

# 耐高温多元插层膨胀石墨材料及其应用研究

吴雪鹏

(中石化石油工程技术研究院有限公司,北京 102206)

**摘要:**随着深井、超深井勘探开发力度的不断加大,深层高温、高压等苛刻条件对钻井液提出了更高的要求。针对常规井筒强化材料较难满足深层、特深层钻井过程中的高温、高压等难题,研究了一种在150℃条件下即可膨胀的石墨材料,探索其在高温钻井液中的封堵、降滤失等特性。膨胀石墨是一种具有耐高温(500℃)、高膨胀性能、自润滑性的柔性膨胀材料,现有膨胀石墨起始膨胀温度通常都高于300℃,无法在井底温度条件下发生膨胀。本文采用多元氧化插层法制备了低于300℃即可膨胀的石墨材料,将其起始膨胀温度由300℃降至150℃,研究了该膨胀石墨多元氧化插层膨胀机理,进一步考察了其在高温钻井液中的封堵、降滤失性能。

**关键词:**多元插层;膨胀石墨;起始膨胀温度;耐高温;井筒强化;超深井

**中图分类号:**P634;TE256 **文献标识码:**A **文章编号:**2096-9686(2023)03-0066-08

## Introduction and application of high temperature resistant multi-component intercalated expanded graphite material

WU Xuepeng

(SINOPEC Research Institute of Petroleum Engineering Co., Ltd., Beijing 102206, China)

**Abstract:** With the increasing exploration and development of deep and ultra-deep wells, harsh conditions such as high temperature and high pressure put forward higher requirements for drilling fluid. In view of the difficulty of conventional wellbore strengthening materials to meet the high temperature and high pressure in ultra-deep drilling process, research has been conducted on a graphite material which can expand at 150℃, and its characteristics of plugging and fluid loss reduction in high temperature drilling fluid have also been explored. Expanded graphite is a kind of flexible expansion material with high temperature resistance (500℃), high expansion performance and self-lubricating property. The initial expansion temperature of the existing expanded graphite is generally higher than 300℃, and cannot expand at the bottomhole temperature. The multi-component oxidation intercalation method was used to prepare the expanded graphite material with initial expansion temperature reduced from 300℃ to 150℃. The expansion mechanism of the multi-component oxidation intercalation is examined, and its plugging and filtration performance in high temperature drilling fluid is further investigated.

**Key words:** multiple intercalated; expanded graphite; initial expansion temperature; high temperature resistance; wellbore strengthening; ultra-deep well

## 0 引言

随着国内经济的高速发展,石油作为一种战略性资源和“政治性商品”,在国民经济和国际关系中

具有举足轻重的作用。2021年国内油气行业发展报告表明,我国石油对外依存度仍高达72.2%,严重威胁国家能源安全<sup>[1]</sup>。我国的常规油气资源正逐渐

收稿日期:2022-10-15; 修回日期:2023-04-09 DOI:10.12143/j.ztgc.2023.03.009

基金项目:中国石化课题“智能响应材料”(编号:P20033)

作者简介:吴雪鹏,男,汉族,1988年生,高级工程师,油气田开发工程专业,博士,从事油田化学剂研究工作,北京市昌平区沙河镇百沙路中国石化科学技术研究中心主楼1111室,wuxp.sripe@sinopec.com。

引用格式:吴雪鹏.耐高温多元插层膨胀石墨材料及其应用研究[J].钻探工程,2023,50(3):66-73.

WU Xuepeng. Introduction and application of high temperature resistant multi-component intercalated expanded graphite material[J]. Drilling Engineering, 2023, 50(3):66-73.

衰竭,页岩油气、特深层油气及致密油气正日益成为开发的热点,如何实现此类非常规油气资源的高效开发将是我国今后油气勘探开发的主要研究方向<sup>[2-4]</sup>。

元素碳矿物有很多,石墨是其中最软的一种同素异形体<sup>[4]</sup>。石墨作为一种高性能无机材料,具有很多优良性能:高温热稳定、导热、自润滑、良好的化学稳定性等<sup>[5-8]</sup>,是国家重要的战略资源之一。单个碳层间通过范德华力作用叠合形成了石墨,常见石墨外观形似鳞片,又称为鳞片石墨。由于石墨碳层之间的范德华力作用弱,借助氧化插层剂等一些分子、离子可进入石墨碳层间,形成石墨层间化合物(GIC)。膨胀石墨就是其中一种GIC,也是最有工业应用价值的一类GIC。膨胀石墨不仅具有石墨本身的特性,还拥有了可膨胀特性。特定条件下,膨胀石墨碳层间的插层物质分解或气化释放,压力作用下石墨碳层被打开,宏观表现为石墨片的轴向扩张,体积增大。目前,根据制备可膨胀石墨所用氧化剂、插层剂的不同,可将常用的可膨胀石墨制备方法分为以下4类:高膨胀性可膨胀石墨,在800~1000℃的高温作用下,可膨胀石墨的膨胀体积可达400~500 mL/g。低硫可膨胀石墨,一般要求含硫量低于450 μg/g,制备低硫可膨胀石墨重要的是少用含硫的氧化剂、插层剂,现在通常用草酸、醋酸等有机酸作为辅助插层,或使用氯化铝、三氯化铁等金属卤化物作为辅助插层剂。无硫可膨胀石墨,则使用不含硫元素的氧化剂、插层剂与鳞片石墨作用,主要通过将硝酸和磷酸复合使用,或使用乙酸与硝酸配合并且引入双氧水。低温可膨胀石墨,使用分解气化温度低的插层物质,可以降低可膨胀石墨的膨胀温度,这对其在某些领域(低温阻燃、环保吸附)的规模化应用尤为关键,通常使用高氯酸配合其他辅助插层剂(磷酸、乙酸酐等),制成的低温可膨胀石墨在350~400℃下有良好的膨胀性。同时,对在水溶液中的可膨胀石墨性能研究罕见报道。

深井、超深井勘探开发中,深层高温、高压等苛刻条件对钻井液提出了更高的要求。膨胀石墨作为一种新型功能性碳素材料,已在许多领域得到应用:密封材料、环保吸附材料、催化剂、生物医药材料、阻燃剂、导电材料等<sup>[9-14]</sup>。其具有高效的膨胀性、优异的润滑性、良好的热稳定性和化学稳定性,可将其作

为一种新型的封窜堵漏和井筒强化材料引入钻井液及调剖堵水等石油工程领域<sup>[15]</sup>。然而,现在报道的可膨胀石墨起始膨胀温度一般都高于300℃,通常要在400~500℃甚至更高温度下才能具有较好的膨胀效果<sup>[16-17]</sup>。本研究拟通过优选的插层反应物合成多元插层膨胀石墨,降低传统膨胀石墨在150~300℃流体环境中仍可膨胀,后续研究主要针对150℃条件下,可膨胀石墨在液体中的性能进行测试;在地层中,依靠膨胀石墨颗粒的物理封堵作用(直接封堵、架桥封堵)和高温膨胀特性,实现对近井筒地带的裂缝、孔隙高效调控封堵强化,从而促进油气资源的高效勘探与效益开发。

## 1 实验装置和化学试剂

实验所用到的材料如下:钠基膨润土,羧甲基纤维素钠,无水碳酸钠,酚醛树脂(SMP-2),低粘羧甲基纤维素钠(CMC),磺化沥青,腐殖酸钾,鳞片石墨(含碳量>99%),硫酸,30%过氧化氢,冰乙酸,三氯化铁,磷酸类MX氧化剂,高氯酸类CL插层剂。

所用的实验装置如下:Nicolet Avatar360型傅里叶红外光谱仪,SHZ-D循环水式多用真空泵,干燥箱,CWYF-1高温高压釜,XGRL-7型高温滚子加热炉,SD3/B型中温中压滤失仪等。

## 2 膨胀石墨的制备与表征

### 2.1 膨胀石墨的制备

称取10 g鳞片石墨置于烧瓶中,加入20 g的过氧化氢(wt30%)溶液,利用磁力搅拌器低速搅拌10 min;橡皮塞对烧瓶密封处理后,置于25℃恒温箱中,12 h后取出;利用超纯水反复抽滤洗净后,放入干燥箱中在60℃条件下,干燥4 h得到初产物。

将上述初产物置于含有5 g浓硫酸的烧杯中,加入5 g的氧化剂MX、60 g插层剂CL和1.5 g三氯化铁,搅拌10 min后;橡皮塞对烧瓶密封处理后,置于40℃的恒温箱中30 min。取出反应物,再加入10 g的冰乙酸,搅拌10 min后;将反应物置于40℃的恒温箱中30 min;取出用超纯水洗涤,直至所得滤液澄清透明且滤液pH值在5~7范围内;将水洗后的产物置于60℃干燥箱中,干燥4 h即可得到目标膨胀石墨(见图1)。

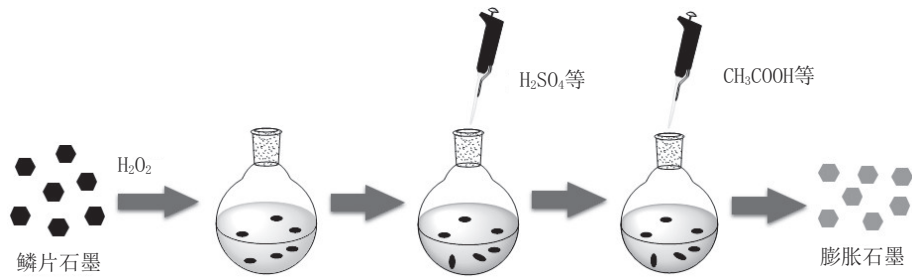


图1 膨胀石墨的制备路线

Fig.1 Preparation route of expanded graphite

## 2.2 膨胀石墨膨胀性能测试

称取1 g膨胀石墨颗粒,用量筒测量其表观体积,将其倒入石英玻璃管中,然后向玻璃管中加入50 g超纯水;室温下将玻璃管置于高温高压釜内,将高温高压釜密封,在一定温度条件下保持一段时间,降温,待高温高压釜冷却至室温,取出玻璃管,观察石墨的膨胀体积,其与初始体积的比值即为膨胀石墨的膨胀倍数。

## 2.3 膨胀石墨的结构表征

采用Bruker VERTEX 70v型FTIR红外光谱仪,溴化钾压片法分别测量鳞片石墨、膨胀石墨和高温膨胀后的石墨的红外吸收光谱,扫描范围为 $4000\sim 400\text{ cm}^{-1}$ 。采用PANalytical锐影X射线衍射仪和Hitachi S-4800扫描电子显微镜(SEM)对鳞片石墨、膨胀石墨和 $150\text{ }^{\circ}\text{C}$ 膨胀后的石墨进行表征。X射线衍射仪采用Empyrean锐影光路系统,Cu靶,功率2.2 kW;扫描电子显微镜在加速电压5.0 kV下观测3种石墨的微观结构。波长已知,每种物相都会在固定的角度上出现衍射峰,通过式(1)可计算得该峰的镜面间距 $d$ 值:

$$2d \cdot \sin\theta = n\lambda \quad (1)$$

## 2.4 钻井液体体系的滤失量测试

采用高温高压滤失仪测试钻井液初始的滤失量,测试时间为30 min,测试重复3次取平均值。将待测样品加入到高温釜后放入高温滚子炉,分别在设定温度下老化16 h;随后在室温、0.69 MPa压力下采用滤失仪测试其老化后的滤失量,测试时间为30 min,测试重复3次取平均值<sup>[18]</sup>。

## 3 实验结果与讨论

分别利用红外吸收光谱、X射线衍射和扫描电子显微镜对所制备产品进行了表征,同时测试了其

在钻井液中的高温高压失水及其在钻井液中封堵强化性能。

## 3.1 红外吸收光谱

红外吸收光谱通常用来表征物质组成和结构具有红外特征吸收峰的特征官能团组成,广泛应用于有机合成、颗粒化学改性和特征官能团分析等领域。本研究通过红外吸收光谱表征制备的膨胀石墨是否制备成功,结果表明CL插层剂和冰乙酸均存在于膨胀石墨中,大量水洗烘干后仍存在,表明插层剂等分子可能进入了石墨碳层之间。鳞片石墨、膨胀石墨、膨胀后石墨的红外吸收光谱实验结果如图2所示。

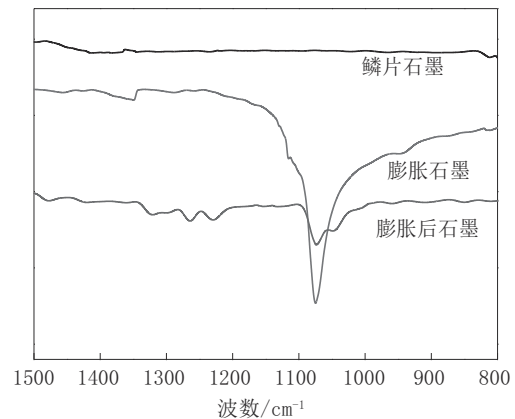


图2 三种石墨的红外光谱

Fig.2 Infrared spectra of three types of graphite

由图2可知,膨胀石墨在 $1150\sim 1050\text{ cm}^{-1}$ 的波数范围内,存在很强的特征峰,可归属为 $\text{ClO}_4^-$ 的存在,因为CL插层剂是一种含有高氯酸根分子,而初始鳞片石墨则在此处无明显吸收峰,因此可以表明膨胀石墨中可能存在CL插层剂。

## 3.2 X射线衍射

进一步对鳞片石墨、膨胀石墨、膨胀后石墨进行

了X射线衍射表征,拟进一步揭示石墨在多元氧化插层和膨胀过程中的分子内晶体结构的变化情况。结果如图3所示,鳞片石墨的X射线衍射表明,在 $2\theta_1=26.54^\circ$  ( $d_1=0.3356$  nm)和 $2\theta_2=54.66^\circ$  ( $d_2=0.1678$  nm)处存在两个主要的特征衍射峰,具有高衍射强度和尖锐峰形的特点,这表明鳞片石墨具有高结晶度和紧密有序的结构。在氧化插层反应之后,两个衍射峰发生分裂, $2\theta_1$ 处的衍射峰分裂为两个新的衍射峰,包括 $2\theta_3=25.49^\circ$  ( $d_3=0.3492$  nm)和 $2\theta_4=29.21^\circ$  ( $d_4=0.3055$  nm); $2\theta_2$ 处的衍射峰同样分裂为两个新的衍射峰,包括 $2\theta_5=52.53^\circ$  ( $d_5=0.1741$  nm)和 $2\theta_6=56.50^\circ$  ( $d_6=0.1627$  nm)。与鳞片石墨相比,膨胀石墨衍射图谱上最高的主峰显示出明显地左移,并且衍射强度降低,峰的宽度加大。这是因为氧化剂将石墨微晶的边缘氧化,很多碳层打开,导致晶面间距增大;而且插层剂进入石墨碳层间使得石墨微晶接枝含氧基团,这在一定程度上影响了原本有序的晶体结构,降低了石墨的结晶度。事实上,每个微晶受到的影响程度是不同的,因此主峰( $2\theta_3$ )具有较大的宽度,反映出晶面间距是一个较宽的范围而不是定值。而且 $2\theta_3$ 处衍射峰的宽度范围内包含 $2\theta_1$ ,表明在膨胀石墨中存在未氧化的微晶。

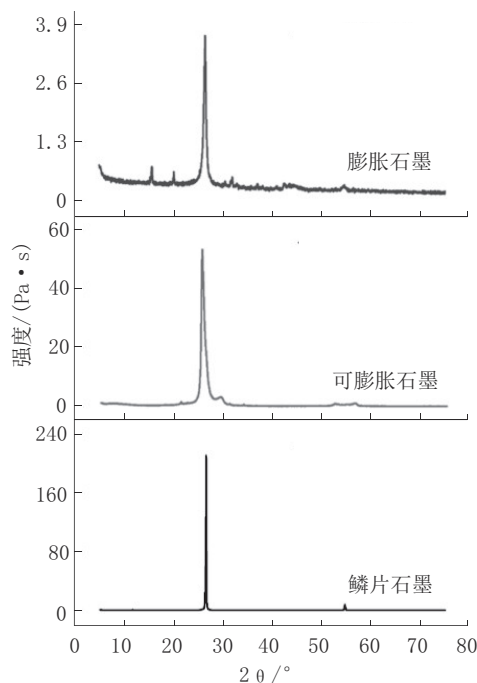


图3 三种石墨的X射线衍射图谱

Fig.3 X-ray diffraction patterns of three types of graphite

膨胀石墨在 $300^\circ\text{C}$ 下膨胀时,插层剂受热分解或挥发,将石墨层撑开并破坏了石墨的晶体结构。在合成反应中未被氧化的石墨微晶被保留下来,在衍射图谱上显示两个主要的衍射峰( $2\theta_7=26.46^\circ$ ,  $d_7=0.3366$  nm; $2\theta_8=54.66^\circ$ ,  $d_8=0.1678$  nm),这基本与鳞片石墨一致。然而,极低的衍射强度表明了石墨的晶体结构被严重破坏,石墨的结构发生了本质变化。整个过程中石墨的晶层间距、衍射强度以及反映出的结晶度变化从侧面说明了石墨在反应和膨胀过程中发生的结构变化:紧密有序的结构在氧化插层过程中被部分破坏,并在膨胀过后被严重破坏。

### 3.3 SEM

为进一步表征鳞片石墨和膨胀前后石墨微观形貌变化情况,采用扫描电子显微镜分别表征了鳞片石墨、膨胀石墨和膨胀后的石墨不同尺度下的微观形貌。SEM结果如图4所示,鳞片石墨微米、纳米尺度下电镜图显示为具有致密片层状结构的薄片,片层间隙较小,见图4(a)。反应制备的膨胀石墨,微米尺度下观察的石墨形貌未见明显的变化,而纳米尺度下膨胀石墨的片层间距较鳞片石墨略有增加,见图4(b)。石墨碳层间作用力主要为范德华力,氧化剂氧化了石墨碳层的边缘,将碳层部分打开,从而使插层剂(CL插层剂和冰乙酸)进入层间,因此膨胀石墨碳层间距较鳞片石墨有所增加,这与SEM结果一致。

在高温条件下,插层剂在膨胀石墨碳层间迅速分解或气化,碳层在外力作用下间距显著增大。由膨胀石墨的SEM结果(图4c)可以看出,微米尺度下即可观察到块状的石墨颗粒,体积明显增加,而且膨胀主要发生在石墨片的法向上。纳米尺度可以看出石墨碳层间距明显增大而且片层结构遭到一定破坏,这些碳层仍通过堆积、架桥等方式形成石墨块状结构,仍具有有较高的强度。

红外光谱、X射线衍射、扫描电镜成像分别从石墨的化学结构、结晶度、微观结构方面进行表征,彼此相互验证,证实了可膨胀石墨合成反应的成功进行,也解释了石墨在氧化插层和膨胀过程中发生的结构变化。

### 3.4 稳定性

膨胀石墨在流体中的分散稳定性是其在石油工程领域应用的基础,但传统的膨胀石墨罕有液体中膨胀和分散的报道。本研究进一步表征了可膨胀石

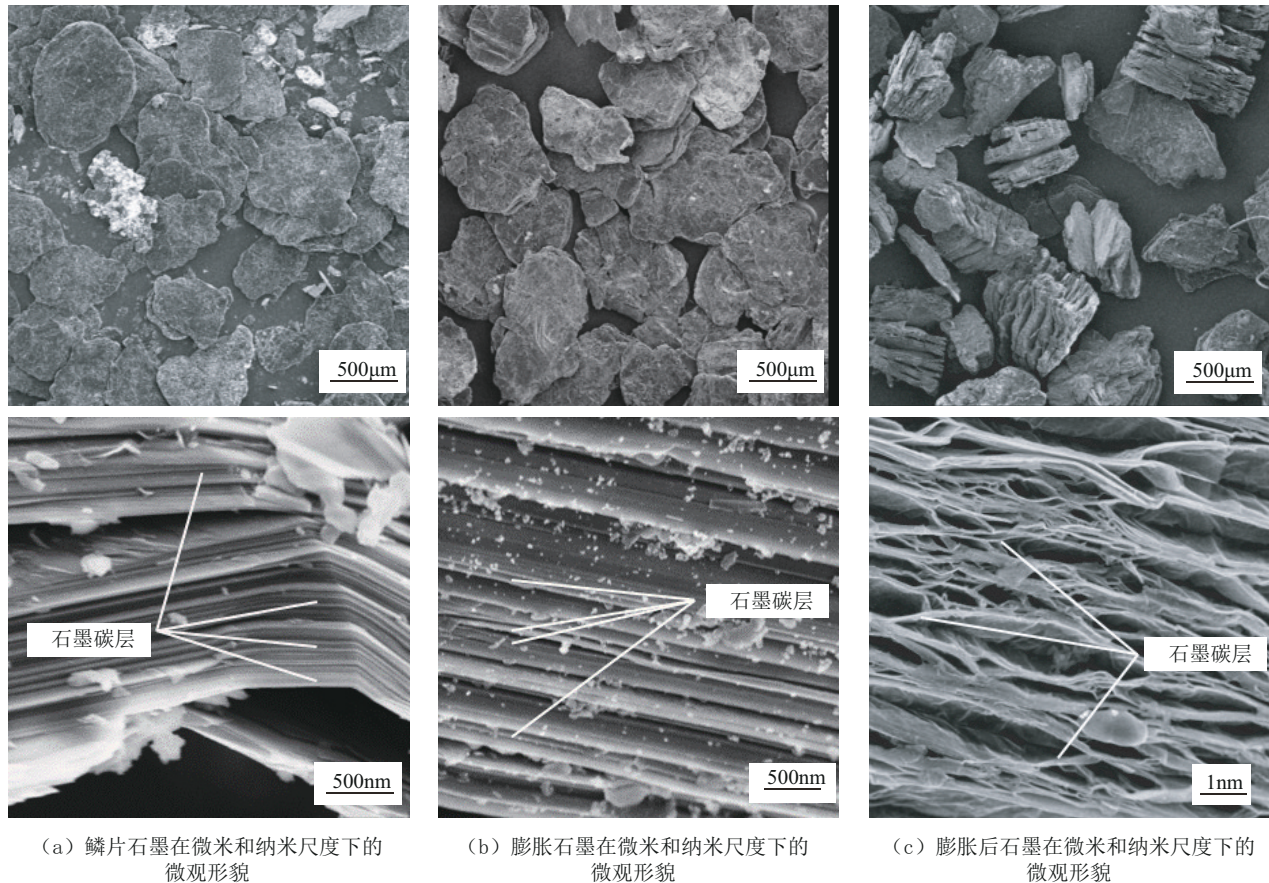


图4 三种石墨的SEM图像

Fig.4 SEM images of three types of graphite

墨室温条件下在水中的分散稳定性。将膨胀石墨分别加入0.1%(wt)、0.2%(wt)、0.4%(wt)、0.6%(wt)的十二烷基水溶液,静置7h后观察其分散情况。实验结果如图5所示(从左至右浓度依次增加),随着时间的增加,膨胀石墨在水中仍具有良好的分散性。

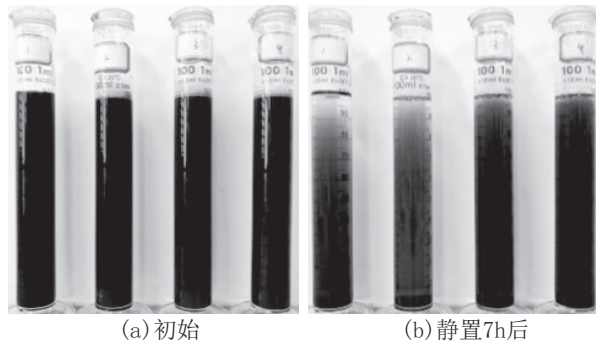


图5 膨胀石墨在表面活性剂溶液中的分散稳定性

Fig.5 Dispersion stability of expanded graphite suspended in surfactant solution

当膨胀石墨进入深部地层裂缝后,处于长期的高温条件下,需要其具有高温稳定性。因此,进一步研究了膨胀石墨的高温稳定性,分别测试了膨胀石墨在装有150、200、300℃热水的可视化反应釜中,20天内石墨膨胀体积随时间的变化情况。实验结果如图6所示,在不同温度下,膨胀石墨先经历一段体积迅速膨胀的过程,随后膨胀倍数基本趋于稳定,不随时间的变化而变化。20天高温条件下,膨胀石墨在膨胀后体积基本无变化。这可能是由于石墨作为碳的一种同素异形体,其熔点约为3650℃,高温下质量大小的损失率极小,300℃以下的高温条件对石墨的结构、强度基本无影响,并且石墨的抗热震性较好,在温度剧烈变化的条件下也能保持稳定。膨胀石墨作为一种石墨材料,显示了优异的热稳定性。

如图6所示,膨胀石墨在不同温度下的膨胀速度和膨胀倍数存在一定差异。随着温度的升高,石

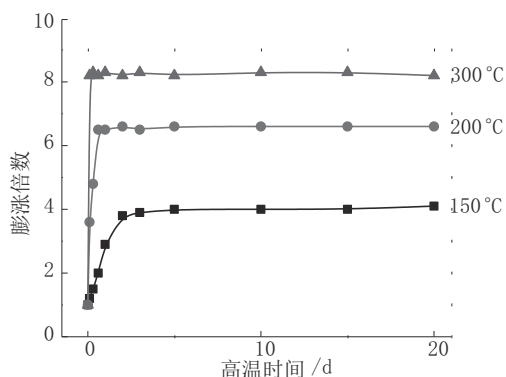


图6 膨胀石墨的热稳定性

Fig.6 Thermal stability of expanded graphite

墨膨胀速度逐渐加快。在150℃条件下,膨胀石墨的膨胀过程约需12~20 h;当温度上升至200℃时,膨胀过程大约8~12 h;当温度上升至300℃时,膨胀在3 h内便可完成。若将膨胀石墨注入井筒,井底附近的温度最高,位于井壁周围泥饼和大孔道中的石墨颗粒最先膨胀且膨胀效果最好。

### 3.5 高温高压滤失性

分别将不同质量分数的膨胀石墨加入钻井液中,测试其高温老化后的高温高压瞬时失水量和10 min的失水量。所用钻井液为取自西北某现场四开的抗高温聚磺钻井液,钻井液密度为1.35 g/cm<sup>3</sup>,可膨胀石墨加量为1~2%,搅拌均匀的钻井液在150℃下养护16 h后分别在150℃和180℃下进行高温高压滤失性能测试,结果见表1所示。从表1可见,添加膨胀石墨后,可降低钻井液高温高压滤失量,特别是180℃下的滤失量可进一步降低,显示了膨胀石墨在进入泥饼微孔隙后在高温下发生膨胀,进一步增加了泥饼的密实性,表明其具有良好的高温高压降滤失效果。

表1 膨胀石墨对钻井液滤失性影响

Table 1 Effect of expand graphite on filtration of drilling fluid

钻井液	老化条件	测试温度/℃	HTHP失水量/mL	瞬时失水量/mL
现场浆	150℃×16 h	150	12.2	1.0
	150℃×16 h	180	13.4	1.5
现场浆+1%	150℃×16 h	150	11.4	0.8
可膨胀石墨	150℃×16 h	180	9.2	0.6
现场浆+2%	150℃×16 h	150	10.2	0.8
可膨胀石墨	150℃×16 h	180	8.6	0.6

### 3.6 膨胀封堵机理

鳞片石墨是由多个碳层间相互作用叠合而成,单个碳层是由碳原子通过共价键作用形成的一种具有蜂巢式结构分子,每个碳原子与相邻3个碳原子通过共价键作用形成具有π键作用的类苯环结构,而碳层边缘由于大量不饱和碳原子的存在,使得石墨碳层的边缘易发生化学反应。

图7为膨胀石墨的多元插层反应和膨胀机理示意图,揭示了鳞片石墨与氧化剂、插层剂通过反应形成膨胀石墨的过程,以及膨胀石墨在高温条件下体积增加的作用机理。鳞片石墨颗粒加入氧化剂后,氧化剂首先与不稳定的石墨碳层边缘发生化学作用,碳层的边缘碳原子被氧化失电子后带有一定数量的正电荷。由于碳层具有π键作用共轭结构使得碳层具有良好的导电性,正电荷可以在碳层内自由移动;而相邻的碳层之间逐渐产生静电排斥,在静电斥力和范德华力的共同作用后,反应体系中的插层剂(CL插层剂、乙酸)分子以及电离出的负离子(ClO<sub>4</sub><sup>-</sup>、CH<sub>3</sub>COO<sup>-</sup>)在正电荷作用下更容易进入碳层间,从而完成插层反应,得到目标产物——膨胀石墨。

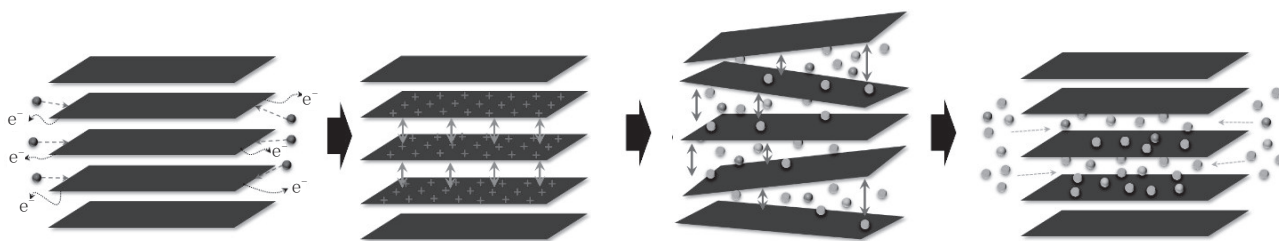


图7 反应膨胀过程示意

Fig.7 Reaction and expansion process

CL插层剂是一种高氯酸型插层剂,在130℃下会爆炸分解;冰乙酸插层剂的沸点为118℃。因此,在高温条件下石墨碳层间的插层剂易发生分解、气化,瞬间产生的大量气体(如:Cl<sub>2</sub>、O<sub>2</sub>、乙酸蒸气、水蒸气等)在受限空间内迅速膨胀,碳层静电斥力和范德华力平衡被打破,碳层在法向推力作用下层间距进一步增大,宏观上表现为石墨颗粒发生了体积膨胀。由于插层剂分布不均匀,高温膨胀时作用力分布不均匀,因此膨胀后碳层不平整,形状不规则。

将膨胀石墨加入到钻井液中,其作用机制主要表现为,膨胀石墨随钻井液循环过程中易在漏失作用下进入地层微裂缝中,在地层高温条件下发生上

述体积膨胀,从而对地层的微裂缝实现有效封堵,其随钻封堵降漏失的作用机制如下图8所示。膨胀石墨在未发生膨胀前体积较小,随钻井液循环时易进入漏失性地层微小孔隙裂缝形成架桥封堵,地层高温下膨胀石墨在微小裂缝中迅速发生体积膨胀,受限空间内的体积膨胀可有效提高封堵效果,从而起到高温高强度封堵和井壁强化作用。钻井液循环过程中膨胀石墨也会参与井壁周围泥饼的形成,石墨自身的润滑特性以及高温条件下体积膨胀特性,可以在实现降低钻井液滤失的同时,对井壁起到一定的润滑减阻作用。

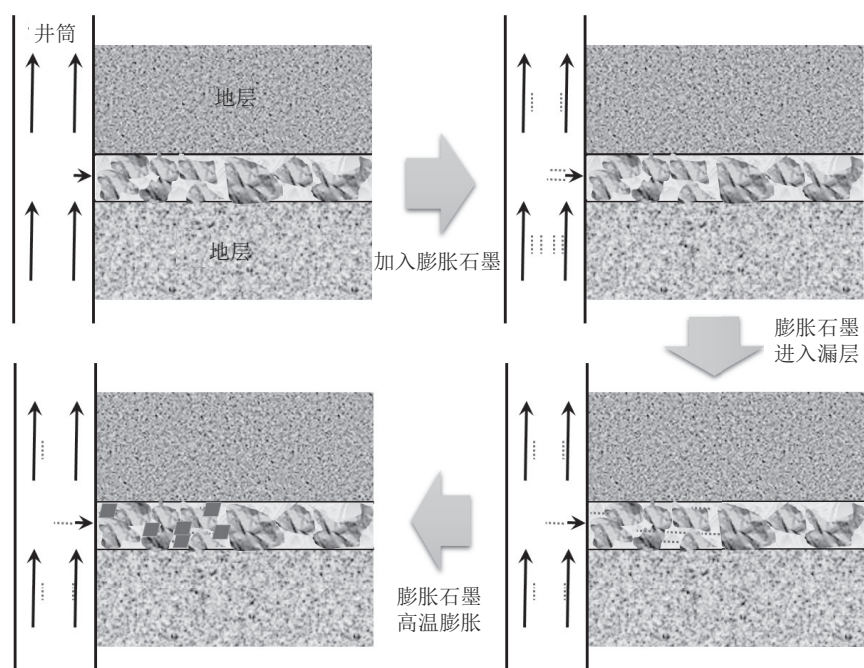


图8 膨胀石墨进入地层裂缝膨胀封堵示意

Fig.8 Expansion plugging with expanded graphite getting into fractures in formation

#### 4 结论

(1)通过新型氧化剂、插层剂建立了多元氧化插层法合成膨胀石墨的新方法,优化合成预处理反应时间30 min。温度为150℃流体条件下即可发生膨胀,膨胀倍数接近4倍,300℃条件下的膨胀倍数为8倍。

(2)红外光谱结果表明CL插层剂进入石墨碳层,X射线衍射和电镜表征进一步研究了石墨在膨胀前后的微观结构变化。石墨在氧化插层、膨胀过程中,结晶度下降,石墨结构由有序变得无序,石墨

颗粒由片状变为块状,膨胀主要发生在石墨片的法向上。

(3)将膨胀石墨加入到钻井液中可有效降低钻井液高温高压滤失量,表现出优良的抗高温性能以及封堵地层微孔隙的能力,在高温特高温钻井液中具有广泛的应用前景;同时石墨自身的固体颗粒高强度特性,使其在高温钻井液的降滤失、封堵和润滑等方面具有潜在且广泛的应用前景。

## 参考文献(References):

- [1] 张颀,何春蕾,杜波,等.中国油气价格改革的比较研究——加快实现天然气价格市场化的政策设计[J].天然气技术与经济,2022,16(3):1-10.  
ZHANG Yong, HE Chunlei, DU Bo, et al. Comparative study on China's oil and gas price reforms—Policy design to speed up marketization of gas price[J]. Natural Gas Technology and Economy, 2022,16(3):1-10.
- [2] 窦立荣,温志新,王建君,等.2021年世界油气勘探形势分析与思考[J].石油勘探与开发,2022,49(5):1033-1044.  
DOU Lirong, WEN Zhixin, WANG Jianjun, et al. Analysis of the world oil and gas exploration situation in 2021[J]. Petroleum Exploration and Development, 2022,49(5):1033-1044.
- [3] Head I M, Jones D M, Larter S R. Biological activity in the deep subsurface and the origin of heavy oil[J]. Nature, 2003,426(6964):344-352.
- [4] Pang Zhanxi, Liu Huiqing, Zhu Ling. A laboratory study of enhancing heavy oil recovery with steam flooding by adding nitrogen foams[J]. Journal of Petroleum Science and Engineering, 2015,128(4):184-193.
- [5] 刘艳吉,程欣宇,李政,等.壳聚糖包覆三聚磷酸钠微胶囊——可膨胀石墨协同阻燃天然/杜仲并用胶[J].精细化工,2022,39(6):1250-1256.  
LIU Yanji, CHEN Xinyu, LI Zheng, et al. Chitosan coated sodium triphosphate microcapsules—Expandable graphite synergistic flame retardant natural rubber/eucommia ulmodies gum [J]. Fine Chemicals, 2022,39(6):1250-1256.
- [6] Zhao D. W., Wang J., Gates I. D. Thermal recovery strategies for thin heavy oil reservoirs[J]. Fuel, 2014,117:431-441.
- [7] Cao Yanbin, Liu Dongqing, Zhang Zhongping, et al. Steam channeling control in the steam flooding of super heavy oil reservoirs, Shengli Oilfield[J]. Petroleum Exploration and Development, 2012,39(6):785-790.
- [8] Zhao Guang, Dai Caili, Zhan Mingwei, et al. The use of environmental scanning electron microscopy for imaging the microstructure of gels for profile control and water shutoff treatments[J]. Journal of Applied Polymer Science, 2014,131(4),39946.
- [9] Liu Dexin, Shi Xiaofei, Zhong Xun, et al. Properties and plugging behaviors of smectite-superfine cement dispersion using as water shutoff in heavy oil reservoir[J]. Applied Clay Science, 2017,147(10):160-167.
- [10] Wang Pan, You Qing, Han Li, et al. Experimental study on the stabilization mechanisms of CO<sub>2</sub> foams by hydrophilic silica nanoparticles[J]. Energy & Fuels, 2018,32(3):3709-3715.
- [11] Modesti M., Lorenzetti A., Simioni F., et al. Expandable graphite as an intumescent flame retardant in polyisocyanuratepolyurethane foams [J]. Polymer Degradation and Stability, 2002, 77(2):195-202.
- [12] Xu Congbin, Jiao Chunlei, Yao Ruihua, et al. Adsorption and regeneration of expanded graphite modified by CTAB-KBr/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> for marine oil pollution [J]. Environmental Pollution, 2017,233(4):194-200.
- [13] 陈朝然,刘宝昌,刘时琦.纳米氧化物颗粒对水基钻井液润滑性能影响的试验研究[J].探矿工程(岩土钻掘工程),2016,43(3):27-32.  
CHEN Chaoran, LIU Baochang, LIU Shiqi. Effect of nano oxide particles addition on lubricating properties of water-based drilling fluid [J]. Exploration Engineering (Rock & Soil Drilling and Tunnelling), 2016,43(3):27-32.
- [14] 李玉洋,章学来,Munyalo Jotham Muthoka,等.正辛酸-癸酸/膨胀石墨低温复合相变材料的制备及热物性研究[J].化工新型材料,2019,47(8):39-43,48.  
LI Yuyang, ZHANG Xuelai, Munyalo Jotham Muthoka, et al. Preparation and thermophysical property of low temperature composite phase change material OA-CA/EG[J]. New Chemical Materials, 2019,47(8):39-43,48.
- [15] 孙金声,雷少飞,白英睿,等.油气钻采领域功能胶粘材料研究进展及前景[J].石油勘探与开发,2023,50(1):183-189.  
SUN Jinsheng, LEI Shaofei, BAI Yingrui, et al. Research progress and application prospect of functional adhesive materials in the field of oil and gas drilling and production[J]. Petroleum Exploration and Development, 2023,50(1):183-189.
- [16] 田啊林,黄雪莉,胡子昭,等.无硫高膨胀体积膨胀石墨的制备[J].无机盐工业,2019,51(10):43-47.  
TIAN Aling, HUANG Xueli, HU Zhizhao, et al. Preparation of sulfur-free expanded graphite with large expanded volume [J]. Inorganic Chemicals Industry, 2019,51(10):43-47.
- [17] 常钊,陈宝明,罗丹.相变储能材料研究进展[J].煤气与热力,2021,41(4):21-27,98-99.  
CHANG Zhao, CHEN Baoming, LUO Dan. Research progress on phase change energy storage materials[J]. Gas & Heat, 2021,41(4):21-27,98-99.
- [18] GB 16783.1—2014,石油天然气工业钻井液现场测试第一部分:水基钻井液[S].  
GB16783.1—2014, Field testing of drilling fluids for the oil and gas industry—Part 1: water-based drilling fluid[S].

(编辑 王文)