

高矿化度油藏用聚丙烯酰胺封堵凝胶的制备及性能

党志强^{1,2}, 张光华^{2*}, 赖小娟^{1,2}, 王磊^{1,2}, 高进浩³, 蔺旭杰^{1,2}

(1. 陕西科技大学 化学与化工学院, 陕西 西安 710021; 2. 陕西科技大学 轻化工助剂化学与技术教育部重点实验室, 陕西 西安 710021; 3. 陕西科技大学 轻工科学与工程学院, 陕西 西安 710021)

摘要: 为实现封堵凝胶对高矿化度油藏的有效封堵, 以丙烯酰胺 (AM)、2-丙烯酰胺-2-甲基丙磺酸 (AMPS)、4-丙烯酰吗啉 (ACMO) 为聚合单体, 通过水溶液聚合法制备了耐温耐盐聚丙烯酰胺 (TS-2), 然后将其与交联剂乙酸铬在 150 °C 交联成胶, 制备了高抗盐凝胶封堵剂 (TSP-2)。通过 FTIR、¹HNMR、SEM、旋转黏度计、流变仪对 TSP-2 进行了表征和测试, 采用自制的不同渗透率的填砂管, 评价了 TSP-2 的封堵性能, 探讨了乙酸铬与 TS-2 的交联机理。结果表明, 交联时间为 6 d 时, TSP-2 的表观黏度最高, 为 94400 mPa·s, 弹性模量和黏性模量在不同频率 (0.1~10 Hz) 和剪切应力 (0.1~10 Pa) 下均保持稳定; TSP-2 对液测渗透率 458~873 mD 的填砂管的封堵率均在 96% 以上, 突破压力梯度为 4.52~17.64 MPa/m; TS-2 与乙酸铬交联可分为诱导期、加速期和稳定期, 乙酸铬通过水解释放的 Cr³⁺ 和羟桥反应, 使凝胶内部逐渐形成丰富有序的交联网络结构, 导致凝胶表观黏度从缓慢变化到快速增长, 最后趋于稳定。

关键词: 地层水; 低强度; 缓交联封堵凝胶; 交联网络; 封堵效果; 油田化学品

中图分类号: TE39 **文献标识码:** A **文章编号:** 1003-5214 (2025) 10-2281-07

Preparation and properties of polyacrylamide plugging gel for high salinity oil reservoir

DANG Zhiqiang^{1,2}, ZHANG Guanghua^{2*}, LAI Xiaojuan^{1,2},
WANG Lei^{1,2}, GAO Jinhao³, LIN Xujie^{1,2}

(1. School of Chemistry and Chemical Engineering, Shaanxi University of Science & Technology, Xi'an 710021, Shaanxi, China; 2. Key Laboratory of Auxiliary Chemistry and Technology for Light Chemical Industry, Ministry of Education, Shaanxi University of Science & Technology, Xi'an 710021, Shaanxi, China; 3. College of Bioresources Chemical & Materials Engineering, Shaanxi University of Science & Technology, Xi'an 710021, Shaanxi, China)

Abstract: In order to achieve effective plugging of high salinity oil reservoir, temperature and salt-resistant polyacrylamide (TS-2) was prepared from aqueous polymerization of acrylamide (AM), 2-acrylamide-2-methylpropanesulfonic acid (AMPS) and 4-acrylylmorpholinium (ACMO), and crosslinked with chromium acetate at 150 °C to obtain high salt-resistant plugging sealer (TSP-2). TSP-2 was characterized and analyzed by FTIR, ¹HNMR, SEM as well as rotary viscometer and rheometer, while its plugging performance was further evaluated by self-made sand-filled tubes with different permeability, with the cross-linking mechanism between chromium acetate and TS-2 discussed. The results showed that the TSP-2 prepared *via* cross-linking for 6 d exhibited the highest apparent viscosity (94400 mPa·s), and stable elastic modulus as well as viscous modulus at different frequencies (0.1~10 Hz) and shear stresses (0.1~10 Pa). The sealing rate of TSP-2 sand filled pipes with fluid permeability of 458~873 mD were all above 96%, and the breakthrough pressure gradient was 4.52~17.64 MPa/m. The cross-linking between TS-2 with chromium acetate could be divided into induction phase, acceleration phase and stable phase. Through the Cr³⁺ and hydroxyl bridge reaction released by hydrolysis of chromium acetate, a rich and orderly

收稿日期: 2024-11-09; 定用日期: 2024-12-05; DOI: 10.13550/j.jxhg.20240850

基金项目: 国家自然科学基金项目 (31670596); 陕西省重点研发计划项目 (2020GY-232); 陕西省教育厅项目 (20JC005)

作者简介: 党志强 (1994—), 男, 博士生, E-mail: BS220811012@sust.edu.cn. 联系人: 张光华 (1962—), 男, 教授, E-mail: zhanggh@sust.edu.cn.

cross-linking network structure was gradually formed inside the gel, resulting in the apparent viscosity of the gel changing slowly to increasing rapidly, and finally becoming stable.

Key words: formation water; low strength; slow crosslinking plugging gel; cross-linked network; plugging effect; oilfield chemicals

随着科技的发展,人们对油气勘探理论不断深入,油藏的开发逐步向深层、超深层^[1-5]的非常规领域逐渐拓展。近年来,随着油气资源产量在深层和超深层领域的不断突破,逐渐形成了大批储量区,为中国油气储量保持稳定提供了有效保障。

深井油气资源的开采仍存在诸如地层水淹等一些列问题,油气井井底越深,越接近隔水层,油藏边部或者底部的底水或地层水通过地层裂缝或孔隙向上移动,进入油井或油层,造成地层水淹,从而影响油藏的采收率。基于此,学者们对地层水淹的问题开展了室内研究。水凝胶是一种亲水的三维网络结构凝胶^[6-8],在水中能够迅速吸收大量水分而溶胀,但不溶解,具有良好的机械强度和保水性能,近年来已广泛应用于医疗、电子、油田等多个领域。凝胶封堵技术^[9-13]是一种有效解决地层水淹的方法,通过向地层中注入凝胶材料,使其到目标地层后形成凝胶,以凝胶的高强度特性实现封堵,从而降低水侵造成的伤害。张亚楠等^[14]以丙烯酰胺(AM)、2-丙烯酰胺-2-甲基丙磺酸(AMPS)、*N*-二甲基氨基甲基丙烯酸酯(N-DMAPMA)为原料制备了三元共聚物,然后在交联剂作用下制备了凝胶,该凝胶具有良好的耐盐性能,适用于矿化度 $<1 \times 10^5$ mg/L 的油藏。LIU 等^[15]以 AM、1-乙烯基-2-吡咯烷酮(NVP)、AMPS 为原料制备了三元共聚物,以聚乙烯亚胺为交联剂制备了封堵凝胶,该封堵凝胶可以在 120 °C、2 MPa 的排斥压力下完全密封裂缝,最终瞬时流量趋于 0 mL/min,最大突破压力达到 12.6 MPa,固定排斥流速为 5 mL/min,具有良好的堵塞承压性能。景艳等^[16]利用 AM 和 AMPS 二元共聚物、纳米硅颗粒、乙酸铬交联剂制备了铬冻胶堵剂,结果发现,该铬冻胶堵剂在 90 °C 下成胶时间为 21 h,成胶后弹性模量 >16 Pa,突破压力梯度可达 2 MPa/m 以上。深井的油气藏埋深较大,地层温度较高,压力较大,采出水矿化度 $>2 \times 10^5$ mg/L,且仍在持续上升,常规的凝胶体系在高矿化度下的性能较差,无法满足现场施工要求,如何实现凝胶在高矿化度的有效封堵是现阶段亟待解决的问题。

本文拟将耐盐单体 AMPS 与耐温单体 4-丙烯酰胺吗啉(ACMO)引入到 AM 主链中,采用水溶液聚

合法制备耐温耐盐聚丙烯酰胺,然后以乙酸铬为交联剂,制备高抗盐凝胶封堵剂。使用 FTIR、¹HNMR 对聚丙烯酰胺进行结构表征,采用 SEM、旋转黏度计、流变仪对凝胶封堵剂形成过程进行阐述,对其封堵性进行评价,阐述聚丙烯酰胺与乙酸铬交联过程与机理。以期应用于高矿化度下的凝胶封堵剂的制备提供参考。

1 实验部分

1.1 试剂与仪器

AM、AMPS、ACMO、过硫酸铵(APS)、亚硫酸氢钠、偶氮二异丁腈(AIBN)、NaOH, AR, 国药集团化学试剂有限公司;乙酸铬,质量分数 99%,上海瀚思化工有限公司;阴离子聚丙烯酰胺(HPMA,相对分子质量为 1.2×10^7),陕西长海油田助剂有限公司;去离子水,自制。

VERTEX 70 型傅里叶变换红外光谱仪(FTIR)、AVANCE III HD 600 MHz 型全数字化超导核磁共振波谱仪(NMR),德国 Bruker 公司;Quanta 450 FEG 型扫描电子显微镜(SEM),美国 FEI 公司;DVS+ 旋转黏度计,美国 Brookfield 公司;KH-100 mL 型水热合成反应釜,陕西长海油田助剂有限公司;HAAKE RS6000 型流变仪,德国 HAAKE 公司。

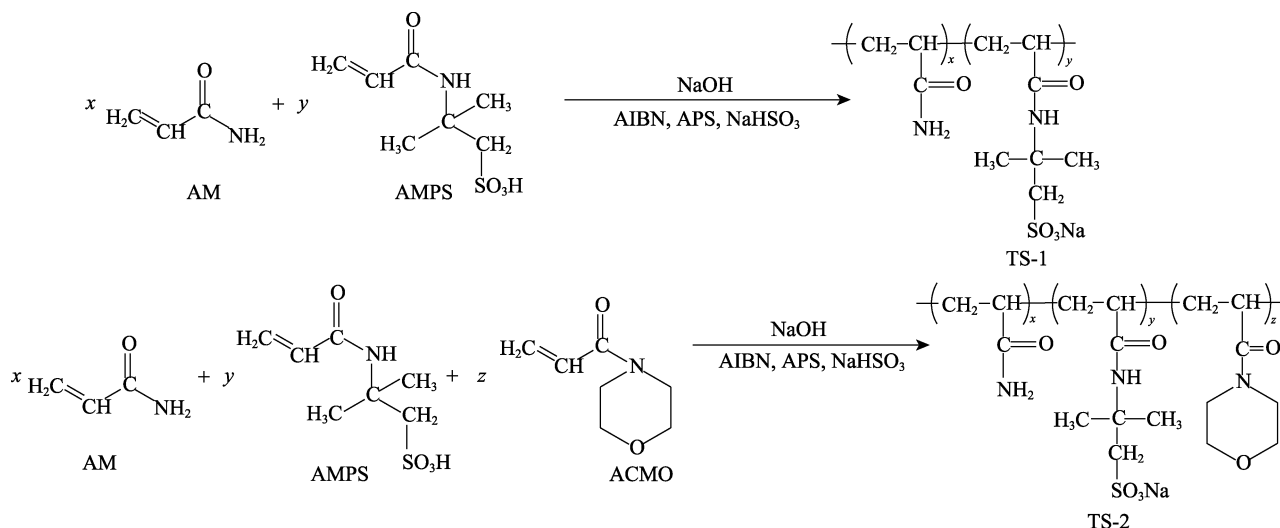
1.2 方法

1.2.1 聚丙烯酰胺的制备

将 14.2 g (0.2 mol) AM、20.7 g (0.1 mol) AMPS 充分溶解在 64.0 g (3.5 mol) 去离子水中,然后用 NaOH 调节溶液 pH 至 6~7,控制温度在 10 °C 以下。将上述配制好的溶液倒入保温反应瓶中,通入 N₂ 保持 30 min,搅拌加入 0.456 g (0.002 mol) APS、0.312 g (0.003 mol) 亚硫酸氢钠和 0.328 g (0.002 mol) AIBN 后,停止通入 N₂,使用保温棉绝热,直至体系温度恒定,反应时间 3~4 h,得到凝胶。凝胶剪切、造粒,于 80 °C 下干燥 5 h,粉碎机粉碎后用 120 目筛网过滤,得到 35.1 g 耐盐聚丙烯酰胺白色粉末,记为 TS-1。

采用制备 TS-1 相同的方法和步骤,在加入 AM、AMPS 的同时加入 0.988 g (0.007 mol) ACMO,得到 35.6 g 耐温耐盐聚丙烯酰胺白色粉末,记为 TS-2。

TS-1 和 TS-2 的合成路线示意图如下所示:



1.2.2 凝胶封堵剂的制备

室温下, 用采出水 (表 1) 配制质量分数 0.5% 的 TS-2 溶液 80 mL, 再加入含量 (以 TS-2 溶液质量计, 下同) 为 3% 的乙酸铬交联剂, 搅拌均匀后, 装入 100 mL 高温水热合成釜中, 在 150 °C 下交联, 得到深绿色高抗盐凝胶封堵剂, 记为 TSP-2。

采用制备 TSP-2 相同的方法和步骤, 将 TS-1 代替 TS-2, 得到深绿色高抗盐凝胶封堵剂, 记为 TSP-1。

文献[16]研究表明, HPMA 在高盐环境下具有良好的溶解性, 因此, 采用制备 TSP-2 相同的方法和步骤, 取质量分数 0.5% 的 HPMA 溶液 80 mL 及含量 0.3% 的乙酸铬交联剂, 得到交联 HPMA, 作为对比实验。

对 TSP-1、TSP-2、交联 HPMA 在 150 °C 高温水热合成釜中进行老化实验, 观察凝胶在高温下的凝胶稳定性。

表 1 采出水水质分析结果
Table 1 Results of produced water quality analysis

离子	质量浓度/(mg/L)	总矿化度/(mg/L)
K ⁺ /Na ⁺	71781.32	216336.66
Ca ²⁺	10169.90	
Mg ²⁺	1385.59	
Cl ⁻	132595.10	
SO ₄ ²⁻	50.00	
HCO ₃ ⁻	147.75	
I ⁻	7.00	
Br ⁻	200.00	

1.3 表征方法与性能测试

FTIR 测试: 温度 25 °C, KBr 压片法, 波数范围 4000~500 cm⁻¹, 分辨率 4 cm⁻¹, 扫描次数 32 次。
¹HNMR 测试: 将 15 mg TS-2 溶于 5 mL D₂O 中, 在 25 °C 下进行测试, 扫描频率 60 Hz。SEM 测试: 样

品使用液氮冷冻干燥, 喷金, 低位二次电子 (LEI) 模式, 工作电流 20 μA, 电子加速电压 20 kV。

表观黏度测试: 在 25 °C 下, 使用旋转黏度计测试交联 7 d 过程中 TSP-1 与 TSP-2 表观黏度的变化。

黏弹性测试: 在 30 °C 下, 取用不同交联时间段的 TSP-2, 采用流变仪测定其弹性模量 (G') 与黏性模量 (G'') 随剪切应力 (τ) 和频率 (f) 的变化。

1.4 封堵实验

自制不同渗透率的填砂管 (内径 2.5 cm, 长度 30 cm)。在 150 °C 下, 对 TSP-2 的封堵性进行评价。将填砂管抽真空, 测定孔隙体积; 以 5 mL/min 的速率注入地层水至压力稳定, 根据式 (1) 计算填砂管初始渗透率 (K_1 , mD); 以 3 mL/min 的速率反向注入 1.0 PV (注入速率×注入时间/孔隙体积) 未老化的 TSP-2, 并恒温 6 d; 再以 5 mL/min 的速率正向注入地层水, 测定突破压力, 再根据式 (1) 计算封堵后渗透率 (K_2 , mD)。按式 (2)、(3) 计算封堵率 (η , %) 和突破压力梯度 (P_L , MPa/m):

$$K = Q\mu L / (A\Delta P) \quad (1)$$

$$\eta / \% = (K_1 - K_2) / K_1 \times 100 \quad (2)$$

$$P_L = 100P_b / L \quad (3)$$

式中: K 为绝对渗透率, mD; Q 为地层水通过填砂管的流量 (平流泵设置), cm³/s; μ 为地层水黏度, mPa·s; ΔP 为地层水通过填砂管前后的压差, MPa; L 为自制填砂管长度, cm; A 为自制填砂管横截面积, cm²; η 为封堵率, %; P_b 为 TSP-2 在填砂管中突破压力, MPa。

2 结果与讨论

2.1 表征

2.1.1 FTIR 分析

图 1 为 TS-1 和 TS-2 的 FTIR 谱图。

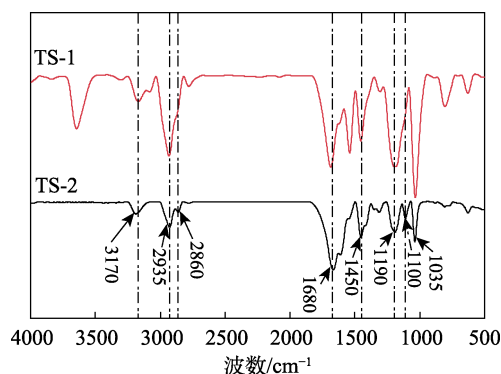


图 1 TS-1 和 TS-2 的 FTIR 谱图
Fig. 1 FTIR spectra of TS-1 and TS-2

从图 1 可以看出, 3170 cm^{-1} 处为 N—H 键的伸缩振动吸收峰; 2935 和 2860 cm^{-1} 处为亚甲基和次甲基中 C—H 键的伸缩振动吸收峰; 1680 cm^{-1} 处为 C=O 键的伸缩振动特征峰; 1450 cm^{-1} 处为 C—N 键的伸缩振动吸收峰; 1190 cm^{-1} 处为 C—S 键的弯曲振动吸收峰; 1035 cm^{-1} 处为 C—N 键的弯曲振动吸收峰。对比 TS-1 和 TS-2 的 FTIR 谱图可以看出, TS-2 在 1100 cm^{-1} 处出现新的吸收峰, 为 $\text{CH}_2\text{—O—CH}_2$ 键的不对称伸缩振动, 表明 TS-1、TS-2 成功制备。

2.1.2 ^1H NMR 分析

图 2 为 TS-2 的 ^1H NMR 谱图。

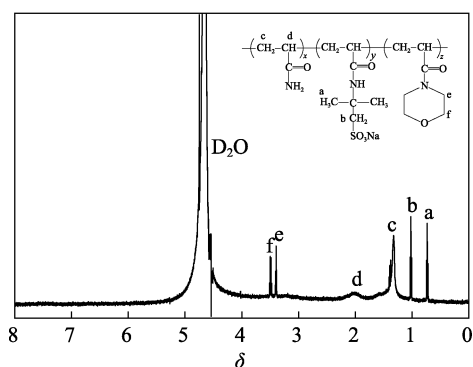
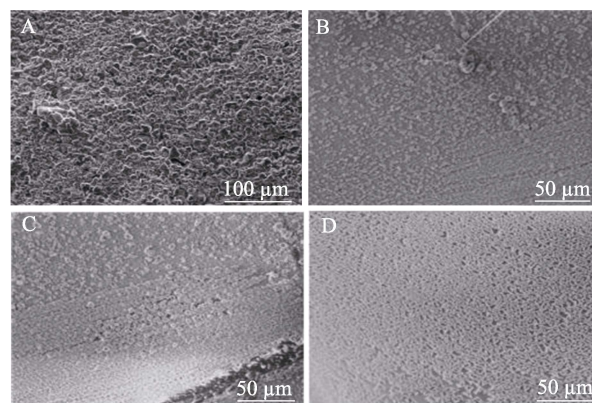


图 2 TS-2 的 ^1H NMR 谱图
Fig. 2 ^1H NMR spectrum of TS-2

从图 2 可以看出, $\delta 4.70$ 为 D_2O 溶剂峰; $\delta 0.73$ (a) 处质子峰对应— CH_3 基团; $\delta 1.02$ (b) 处质子峰对应— CH_2 —基团; $\delta 1.35$ (c) 和 2.02 (d) 处质子峰对应— CH_2 —和— CH —基团; $\delta 3.39$ (e) 和 3.49 (f) 处质子峰对应— $\text{CH}_2\text{—CH}_2$ —基团。证实耐温耐盐封堵剂 TS-2 已成功制备。

2.1.3 SEM 分析

图 3 为 TSP-1 和 TSP-2 在不同老化阶段的 SEM 图。



A—7 d; B—2 d; C—4 d; D—6 d
图 3 TSP-1 (A) 和 TSP-2 (B~D) 在不同交联时间的 SEM 图
Fig. 3 SEM images of TSP-1 (A) and TSP-2 (B~D) at different crosslinking times

从图 3 可以看出, TSP-1 在交联 7 d 后, 聚合物表面富集了大量的盐离子, 高温导致其聚合物分子链卷曲, 并未出现交联网络结构 (图 3A)。TSP-2 交联 2 d 后, 聚合物表面有少量盐离子, 但已出现少量聚合物聚集 (图 3B), 表明此时已发生分子内交联反应, 分子链收缩形成密实的线团, 可称为单分子球; 交联 4 d 后, 出现大量有序的聚合物聚集 (图 3C), 此时为单分子球间的交联, 即分子间交联, 初步形成有序的网络; 交联 6 d 后, 已形成大规模的有序交联网络结构 (图 3D), 表明 TSP-2 在高温下仍具有有序稳定的内部结构。

2.1.4 表观黏度分析

图 4 为 TSP-1 和 TSP-2 的表观黏度随时间的变化。

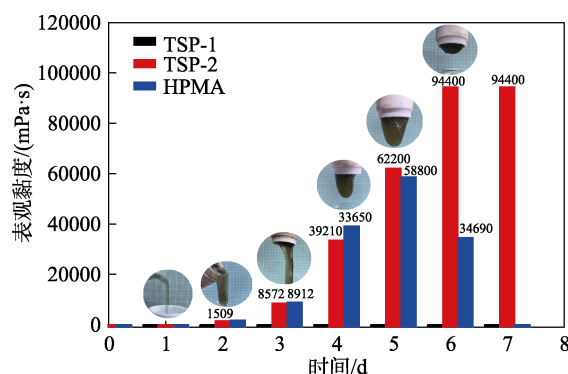


插图 为不同时间 TSP-2 与 Cr^{3+} 成胶后凝胶的状态

图 4 TSP-1 和 TSP-2 的表观黏度随时间的变化
Fig. 4 Change of apparent viscosity of TSP-1 and TSP-2 over time

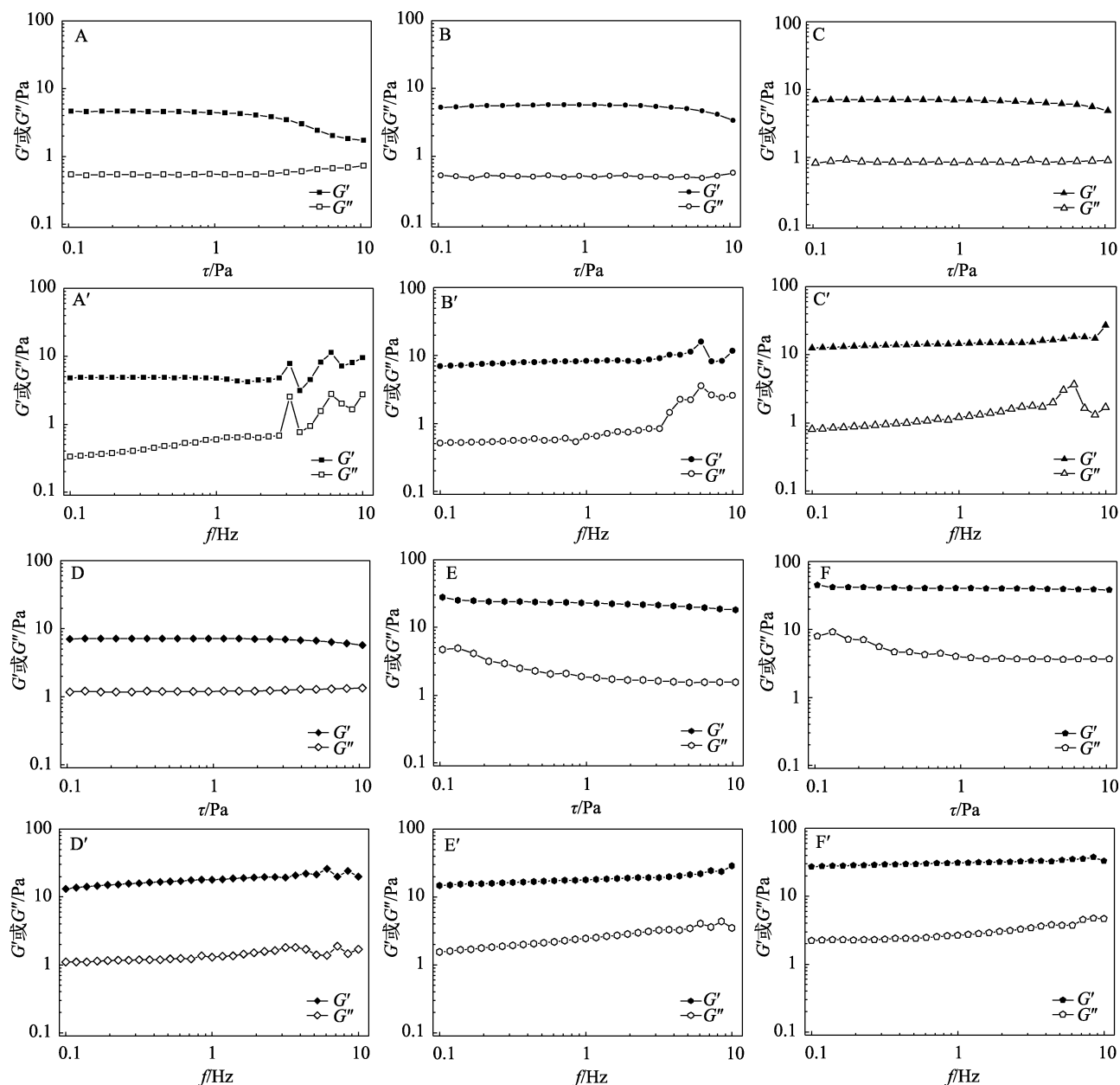
从图 4 可以看出, TSP-1 的初始表观黏度为 $4.38\text{ mPa}\cdot\text{s}$; 交联第 2 d 表观黏度降至 $2.77\text{ mPa}\cdot\text{s}$; 交联第 3 d 表观黏度降至 $1.08\text{ mPa}\cdot\text{s}$; 此后至第 7 d,

表观黏度不再变化。表明 TSP-1 并未发生交联反应, 并在 150 °C 下因高温导致分子链卷曲, 出现脱水现象, 说明 AM 和 AMPS 聚合制备的 TSP-1 无法在高温下使用。从图 4 还可以看出, TSP-2 的初始表观黏度为 4.65 mPa·s; 交联 1 d 后, 乙酸铬交联剂受热初步分解并出现初步交联反应, TSP-2 的表观黏度提高至 48.49 mPa·s; 交联 2~5 d 时, 表观黏度开始快速增大, 表明交联反应逐步增强, 聚合物液体逐

渐形成弱凝胶; 交联 6 d 时, 表观黏度达到 94400 mPa·s, 此后不再变化, 凝胶“舌头”消失, 表明强凝胶形成, 交联反应结束。同样地, HPMA 通过与乙酸铬交联后形成的凝胶在初始表现出良好的黏度, 但在 6 d 后凝胶黏度快速下降, 直到完全脱水, 说明 HPMA 也无法满足高温封堵。

2.1.5 黏弹性能分析

图 5 为 TSP-2 在不同交联时间的黏弹性能。



A、A'—1 d; B、B'—2 d; C、C'—3 d; D、D'—4 d; E、E'—5 d; F、F'—6 d

图 5 TSP-2 的 G' 和 G'' 在不同交联时间随剪切应力 (A~F) 和频率 (A'~F') 的变化曲线

Fig. 5 Change curves of G' and G'' of TSP-2 with shear stress (A~F) and frequency (A'~F') at different crosslinking times

从图 5 可以看出, 在不同交联阶段, G' 始终大于 G'' , 凝胶均表现出弹性。随着交联时间的增加, 不同剪切应力和频率下, G' 与 G'' 趋于平稳。 G' 与 G'' 均相对稳定 (图 5A~F), 说明交联反应发生后, 不

同的剪切应力并未破坏凝胶内部铬离子与酰胺基团形成的配位键, 并且随着交联反应的进行, 凝胶内部结构逐步稳定, 导致 G' 与 G'' 逐渐增强。交联 1~3 d 的凝胶 G' 与 G'' 在高频率 (1~10 Hz) 下出现不稳定

波动(图 5A'~C'),这是因为,凝胶内部因不完全的交联反应出现不同程度的单分子球,导致结构尚不稳定。交联 4~5 d 时(图 5D'、E'),表观黏度增长迅速,聚合物内部出现网络结构,使 G' 与 G'' 在高频率下逐渐稳定。交联 6 d 时,表观黏度增长到最大值,凝胶内部形成大量网状结构,使 G' 与 G'' 在高频率下稳定,表明此时 TSP-2 的交联反应已经结束。

2.2 封堵性能分析

表 2 为 TSP-2 对不同渗透率填砂管的封堵效果。图 6 为突破压力梯度和封堵率随填料管液测渗透率的变化曲线。

表 2 TSP-2 对不同渗透率填砂管的封堵效果

Table 2 Sealing effect of TSP-2 on sand filled pipe with different permeability

填砂管 编号	填砂管参数		TSP-2 封堵效果		
	K_1/mD	孔隙体 积/ cm^3	K_2/mD	$P_L/(\text{MPa}/\text{m})$	$\eta/\%$
1#	458	5.47	11.85	17.64	97.41
2#	524	6.26	15.72	11.28	97.00
3#	642	6.97	19.54	9.69	96.96
4#	741	7.46	25.48	5.74	96.56
5#	873	7.90	33.84	4.52	96.12

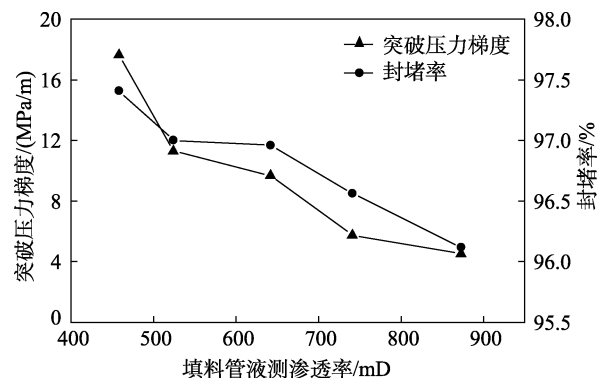


图 6 突破压力梯度和封堵率随填料管液测渗透率的变化曲线

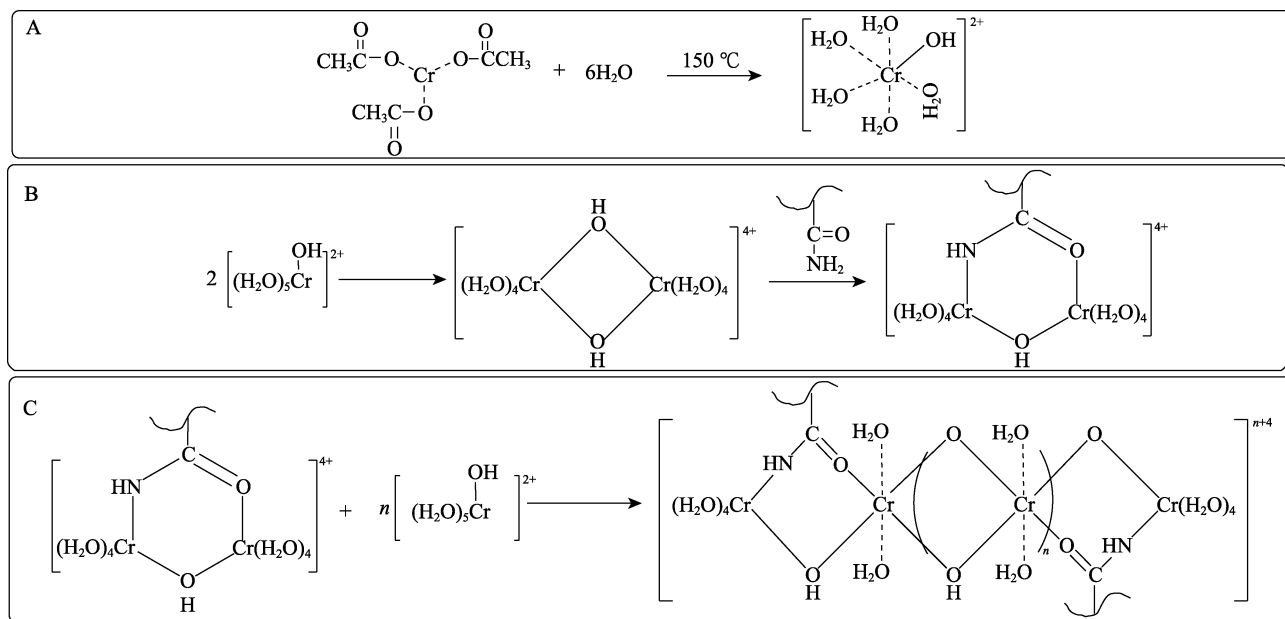
Fig. 6 Change curves of breakthrough pressure gradient and plugging rate with permeability

从表 2 可以看出, TSP-2 对渗透率为 458~873 mD 填砂管都有良好的封堵效果, 封堵率均 >96%, P_L 为 4.52~17.64 MPa/m。

从图 6 可以看出, 随着填砂管渗透率的提高, 突破压力梯度和封堵率均逐渐降低, 表明 TSP-2 在低渗透率条件下使用, 封堵效果更佳。

2.3 乙酸铬交联机理

图 7 为乙酸铬与 TS-2 的交联机理示意图。



A—诱导期; B—加速期; C—稳定期

图 7 乙酸铬与 TS-2 的交联机理示意图

Fig. 7 Schematic diagram of cross-linking mechanism between chromium acetate and TS-2

乙酸铬配合物通过配体使 Cr^{3+} 保持较低的反应活性。在高温条件下, 交联第 1 d, 乙酸铬出现水解释放反应, 此阶段为交联反应诱导期(图 7A), 凝胶表观黏度变化不大; 交联第 2~4 d, 当 Cr^{3+} 被大量释放并发生配体交换反应, 即乙酸铬与聚合物发生交联反应时, Cr^{3+} 通过羟桥反应形成双核羟桥络合

交联体, 此阶段为加速期(图 7B), 凝胶表观黏度快速增大, 其内部出现单分子球, 初步出现交联网络; 交联第 5~7 d, 凝胶进一步发生水解与羟桥反应, 形成多核羟桥络合交联体, 此阶段为稳定期(图 7C), 此时, 凝胶内部形成大量有序、结构稳定的交联网络, 成为高温耐盐缓交联封堵凝胶。

3 结论

通过水溶液聚合法制备了耐温耐盐稠化剂 TS-2, 然后将其与交联剂乙酸铬在 150 °C 交联成胶制备高温耐盐缓交联封堵凝胶 TSP-2。

(1) 交联时间 6 d 时, TSP-2 的表观黏度为 94400 mPa·s, G' 与 G'' 在不同频率和剪切应力下均保持稳定。

(2) TSP-2 对初始渗透率为 458~873 mD 的填砂管均有良好的封堵效果, 封堵率均 >96%, 突破压力梯度为 4.52~17.64 MPa/m。

(3) TS-2 与乙酸铬交联可分为 3 个过程: 一为诱导期, 此时乙酸铬出现水解释放反应, 凝胶表观黏度变化不大; 二为加速期, Cr^{3+} 通过羟桥反应形成双核羟桥络合交联体, 凝胶内部出现单分子球, 表观黏度快速增大; 三为稳定期, Cr^{3+} 进一步通过水解与羟桥反应形成多核羟桥络合交联体, 凝胶内部形成丰富有序的网络结构, 表观黏度增长逐渐稳定。

参考文献:

- [1] SHEN A J, HU A P, QIAO Z F, *et al.* Development and preservation mechanism of deep and ultra-deep carbonate reservoirs[J]. *Science China Earth Sciences*, 2024, 67(11): 3367-3385.
- [2] ZHANG K, LIU X F, WANG D B, *et al.* A review of reservoir damage during hydraulic fracturing of deep and ultra-deep reservoirs[J]. *Petroleum Science*, 2024, 21(1): 384-409.
- [3] BAI Y R, ZHANG Q T, SUN J S, *et al.* Double network self-healing hydrogel based on hydrophobic association and ionic bond for formation plugging[J]. *Petroleum Science*, 2022, 19(5): 2150-2164.
- [4] HAO F. Enrichment mechanism and prospects of deep oil and gas[J]. *Acta Geologica Sinica (English Edition)*, 2022, 96(3): 742-756.
- [5] WANG H G, HUANG H C, BI W X, *et al.* Deep and ultra-deep oil and gas well drilling technologies: Progress and prospect[J]. *Natural Gas Industry B*, 2022, 9(2): 141-157.
- [6] XU X W, JERCA V V, HOOGENBOOM R. Bioinspired double network hydrogels: From covalent double network hydrogels via hybrid double network hydrogels to physical double network hydrogels[J]. *Materials Horizons*, 2021, 8(4): 1173-1188.
- [7] JHON M S, ANDRADA J D. Water and hydrogels[J]. *Journal of Biomedical Materials Research*, 1973, 7(6): 509-522.
- [8] WARREN H, SHEPHERD D J, PANHUIS M I H, *et al.* Porous PNIPAm hydrogels: Overcoming diffusion-governed hydrogel actuation[J]. *Sensors and Actuators A: Physical*, 2020, 301: 111784.
- [9] QU W J, YU P Z. Intelligent gel as a high-performance plugging agent in deep wells[J]. *Acta Geologica Sinica (English Edition)*, 2019, 93(S1): 192.
- [10] ZHAO G, DAI C L, ZHANG Y H, *et al.* Enhanced foam stability by adding comb polymer gel for in-depth profile control in high temperature reservoirs[J]. *Colloids and Surfaces A Physicochemical and Engineering Aspects*, 2015, 482(3): 115-124.
- [11] LAI N J, ZHAO J Q, WANG J, *et al.* Influence of external conditions on the stability of inorganic gel foam and exploration of the mechanism of action[J]. *Journal of Molecular Liquids*, 2023, 369: 120873.
- [12] JIA H, CHEN S H, ZHOU Z M. Strength-enhanced nanocomposite foamed gel as a temporary wellbore plugging fluid: Formulation design and working performance[J]. *Journal of Dispersion Science and Technology*, 2021, 42(8): 1249-1258.
- [13] XU B. A novel foaming agent for low permeability reservoir with high temperature and salinity[J]. *Semantic Scholar*, 2018, 4(10): 18-24.
- [14] ZHANG Y N (张亚楠), ZHANG R J (张荣军), ZHANG C (张超), *et al.* Preparation and gelling performance evaluation of a new delayed crosslinking water shutoff agent system[J]. *Applied Chemistry (应用化工)*, 2023, 52(7): 2080-2083.
- [15] LIU J P, FU H, LUO Z F, *et al.* Preparation and performance of pH-temperature responsive low-damage gel temporary plugging agent[J]. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 2023, 662: 130990.
- [16] JING Y (景艳), LYU X (吕鑫), ZHANG S C (张士诚). Research of HPAM/ Al^{3+} weak gel system with high temperature resistance and high salt tolerance[J]. *Fine Chemicals (精细化工)*, 2005, 22(11): 60-62.
- [17] of tigecycline, chlortetracycline, oxytetracycline, and doxycycline from water by carbon nanoparticles derived from tissue waste[J]. *Nanomaterials*, 2022, 12(20): 3617.
- [18] TIAN Q B (田青柏), YANG G Y (杨关运), LI X Q (李晓强), *et al.* Study on preparation of magnetic coffee grounds biochar and its adsorption properties for chlortetracycline[J]. *China Resources Comprehensive Utilization (中国资源综合利用)*, 2021, 39(8): 33-36.
- [19] FU T, WU S Q, ZHAO M, *et al.* Preparation and application of cattail residue-based magnetic cellulose composites for tetracycline antibiotics adsorption[J]. *Process Safety and Environmental Protection*, 2024, 189(2024): 598-611.
- [20] CHI X Y, ZENG L X, DU Y J, *et al.* Adsorption of levofloxacin on natural zeolite: Effects of ammonia nitrogen and humic acid[J]. *Water Science and Technology*, 2022, 85(10): 2928-2944.
- [21] LUO Y D, LAN Y W, LIANG S Z, *et al.* Rice husk hydrochar prepared by hydrochloric acid assisted hydrothermal carbonization for levofloxacin removal in bioretention columns[J]. *Bioresource Technology*, 2024, 393: 130105.
- [22] WEI F H, GONG J, REN Q H, *et al.* Preparation of Zn/Zr-MOFs by microwave-assisted ball milling and adsorption of lomefloxacin hydrochloride and levofloxacin hydrochloride in wastewater[J]. *Environmental Research*, 2024, 252(3): 118941.
- [23] DING Q (丁绮), LI Y (李艳), CHEN W (陈伟), *et al.* A study on the synthesis performance of three-dimensional porous carbon materials and its adsorption performance on levofloxacin[J]. *Chinese Journal of Health Laboratory (中国卫生检验杂志)*, 2023, 33(2): 154-159, 163.

(上接第 2261 页)

- [29] MA P Y, YAO S W, WANG Z Q, *et al.* Preparation of nitrogen-doped hierarchical porous carbon aerogels from agricultural wastes for efficient pollution adsorption[J]. *Separation and Purification Technology*, 2023, 311: 123250.
- [30] GENG C, LIN R K, YANG P L. Highly selective adsorption of Hg (II) from aqueous solution by three-dimensional porous N-doped starch-based carbon[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2023, 30: 52107-52123.
- [31] LI Y Y, GAO C L, SHUAI K W, *et al.* Performance and mechanism of starch-based porous carbon capture of Cr(VI) from water[J]. *International Journal of Biological Macromolecules*, 2023, 241: 124597.
- [32] GONZALEZ-HOURCADE M, REIS G S D, GRIMM A, *et al.* Microalgae biomass as a sustainable precursor to produce nitrogen-doped biochar for efficient removal of emerging pollutants from aqueous media[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2022, 348: 131280.
- [33] VYAVAHARE G, GURAV R, PATIL R, *et al.* Sorption of brilliant green dye using soybean straw-derived biochar: Characterization, kinetics, thermodynamics and toxicity studies[J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2021, 43: 2913-2926.
- [34] ZHANG Y Q, YU X C, LIU Y F, *et al.* Adsorption of chlortetracycline in aquaculture wastewater by lanthanum modified multi-walled carbon nanotubes[J]. *Journal of Environmental Science and Health, Part B*, 2022, 57(5): 369-378.
- [35] ALMUFARIJ R S, ABDULKHAIR B Y, SALIH M, *et al.* Sweep-out