

# مطالعه آزمایشگاهی عملکرد نانو کامپوزیت ژل در انسداد سازندهای نفتی حین عملیات حفاری

رسول ناظمی، جمشید مقدسی\* و سیاوش عاشوری

دانشکده نفت اهواز، دانشگاه صنعت نفت، اهواز، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۲/۰۷/۲۱ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۲/۱۰/۱۹

## چکیده

یکی از متداول‌ترین و پرهزینه‌ترین مشکلات در حین عملیات حفاری، هرزروی سیالات حفاری است که می‌تواند پیامدهای دیگری مانند ناپایداری چاه، عدم تمیزسازی چاه، گیر لوله‌ها، مسائل مربوط به کنترل چاه و آسیب سازند را به دنبال داشته باشد. ژل پلیمرها نقش مهمی در انسداد سازندهای بسیار نفوذپذیر و شکافدار ایفا می‌کنند. ایجاد اتصال عرضی بین پلیمرها منجر به تشکیل ژل‌هایی با ویسکوزیته دلخواه و نیز کاهش مقدار پلیمر مصرفی شود. سنتز اتصال‌دهنده‌های عرضی بر روی سطح نانو ذرات، موجب تشکیل عامل شبکه‌ای کننده نانو می‌شود که می‌تواند شبکه پلیمری گسترده‌تری را تشکیل دهد. نانو کامپوزیت ژل از پلیمرهای شبکه شده توسط اتصال‌دهنده عرضی نانو تشکیل می‌شود. در این مطالعه تأثیر پارامترهایی مانند نوع اتصال‌دهنده عرضی، دما و یون‌های مخرب بر عملکرد ژل هیبریدی، خاصیت خود ترمیمی ژل در نرخ‌های برشی بالا، پایداری ژل با زمان و امکان آسیب سازند مورد بررسی و ارزیابی قرار گرفت. با استفاده از تست‌های پایداری دینامیکی، میزان فشار قابل تحمل ژل‌ها به‌منظور کنترل هرزروی در سازندهای تراوا و شکافدار اندازه‌گیری شد. همچنین مدل‌سازی تجربی با روش‌های سطح پاسخ انجام شد و مدل به دست آمده ویسکوزیته نانو کامپوزیت ژل را با دقت ۸۶٪ در محدوده پارامترهای ورودی پیش‌بینی می‌کند. با توجه به نتایج آزمایشگاهی، حضور اتصال‌دهنده عرضی نانو در ژل باعث خاصیت خود ترمیمی ژل در نرخ‌های برشی بالا می‌شود. نانو کامپوزیت ژل عملکرد بهتری نسبت به ژل هیبریدی در دماهای بالا و همچنین در حضور یون‌های مخرب دارد که این به دلیل راندمان بالای اتصال‌دهنده عرضی نانو در تشکیل شبکه ژل است. علاوه بر این حضور عامل شبکه‌ای کننده نانو در ژل ماکزیمم فشار سیل‌بندی ژل‌ها در انسداد سازندهای تراوا و شکافدار را افزایش می‌دهد و نانو کامپوزیت ژل تا فشارهای بالاتری در برابر فشار سیال حفاری مقاومت می‌کند. با توجه به گسیختگی کامل نانو کامپوزیت ژل در هیدرکلریک اسید امکان آسیب به مخزن کاهش می‌یابد.

**کلمات کلیدی:** هرزروی، ژل پلیمر، اتصال‌دهنده عرضی نانو، آسیب سازند، روش سطح پاسخ

## مقدمه

بالا یا سازندهایی با شکاف‌های بزرگ استفاده کرد و از ژل‌های ضعیف‌تر در سازندهایی با شدت هرزروی کمتر استفاده می‌شود. در مخازن نفتی از ژل‌هایی با قابلیت انحلال در اسید استفاده می‌شود تا میزان آسیب به سازند حداقل شود [۱۴]. در سال‌های اخیر، فن‌آوری نانوذرات کمک قابل توجهی به غلبه بر مشکلات هرزروی و ناپایداری چاه در شیل‌ها کرده است. نانوذرات می‌توانند به درون منافذ کوچک شیل‌ها وارد شده و یک انسداد مؤثر در میکرو شکاف‌های شیل‌ها ایجاد کنند که به بهبود پایداری چاه و کاهش هرزروی کمک می‌کند [۱۵ و ۱۶]. یکی دیگر از مزایای مهم نانوذرات، اصلاح خواص پیل‌های حاوی مواد مرسوم کنترل‌کننده هرزروی است. همچنین نانوکامپوزیت ژل‌ها برای مقابله با هرزروی‌های شدید پیشنهاد شده است. این پیل‌ها شامل سه جزء اصلی پلیمر، اتصال‌دهنده‌های عرضی و نانوذرات هستند. نانوذرات مورد استفاده از نظر ماهیت شیمیایی، شکل و اندازه ذرات متفاوت هستند که عملکردهای مختلفی می‌توانند داشته باشند [۱۷ و ۱۸]. Lecolier و همکاران یک ژل حاوی نانوذرات برای انسداد سازندهای شکاف‌دار طراحی کردند. ژل طراحی شده شامل پلی اکریل آمید با وزن مولکولی بالا، کروم استات به‌عنوان عامل اتصال‌دهنده عرضی و ذرات کلونیدی بود. طبق مطالعات آن‌ها نانوذرات باعث بهبود استحکام ژل شد و همچنین هیچ‌گونه تخریب در خواص ژل به مدت ۱۶ h در دمای ۱۲۰ °C مشاهده نشد [۱۷]. Gamage و همکاران برروی ژل‌های کنترل هرزروی برای سازندهایی با دمای بالا مطالعه کردند. ژل طراحی شده شامل پلی اکریل آمید اصلاح شده و اتصال‌دهنده عرضی فلزی بود. زمان نهایی ژل شدن یک ساعت اندازه‌گیری شد که مهم‌ترین محدودیت این ژل بود و کاربرد آن را محدود می‌کند. طبق نتایج به‌دست آمده ساختار

هرزروی به جریان ناخواسته و کنترل نشده سیال حفاری به داخل سازندها، گفته می‌شود. هرزروی یکی از مهم‌ترین چالش‌های صنعت حفاری است که به‌علت از دست رفتن سیالات حفاری و نیز زمان مفید حفاری موجب افزایش قابل توجهی در هزینه‌های عملیات می‌شود [۱ و ۲]. عواملی مانند شرایط عملیاتی، سازندهایی با تراوایی بالا و سازندهای شکاف‌دار ممکن است باعث شروع هرزروی حین حفاری شوند [۳]. علاوه بر مواد مرسوم کنترل‌کننده هرزروی<sup>۱</sup>، بسته به نوع و شدت هرزروی از ژل پلیمرها، پلیمرهای هوشمند، ذرات متورم‌کننده شیشه‌ای، ویسکوالاستیک سرفکتانت‌ها، سیمان، گانک پیل و مواد شکل پذیر مانند لاستیک و رابرها در کنترل هرزروی سیال حفاری استفاده می‌شود [۴-۸].

ژل پلیمرها شامل یک پلیمر و یک اتصال‌دهنده عرضی<sup>۲</sup> است که در ابتدا ویسکوزیته پایینی دارند و بعد از مدتی شبکه ژل سه بعدی مستحکمی تشکیل می‌دهند. عمل شبکه‌ای شدن پلیمر به پیوند و اتصال شاخه‌های پلیمرها به هم توسط اتصال‌دهنده‌های عرضی گفته می‌شود که موجب تشکیل ژل‌هایی با ویسکوزیته بالا می‌شود [۹-۱۱]. امروزه ژل پلیمرها نقش مهمی در کنترل هرزروی به دلیل انعطاف‌پذیری بالا در طراحی دارند. بسته به شرایط عملیاتی و نوع طراحی ژل‌ها، از سه نوع اصلی اتصال‌دهنده‌های عرضی استفاده می‌شود که شامل اتصال‌دهنده‌های عرضی آلی، اتصال‌دهنده‌های عرضی نانو و اتصال‌دهنده‌های عرضی فلزی است. این سه نوع اتصال‌دهنده عرضی می‌توانند به‌صورت ترکیبی برای بهبود عملکرد و تکمیل نقاط ضعف یکدیگر استفاده شوند [۱۲ و ۱۳]. انتخاب نوع ژل در کنترل هرزروی سیال حفاری بسیار مهم است و به‌طور مستقیم بر نتیجه عملیات اثر می‌گذارد. ژل‌هایی با استحکام بالا را می‌توان در مخازنی با تراوایی

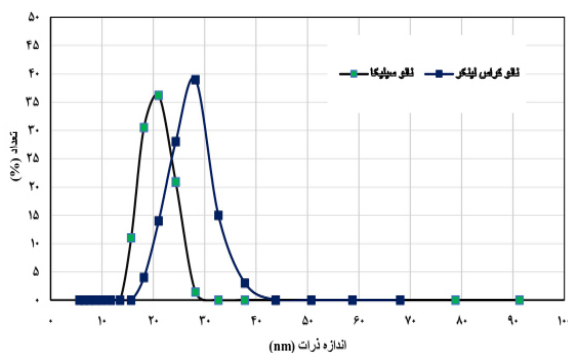
1. Conventional Lost Circulation Materials

2. Cross-Linker

بالا را به منظور کنترل هرزروی طراحی کردند. این ژل شامل پلیمرها و اتصال دهنده‌های عرضی مختلف بود و از لاپونیت به عنوان نانوذرات در ساختار ژل استفاده شد. در این مطالعه از شکافی با عرض  $2/1 \text{ mm}$  استفاده کردند و بالاترین فشار سیل بندی مقدار  $56 \text{ psi}$  اندازه گیری شد. همچنین آنها گزارش دادند که زمان نهایی ژل شدن را می توان از ۸ تا  $12 \text{ h}$  تنظیم کرد و وجود نانوذرات در ژل مقاومت حرارتی نانو کامپوزیت ژل را بهبود می بخشد [۲۱]. Mora و همکاران یک سیال حساس به نیروی برشی برای کنترل هرزروی طراحی کردند. هدف اصلی از مطالعه آنها بهینه سازی یک فرمول برای سیال حساس به نیروی برشی بود. فرمولاسیون سیال شامل الفین، بنتونیت، سرفکتانت، پلی آکریل آمید و آب بود که به دلیل آسیب به سازند برای نواحی غیرمخزنی مفید است. در مطالعه آنها، سیال حساس به نیروی برشی در دو مرحله به صورت جداگانه تهیه شد. قسمت اول شامل الفین، سرفکتانت و بنتونیت و بخش دوم سیال شامل پلیمر پلی آکریل آمید و آب است. پس از آماده سازی، دو قسمت در سرعت برشی کم به مدت  $5 \text{ min}$  مخلوط شدند. سپس مخلوط در ظرف پلاستیکی قرار داده شد و نیروهای برشی بالا توسط همزن به مدت  $30$ ،  $90$  و  $150 \text{ s}$  اعمال گردید. با توجه به نتایج، برای ماده تشکیل شده مدول الاستیک  $4$  تا  $11$  برابر بیشتر از مدول ویسکوز است که نشان دهنده رفتار جامد مانند ماده تشکیل شده بود. آنها بهترین ترکیب را به صورت درصد وزنی نرمال شده به مقدار بنتونایت بیان کردند که شامل  $1 \text{ wt}\%$  اولفین،  $2 \text{ wt}\%$  آب،  $0/02$  پلی آکریل آمید و زمان متوسط هم زدن سیال  $90 \text{ s}$  گزارش دادند. [۲۲]. به طور کلی حضور یک فاز داخلی پایه روغنی در ژل موجب کاهش هزینه، افزایش ماندگاری ژل و کاهش آسیب به سازند می شود که این موارد از مزیت های ژل هیبریدی نسبت به ژل پلیمرهای مرسوم است. در این مطالعه عملکرد ژل هیبریدی و نانو کامپوزیت ژل در کنترل و

ژل یکپارچگی خود را تا ۳ هفته تحت شرایط دما و فشار بالا حفظ می کند و مقدار فروپاشی ساختار ژل در این مدت زمان کم است. همچنین، این ژل را می توان به راحتی توسط مواد شکننده شبکه ژل به طور کامل از بین برد [۱۹]. یک مطالعه میدانی توسط Borisov و همکاران نشان داد که سیالات حفاری امولسیونی حاوی نانوذرات می تواند به طور قابل توجهی فیلتراسیون به درون سازند را کاهش دهد و کیک نازک تری را در مقایسه با سیالات حاوی مواد کنترل کننده مرسوم هرزروی ایجاد کنند. با توجه به مطالعات آنها نانوذرات می توانند شکاف بین میکرومواد کنترل کننده هرزروی را پر کنند که منجر به نفوذپذیری کمتر و کاهش شار فیلتراسیون می شود [۲۰]. Hashmat و همکاران روی ژل حاوی پلیمر آکریل آمید هیدرولیز شده و اتصال دهنده عرضی پلی اتیلن آمین مطالعه کردند. عملکرد ژل در کنترل هرزروی توسط یک سامانه آزمایشگاهی مورد ارزیابی قرار گرفت. در این مطالعه لوله ای شفاف حاوی دانه های شیشه ای در اندازه های مختلف جهت شبیه سازی محیط متخلخل استفاده شد. تست های آزمایشگاهی در دمای اتاق و اختلاف فشار  $150 \text{ psi}$  اندازه گیری شد و ژل طراحی شده با موفقیت از هرزروی سیال حفاری در ناحیه ای با تخلخل  $36\%$  و نفوذپذیری  $30 \text{ D}$  جلوگیری کرد [۱۲]. Jia و همکاران یک ژل پلیمر شامل چند اتصال دهنده عرضی را مورد مطالعه قرار دادند که از پلی آکریل آمید به عنوان پلیمر و از کروم استات، پلی اتیلن آمین و هگزامتیلن تترامین به عنوان اتصال دهنده های عرضی استفاده شد. یافته های آنها نشان داد که ژل پلیمر حاوی چند اتصال دهنده عرضی دارای ویژگی ویسکوالاستیسیته در دمای بالای  $150^\circ \text{C}$  است. طبق مطالعه آنها این ژل پلیمر چندشاخه ای می تواند به عنوان یک پیل کنترل کننده هرزروی در برابر فشارهای بالا حین عملیات تعمیر و تکمیل چاه مورد استفاده قرار گیرد [۱۰]. Jia و همکاران یک نانو کامپوزیت ژل مبتنی بر بروماید با چگالی

اتصال‌دهنده عرضی را افزایش می‌دهد و شبکه قوی‌تری را بین پلیمرها ایجاد می‌کند. سازوکار تشکیل اتصال‌دهنده عرضی نانو به صورت شماتیک در **شکل ۱** نشان داده شده است. در ابتدا نانو توسط عامل واسطه اصلاح سطحی می‌شود. مرحله دوم شامل واکنش گروه OH اتصال‌دهنده عرضی با گروه NH<sub>2</sub> در سطح نانو اصلاح‌شده است که منجر به تولید اتصال‌دهنده عرضی نانو می‌شود [۲۵ و ۲۶]. تصویر اتصال‌دهنده‌های عرضی نانو توسط میکروسکوپ الکترونی (TEM) در **شکل ۲** نشان داده شده است. از دستگاه Zetasizer برای تعیین میانگین اندازه عامل شبکه‌ای کننده نانو به روش پراکندگی نور دینامیکی استفاده شد. آزمایش دو مرتبه انجام شد و میانگین اندازه‌گیری‌ها در **شکل ۳** قابل مشاهده است. همان‌طور که در **شکل ۳** نشان داده شده است، اندازه متوسط نانو SiO<sub>2</sub> واکنش‌پذیر حدود ۲۱ nm است. پس از اینکه H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> به سطح نانو متصل می‌شود اندازه ذرات اتصال‌دهنده‌های عرضی نانو در حدود ۲۹ nm اندازه‌گیری شده است. همان‌طور که در **شکل ۳** نشان داده شده است، اندازه متوسط نانو SiO<sub>2</sub> واکنش‌پذیر حدود ۲۱ nm است. پس از اینکه H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> به سطح نانو متصل می‌شود اندازه ذرات اتصال‌دهنده‌های عرضی نانو در حدود ۲۹ nm اندازه‌گیری شده است. تست FTIR برای تأیید تشکیل اتصال‌دهنده‌های عرضی نانو مورد مطالعه قرار گرفت.



شکل ۲ تصویر TEM نانواتصال‌دهنده‌های عرضی

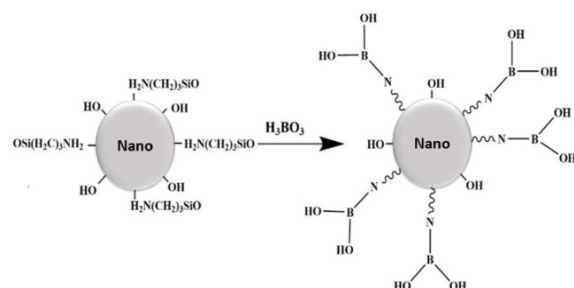
کاهش هرزروی مورد ارزیابی قرار گرفت. تأثیر پارامترهایی مانند دما و یون‌های مخرب بر رفتار ژل‌ها مورد بررسی قرار گرفت. برای بررسی عملکرد ژل‌ها در کنترل هرزروی تست‌های پایداری دینامیکی ژل انجام شد. در ادامه پایداری ژل‌ها با زمان، خاصیت خودترمیمی ژل‌ها در نرخ‌های برشی بالا و نیز میزان گسیختگی ژل با زمان در غلظت‌های مختلف هیدروکلرید اسید برای بررسی امکان آسیب به سازند، اندازه‌گیری و ارزیابی شد.

### مواد

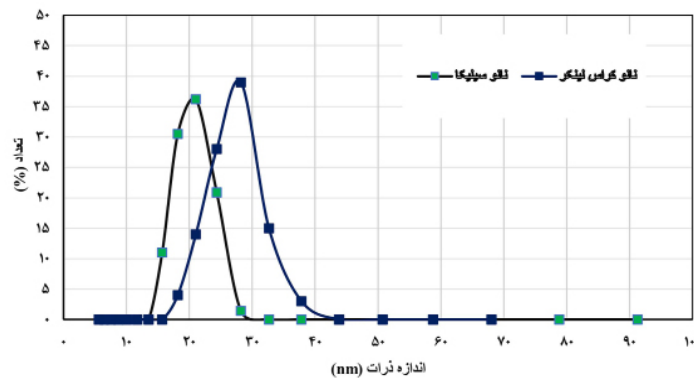
در این مطالعه از پلیمر زانتان به دلیل قابلیت بالا در شبکه‌ای شدن با اتصال‌دهنده‌های عرضی مختلف و پایداری حرارتی مناسب استفاده شد. به منظور تشکیل شبکه ژل از اتصال‌دهنده‌های عرضی بوراکس و نانو استفاده شد. همچنین گازوئیل به عنوان فاز داخلی ژل‌های هیبریدی مورد استفاده قرار گرفت. برای بوراکس سازوکار و تشکیل اتصال عرضی بین پلیمرها براساس هیدرولیز بوراکس (Na<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>·10H<sub>2</sub>O) به آنیون‌های B(OH)<sub>4</sub><sup>-</sup> است. یون مونوبورات می‌تواند پیوندهای هیدروژنی با عامل‌های cis-hy-droxy پلیمرها تشکیل دهد و بنابراین باعث اتصال پلیمرها و تشکیل شبکه ژل شود [۲۳ و ۲۴].

### اتصال‌دهنده عرضی نانو

اتصال‌دهنده عرضی نانو<sup>۱</sup> معمولاً به هر نانو ماده‌ای که از نظر شیمیایی قادر به تشکیل پیوند با پلیمرها باشد و دو یا چند نوع مختلف پلیمر را به هم متصل کند، اشاره دارد. حضور عامل شبکه‌ای کننده پلیمرها بر روی سطح نانو ذرات، طول



شکل ۱ طرح کلی فرآیند تشکیل اتصال‌دهنده عرضی نانو



شکل ۳ توزیع اندازه نانو ذرات و اتصال دهنده عرضی نانو

پارامترهای مختلف بر رفتار ژل‌ها با این ترکیب پایه مقایسه می‌شود. دانسیته ژل‌های طراحی شده توسط دستگاه mud balance مقدار ۸/۱ lb/gal اندازه‌گیری شد.

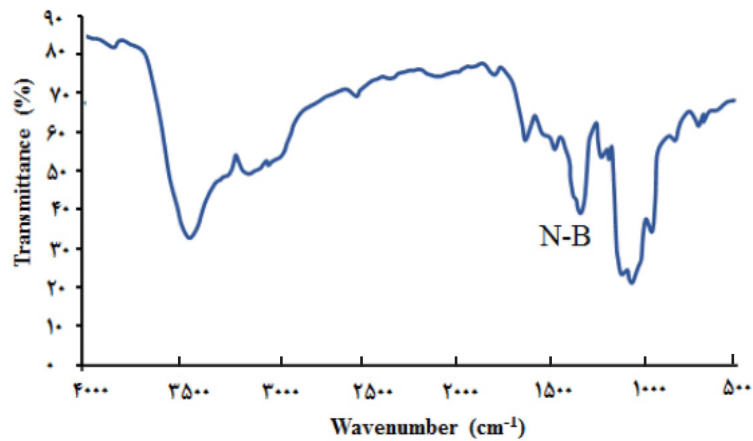
### نتایج و بحث

#### تأثیر نوع اتصال دهنده عرضی

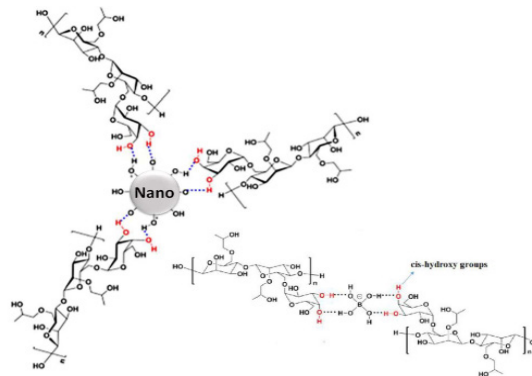
پلیمرها توسط اتصال دهنده‌های عرضی در طول زمان با هم تشکیل پیوند می‌دهند تا در نهایت ژل‌هایی با استحکام مناسب به دست آید. یکی از مهم‌ترین مسائل در طراحی ژل هیبریدی رسیدن به ویسکوزیته نهایی قابل قبول با زمان شروع ژل‌شدگی و سرعت شبکه‌ای شدن مناسب در پلیمرها است. شکل ۶ تأثیر نوع اتصال دهنده‌های عرضی بر رفتار ژل هیبریدی ساخته شده با پلیمر زانتان را نشان می‌دهد. همان‌طور که در شکل ۶ قابل مشاهده است حضور اتصال دهنده‌های عرضی نانو در ژل سرعت شبکه‌ای شدن پلیمر و ویسکوزیته نهایی ژل را افزایش می‌دهد و نانوکامپوزیت ژل تشکیل شده عملکرد بهتری را نسبت به ژل شبکه‌ای شده با بوراکس نشان می‌دهد. این بهبود عملکرد مربوط به سایز بزرگتر اتصال دهنده عرضی نانو نسبت به یون بورات است.

شکل ۴ نتیجه آزمایش FTIR مربوط به عامل شبکه‌ای کننده نانو را نشان می‌دهد. در نمودار FTIR پیک ایجاد شده در  $1355 \text{ cm}^{-1}$  نشان دهنده پیوند N-B است که نشان می‌دهد  $\text{H}_3\text{BO}_3$  بر روی سطح واکنش پذیر نانو  $\text{SiO}_2$  از طریق برهم‌کنش شیمیایی اضافه شده است. همان‌طور که در شکل ۵ نشان داده شده است اتصال دهنده عرضی نانو به دلیل اندازه بسیار بزرگتر در مقایسه با اتصال دهنده‌های عرضی معمولی می‌تواند راندمان شبکه‌ای شدن را افزایش و تعداد پلیمرهای بیشتری را به هم متصل کند که موجب افزایش استحکام ژل می‌شود [۲۲]. برای بررسی رفتار ژل، پارامترهایی مانند زمان شروع ژل شدن<sup>۱</sup> (IGT)، زمان نهایی ژل شدن<sup>۲</sup> (FGT)، نرخ تشکیل شبکه ژل<sup>۳</sup> (CR) مورد ارزیابی قرار می‌گیرد. زمان شروع فرآیند ژل شدن با افزایش سریع در ویسکوزیته مشاهده می‌شود و زمان نهایی ژل شدن استحکام ژل به مقدار نهایی خود نزدیک می‌شود و تغییر میزان ویسکوزیته به میزان قابل توجهی کاهش می‌یابد. سرعت شبکه‌ای شدن پلیمر، نرخ افزایش ویسکوزیته و روند منحنی بین IGT و FGT در نظر گرفته می‌شود. برای اندازه‌گیری ویسکوزیته ژل از ویسکومتر دوار Fann ۳۵ استفاده شد. در این روش، ویسکوزیته ظاهری<sup>۴</sup> (AV) ژل در دور ۳ rpm در فواصل زمانی مشخص ثبت می‌شود و رفتار ژل با زمان بررسی می‌شود. ترکیب پایه نانوکامپوزیت ژل و ژل هیبریدی در جدول ۱ نشان داده شده و تأثیر

1. Initial Gelation Time  
2. Final Gelation Time  
3. Crosslinking Rate  
4. Apparent Viscosity



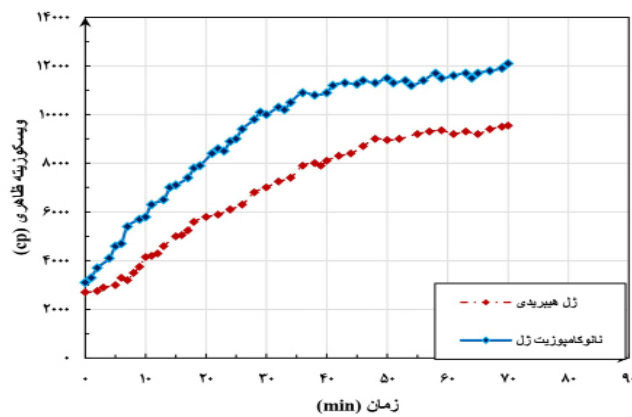
شکل ۴ طیف FTIR اتصال دهنده عرضی نانو



شکل ۵ تشکیل شبکه‌های پلیمری توسط عامل شبکه‌ای کننده نانو و یون بورات [۲۶]

جدول ۱ ترکیب اصلی ژل‌های طراحی شده

نوع ژل	نوع اتصال دهنده عرضی	غلظت پلیمر و اتصال دهنده عرضی (% .wt)	نسبت فازی	pH	دما (°C)	نرخ برشی (rpm)
هیبریدی	بوراکس	۲/۵	۵۰/۵۰	۱۱	۳۵	۸۰۰۰
نانوکامپوزیت	بوراکس/نانو	۲/۵	۵۰/۵۰	۱۰	۳۵	۸۰۰۰

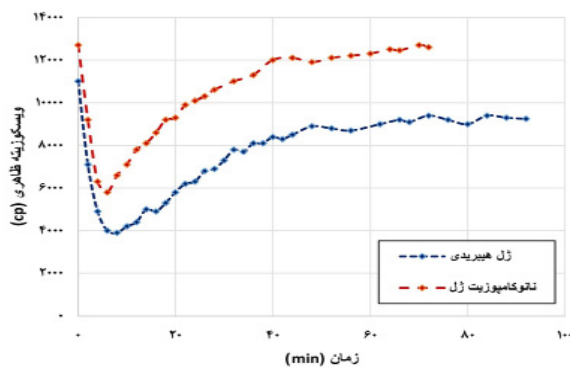


شکل ۶ تأثیر نوع اتصال دهنده عرضی بر رفتار ژل هیبریدی

نرخ تشکیل مجدد شبکه ژل برای نانوکامپوزیت ژل بیشتر از ژل هیبریدی است. به عبارتی دیگر، حضور عامل شبکه‌ای کننده نانو در ژل باعث خاصیت خودترمیمی ژل در نرخ‌های برشی بالا می‌شود و ژل می‌تواند در مدت زمان کوتاهی به استحکام اولیه خود بازگردد.

### تأثیر دما بر رفتار و عملکرد ژل

مطالعات گذشته روی عملکرد ژل‌ها نشان می‌دهد که دما تأثیر پیچیده‌ای بر شبکه‌ای شدن پلیمرها دارد. افزایش دما ویسکوزیته پلیمر را کاهش می‌دهد از طرفی دیگر در دماهای بالاتر انرژی بیشتری برای واکنش بین اتصال‌دهنده‌های عرضی و شاخه‌های پلیمرها در دسترس است که این انرژی بر سرعت تشکیل شبکه ژل اثرگذار است. **شکل ۹** تأثیر دما بر رفتار ژل‌های طراحی شده با اتصال‌دهنده‌های عرضی مختلف را نشان می‌دهد. با مشاهده عملکرد ژل‌ها در دماهای مختلف **شکل‌های ۶ و ۹** مشخص می‌شود افزایش دما ویسکوزیته نهایی ژل را کاهش می‌دهد اما نرخ تشکیل شبکه ژل تقریباً ثابت می‌ماند. همچنین دما بر ویسکوزیته فاز داخلی اثر می‌گذارد اما این تغییرات ویسکوزیته فاز داخلی تأثیر کمی بر ویسکوزیته ژل هیبریدی دارد. مقایسه ژل‌ها نشان می‌دهد با افزایش دما نانوکامپوزیت ژل عملکرد بهتری نسبت به ژل هیبریدی دارد و نیز با افزایش غلظت عامل شبکه‌ای کننده نانو استحکام و ویسکوزیته نهایی ژل افزایش می‌یابد.



**شکل ۸** خاصیت خود ترمیمی ژل‌های تشکیل شده در نرخ‌های برشی بالا

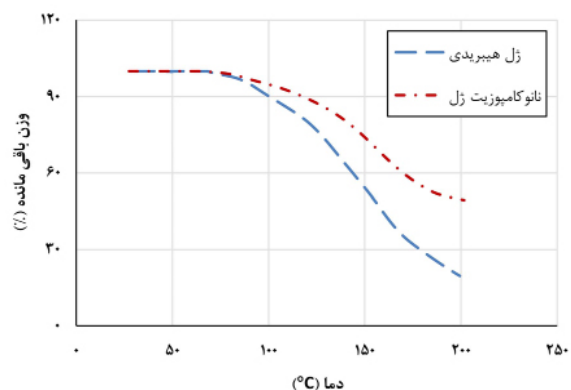
به عبارتی دیگر، نانو به علت سطح تماس بزرگتر نسبت به یون بورات به صورت گسترده‌تری می‌تواند شاخه‌های پلیمر را به هم متصل کند و راندمان شبکه‌ای شدن پلیمر را افزایش دهد.

### پایداری دمایی ژل

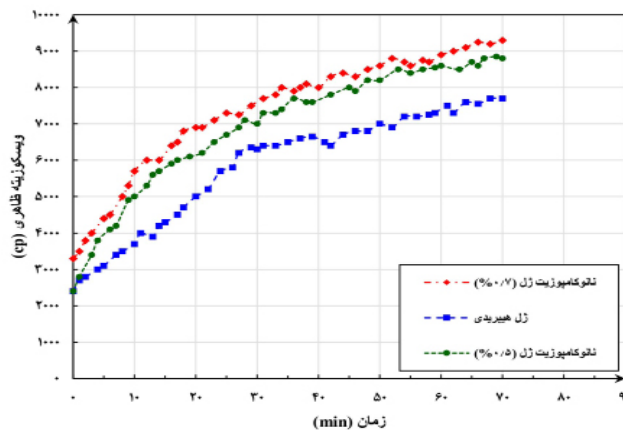
پایداری دمایی ژل‌های تشکیل شده با اتصال‌دهنده‌های عرضی مختلف توسط آنالیز حرارتی مورد بررسی قرار گرفت. در روش آنالیز حرارتی جرم نمونه در طول زمان با تغییر دما به طور پیوسته اندازه‌گیری می‌شود. نمونه‌ها در شرایط گاز بی اثر در محدوده دمایی  $25-200^{\circ}\text{C}$  با نرخ  $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$  حرارت داده شدند. همان‌طور که در **شکل ۷** نشان داده شده است، ژل تشکیل شده توسط اتصال‌دهنده عرضی نانوکامپوزیت بالاتری نسبت به ژل هیبریدی معمولی دارد که نشان‌دهنده حفظ شبکه ژل تشکیل شده توسط عامل شبکه‌ای کننده نانو در دماهای بالا است.

### خاصیت خودترمیمی ژل در نرخ‌های برشی بالا

به منظور بررسی قابلیت تشکیل مجدد شبکه‌های متصل شده پلیمری، ژل‌ها در نرخ برشی بالای  $15000\text{ rpm}$  قرار گرفته و ویسکوزیته آن‌ها با زمان اندازه‌گیری شد. هدف از این آزمایش مطالعه قابلیت خودترمیمی ژل‌ها است. **شکل ۸** رفتار ژل بعد از قرار گرفتن در نرخ برشی بالا و راندمان تشکیل مجدد شبکه ژل را برای اتصال‌دهنده‌های عرضی مختلف نشان می‌دهد. با توجه به نتایج به دست آمده



**شکل ۷** آنالیز حرارتی ژل هیبریدی و نانوکامپوزیت ژل



شکل ۹ تأثیر دمای ۷۰ °C بر رفتار ژل‌های هیبریدی

نانوکامپوزیت ژل راندمان تشکیل شبکه ژل بالاتری نسبت به ژل هیبریدی در حضور نمک‌ها دارد و اتصال‌دهنده عرضی نانو می‌تواند ژل مستحکم‌تری در نواحی حاوی یون‌های مخرب تشکیل دهد. همچنین با افزایش غلظت اتصال‌دهنده عرضی نانو، نرخ تشکیل شبکه ژل و ویسکوزیته نهایی ژل تشکیل شده افزایش می‌یابد که به علت تعداد بالاتر تشکیل پیوند بین شاخه‌های پلیمری با یک عامل شبکه‌ای کننده نانو نسبت به یون بورات است.

#### مدل‌سازی تجربی

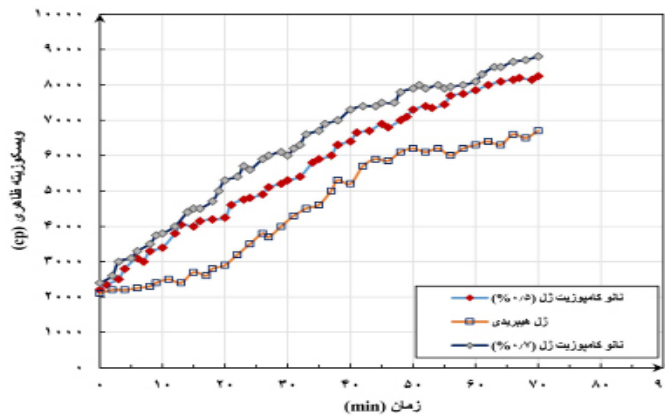
روش سطح پاسخ<sup>۱</sup> (RSM) شامل تکنیک‌های ریاضی و آماری است که برای مطالعه ارتباط بین پاسخ و متغیرهای ورودی مورد استفاده قرار می‌گیرد و برای مدل‌سازی و تجزیه و تحلیل مسائل مهندسی مفید است. مزیت اصلی استفاده از روش سطح پاسخ ارزیابی تأثیر پارامترهای متعدد و فعل و انفعالات آنها با یکدیگر در تولید پاسخ‌ها است. محبوب‌ترین روش سطح پاسخ، طرح مرکب مرکزی است که در طراحی آزمایشی آزمایشی استفاده می‌شود. طراحی مرکب مرکزی یک روش کارآمد و کاربردی برای طراحی آزمایش است که برای مدل‌های سطح پاسخ مرتبه دوم مورد استفاده قرار می‌گیرد. در طرح مرکب مرکزی، هر متغیر در ۵ سطح مورد بررسی قرار می‌گیرد.

که این به دلیل خاصیت خودترمیمی ژل و قدرت بالای اتصال‌دهنده عرضی نانو در تشکیل شبکه ژل نسبت به یون بورات است.

#### تأثیر یون‌های مخرب بر رفتار و عملکرد ژل

واکنش کاتیون‌ها مخرب با شاخه‌های پلیمرها باعث کاهش عملکرد پلیمر می‌شود. این کاهش در ویسکوزیته با غلظت کاتیون‌ها رابطه مستقیم دارد و هر چه مقدار کاتیون‌ها در ژل بیشتر شود، عملکرد ژل در هیدراته شدن و تشکیل شبکه ژل ضعیف‌تر می‌شود [۵]. با توجه به رقابت بین اتصال‌دهنده‌های عرضی و کاتیون‌های دو ظرفیتی مانند یون‌های کلسیم برای پیوند با شاخه‌های فعال پلیمرها، ارزیابی عملکرد ژل در حضور کاتیون‌های دو ظرفیتی بسیار مهم است [۲۸ و ۲۹]. برای بررسی تأثیر شوری، عملکرد اتصال‌دهنده‌های عرضی مختلف در تشکیل ژل در حضور ۵۰۰۰ ppm کلسیم کلرید مورد بررسی قرار گرفت. شکل ۱۰ نرخ شبکه‌ای شدن و رفتار ژل‌های هیبریدی با اتصال‌دهنده‌های عرضی مختلف را در حضور کلسیم کلرید نشان می‌دهد. همان‌طور که در شکل ۱۰ مشاهده می‌شود یون کلسیم کلرید، زمان شروع تشکیل ژل را به تأخیر می‌اندازد و نرخ شبکه‌ای شدن پلیمر را به‌طور قابل توجهی کاهش می‌دهد. همچنین، ویسکوزیته نهایی ژل به دلیل کاهش میزان شبکه‌ای شدن پلیمرها کاهش می‌یابد. با مقایسه رفتار دو اتصال‌دهنده عرضی مشخص می‌شود که





شکل ۱۰ تأثیر غلظت کلسیم کلرید (۵۰۰۰ ppm) بر رفتار ژل های هیبریدی

$$- 1.71198 \times 10^{-7} \times \text{Temperature}^2 (\text{°C}) - 1.94651 \times 10^{-11} \times \text{CaCl}_2 \text{ concentration}^2 (\text{ppm})$$

#### نتایج ANOVA و مدل برازش

معنی دار بودن یک رابطه درجه دوم را می توان از طریق نتایج ANOVA تعیین کرد. مطالعه ANOVA تجزیه و تحلیل مفصلی مانند اهمیت و سهم پارامترهای ورودی در پاسخ خروجی را ارائه می دهد. همچنین اثرات دو فاکتور بر هم، مربع یک فاکتور و میزان خطا را بر پاسخ های خروجی ارائه می دهد. برای بررسی معنادار بودن مدل، مقدار P-value و lack of fit برای مدل بررسی می شود. مقدار P-value برای تعیین اهمیت ضرایب و تأثیر شرایط ترکیبی برهم کنش پارامترها استفاده می شود. ضرایب با مقادیر P-value کوچک تر از ۰/۰۵ تأثیر قابل توجهی بر پاسخ دارند. نتایج ANOVA برای مدل درجه دوم سطح پاسخ در جدول ۳ ارائه شده است. عواملی با P-value بالای ۰/۰۵ می توانند بدون تأثیر بر پیش بینی مدل حذف شوند. با توجه به جدول ۳، مقدار P-value برای مدل کمتر از سطح معنی دار ۰/۰۵ است، که نشان می دهد مدل توسعه یافته قابل قبول است. از طرف، مقدار P-value برای lack of fit مقدار ۰/۲۹۹ است که نشان می دهد تا حدودی عدم تناسب غیر قابل توجهی در سطح معنی دار ۰/۰۵ وجود ندارد و مدل پیش بینی شده مورد قبول است.

و با توجه به تعداد پارامترهای مورد بررسی، تعداد آزمایش های مورد نیاز  $N = k^2 + 2k + Cc$  است که k تعداد متغیرهای مستقل و Cc تعداد تکرار آزمایش ها در نقطه مرکزی است [۳۰ و ۳۱]. در مطالعه حاضر، طراحی مرکب مرکزی برای پیش بینی ویسکوزیته نهایی نانوکامپوزیت ژل به عنوان تابعی از دما و غلظت کلسیم کلرید (متغیرهای مستقل)، مورد مطالعه قرار گرفت محدوده متغیرهای مستقل در جدول ۲ ارائه شده است.

جدول ۲ سطوح مورد بررسی پارامترهای ورودی

پارامتر	سطح پایین	سطح بالا
دما (°C)	۳۰	۷۰
غلظت کلسیم کلرید (ppm)	۰	۵۰۰۰

#### برازش رابطه چند جمله ای مرتبه دوم

برای پیش بینی رابطه بین نتایج آزمایشگاهی به دست آمده از طراحی مرکب مرکزی و متغیرهای ورودی از مدل روابط چند جمله ای مرتبه دوم استفاده شد. رابطه شماره ۱ برای پیش بینی ویسکوزیته ژل هیبریدی در بازه تعیین شده برای پارامترهای ورودی است:

$$\frac{1}{\sqrt{\text{Final Viscosity}}} (\text{cp}) = 7.86080 \times 10^{-3} + 4.58079 \times 10^{-5} \times \text{Temperature} (\text{°C}) + 6.60137 \times 10^{-7} \times \text{CaCl}_2 \text{ concentration} (\text{ppm}) - 3.40437 \times 10^{-9} \times \text{Temperature} (\text{°C}) \times \text{CaCl}_2 \text{ concentration} (\text{ppm})$$

جدول ۳ نتایج آنالیز واریانس برای مدل درجه دو

P-value	F-value	Mean Square	Sum of Squares	Source
۰/۰۰۰۲	۱۲۲/۹۸	$۱/۰۵۱ \times ۱۰^{-۶}$	$۵/۲۵۷ \times ۱۰^{-۶}$	مدل
۰/۰۰۰۸	۸۵/۷۱	$۷/۳۲۸ \times ۱۰^{-۷}$	$۷/۳۲۸ \times ۱۰^{-۷}$	A: دما
< ۰/۰۰۰۱	۵۰۷/۰۱	$۴/۳۳۵ \times ۱۰^{-۶}$	$۴/۳۳۵ \times ۱۰^{-۶}$	B: غلظت کلسیم کلرید
۰/۰۲۱۲	۱۳/۵۶	$۱/۱۵۹ \times ۱۰^{-۷}$	$۱/۱۵۹ \times ۱۰^{-۷}$	AB
۰/۷۳۳۸	۰/۱۳	$۱/۱۳۷ \times ۱۰^{-۹}$	$۱/۱۳۷ \times ۱۰^{-۹}$	A <sup>2</sup>
۰/۵۵۲۳	۰/۴۲	$۳/۵۹۰ \times ۱۰^{-۹}$	$۳/۵۹۰ \times ۱۰^{-۹}$	B <sup>2</sup>
-	-	$۸/۵۵۰ \times ۱۰^{-۹}$	$۳/۴۲۰ \times ۱۰^{-۸}$	Residual
۰/۲۹۹۷۷	۵/۵۷	$۱/۰۷۶ \times ۱۰^{-۸}$	$۳/۲۲۷ \times ۱۰^{-۸}$	Lack of Fit
-	-	$۱/۹۳۱ \times ۱۰^{-۹}$	$۱/۹۳۱ \times ۱۰^{-۹}$	Pure Error

اتصال دهنده‌های عرضی مختلف تغییرات ویسکوزیته با زمان کم است و ژل‌های هیبریدی از پایداری و استحکام کافی در این دوره برخوردار می‌باشند.

#### پایداری دینامیک ژل

آزمایش پایداری دینامیک ژل به منظور ارزیابی میزان اختلاف فشاری است که ژل‌ها در شکاف یا محیط متخلخل می‌توانند تحمل کنند تا از هرزروی بیشتر سیال حفاری جلوگیری شود. به عبارتی دیگر، در این تست استحکام ژل تشکیل شده در برابر فشار سیال حفاری اندازه‌گیری می‌شود. با توجه به هزینه بالای مغزه‌های طبیعی، برای شبیه‌سازی سازندهای شکاف‌دار و بررسی عملکرد ژل درون شکاف، مغزه شکاف‌داری با عرض شکاف  $۹۰۰ \mu\text{m}$  طراحی و ساخته شد. هدف از ساخت مغزه‌های کربناته در آزمایشگاه، شبیه‌سازی ماتریس سنگ‌های کربناته طبیعی است. ستاپ آزمایشگاهی با شماتیک نشان داده شده در شکل ۱۳ برای اندازه‌گیری حداکثر فشار سیل‌بندی ژل‌ها استفاده شد. ژل ابتدا به داخل مغزه تزریق می‌شود و بعد از رسیدن به استحکام نهایی سیال حفاری به درون مغزه تزریق می‌شود و فشار با زمان اندازه‌گیری می‌شود. استحکام ژل با اندازه‌گیری فشار در ورودی مغزه تجزیه و تحلیل می‌شود.

دقت مدل با مقایسه ضرایب همبستگی<sup>۱</sup> ( $R^2$ ) و مقادیر ضریب همبستگی تعدیل شده<sup>۲</sup> ( $\text{adj } R^2$ ) تجزیه و تحلیل می‌شود. این معیارها برای بررسی میزان نزدیک بودن مدل به داده‌های اندازه‌گیری شده هستند. مقدار یک برای  $R^2$  نشان‌دهنده ارتباط قوی بین متغیرهای مستقل و وابسته است. وقتی این دو مقادیر نزدیک به یکدیگر و نیز به مقدار یک نزدیک باشند، مدل از نظر آماری معنی‌دار است. در جدول ۴ ضرایب همبستگی برای رابطه درجه دو آورده شده است. در مدل ارائه شده مقدار  $R^2$  و  $\text{adj } R^2$  نزدیک به ۱ است که نشان‌دهنده مناسب بودن مدل برای پیش‌بینی ویسکوزیته نانو کامپوزیت ژل در بازه مورد مطالعه است. نمودار سطح پاسخ سه بعدی در درک تأثیر پارامترهای اصلی و برهم‌کنش بین دو پارامتر مفید است. به منظور درک بهتر نتایج، نمودارهای سطح پاسخ سه بعدی برای مدل پیش‌بینی شده در شکل ۱۱ ارائه شده است.

#### پایداری ژل با زمان

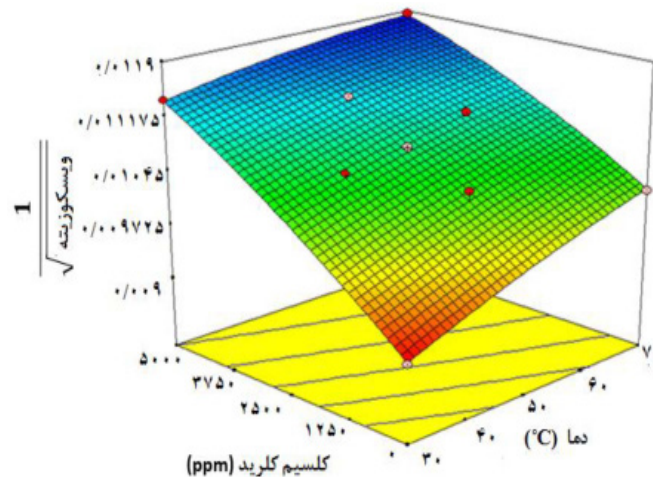
برای کنترل موفقیت آمیز هرزروی گل، پایداری و استحکام ژل در داخل شکاف برای یک دوره زمانی خاص مهم است. برای ارزیابی دوام و پایداری ژل در سازند، ویسکوزیته ژل به مدت ۲۱ روز در شرایط محیطی اندازه‌گیری شد. شکل ۱۲ تغییرات ویسکوزیته ژل هیبریدی در طول ۲۱ روز را نشان می‌دهد. با توجه به شکل ۱۲، برای هر دو ژل طراحی شده با

1. R-Squared

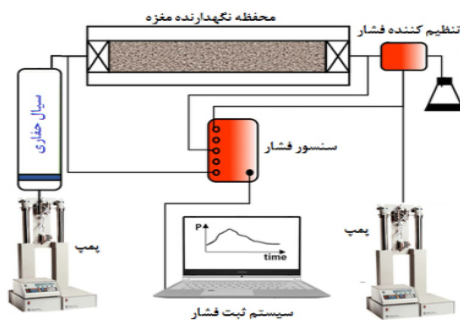
2. Adjusted R-Squared

جدول ۴ ضرایب همبستگی مدل درجه دو

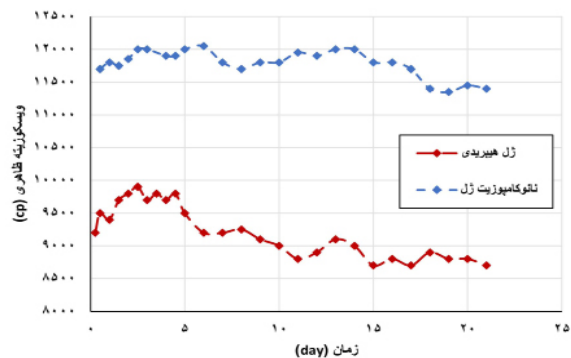
Predicted R-Squared	Adjusted R-Squared	R-Squared	مدل
۰/۸۶	۰/۹۰	۰/۹۱	Quadratic



شکل ۱۱ منحنی سه بعدی تأثیر هم‌زمان غلظت کلسیم کلرید و دما روی ویسکوزیته



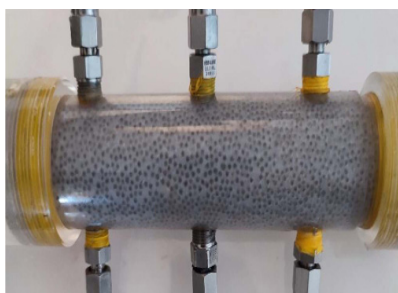
شکل ۱۳ طرح کلی سامانه آزمایشگاهی برای اندازه‌گیری حداکثر فشار سیل‌بندی ژل



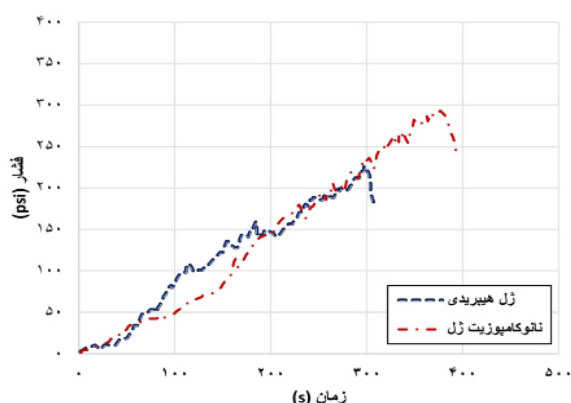
شکل ۱۲ پایداری نانوکامپوزیت ژل و ژل هیبریدی با زمان

شیشه‌ای با اندازه متوسط بین ۲۰۰ تا ۳۵۰  $\mu\text{m}$  به‌عنوان محیط متخلخل استفاده شد. تخلخل و نفوذپذیری مغزه مصنوعی به ترتیب ۰/۲۲ و ۲ D ساخته شده برای اندازه‌گیری ماکزیمم فشار سیل‌بندی ژل در محیط متخلخل را نشان می‌دهد. شکل ۱۶ پروفایل های فشار در مقابل زمان برای ژل های هیبریدی ساخته شده توسط اتصال‌دهنده‌های عرضی مختلف را نشان می‌دهد که به‌منظور مطالعه پایداری ژل‌ها در برابر فشار سیال حفاری در سازندهای بسیار نفوذپذیر است.

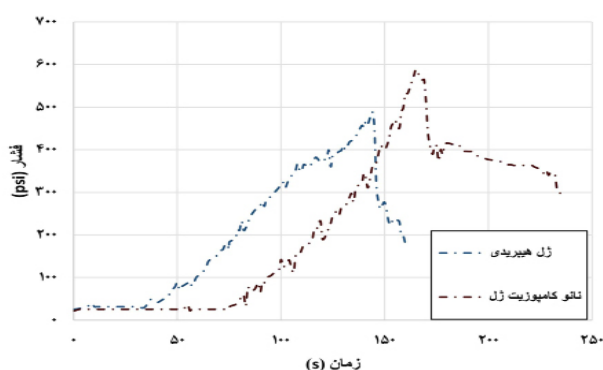
تا حداکثر فشار قابل تحمل ژل در برابر سیال حفاری به‌دست آید. شکل ۱۴ پروفایل فشار و حداکثر فشار سیل‌بندی شکاف برای ژل‌های هیبریدی طراحی شده توسط اتصال‌دهنده‌های عرضی مختلف در مغزه شکاف‌دار را نشان می‌دهد. با توجه به شکل ۱۴، اتصال‌دهنده عرضی نانو حداکثر فشار انسداد را به‌میزان تقریبی ۳۰٪ افزایش می‌دهد و نانوکامپوزیت ژل فشار سیل‌بندی بالاتری نسبت به ژل هیبریدی در برابر فشار سیال حفاری در سازندهای شکاف‌دار ایجاد می‌کند. برای ارزیابی عملکرد ژل در سازندهای بسیار تراوا، یک مغزه مصنوعی متشکل از دانه‌های



شکل ۱۵ محیط متخلخل طراحی شده برای اندازه‌گیری پایداری دینامیکی ژل



شکل ۱۴ استحکام ژل در برابر فشار داخل شکاف

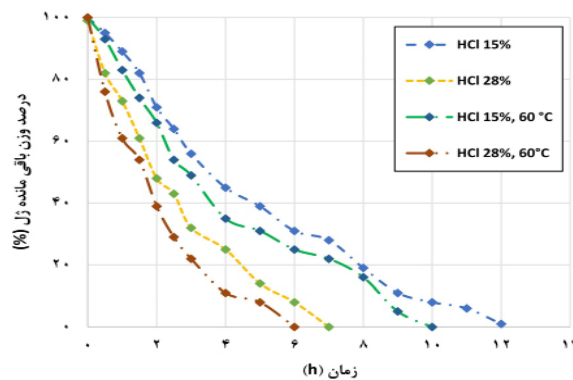


شکل ۱۶ استحکام ژل در برابر فشار داخل محیط متخلخل تراوا

وزن ژل باقی مانده براساس برنامه زمان‌بندی شده اندازه‌گیری می‌شود و میزان گسیختگی ژل با محاسبه درصد وزن باقی‌مانده<sup>۱</sup> (WRP) محاسبه می‌شود [۳۲]. این روش میزان گسیختگی ژل را در حالت استاتیک اندازه‌گیری می‌کند که این زمان نسبت به حالت دینامیک بیشتر است. شکل ۱۷ درصد وزن باقی‌مانده با زمان را برای نانوکامپوزیت ژل در هیدروکلریک اسید ۱۵ و ۲۸٪.vol نشان می‌دهد. با توجه به نتایج به‌دست آمده مشخص می‌شود که نانوکامپوزیت ژل به‌طور کامل در اسید گسیخته می‌شود و امکان آسیب به سازند را به حداقل می‌رساند. همچنین با افزایش دما و غلظت اسید، نرخ گسیختگی نانوکامپوزیت ژل افزایش می‌یابد و زمان گسیختگی شبکه ژل کوتاه‌تر می‌شود. بنابراین دمای سازند می‌تواند تاثیر مثبتی در نرخ گسیختگی ژل داشته باشد.

بیشترین فشار سیل‌بندی برای ژل هیبریدی ۴۹۰ psi و برای نانوکامپوزیت ژل ۵۸۰ psi اندازه‌گیری شد که نشان‌دهنده عملکرد خوب ژل‌های طراحی شده در کنترل هرزروی در سازندهای پرتراوا است. آسیب سازند بعد از جریان دادن چاه باقی ماندن بخشی از ژل در داخل سازند یا شکاف می‌تواند باعث آسیب سازند شود. مواد مختلفی برای از بین بردن شبکه ژل با تجزیه مولکول‌های پلیمر به بخش‌های کوچکتر و یا با جدایش اتصالات عرضی ژل، مورد استفاده قرار می‌گیرند [۳۲]. اسیدها یکی از پرکاربردترین مواد برای گسیختگی شبکه ژل و حذف آن از داخل سازند و شکاف‌ها است [۳۳]. در این مطالعه از هیدروکلریک اسید در دو غلظت ۱۵ و ۲۸٪.vol برای ارزیابی میزان گسیختگی ژل با زمان استفاده شد. برای اندازه‌گیری درجه تخریب ژل‌ها ابتدا ۱۰ g ژل در ۳۰ cm<sup>3</sup> محلول اسید در غلظت مورد نظر در بطری‌های شیشه‌ای نگه‌داری می‌شود و ژل در دمای مورد نظر قرار می‌گیرد. سپس

1. Weight Remaining Percentage



شکل ۱۷ مقدار گسیختگی ژل با زمان غلظت‌های مختلف هیدروکلریک اسید

- نتایج آنالیز امکان آسیب سازند نشان داد که نانوکامپوزیت ژل در اسید هیدروکلریک اسید به‌طور کامل حل می‌شود و امکان آسیب رساندن به مخزن را به حداقل می‌رساند و می‌توان بعد از عملیات کنترل هرزروی ژل را از مخزن حذف کرد. زمان گسیختگی کامل نانو کامپوزیت ژل در اسید ۱۵٪.vol در دمای ۳۵ °C و ۶۰ °C به ترتیب در حدود ۱۲ h و ۱۰ h اندازه‌گیری شد.
- در نرخ‌های برشی بالا و بعد از شکسته شدن شبکه ژل، نانو کامپوزیت ژل قابلیت خود ترمیمی بالایی دارد و در مدت زمان کمتری با تشکیل مجدد شبکه ژل به استحکام اولیه می‌رسد که این از مزیت‌های نانوکامپوزیت ژل نسبت به ژل‌های هیبریدی است.
- نتایج آنالیز واریانس روش سطح پاسخ مرکب مرکزی نشان داد که مدل تجربی به‌دست آمده می‌تواند داده‌های آزمایشگاهی را با دقت مناسبی (۰/۸۶٪) پوشش دهد و مقادیر بالای ضریب همبستگی (۰/۹۱) و ضریب همبستگی تعدیل شده (۰/۹) نشان‌دهنده ارتباط قوی بین مقادیر پیش‌بینی شده و نتایج آزمایشگاهی است.

زمان گسیختگی کامل ژل‌ها در اسید ۱۵٪ حجمی در دمای ۳۵ °C و ۶۰ °C به ترتیب در حدود ۱۲ h و ۱۰ h اندازه‌گیری شد.

### نتیجه‌گیری

در این مقاله تأثیر پارامترهای مختلف برروی نانوکامپوزیت ژل به‌منظور کنترل هرزروی گل حفاری مورد بررسی قرار گرفت و نتایج به‌دست آمده به شرح زیر است:

- نانوکامپوزیت ژل نرخ شبکه‌ای شدن، ویسکوزیته و عملکرد بهتری نسبت به ژل هیبریدی در دماهای بالا و همچنین در حضور یون‌های مخرب دارد که به‌دلیل اندازه بزرگتر و سطح تماس بیشتر اتصال‌دهنده عرضی نانو با پلیمرها است که منجر به تشکیل شبکه ژل گسترده‌تری است
- حضور عامل شبکه‌ای کننده نانو در ژل ماکزیمم فشار سیل‌بندی ژل‌ها در انسداد سازندهای شکاف‌دار یا با تراوایی بالا را به میزان تقریبی ۳۰٪ افزایش می‌دهد و نانوکامپوزیت ژل تا فشارهای بالاتری در برابر فشار سیال حفاری مقاومت می‌کند.

### مراجع

- [1]. Luzardo, J., Oliveira, E.P., Derks, P.W.J., Nascimento, R.V., Gramatges, A.P., Valle, R., Pantano, I.G., Sbaglia, F. and Inderberg, K. (2015). Alternative lost circulation material for depleted reservoirs. In Offshore Technology Conference Brasil, D031S029R001). OTC.
- [2]. Al Menhali, S., Abdul Halim, A. O., and Al Menhali, S. (2014). Curing Losses While Drilling & Cementing. Society of Petroleum Engineers. doi:10.2118/171910-MS.
- [3]. Nasiri, A., Ameri Shahrabi, M., Keshavarz Moraveji, M., (2018). Experimental Investigation of the Performance of Different Lost Circulation Materials and Introducing a New Type of Eco-Friendly Lost Circulation Additive. Petroleum Research. DOI: 10.22078/pr.2018.2874.2334.

- [4]. Alsaba, M., Nygaard, R. and Hareland, G. (2014). Review of lost circulation materials and treatments with an updated classification, AADE National Technical Conference and Exhibition, Houston, TX, Apr, 15-16.
- [5]. Ashoori, S., Bahari Moghadam, M., Nazemi, R., Nooripoor, V., and Ahmadabadi, M. (2022). Dynamically evaluating the performance of naturally occurring additives to control lost circulation: on the effect of lost circulation material type, Particle-Size Distribution, and Fracture Width. *SPE Journal*, 1-23, doi.org/10.2118/209620-PA.
- [6]. Mansour, A., Ezeakacha, C., Taleghani, A. D., Li, G., and Salehi, S. (2017, October). Smart lost circulation materials for productive zones. In *SPE Annual Technical Conference and Exhibition?*. D031S033R001, ISBN: 978-1-61399-542-6.
- [7]. Mansour, A. K., Taleghani, A. D., and Li, G. (2017). Smart expandable LCMs; a theoretical and experimental study. In *AADE National Technical Conference and Exhibition, Houston, Texas, USA* (pp. 11-12).
- [8]. Samuel, M., Marcinew, R., Al-Harbi, M., Samuel, E., Xiao, Z., Ezzat, A. M., ... & Nasr-El-Din, H. A. (2003). A new solids-free non-damaging high temperature lost-circulation pill: development and first field applications. In *Middle East Oil Show. OnePetro*.
- [9]. Jia, H., Chen, H., & Guo, S. (2017). Fluid loss control mechanism of using polymer gel pill based on multi-crosslinking during overbalanced well workover and completion. *Fuel*, 210, 207-216.
- [10]. Bai, Y., Liu, C., Sun, J., Shang, X., Lv, K., Zhu, Y., & Wang, F. (2022). High temperature resistant polymer gel as lost circulation material for fractured formation during drilling. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 637, 128244.
- [11]. Hamza, A., Shamlooh, M., Hussein, I. A., Nasser, M., & Salehi, S. (2019). Polymeric formulations used for loss circulation materials and wellbore strengthening applications in oil and gas wells: A review. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 180, 197-214.
- [12]. Hashmat, M. D., Sultan, Abdullah S., Rahman, Saifur, and S. M. Hussain. (2016). Crosslinked polymeric gels as loss circulation materials: an experimental study, Paper presented at the SPE Kingdom of Saudi Arabia Annual Technical Symposium and Exhibition.
- [13]. Bai, Y., Zhang, Q., Sun, J., Shang, X., Lv, K., & Wang, F. (2021). Disproportionate filtration behaviors of polymer/chromium gel used for fracture plugging. *Journal of Molecular Liquids*, 343, 117567.
- [14]. Ay, A., Gucuyener, I. H., & Kök, M. V. (2014). An experimental study of silicate-polymer gel systems to seal shallow water flow and lost circulation zones in top hole drilling. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 122, 690-699
- [15]. Contreras, O., Hareland, G., Husein, M., Nygaard, R., & Alsaba, M. (2014). Application of in-house prepared nanoparticles as filtration control additive to reduce formation damage. In *SPE International Symposium and Exhibition on Formation Damage Control. OnePetro*.
- [16]. Li, G., Zhang, J., Zhao, H., & Hou, Y. (2012). Nanotechnology to improve sealing ability of drilling fluids for shale with micro-cracks during drilling. In *SPE international oilfield nanotechnology conference and exhibition* (pp. SPE-156997). SPE.
- [17]. Lecolier, E., Herzhaft, B., Rousseau, L., Neau, L., Quillien, B., & Kieffer, J. (2005, May). Development of a nanocomposite gel for lost circulation treatment, In *SPE European Formation Damage Conference and Exhibition*, SPE-94686, doi.org/10.2118/94686-MS.
- [18]. Wang, K., Wang, Y., Ren, J., & Dai, C. (2017). Highly efficient nano boron crosslinker for low-polymer loading fracturing fluid system. In *SPE Asia Pacific Oil and Gas Conference and Exhibition*, D012S036R048, doi.org/10.2118/186943-MS.
- [19]. Gamage, P., Deville, J. P., & Sherman, J. (2014). Solids-free fluid-loss pill for high-temperature reservoirs. *SPE Drilling and Completion*, 29(01), 125-130.
- [20]. Borisov, A. S., Husein, M., & Hareland, G. (2015). A field application of nanoparticle-based invert emulsion drilling fluids, *Journal of Nanoparticle Research*, 17, 1-13.
- [21]. Jia, H., Kang, Z., Zhu, J., Ren, L., Cai, M., Wang, T., and Li, Z. (2021). High density bromide-based nanocomposite gel for temporary plugging in fractured reservoirs with multi-pressure systems, *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 205, 108778, doi.org/10.1016/j.petrol.2021.108778.
- [22]. Mora, G. S., & Moreno, R. B. Z. L. (2021). Rheology and statistical optimization of a shear-sensitive fluid as a treatment for circulation loss control, *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 205, 108830, doi.org/10.1016/j.petrol.2021.108830.
- [23]. Gao, S., Guo, J., & Nishinari, K. (2008). Thermoreversible konjac glucomannan gel crosslinked by borax, *Carbohydrate Polymers*, 72(2): 315-325, doi.org/10.1016/j.carbpol.2007.08.015.
- [24]. Fan, H., Gong, Z., Wei, Z., Chen, H., Fan, H., Geng, J. Dai, C. (2017). Understanding the temperature-resistance performance of a borate cross-linked hydroxypropyl guar gum fracturing fluid based on a facile evaluation method. *RSC advances*, 7(84), 53290-53300.

- 1, p. 012189). IOP Publishing.
- [27]. Liang, F., Al-Muntasheri, G., Ow, H., & Cox, J. (2015). Reduced polymer loading, high temperature fracturing fluids using nano-crosslinkers. In Abu Dhabi International Petroleum Exhibition and Conference. OnePetro. ISBN: 978-1-61399-424-5, <https://doi.org/10.2118/177469-MS>.
- [28]. Esmacilrad, N., White, S., Terry, C., Prior, A., & Carlson, K. (2016). Influence of inorganic ions in recycled produced water on gel-based hydraulic fracturing fluid viscosity. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 139, 104-111.
- [29]. Li, L., Al-Muntasheri, G. A., & Liang, F. (2016). A review of crosslinked fracturing fluids prepared with produced water. *Petroleum*, 2(4), 313-323.
- [30]. Ferreira, S.C., Bruns, R.E., Ferreira, H.S., Matos, G.D., David, J.M., Brandão, G.C., da Silva, E.P., Portugal, L.A., Dos Reis, P.S., Souza, A.S. and Dos Santos, W.N.L (2007). Box-Behnken design: an alternative for the optimization of analytical methods. *Analytica chimica acta*, 597(2): 179-186, [doi.org/10.1016/j.aca.2007.07.011](https://doi.org/10.1016/j.aca.2007.07.011).
- [31]. Khuri, A. I., and Mukhopadhyay, S. (2010). Response surface methodology. *Wiley Interdisciplinary Reviews: Computational Statistics*, 2(2), 128-149.
- [32]. Al-Muntasheri, G.A.; Li, L.; Liang, F.; Gomaa, A.M. (2018). Concepts in cleanup of fracturing fluids used in conventional reservoirs: A Literature Review, *SPE Prod. Oper.* 2018, 33, 196–213.
- [33]. AlMubarak, T., Ng, J. H. C., AlKhalidi, M., Panda, S., and Nasr-El-Din, H. A. (2020). Insights on potential formation damage mechanisms associated with the use of gel breakers in hydraulic fracturing. *Polymers*, 12(11): 2722, [doi.org/10.3390/polym12112722](https://doi.org/10.3390/polym12112722).
- [34]. Nazemi, R., Ashoori, S., and Moghadasi, J. (2023). Experimental Investigation of Hybrid Gel Performance in order to Control Fluid Loss in Fractured Formations. *Journal of Petroleum Research*, 32(1401-6): 22-36. [doi: 10.22078/pr.2022.4870.3174](https://doi.org/10.22078/pr.2022.4870.3174).



# Experimental Study of Nanocomposite Gel Performance in Sealing Reservoirs During Drilling Operations

Rasoul Nazemi, Jamshid Moghadasi\* and Siavash Ashoori

Department of Petroleum Engineering, Petroleum University of Technology

J.moghadasi@put.ac.ir

DOI: 10.22078/pr.2024.5275.3340

Received: October/13/2023

Accepted: January/09/2024

## Introduction

The phenomenon of lost circulation is known as the undesirable loss of drilling fluids into the fractures and formation voids. lost circulation may occur in any formation with a wide range of severity depending on drilling conditions and type of loss zone [1]. cross-linking is the linking of two independent polymer chains by cross-linking agents to make a three-dimensional gel structure. Polymeric gel systems consist of a polymer base and cross-linker combined [2,3].

Nanotechnology has attracted an increasing interest in the field of materials science because of the unique properties that can be obtained and also the numerous potential applications in the oil industry [4]. Particles used in drilling fluids with a size between 1-100 nm are called Nano particles. These very small particles can have access to the smallest pores and are also able to seal pore throats even in very low permeability formation. Cross-linked nanocomposite pills have been proposed for combating severe fluid losses [5]. The pill consists of three components: an aqueous viscous polymer base, a cross-linking agent, and nanoparticles. The employed nanofiller properties can be different in chemical nature, shape, and particle size.

The nano-composite gel consists of a crosslinked gel by nano-crosslinkers. Coating the cross-linker on the nanomaterials extends the length of the cross-linker and forms a stronger network between the polymers [6].

Lecolier et al. in 2013 developed a nanocomposite gel to plug fractured formations. The nanocomposite gel consisted of a high molecular weight polyacrylamide, chromium acetate as cross-linking agent and colloidal

particles. According to studies, nanoparticles improve the strength of the gel, and no degradation in the properties of the gel was observed for 16 hours at 120 °C [5].

## Materials and Methods

In this study, xanthan was used as polymer due to its high ability in cross-linking as well as suitable thermal stability. Cross-linking helps in achieving gels with the required viscosity for lost circulation treatment without increasing polymer loading. The nanocomposite gel consists of a crosslinked gel by nano-crosslinkers. The presence of crosslinker on the nano surface increases the efficiency of crosslinking and forms a stronger network between polymers. The mechanism of nano-crosslinker formation is schematically shown in Fig. 1. The first step is the surface modification process of nano-silica by coupling agent. The second step includes the reaction of the -OH group of the crosslinker with the -NH<sub>2</sub> group on the modified nano surface, which it leads to the production of the nano crosslinker [7,8]. The base composition of the designed gels is shown in Table 1. The effect of temperature and salinity on the gel behavior is compared to these base samples.

## Results and Discussion

One of the most important issues in designing a hybrid gel is achieving an acceptable final viscosity with a proper initial gelation time and crosslinking rate. Fig. 2 shows the effect of crosslinker type on the behavior of the hybrid gel. As can be seen in Fig. 2, the presence of nano-crosslinker in the gel increases the rate of crosslinking and the final viscosity of the formed gel.



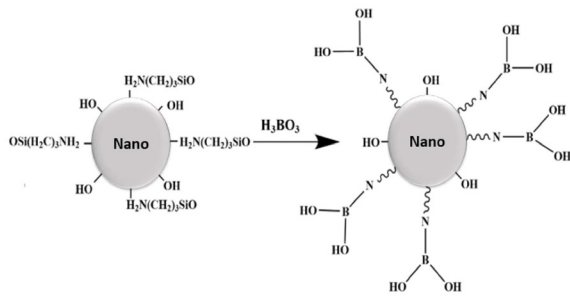


Fig. 1 Schematic illustration of the formation of nano-cross-linker [7].

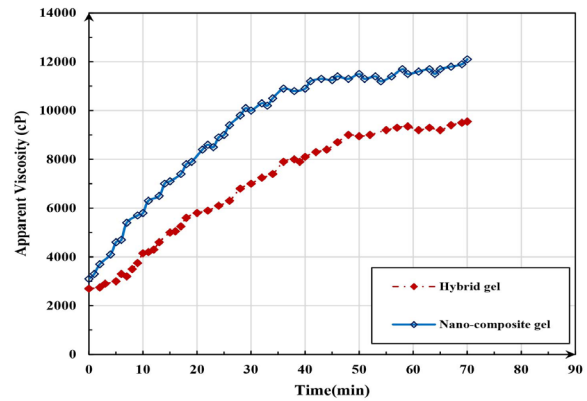


Fig. 2 Effect of crosslinker type on hybrid gels behavior.

Table 1 Base composition of hybrid gels.

Gel type	Cross-linker type	Concentration of P/C (mass fraction)	phase ratio	pH	Temperature (°C)	Shear rate (rpm)
Hybrid gel	Borax	2.5	50/50	11	35	8000
Nanocomposite gel	Nano-crosslinker Borax	2.5	50/50	10	35	8000

As a result, the nanocomposite gel shows better performance than the crosslinked gel with borax. This improvement in performance is related to the larger size of the nano-crosslinker compared to the borate ion, in other words, due to the larger contact surface compared to the borate ion, nano can better connect the polymer chains which leads to increase the cross-linking efficiency.

### Gel Thermal Stability

The thermal stability of the formed gel samples determined by thermogravimetric analysis in nitrogen is shown in Fig. 3. The onset temperature of thermal degradation of gels is approximately 66 and 74 °C for hybrid gel and nano-composite gel, respectively. According to Fig. 3, the gel formed by nano-crosslinker has a higher thermal stability than that of borax crosslinker.

For a successful lost circulation control, it is essential that the gels have sufficient strength in a specific period of time. To evaluate the durability and strength

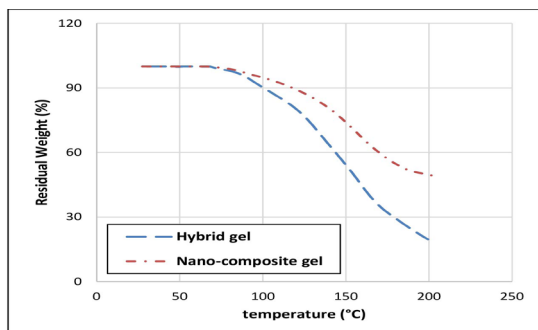


Fig. 3 TGA thermograms of hybrid gels.

of the gel in the formation, the viscosity of the hybrid gels was measured for 21 days. During this period, the ambient temperature was approximately 35 °C. Fig. 4 shows the changes in the viscosity of hybrid gels during 21 days. As can be seen in Fig. 4, the hybrid gels had good stability and strength with time.

### Sealing Pressure Test

After the gel reaches the final strength inside the fractured formations, it is important to evaluate the performance of the gels in controlling mud loss. Generally, the sealing pressure test determines the amount of pressure difference that the gel is stable in the fractures and thus can mitigate lost circulation. Fig. 5 illustrates the pressure profiles versus time for the gels formed with different cross-linkers in order to study the maximum sealing pressure of gels in the fractured formations. By comparing the two cross-linkers, the results show that nano-crosslinker forms a stronger gel than borax, and as a result, the nano-crosslinked hybrid gel has a higher sealing pressure in fractured formations.

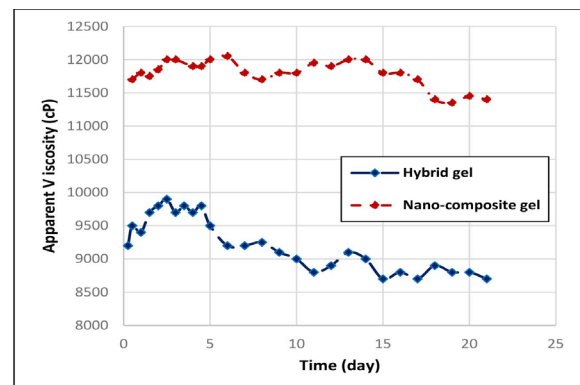


Fig. 4 Stability of the hybrid gels with time.

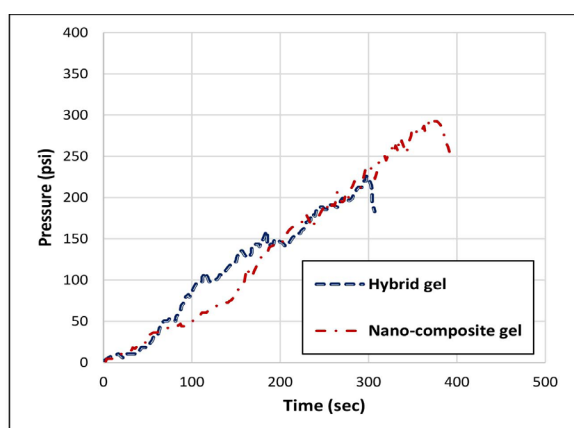


Fig. 5 Dynamic sealing pressure of hybrid gels in fractured core.

### Formation Damage

The performances of acid in degrading formed gels were determined by measuring of weight remaining percentage. In this method, the remaining weight is measured and compared with the initial weight of the gel to calculate the degree of degradation [9]. Hydrochloric acid in two volumetric concentrations of 15% and 28% was used to evaluate the degradation degree of nano composite gel with time. According to the obtained results (Fig. 6), the structure of nano crosslinked gel is completely broken in HCl, which indicates the non-damaging properties of this gel. By increasing the temperature, the rupture rate of the gels increases and the time to degrade the crosslinked gel is much shorter.

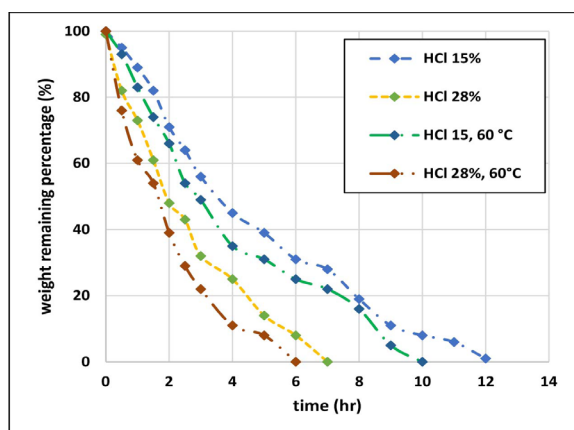


Fig. 6 Degradation degree of nano-composite gel in different concentrations of HCl.

### Conclusions

In this paper, the application of nano composite gel in plugging the fractured and highly permeable formations during drilling was studied. Furthermore, the effect of different parameters on gelation behavior, and the potential of the nano composite gel in sealing the highly permeable and fractured formations was investigated. Based on the findings of this study, the following conclusion can be drawn.

1. Nano-crosslinker increases the cross-linking rate and the final viscosity of the hybrid gels, which it is due to the much larger size of this cross-linker compared to conventional cross-linker.
2. The addition of nano-crosslinker to the hybrid gels increases the maximum tolerable pressure of the gel to seal fractured or high permeable formations.
3. The results of the formation damage analysis showed that the nanocomposite gel is completely broken in hydrochloric acid, which it indicates the non-damaging properties of the designed gel. The rupture time of the formed gel decreases significantly with increasing temperature

### References

1. Luzardo, J., Oliveira, E. P., Derks, P. W. J., Nascimento, R. V., Gramatges, A. P., Valle, R., Inderberg, K. (2015). Alternative lost circulation material for depleted reservoirs. In Offshore Technology Conference Brasil (p. D031S029R001). OTC.
2. Hashmat, M. D., Sultan, Abdullah S., Rahman, Saifur, and S. M. Hussain. (2016). Crosslinked Polymeric Gels as Loss Circulation Materials: An Experimental Study. SPE Kingdom of Saudi Arabia Annual, Technical Symposium and Exhibition. (pp. SPE-182740). SPE.
3. Jia, H., Chen, H., & Guo, S. (2017). Fluid loss control mechanism of using polymer gel pill based on multi-crosslinking during overbalanced well workover and completion. Fuel, 210, 207-216.
4. Hoelscher, K. P., De Stefano, G., Riley, M., & Young, S. (2012). Application of nanotechnology in drilling fluids. In SPE international oilfield nanotechnology conference and exhibition (pp. SPE-157031). SPE.
5. Lecolier, E., Herzhaft, B., Rousseau, L., Neau, L., Quillien, B., & Kieffer, J. (2005). Development of a nanocomposite gel for lost circulation treatment. In SPE European Formation Damage Conference and Exhibition (pp. SPE-94686). SPE.
6. Wang, K., Wang, Y., Ren, J., & Dai, C. (2017). Highly efficient nano boron crosslinker for low-polymer loading fracturing fluid system. In SPE Asia Pacific Oil and Gas Conference and Exhibition (p. D012S036R048). SPE.
7. Zhang, Z., Liu, P., Pan, H., Zhao, M., Li, X., & Zhang, Z. (2017). Preparation of a nanosilica cross-linker and investigation of its effect on properties of guar gum fracturing fluid. Micro & Nano Letters, 12(7), 445-449.
8. Ke, X., Baoshan, G., Minjie, X., Ping, L., & Haiyan, W. (2018). Study on synthesis and properties of nano-organic boron crosslinked agent. In IOP Conference Series: Materials Science and Engineering (Vol. 423, No. 1, p. 012189). IOP Publishing.

9. Nazemi, R., Ashoori, S., & Moghadasi, J. (2023). Experimental Investigation of Hybrid Gel Performance in order to Control Fluid Loss in Fractured Formations. *Journal of Petroleum Research*, 32(1401-6), 22-36. doi: 10.22078/pr.2022.4870.3174.