

Caracterización de la fracción saturada de petróleos del yacimiento Varadero, mediante cromatografía gaseosa

Characterization of the saturated oil fraction of the Varadero field, by gas chromatography

Alicia Romero Hernández^{a,*}, José Orlando López Quintero^b, Ana Núñez Clemente^a, Norma E. Conde Cano^c Orelvis Delgado Lopez^a.

^{a,*} **Autora principal** (0000-0002-5692-5788). Centro de Investigación del Petróleo, Calle Churrucá No.481 e/Vía Blanca y Washington, Cerro, La Habana, Cuba. alimoy@ceinpet.cupet.cu.

^b **Revisión del artículo y asesoría** (0000-0002-2281-2515) Centro Politécnico del Petróleo, Vía Blanca y Ave de los Mártires, Municipio Regla, La Habana, Cuba. jorlando@cpp.cupet.cu.

^a **Revisión del artículo** (0000-0001-8890-9937). Centro de Investigación del Petróleo, Calle Churrucá No.481 e/Vía Blanca y Washington, Cerro, La Habana, Cuba.

^c **Toma de muestras y análisis químico-físico** (0000-0002-4184-0212). Empresa de Perforación y Extracción de Petróleo del Centro, Finca La Cachurra, Guásimas, Cárdenas, Matanzas, Cuba. nconde@epepc.cupet.cu

^a **Asesoría del artículo** (0000-0003-1537-8578). Centro de Investigación del Petróleo, Calle Churrucá No.481 e/Vía Blanca y Washington, Cerro, La Habana, Cuba.

Recibido: 9 de marzo de 2021;

Aceptado: 14 de julio de 2021;

RESUMEN

El petróleo crudo es una mezcla natural altamente compleja que consiste predominantemente de hidrocarburos [alcanos (parafinas), alquenos (olefinas) y compuestos aromáticos] y otros elementos tales como azufre, nitrógeno y oxígeno. En Cuba se está trabajando en la explotación de nuevos yacimientos en la Franja Petrolera Norte Cubana. El presente trabajo tiene como objetivo caracterizar el crudo desde el punto de la Geoquímica de Reservorios utilizando la técnica de cromatografía gaseosa de alta resolución y el estudio de las propiedades físico – químicas, en muestras de seis pozos de petróleos del sector oeste del yacimiento Varadero. Se obtuvieron las huellas dactilares de los crudos, se construyeron los diagramas de estrellas para establecer las posibilidades de comunicación entre los pozos, a partir de las relaciones entre compuestos. Los principales resultados obtenidos muestran la existencia de la mejor comunicación entre los pozos VW1003 y VW1007 con una diferencia de 1,91%, comportándose de forma diferente el resto de los pozos estudiados. Además, se estudiaron las propiedades físico – químicas de los petróleos, cuyos resultados denotan que se trata de petróleos extrapesados, con altos contenido de azufre y de asfaltenos y. Estas propiedades muestran la semejanza en su calidad comercial con los crudos descubiertos en los otros bloques del yacimiento Varadero, caracterizados por crudos pesados, extrapesados, altamente sulfurados, pertenecientes a la Familia I de crudos cubanos.

Palabras claves: petróleo, yacimiento Varadero, cromatografía gaseosa, comunicación, fracción C15-.

ABSTRACT

Crude oil is a highly complex natural mixture consisting predominantly of hydrocarbons [alkanes (paraffins), alkenes (olefins), and aromatic compounds] and other elements such as sulfur, nitrogen, and oxygen. In Cuba, work is being done on the exploitation of new oilfields deposits in the Northern Cuban Oil Belt. The goal of this paper is to characterize the crude oils from the point of Reservoir Geochemistry, using the high-resolution gas chromatography technique and the study of the physicochemical properties, in samples from six oil wells from the western sector of the Varadero oilfield. The fingerprints of the crude oil were obtained, the star diagrams were constructed to establish the possibilities of communication between the wells, from the ratios between compounds. The main results obtained show the existence of better communication between wells VW1003 and VW1007 with a difference of 1.91%, with the rest of the wells studied behaving differently. In addition, the physicochemical properties of the oils were studied, the results of which show that they are extra-heavy oils, with high content of sulfur and asphaltene and. These properties show the similarity in their commercial quality with the crude oil discovered in the other blocks of the Varadero field, characterized by heavy, extra-heavy, highly sulfurous crude oils, belonging to Family I of Cuban crude oils.

Keywords: oil, Varadero field, gas chromatography, communication, fraction C15-.

INTRODUCCION

En la industria del petróleo los estudios geoquímicos constituyen una herramienta fundamental durante las etapas de la Exploración – Producción, así como también han dado su aporte en los estudios relacionados con el impacto de la industria sobre el medio ambiente.

En el caso de la exploración, desempeñan un importante papel en conjunto con los estudios geológicos y geofísicos. Las investigaciones geoquímicas permiten caracterizar los petróleos, definir su origen, maduración y afectaciones por procesos secundarios. Estos estudios constituyen la base de la aplicación del enfoque de Sistemas Petroleros, difundido de forma universal durante los últimos 30 años de desarrollo de la industria.

Durante la etapa de Producción petrolera son muy utilizados en estudios para determinar continuidades laterales y verticales o discontinuidades en los reservorios, diferenciar la procedencia de los crudos en los casos de explotación simultánea de varios horizontes, etc. (Kaufman R., 1990, Pascual O., et al. 2018).

De este modo, estos métodos contribuyen a hacer más eficiente, tanto la exploración, como la producción de petróleo. Consecuentemente estos estudios ayudan al reducir la probabilidad de perforar pozos petroleros improductivos, lo que a su vez genera beneficios económicos y ecológicos significativos (Oforka N., 2003; Nora K., 2005; Wen Z., 2012; Yaohui X., 2012; Kaufman R., 1987, 1990).

En Cuba se han realizados estudios de geoquímica de reservorios en los yacimientos Pina y Puerto Escondido (López, J.O., et al. 1999, Pascual O., et al. 2018) en la década de los noventa del siglo XX.

En particular los estudios de compartimentación de reservorios, mediante la Geoquímica de Reservorios, permiten definir la continuidad de los mismos, sin tener que recurrir a costosos estudios hidrodinámicos que implican la detención de la producción, con el consecuente impacto económico.

Los estudios de Geoquímica de Reservorios se realizan en dos niveles: Inicialmente se determinan los parámetros físicos – químicos generales, obtenidos en muestras totales, tales como densidad - gravedad API, contenido de azufre, viscosidad, contenido de agua, etc. Posteriormente se realiza la determinación de los parámetros moleculares utilizados para la geoquímica de reservorios, obtenidos a partir de resultados cromatográficos de la fracción C15-, C15+, que son una manera más fina y detallada de correlación ya que estos compuestos conforman las huellas dactilares del crudo (Cañipa, N., et al., 2003).

Los estudios de continuidad se realizan mediante el análisis de la fracción C15- que agrupa los compuestos más ligeros menores de 15 átomos de carbono que proporciona la mayor información sobre el crudo (Kaufman R.L., 1987, 1990). Esta fracción es la más sensible a los efectos de lavado por agua "waterwashing", biodegradación y fraccionamiento por evaporación (Thompson K.F.M., 1983. Magnier C., 1999 y Mango F. D., 1990), efectos que modifican la composición de los crudos.

En Cuba se está trabajando en la explotación de nuevos yacimientos en la Franja Petrolera Norte Cubana, en especial en el sector occidental del yacimiento Varadero (Varadero Oeste). En los últimos años se han perforado varios pozos horizontales de largo alcance que se encuentran en producción (figura 1) y en los que hasta este momento no se habían realizado estudios de la composición molecular de los crudos totales presentes en ellos.

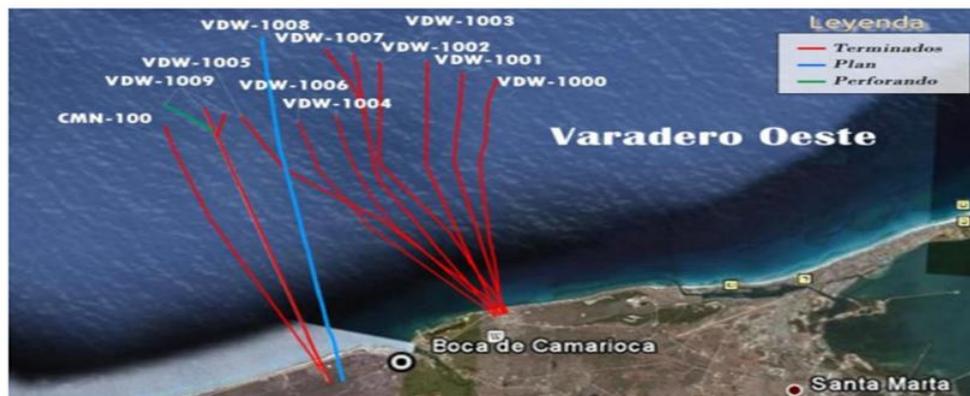


Fig. 1. Zona de estudio (López Corzo, 2020).

Debido a la importancia estratégica que representa conocer el comportamiento de estos crudos en la producción, el presente trabajo tiene como objetivo caracterizar geoquímicamente el crudo total del sector occidental del yacimiento Varadero, que abarque tanto su composición físico-química como su composición molecular y determinar la posibilidad de comunicación del reservorio.

La composición físico – química de los crudos fue realizada en el laboratorio químico de la EPEC-Centro, mientras que la caracterización de la composición molecular se realiza con las capacidades analíticas del Laboratorio de Química Analítica del Ceinpet, de manera que puedan ser realizados para los nuevos yacimientos o extensiones de yacimientos antes conocidos. La interpretación de los datos se realizó de forma conjunta.

La implementación de forma sistemática de este tipo de estudios permitirá actualizar y aportar nueva información y contribuir a optimizar la explotación de los yacimientos del país.

MATERIALES Y MÉTODOS

Para el estudio se emplearon muestras procedentes de seis pozos del sector occidental del yacimiento Varadero, ubicados en la provincia de Matanzas (VD 1000, 1001, 1003, 1007, 1008 y 1009), las cuales fueron suministradas por el laboratorio químico de la Empresa de Perforación y Extracción de Petróleo Centro (EPEP-C) de la provincia de Matanzas.

Los parámetros físico - químicos fueron determinados en el laboratorio químico de la EPEC-Centro, mediante las normas establecidas para cada ensayo según se relacionan en la Tabla 1.

Tabla 1. Propiedades físico-químicas determinadas y normas de ensayos utilizadas.

PROPIEDADES	NORMA DEL ENSAYO
Grado API	NC ASTM D 1298:20
Asfaltenos	NC ASTM D 6560:20
Azufre	NC ASTM D 4294:20
Viscosidad	NC ASTM D 445:11
Agua y Sedimentos (BSW)	NC ASTM D 4007:16

Para el análisis de continuidad (C15-) mediante el método de Fingerprinting (Smalley, 1995; Hwang, 1993; Kaufman, 1987, 1990), se empleó un cromatógrafo de gases marca Agilent Technologies 7890A, con inyector automático G-4513^a y provisto de un detector de ionización a la llama (FID), columna capilar DB-Petro (100% metilpolisiloxano) de 50 metros de longitud; 200 μm de d.i y 0.5 μm de espesor de película de fase estacionaria; como gas portador se utilizó el Helio a una velocidad de 1.2 mL/min y 1:200 de relación de Split. Las temperaturas del detector e inyector se mantuvieron a 310 y 300°C respectivamente y la temperatura del horno se programó desde 35°C hasta 310°C con rampa de calentamiento de 5°C/min, un tiempo isotérmico inicial de 5 minutos y final de 35 minutos. El volumen de inyección fue de 0.2 μl . El procesamiento de los datos se realizó con ayuda del software GC ChemStation, Rev. B.04.02.SP1 (208). La confección de los diagramas de estrellas se realizó mediante la herramienta de Excel.

RESULTADOS Y DISCUSIÓN

En la tabla 2. se muestran los resultados de los parámetros físico-químicos determinados para cada una de las muestras de petróleo crudo.

Tabla 2. Propiedades físico-químicas.

POZO	API ^o	Asfaltenos (% m/m)	Azufre (% m/m)	Viscosidad 50 oC (mm ² /s)	BSW (% V/V)
VW - 1000	9,2	17,90	7,61	2530	1,4
VW - 1001	9,1	18,50	6,61	2423	1,2
VW - 1003	9,7	15,00	7,94	2330	0
VW - 1007	9,2	15,40	7,78	-	0
VW - 1008	9,0	14,60	7,91	2372	0,9
VW - 1009	8,8	13,60	6,55	3109	9

En la figura 2 se observa el gráfico de la relación entre la gravedad API y el contenido de azufre en las muestras estudiadas del sector Oeste del yacimiento Varadero y la comparación con las otras familias de crudos cubanos, analizadas con anterioridad.

Las seis muestras estudiadas coinciden con el comportamiento de los crudos típicos de baja maduración del yacimiento Varadero, pertenecientes a la Familia I de petróleos cubanos, que se caracterizan por ser crudos extrapesados, con muy bajos grados API, que oscilan entre 8.8 y 9.7°API; elevados contenidos de azufre, entre 6.55 y 7.94% y también altos contenidos de asfaltenos que van desde 13.60 hasta 18.50%.

Una vez obtenidas las huellas dactilares de los crudos estudiados, se identificaron y se seleccionaron los compuestos con las alturas correspondientes, en el rango de C7 - C10.

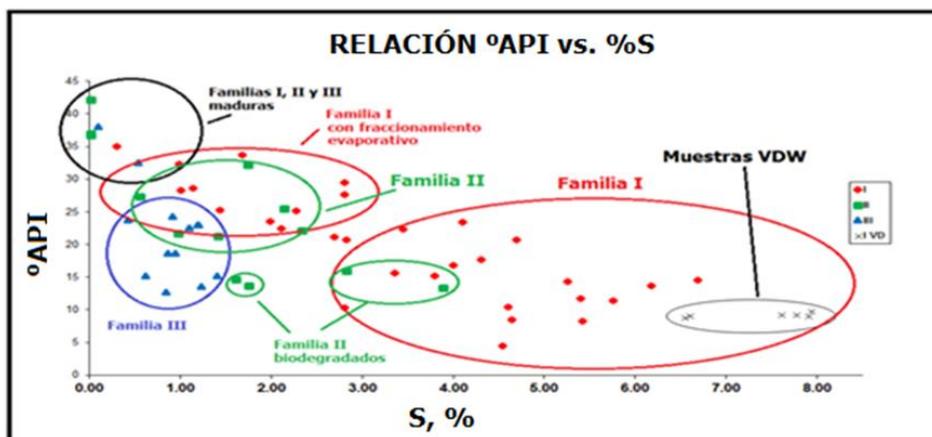


Fig. 2. Gráfico de la relación gravedad API ($^{\circ}$ API) contenido de azufre (%S) de los petróleos crudos estudiados y de otras familias de crudos cubanos.

Una vez obtenidas las huellas dactilares de los crudos estudiados, se identificaron y se seleccionaron los compuestos con las alturas correspondientes, en el rango de C7 - C10. En la tabla 3 se muestran los compuestos identificados y sus alturas en el rango indicado, que es donde se pueden observar las diferencias entre los distintos petróleos, necesarias para correlacionar unos con otros para definir la existencia de continuidad o no entre los pozos en el sector estudiado del yacimiento.

Tabla 3. Compuestos identificados y sus alturas.

Picos	Compuestos	Altura					
		VW-1000	VW-1001	VW-1003	VW-1007	VW-1008	VW-1009
11	MetilCicloC6	5,55	5,46	6,60	5,24	7,87	5,92
12	2,4 DiMeHexano	1,52	1,57	1,79	1,46	2,11	1,66
13	Tolueno	1,32	1,35	1,53	1,26	1,76	1,45
14	2-metilheptano	1,24	1,42	1,33	1,08	2,36	1,56
16	1-trans,2-etil-2-metilciclopentano	1,16	1,20	1,46	1,20	1,51	1,22
17	1-trans,2-dimetilciclohexano	2,46	2,65	2,87	2,38	3,28	2,72
20	1-metil,4-etilciclopentano	4,35	4,65	5,45	4,42	5,91	4,71
22	2,5 y 3,5 dimetilheptano	3,74	3,99	4,35	3,67	5,06	4,00
24	1,2,4-trimetilciclohexano	1,07	1,17	1,24	1,06	1,44	1,19
25	meta+paraXileno	1,32	1,54	1,69	1,41	2,52	1,55
27	3-metiloctano	1,68	1,95	1,97	1,64	2,76	2,01
28	orto-xileno	1,23	1,33	1,51	1,25	1,65	1,35
29	Metiletilciclohexano	1,11	1,65	1,74	1,46	1,99	1,60
31	2,2-dimetiloctano	1,38	1,51	1,58	1,36	1,29	1,09
35	3,6-dimetiloctano	1,38	3,77	4,02	3,35	5,00	3,91
37	5-metilnonano	2,07	2,21	2,46	2,09	2,79	2,26
40	1,2,4-trimetilbenceno	1,39	1,61	1,57	1,43	2,05	1,65

En la Tabla 4 se muestran las relaciones de pares de compuestos y sus respectivos valores que han sido utilizadas en trabajos anteriores nacionales e internacionales (Llabre R. G., et al., 2006, Anyadiiegwu C.I.C., Egelle E., Ikpeka P, 2015).

Tabla 4. Relaciones de pares de compuestos

Relaciones	VW-1000	VW-1001	VW-1003	VW-1007	VW-1008	VW-1009
1 MetilCicloC6/2,4 DiMeHexano	3,64	3,48	3,69	3,59	3,73	3,57
2 2,4 DiMeHexano/Tolueno	1,16	1,16	1,17	1,16	1,20	1,14
3 Tolueno/2-metilheptano	1,06	0,95	1,15	1,16	0,75	0,93
4 2-metilheptano/1-trans,2-etil-2-metilciclopentano	1,07	1,19	0,91	0,90	1,56	1,27
5 1-trans,2-etil-2-metilciclopentano/1-trans,2-dimetilciclohexano	0,47	0,45	0,51	0,51	0,46	0,45
6 1-trans,2-dimetilciclohexano/1-metil,4-etilciclopentano	0,57	0,57	0,53	0,54	0,56	0,58
7 1-metil,4-etilciclopentano/2,5 y 3,5 dimetilheptano	1,16	1,16	1,25	1,20	1,17	1,18
8 2,5 y 3,5 dimetilheptano/1,2,4-trimetilciclohexano	3,48	3,40	3,49	3,48	3,51	3,36
9 1,2,4-trimetilciclohexano/meta+paraXileno	0,81	0,76	0,74	0,75	0,57	0,77
10 meta+paraXileno/3-metiloctano	0,79	0,79	0,85	0,86	0,91	0,77
11 3-metiloctano/orto-xileno	1,37	1,46	1,31	1,31	1,67	1,49
12 orto-xileno/Metiletilciclohexano	1,11	0,80	0,87	0,86	0,83	0,85
13 Metiletilciclohexano/2,2-dimetiloctano	0,80	1,10	1,10	1,07	1,54	1,47
14 2,2-dimetiloctano/3,6-dimetiloctano	1,00	0,40	0,39	0,41	0,26	0,28
15 5-metilnonano/1,2,4-trimetilbenceno	1,49	1,37	1,56	1,46	1,36	1,38

Para el procesamiento de los datos se realizó el ploteo radial de estas relaciones (Diagramas de estrella) lo que facilita la comparación de los petróleos. Primeramente, se confeccionaron los diagramas de estrellas de los crudos estudiados (figura 3) para la comparación entre todos ellos. De acuerdo a la experiencia en el mundo, se ha establecido que existe una buena comunicación entre pozos, cuando las diferencias entre las relaciones de compuestos en los diagramas de estrellas, no superan un 5% (Kaufman, 1990, 1987).

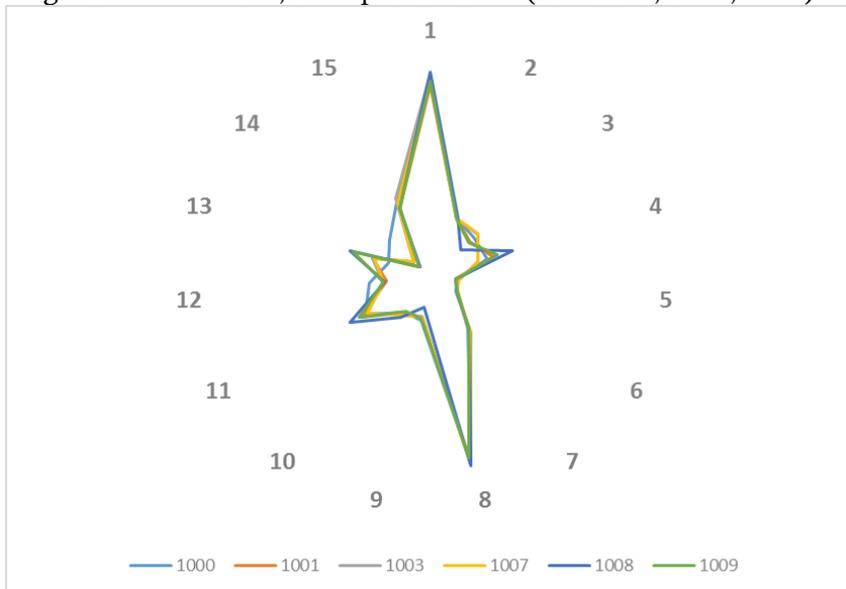


Fig. 3. Diagrama de estrella general de todas las muestras de estudio.

Se compararon los diagramas de estrellas correspondientes a pozos cercanos entre sí. En un solo caso se obtuvo una diferencia inferior al 5%, entre los pozos VW 1003 y 1007 (1,91%), indicando que existe una buena comunicación entre ellos, tal como se muestra en la figura. 4. Sin embargo, en la comparación entre los pozos VW 1000 con el VW 1001, el VW 1001 con el VW 1003, el VW 1007 con el VW 1008 y el VW 1008 con el VW 1009 se observa que presentan diferencias que van desde un 12 hasta 23,70%, poniendo de manifiesto la existencia de barreras que impiden una buena comunicación entre estos pozos, tal como puede apreciarse en la Tabla 5 y las figuras desde la 5 hasta la 8.

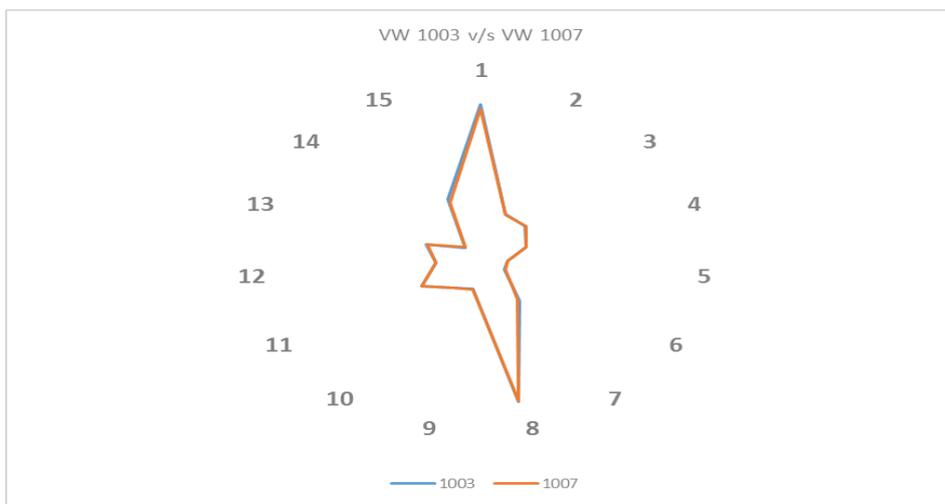


Fig. 4. Diagrama de estrella de la comparación de los pozos VW 1003 y 1007 que muestra la existencia de una buena comunicación entre ambos (diferencia de 1.91%).

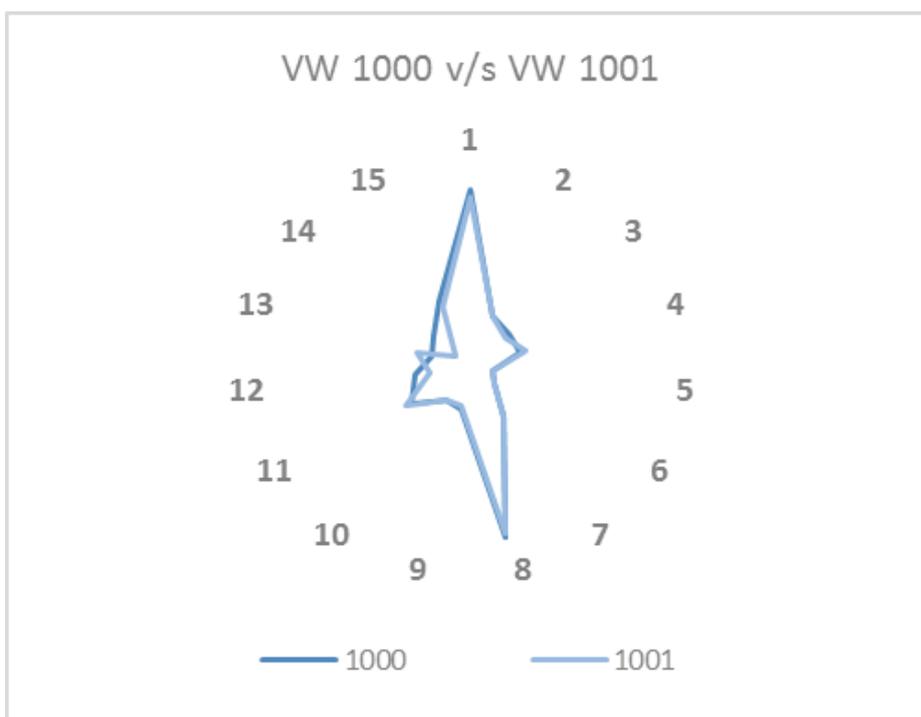


Fig. 5. Diagrama de estrella de la comparación de los pozos VW 1000 y 1001, mostrando problemas de comunicación entre ellos (diferencia de 12%).

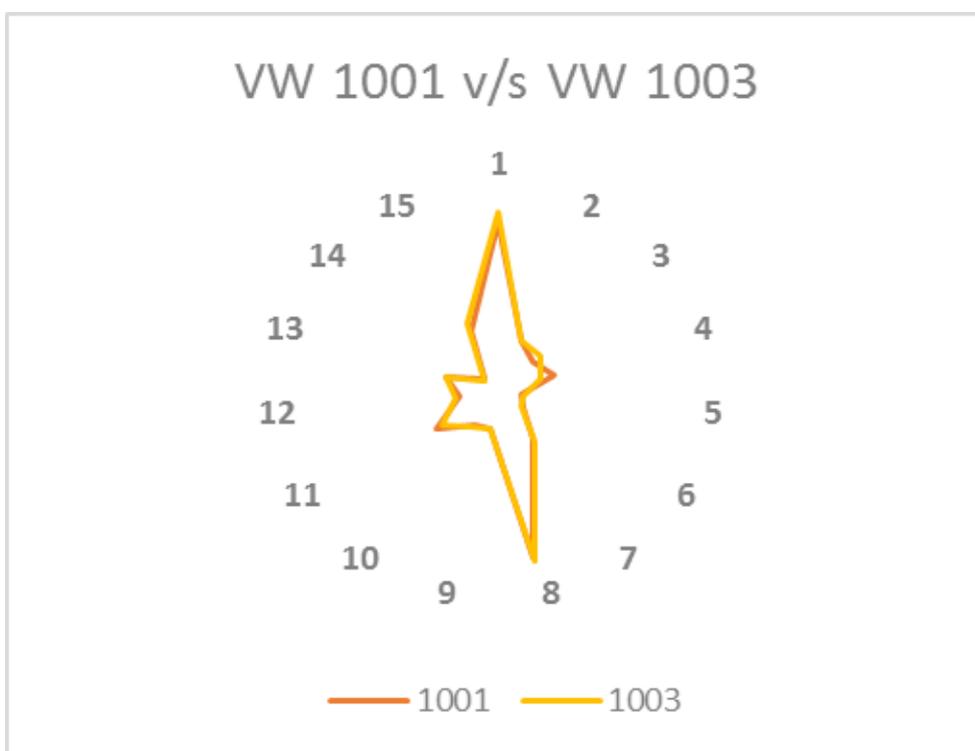


Fig. 6. Diagrama de estrella de la comparación de los pozos VW 1001 y 1003, mostrando problemas de comunicación entre ellos (diferencia de 8.44%).

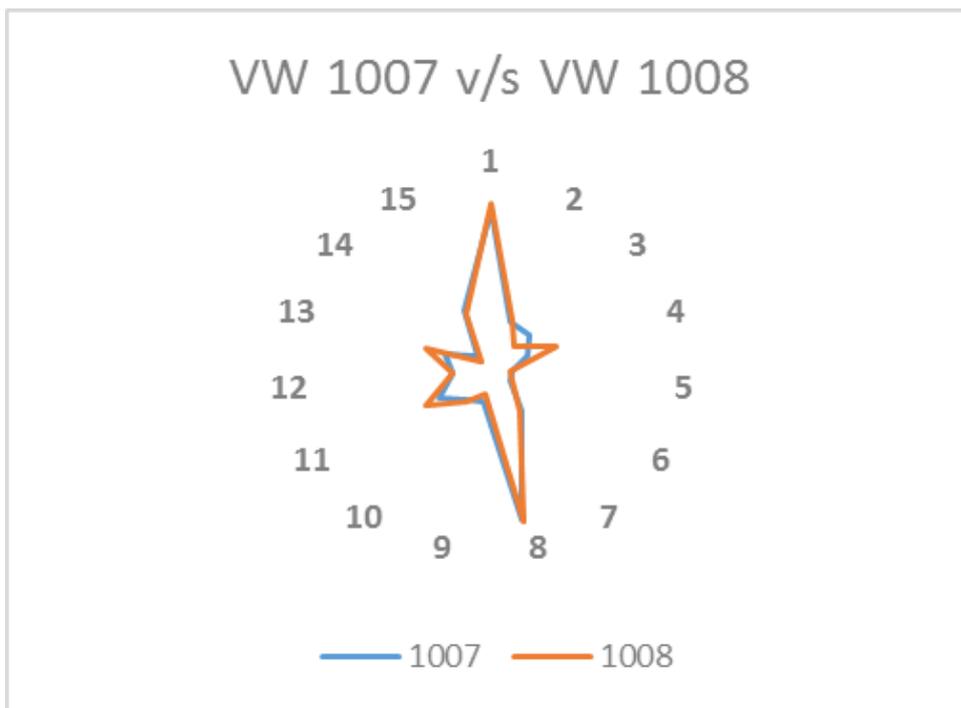


Fig. 7. Diagrama de estrella de la comparación de los pozos VW 1007 y 1008, mostrando problemas de comunicación entre ellos (diferencia de 18.70%).

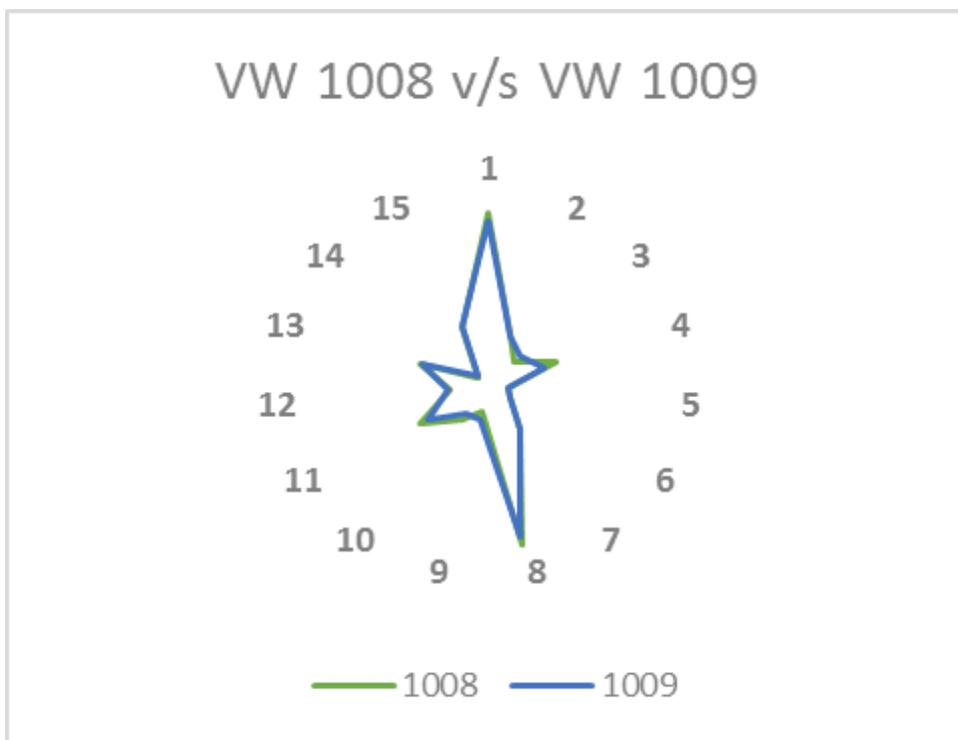


Fig. 8. Diagrama de estrella de la comparación de los pozos VW 1008 y 1009, mostrando problemas de comunicación entre ellos (diferencia de 9.42%).

Tabla 5. Diferencias expresadas en % entre los pozos estudiados.

Pozos	VW 1000	VW 1001	VW 1003	VW 1007	VW 1008	VW 1009
VW 1000		12,00	13,02	12,08	23,70	16,68
VW 1001	12,00		8,44	7,42	13,70	6,22
VW 1003	13,02	8,44		1,91	18,67	13,38
VW 1007	12,08	7,42	1,91		18,70	12,71
VW 1008	23,70	13,70	18,67	18,70		9,42
VW 1009	16,68	6,22	13,38	12,71	9,42	

CONCLUSIONES

A partir del estudio realizado, se puede concluir que los crudos del sector oeste del yacimiento Varadero son crudos extrapesados con altos contenidos de azufres y asfaltenos, similares a los petróleos de baja maduración de la Familia I de crudos cubanos, característicos del yacimiento Varadero. Los principales resultados obtenidos muestran la existencia de buena comunicación entre los pozos VD1003 y VD1007. En el resto de los pozos analizados, se evidencia la existencia de barreras que pueden impedir la comunicación entre ellos.

REFERENCIAS BIBLIOGRAFICAS

- Anyadiegwu C.I.C., Egelle E., Ikpeka P. Suitability of Gas Chromatography Flame Ionization Detector (GC-FID) for Fingerprinting Reservoir Fluids in Mature and Marginal Fields of Niger Delta. *International Journal of Scientific Engineering and Applied Science*, 1 (5), 2015.
- Hwang R.J., Ahmed A.S., Moldowan J.M. Oil Composition Variation and Reservoir Continuity: Unity Field, Sudan. *Organic Geochemistry*, 21, 171-188, 1994.
- Kaufman R.L., Ahmed A.S., and Hemphkins W. B., A New Technique for the Analysis of Commingled Oils and its Application to Production Allocation Calculations. *Proceedings Indonesian Petroleum Association Sixteenth Annual Convention*, 247-267, 1987.
- Kaufman R.L., Ahmed A.S., Elsinger R. J., Gas Chromatography as a Development and Production Tool for Fingerprinting Oils from Individual Reservoirs: Applications in the Gulf of Mexico. *Proceedings of the 9th Annual Research Conference of the SEPM*, 263- 282, 1990.
- Llabre R. G., Prado G. I., Pascual F. O., Gutiérrez R. A., Barreras V., López Q. J. O. High Resolution Gas Chromatography: Fingerprint of Cuban Oils from Pina and Puerto Escondido Fields. *Revista CENIC Ciencias Químicas*, 37 (1), 35-39, 2006.
- López, J.O., O. Pascual, O. Delgado. Clasificación de petróleos cubanos. II Jornada Científica CEINPET 2003.
- López, J.O., O. Pascual, O. Delgado. Familias de petróleos cubanos. Correlación con otras áreas en el golfo de México. *Memorias del IX Congreso Latinoamericano de Geoquímica Orgánica de ALAGO*, (Mérida, México).2004.
- López, J.O., Pascual O., Domínguez Z., Llabre R. G., Delgado O., Barreras V., Rodríguez O. Estudio Geoquímico de los petróleos del yacimiento Puerto Escondido, comparación con petróleos del yacimiento Yumurí y estudios de continuidad. Informe de etapa, CEINPET 1999.
- Magnier, C., Trindade L.A.F. Light Hydrocarbon Analyses in Reservoir Geochemistry. *Revista Latinoamericana de Geoquímica Orgánica*, 5, 25-37, 1999.

- Mango F. D. The Origin of Light Hydrocarbons in Petroleum: A Kinetic Test of the Steady State Catalytic Hypothesis. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 54 (5), 1315-1323, 1990.
- Nora K., Cañipa-Morales, Galán-Vidal C.A., Pérez Ortiz J.A. y Guzmán-Vega M. Clasificación de petróleos mexicanos mediante cromatografía de gases y análisis de componentes principales. *Revista de la Sociedad Química de México*, 47 (3), 2003.
- Norma ASTM 1298: 16, Density, Relative Density, or API Gravity of Crude Petroleum and Liquid Petroleum Products by Hydrometer Method.
- Norma ASTM 4007: 16, Water and Sediment in Crude Oil by the Centrifuge Method (Laboratory Procedure).
- Norma ASTM 4294: 11, Sulfur in Petroleum and Petroleum Products by Energy Dispersive X-ray Fluorescence Spectrometry.
- Norma ASTM 445: 11, Kinematic Viscosity of Transparent and Opaque Liquids (and Calculation of Dynamic Viscosity).
- Norma ASTM 6560: 14, Standard Test Method for Determination of Asphaltenes (Heptane Insolubles) in Crude Petroleum and Petroleum Products.
- Oforika, N. C., Osuji, L. C., & Onojake, M. C. Petroleum hydrocarbon fingerprinting of crude oils from umutu/bomu oilfields in Niger Delta, Nigeria. *Archives of Applied Science Research*, 4 (1):246-253, 2003. (<http://scholarsresearchlibrary.com/archive.html>), 2012.
- Pascual O., Llabre R. G., Domínguez Z., López, J.O., Díaz L. M., Barreras V. Estudios de continuidad en un yacimiento en rocas vulcanógenas sedimentarias en Cuba. IV Congreso de Geología y Minería. GPEOPE 2018.
- Thompson K.F.M. Classification and Thermal History of Petroleum based on Light Hydrocarbons. *Geochimica et Cosmochim Acta*, 47 (2) 303-316, 1983.
- Wen Z., Zhu D., Tang Y., Li Y., Zhang G. The application of gas chromatography fingerprint technique to calculating oil production allocation of single layer in the commingled well, *Chinese Journal of Geochemistry*, 24 (3), 2005.
- Yaohui X., Xianda S., Nengxue C., Cuimin Y. and Qiaoli W. Evaluation of reservoir connectivity using whole-oil gas chromatographic fingerprint technology: A case study from the Es33 reservoir in the Nanpu Sag. *Chinese Petroleum Science*, 9:290-294, 2012.