

(19)



**Евразийское
патентное
ведомство**

(11) **023347**

(13) **B1**

(12) **ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОМУ ПАТЕНТУ**

(45) Дата публикации и выдачи патента
2016.05.31

(51) Int. Cl. **C10G 25/00** (2006.01)
C10G 25/12 (2006.01)

(21) Номер заявки
201270057

(22) Дата подачи заявки
2010.06.22

(54) **СПОСОБ ОТДЕЛЕНИЯ И КОЛИЧЕСТВЕННОГО ОПРЕДЕЛЕНИЯ СОДЕРЖАНИЯ КИСЛОТ, ОБРАЗУЮЩИХ НАФТЕНАТЫ, ("ARN-КИСЛОТ") В НЕОЧИЩЕННОЙ НЕФТИ**

(31) **20092378**

(56) EP-A1-1840567
US-A1-2006016723
EP-A1-1870706
WO-A1-9943766
WO-A1-0218519

(32) **2009.06.22**

(33) **NO**

(43) **2012.07.30**

(86) **PCT/NO2010/000238**

(87) **WO 2010/151139 2010.12.29**

(71)(73) Заявитель и патентовладелец:
СТАТОЙЛ ПЕТРОЛЕУМ АС (NO)

(72) Изобретатель:
**Медиос Хейди, Гранде Кнут,
Куммернес Хеге, Виндстад Енс Эмиль
(NO)**

(74) Представитель:
Медведев В.Н. (RU)

(57) Раскрыт способ отделения и количественного определения содержания кислот, образующих нафтенаты, (ARN-кислот) в неочищенных нефтях. Способ включает селективную абсорбцию/адсорбцию ARN-кислот твердотельной средой. Затем следует отделение твердотельной среды и перенос ARN-кислот в органический растворитель, который может быть проанализирован в отношении содержания в нем ARN-кислоты.

B1

023347

023347
B1

Данное изобретение относится к способу отделения и количественного определения содержания кислоты, образующей нафтенат, в неочищенной нефти.

Неочищенные нефти могут содержать разные количества нафтенных кислот. Statoil и ConocoPhillips ранее опубликовали открытие, что среди этих кислот кислоты, образующие нафтенаты, также известные как семейство ARN-кислот, являются универсальным необходимым условием для образования основного компонента отложений нафтената кальция (см. Baugh, T.D.; Grande, K.V.; Mediaas, H.; Vindstad, J.E.; Wolf, N.O., "Characterization of a Calcium Naphthenate Deposit - The ARN Acid Discovery." American Chemical Society, Petroleum Chemistry Division Preprints 2004, 47, (1) и Baugh, T.D.; Grande, K.V.; Mediaas, H.; Vindstad, J.E.; Wolf, N.O. "The Discovery of High Molecular Weight Naphthenic Acids (ARN Acid) Responsible for Calcium Naphthenate Deposits", SPE 7th International Symposium on Oilfield Scale, 11-12 May, Aberdeen, United Kingdom, Society of Petroleum Engineers, 2005).

Соответственно, для того, чтобы получить достоверную оценку количества отложений нафтената кальция, образование которого можно ожидать из неочищенной нефти, и спланировать соответствующие концепции обращения с нафтенатом, важно знать не количество нафтенных кислот, а количество ARN-кислот, содержащихся в неочищенной нефти.

ARN-кислоты присутствуют в неочищенных нефтях различного происхождения в разных количествах.

Осаждение нафтената являлось предметом ряда публикаций в течение последних лет.

EP 1840567 раскрывает процесс контроля неочищенной нефти, который включает количественное определение содержания нафтенных кислот, данный процесс не включает отделение ARN-кислот от других нафтенных кислот с высокой молекулярной массой. Также раскрыто, что результаты могут быть использованы в непрямом способе оценки потенциальной возможности осаждения нафтената для неочищенных нефтей.

Simon S. et. al., "Determination of C80 tetra-acid content in calcium naphthenate deposits", Journal of Chromatography A, June 2008, vol. 1200, No. 2, pages 136-143, раскрывают способ анализа нафтенатных отложений на той основе, что ARN-кислоты являются доминирующей кислотой в этих отложениях. В неочищенных нефтях ARN-кислоты составляют лишь очень малую часть от общего содержания кислот, обычно менее чем 100 млн^{-1} .

Benjamin Brocart, Maurice Bourrel, Christian Hurtevent, Jean-Luc Voile, Bernard Escoffier (2007) "ARN-Type Naphthenic Acids in Crudes: Analytical Detection and Physical Properties", Journal of Dispersion Science and Technology 28(3): 331-337, раскрывают способ определения присутствия ARN-кислот в неочищенных нефтях. Раскрытый способ основан на копировании естественного процесса формирования нафтената. Однако ни один из раскрытых способов не описан как являющийся селективным и предоставляющий количественные результаты.

До сих пор отсутствует методика определения количества ARN-кислот, образующих нафтенат, в неочищенных нефтях. Однако вследствие их важной роли в формировании отложений имеется потребность в таких знаниях для разработки эффективной стратегии обращения с нафтенатами для нефтяных месторождений на этапах проектирования и эксплуатации.

Целью данного изобретения является предоставление такого способа для количественного определения содержания ARN-кислот. Другой целью является предоставление способа с высокой селективностью по отношению к ARN-кислотам.

Данное изобретение предоставляет способ определения концентрации ARN-кислот в неочищенных нефтях. Способ отделения и количественного определения содержания ARN-кислот в образце неочищенной нефти характеризуется следующими стадиями:

- a) приведение образца неочищенной нефти в соприкосновение с твердотельной средой для селективной абсорбции/адсорбции ARN-кислот,
- b) отделение твердотельных частиц от остального образца неочищенной нефти после того, как ARN-кислоты были абсорбированы твердотельными частицами или адсорбированы на них,
- c) промывку твердотельных частиц органическим растворителем,
- d) приведение твердотельных частиц в соприкосновение со смесью подкисленной воды или другой кислоты и органического растворителя, чтобы высвободить ARN-кислоты в органический растворитель,
- e) отделение органической фазы от остатка твердотельных частиц и любой водной или другой кислоты, использованной на стадии d),
- f) количественное определение содержания ARN-кислот в органической фазе, отличающийся тем, что твердотельная среда для селективной абсорбции/адсорбции ARN-кислот выбрана из группы, состоящей из гидроксидов, оксидов, карбонатов или бикарбонатов щелочно-земельных металлов, щелочных металлов или переходных металлов или других основных солей переходных металлов.

В одном из вариантов осуществления способ также включает разбавление образца неочищенной нефти перед приведением его в соприкосновение с твердотельной средой для селективной абсорбции ARN-кислот. Органический растворитель, используемый в способе, представляет собой в одном из вариантов осуществления толуол или ксилол, по меньшей мере часть органического растворителя может быть удалена перед стадией g) или опциональным выполнением стадии f). Кроме того, стадия d) может

быть повторена один или несколько раз перед выполнением стадии е).

В одном из аспектов изобретения твердотельная среда для абсорбции/адсорбции ARN-кислот выбрана из группы, состоящей из гидроксидов щелочно-земельных металлов, щелочных металлов и переходных металлов. В другом аспекте твердотельная среда для абсорбции/адсорбции ARN-кислот является оксидами щелочно-земельных металлов, щелочных металлов и переходных металлов. В еще одном аспекте твердотельная среда для абсорбции/адсорбции ARN-кислот выбрана из группы, состоящей из карбонатов или бикарбонатов щелочно-земельных металлов, щелочных металлов и переходных металлов, других основных солей переходных металлов. В одном из вариантов осуществления твердотельной средой для абсорбции ARN-кислот является $\text{Ca}(\text{OH})_2$.

В еще одном аспекте способа в соответствии с данным изобретением твердотельные частицы растворяются на стадии d).

Другие варианты осуществления и дополнительные признаки данного изобретения раскрыты в защищенных зависимых пунктах формулы изобретения.

Способ количественного определения содержания ARN-кислот в соответствии с данным изобретением включает селективную абсорбцию ARN-кислот твердотельной средой. Затем следует отделение твердотельной среды и перенос ARN-кислот в органический растворитель, который может быть проанализирован в отношении содержания в нем ARN-кислоты. В соответствии с данным изобретением ARN-кислоты отделяются от всех других кислот, присутствующих в неочищенной нефти. Способ в соответствии с данным изобретением переносит, в основном, все ARN-кислоты в твердотельную среду, и ARN-кислоты высвобождаются из твердотельной среды на стадии d).

В предпочтительном варианте осуществления твердотельной средой является $\text{Ca}(\text{OH})_2$. В этом случае достаточное количество водной кислоты добавляется во время переноса ARN-кислот в органический растворитель, чтобы растворить твердотельную среду. Когда абсорбционная среда растворяется в присутствии гидрофобного растворителя ARN-кислот, все ARN-кислоты растворяются и переносятся в гидрофобный растворитель, а все ионы кальция и прореагировавшая кислота остаются в водной фазе.

Это изобретение является первой методикой такого вида, которая способна определить количество ARN-кислот в образце неочищенной нефти.

Данное изобретение будет описано более подробно при ссылках на приложенные чертежи, среди которых:

фиг. 1a показывает масс-спектр отрицательных ионов неочищенной нефти, включающей ARN-кислоты;

фиг. 1b показывает спектр после того, как ARN-кислоты были перемещены в отдельный органический растворитель с применением данного способа;

фиг. 2 представляет оценку разных твердотельных сред;

фиг. 3 показывает масс-спектр раствора, содержащего ARN-кислоты и более легкие кислоты, после его прохождения через 10 мм $\text{Ca}(\text{OH})_2$;

фиг. 4 показывает масс-спектр раствора, содержащего ARN-кислоты и более легкие кислоты, после его прохождения через 10 мм $\text{Sr}(\text{OH})_2$;

фиг. 5 показывает масс-спектр раствора, содержащего ARN-кислоты и более низкомолекулярные кислоты, после его прохождения через 10 мм NaHCO_3 , и

фиг. 6 показывает масс-спектр раствора, содержащего ARN-кислоты и более низкомолекулярные кислоты, после его прохождения через 30 мм CaCO_3 .

фиг. 7 показывает масс-спектр раствора перед его прохождением через абсорбент, представленный посредством фиг. 3-6.

В предпочтительном варианте осуществления процесс в соответствии с данным изобретением включает следующие стадии.

1. Опциональное разбавление по меньшей мере части образца нефти, подлежащего анализу. Разбавителем может быть толуол или другой подходящий разбавитель, такой как ксилол, бензол, пиридин и т.п. Соотношение разбавитель/нефть будет обычно составлять 1, однако может быть больше для вязких нефтей. Если нефть очень легкая/имеет очень низкую вязкость, то разбавление может не являться необходимым.

2. Приведение нефти или смеси нефть-разбавитель в соприкосновение с твердотельной средой, которая обладает способностью к селективной абсорбции или адсорбции ARN-кислоты. Эта твердотельная среда может быть выбрана из группы, состоящей из гидроксидов и оксидов щелочно-земельных металлов, переходных металлов, таких как Sc или другие элементы группы IIIb, Ti или другие элементы группы IVb, V или другие элементы группы Vb, Cr или другие элементы группы VIb, Mn или другие элементы группы VIIb, Fe или другие элементы группы VIIIb, Cu или другие элементы группы Ib, и Zn или другие элементы группы IIb; и щелочных металлов; карбонатов или бикарбонатов щелочно-земельных металлов, таких как CaCO_3 , карбонатов или бикарбонатов щелочных металлов, таких как NaHCO_3 , и карбонатов или бикарбонатов переходных металлов, таких как FeCO_3 ; других основных солей переходных металлов или т.п.

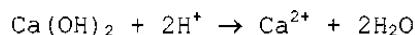
В одном из вариантов осуществления твердотельная среда выбрана из гидроксидов щелочно-

земельных металлов (например, $\text{Ca}(\text{OH})_2$, $\text{Sr}(\text{OH})_2$ или $\text{Ba}(\text{OH})_2$), оксидов щелочно-земельных металлов (например, CaO , SrO), карбонатов щелочно-земельных металлов (например, CaCO_3), бикарбонатов щелочных металлов, таких как NaHCO_3 , основных солей переходных металлов (например, $\text{Fe}(\text{OH})_2$, $\text{Fe}(\text{OH})_3$ или FeCO_3), других солей переходных металлов, таких как галогениды металлов (например, FeCl_3). В другом варианте осуществления твердотельной средой является $\text{Ca}(\text{OH})_2$, $\text{Sr}(\text{OH})_2$, CaO или SrO . В еще одном варианте осуществления твердотельной средой является $\text{Ca}(\text{OH})_2$.

3. Отделение твердотельных частиц от жидкостей после заданного времени соприкосновения. Обычно время соприкосновения будет составлять от нескольких секунд до нескольких дней, в зависимости от настройки аналитического оборудования.

4. Удаление большей части компонентов нефти, иных чем ARN-кислота, из твердой фазы при применении толуола или смеси толуола и 2-пропанола. Иные агенты для промывки, такие как гептан, ксилол или другие, могут потребоваться для определенных нефтей.

5. Приведение твердой фазы, которая теперь содержит ARN-кислоты, первоначально присутствующие в образце, в соприкосновение со смесью кислоты (водной или иной) и летучего растворителя ARN-кислоты (например, толуола, ксилола, бензола, других органических растворителей, включая смеси). Эта стадия служит для переноса ARN-кислот из твердой фазы в органический растворитель. Если $\text{Ca}(\text{OH})_2$ или другая основная соль используется в качестве твердотельной среды для извлечения, то должно быть использовано достаточно кислоты, чтобы растворить всю твердую фазу посредством реакции



или ее эквивалента для других основных солей. Эта стадия должна повторяться до тех пор, пока все ARN-кислоты не будут перенесены в фазу органического растворителя. Применимыми кислотами являются неорганические кислоты (HCl , H_2SO_4 или другие), водорастворимые органические кислоты, такие как муравьиная и уксусная кислота, или другие кислые вещества.

6. Отделение органической фазы от водной фазы, при обеспечении того, что любая ARN-кислота на поверхности раздела включается в органическую фазу.

7. Количество органического растворителя опционально уменьшается испарением или иным образом до тех пор, пока концентрация ARN-кислоты не будет подходить для количественного определения содержания. ARN-кислоты могут быть опционально дериватизированы, например, до сложных эфиров перед количественным определением содержания.

8. Концентрация ARN-кислот или производных ARN-кислот определяется количественным образом посредством, например, масс-спектрографии (MS), газовой хроматографии (GC), абсорбции ультрафиолетового излучения (UV) или любым другим подходящим способом.

Содержание ARN-кислот в органическом растворителе определяется количественным образом посредством, например, одного из методов, указанных на стадии 8, или посредством других аналитических методов, прямых или непрямых. Концентрация ARN-кислот в первоначальной неочищенной нефти рассчитывается из результата, полученного на стадии 8, с учетом всех стадий разбавления и концентрирования, выполненных в качестве части процедуры.

Фиг. 1a и 1b показывают масс-спектры нафтеновых кислот, извлеченных из неочищенной нефти, с добавлением 5 млн^{-1} ARN-кислот. Фиг. 1a показывает спектр кислот перед применением данного способа, а фиг. 1b показывает спектр растворителя после применения данного способа (т.е. после стадии 7 выше). Серый эллипс E на фиг. 1a показывает область масс, в которой располагается ARN-кислота. Как видно из фигуры, разделение отклика от ARN-кислоты от других кислот в той же самой области молярной массы без первоначального физического отделения ARN-кислоты затруднено. Данное изобретение предоставляет эту возможность, как проиллюстрировано на фиг. 1b.

Селективность твердотельной среды для абсорбции важна для количественного определения содержания ARN-кислот.

Была испытана применимость различных видов твердотельной среды в раскрытом здесь способе, оценка этих тестов проиллюстрирована на фиг. 2. Фигура показывает масс-спектры углеводородного растворителя, содержащего как низкомолекулярные карбоновые кислоты (LMW кислоты), так и ARN-кислоты, после того как раствор прошел через абсорбирующую колонку, заполненную разными абсорбентами (твердотельными средами). Спектры на левой стороне относятся к LMW кислотам, в то время как спектры на правой стороне относятся к ARN-кислотам. В примерах верхнего ряда в растворителе найдены как LMW кислоты, так и ARN-кислоты, указывая, что абсорбент является неэффективным для кислот обоих видов, т.е. не имело место отделение этих двух видов кислот. В среднем ряду в растворителе не были обнаружены ни LMW кислоты, ни ARN-кислоты, указывая, что абсорбент является эффективным как для LMW кислот, так и для ARN-кислот, т.е. отсутствовало разделение этих двух видов кислот. В нижнем ряду лишь LMW кислоты найдены в растворителе, указывая, что абсорбент является эффективным лишь для ARN-кислот, т.е. имеет место разделение кислот двух видов, и содержание ARN-кислот может быть определено количественным образом на последующих стадиях, как описано в данном способе.

Испытания различных твердотельных сред (абсорбентов/адсорбентов), которые выполнялись по-

средством обеспечения прохождения раствора, содержащего ARN-кислоты (200 мг/кг растворителя) и более низкомолекулярных карбоновых кислот (1 г/кг растворителя) через испытательную трубку, заполненную до определенной высоты испытуемой твердотельной средой, и анализа масс-спектра раствора, который прошел через твердотельную среду. Некоторые из полученных результатов испытаний показаны на фиг. 3-6. На фигурах верхний график показывает область молярной массы, в которой предполагается обнаружение LMW кислот, и нижний график показывает область молярной массы, в которой предполагается обнаружение ARN-кислот. Фиг. 7 показывает масс-спектр LMW кислот и ARN-кислот, прежде чем они прошли через какую-либо твердотельную среду. Фиг. 3 показывает масс-спектр раствора, содержащего ARN-кислоты и кислоты с меньшей молекулярной массой, после того, как он прошел через 10 мм $\text{Ca}(\text{OH})_2$, все ARN-кислоты были абсорбированы $\text{Ca}(\text{OH})_2$, однако кислоты с меньшей молекулярной массой еще присутствуют, т.е. $\text{Ca}(\text{OH})_2$ селективно абсорбировал ARN-кислоты, однако не кислоты с меньшей молекулярной массой. Фиг. 4 показывает масс-спектр раствора, содержащего ARN-кислоты и кислоты с меньшей молекулярной массой, после того как он прошел через 10 мм $\text{Sr}(\text{OH})_2$. $\text{Sr}(\text{OH})_2$ селективно абсорбировал ARN-кислоты, однако не кислоты с меньшей молекулярной массой. Фиг. 5 показывает масс-спектр раствора, содержащего ARN-кислоты и более низкомолекулярные кислоты, после его прохождения через 10 мм NaHCO_3 . Некоторые, однако, не все ARN-кислоты были абсорбированы этой твердотельной средой. Фиг. 6 показывает масс-спектр раствора, содержащего ARN-кислоты и более низкомолекулярные кислоты, после его прохождения через 30 мм CaCO_3 . При этом высота твердотельной среды была утроена по сравнению с другими проиллюстрированными экспериментами. Основная часть ARN-кислот была абсорбирована, однако небольшое количество ARN-кислот еще содержалось в растворе после того, как он находился в контакте с твердотельной средой; соответственно, данная среда является не такой эффективной, как вышеописанные соли, при абсорбции ARN-кислоты селективным образом.

Примеры

Представленные ниже примеры показывают результат, полученный при количественном определении содержания ARN-кислот в образце с применением способа в соответствии с данным изобретением.

Эффективности отделения/извлечения ARN-кислоты из растворов разбавленной неочищенной нефти и толуола посредством применения данного способа с использованием $\text{Ca}(\text{OH})_2$ в качестве абсорбента. Методом определения, использованным для количественного определения содержания ARN-кислот, являлась масс-спектрометрия с фотоионизацией при атмосферном давлении (APPI-MS) (сравни пункт 8 выше). Количество $\text{Ca}(\text{OH})_2$, использованного в примерах 1, 3 и 5, составляло 1 г, в примерах 2 и 4 составляло 2 г. В примерах 1, 3 и 5 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ добавляли к смеси среды и разбавителя и встряхивали в течение ночи перед отделением твердотельных частиц. В примерах 2 и 4 смесь среды и разбавителя пропускали через $\text{Ca}(\text{OH})_2$, размещенный внутри колонки.

Пример №	Среда	Количество среды	Количество толуола для разбавления	Добавленное количество ARN-кислоты	Извлеченное количество ARN-кислоты	Процент извлечения
1	Неочищенная нефть	40 г	40 г	51,5 млн ⁻¹	44,3 млн ⁻¹	86%
2	Неочищенная нефть	20 г	20 г	5,9 млн ⁻¹	5,3 млн ⁻¹	90%
3	Неочищенная нефть	100 г	100 г	4,8 млн ⁻¹	4,4 млн ⁻¹	92%
4	Неочищенная нефть	30 г	30 г	1,4 млн ⁻¹	1,0 млн ⁻¹	74%
5	Толуол	100 г	0 г	4,8 млн ⁻¹	5,2 млн ⁻¹	107%

ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

1. Способ отделения и количественного определения содержания ARN-кислот в образце неочищенной нефти, отличающийся тем, что содержит:

- а) приведение образца неочищенной нефти в соприкосновение с твердотельной средой для селективной абсорбции/адсорбции ARN-кислот,
- б) отделение твердотельных частиц от остального образца неочищенной нефти после того, как ARN-кислоты были абсорбированы твердотельными частицами или адсорбированы на них,
- с) промывку твердотельных частиц органическим растворителем,
- д) приведение твердотельных частиц в соприкосновение со смесью подкисленной воды или другой кислоты и органического растворителя, чтобы высвободить ARN-кислоты в органический растворитель,
- е) отделение органической фазы от остатка твердотельных частиц и любой водной или другой кислоты, использованной на стадии д),
- ф) количественное определение содержания ARN-кислот в органической фазе,

отличающийся тем, что твердотельная среда для селективной абсорбции/адсорбции ARN-кислот выбрана из группы, состоящей из гидроксидов, оксидов, карбонатов или бикарбонатов щелочно-земельных металлов, щелочных металлов или переходных металлов или других основных солей пере-

ходных металлов.

2. Способ по п.1, отличающийся тем, что способ дополнительно включает разбавление образца неочищенной нефти перед приведением его в соприкосновение с твердотельной средой для селективной абсорбции ARN-кислот.

3. Способ по любому из предшествующих пунктов, отличающийся тем, что органическим растворителем является толуол или ксилол.

4. Способ по любому из предшествующих пунктов, отличающийся тем, что после стадии е) и перед стадией ф) дополнительно осуществляют дериватизацию ARN-кислот до сложных эфиров или других соединений, не являющихся кислотами.

5. Способ по любому из предшествующих пунктов, отличающийся тем, что по меньшей мере часть органического растворителя удаляется перед стадией ф) или опциональной дериватизацией ARN-кислот.

6. Способ по любому из предшествующих пунктов, отличающийся тем, что стадия d) повторяется один или несколько раз перед выполнением стадией е).

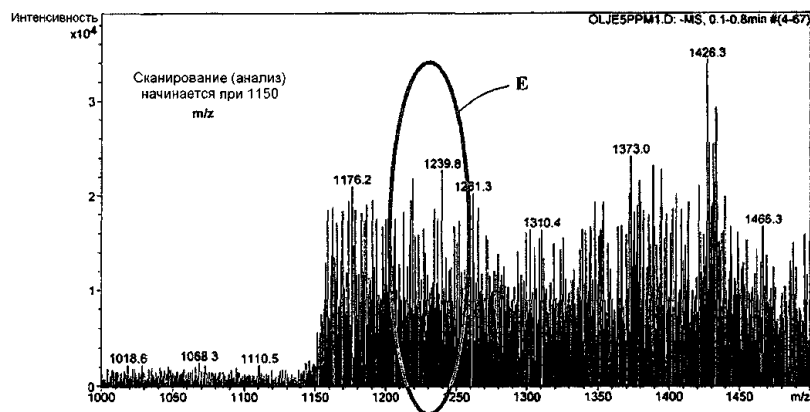
7. Способ по любому из предшествующих пунктов, отличающийся тем, что твердотельная среда для селективной абсорбции/адсорбции ARN-кислот выбрана из группы, состоящей из гидроксидов щелочно-земельных металлов, щелочных металлов или переходных металлов.

8. Способ по любому из пп.1-6, отличающийся тем, что твердотельная среда для селективной абсорбции/адсорбции ARN-кислот выбрана из группы, состоящей из оксидов щелочно-земельных металлов, щелочных металлов или переходных металлов.

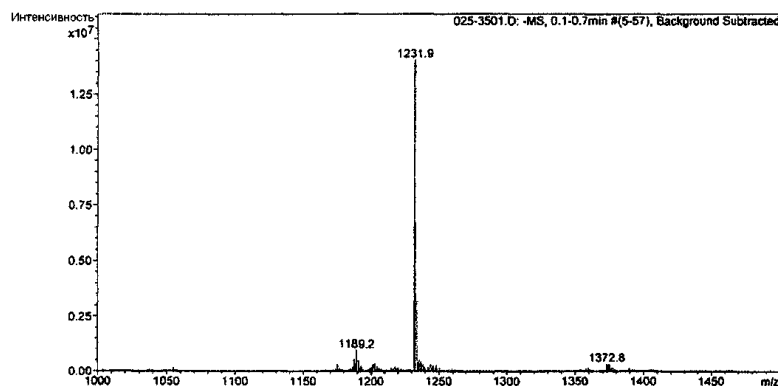
9. Способ по любому из пп.1-6, отличающийся тем, что твердотельная среда для селективной абсорбции/адсорбции ARN-кислот выбрана из группы, состоящей из карбонатов или бикарбонатов щелочно-земельных металлов, щелочных металлов и переходных металлов, других основных солей переходных металлов.

10. Способ по любому из пп.1-6, отличающийся тем, что твердотельной средой для селективной абсорбции/адсорбции ARN-кислот является CaO, Ca(OH)₂, Sr(OH)₂, NaHCO₃ или CaCO₃.

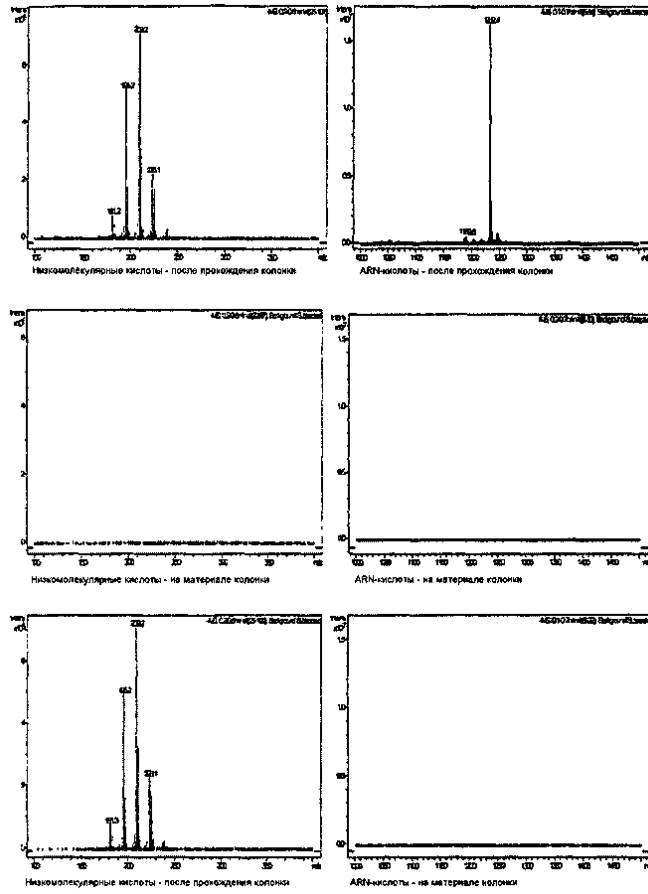
11. Способ по любому из пп.1-10, отличающийся тем, что твердотельные частицы растворяются на стадии d).



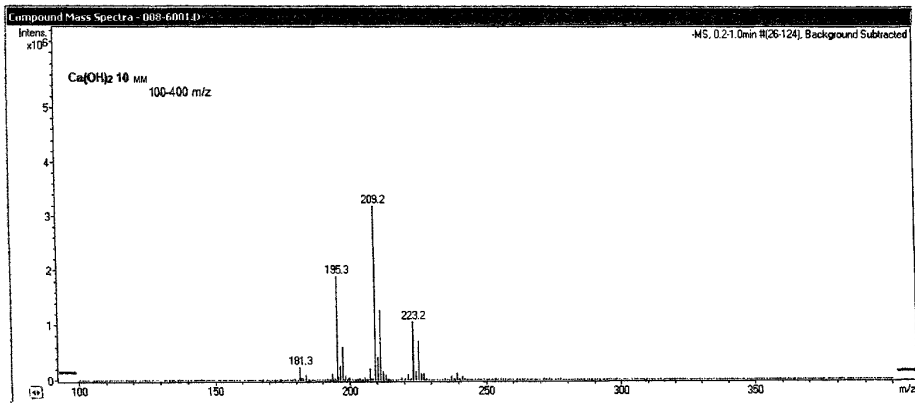
Фиг. 1а



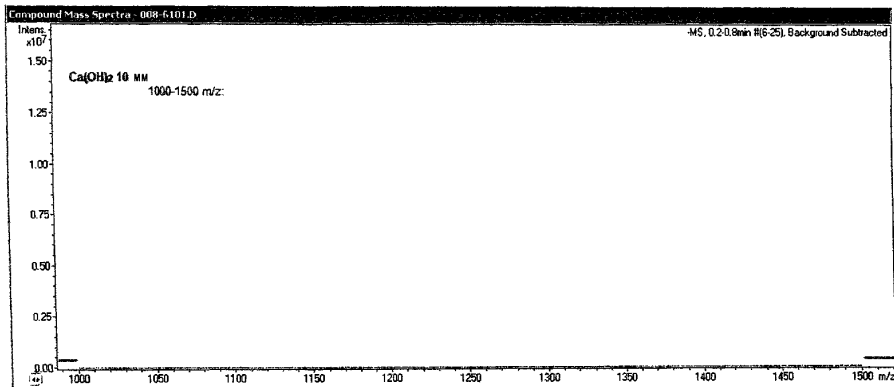
Фиг. 1б



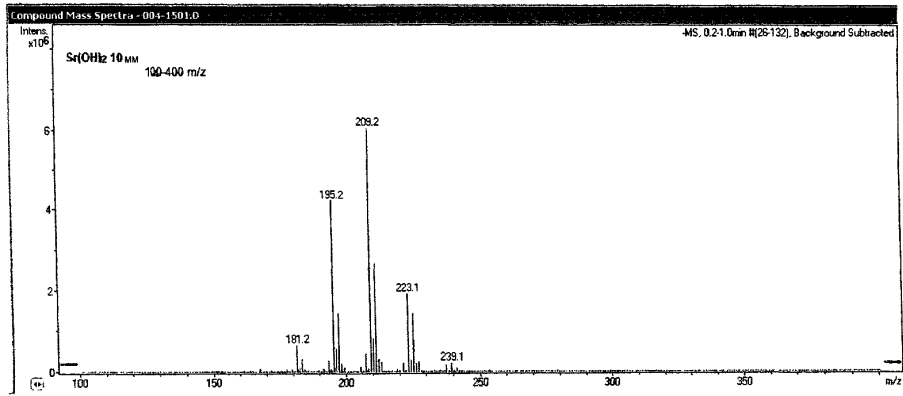
Фиг. 2



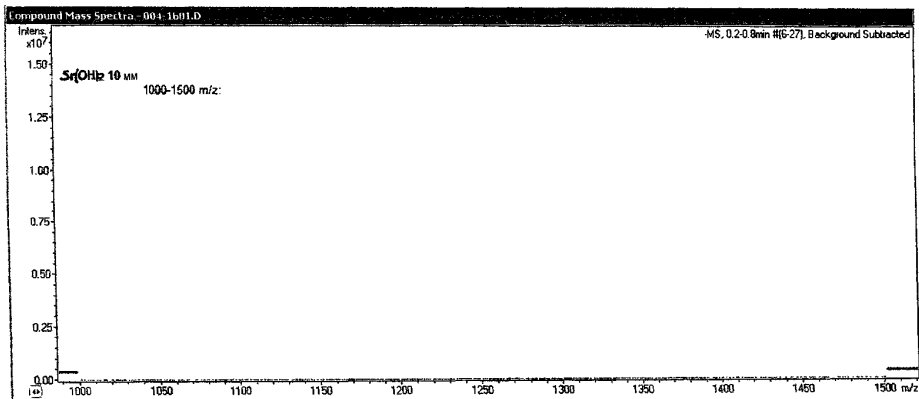
Фиг. 3



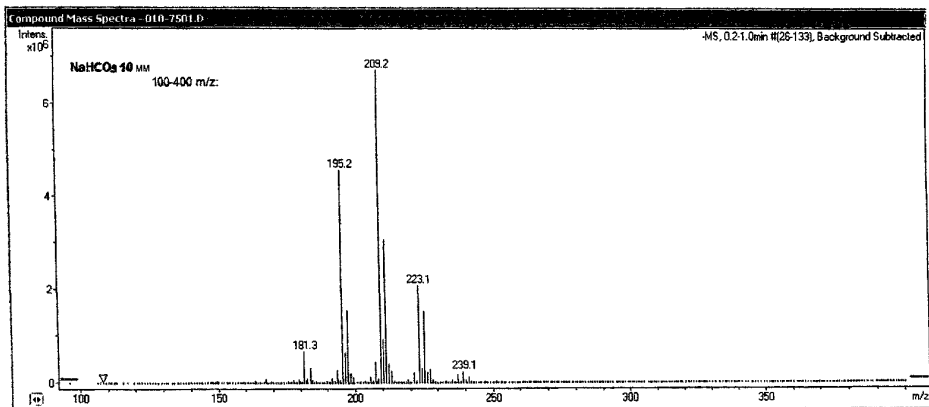
Фиг. 3 (продолжение)



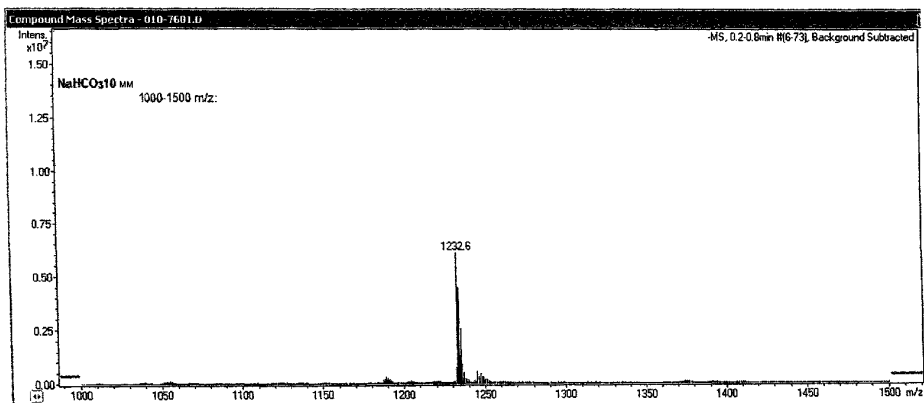
Фиг. 4



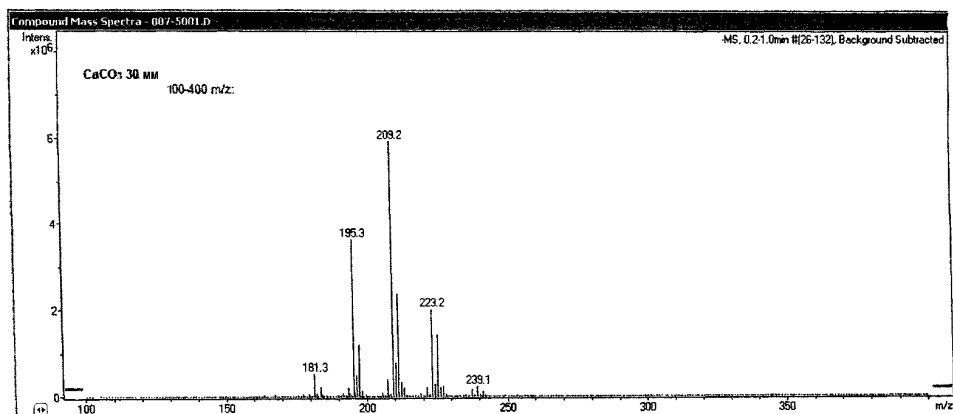
Фиг. 4 (продолжение)



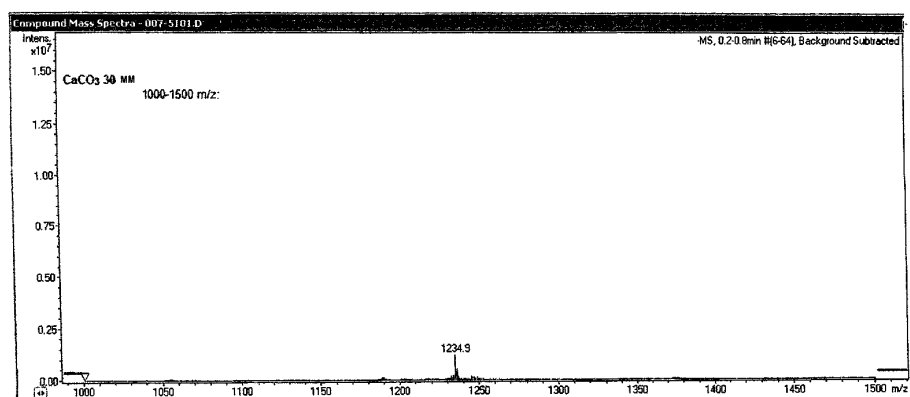
Фиг. 5



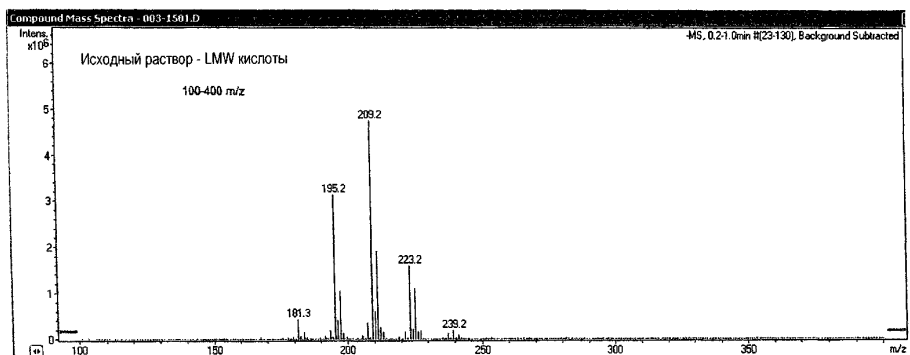
Фиг. 5 (продолжение)



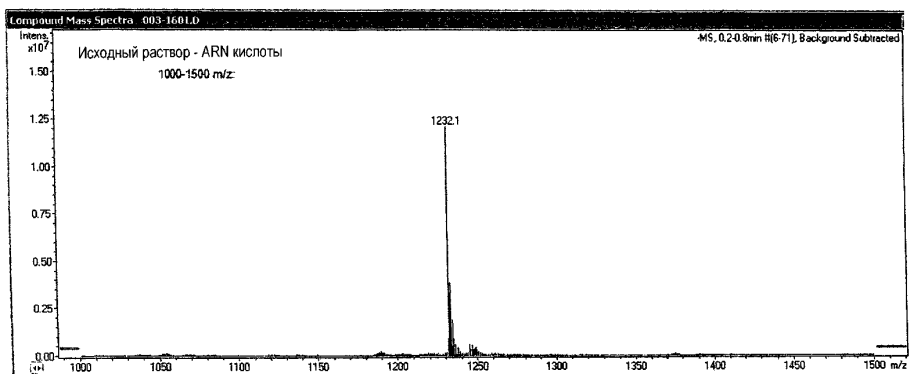
Фиг. 6



Фиг. 6 (продолжение)



Фиг. 7



Фиг. 7 (продолжение)