



(12) **PATENT**

(19) **NO**

(11) **332704**

(13) **B1**

NORGE

(51) **Int Cl.**

B01F 3/12 (2006.01)

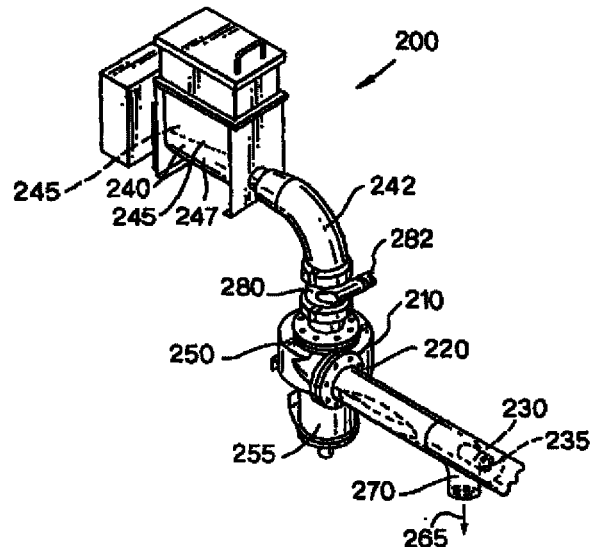
B01F 5/16 (2006.01)

Patentstyret

(21)	Søknadsnr	20055930	(86)	Int.inng.dag og søknadsnr	2004.06.21 PCT/GB2004/02665
(22)	Inng.dag	2005.12.14	(85)	Videreføringsdag	2005.12.14
(24)	Løpedag	2004.06.21	(30)	Prioritet	2003.06.19, US, 10/464,923
(41)	Alm.tilgj	2006.01.19			
(45)	Meddelt	2012.12.10			
(73)	Innehaver	Halliburton Energy Services Inc, P O Box 1431, US-OK73536-0431 DUNCAN, USA			
(72)	Oppfinner	Max L. Phillippi, 2325 Cherrybrook, US-OK73533 DUNCAN, USA Billy Slabaugh, 608 S 9th Street, US-OK73533 DUNCAN, USA			
(74)	Fullmektig	Curo AS, Industriveien 53, 7080 HEIMDAL, Norge			

(54)	Benevnelse	Apparat og fremgangsmåte for å hydratisere en gel for bruk i en underjordisk brønn
(56)	Anførte publikasjoner	US 5026168 A DE 4217373 A US 4845192 A US 5190374 A
(57)	Sammendrag	

Foreliggende oppfinnelse angår en fremgangsmåte og et system for å hydratisere en gel for å behandle en brønn som penetrerer en underjordisk formasjon. Systemet (200) inkluderer en beholder (240) for tilførsel av gelpulver som er forbundet med en blander (250). En basisvæske (235) så som vann, tilføres blanderen (250) med væskeinnløp (230) og den blandede gel blir ledet ut gjennom utløpet (270). Blanderen (250) omfatter et hus (210) med et indre kammer (220). Blanderen (250) blir tilført kraft fra en kraftkilde (225) så som en motor. Blanderen (250) etablerer et sug når den benyttes og trekker gelpulver (245) gjennom innløpet (242) og inn i blandekammeret (220). Basisvæsken kommer inn i blanderen gjennom et innløp (230). Blanderen omfatter en rotor (215) som roterer om et nav (260). Blanderen (250) blander effektivt pulverformet gel (245) og basisvæske (235) under dannelse av en hydratisert gel/væske blanding (265) som forlater blanderen gjennom utløpet (270).



Apparat og fremgangsmåte for å hydratisere en gel for bruk i en underjordisk brønn

Foreliggende oppfinnelse angår blanding av et geleringsmiddel og et hydratiseringsmiddel under dannelsen av en hydratisert gel, så som en hydratisert fraktureringsgel eller andre tilsvarende gler, og mer spesifikt til en fremgangsmåte og et system for effektivt å hydratisere slike geler uten dannelsen av uønskede gelklumper.

Oppfinnelsens bakgrunn

Mange behandlinger og prosedyrer blir utført i oljeindustrien ved bruk av høyviskositets fluider for å oppnå et antall formål. For eksempel blir høyviskositets vandige behandlingsvæsker benyttet i oljeindustrien for å øke utvinningen av hydrokarboner fra underjordiske formasjoner, så som ved å danne sprekker i formasjonen. Høyviskositets vandige væsker er også vanlig å benytte i brønnskompletteringsprosedyrer. For eksempel blir en høyviskositets vandig kompletteringsvæske med høy tetthet under komplettering av en brønn, innført i brønnen for å opprettholde et hydrostatisk trykk på formasjonen som er høyere enn trykket som påføres av fluider som finnes i formasjonen for derved å hindre formasjonsfluider fra å strømme inn i brønnen. Høyviskositets behandlingsvæsker, så som fraktureringsgeler, blir normalt laget ved å benytte tørre gel tilsetningsmidler som blir blandet med vann eller andre vandige væsker ved arbeidsstedet. Slike blandedprosedyrer har enkelte iboende problemer, spesielt på fjerntliggende steder eller når det kreves store volumer. For eksempel kreves spesielt utstyr for å blande de tørre tilsetningsmidler med vann og problemer så som kjemisk støving, ujevn blanding og klumper kan forekomme. Klumping av geler forekommer fordi den initielle kontakt mellom gelene og vann fører til svært hurtig hydratisering av det ytre sjikt av partikler som danner et klebrig, gummiaktig ytre sjikt som hindrer de indre partikler fra å komme i kontakt med vann. Netto virkning er dannelsen av hva som blir betegnet som "gelboller" eller "fiskeøyne". Dette hemmer effektiviteten ved å senke viskositeten som oppnås pr vektenhet av geleringsmidlet og likeledes ved å danne uløselige partikler som kan begrense strømning både inn i formasjonen og tilbake ut fra den. Således er enkel blanding av ubehandlet gel direkte med vann ikke en spesielt vellykket metode for å tilberede en glatt, homogen gel fri for klumper.

En fremgangsmåte rettet mot å løse dette problemet består i å kontrollere partikkelstørrelse og gi gelen en overflatemodifiserende behandling. Det er ønskelig å forsinke hydratiseringen lenge nok til at de enkelte gelpartikler blir dispergert og omgitt av vann slik at ingen tørre partikler blir fanget inne i et gelert belegg. Dette kan oppnås ved å belegge gelen med materialer så som boratsalter, glyksal, ikke-klumpende HEC, sulfosuccinat, metalliske såper, tensider eller andre materialer med motsatt overflateladning til gelen. En stabilisert gelslurry (SPS), også omtalt som et flytende

gelkonsentrat (LGC), er den mest vanlige måte for å forbedre effektiviteten av en geltilsetning til vann og oppnå maksimalt utbytte av gelen. Det flytende gelkonsentrat blir på forhånd blandet og deretter senere tilsatt til vannet. I US patent nr. 4 336 145 bevilget til Briscoe og som innehas av samme innehaver som foreliggende oppfinnelse, blir et flytende gelkonsentrat beskrevet

5 omfattende vann, gelen og en inhibitor som har den egenskap at den reversibelt reagerer med den hydratiserbare gel på en måte med hvilken hastigheten av hydratisering av gelen blir bremsset. Ved endring i pH betingelse for konsentratet så som ved fortykning eller tilsetning av buffer til konsentratet, ved økning av temperaturen av konsentratet eller ved endring av annen valgt betingelse av konsentratet, blir inhiberingsreaksjonen reversert og gelen eller gelene blir

10 hydratisert for å danne den ønskede viskositetsøkte væske. Denne reversering av inhiberingen av hydratiseringen av geleringsmidlet i konsentratet kan bli utført direkte i konsentratet eller senere når konsentratet blir kombinert med ytterligere vann. Det vannbaserte, flytende gelkonsentrat ifølge Briscoe har fungert godt når det gjelder å eliminere gelballe og er fortsatt rutinemessig i bruk i industrien. Imidlertid kan vandige konsentrasjoner på grunn av fysisk svelling og

15 viskositetsøkning som forekommer i vannbaserte medier bare suspendere en begrenset mengde gel. Typisk kan omtrent 0,1 kg gel bli suspendert i en liter av konsentratet.

For å løse dette problemet kan det benyttes en hydrokarbon-bærevæske i stedet for vann slik at større mengder av faststoff kan bli suspendert. For eksempel kan opp til 0,6 kg gel bli suspendert pr. liter i en dieselolje bærevæske. Et slikt flytende gelkonsentrat er beskrevet i US patent nr.

20 4 722 646 til Harms og Norman, som innehas av innehaveren av foreliggende oppfinnelse. Slike hydrokarbonbaserte, flytende gelkonsentrater virker godt, men krever et suspensjonsmiddel så som en organofil leire eller visse polyakrylat tilsetningsmidler. Det hydrokarbonbaserte, flytende gelkonsentrat blir senere blandet med vann på en måte tilsvarende den for vannbaserte, flytende gelkonsentrater for å danne en viskositetsøkt væske, men hydrokarbonbaserte konsentrater har

25 fordelene av å kunne holde mer gel.

Et problem med kjente metoder som benytter flytende gelkonsentrater forekommer i offshore anvendelser. Service fartøyer som benyttes for å forsyne offshore steder har en begrenset lagringskapasitet og må derfor ofte returnere til en havn for å hente mer konsentrat før de kan gjøre flere arbeider, selv når det flytende gelkonsentrat er hydrokarbonbasert. Derfor ville det

30 være ønskelig å være i stand til å blande en gel til brønnbehandling på forespørsel under behandling av den underjordiske formasjon fra tørre ingredienser. For eksempel kan et slikt "online" system tilfredsstillende kravene til fluid strømning for store, hydrauliske fraktureringsarbeider under frakturering av den underjordiske formasjon ved å blande fraktureringsgelen på forespørsel.

En fremgangsmåte og et system for blanding av en fraktureringsgel på forespørsel er beskrevet i

35 US patent nr. 4 828 034 til Constien et al., i hvilken et slurry konsentrat av en fraktureringsvæske

blir blandet gjennom en statisk blanderinnretning i sann tid for å produsere en fullt hydratisert fraktureringsvæske i løpet av fraktureringsoperasjonen. Denne prosessen benytter et hydrofobt løsningsmiddel som er kjennetegnet ved et hydrokarbon så som diesel som i det hydrokarbonbaserte, flytende gelkonsentrat beskrevet ovenfor. Slikt et slurrykonsentrat

5 involverer typisk en gelslurry i hvilken en hydratiserbar gel er dispergert i et hydrofobt løsningsmiddel i kombinasjon med et suspensjonsmiddel og et tensid med eller uten andre eventuelle tilsetningsmidler som ofte blir benyttet i brønnbehandlingsapplikasjoner. På grunn av den iboende dispergering av den hydratiserbare gel i den oljebaserte væske (det vil si fravær av affinitet for hverandre), har slike slurrykonsentrater av fraktureringsvæsker tendens til å eliminere

10 problemer med klumping og for tidlig gelering og tenderer til å optimalisere initiell dispergering når de tilsettes til vann. Imidlertid er det nylig vært problemer med hydrokarbonbaserte flytende gelkonsentrater fordi enkelte brønnoperatører ikke aksepterer nærvær av slike væsker, så som diesel, selv om hydrokarbonene representerer en relativt liten mengde av den totale fraktureringsgel når det er blandet med vann. Videre er det miljømessige problemer forbundet

15 med rensing og deponering av brønnbehandlende geler inneholdende hydrokarboner. Dessuten øker diesel, tensider, suspensjonsmidler og andre tilsetningsmidler kostnadene av brønnbehandlingsvæsken, for ikke å nevne kostnadene ved transport av slike materialer til og fra brønnstedene. Disse hydrokarbonrelaterte problemer gjelder også prosessen til Constien.

Et annet problem forbundet med noen av de kjente metoder for å hydratisere geler er at

20 geleringsmidlet må deretter bli blandet i oppbevaringstanker i et betydelig tidsrom for at hydratisering av geleringsmidlet skal skje, spesielt i bruk av vannbaserte fraktureringsvæsker inkludert et gelert og kryssbundet polysakkarid geleringsmiddel.

I henhold til det som er nevnt ovenfor er det et behov for "på forespørsel" prosess for å eliminere de miljømessige problemer og innvendinger relatert til hydrokarbonbaserte konsentrater samt

25 tilveiebringe mer effektive metoder med hvilke behandlingsvæsker ikke trenger anvende hydrokarbonbaserte konsentrater så som LGCer for å tilberede behandlingsvæsker.

US patent nr. 5 190 374, bevilget til Harms et al, og som innehas av innehaver av foreliggende oppfinnelse, beskriver fremgangsmåter og apparater for hovedsakelig kontinuerlig å produsere en fraktureringsgel uten bruk av hydrokarboner eller suspensjonsmidler, ved å tilføre den tørre

30 polymer til en aksialstrømmende blander som benytter høy blandeenergi for å fukte polymeren under dens første kontakt med vann. Etter initiell blanding kan ytterligere vann bli tilsatt blanderen for derved å øke volumet av vann/ polymer slurryen som dannes. Ifølge Harms blir en forutbestemt mengde av hydratiserbar polymer i hovedsakelig partikulær form innført i polymer- eller faststoffinntak til en vannsprayblander. En strøm av vann blir tilveiebrakt til vanninnløpet av

35 blanderen og vannet og polymeren blir blandet i blanderen under dannelse av en vann/ polymer

blanding før denne forlater blanderen. Blanderen blir fortrinnsvis montert inntil øvre del av en blandetank eller primærtank, og en omrører kan være tilveiebrakt i blandetanken for ytterligere å agitere og blande slurryen. Slurryen kan bli overført fra blandetanken til en oppbevaringstank eller sekundærtank hvorfra den blir matet videre til fraktureringsprosessen. En innretning for påføring
5 av høy skjærkraft kan være anordnet i oppbevaringstanken. En pumpe kan bli benyttet for å overføre slurry fra blandetanken til oppbevaringstanken.

Til tross for at Harms beskriver et online system som kan bli benyttet med ubehandlede og behandlede polymerer er det i praksis problemer med Harms sitt blandesystem. For eksempel vil pulveret samle seg i små hauger inne i blanderen, klebe seg til veggene i blanderen og bygges opp
10 og eventuelt stoppe til strømmingen gjennom blanderen. Den sekvensielle åpning av åpninger for vann i sett av seks åpninger fukter pulveret utilstrekkelig og med lave rater og tillater også at ikke fuktet pulver kan passere gjennom. Et annet problem oppstår ved innelukkning av luft i fluidet som blandes i blanderen og som svekker pumpens evne til på fullgod måte å pumpe blandingen fra blanderen. Nok et problem er dannelse av ytterligere utslipp (materiale) fra pumpen inn i
15 oppbevaringstanken. Den innelukkede luft forutsetter bruk av utluftende kjemikalier sammen med systemet. Et annet problem er mangel på en kontrollert strømningsbane og derfor varierende hydratiseringstid inn i oppbevaringstanken, det vil si at slurryen som blir hydratisert kan danne uforutsigbare strømningskanaler gjennom tanken som bevirker ikke-uniform oppholdstid for deler av slurryen i tanken. Et annet problem er en lang forsinkelsestid på (5-10
20 minutter) forbundet med endring i viskositet av gelen som mates ut fra oppbevaringstanken, det vil si den eneste måten for å endre viskositeten til gelen er å endre forholdet mellom pulvermengde og vannmengde ved blanderen, og derfor må fluidet med endret viskositet fortrenge all væske og gel mellom blanderen og utløpet av oppbevaringstanken før viskositeten blir endret ved utløpet fra oppbevaringstanken.

25 Et apparat og en fremgangsmåte for kontinuerlig hydratisering av en partikulær polymer og fremstilling av en gel for brønnbehandling er beskrevet i US patent nr. 5 382 411 til Allen. I henhold til Allen benyttes en blander for å spraye polymeren med vann ved en hovedsakelig konstant vannhastighet og et jevnt sprayemønster ved forskjellige rater av vann. En sentrifugalspreder mottar blandingen og omdanner passivt bevegelsen av blandingen og separerer
30 derved luft fra blandingen.

US patent nr. 5026 168 omhandler et blandesystem spesielt utformet med tanke på å blande tunge, høyviskøse fraktureringsgeler. Oppslemmingen blir blandet i en rund tank med en langsamt roterende omrører. Ren fraktureringsvæske, typisk gelet, blir innført med nedover rettet bevegelse i sentrum av en toroid formet blandesone. I tillegg innføres tørt proppemiddel
35 som blandes med væsken og danner en oppslemming.

DE 4217 373 beskriver en anordning for tillaging av blandinger/suspensjoner med partikulært materiale, som for eksempel sement, og vann. Blandeinnretningen er en lukket beholder hvor fluidet er trykksatt før det kommer inn i beholderen. Det partikulære materialet og fluidet blandes og den resulterende blandingen fjernes kontinuerlig fra innretningen ved hjelp av en pumpe.

- 5 US patent nr. 4845 192 beskriver en fremgangsmåte for å hydratisere partikler av vannløselige polymergeler hvor vann og partikulært materiale tilsettes en blandeenhet med en agitator som har roterende blader. Blandingen forlater enheten via et utløp og over til en oppbevaringstank før videre bruk.

Kort om oppfinnelsen

- 10 Foreliggende oppfinnelsen angår i henhold til et første aspekt et apparat som angitt i patentkrav 1. I henhold til et annet aspekt angår oppfinnelsen en fremgangsmåte som angitt i patentkrav 12. Foretrukne utførelseformer fremgår av de uselvstendige patentkrav.

Kort omtale av tegningene

- 15 De vedlagte tegninger er tatt inn i og utgjør en del av foreliggende beskrivelse for å illustrere flere eksempler på foreliggende oppfinnelse. Disse tegninger sammen med beskrivelsen tjener til å forklare prinsippene ved oppfinnelsen. Tegningene er kun for å illustrere foretrukne og alternative eksempler av hvordan oppfinnelsen kan gjøres og benyttes og skal ikke tolkes begrensende for oppfinnelsens ramme. De forskjellige fordeler og trekk ved foreliggende oppfinnelse vil være åpenbare fra en betraktning av tegningene, hvor:

- 20 Figur 1 viser et sidesnitt av en konvensjonell eduktor (strålepumpe) som benyttes for å blande og hydratisere en gel i avstand fra en brønn,
 Figur 2a viser et ortogonalt riss av en utførelsesform av systemet,
 Figur 2b viser en vertikalprojeksjon av en utførelsesform av systemet med "cutaway"
 Figur 3 viser en forstørret skjematisk sidesnitt av en utførelsesform av et delvis komplettert system
 25 i samsvar med foreliggende oppfinnelse som inkluderer en sentrifugalpumpe,
 Figur 4 er et grafisk plott av tid i minutter mot prosent hydratisering for en gel type hydratisert ved bruk av forskjellige blandere,
 Figur 5 er et grafisk plot av tid, målt i minutter mot prosent hydratisering for multiple geler, og
 Figur 6 viser et flytdiagram av en utførelsesform av en fremgangsmåte for frakturering av en
 30 underjordisk formasjon i henhold til prinsippene for foreliggende oppfinnelse.

Beskrivelse av foretrukne utførelsesformer

Foreliggende oppfinnelse er nyttig til å produsere en gel/ væske blanding for bruk ved frakturering av en underjordisk formasjon mens man unngår å få dannet gelbatter og fiskeøyne. I henhold til den kjente teknikk, siden geler har en fast hydratiseringsrate ved en gitt temperatur, var gelene ikke i stand til å bli godt blandet uten bruk av materialer som forsinket raten av gelhydratisering for å gi partikkeldispersjonen av gel tilstrekkelig tid og for å hindre dannelse av gelbatter eller fiskeøyne. Som nevnt ovenfor inkluderer slike materialer tensider, suspensjonsmidler, flytende gelkonsentrater og belegg som forsinket hydratisering. Ved foreliggende oppfinnelse er det mulig å benytte et ikke belagt (ikke overflatebehandlet) partikulært geleringsmiddel for å danne en gel/ væske blanding. Dette gir enklere og mindre kostbar prosess og materialene er selv også billigere på grunn av at rå geleringsmidler er mindre kostbare enn belagte eller behandlede materialer.

Foreliggende oppfinnelse er beskrevet ved henvisning til tegningene som viser ett eller flere eksempler på hvordan oppfinnelsen kan bli utført og benyttet. I disse figurer er samme henvisningstall brukt i flere figurer om detaljer som viser like eller korresponderende deler.

Det vises først til figur 1 som viser et sidesnitt av en konvensjonell eduktor i henhold til kjent teknikk for å blande og hydratisere gelpulvere med en basisvæske i avstand fra en brønn. Eduktorer av den kjente teknikk for å blande og hydratisere geler omfatter en strålepumpe uten bevegelige deler og benytter fluid i bevegelse til å frembringe lavt trykk. De fire hoveddeler av eduktoren benyttet til på konvensjonell måte å blande en gel er en stråledyse 110, en spreder 120, en sugeport 130 og et blandekammer 140. En trykksatt fluidstrøm blir konvertert fra trykkenergi til høy hastighet når væsken kommer inn i dysen. Den oppnådde høyhastighets jetstrøm frembringer et sterkt sug i blandekammeret 140 av eduktoren 100 og bevirker et partikulært gelpulver 170 å bli trukket gjennom en sugeport 130 inn i blandekammeret 140. En gelpulverbeholder 190 er posisjonert for å tilføre gelpulver 170 til eduktoren 100. Et skifte i moment finner sted når pulveret krysser med basisvæsken 160 som strømmer forbi. Den dynamiske turbulens mellom de to komponenter frembringer en homogent blandet strøm av basisvæske som strømmer med en hastighet mellom den av den høyhastighets basisvæsken og sugehastigheter gjennom en hals med konstant diameter hvor blandingen blir fullført og den resulterende blanding matet ut gjennom utløpsport 180. Diffuseren eller sprederen 120 er formet slik at den reduserer hastigheten til væsken gradvis og omdanner hastighetsenergi tilbake til trykk idet fluidet mates ut gjennom utløpsport 180.

Blandeeffektiviteten til eduktoren 100 avhenger av strømningsraten til den vandige basisvæsken 160 og av mengden av gelpulver som tilveiebringes til sugeporten 130. Således må eduktoren 100 ifølge kjent teknikk opprettholde en konstant strømningsrate for å oppnå optimal

blandeeffektivitet. Hvis raten til basisfluidet eller gelpulveret blir variert, fører dette til redusert blandeeffektivitet. En person med vanlig fagkunnskap på området vil innse at en dyse konfigurert for en optimal strømningsrate på 760 liter/ min. vil ikke blande optimalt ved en strømningsrate på 1140 liter/ min eller 380 liter/min. Denne reduksjon i blandeeffektivitet oppstår fordi

5 skjæreenergien som benyttes til å blande gelpulveret og basisvæsken vil variere som en funksjon av basisvæskens strømningsrate og gelpulverets tilførselsrate. Derfor kan ikke eduktorer så som eduktor 100 bli benyttet til å blande og hydratisere geler på forespørsel ved et brønnsted. I stedet har andre fremgangsmåter blitt utviklet for å blande og hydratisere gel/ væske som muliggjør slike endringer fortløpende. Slike metoder medfører bruk av flytende gelkonsentrater for å dispergere

10 gelpartikler i en blandetank.

Figurene 2A og 2B viser en utførelsesform av et system 200 i henhold til prinsippene ved foreliggende oppfinnelse. Systemet 200 inkluderer en gelpulvertilførsel 240 koplet til en blander 250. En basisvæske 235, så som vann, blir tilført blanderen 250 gjennom fluidinnløpet 230 og den blendede gel 25 blir ført gjennom utløpet 270.

15 Blanderen 250 inkluderer et hus 210 med et indre kammer 220. Blanderen 250 blir tilført kraft fra en kraftkilde 255 så som en motor. Blanderen 250 blir tilført den pulverformede gel 245 med gelpulvertilførsel 240 gjennom pulverinnløp 242. Blanderen 250 skaper et sug når den benyttes og trekker den pulverformede gel 245 gjennom innløp 242 og inn i blandekammeret 220. En basisvæske 235 blir tilført blanderen 250 gjennom et innløp 230 for basisvæske. Basisvæsken kan

20 bestå av forskjellige væsker, men er fortrinnsvis vannbasert. Blanderen benytter en rotor 215 som roterer om et nav 260 som spinner på en akse så som i en sentrifugalpumpe og danner en sentrifugalbevegelse i gelpulveret og basisvæsken. Blanderen 250 blander effektivt den pulverformede gel 245 og basisvæsken 235 under dannelse av en hydratisert gel/ væske blanding 265 som blir ført fra blanderen gjennom utløpet 270. Den resulterende gel/ væske blanding

25 kan bli ytterligere behandlet om så ønskes, så som ved bruk av diffusorer, separatorer, hydratiseringstanker og lignende.

Energien for å blande den pulverformede gel og basisvæsken blir tilveiebrakt av bevegelsesenergien av de bevegelige deler av blanderen som kommer i kontakt med og beveger gelpulveret og basisvæsken under dannelse av en virvelstrøm. Til forskjell fra eduktorer ifølge

30 kjent teknikk, blir ikke blandeenergien tilført gjennom endring i væskehastighet og trykk. Således muliggjør foreliggende system fordelaktig større fortløpende variasjoner i strømningsrate av basisvæsken og den pulverformede gel eller variasjoner på forespørsel. Det er åpenbart grenser for det område av rater ved hvilke en røreblender effektivt kan operere. Ved en gitt strømningsrate blir sentrifugalenergien i blanderen overveldende. Når en brønn blir vedlikeholdt

35 med en gel er det vanlig å plassere den hydratiserte gel i brønnen ved sterkt varierende rater. For

eksempel kan en høy strømningsrate av ca. 7950 l/ minutt være påkrevd initielt. Så snart operasjonen er i fullgang eller nær fullført, kan den hensiktsmessige rate avta, ofte betydelig, til omtrent 320 l/ minutt. Foreliggende oppfinnelse vil tillate produksjon av hydratisert gel over et bredt område av rater etter behov. Dette vil redusere eller eliminere behovet for å fylle store lagertanker med hydratisert gel forut for starten på å vedlikeholde brønnen. Pulvertilførselen 240 kan være av en hvilken som helst type som er i stand til å mate ut en nøyaktig dosert mengde gel over tid. En doserbar mater 247 kan være tilveiebrakt og kan inkludere en stor kondisjoneringsspiral eller omrører for å "kondisjonere" eller røre om det tørre pulver og bryte opp eventuelle klumper av gelpulver som måtte være klebet sammen. Den doserbare mater 247 er en Acrison® mater som er kommersielt tilgjengelig. Imidlertid kan foreliggende oppfinnelse benytte andre doserbare matere som er i stand til å tilveiebringe og mate ut en nøyaktig dosert mengde av tørt pulver.

Systemet 200 kan også inkludere en prefukter 280 koblet mellom blanderen 250 og pulvertilførsel 240 for ytterligere å forhindre klumping av gelpulveret. Prefukteren 280 inkluderer et innløp 282 for å innføre prefuktende væske i prefukteren og står i væskeforbindelse med pulverinnløpet 242 og det indre kammer 220 av blanderen 250. Prefukteren 280 både fukter pulveret og tilveiebringer en ytterligere kilde til væske for å fukte rører og andre deler av blanderen. Ved en utførelsesform kan prefukteren 280 inkludere en dyse som er konfigurert til å produsere en virvelstrøm og kaotisk turbulent strømnings i væsken som benyttes til prefukting og derved fukte i det minste en del av den ene eller flere rotor med den prefuktende væske. En beskrivelse av utførelsesformen av prefukteren 280 er gitt i US patent nr. 5 664 733.

Et annet eksempel på en prefukter 280 som kan bli benyttet til på forhånd å fukte i det minste en del av den ene eller de flere rotor, er en radiell preblander eller "ringformet strålepumpe". Når det benyttes en radiell preblander som prefukter 280 danner trykksatt væske en virvelstrøm. Pulverformet materiale blir innført i øyet av virvelstrømmen av prefuktende væske. Idet gelpartiklene blir absorbert inn i den prefuktende væske, beveger sentrifugalkraften blandingen utover fra virvelstrømmens akse og sørger for avstand mellom gelpartiklene etter hvert som fukteprosessen forløper. Spredning av gelpartiklene forårsaket av sentrifugalvirkningen av den radielle preblander reduserer partikkeladhesjon og klumping. Således virker ikke den radielle preblander bare til på forhånd å fukte i det minste en del av den ene eller de flere rotor med den prefuktende væske, den virker også til å fukte gelpartiklene før de kommer i kontakt med basisvæsken og en eller flere rotor i blanderen 250. Det vil bli forstått av fagfolk på området at forskjellige prefuktende innretninger effektivt kan bli benyttet.

Som nevnt ovenfor kan den prefuktende væske og basisvæsken være valgt fra et antall av væsker for å bli blandet med gelpulveret, så som kondensat, diesel eller vann så som ferskvann, umettet

saltvann, laker, sjøvann eller mettet sjøvann. En ventil (ikke vist) kan være operativt forbundet med prefukteren 280 for å regulere raten av prefuktende væske som går inn på prefukteren.

Tilsvarende ventil (ikke vist) kan være operativt forbundet med innløpet 230 for å regulere raten av basisvæske som går inn i indre kammer 220. Videre kan en tilbakekoplet sensor og en

5 datamaskin bli benyttet til å regulere ventilen til prefukteren 280 og ventilen til innløpet 230.

Tilsvarende kan en tilbakekoplingsmekanisme ble benyttet til å regulere blanderen 240.

Figurene 3A og B viser detaljer av en typisk sentrifugalpumpe benyttet som blander 250 med et innløp 230 for basisvæske som leder til indre kammer 220. Rotoren 215 har et nav 260 rundt hvilket et antall rotorblad 218 roterer og derved styrer væskestrømmen. Gelpulver 245 blir innført

10 i indre kammer 220 gjennom pulverinnløp 242. Gelen kan enten være som et tørt pulver eller et pulver som er prefuktet. Til tross for at rotasjonen av rotoren danner et mildt sug i pulverinnløpet 242, blir pulveret matet til blanderen 250 i hovedsak ved hjelp av gravitasjon. Rotoren 215 blander

gelpulver 245 og basisvæske 235 under dannelse av en gel/ væske blanding 265 eller hydratisert gel uten dannelse av uønskede gelballer. Under bruk etablerer sentrifugalpumpen 250 en

15 væskestrømning gjennom innløpet 230 for basisvæsken inn til rotoren 215 og deretter ut gjennom utløpet 270 for gel/ væske blandingen. I henhold til en foretrukket utførelsesform har

pulverinnløpet 242 en diameter på omtrent 15,2 cm, rotorbladene har en bredde på omtrent 28 cm, innløpet 230 for basisvæsken har en diameter på omtrent 5,1 cm og utløpet 270 for gel/væske blandingen har en diameter på omtrent 12,7 cm og et ringrom på omtrent 3,8 cm.

20 I figur 3B er vist en annen utførelsesform av blanderen. I figur 3A er innløpet 230 for basisvæsken i det minste delvis omgitt av og strekker seg gjennom utløpet 270 for den hydratiserte gel. I figur

3B er innløpet 230 for basisvæsken festet til en blander 250 på et sted atskilt fra festepunktet for utløpet 270 til den hydratiserte gel, hvilket muliggjør en større gjennomstrømning av basisvæske

25 og gelblanding. I en foretrukket utførelsesform har innløpet 230 for basisvæsken en diameter på omtrent 15,2 cm, utløpet 270 for den hydratiserte gel en diameter på omtrent 30,5 cm,

rotorbladene 218 en bredde på omtrent 56 cm, og pulverinnløpet har en diameter på omtrent 30,5 cm mens sugediameteren er omtrent 35,6 cm. Figurene 3A og 3B illustrerer to mulige arrangementer for innløpet 230 og utløpet 270, men andre konfigurasjoner kan bli benyttet.

Blanderens innløps- og utløpsstørrelser kan bli valgt etter behovet ved den spesifikke bruk.

30 Blanderen 250 er fortrinnsvis en sentrifugalpumpe montert vertikalt med pumpeinnløpet vendende oppover. Det normale vanninntak på pumpen blir benyttet som pulverinnløp 242.

Eventuelt kan et andre innløp 232 for basisvæske bli benyttet. Fortrinnsvis er innløpene 230 og 232 og utløpet 270 for blandingen festet til blanderen med en skrå vinkel som vist.

Mens den forbedrede fremgangsmåte og det forbedrede system ifølge foreliggende oppfinnelse kan bli benyttet i en rekke av underjordiske brønnbehandlinger så som frakturering av underjordiske formasjoner, dannelse av gruspakninger i underjordiske formasjoner, danne midlertidige blokkeringer i brønner og som kompletteringsvæsker og borevæsker, er de spesielt nyttige i fraktureringsvæsker for å danne en eller flere sprekker i en underjordisk formasjon. Når gelen benyttes som en fraktureringsvæske blir en kryssbinder og et proppemateriale generelt blandet med gel/ væske blandingen for å danne en gel behandlingsvæske. For eksempel kan gel/ væske blanding strømme fra blanderen 250 til en oppbevaringstank til en fraktureringsblander som blander sand, proppemiddel og kryssbinder med gel/ væske blanding. Andre tilsetningsmidler, flytende eller faste kan bli benyttet til å behandle gelblandingen etter ønske. Gel/ væske blandingen kan bli ført ut og inn i en tank og der bli agitert før eller etter å bli kombinert med andre slike brønnbehandlingsmaterialer. Slike nedstrøms innretninger er kjent innen faget og vil ikke bli beskrevet i detalj her.

Systemet 200 kan også inkludere en temperaturmåler for å kontrollere temperaturen i basisvæsken. Temperaturmåleren kan bli regulert i en tilbakekoplingsmekanisme. Siden raten av hydratisering blir påvirket av temperatur kan økende temperatur bli benyttet for å øke raten av hydratisering av geleringsmidlet. Viktigere er det at temperaturmåleren kan bli benyttet til å regulere temperaturen spesifikt til brønnen. For eksempel må noen brønner bli behandlet med fraktureringsvæske som er blitt varmet opp til 49 °C og andre med fraktureringsvæsker som er satt til en temperatur på 16 °C. Normalt er gel/ væske temperaturen blitt regulert senere i prosessen av å fremstille en brønnbehandlingsvæske i en blandetank ved å kjøre behandlingsvæsken gjennom en kjele for å varme behandlingsvæsken til en temperatur som er ønskelig i den aktuelle brønnen. Hydratiseringsraten blir påvirket av temperaturen i basisvæsken. Høyere temperatur fører til raskere hydratisering. Det kan være ønskelig å benytte varmere basisvæske opp til nær kokepunktet for å øke hydratiseringsraten av gelen i blanderen. Siden den primære strømming av basisvæske typisk ikke blir ført gjennom blanderen, kan økning av hydratiseringsraten ved blanderen øke hydratiseringsraten av et totalt hydratiseringssystem, så som for eksempel det som er vist i figur 6.

Figur 4 viser et plott av tid målt i minutter mot prosent hydratisering av et gelpulver i en 16 °C væske. Plottet sammenligner hydratisering av en gel med en standard Waring blander i et laboratorium og systemet ifølge foreliggende oppfinnelse. Figur 4 viser at laboratorieblanderen hydratiserte raskere enn blandesystemet ifølge foreliggende oppfinnelse. Disse resultater indikerer at systemet ifølge foreliggende oppfinnelse ikke øker hydratiseringsraten av gelen. Således blandes ved foreliggende oppfinnelse gelen effektivt med basisvæsken slik at det derved unngås dannelse av gelballer og fiskeøyne, men systemet ifølge foreliggende oppfinnelse øker ikke

hydratiseringsraten eller den rate med hvilken gelen blir intimt bundet til eller absorberer den vandige basisvæske. Foreliggende oppfinnelse øker som nevnt over bare raten av blanding eller av dispergeringen av gelpartiklene med basisvæsken slik at dannelse av gelballe og fiskeøyne blir unngått.

- 5 Raten av hydratisering av gelen er likevel en kritisk faktor, spesielt i applikasjoner med kontinuerlig blanding hvor den nødvendige hydratisering og ledsagende viskositetsøkning må finne sted innen et relativt kort tidsrom svarende til oppholdstiden for væskene under den kontinuerlige blandedprosedyre. Ved slike applikasjoner er hydratisering en prosess med hvilken hydratiserbare geler absorberer væske eller blir intimt bundet til en væske. så snart gelen er blitt dispergert, vil dens
- 10 evne til å absorbere væske bestemme hydratiseringsraten. Flere faktorer vil bestemme hvor raskt gelen vil hydratisere eller utvikle viskositet, så som pH, nivå av mekanisk skjærkraft i den tidlige blandefase samt konsentrasjon og type av salt i løsningen. Endelig er graden av retardasjon av hydratiseringsraten en funksjon av polymerkonsentrasjon. Disse prinsipper for å retardere hydratiseringsrate kan bli benyttet i forbindelse med foreliggende oppfinnelse for å retardere
- 15 hydratiseringsraten av en raskt hydratiserende gel. Det er forutsatt at slike materialer kan bli tilsatt til gel/ væske blandingen for å retardere hydratisering så vel som bruk av prinsippene av foreliggende oppfinnelse til grundig å blande gelen forut for hydratisering. Omvendt tilveiebringer foreliggende oppfinnelse også et system og en fremgangsmåte for å blande eller dispergere gelpartikler, for å blande gelen grundig uten bruk av pH-regulatorer, salter eller ytterligere
- 20 mekaniske skjærkrefter som påføres systemet 200.

- Figur 5 viser et plott av tid, målt i minutter, mot prosent hydratisering for tre geler i 16 °C vann. Geleringsmidlene, Halliburton Macro Polymer (varemerke) eller HMP og WG-35 og WG-22 geler, har forskjellige hydratiseringsrater. Disse geler er kun eksempler. WG gelene er gradert etter den viskositet de er laget for å frembringe. WG-22 produserer 0,021 Pascal sek i løpet av tre minutter
- 25 ved 24 °C. Under tilsvarende betingelser produserer WG-35 en viskositet på 0,035 Pascal sek. Disse produkter er begge guarer og tilsvarende produkter er kommersielt tilgjengelige fra Rhodia Inc., Economy (varemerke) Polymers og Benchmark Technologies, Inc. Til sammenligning ble HMP 80 % hydratisert i løpet av et halvt minutt og 95 % hydratisert i løpet av ett minutt. WG-35 gelen og WG-22 gelen ble begge 80 % hydratisert i løpet av ti minutter. Foreliggende oppfinnelse
- 30 tilveiebringer fordelaktig en fremgangsmåte og et system for å hydratisere geler, selv tradisjonelle, vanskelig blandbare geler som har en rask hydratiseringsrate. Så snart partiklene danner gelballe eller fiskeøyne er grundig blanding av gel/ væske blandingen vanskelig å oppnå. Slike raskt hydratiserende geler blir fortsatt benyttet ved fraktureringsprosesser ved å benytte materialer som bidrar til å forsinke hydratisering inntil dispergering av gelpartiklene har inntrådt. Disse
- 35 hydratiseringsforsinkende teknikker inkluderer som nevnt ovenfor materialer så som tensider,

flytende gelkonsentrater og belagte (overflatebehandlede) geler. Foreliggende oppfinnelse tilveiebringer en enklere og mindre kostbar prosess og materialene i seg selv er også billigere fordi rå geleringsmidler er mindre kostbare enn belagte eller behandlede materialer. Foreliggende oppfinnelse "på forespørsel" system kan bli benyttet i oljefeltapplikasjoner og eliminerer bruk av konvensjonelle blandetanker med store volumer og tilfredsstillende likevel kravene til væskestrømmer for brønnbehandlingsprosesser, så som store hydrauliske fraktureringsarbeider under den aktuelle frakturering av den underjordiske formasjon.

Figur 6 illustrerer en utførelsesform av en fremgangsmåte for frakturering av en underjordisk formasjon i henhold til prinsippene av foreliggende oppfinnelse. En basisvæske 610 og et pulverformet gel 630 blir styrt inn i systemet 620 av foreliggende oppfinnelse. Som nevnt ovenfor inkluderer systemet 620 ifølge oppfinnelsen et indre kammer av et hus som har flere rotorer som strekker seg fra og roterer om en akse, og bevirker derved en sentrifugalbevegelse av basisvæsken og gelen og blander og hydratiserer derved gelen.

Ved bruk av vannbaserte fraktureringsvæsker inkludert langsomt hydratiserende gel, kan geleringsmidlet bli ført ut fra den indre kammer gjennom et utløp fra huset inn i en oppbevaringstank 640 hvor blandingen av gel/ væske blir ytterligere blandet for at hydratisering av geleringsmidlet skal forekomme. Under fraktureringsprosessen som blir utført i en brønn, blir den hydratiserte fraktureringsvæske deretter pumpet ut av oppbevaringstanker 640 inn i en blandetank 650. Deretter kan en rekke tilsetningsmidler 660 bli tilsatt til tanken 650 med gel/ væske blandingen under dannelse av en flytende behandlingsvæske.

Slike tilsetningsmidler inkluderer pH-regulerende forbindelser, buffere, dispergeringsmidler, tensider for å hindre dannelse av emulsjoner mellom den behandlingsvæske som er dannet og med gel/ væske blandingen og fluider fra den underjordiske formasjon, baktericider og lignende. Alternativt, i tilfellet av raskt hydratiserende geler, blir gel/ væske blandingen straks pumpet til blandetank 650 siden det ikke er noe behov for ytterligere å hydratisere en raskt hydratiserende gel. Behandlingsvæsken blir så pumpet ned i brønnen 670 til formasjonen som blir frakturert med en rate og et trykk tilstrekkelig til å danne minst en sprekk i formasjonen. Det skal forstås at fagfolk på området at gel/ væske blandingen kan også bli blandet med proppemidler, kryssbindere og andre materialer av en behandlingsvæske mens denne blir pumpet ned i brønnen (i flukten) i stedet for i en blandetank. og pumpes ned i brønnen 670 til den formasjon som skal fraktureres. En bryteraktivator kan så bli blandet med gel behandlingsvæsken i brønnen. Ved en utførelsesform av foreliggende oppfinnelse inkluderer en fremgangsmåte for å separere hydrokarboner fra en underjordisk formasjon dessuten det trinn å la hydrokarboner strømme tilbake fra formasjonen for å komplettere fraktureringsprosessen.

Når det dreier seg om langsomt hydratiserende geler må gelen holdt i oppbevaringstank 640 for ytterligere hydratisering, må avhendes når det er rask nedstengning forårsaket av reservoarsvikt eller mekanisk feil/ utstyrsfeil, hvilket kan innebære å kvitte seg med mange tusen liter gel/ væske blanding, hvilket ikke bare er kostbart, men også miljømessig skadelig. Det er derfor åpenbart at

5 foreliggende oppfinnelse so ofte ikke krever bruk av dispergeringsmidler for gelen eller diesel, er en forbedring i forhold til kjente systemer. Videre tilveiebringer foreliggende oppfinnelse en fremgangsmåte for å blande geleringsmiddel som ikke er rateavhengig og således kan strømningsraten bli endret etter behov ved arbeidsstedet.

Etter omhyggelig vurdering av de spesifikke og eksemplifiserende utførelsesformerer av

10 foreliggende oppfinnelse som her er beskrevet, vil en person med vanlig fagkunnskap på området forstå at det kan gjøres visse endringer, modifikasjoner og substitusjoner uten å fravike oppfinnelsens ramme som er definert av de etterfølgende patentkrav.

Patentkrav

1. Apparat (200) for i hovedsak å hydratisere en partikulær gel (245) for bruk i en underjordisk brønn, omfattende:
 - en blander (250) med et hus (210) som avgrenser et indre kammer (220),
 - 5 et innløp for en basisvæske (230) som er forbundet med huset (210) og er i stand til å lede en basisvæske (235) inn til husets (210) indre kammer (220),
 - et innløp (242) for en partikulær gel til huset (210) som er i stand til å lede en partikulær gel (245) inn til husets indre kammer (220),
 - et utløp (270) forbundet med huset (210) og som er i stand til å lede en hovedsakelig hydratisert
 - 10 gel (265) ut av huset (210), og
 - en rotor (215) inne i huset (210) hvilken rotor har flere rotorblader (218) som strekker seg radielt ut ifra et nav, idet rotorbladene som roterer rundt navet derved danner en sentrifugalstrømning, **karakterisert ved** at basisvæskeinnløpet (230) er anordnet i det minste delvis utløpet (270).
2. Apparat (200) i samsvar med patentkrav 1, **karakterisert ved** at det også omfatter en mater
- 15 (240) for partikulær gel koblet til innløpet (242) for den partikulære gel for å tilføre partikulær gel (245) til apparatet.
3. Apparat (200) i samsvar med patentkrav 2, **karakterisert ved** at materen (240) for partikulær gel videre omfatter et dosert matesystem (247).
4. Apparat (200) i samsvar med patentkrav 1, **karakterisert ved** at blanderen (250) videre
- 20 omfatter en sentrifugalpumpe.
5. Apparat (200) i samsvar med patentkrav 1, **karakterisert ved** at blanderen (250) er i stand til å benytte gravitasjon for å trekke partikulær gel (245) inn i blanderen (250).
6. Apparat (200) i samsvar med patentkrav 1, **karakterisert ved** at videre å omfatte en prefukter (280) koblet til innløpet (242) for den partikulære gel.
- 25 7. Apparat (200) i samsvar med patentkrav 1, **karakterisert ved** at innløpet (242) for den partikulære gel er anordnet over huset (210) under driften av apparatet.
8. Apparat (200) i samsvar med patentkrav 6, **karakterisert ved** at innløpet (242) for den partikulære gel er aksielt innrettet med rotorens nav.
9. Apparat (200) i samsvar med patentkrav 1, **karakterisert ved** at innløpet (230) for basisvæsken
- 30 er tangentielt forbundet med huset (210).
10. Apparat (200) i samsvar med patentkrav 1, **karakterisert ved** at innløpet (230) for basisvæsken er koblet på siden av huset (210).

11. Apparat (200) i samsvar med patentkrav 1, **karakterisert ved** at det også omfatter et annet innløp (230) for basisvæske koblet til huset (210).
12. Fremgangsmåte for hovedsakelig å hydratisere en partikulær gel (245) for å behandle en underjordisk brønn, omfattende trinnene:
- 5 - å rette en basisvæske (235) gjennom et innløp (230) for basisvæske til et indre kammer (220) av en blander (250) som omfatter en rotor 8215), hvilken rotor har flere rotorblader (218) som strekker seg radielt utover fra et nav,
- å rotere rotorbladene (218) rundt navet for derved å danne en sentrifugalstrømning i basisvæsken (235),
- 10 - å mate en mengde partikulær gel (245) inn i blanderen (250),
- å blande den partikulære gel (245) med basisvæsken (235) for derved å danne en hovedsakelig hydratisert gel (265), og
- mate ut den hovedsakelig hydratiserte gel (265) fra blanderen (250) gjennom et utløp (270), **karakterisert ved** at basisfluidinnløpet (230) er anordnet i det minste delvis inne i utløpet (270).
- 15 13. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** også å omfatte det trinn å mate en mengde partikulær gel (245) inn i blanderen (250), idet den partikulære gel blir matet aksielt inn i blanderen (250).
14. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** også å omfatte det trinn å posisjonere blanderen (250) slik at rotoren (215) er hovedsakelig horisontal, idet bladene (218) på
- 20 rotoren roterer om en hovedsakelig vertikal akse.
15. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 14, **karakterisert ved** også å omfatte det trinn å benytte gravitasjon for å trekke den partikulære gel (245) inn i blanderen (250).
16. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** også å omfatte å dosere tilførselen av partikulær gel (245) til blanderen (250).
- 25 17. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** også å omfatte å prefukte den partikulære gel (245).
18. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** også å omfatte å blande minst ett gelbehandlingsmiddel inn i basisvæsken (235).
19. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** også å omfatte å blande
- 30 minst ett gelbehandlingsmiddel inn i den hovedsakelig hydratiserte gel (265).
20. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** også å omfatte å lede den hovedsakelig hydratiserte gel (265) inn i en oppbevaringstank.

21. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** at det som basisvæske (235) benyttes vannbasert væske.
22. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** også å omfatte det trinn å behandle en brønn ved bruk av en hovedsakelig hydratisert gel (265).
- 5 23. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** også å omfatte det trinn å frakturere en brønn ved bruk av den hovedsakelig hydratiserte gel (265).
24. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** at basisvæsken (235) blir ledet inn i blanderen (250) tangentielt.
25. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** at basisvæsken (235) blir
10 ledet inn i blanderen (250) fra mer enn én kilde.
26. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** at den partikulære gel (245) er belagt.
27. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** at den partikulære gel (245) er belagt med et hydratiseringsforsinkende belegg.
- 15 28. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** også å omfatte å tilsette et suspensjonsmiddel.
29. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 19, **karakterisert ved** behandlingsmiddelet omfatter en kryssbinder.
30. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 19, **karakterisert ved** at behandlingsmiddelet
20 omfatter en viskositetsbryter.
31. Fremgangsmåte i samsvar med patentkrav 12, **karakterisert ved** at det som blander (250) benyttes en sentrifugalpumpe.

1/5

Fig. 1.

KJENT TEKNIKK

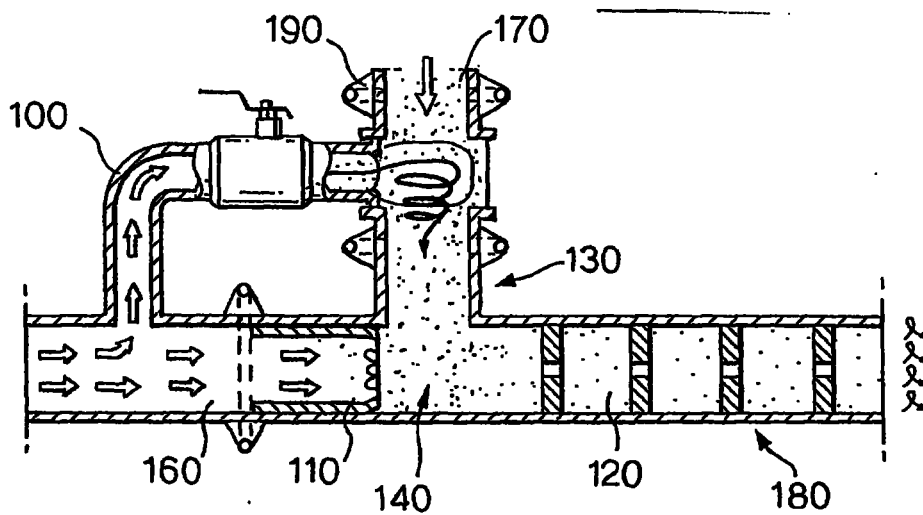
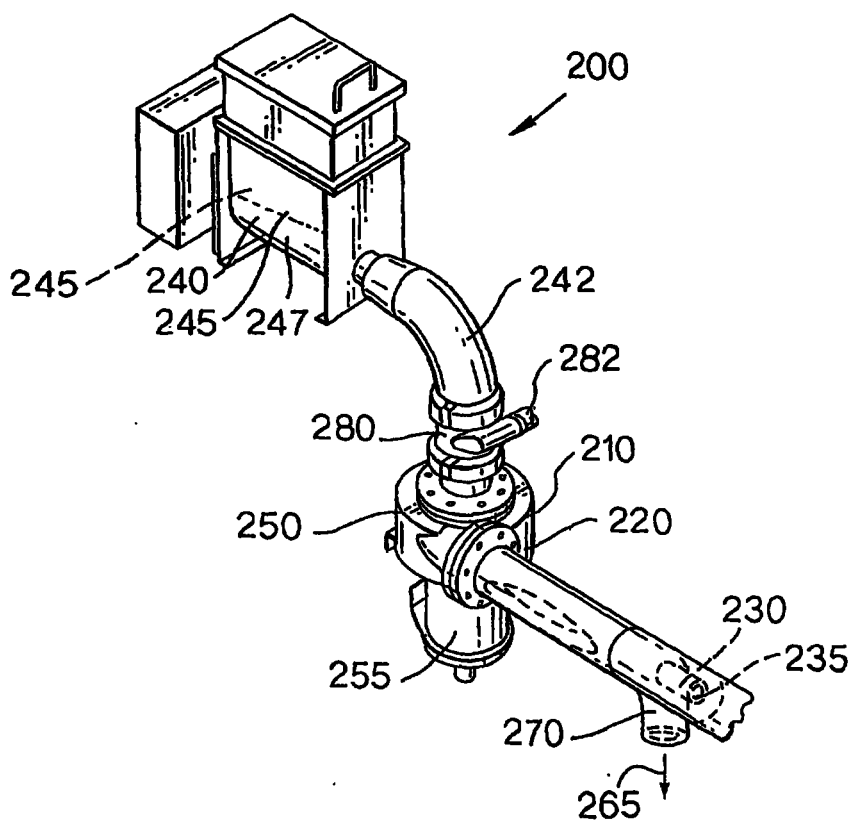
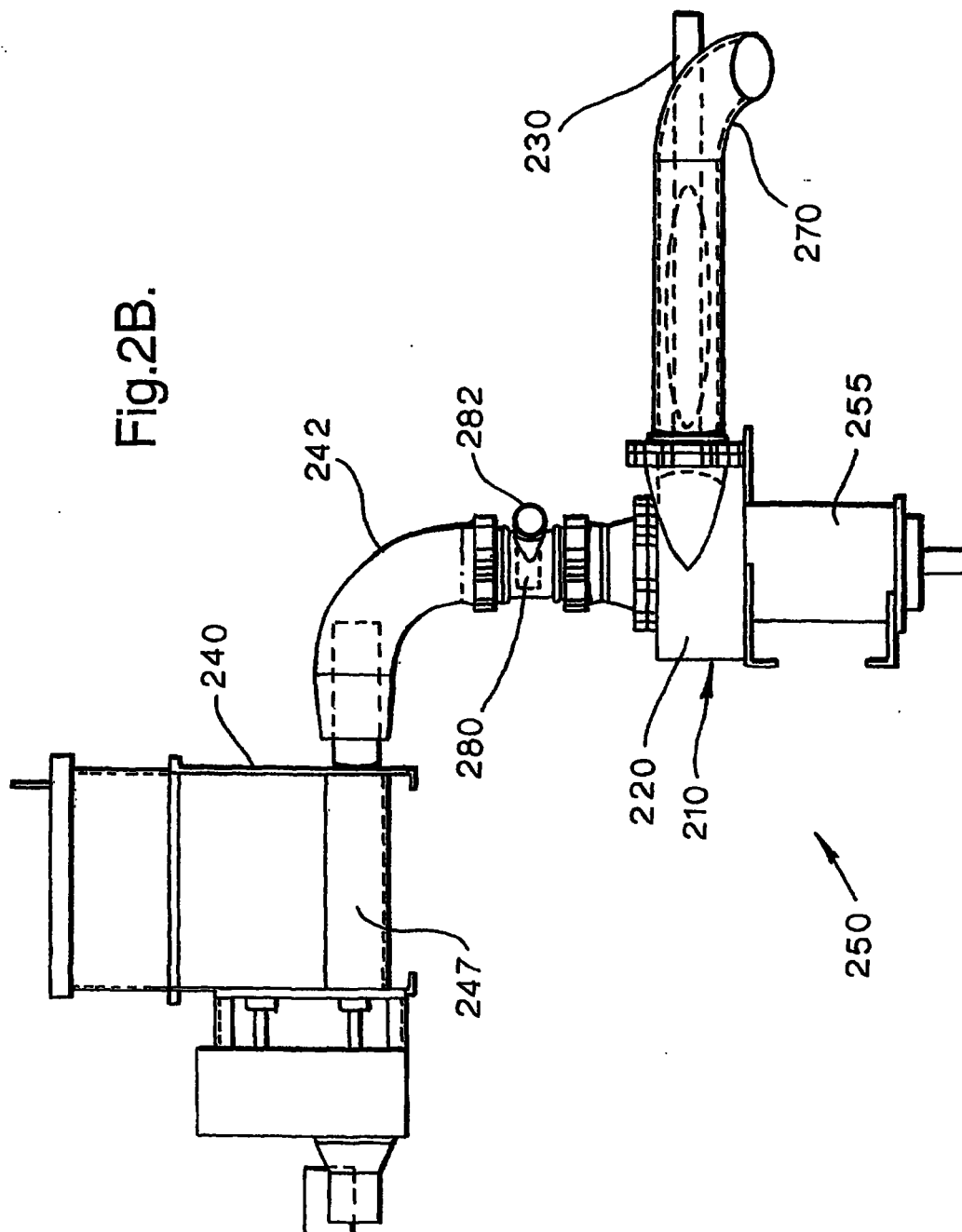


Fig. 2A.



2/5

Fig.2B.



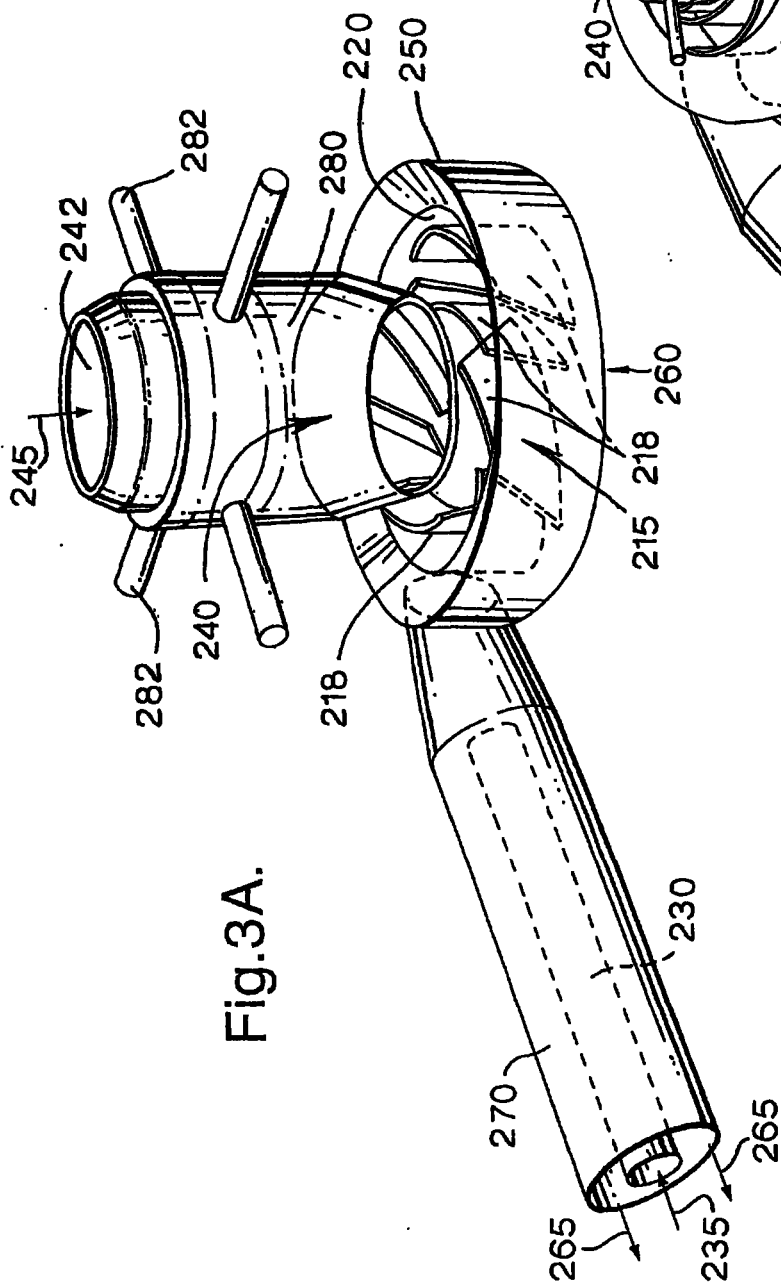


Fig. 3A.

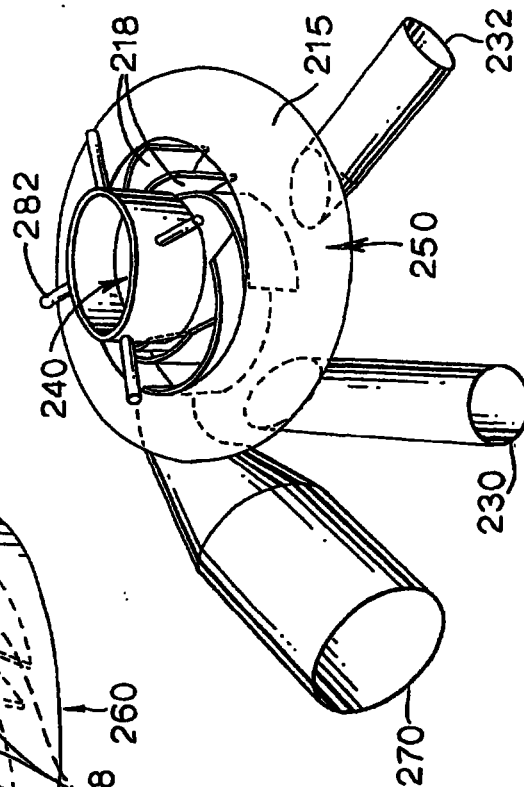
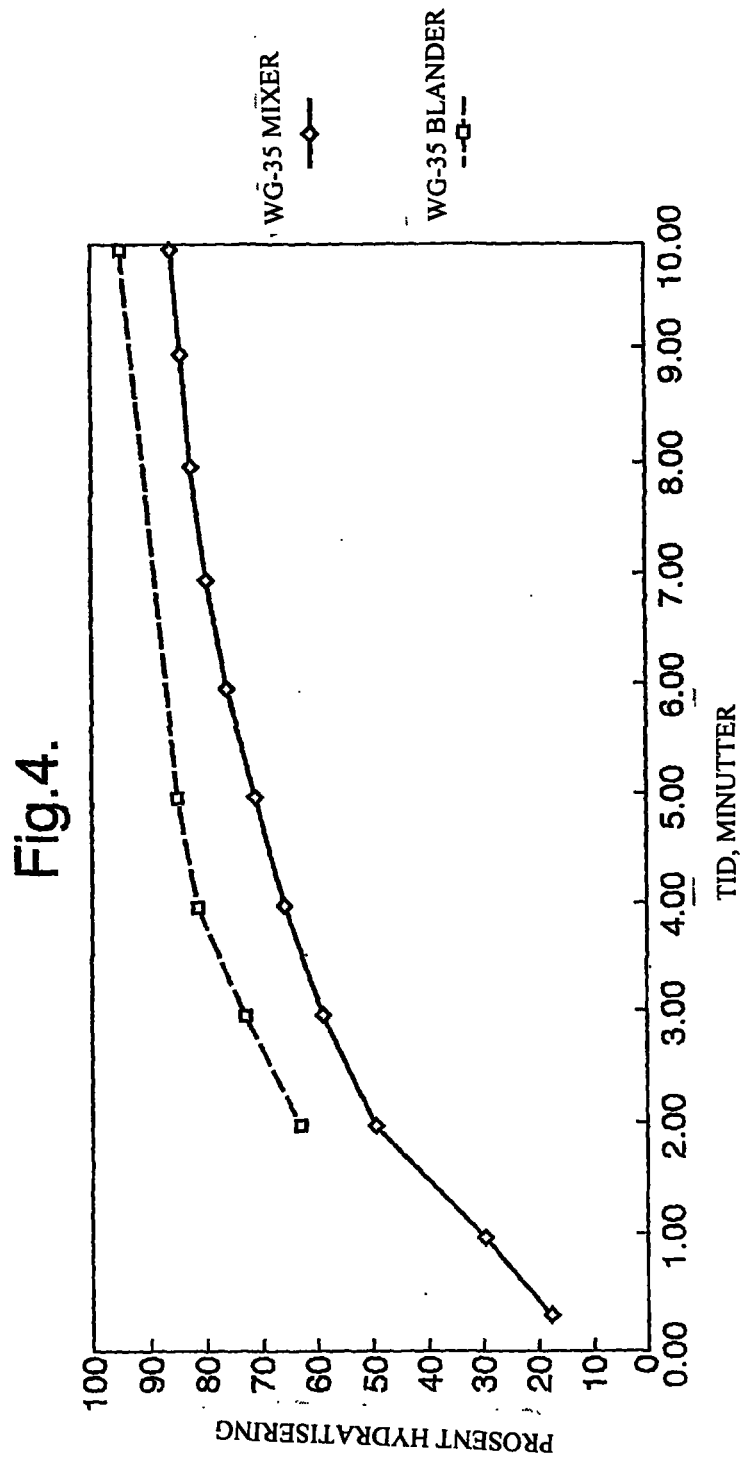


Fig. 3B.

4/5



5/5

Fig.5.

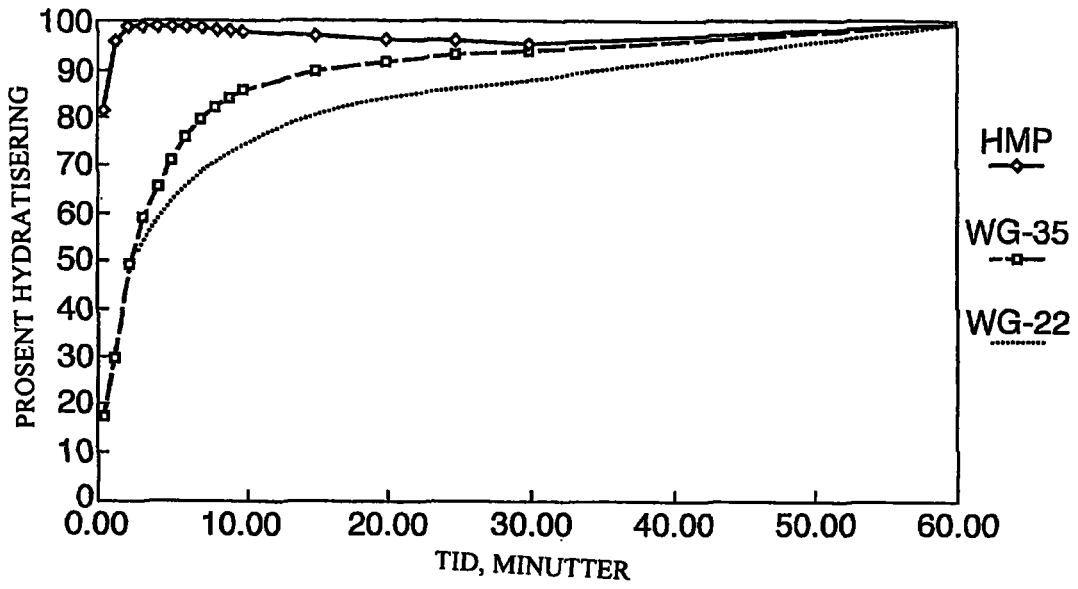


Fig.6.

