

文章编号:1673-5005(2012)03-0108-07

纳米颗粒吸附法减阻技术效果的快速评价方法

狄勤丰^{1,2}, 丁伟朋^{1,2}, 王新亮^{1,2}, 张任良^{1,2}, 顾春元^{1,2}, 龚 玮^{1,2}

(1. 上海大学 上海市应用数学和力学研究所, 上海 200072;

2. 上海大学 上海市力学在能源工程中的应用重点实验室, 上海 200072)

摘要:针对目前纳米颗粒吸附法减阻技术效果评价周期长、成本高的不足,通过分析目前室内评价方法及总结纳米颗粒吸附法减阻技术机制研究的成果,提出以岩心吸附片电镜扫描和接触角测试为手段的纳米颗粒吸附法减阻技术效果快速评价方法。基于纳米边界层水流滑移减阻机制,应用岩心等径毛管组模型和 Tolstoi 提出的滑移长度与接触角的关系,从理论上简要阐述该方法的内在机制。结果表明:新方法能有效缩短评价周期,降低试验成本;快速评价方法的内在机制为纳米颗粒在岩心微通道壁面吸附使表面的接触角超过 120° ,产生较显著的滑移效应,从而达到减阻效果。

关键词:纳米颗粒; 吸附; 减阻; 电镜扫描测试; 接触角; 快速评价

中图分类号:TE 357.46 **文献标志码:**A doi:10.3969/j.issn.1673-5005.2012.03.018

Rapid evaluation method of drag reduction effect for nanoparticles adsorption technology

DI Qin-feng^{1,2}, DING Wei-peng^{1,2}, WANG Xin-liang^{1,2},
ZHANG Ren-liang^{1,2}, GU Chun-yuan^{1,2}, GONG Wei^{1,2}

(1. Shanghai Institute of Applied Mathematics and Mechanics, Shanghai University, Shanghai 200072, China;

2. Shanghai Key Laboratory of Mechanics in Energy and Environment Engineering, Shanghai 200072, China)

Abstract: A new rapid evaluation method of drag reduction effect for nanoparticles adsorption technology was presented in order to simplify the existing evaluation procedure and reduce the evaluation cost. The SEM and contact angle test of the core slice adsorbed by nanoparticles were used to make the pre-evaluation in the new rapid evaluation method, which was based on the analysis of the existing evaluation methods and a lot of experimental drag reduction results of nanoparticles adsorption technology. Based on the theory of drag reduction caused by wall slip, the internal mechanism of the rapid evaluation method was studied by using the simplified model of core composed of capillaries with the same diameter and the relation between slip length and contact angle proposed by Tolstoi. The results show that the new method could make an evaluation effectively and quickly, the evaluation cycle could be shortened and the evaluation cost could be reduced in large amounts. The internal mechanism of the rapid evaluation method is that the contact angle is over 120° through the nanoparticles adsorption on the wall of core micro-channel, which produces phorogenesis and drag reduction effect.

Key words: nanoparticles; adsorption; drag reduction; SEM test; contact angle; rapid evaluation

纳米颗粒吸附法减阻技术(下称降压增注技术)是一种针对低渗透油田注水开发中普遍存在的高压欠注问题而提出的新兴物理法减阻技术,其通

过向储层注入带有特定性质纳米颗粒的增注液,使纳米颗粒在储层微通道壁面吸附,达到减小水流阻力和实现增注的目的。相对于酸化、压裂等储层改

收稿日期:2012-02-28

基金项目:国家自然科学基金项目(50874071);国家“863”计划项目(2008AA06Z201);上海市科委重点科技攻关计划项目(071605102);

上海高校创新团队建设项目;上海市教委科研创新项目(11CX32);上海领军人才基金项目

作者简介:狄勤丰(1963-),男(汉族),江苏溧阳人,教授,博士,博士生导师,主要从事石油工程技术及其相关力学问题研究。

造技术,纳米颗粒吸附法降压增注技术不仅降压增注效果好,有效期长,而且不会对储层造成永久伤害,特别是没有储层改造失败的风险,因此自从2000年由中石化从俄罗斯引进以来,该项技术就引起了广泛的关注^[1-2]。经过10余年的发展,中国在纳米颗粒吸附法降压增注技术方面取得了很大的进展^[3-6],但同时也还存在着许多值得进一步探讨的问题,其中之一就是制备与给定地层相匹配的纳米材料。石油储层的复杂性和不同油田区块储层之间的差异性使不同油田区块需要的纳米材料不同,故在特定油田区块实施纳米颗粒吸附法降压增注技术时,需要研制适合该区块的纳米材料。这个过程需要较长时间进行反复试验和评价,尤其是评价工作所占时间较长。笔者旨在探讨一种快速评价方法,以减少评价过程所占时间,缩短特定地层所需纳米材料的开发周期。

1 降压增注用纳米材料的开发过程和评价方法

适合某一低渗透储层的降压增注用纳米材料的开发大致需经历3个过程:纳米材料小样研制;中试纳米材料生产;矿场试验。如图1所示。首先根据给定低渗透储层的物性参数研制与其相适应的纳米材料样品,随后对其进行评价。评价过程主要包括:

(1)活化度评价。主要检验纳米颗粒表面修饰工艺的质量,即纳米材料的整体疏水性。活化度的

高低直接关系着润湿性反转效果,从而影响降压增注效果。

(2)吸附效果评价。主要利用扫描电镜(SEM)检验纳米颗粒能否在给定储层岩心薄片表面吸附并观察其表面形态。这是纳米颗粒吸附法降压增注技术的基础。

(3)润湿性反转效果评价。主要检验纳米颗粒吸附后能否使微通道壁面由强亲水转化为强疏水或超疏水。这是纳米颗粒吸附法能否产生滑移效应从而达到减阻效果的核心机制。

(4)减阻效果评价。虽然前面3个过程为纳米颗粒吸附法减阻准备了条件,但检验减阻效果的最好办法还是岩心流动试验。岩心流动试验可以采用实际岩心、地层水,并提供地层温度、压力等环境,能很好地模拟储层渗流特征。岩心流动试验的不足是试验时间较长。

为节约材料成本,以上过程在评价中逐步进行,任何一项未达标,都要重新研制纳米材料。小试样品在实验室内就可制备,性能较好控制,但中试样品的性能就较难控制,需要多次试验反复评价修正,所需的评价时间也较长。不难发现,纳米材料研制和室内评价过程存在着周期长、成本高的不足。根据以往经验,研发顺利时一个成熟产品需要1~2个月。这一问题严重制约了纳米颗粒吸附法降压增注技术的应用和发展。

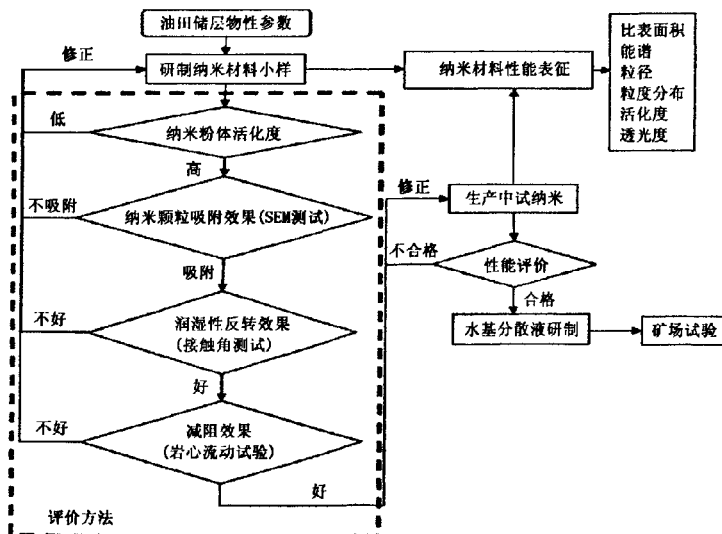


图1 纳米材料的开发过程

Fig. 1 Development process of nanomaterial

2 快速评价方法

2.1 方法的提出

在以前的研究过程中发现,减阻效果与纳米颗粒吸附效果及接触角之间存在着密切的联系。表1中列出了三者之间的对应关系。

表1 吸附片测试和岩心流动试验结果

Table 1 Results of core slice tests and core flow experiments

序号	纳米材料	吸附片测试		$k_{后}/k_{前}$ (岩心流动试验)
		纳米吸附情况 (电镜扫描)	水滴初始接触角 (接触角测试)/(°)	
1	SJS-2-1	有	123.20	1.66
2	SJS-2-2	有	120.40	1.45
3	SJS-2-3	有	127.90	2.28
4	SJS-3-1	有	100.73	0.93
5	SHN-2-1	有	127.30	2.59
6	SDG-2-2	有	133.17	1.11
7	SDG-2-2	有	112.35	1.24

由表1可看出,岩心吸附片上均有纳米颗粒吸附。当接触角大于 120° 时岩心流动试验结果显示均有降压增注效果,表明纳米颗粒吸附使岩心表面的接触角达到了强疏水状态,因而形成了较强的滑移效应,水流阻力下降,而且通常情况下接触角越大,渗透率提高幅度($k_{后}/k_{前}$)越大(对应减阻效果越好)。对于第4组试验,水滴接触角只有 100.73° ,从接触角来看表面特性接近中性特征,岩心流动试验也表明纳米颗粒吸附后岩心的渗透率没有提高。对于第6组试验,接触角测试达到了 133.17° ,但岩心流动试验表明纳米颗粒吸附后岩心的渗透率提高幅度不大,经分析这是由于采用多点法测试基于扩展达西定律回归所造成的,在渗透率上体现降压增注效果不明显,但按回归所得的启动压力有了很大的降低,综合考虑还是达到了很好的降压增注效果。对于第7组试验,水滴接触角为 112.35° ,从接触角来看表面改性不是很明显,岩心流动试验也表明纳米颗粒吸附后岩心的水相渗透率仅提高了24%。

针对这一情况,提出以岩心吸附片电镜扫描(SEM)检测和水滴接触角测试相结合的快速评价方法:当SEM检测到有纳米颗粒吸附且接触角 $\theta \geq 120^\circ$ 时就可认为该纳米材料对于该岩心具有降压增注效果,不进行后续岩心流动试验评价。具体流程如图2所示。

图2所示的快速评价方法能定性判断所研制的纳米材料对特定低渗储层是否有降压增注效果,

只有当SEM检测到纳米吸附且接触角小于 120° 时才进行岩心流动试验评价,这在纳米材料的研发过程中可大幅度降低岩心流动试验的次数,不仅降低了实际岩心的耗费量,节约了成本,而且可以缩短室内评价时间(约40%),加快了纳米材料的研发进程。

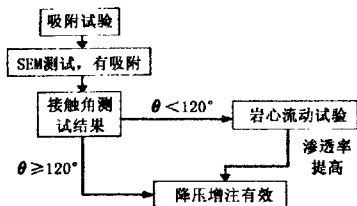


图2 纳米颗粒吸附法减阻效果快速评价方法

Fig.2 Rapid evaluation of drag reduction effect for nanoparticles adsorption method

由于储层结构的复杂性以及以岩心吸附片接触角表示的润湿性与储层微通道壁面的润湿性存在着区别,该快速评价方法只能对降压增注效果进行定性预测,对于效果的定量描述还有赖于岩心流动试验。

2.2 应用实例

油田1存在多个低渗透高压欠注区块,且存在着实施酸化等降压增注技术后增注效果不明显或有效期不长的现象。类似的油田2也存在着高压欠注问题,为了满足生产需求,决定实施纳米颗粒吸附法降压增注措施。根据油田提供的储层物性参数分别为油田1、油田2制备了SJH-2-1、SJS-2-1小试疏水纳米材料,颗粒粒径为 $10 \sim 40$ nm,比表面积 $350 \sim 380$ m^2/g ,活化度大于99%。

2.2.1 试验条件及方法

根据快速评价方法,先进行岩心薄片的纳米颗粒吸附试验制备岩心吸附片,再取样进行电镜扫描和接触角测试,最后为了验证快速评价方法的有效性进行岩心流动试验和矿场试验。

岩心片吸附试验:取纳米材料分散在精滤柴油中制成纳米颗粒分散液,打开水浴锅设定试验温度(地层温度),将饱和地层水的油田天然岩心薄片悬挂放入纳米颗粒分散液中,并放入水浴锅中保持恒温。浸泡一定时间,待吸附充分后,取出岩心片用烘箱干燥得到岩心吸附片。

电镜扫描:取一小块岩心吸附片,表面进行喷金处理,用SH-3000桌上型扫描电镜进行表面扫描,观察纳米颗粒的吸附情况。

接触角测试:采用OCA30光学接触角测试仪,选用 $3 \sim 5$ μL 的疏水测试针头,采用连续拍摄法,为

了尽量减少岩心薄片孔隙度对接触角的影响,接触角取初始值。

岩心流动试验:采用隔热式高温高压岩心流动试验仪,进行纳米颗粒吸附法减阻试验以验证快速评价方法的有效性。选用经洗油的该油田区块圆柱型岩心,先进行抽真空饱和地层水处理,装入岩心夹持器,设定试验温度(地层温度)、围压,经驱替先后建立束缚水和残余油,用地层水驱替测水相渗透率,驱替一定量纳米液后保压一定时间,再用地层水驱替,比较经纳米液处理前后水相渗透率的变化。

矿场试验:在小试纳米材料有效的基础上进一步制备了中试纳米材料,并结合研制的水基分散液

配置纳米颗粒分散液注入试验井,关井一定时间后开井注水,比较试验前后的注水生产参数。

2.2.2 试验结果分析

扫描结果:图3中(a)、(b)分别为油田1、油田2岩心吸附片上某点的5 000倍、2 000倍电镜扫描图片。从图3中可以看出,纳米颗粒在岩心片表面有较好吸附。

图4为岩心吸附片表面接触角测试结果。从图4中可以看出,油田1岩心水滴接触角达 126.6° ,油田2岩心水滴接触角为 131.65° ,均大于 120° ,根据快速评价方法,可知为两个油田研制的纳米材料对于所给定的区块均具有降压增注效果。

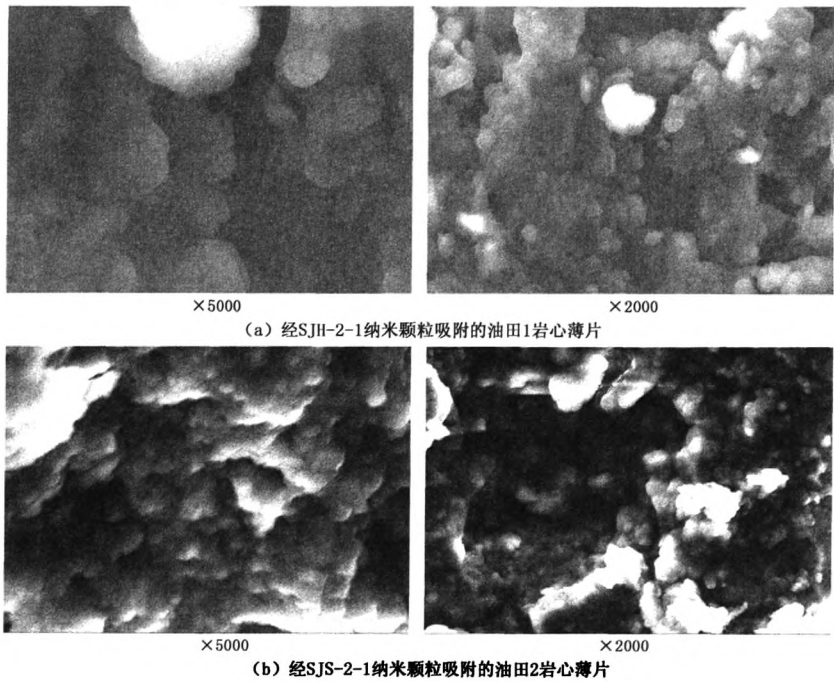


图3 小试纳米岩心吸附片电镜扫描结果

Fig.3 SEM results of core slice adsorbed by nanoparticles

为验证快速评价方法的有效性,分别用小试纳米材料 SJH-2-1 对油田 1 岩心、SJS-2-1 对油田 2 岩心进行岩心流动试验。其中油田 1 岩心长为 6.69 cm,直径为 2.5 cm,气测渗透率为 $16.337 \times 10^{-3} \mu\text{m}^2$,孔隙度为 0.098;油田 2 岩心长为 6.27 cm,直径为 2.5 cm,气测渗透率为 $96.33 \times 10^{-3} \mu\text{m}^2$,孔隙度为 0.191。图 5 为岩心流动试验所得的压力梯度与流量的关系曲线。根据扩展达西定律计算可得油田 1 岩心 $k_{1\text{前}} = 0.803 \times 10^{-3} \mu\text{m}^2$, $k_{1\text{后}} = 1.150 \times 10^{-3} \mu\text{m}^2$,渗透率提高了 43.2%;对于油田 2 岩心有 $k_{2\text{前}} = 1.074 \times 10^{-3} \mu\text{m}^2$, $k_{2\text{后}} = 1.189 \times 10^{-3} \mu\text{m}^2$,

渗透率提高了 10.7%。可见两个岩心流动试验结果均显示有降压增注效果,直接验证了快速评价方法的有效性。

在油田 1 的陵 76 斜 7-1 井和油田 2 沙 26-9 井用相应纳米材料实施了纳米颗粒吸附法降压增注措施,实施效果如图 6 所示。

从图 6(a)可以看出,油田 1 陵 76 斜 7-1 井在保持注水量基本一致的情况下试验前后的注水压力有了明显的降低,最大降幅达到了 14.5 MPa,稳定后注水压力的降低幅度达 5 MPa;试验后视吸水指数有了明显的提升,由试验前的 $1.95 \text{ m}^3/(\text{d} \cdot \text{MPa})$

上升到了最高值 $5.09 \text{ m}^3/(\text{d} \cdot \text{MPa})$, 后慢慢下降到 $2.2 \text{ m}^3/(\text{d} \cdot \text{MPa})$ 并趋于稳定, 取得了良好的降压增注效果。

由图 6(b) 可看出, 油田 2 沙 26-9 井试验前生产不稳定, 4 个月平均视吸水指数为 $1.4 \text{ m}^3/(\text{d} \cdot \text{MPa})$, 试验后, 注水压力由 23.5 MPa 下降到 10

MPa 左右, 视吸水指数为 $3.97 \text{ m}^3/(\text{d} \cdot \text{MPa})$, 视吸水指数在 $1.5 \text{ m}^3/(\text{d} \cdot \text{MPa})$ 以上的时间约为 8 个月。措施后不仅视吸水指数上升, 注水压力下降, 达到了降压增注效果, 而且达到了较长的有效期。

应用实例表明本文中提出的快速评价方法具有很好的可靠性。

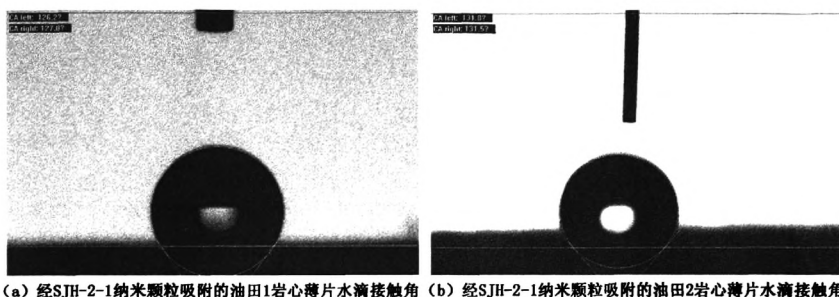


图 4 小试纳米岩心吸附片水滴接触角

Fig. 4 Contact angle of water drop on the surface of core slice adsorbed by nanoparticles

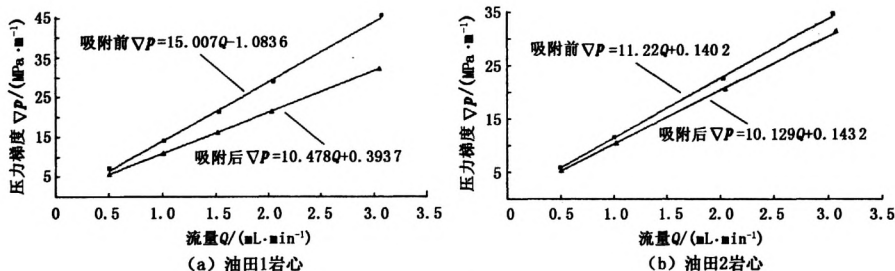


图 5 岩心纳米颗粒吸附前后水测压力梯度与流量关系曲线

Fig. 5 Relationship between pressure gradient and flow rate of core before and after adsorption of nanoparticles

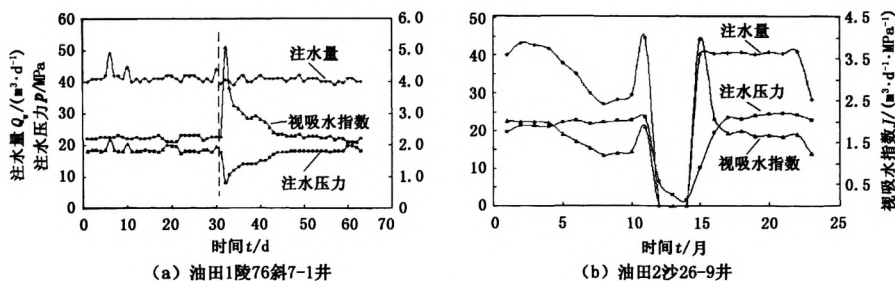


图 6 矿场试验效果

Fig. 6 Effect of field test

3 快速评价方法内在机制

对于纳米颗粒吸附法减阻效果, 狄勤丰等基于微米结构超疏水表面产生的水流滑移效应这一观点, 提出了纳米边界层的水流滑移减阻机制^[3-6], 并运用 LBM 方法对水流的减阻效果进行了模拟^[7-8],

研究了壁面润湿性、粗糙度等因素对水流减阻效果的影响, 合理地阐释了纳米颗粒吸附使微通道物理孔径减小但仍能达到减阻效果的现象。在这里, 滑移效应是减阻(在岩心流动试验中, 减阻效果主要通过水相渗透率的提高来反映)的根本, 而纳米颗粒吸附和形成超疏水表面又是产生滑移效应的前

提。下面探讨水相渗透率与滑移长度以及滑移长度与接触角之间的内在联系,进而说明快速评价方法的内在机制。

岩心是一种具有复杂内部结构的天然多孔介质,其常被简化为一束由 N 根长为 L 、半径为 r_0 的平行毛细管组成的圆柱形岩心模型(半径为 R_0),在 Navier 滑移边界条件下得到渗透率的表达式为

$$k = \frac{Nr_0^3}{8R_0^2} (r_0 + 4\lambda). \quad (1)$$

式中, k 为渗透率; λ 为滑移长度。若记无滑移(即 $\lambda = 0$)时渗透率为 k_0 ,则有

$$\frac{\Delta k}{k_0} = \frac{k - k_0}{k_0} = \frac{4\lambda}{r_0}. \quad (2)$$

滑移长度与接触角作为表征表面疏水特性的两个参量,两者之间存在着密切关系^[9-16]。Tolstoi 基于分子运动理论提出真空环境下固体表面液体分子的移动由流体在固体上的平衡接触角决定,并得到了滑移长度与接触角之间的关系^[9-10]

$$\lambda = \delta (\exp(\alpha S \sigma (1 - \cos \theta) / KT) - 1). \quad (3)$$

式中, δ 为相邻分子间的平均距离, nm; S 为微腔有效表面积, m^2 ; α 为微腔中固体面积所占的比例; σ 为液体表面张力, $\text{N} \cdot \text{m}^{-1}$; K 为波尔兹曼常数, J/K; T 为温度, K。

将式(3)代入式(2)并进行修正可得:

$$\frac{\Delta k}{k_0} = 4\delta \zeta (\exp(\alpha S \sigma (1 - \cos \theta) / KT) - 1) / r_0. \quad (4)$$

式中, ζ 为对式(3)的修正。从式(4)中可以看出,当其他参量不变时,渗透率随着接触角增大而增大,且接触角的变化主要通过函数 $f(\theta) = \exp(\alpha S \sigma (1 - \cos \theta) / KT) - 1$ 来影响渗透率的值。为了定性考察接触角的影响,令 $\alpha S \sigma / KT = A$,则有

$$f(\theta) = \exp(A(1 - \cos \theta)) - 1. \quad (5)$$

针对本文中的水滴接触角情况,取温度为 293 K 下水的相关参数,假设微腔有效面积 $S = \pi d^2$ (由水的密度计算可得每个水分子所占体积约为 $2.99 \times 10^{-29} \text{ m}^3$,假设水分子为球形分子,可得等效直径 $d = 0.385 \text{ nm}$),并取 $\alpha = 1/3$,则计算可得 $A = 2.79$,图 7 为式(5)对应的曲线。

从图 7 可以看出, $f(\theta)$ 在接触角为 120° 左右开始快速增大,当接触角达到或超过 120° 时,固体表面体现为强疏水性或超疏水性,从而能产生较大的边界滑移,显著提高水相渗透率。图 7 形象地说明了本文中提出的快速评价方法的内在机制。

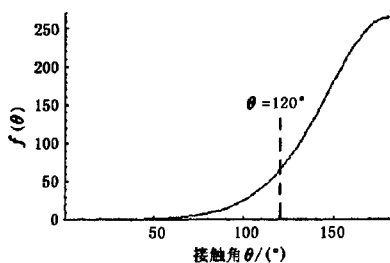


图 7 $A = 2.79$ 时函数 $f(\theta) = \exp(A(1 - \cos \theta)) - 1$ 曲线

Fig. 7 Curve of function $f(\theta) = \exp(A(1 - \cos \theta)) - 1$,

$A = 2.79$

4 结 论

(1)提出的以岩心吸附片电镜扫描和接触角测试为手段的纳米颗粒吸附法减阻技术效果的快速评价方法是:当岩心薄片有纳米颗粒吸附且水滴接触角不小于 120° 时就可直接认为该纳米材料对于该岩心具有降压增注效果。

(2)所提出方法快速有效,能减少岩心流动试验次数、缩短室内评价周期。

(3)快速评价方法的内在机制为纳米颗粒在岩心微通道壁面吸附使表面的接触角超过 120° ,产生较显著的滑移效应,从而达到减阻效果。

参考文献:

- [1] 陆先亮,吕广忠,栾志安,等. 纳米聚硅材料在低渗透油田中的应用[J]. 石油勘探与开发, 2003, 30(6): 110-122.
LU Xian-liang, LÜ Guang-zhong, LUAN Zhi-an, et al. Application of polysilicon in low permeability oil field [J]. Petroleum Exploration and Development, 2003, 30(6): 110-122.
- [2] 苏咸涛,闫军,吕广忠,等. 纳米聚硅材料在油田开发中的应用[J]. 石油钻采工艺, 2002, 24(3): 48-51.
SU Xian-tao, YAN Jun, LÜ Guang-zhong, et al. Application of nanometer polysilicon in oil field development [J]. Oil Drilling & Production Technology, 2002, 24(3): 48-51.
- [3] 狄勤丰,顾春元,施利毅,等. 疏水性纳米 SiO_2 增注剂的降压作用机理[J]. 钻采工艺, 2007, 30(4): 91-94.
DI Qin-feng, GU Chun-yuan, SHI Li-yi, et al. Pressure drop mechanism of enhancing water injection technology with hydrophobicity nanometer SiO_2 [J]. Drilling & Production Technology, 2007, 30(4): 91-94.

- [4] GU Chun-yuan, DI Qin-feng, FANG Hai-ping. Slip velocity model of porous walls absorbed by hydrophobic nanomaterial SiO_2 [J]. Journal of Hydrodynamics, 2007, 19(3):365-371.
- [5] LI Ding, DI Qin-feng, LI Jing-yuan, et al. Large slip length over a nanopatterned surface [J]. Chinese Physics Letter, 2007, 24(4):1021-1024.
- [6] 顾春元. 石油储层微孔道纳米减阻机理研究 [D]. 上海:上海大学上海市应用数学和力学研究所, 2008.
GU Chun-yuan. The mechanism of drag reduction with hydrophobic nanoparticles in reservoir microchannels [D]. Shanghai: Shanghai Institute of Applied Mathematics and Mechanics, Shanghai University, 2008.
- [7] ZHANG Ren-liang, DI Qin-feng, WANG Xin-liang, et al. Numerical study of wall wettabilities and topography on drag reduction effect in micro-channel flow by Lattice Boltzmann method [J]. Journal of Hydrodynamics, 2010, 22(3):366-372.
- [8] 张任良, 狄勤丰, 王新亮, 等. 用格子 Boltzmann 方法模拟壁面微结构对管流特性的影响 [J]. 计算物理, 2011, 28(2):225-229.
ZHANG Ren-liang, DI Qin-feng, WANG Xin-liang, et al. Lattice Boltzmann simulation of flow in a micro-channel [J]. Chinese Journal of Computational Physics, 2011, 28(2):225-229.
- [9] BLAKE Terence D. Slip between a liquid and a solid: D. M. Tolstoi's (1952) theory reconsidered [J]. Colloids and Surfaces, 1990, 47:135-145
- [10] ELLIS Jonathan S, MCHALE Glen, HAYWARD Gordon L, et al. Contact angle-based predictive model for slip at the solid-liquid interface of a transverse-shear mode acoustic wave device [J]. Journal of Applied Physics, 2003, 94(9):6201-6207
- [11] QU Jia, PEROT Blair, ROTHSTEIN Jonathan P. Laminar drag reduction in microchannels using ultrahydrophobic surfaces [J]. Physics of Fluids, 2004, 16:4635-4643.
- [12] SALIL Gogte, PETER Vorobieff, RICHARD Truesdell, et al. Effective slip on textured superhydrophobic surfaces [J]. Physics of Fluids, 2005, 17(5):051701-1-051701-4.
- [13] WATANABE K, YANUAR K, UDAGAWA H, et al. Drag reduction of Newtonian fluid in a circular pipe with a highly water-repellent wall [J]. Journal of Fluid Mechanics, 1999, 381:225-238.
- [14] VORONOV Roman S, PAPAVALASSILIOU Dimitrios V, LEE Lloyd L. Slip length and contact angle over hydrophobic surfaces [J]. Chemical Physics Letters, 2007, 441:273-276.
- [15] VORONOV Roman S, PAPAVALASSILIOU Dimitrios V, LEE Lloyd L. Boundary slip and wetting properties of interfaces; correlation of the contact angle with the slip length [J]. The Journal of Chemical Physics, 2006, 124:20471-1-20471-10.
- [16] VORONOV Roman S, PAPAVALASSILIOU Dimitrios V, LEE Lloyd L. Review of fluid slip over superhydrophobic surfaces and its dependence on the contact angle [J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2008, 47(8):2455-2477.

(编辑 李志芬)