h]. \end{cases} \quad (4)$$

Граничные условия соответствуют непротеканию жидкостей через боковые и верхнюю границы. На нижней границе задается вертикальный, направленный в область поток воды со скоростью $u_b(t)$ для того, чтобы скомпенсировать суммарное увеличение массы жидкой фазы из-за химической реакции и возрастания плотности раствора. Вещество CO_2 через нижнюю границу не проникает. В математическом виде это выглядит так:

$$\begin{aligned} x=0, L: & \quad u_x=0, \quad \partial C/\partial x=0, \quad \Pi=\Pi^0; \\ y=h-1: & \quad u_x=0, \quad u_y=u_b(t), \quad C=0, \quad \Pi=\Pi^0; \\ y=h: & \quad u_y=0, \quad \partial C/\partial y=0, \quad \Pi=\Pi^0. \end{aligned} \quad (5)$$

Для расчета баланса массы определяются: $r = \rho/(\rho_m - \rho_{\text{H}_2\text{O}})$ — безразмерная плотность жидкой фазы, $r_2 = \rho_2/(\rho_m - \rho_{\text{H}_2\text{O}})$ — безразмерная плотность компонента 2. Эти величины связаны с относительной плотностью S и концентрацией C соотношениями:

$$r = S + \frac{\sigma_d}{1 - \Sigma_d}, \quad r_2 = C \frac{\sigma_d \Sigma_d}{1 - \Sigma_d}. \quad (6)$$

Здесь $\Sigma_d = \rho_{\text{CO}_2}/\rho_{\text{H}_2\text{O}}$.

3. Физические свойства системы $\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}$

Температура и давление увеличиваются вглубь Земли. Геотермальный градиент составляет около 0.025 К/м, гидростатический градиент — около 0.01 МПа/м. Под действием геотермального градиента в пористых слоях может происходить медленное развитие тепловой конвекции [20]. Если на поверхности Земли температура $T = 285$ К и давление $P = 0.1$ МПа, то на глубине 800 м эти значения заметно больше — $T = 305$ К, $P = 8.1$ МПа, и близки к критической точке CO_2 , которая достигается при $T_c = 304.1282$ К и $P_c = 7.3773$ МПа [21]. Высокие температура и давление в недрах Земли обеспечивают переход CO_2 в сверхкритическое состояние. На глубине 3 км характерные значения уже следующие: $T = 360$ К и $P = 30$ МПа.

Стоит заметить, что в напорных течениях при закачке жидких субстанций в пласт породы температура и давление могут отличаться от рассчитанных характерных величин; в настоящей работе T и P варьируются. В таблице 1 приведены параметры рассмотренных вариантов. Значения плотности и вязкости в строках 3–6 взяты из [21]. Видно, что у флюида CO_2 плотность и вязкость заметно меняются (в два и более раз), свойства воды варьируются существенно меньше.

Таблица 1. Физические свойства системы $\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}$

Номер строки	Параметр	1	2	3	4	5
1	T , К	307.7	307.7	307.7	332.8	342.8
2	P , МПа	8.07	17.73	31.36	31.08	31.42
3	$\rho_{\text{H}_2\text{O}}$, кг/м ³ [21]	997.68	1001.8	1007.6	1001.3	991.29
4	ρ_{CO_2} , кг/м ³ [21]	524.91	847.96	937.47	878.52	801.22
5	$\mu_{\text{H}_2\text{O}}$, 10 ⁻⁶ Па·с [21]	726.16	726.94	728.33	556.23	413.65
6	μ_{CO_2} , 10 ⁻⁶ Па·с [21]	37.154	80.935	102.50	87.781	73.009
7	s , моль/кг (7)	0.9760	1.293	1.619	1.536	1.432
8	C_m (8)	0.008164	0.006721	0.007657	0.007704	0.007797
9	ρ_m , кг/м ³ [22]	1010.0	1016.0	1022.8	1014.2	1001.7
10	$\rho_m - \rho_{\text{H}_2\text{O}}$, кг/м ³	12.32	14.2	15.2	12.9	10.41
11	χ_m (10)	0.001741	0.002304	0.002885	0.002742	0.002562
12	μ_m , 10 ⁻⁶ Па·с (9)	739.94	742.28	745.03	563.90	416.13
13	D , 10 ⁻⁹ м ² /с (11)	2.380	2.380	2.380	3.191	4.412

Для определения значения концентрации C_m в насыщенном растворе, используются результаты из работы [23], в которой обработано 785 экспериментальных точек при $T = 197.6 \div 623.15$ К, $P = 0.3 \cdot 10^{-3} \div 350$ МПа и получена зависимость для растворимости s ; величина s представляет собой максимальное количество молей CO_2 , которое может раствориться в 1 кг воды. Формула имеет вид (T , К; P , МПа; s , моль/кг):

$$\begin{aligned}
s &= |a + b + c + d|, \\
a &= -0.0008423 (0.1074 T - P)^2 - 0.0008405 P (T - P) - 0.008171, \\
b &= -\frac{2.92 P + 26.48}{T^{1/2}}, \\
c &= 0.1172 \ln(P T^4) + 0.3119 P (\tanh(P)^2), \\
d &= 5.202 \cdot 10^{-5} P \tanh(T) (0.1074 T + \tanh(P))^2.
\end{aligned} \tag{7}$$

Результаты расчетов по формуле (7) приведены в строке 7 таблицы 1. Концентрация насыщения C_m связана с растворимостью s соотношением:

$$C_m = s \gamma_{CO_2} \frac{\rho_{H_2O}}{\rho_{CO_2}}, \tag{8}$$

где $\gamma_{CO_2} = 0.0440$ кг/моль — молярная масса CO₂. Вычисленные по (8) значения C_m показаны в строке 8.

В [22] собраны экспериментальные данные о плотности насыщенного раствора CO₂ в H₂O в широком диапазоне температуры и давления (см. строку 9). Строка 10 содержит разность плотностей $\Delta\rho = \rho_m - \rho_{H_2O}$, которая обуславливает естественную конвекцию; она рассчитывается как разность значений в строках 9 и 3.

Для оценки вязкости раствора используется формула из [19], которая аппроксимирует экспериментальные данные о растворах CO₂ в H₂O различной насыщенности при $T = 294 \div 449$ К и давлении до $P = 100$ МПа (T , К; P , МПа; μ , 10^{-3} Па·с):

$$\begin{aligned}
\ln(\mu) &= a + b(P/P_r) + \frac{c + d(P/P_r)}{T/T_r - 1} + e_1 \exp[-e_2(T/T_r - 1)]\chi, \\
a &= -3.705013, \quad b = 0.00289258, \quad c = 3.98950, \quad d = -0.00326, \quad e_1 = 65.55968, \quad e_2 = 2.46811.
\end{aligned} \tag{9}$$

Здесь $P_r = 1$ МПа, $T_r = 141.5$ К, а молярная доля $\chi = n_2/(n_1 + n_2)$ включает n_1 молей растворителя (воды) и n_2 молей растворенного вещества (CO₂). При малых значениях χ связь этой величины с концентрацией C близка к линейной:

$$\chi = C \frac{\rho_{CO_2} \gamma_{H_2O}}{\rho \gamma_{CO_2}}. \tag{10}$$

Параметр $\gamma_{H_2O} = 0.0180$ кг/моль — молярная масса H₂O. Рассматривается насыщенный раствор, в котором плотность и вязкость достигают максимума (далее величины помечаются индексом « m » — $\rho_m, \mu_m, C_m, \chi_m$). Исходя из значений C_m (строка 8) сначала рассчитывается χ_m (см. строку 11) согласно (10). Затем вычисляется μ_m по (9) (полученные значения преобразованы к единицам 10^{-6} Па·с и занесены в строку 12). Видно, что (9) является экспоненциальной зависимостью μ от χ , которая при $\chi \ll 1$ становится практически линейной. В силу последнего обстоятельства и линейной связи между χ и C рост вязкости μ при $C < C_m$ можно считать линейным, что согласуется с экспериментами [19] и принимается в настоящей работе (см. Рис. 1б).

Коэффициент диффузии CO₂ в H₂O — D , измерялся в [24]. Эксперименты проведены при $T = 268 \div 473$ К, $P = 10 \div 45$ МПа. Получено, что значение D слабо зависит от давления (в его исследованном диапазоне D меняется лишь на несколько процентов). По экспериментальным точкам построена степенная зависимость D от температуры, вклад давления во внимание не принимается (T , К; D , м²/с):

$$D = D_s (T/T_s - 1)^m, \quad m = 1.7094. \tag{11}$$

Здесь $D_s = 13.942 \cdot 10^{-9}$ м²/с, $T_s = 227.0$ К. Результаты расчета по (11) представлены в строке 13.

Таблица 2. Безразмерные параметры

Вариант	Ra	Σ_d	σ_d	Σ_μ	σ_μ
1	$8.742 \cdot 10^3$	0.5261	38.37	0.05053	1.00631
2	$1.007 \cdot 10^4$	0.8464	10.83	0.1099	1.00835
3	$1.075 \cdot 10^4$	0.9304	4.614	0.1390	1.01047
4	$8.913 \cdot 10^3$	0.8774	9.518	0.1569	1.00764
5	$6.995 \cdot 10^3$	0.8083	18.26	0.1763	1.00503

Рассматривается область высотой $H = 500$ м. Полагается, что пористость твердой фазы равняется $\phi_* = 0.2$, а ее проницаемость — $k_* = 5 \cdot 10^{-14}$ м². Тогда, используя данные о физических свойствах системы CO₂ + H₂O из таблицы 1, можно найти безразмерные параметры задачи (3). Полученные значения для тех же вариантов 1–5 приведены в таблице 2. Считается, что толщина слоя CO₂ в начальный момент составляет 10 м, что дает безразмерную толщину $h = 0.02$. Расчетная область представляет собой квадрат, поэтому длина $L = 1$.

4. Численный метод

Система уравнений (2) с начальными и граничными условиями (4), (5) решается численно с помощью авторского вычислительного кода. Используется конечно-разностный метод на разнесенной пространственной сетке: расчетная область разбивается на прямоугольные ячейки, скалярные величины определяются в центрах

ячеек, горизонтальная компонента скорости — на вертикальных гранях ячеек, а вертикальная компонента — на горизонтальных гранях.

При решении уравнения конвекции–диффузии конвективный член аппроксимируется по схеме третьего порядка точности QUICK [25], которая имеет преимущества по сравнению со схемами против потока и центрально-разностной. Диффузионный член аппроксимируется по центрально-разностной схеме. Интегрирование по времени производится на основе схемы Рунге–Кутты второго порядка точности. Уравнения неразрывности и движения решаются совместно, применяется алгоритм типа SIMPLE [26]. Конечно-разностные уравнения для давления решаются методом прогонки.

Перед началом интегрирования задаются малые возмущения пористости и проницаемости для приближения к реальным условиям и инициирования конвективного движения. Пористость характеризуется амплитудой возмущений $(\phi - \phi_*)/\phi_* \approx 10^{-6}$, возмущения проницаемости имеют тот же порядок.

Расчетная область меняется определяется как $x \in [0, 1]$, $y \in [h-1, h]$. Флюид CO_2 в начальный момент времени занимает слой $y \in [0, h]$. При переходе с n -го на $(n+1)$ -й временной слой производятся следующие действия. Сначала вычисляется суммарная масса жидкой фазы M во всей расчетной области:

$$M = \int_{h-1}^h \int_0^1 \phi r dx dy. \quad (12)$$

Так как величина M определяется по значению плотности r^n с временного слоя n , то ее следует обозначить как M^n . Затем интегрируется уравнение конвекции–диффузии (третье уравнение (2)), которое дает значения концентрации C^{n+1} ; по C^{n+1} рассчитываются относительная плотность S^{n+1} и вязкость f_μ^{n+1} (см. четвертое и пятое уравнения (2)). Исходя из S^{n+1} находится плотность жидкой фазы r^{n+1} (6) для того, чтобы вычислить суммарную массу всей жидкости M^{n+1} на новом — $(n+1)$ -м — временном слое. При этом используется та же формула (12), только теперь она включает новую плотность, а именно r^{n+1} . Поскольку при растворении CO_2 в воде плотность раствора увеличивается, то и суммарная масса жидкости должна возрасти: $M^{n+1} > M^n$. Чтобы скомпенсировать прирост массы, на нижней границе задается поступающий в область вертикальный поток воды. Скорость фильтрации u_b вычисляется по формуле:

$$u_b = \frac{M^{n+1} - M^n}{\tau r_b}, \quad (13)$$

где τ — шаг интегрирования по времени, r_b — плотность воды на нижней границе. После этого совместно решаются уравнения неразрывности и движения (первое и второе уравнения (2)) с граничным условием (13), в результате определяются значения u^{n+1} и P^{n+1} .

Стоит отметить, что вычислительный код базируется на подходах и методах, которые разрабатывались автором для моделирования концентрационно-конвективных течений в пористых средах с линейным [13, 27–29] или нелинейным [16] уравнением состояния, используются им в течение ряда лет и показывают свою эффективность.

При проведении вычислений находятся основные характеристики конвективного движения и массопереноса: h_p — глубина проникновения CO_2 в воду; Q_M — показатель уменьшения количества CO_2 в слое, который исходно был полностью занят этим компонентом (представляет собой долю массы, покинувшей слой); t^* — время, за которое количество CO_2 в данном слое уменьшается наполовину (время полурастворения). Чтобы найти h_p , сначала вычисляется $\langle C(y) \rangle$ — средняя на уровне y концентрация:

$$\langle C(y) \rangle = \int_0^1 C(x, y) dx.$$

Глубина h_p отсчитывается от начального положения границы раздела жидкостей $y = 0$ до уровня y_p , на котором значение $\langle C(y) \rangle$ мало, поэтому в работе считается, что ниже этого уровня вещества CO_2 нет. Для определения координаты y_p принимается условие: $\langle C(y_p) \rangle = 3 \cdot 10^{-4}$. Тогда $h_p = -y_p$.

Уменьшение количества CO_2 в начальном слое рассчитывается по массе этого компонента, обозначенной как M_{2h} :

$$M_{2h} = \int_0^h \int_0^1 \phi r_2 dx dy. \quad (14)$$

В исходном состоянии все вещество CO_2 образует сверхкритический флюид, который сосредоточен в слое с координатой $y \in [0, h]$; масса флюида в начальный момент времени обозначается как M_2^0 и вычисляется по той же формуле (14). Со временем, благодаря растворению флюида и конвекции раствора, часть CO_2 переносится вниз, в воду. В какой-то момент времени можно найти массовую долю этого вещества, покинувшего искомый слой, по формуле:

$$Q_M = \frac{M_2^0 - M_{2h}}{M_2^0}. \quad (15)$$

Время полурастворения половины CO₂ соответствует условию: $Q_M = 0.5$.

Точность численного решения контролируется по сохранению массы CO₂ во всей расчетной области, вещество CO₂ через ее границы не проникает. Оценивается величина ΔM_2 , которая должна быть малой:

$$\Delta M_2 = \frac{M_2^0 - M_2}{M_2^0}, \quad M_2 = \int_{h-1}^h \int_0^1 \phi r_2 dx dy. \quad (16)$$

В типичном случае применяется пространственная сетка 1000×2000, равномерная по x и неравномерная по y (сгущается около верхней границы в зоне начального расположения флюида CO₂). Пространственный шаг по x составляет $\Delta x = 10^{-3}$, шаг по y варьируется от $\Delta y_{\min} = 0.26 \cdot 10^{-3}$ до $\Delta y_{\max} = 0.52 \cdot 10^{-3}$. Интегрирование по времени выполняется с переменным шагом, который от начала процесса растворения до стадии развитого конвективного движения увеличивается в несколько раз; максимальное значение временного шага обозначается как τ .

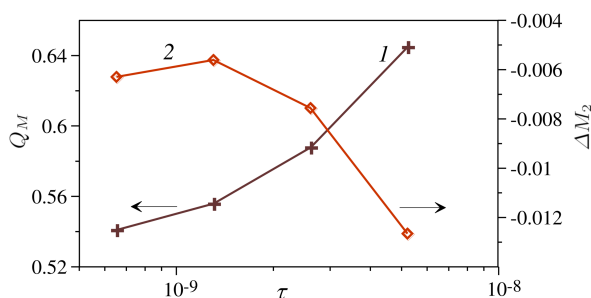


Рис. 3. Величины Q_M (1) и ΔM_2 (2) при вариации шага интегрирования по времени τ

Проведено тестирование вычислительного кода при параметрах варианта 2 (см. Табл. 1, 2) и вариации τ . Рассмотрены четыре тестовых случая. В каждом из них значения в последовательности временных шагов уменьшаются в два раза по сравнению с предыдущим случаем, при этом τ попадает в диапазон: $\tau \in [0.65 \cdot 10^{-9}; 0.52 \cdot 10^{-8}]$. На рисунке 3 показаны величины Q_M (15) и ΔM_2 (16) в безразмерный момент времени $t = 0.4 \cdot 10^{-3}$, к которому в жидкой фазе развивается интенсивное опускное течение. По оси абсцисс используется логарифмический масштаб. Видно, что уменьшение τ от $0.13 \cdot 10^{-8}$ до $0.65 \cdot 10^{-9}$ дает изменение Q_M

меньше, чем на 3%, при этом ΔM_2 — малая по модулю величина, что свидетельствует о высокой точности численного решения. Исходя из результатов тестирования для дальнейших расчетов берется последовательность временных шагов с $\tau = 0.13 \cdot 10^{-8}$. Также меняется пространственная сетка, ее шаг по y изменяется от $\Delta y_{\min} = 0.13 \cdot 10^{-3}$ до $\Delta y_{\max} = 0.53 \cdot 10^{-3}$. При сохранении отношения $\tau/\Delta y_{\min}$ каких-либо заметных изменений в численном решении не выявлено.

5. Результаты численного моделирования

На рисунке 4 приведены поля плотности жидкой фазы, полученные для варианта 3 (см. Табл. 1, 2); показана часть расчетной области. Видно, что на начальном этапе образуется горизонтальный диффузионный слой (слой раствора) между CO₂ и H₂O (Рис. 4а), который в силу неустойчивости деформируется, порождая конвективные «пальцы», направленные вниз (Рис. 4б). Со временем «пальцы» все больше продвигаются вниз, сливаются, искривляются — формируется развитое стохастическое течение (Рис. 4в–д). Очевидно, что со временем раствора становится все больше. На рисунке 4з для наглядности отмечена глубина проникновения конвективных «пальцев» h_p . Эта величина определяется на каждом временном слое в безразмерных единицах, затем преобразуется к размерному виду, при этом обозначение h_p сохраняется. На вырезке (см. Рис. 4д) в увеличенном масштабе показана зона, в которой происходит интенсивное движение флюида CO₂ и воды, а также растворение первого во второй. Здесь же представлено векторное поле движения жидкости; скорость движения находится по скорости фильтрации как $\mathbf{V} = \mathbf{U}/\phi$. Значение скорости течения жидкости достигает нескольких мм/сут. Векторы скорости построены в каждом 2-м узле пространственной сетки по горизонтали и каждом 3-м узле по вертикали. Хорошо видно, что раствор стекает вниз, поскольку он тяжелее воды. Из-за его оттока формируется подвод чистой воды к зоне растворения; эта вода вовлекается в подъемное течение. При поступлении воды вещество CO₂ растворяется в ней, новая порция раствора опускается вниз. Таким образом, конвективное движение способствует более интенсивному растворению.

Проведена вариация давления и температуры, для этого безразмерные параметры взяты из таблиц 1, 2. Рисунок 5а демонстрирует временные зависимости показателя Q_M при постоянной температуре и разных значениях давления. На рисунке 5б, наоборот, давление почти одинаково, а температура заметно меняется. Как видно, при увеличении давления величина Q_M возрастает, то есть конвективное растворение и перенос CO₂ вглубь области происходят интенсивнее (Рис. 5а). Эта зависимость становится заметной через 250–300 лет, когда формируется развитое конвективное течение, и, следовательно, увеличение оттока массы CO₂ при росте давления ассоциируется с более интенсивным конвективным массопереносом. Например, через 500 лет доля покинувшего начальный слой CO₂ составляет 0.342 при давлении $P = 8.07$ МПа, доходит до 0.355 при $P = 17.73$ МПа и до 0.367 при $P = 31.36$ МПа. Аналогичная тенденция наблюдается и при увеличении температуры: чем выше температура, тем больше значение Q_M (Рис. 5б). Влияние температуры проявляется с самого начала процесса, что объясняется ростом коэффициента диффузии CO₂ в H₂O. Таким образом, если температура поднимается, то на начальном этапе происходит более интенсивный диффузионный массоперенос. Через 500 лет начальный слой покинет

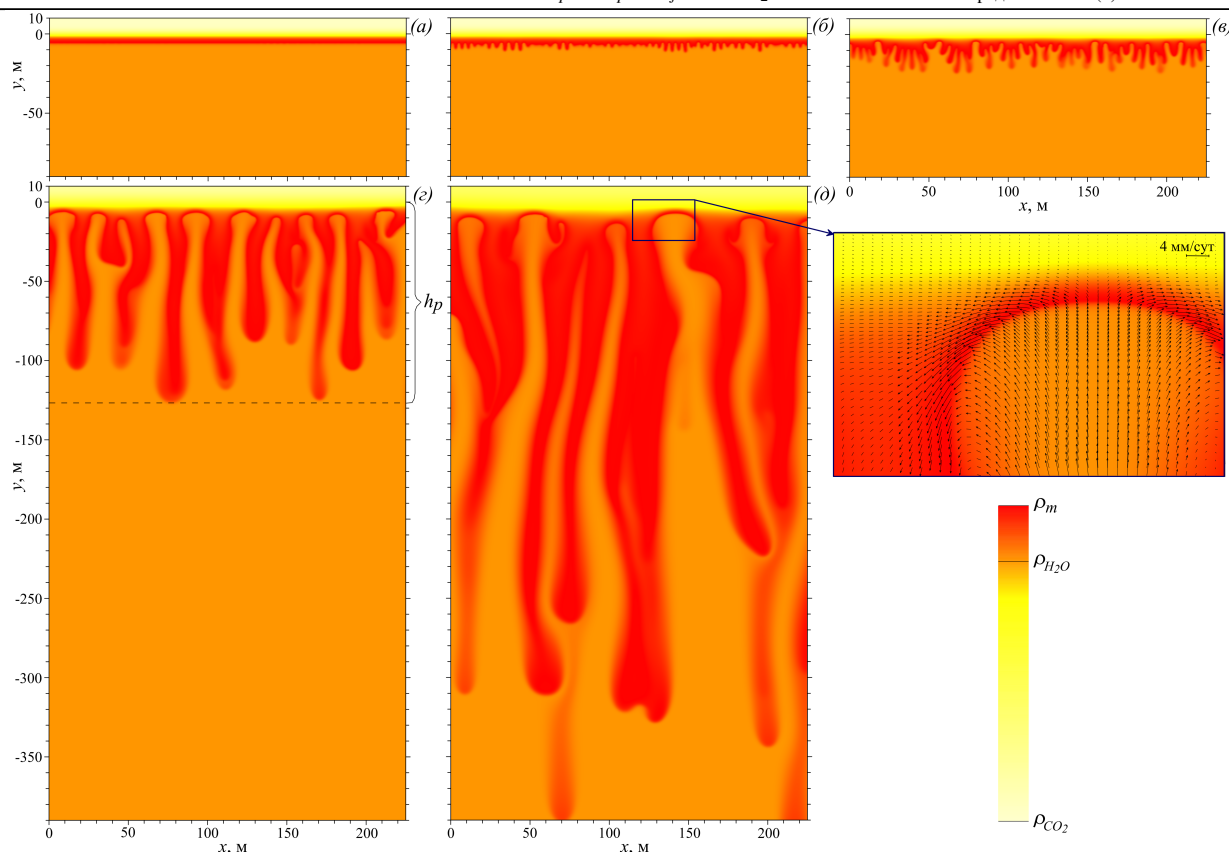


Рис. 4. Поле плотности жидкой фазы через 35 лет (а), 52 года (б), 78 лет (в), 273 года (г), 633 года (д) после начала растворения

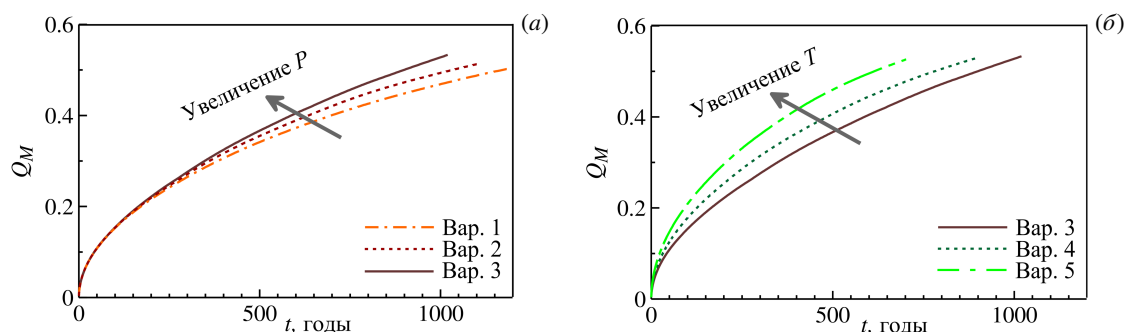


Рис. 5. Показатель уменьшения массы CO_2 в начальном слое Q_M в зависимости от времени: $T = 307.7$ К, давление варьируется (а); $P \approx 31$ МПа, температура варьируется (б)

0.367 массы CO_2 при $T = 307.7$ К, тогда как доля ушедшей массы достигнет 0.407 при $T = 332.8$ К и 0.460 при $T = 342.8$ К. При переходе от варианта 1 (307.7 К, 8.07 МПа) к варианту 5 (342.8 К, 31.42 МПа) Q_M через 500 возрастает с 0.342 до 0.460, то есть на 35%

На рисунке 6 приведены временные зависимости глубины проникновения CO_2 в воду h_p . Наиболее сильное увеличение h_p (почти в два раза) наблюдается при $T = 307.7$ К и росте давления от $P = 8.07$ до $P = 17.73$ МПа (Рис. 6а). Дальнейшее увеличение давления до $P = 31.36$ МПа дает лишь незначительный прирост h_p . Что касается температуры, то из рисунка 6б следует, что этот параметр практически не влияет на h_p , кривые $h_p(t)$ проходят очень близко друг к другу в исследованном диапазоне T . На кривых $h_p(t)$ можно заметить «зубцы» — на коротких участках h_p не возрастает, а уменьшается. Такая особенность возникает из-за неравномерного удлинения конвективных «пальцев». Если самый длинный «палец» останавливается, то концентрация CO_2 на его передней кромке уменьшается за счет диффузии. Тогда граница раствора (в настоящем исследовании она определяется по средней концентрации $\langle C \rangle = 3 \cdot 10^{-4}$) поднимается, при этом h_p уменьшается до тех пор, пока какой-то другой «палец» не продвинется и не опустится ниже первого «пальца».

Оценивается время t^* , в течение которого половина вещества CO_2 растворяется в воде и покидает исходный слой. На рисунке 7а видно, что чем выше давление, тем короче t^* ; CO_2 быстрее переносится вниз из зоны начального расположения. Аналогичная тенденция наблюдается и при увеличении температуры T : чем она выше, тем за меньшее время CO_2 уходит вниз. Отношение времени t^* в вариантах с самым медленным и самым скорым оттоком массы составляет 1.9. Обнаруженные закономерности согласуются с результатами на рисунке 5,

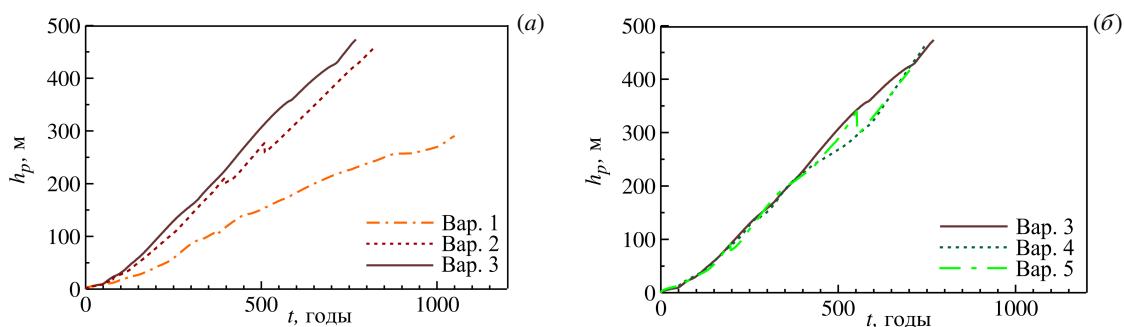


Рис. 6. Глубина проникновения CO_2 в воду h_p в зависимости от времени: $T = 307.7$ К, давление варьируется (а); $P \approx 31$ МПа, температура варьируется (б)

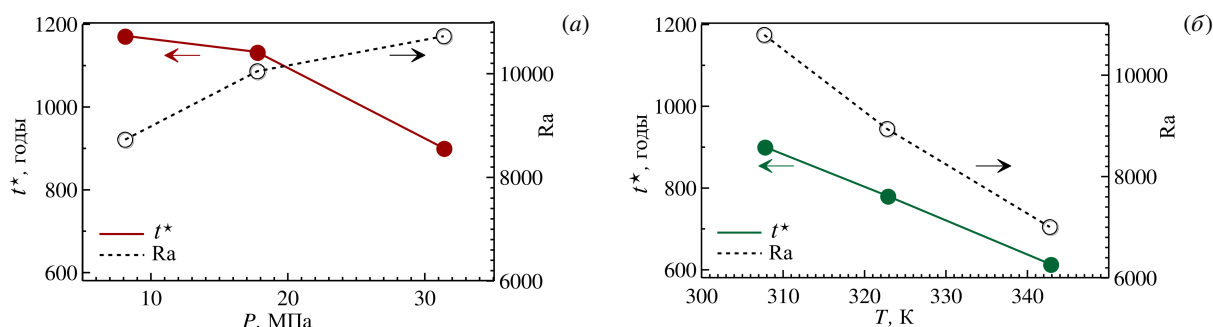


Рис. 7. Зависимости времени полурастворения слоя CO_2 в воде t^* и числа Рэлея–Дарси Ra : от давления при $T = 307.7$ К (а); от температуры при $P \approx 31$ МПа (б)

свидетельствующими об увеличении показателя Q_M при росте давления и температуры. На рисунке 7 для сопоставления представлены графики числа Рэлея–Дарси Ra , построенные по данным из таблицы 2. Получено, что при увеличении давления время t^* сокращается вместе с ростом числа Ra (Рис. 7а). Однако с повышением температуры время t^* сокращается, но и число Рэлея–Дарси становится меньше (Рис. 7б). Таким образом, однозначная связь времени полурастворения, а значит и интенсивности массопереноса, с числом Рэлея–Дарси не прослеживается. Можно предположить, что в обсуждаемой задаче характеристики массопереноса определяются комбинацией безразмерных параметров.

6. Дискуссия и заключение

Исследуются динамические процессы, способствующие удержанию диоксида углерода на глубине при его захоронении в подземных пористых образованиях. Рассматривается растворение сверхкритического флюида CO_2 в воде и односторонняя концентрационная конвекция, которая развивается в силу неустойчивого состояния раствора в поле силы тяжести. Применяется гидродинамическая модель двухкомпонентной однофазной жидкости с нелинейным уравнением состояния в пористой среде, вязкость жидкой системы считается переменной. Используется изотермическое приближение, то есть температура во всей расчетной области полагается постоянной, но от варианта к варианту принимает разные значения. Поскольку интенсивное перемещение компонентов относительно друг друга и растворение происходят в узкой области под слоем CO_2 , то процессы именно в этой области имеют решающее значение для картины течения в целом. В силу данного обстоятельства можно предположить, что изотермическое приближение обеспечивает надежные результаты, но в будущем для полноты описания в модель можно включить геотермальный градиент и неизотермические эффекты, а также рассматривать жидкую систему как двухфазную при концентрациях CO_2 , больших концентрации насыщения, когда в растворе появляется вторая жидкая фаза, образуемая чистым флюидом CO_2 . Однако в конвективных «пальцах» второй фазы очень мало и можно надеяться, что переход от модели однофазной жидкости к двухфазной не даст существенных количественных изменений в их динамике.

На основе модели создан вычислительный код и выполнено численное моделирование поведения жидкости в пласте при реальных физических параметрах. Учитывается, что физические свойства жидкой системы зависят от температуры и давления, значения которых обуславливаются глубиной залегания пласта и прочими условиями. Из литературных источников собраны и проанализированы данные о физических свойствах системы $\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}$ при температуре $T = 307.7 \div 342.8$ К и давлении $P = 8.07 \div 31.42$ МПа, определены расчетные параметры системы. Исследована эволюция исходно горизонтального слоя сверхкритического флюида CO_2 толщиной 10 м, под которым находится вода.

Моделирование динамики системы показало следующее:

– с ростом температуры и давления отток CO_2 из начального слоя возрастает, но глубина проникновения CO_2 в

воду увеличивается только с ростом давления;

— при вариациях давления и температуры в их исследованных диапазонах через 500 лет можно получить 35-процентный прирост массовой доли CO₂, покинувшей начальный слой;

— время, за которое половина флюида CO₂ растворяется в воде и уходит из начального слоя, можно сократить почти вдвое путем повышения давления и температуры в их исследованных диапазонах;

— интенсивность массопереноса не зависит однозначно от числа Рэлея–Дарси, а определяется комбинацией безразмерных параметров.

Таким образом, получено, что увеличение температуры и давления способствует более быстрому конвективному растворению флюида CO₂ в воде, а значит, более надежному хранению диоксида углерода в подземных водонасыщенных пластах.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект № 24-11-00222) (<https://rscf.ru/project/24-11-00222/>).

Литература

1. Bashir A., Ali M., Patil S., Aljawad M.S., Mahmoud M., Al-Shehri D., Hoteit H., Kamal M.S. Comprehensive review of CO₂ geological storage: Exploring principles, mechanisms, and prospects // *Earth-Science Reviews*. 2024. Vol. 249. 104672. DOI: 10.1016/j.earscirev.2023.104672
2. Huppert H.E., Neufeld J.A. The Fluid Mechanics of Carbon Dioxide Sequestration // *Annual Review of Fluid Mechanics*. 2014. Vol. 46. P. 255–272. DOI: 10.1146/annurev-fluid-011212-140627
3. Núñez-López V., Moskal E. Potential of CO₂ – EOR for Near-Term Decarbonization // *Frontiers in Climate*. 2019. Vol. 1. 5. DOI: 10.3389/fclim.2019.00005
4. Афанасьев А.А., Андреева А.И., Сытченко И.М., Чернова А.А. О влиянии растворения CO₂ в воде на эффективность газовых методов увеличения нефтеотдачи // *Вычислительная механика сплошных сред*. 2024. Т. 17, № 3. С. 320–328. DOI: 10.7242/1999-6691/2024.17.3.27
5. Голдобин Д.С., Барях А.А. Подземная утилизация углерода как элемент декарбонизации деятельности человека // *Вестник Пермского федерального исследовательского центра*. 2023. № 4. С. 6–13. DOI: 10.7242/2658-705X/2023.4.1
6. Ndlovu P., Bulannga R., Mguni L.L. Progress in carbon dioxide capture, storage and monitoring in geological landform // *Frontiers in Energy Research*. 2024. Vol. 12. 1450991. DOI: 10.3389/fenrg.2024.1450991
7. Ajayi T., Gomes J.S., Bera A. A review of CO₂ storage in geological formations emphasizing modeling, monitoring and capacity estimation approaches // *Petroleum Science*. 2019. Vol. 16. P. 1028–1063. DOI: 10.1007/s12182-019-0340-8
8. Riaz A., Cinar Y. Carbon dioxide sequestration in saline formations: Part I—Review of the modeling of solubility trapping // *Journal of Petroleum Science and Engineering*. 2014. Vol. 124. P. 367–380. DOI: 10.1016/j.petrol.2014.07.024
9. Soboleva E. Instability Problems and Density-Driven Convection in Saturated Porous Media Linking to Hydrogeology: A Review // *Fluids*. 2023. Vol. 8, no. 2. 36. DOI: 10.3390/fluids8020036
10. Ennis-King J., Paterson L. Role of Convective Mixing in the Long-Term Storage of Carbon Dioxide in Deep Saline Formations // *SPE Journal*. 2005. Vol. 10, no. 3. P. 349–356. DOI: 10.2118/84344-PA
11. Riaz A., Hesse M., Tchelepi H.A., Orr F.M. Onset of convection in a gravitationally unstable diffusive boundary layer in porous media // *Journal of Fluid Mechanics*. 2006. Vol. 548. P. 87–111. DOI: 10.1017/S0022112005007494
12. Pau G.S.H., Bell J.B., Pruess K., Almgren A.S., Lijewski M.J., Zhang K. High-resolution simulation and characterization of density-driven flow in CO₂ storage in saline aquifers // *Advances in Water Resources*. 2010. Vol. 33. P. 443–455. DOI: 10.1016/j.advwatres.2010.01.009
13. Soboleva E.B. Density-driven convection in an inhomogeneous geothermal reservoir // *International Journal of Heat and Mass Transfer*. 2018. Vol. 127. P. 784–798. DOI: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2018.08.019
14. Neufeld J.A., Hesse M.A., Riaz A., Hallworth M.A., Tchelepi H.A., Huppert H.E. Convective dissolution of carbon dioxide in saline aquifers // *Geophysical Research Letters*. 2010. Vol. 37. 22404. DOI: 10.1029/2010GL044728
15. Elenius M.T., Gasda S.E. Convective Mixing Driven by Non-monotonic Density // *Transport in Porous Media*. 2021. Vol. 138. P. 133–155. DOI: 10.1007/s11242-021-01593-3
16. Соболева Е.Б. Моделирование односторонней конвекции в пористой среде с использованием нелинейного уравнения состояния // *Известия Российской академии наук. Механика жидкости и газа*. 2025. № 3. С. 94–106. DOI: 10.31857/S1024708425030094
17. Брацун Д.А., Мошова Е.А. Особенности формирования волн плотности в двухслойной системе смешивающихся реагирующих жидкостей // *Вычислительная механика сплошных сред*. 2018. Т. 11, № 3. С. 302–322. DOI: 10.7242/1999-6691/2018.11.3.23
18. Bratsun D.A., Mizhev A.I., Mosheva E.A. Extended classification of the buoyancy-driven flows induced by a neutralization reaction in miscible fluids. Part 2. Theoretical study // *Journal of Fluid Mechanics*. 2021. Vol. 916. A23. DOI: 10.1017/jfm.2021.202
19. McBride-Wright M., Maitland G.C., Trusler J.P.M. Viscosity and Density of Aqueous Solutions of Carbon Dioxide at Temperatures from (274 to 449) K and at Pressures up to 100 MPa // *Journal of Chemical & Engineering Data*. 2015. Vol. 60. P. 171–180. DOI: 10.1021/je5009125

20. Зубова Н.А., Любимова Т.П. Нелинейные режимы конвекции бинарной смеси в двухслойной пористой среде различной конфигурации // Вычислительная механика сплошных сред. 2022. Т. 15, № 2. С. 145–159. DOI: 10.7242/1999-6691/2022.15.2.11
21. Chemistry WebBook, SRD 69, National Institute of Standards and Technology. URL: <http://webbook.nist.gov/chemistry/fluid/>
22. Efika E.C., Hoballah R., Li X., May E.F., Nania M., Sanchez-Vicente Y., Trusler J.P.M. Saturated Phase Densities of (CO₂ + H₂O) at Temperatures from (293 to 450) K and Pressures up to 64 MPa // The Journal of Chemical Thermodynamics. 2016. Vol. 93. P. 347–359. DOI: 10.1016/j.jct.2015.06.034
23. Hemmati-Sarapardeh A., Amar M.N., Soltanian M.R., Dai Z., Zhang X. Modeling CO₂ Solubility in Water at High Pressure and Temperature Conditions // Energy & Fuels. 2020. Vol. 34. P. 4761–4776. DOI: 10.1021/acs.energyfuels.0c00114
24. Lu W., Guo H., Chou I.M., Burruss R.C., Li L. Determination of diffusion coefficients of carbon dioxide in water between 268 and 473K in a high-pressure capillary optical cell with in situ Raman spectroscopic measurements // Geochimica et Cosmochimica Acta. 2013. Vol. 115. P. 183–204. DOI: 10.1016/j.gca.2013.04.010
25. Leonard B.P. A stable and accurate convective modelling procedure based on quadratic upstream interpolation // Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering. 1979. Vol. 19, no. 1. P. 59–98. DOI: 10.1016/0045-7825(79)90034-3
26. Патанкар С. Численные методы решения задач теплообмена и динамики жидкости. М.: Энергоатомиздат, 1984. 152 с.
27. Соболева Е.Б. Метод численного моделирования концентрационно-конвективных течений в пористых средах в приложении к задачам геологии // Журнал вычислительной математики и математической физики. 2019. Т. 59, № 11. С. 1961–1972. DOI: 10.1134/S0044466919110115
28. Соболева Е.Б. Численное моделирование фильтрационных концентрационно-конвективных течений с контрастом вязкости // Журнал вычислительной математики и математической физики. 2022. Т. 62, № 11. С. 1927–1939. DOI: 10.31857/S0044466922110126
29. Soboleva E. On the Influence of Weak Heterogeneity of Porous Medium on Rayleigh–Taylor Convection of Miscible Fluids // Transport in Porous Media. 2025. Vol. 152. 50. DOI: 10.1007/s11242-025-02189-x

Сведения об авторах:

Соболева Елена Борисовна, дфмн, внс, Институт проблем механики им. А.Ю. Ишлинского РАН, 119526, г. Москва, пр-т Вернадского, д. 101, к. 1; e-mail: soboleva@ipmnet.ru; ORCID: 0000-0002-6816-6926

Research article

Numerical investigation of convective dissolution of fluid CO₂ in water during its storage in an underground porous formation

E.B. Soboleva

Ishlinsky Institute for Problems in Mechanics RAS, Moscow, Russian Federation

The study addresses an important environmental problem related to harmful effects of greenhouse gases on Earth's temperature and climate and the need to reduce anthropogenic carbon dioxide emissions into the atmosphere. One-sided density-driven convection developed inside a porous formation during dissolution of supercritical CO₂ fluid in water is investigated in reference to the technologies of carbon dioxide storage in underground water-saturated formations. The hydrodynamic model includes equations of continuity, motion (based on the Darcy's law), convection-diffusion and a non-linear equation of state that relates the density of fluid medium with the concentration of CO₂. A fluid is described as a single-phase two-component medium with variable viscosity. Based on the data available in the literature, the physical properties of the CO₂ + H₂O system were determined in the ranges of temperature $T = 307.7 \div 342.8$ K and pressure $P = 8.07 \div 31.42$ MPa. Numerical simulation of hydrodynamic processes in this system was carried with the aid of the developed finite-difference numerical code. In particular, the code was employed to study how the characteristics of convective dissolution depend on the temperature and the pressure. It has been found that with increase of these parameters the convective dissolution of CO₂ fluid in water is more intensive. For example, the time during which half of CO₂ dissolves in water and is transported down by a convective flow is reduced almost twice. Thus, an increase in temperature and pressure ensures more reliable storage of carbon dioxide in underground water-saturated formations.

Keywords: water-saturated formation, carbon dioxide geo-storage, dissolution, density-driven convection, numerical simulation, finite difference method

Received: 11.03.2026 / *Published online:* 05.08.2026

Acknowledgements

This work was supported by the Russian Science Foundation (project No. 24-11-00222).

References

1. Bashir A., Ali M., Patil S., Aljawad M.S., Mahmoud M., Al-Shehri D., Hoteit H., Kamal M.S. Comprehensive review of CO₂ geological storage: Exploring principles, mechanisms, and prospects. *Earth-Science Reviews*. 2024. Vol. 249. 104672. DOI: 10.1016/j.earscirev.2023.104672
2. Huppert H.E., Neufeld J.A. The Fluid Mechanics of Carbon Dioxide Sequestration. *Annual Review of Fluid Mechanics*. 2014. Vol. 46. P. 255–272. DOI: 10.1146/annurev-fluid-011212-140627
3. Núñez-López V., Moskal E. Potential of CO₂ – EOR for Near-Term Decarbonization. *Frontiers in Climate*. 2019. Vol. 1. 5. DOI: 10.3389/fclim.2019.00005
4. Afanasyev A.A., Andreeva A.I., Sypchenko I.M., Chernova A.A. On the influence of the CO₂ solubility in water on the performance of enhanced oil recovery. *Computational Continuum Mechanics*. 2024. Vol. 17, no. 3. P. 320–328. DOI: 10.7242/1999-6691/2024.17.3.27
5. Goldobin D.S., Baryakh A.A. Underground carbon sequestration as a component of decarbonization in anthropogenic activity. *Perm Federal Research Centre Journal*. 2023. No. 4. P. 6–13. DOI: 10.7242/2658-705X/2023.4.1
6. Ndlovu P., Bulamga R., Mguni L.L. Progress in carbon dioxide capture, storage and monitoring in geological landform. *Frontiers in Energy Research*. 2024. Vol. 12. 1450991. DOI: 10.3389/fenrg.2024.1450991
7. Ajayi T., Gomes J.S., Bera A. A review of CO₂ storage in geological formations emphasizing modeling, monitoring and capacity estimation approaches. *Petroleum Science*. 2019. Vol. 16. P. 1028–1063. DOI: 10.1007/s12182-019-0340-8
8. Riaz A., Cinar Y. Carbon dioxide sequestration in saline formations: Part I—Review of the modeling of solubility trapping. *Journal of Petroleum Science and Engineering*. 2014. Vol. 124. P. 367–380. DOI: 10.1016/j.petrol.2014.07.024
9. Soboleva E. Instability Problems and Density-Driven Convection in Saturated Porous Media Linking to Hydrogeology: A Review. *Fluids*. 2023. Vol. 8, no. 2. 36. DOI: 10.3390/fluids8020036
10. Ennis-King J., Paterson L. Role of Convective Mixing in the Long-Term Storage of Carbon Dioxide in Deep Saline Formations. *SPE Journal*. 2005. Vol. 10, no. 3. P. 349–356. DOI: 10.2118/84344-PA
11. Riaz A., Hesse M., Tchelepi H.A., Orr F.M. Onset of convection in a gravitationally unstable diffusive boundary layer in porous media. *Journal of Fluid Mechanics*. 2006. Vol. 548. P. 87–111. DOI: 10.1017/S0022112005007494
12. Pau G.S.H., Bell J.B., Pruess K., Almgren A.S., Lijewski M.J., Zhang K. High-resolution simulation and characterization of density-driven flow in CO₂ storage in saline aquifers. *Advances in Water Resources*. 2010. Vol. 33. P. 443–455. DOI: 10.1016/j.advwatres.2010.01.009
13. Soboleva E.B. Density-driven convection in an inhomogeneous geothermal reservoir. *International Journal of Heat and Mass Transfer*. 2018. Vol. 127. P. 784–798. DOI: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2018.08.019
14. Neufeld J.A., Hesse M.A., Riaz A., Hallworth M.A., Tchelepi H.A., Huppert H.E. Convective dissolution of carbon dioxide in saline aquifers. *Geophysical Research Letters*. 2010. Vol. 37. 22404. DOI: 10.1029/2010GL044728
15. Elenius M.T., Gasda S.E. Convective Mixing Driven by Non-monotonic Density. *Transport in Porous Media*. 2021. Vol. 138. P. 133–155. DOI: 10.1007/s11242-021-01593-3
16. Soboleva E.B. Simulation of One-Sided Convection in a Porous Medium Using a Nonlinear Equation of State. *Fluid Dynamics*. 2025. Vol. 60. 69. DOI: 10.1134/S0015462825600099
17. Bratsun D.A., Mosheva E.A. Peculiar properties of density wave formation in a two-layer system of reacting miscible liquids. *Computational Continuum Mechanics*. 2018. Vol. 11, no. 3. P. 302–322. DOI: 10.7242/1999-6691/2018.11.3.23
18. Bratsun D.A., Mizev A.I., Mosheva E.A. Extended classification of the buoyancy-driven flows induced by a neutralization reaction in miscible fluids. Part 2. Theoretical study. *Journal of Fluid Mechanics*. 2021. Vol. 916. A23. DOI: 10.1017/jfm.2021.202
19. McBride-Wright M., Maitland G.C., Trusler J.P.M. Viscosity and Density of Aqueous Solutions of Carbon Dioxide at Temperatures from (274 to 449) K and at Pressures up to 100 MPa. *Journal of Chemical & Engineering Data*. 2015. Vol. 60. P. 171–180. DOI: 10.1021/je5009125
20. Zubova N.A., Lyubimova T.P. Nonlinear regimes of binary mixture convection in a two-layer porous medium of different configurations. *Computational Continuum Mechanics*. 2022. Vol. 15, no. 2. P. 145–159. DOI: 10.7242/1999-6691/2022.15.2.11
21. Chemistry WebBook, SRD 69, National Institute of Standards and Technology. URL: <http://webbook.nist.gov/chemistry/fluid/>
22. Efika E.C., Hoballah R., Li X., May E.F., Nania M., Sanchez-Vicente Y., Trusler J.P.M. Saturated Phase Densities of (CO₂ + H₂O) at Temperatures from (293 to 450) K and Pressures up to 64 MPa. *The Journal of Chemical Thermodynamics*. 2016. Vol. 93. P. 347–359. DOI: 10.1016/j.jct.2015.06.034

23. *Hemmati-Sarapardeh A., Amar M.N., Soltanian M.R., Dai Z., Zhang X.* Modeling CO₂ Solubility in Water at High Pressure and Temperature Conditions. *Energy & Fuels*. 2020. Vol. 34. P. 4761–4776. DOI: 10.1021/acs.energyfuels.0c00114
24. *Lu W., Guo H., Chou I.M., Burruss R.C., Li L.* Determination of diffusion coefficients of carbon dioxide in water between 268 and 473K in a high-pressure capillary optical cell with in situ Raman spectroscopic measurements. *Geochimica et Cosmochimica Acta*. 2013. Vol. 115. P. 183–204. DOI: 10.1016/j.gca.2013.04.010
25. *Leonard B.P.* A stable and accurate convective modelling procedure based on quadratic upstream interpolation. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*. 1979. Vol. 19, no. 1. P. 59–98. DOI: 10.1016/0045-7825(79)90034-3
26. *Patankar S.* Numerical Heat Transfer and Fluid Flow. New York: Hemisphere Pub. Corp., 1980. 197 p.
27. *Soboleva E.B.* A Method for Numerical Simulation of Haline Convective Flows in Porous Media as Applied to Geology. *Computational Mathematics and Mathematical Physics*. 2019. Vol. 59, no. 11. P. 1893–1903. DOI: 10.1134/S0965542519110101
28. *Soboleva E.B.* Numerical Simulation of Haline–Convective Flows with Viscosity Contrast in a Porous Medium. *Computational Mathematics and Mathematical Physics*. 2022. Vol. 62, no. 11. P. 1942–1954. DOI: 10.1134/S0965542522110100
29. *Soboleva E.* On the Influence of Weak Heterogeneity of Porous Medium on Rayleigh–Taylor Convection of Miscible Fluids. *Transport in Porous Media*. 2025. Vol. 152. 50. DOI: 10.1007/s11242-025-02189-x