НЕФТЕХИМИЯ, 2021, том 61, № 3, с. 337–346

УДК 665.7.033.28

КОМПЛЕКСНЫЙ АНАЛИЗ ПОКАЗАТЕЛЕЙ УСТОЙЧИВОСТИ АСФАЛЬТЕНОВ В РАЗЛИЧНЫХ УСЛОВИЯХ

© 2021 г. Syed Imran Ali[1,*], Shaine Mohammadali Lalji[1], Javed Haneef[1], Muhammad Arqam Khan[1], Clifford Louis[2]

[1] Department of Petroleum Engineering, NED University of Engineering & Technology, Karachi, 75270 Pakistan
[2] Department of Chemical and Petroleum Engineering, University of Calgary, 2500 University Drive NW, Calgary, Alberta, T2N 1N4 Canada
**E-mail: engrimran@neduet.edu.pk*

Поступила в редакцию 01 августа 2020 г.
После доработки 05 октября 2020 г.
Принята к публикации 18 марта 2021 г.

Данное исследование направлено на изучение эффективности семи параметров прогнозирования (предикторов) на основе количества насыщенных углеводородов, ароматических углеводородов, смол и асфальтенов (SARA), которые обычно используются для мониторинга риска осаждения асфальтенов в сырой нефти. Для прогнозирования используются 45 видов сырой нефти, стабильность которых уже известна из трех различных опытов, представленных в литературе. На основании этих опытов сырая нефть подразделяется на три состояния, по 15 проб нефти в каждом. Для определения эффективности предикторов проводится детальный статистический анализ. Установлено, что показатели предикторов изменяются при их применении к пробам нефтей из различных групп. Так, результаты показывают, что индекс коллоидной нестабильности (CII), график Станкевича (SP), классификатор стабильности Чамкалани (CSC) и модифицированный график Джамаля (M Jamal) являются хорошими методами прогнозирования для нестабильных проб, в то время как индекс стабильности (SI) и график Джамалуддина (Jamal) лучше прогнозируют стабильные пробы. Индекс коллоидной стабильности (CSI) оказался лучшим методом прогнозирования с точки зрения средней точности трех групп.[1]

Ключевые слова: асфальтены, осаждение, предикторы, стабильность, нестабильность, SARA

DOI: 10.31857/S0028242121030059

Проблема осаждения асфальтенов появилась в 1837 г. и актуальна для нефтяной промышленности на протяжении десятилетий [1, 2]. Асфальтены называют «холестерином нефти», потому что при определенных неблагоприятных условиях они начинают выпадать в осадок, превращаясь впоследствии в твердые отложения [3]. Осаждение асфальтенов относится к процессу, в котором они отделяются от сырой нефти, но остаются в ней во взвешенном состоянии благодаря своему небольшому размеру. Со временем частицы увеличиваются в размере за счет объединения друг с другом с образованием постепенно оседающих «хлопьев» асфальтенов [4, 5]. Отложения асфальтенов могут происходить как при добыче, так и при переработке нефти. Проблема может привести к техническим и финансовым трудностям с точки зрения производственных потерь и корректирующих действий [6–8].

Сырая нефть представляет собой сложную смесь углеводородов. Ее обычно подразделяют на четыре фракции: насыщенные углеводороды, ароматические углеводороды, смолы и асфальтены (SARA) [9, 10]. Среди этих фракций асфальтены – самые тяжелые и наиболее полярные компоненты нефти [10]. С точки зрения растворимости асфальтены обычно описываются как фракция сырой нефти, растворимая в ароматических соединениях (толуол,

[1] Дополнительные материалы для этой статьи, содержащие рис. S1–S15, доступны по doi 10.31857/S0028242121030059 для авторизованных пользователей.

бензол), но нерастворимая в *н*-алканах (*н*-пентан, *н*-гептан) [11]. Сырая нефть, не проявляющая склонности к выпадению асфальтенов, классифицируется как стабильная нефть, а в случае осаждения асфальтенов – как нестабильная [12]. Стабильность асфальтенов в сырой нефти зависит от множества факторов, таких как температура, давление, состав и электрокинетические эффекты [13]. В работе Buenrostro–Gonzalez и др. [14] сообщается, что растворимость асфальтенов в сырой нефти существенно зависит от состава, в меньшей степени от давления и косвенно от температуры.

В связи с комплексным характером проблемы были проведены многочисленные исследования стабильности асфальтенов в сырой нефти [15–22]. Многие исследователи твердо убеждены в том, что асфальтены проявляют нестабильность, когда нарушается равновесие между значениями SARA [10]. Смолы прочно связаны с асфальтенами из-за своей полярности и образуют защитный слой вокруг асфальтенов. Этот защитный слой разрушается при снижении давления, вызывающего расширение более легких углеводородов, или при смешивании нефти с более легкими сортами. Удаление слоя смолы происходит потому, что смолы смешиваются с более легкими компонентами, в то время как асфальтены не вызывают их агрегации и последующего отложения [10]. Ароматические углеводороды являются хорошими растворителями для асфальтенов, поддерживая их в стабильном состоянии [10]. Carbognani и Espidel [23] сообщили, что проблема отложения асфальтенов может быть общей для тех нефтеносных пластов, которые содержат большое количество насыщенных углеводородов, а не большое количество асфальтенов. Leontaritis и Mansoori [24] предположили, что о стабильности асфальтенов в сырой нефти можно судить по соотношению асфальтенов и смол.

Исследование стабильности асфальтенов в сырой нефти является сложной задачей и для ее решения были разработаны и использованы различные методы. Толуоловый эквивалент (TE) [20], параметр Хейтауса (Heithaus) (или Параметр) [20], Индекс корреляции Горного бюро США – эквивалент толуола (BCMI TE) [20] и значение P компании Shell [25] – вот некоторые из экспериментальных параметров, используемых для определения стабильности сырой нефти. Параметр Shell P характеризует тенденцию к флокуляции асфальтенов и прямо пропорционален стабильности [26]. Для проведения экспериментов в нефть добавляли осаждающий реактив для определения ее стабильности [20]. Кроме того, применяемые методы чувствительны к типу осаждающих реактивов и используемого оборудования, они дороги, требуют много времени и могут давать ошибочные результаты, если обработка и анализ не выполняются должным образом. Другой способ определить риск осаждения асфальтенов – использование индексов и сводных графиков на основе SARA [15, 27]. Этот метод является быстрым, простым и менее дорогим, так как требует очень мало данных о составе [27]. Он может быть использован в качестве скринингового теста для предварительного изучения стабильности сырой нефти с целью определения сценариев для дальнейшего экспериментального исследования [27].

Индексы и сводные графики на основе SARA часто используются для оценки стабильности сырой нефти [10, 15, 20, 27–31]. Однако у этого метода есть недостатки [27, 28]. Значения SARA могут быть определены различными аналитическими методами, причем значения, полученные каждым методом, значительно отличаются. Поскольку эти значения используются в качестве исходных данных для индексов и сводных графиков на основе SARA, прогнозирование может давать неточные результаты [27, 28]. Другая проблема заключается в том, что некоторые предикторы или индексы лучше прогнозируют определенный класс нефти или дают завышенный прогноз по определенному классу.

Pereira и др. [27], прогнозируя состояние стабильности различных сортов нефти с использованием четырех методов прогнозирования, указали, что график, основанный на методе Джамалуддина, предсказывает, что большинство сортов нефти стабильны. Moura и др. [20] экспериментально исследовали стабильность сырой нефти и обнаружили, что индекс коллоидной нестабильности (CII) классифицирует всю нефть как нестабильную. R. Guzman и др. [15] в своем исследовании обнаружили, что методы прогнозирования предсказывают нестабильность лучше, чем стабильность.

До сих пор было проведено ограниченное количество исследований для оценки методов про-

гнозирования стабильности асфальтенов и все они были основаны на качественном анализе. В данном исследовании проводится подробный количественный анализ семи показателей прогнозирования, а именно: Индекса коллоидной нестабильности (CII) [15, 29], Индекса стабильности (SI) [32], Индекса коллоидной стабильности (CSI) [15, 19, 30], графика Станкевича (Stankiewicz plot) (SP) [33], Классификатора стабильности Чамкалани (Chamkalani Stability Classifier) (CSC) [34], Метода Джамалуддина (Jamaluddin Method) (Jamal) [27, 35] и Модифицированного метода Джамалуддина (Modified Jamaluddin's Method) (M Jamal) [27], выполняемого с использованием статистических параметров. Оценка этих методов прогнозирования выполняется по трем различным группам. Две группы относятся к тем пробам нефти, стабильность которых определяется экспериментальным путем, а третья относится к пробам нефти, стабильность которых определяется по опыту эксплуатации. В каждой группе используется пятнадцать проб нефти. Также представлены ограничения методов прогнозирования.

ПАРАМЕТРЫ ОЦЕНКИ ЭФФЕКТИВНОСТИ

Для определения эффективности каждого метода прогнозирования стабильности асфальтенов первым шагом является построение матрицы несоответствий 2×2 или таблицы непредвиденных обстоятельств.

На рис. 1 показана матрица несоответствий с четырьмя возможными исходами. Желтая диагональ представляет правильные, а зеленая диагональ – неправильные прогнозы. Если проба стабильная (положительная) и классифицируется как стабильная (положительная) методом прогнозирования, тогда она называется истинно положительной (TP), но если она классифицируется как нестабильная (отрицательная), она считается ложно отрицательной (FN) или типом погрешности II. С другой стороны, если проба нестабильная (отрицательная) и прогнозируется как нестабильная (отрицательная), то она называется истинно отрицательной (TN), иначе она считается ложноположительной (FP), погрешностью типа I или ложным сигналом [36, 37].

Матрица несоответствий используется для расчета различных параметров эффективности.

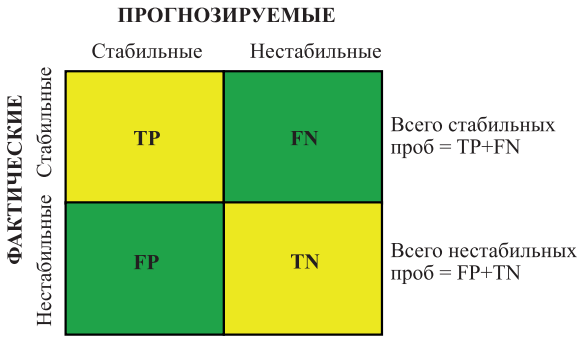

Рис. 1. Матрица несоответствий 2×2.

В этом исследовании мы рассчитали следующие параметры оценки для определения эффективности различных методов прогнозирования:

1. Точность (ACC)
2. Чувствительность (TPR) и специфичность (TNR).
3. Ложноположительные оценки (FPR) и ложноотрицательные оценки (FNR)
4. Прогностические значения (PPV и NPV).
5. Индекс Юдена (Youden's index) (YI)
6. F-измерение (F-M)
7. Сбалансированный классификационный коэффициент (Balanced classification rate) (BCR)
8. Среднее геометрическое (GM)
9. Каппа Коэна (Cohen's Kappa) (или Kappa)

Подробная информация о параметрах оценки доступна в литературе [36, 37].

СБОР ДАННЫХ

Чтобы оценить эффективность методов прогнозирования стабильности асфальтенов, в ходе различных исследований были взяты 45 проб нефти с известным состоянием стабильности. Состояние стабильности этих проб было определено на основании трех различных опытов или групп. Две группы основаны на эксперименте, а одна – на опыте эксплуатации. Каждая группа содержит 15 проб нефти. Группа 1 включает пробы нефти, стабильность которых определяется из опыта эксплуатации [38]. Группа 2 включает пробы нефти, стабильность которых определяется экспериментально методом определения значения P, разработанным компанией Shell [25, 39]. Стабильность проб нефти из группы 3 определяется экспериментально с

Таблица 1. Аналитические методы, используемые в научных исследованиях для определения составных частей SARA

Ссылки	Используемый метод
E. Rogel и др. [38]	TLC–FID
O. Ocanto и др. [25], F. Marcano и др. [39]	–
L.G.M. Moura и др. [20]	ASTM D5186-03 и жидкостная хроматография

Таблица 2. Прогнозы семи методов прогнозирования, средние прогнозы и опыт эксплуатации 15 проб нефти из группы 1[а–г]

Сырая нефть	Sat/Arom	Asph/Resin	Asph+Sat	Arom+Resin	CII	SI	CSI	SP	CSC	Jamal	M Jamal	Avg. PRED	OP. EXP
U2	1.22	0.30	48.20	51.98	U	S	U	U	U	S	U	U	U
U16	1.36	0.22	49.16	50.84	U	S	U	U	U	S	S	U	U
U94	1.1	0.51	53.86	46.23	U	U	U	U	U	U	U	U	U
U16L	1.31	0.36	53.02	47.06	U	U	U	U	U	U	U	U	U
U91	1.42	0.46	53.99	46.00	U	U	U	U	U	U	U	U	U
U98	1.31	0.45	53.09	46.91	U	U	U	U	U	U	U	U	U
U100	1.54	0.23	56.41	43.58	U	S	U	U	U	S	S	U	U
U103	1.51	0.14	56.35	43.66	U	S	U	S	U	S	S	S	U
S4	1.29	0.18	51.33	48.67	U	S	S	S	U	S	S	S	S
S27	1.18	0.60	50.68	49.31	U	U	S	U	U	U	U	U	S
S24S	1.20	2.42	55.68	43.87	U	U	U	U	U	U	U	U	S
S23	1.73	0.16	54.25	45.76	U	S	S	U	U	S	S	S	S
C22	1.80	0.16	56.81	43.19	U	S	S	U	U	S	S	S	S
S20	0.78	0.23	37.38	62.62	S	S	S	U	S	S	S	S	S
S277	0.58	0.27	32.14	67.87	S	S	S	U	S	S	U	S	S

[а] Результаты CII, CSI и SI получены из расчетов, а результаты SP, CSC, Jamal и M Jamal получены из сводных графиков SARA.
[б] Символы U и S обозначают нестабильное и стабильное состояние, соответственно.
[в] Sat, Arom, Asph и Resin обозначают насыщенные углеводороды, ароматические углеводороды, асфальтены и смолы, соответственно.
[г] Avg. PRED и OP. EXP означает, соответственно, средний прогноз и опыт эксплуатации.

помощью параметра Хейтауса (Heithaus Parameter) (параметр P) [20]. На рис. S1–S3 (Дополнительные материалы) показаны значения SARA для проб нефти.

В табл. 1 представлены аналитические методы, применявшиеся для определения значений SARA проб нефти в исследовательских работах, используемых и в данном исследовании. Очевидно, что методы определения данных SARA либо недоступны, либо получены другим способом. Несмотря на это ограничение, проводится качественный анализ данных SARA с целью проведения надежных исследований. Для получения правильных результатов методов прогнозирования стабильности асфальтенов чрезвычайно важно, чтобы сумма весовых процентов насыщенных углеводородов, ароматических углеводородов, смол и асфальтенов в каждой пробе сырой нефти была равна 100. Таким образом, составные части показателя SARA по каждой пробе нефти складываются и в сумме составляют примерно 100% для всех сортов нефти.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. S4–S7 и в табл. 2 и 3 представлены результаты применения методов прогнозирования и их эффективность. Из табл. 2 можно видеть, что стабильность четырех проб нефти, а именно U16L, U91, U94 и U98, правильно предсказывается всеми методами прогнозирования. С другой стороны, все методы прогнозирования не смогли предсказать со-

Таблица 3. Эффективность методов прогнозирования по пробам нефти из группы 1

Метод прогнозирования	TP	FP	FN	TN	ACC	TPR	TNR	FPR	FNR	PPV	NPV	YI	BCR	F–M	GM	Kappa
CII	2	0	5	8	0.66	0.28	1.00	0	0.714	1.00	0.61	0.28	0.64	0.44	0.53	0.29
SI	5	4	2	4	0.60	0.71	0.50	0.50	0.280	0.55	0.66	0.21	0.60	0.62	0.59	0.21
CSC	2	0	5	8	0.66	0.28	1.00	0	0.710	1.00	0.61	0.28	0.64	0.44	0.53	0.29
CSI	6	0	1	8	0.93	0.85	1.00	0	0.140	1.00	0.88	0.85	0.92	0.92	0.92	0.86
SP	1	1	6	7	0.53	0.14	0.87	0.12	0.850	0.50	0.53	0.01	0.50	0.22	0.35	0.01
Jamal	5	4	2	4	0.60	0.71	0.50	0.50	0.280	0.56	0.66	0.21	0.60	0.62	0.59	0.19
M Jamal	4	3	3	5	0.60	0.57	0.62	0.37	0.420	0.57	0.62	0.19	0.59	0.57	0.59	0.19

стояние стабильности S24S. Это связано с тем, что S24S, как ожидается, будет демонстрировать нестабильность из-за исключительно низкого содержания смолы и высокого содержания асфальтенов, но эта проба является стабильной в эксплуатации. Методы CII и CSC дают одинаковые прогнозы. Кроме того, средний прогноз методов прогнозирования стабильности показывает, что нестабильность прогнозируется несколько лучше, чем стабильность.

Согласно табл. 3 значения ACC, YI, BCR, GM, F-measure и Kappa ясно показывают, что ни один из методов прогнозирования на основе SARA не дает высокоточных результатов, кроме CSI. Более высокие значения TPR, TNR, PPV и NPV для CSI говорят о том, что этот индекс хорошо предсказывает как стабильность, так и нестабильность. Статистические характеристики классификатора Чамкалани и CII одинаковы. Хотя методы CII и CSC не давали хороших прогнозов стабильности, на что указывают их более низкие значения TPR, тем не менее, эти методы прогнозирования не предсказали ни одной нестабильной пробы как стабильной. Вот почему их PPV высокий (+1). С другой стороны, значения TPR у методов SI и Jamal высоки по сравнению с их PPV, потому что, предсказывая большее количество стабильных проб как стабильных, они также предсказали чрезвычайно нестабильную пробу как стабильную. Значение TNR, равное 1 для CII, CSC и CSI, указывает, что эти методы правильно предсказывают все нестабильные пробы. Однако их более низкие значения NPV показывают, что эти методы прогнозирования предсказывают некоторые стабильные пробы как нестабильные. SP и M Jamal также относятся к числу тех методов прогнозирования, которые предсказывают нестабильность лучше, чем стабильность. Более низкие значения YI, F-меры, BCR, GM и Kappa для всех методов прогнозирования, кроме CSI, объясняются тем, что они не могут хорошо предсказывать одновременно стабильность и нестабильность.

Подводя итог, можно сказать, что методы CII, CSC, SP и M Jamal хорошо предсказывают нестабильность, в то время как SI и Jamal являются хорошими предсказателями стабильности. Метод CSI демонстрирует баланс в прогнозировании, так как хорошо классифицирует оба класса. Наконец, эффективность методов прогнозирования можно расположить в следующей последовательности: CSI > CII, CSC >SI, Jamal и M Jamal > SP.

На рис. S8–S11 и в табл. 4 и 5 показаны результаты для проб нефти из группы 2. Согласно табл. 4, три пробы, а именно: Hamaca, Mesa 30 и Ceuta, правильно предсказаны, в то время как UD-672 и PTZL предсказаны ошибочно всеми методами прогнозирования. Возможная причина неудачного прогноза в случае UD-672 и PTZL связана с более низкими значениями отношения насыщенных углеводородов к ароматическим углеводородам и асфальтенов к смолам. Методы CII и CSC снова дают одинаковые прогнозы. В целом, 10 из 15 средних прогнозов оказываются верными: 6 из 9 по стабильности и 4 из 6 по нестабильности.

Согласно табл. 5, одинаковые и более высокие значения ACC, YI, BCR, GM, F-M и Kappa для CII, CSC и CSI указывают на то, что эти методы прогнозирования одинаково хорошо работают как для стабильных, так и для нестабильных проб.

Значение TPR, равное 1 в случае CII, CSI и CSC, показывает, что все стабильные пробы предсказаны правильно. Низкое значение TNR, но высокое значение NPV, равное 1, для методов CII, CSI и CSC показывает, что несмотря на то, что не все нестабильные пробы были классифицированы пра-

Таблица 4. Прогнозы семи методов прогнозирования, средние прогнозы и опыт эксплуатации 15 проб нефти из группы 2[а–г]

Сырая нефть	Sat/Arom	Asph/Resin	Asph+Sat	Arom+Resin	CII	SI	CSI	SP	CSC	Jamal	M Jamal	Avg. PRED	EX. EXP
Bachaquero	0.76	0.45	38.00	62.00	S	U	S	U	S	U	U	U	S
Boscan [25]	0.43	0.40	29.00	71.00	S	U	S	S	S	U	U	S	S
Sur Mediano	0.89	0.31	36.00	63.00	S	S	S	U	S	S	U	S	S
Hamaca [25]	0.58	0.23	24.00	76.00	S	S	S	S	S	S	S	S	S
Merey 16	1.04	0.42	40.00	60.00	S	U	S	U	S	U	U	U	S
Carabobo	0.68	0.26	30.00	70.00	S	S	S	S	S	S	U	S	S
Monagas	4.29	0.08	62.00	38.00	U	S	U	U	U	S	S	U	U
Ceuta	2.00	0.38	58.00	42.00	U	U	U	U	U	U	U	U	U
CNS	0.78	0.41	36.00	64.00	S	U	S	U	S	U	U	U	S
PTZL	1.06	0.14	39.00	61.00	S	S	S	S	S	S	S	S	U
Mesa 30	1.76	0.48	54.00	46.00	U	U	U	U	U	U	U	U	U
UD-672	0.73	0.09	26.00	74.00	S	S	S	S	S	S	S	S	U
Hamaca [39]	0.76	0.30	32.00	68.00	S	S	S	U	S	S	U	S	S
Boscan [39]	0.33	0.37	26.00	74.00	S	U	S	S	S	U	U	S	S
Furrial [39]	1.96	0.31	59.00	41.00	U	S	U	U	U	S	U	U	U

[а] Результаты CII, CSI и SI получены из расчетов, а результаты SP, CSC, Jamal и M Jamal – из сводных графиков SARA.
[б] Символы U и S обозначают нестабильное и стабильное состояние, соответственно.
[в] Sat, Arom, Asph и Resin обозначают насыщенные углеводороды, ароматические углеводороды, асфальтены и смолы, соответственно.
[г] Avg. PRED и EX. EXP означает, соответственно, средний прогноз и экспериментальный опыт.

Таблица 5. Эффективность методов прогнозирования по пробам нефти из группы 2

Метод прогнозирования	TP	FP	FN	TN	ACC	TPR	TNR	FPR	FNR	PPV	NPV	YI	BCR	F–M	GM	Kappa
CII	9	2	0	4	0.86	1.00	0.66	0.30	0	0.81	1.00	0.66	0.83	0.90	0.81	0.70
SI	4	4	5	2	0.40	0.40	0.33	0.60	0.50	0.50	0.29	0.22	0.38	0.47	0.38	0.21
CSC	9	2	0	4	0.86	1.00	0.66	0.30	0	0.81	1.00	0.66	0.83	0.90	0.81	0.70
CSI	9	2	0	4	0.86	1.00	0.66	0.30	0	0.81	1.00	0.66	0.83	0.90	0.81	0.70
SP	4	2	5	4	0.53	0.40	0.66	0.30	0.50	0.66	0.44	0.11	0.55	0.53	0.54	0.10
Jamal	4	4	5	2	0.40	0.40	0.33	0.70	0.50	0.50	0.29	0.22	0.38	0.47	0.38	0.21
M Jamal	1	3	8	3	0.26	0.10	0.50	0.50	0.80	0.25	0.27	0.38	0.30	0.15	0.23	0.34

вильно, данные методы прогнозирования не предсказали нестабильность какой-либо стабильной пробы. Более низкий PPV по сравнению с TPR для CII, CSI и CSC показывает, что эти методы прогнозирования предсказывают нестабильные пробы как стабильные. Несмотря на то, что у методов SP и M Jamal значение TNR выше, чем TPR, данные методы прогнозирования хорошо предсказывают нестабильность по сравнению с предсказаниями стабильности, но более низкий NPV свидетельствует о том, что несколько стабильных проб были классифицированы неправильно. Более высокие значения TPR и PPV по сравнению со значениями TNR и NPV, соответственно, для методов SI и Jamal указывают на то, что эти методы лучше предсказывают стабильность. Более низкие значения YI, BCR, F-M, GM и Kappa для всех методов прогнозирования, кроме CII, CSC и CSI, указывают на то, что эти методы прогнозирования не могут одновременно классифицировать нестабильные и стабильные пробы. В заключение можно сказать, что в этом состоянии все методы прогнозирования, кроме SP и M Jamal, предсказывают стабильность лучше, чем нестабильность. Различные методы прогнозирования стабильности по своей эффективности располагаются в следующем порядке: CSI, CII, CSC > SP > Jamal, SI > M Jamal.

Таблица 6. Прогнозы семи методов прогнозирования, средние прогнозы и опыт эксплуатации 15 проб нефти из группы 3[а–г]

Сырая нефть	Sat/Arom	Asph/Resin	Asph+Sat	Arom+Resin	CII	SI	CSI	SP	CSC	Jamal	M Jamal	Avg. PRED	EX. EXP
P01	1.37	0.04	48.8	51.20	U	S	S	S	U	S	S	S	S
P02	1.43	0.11	47.1	52.90	U	S	S	S	U	S	S	S	S
P03	2.09	0.11	57.1	42.90	U	S	S	U	U	S	S	S	S
P06	2.13	0.24	60.4	39.60	U	S	U	U	U	S	S	U	S
P08	2.68	0.02	58.3	41.80	U	S	S	S	U	S	S	S	S
P09	3.74	0.11	69.4	30.90	U	S	U	U	U	S	S	U	S
P10	2.00	0.16	60.2	39.80	U	S	U	U	U	S	S	U	S
P11	1.53	0.48	52.9	47.10	U	U	S	U	U	U	U	U	S
P13	1.61	0.15	48.7	51.20	U	S	S	S	U	S	S	S	S
P18	2.12	0.03	54.8	45.20	U	S	S	S	U	S	S	S	S
P20	6.52	0.01	80.9	19.20	U	S	U	S	U	S	S	S	S
P21	1.56	0.10	50.1	49.90	U	S	S	S	U	S	S	S	S
P22	1.44	0.51	50.1	49.90	U	U	S	U	U	U	U	U	S
P27	1.71	0.04	48.8	51.20	U	S	S	S	U	S	S	S	S
P28	1.26	0.39	47.5	52.25	U	U	U	U	U	U	U	U	U

[а] Результаты CII, CSI и SI получены из расчетов, а результаты SP, CSC, Jamal и M Jamal получены из сводных графиков SARA.
[б] Символы U и S обозначают нестабильное и стабильное состояние, соответственно.
[в] Sat, Arom, Asph и Resin обозначают насыщенные углеводороды, ароматические углеводороды, асфальтены и смолы, соответственно.
[г] Avg. PRED и EX. EXP означает, соответственно, средний прогноз и экспериментальный опыт.

Таблица 7. Эффективность методов прогнозирования по пробам нефти из группы 3[а]

Метод прогнозирования	TP	FP	FN	TN	ACC	TPR	TNR	FPR	FNR	PPV	NPV	YI	BCR	F–M	GM	Kappa
CII	0	0	14	1	0.06	0.000	1.00	0	1.00	–	0.06	0.00	0.50	–	0.00	0.00
SI	12	0	2	1	0.86	0.857	1.00	0	0.14	1.00	0.33	0.85	0.92	0.92	0.92	0.44
CSC	0	0	14	1	0.06	0.000	1.00	0	1.00	–	0.06	0.00	0.50	–	0.00	0.00
CSI	10	0	4	1	0.73	0.710	1.00	0	0.28	1.00	0.20	0.71	0.85	0.83	0.84	0.25
SP	8	0	6	1	0.60	0.570	1.00	0	0.42	1.00	0.14	0.57	0.78	0.72	0.75	0.15
Jamal	12	0	2	1	0.86	0.850	1.00	0	0.14	1.00	0.33	0.85	0.92	0.92	0.92	0.44
M Jamal	12	0	2	1	0.86	0.850	1.00	0	0.14	1.00	0.33	0.85	0.92	0.92	0.92	0.44

[а] «–» Указывает на неопределенное значение.

На рис. S12–S15 и в табл. 6 и 7 показаны результаты для проб нефти из группы 3. Как видно из табл. 6, только одна проба сырой нефти, а именно P28, правильно классифицируется всеми методами прогнозирования. Методы CII и CSC дали одинаковые прогнозы и классифицировали все пробы нефти как нестабильные. Все методы прогнозирования, кроме CSI, предсказывают P11 и P22 как нестабильные, а не как стабильные из-за высокого содержания асфальтенов. Методы SI, Jamal и M Jamal дают такие же более высокие прогнозы, потому что большинство стабильных проб имеют низкое значение Asph/Resin (за исключением P11 и P22). 10 прогнозов из 15 совпадают с экспериментальными результатами.

Согласно табл. 7 более высокие значения характеристических параметров, а именно ACC, YI, BCR, GM, F-M и Kappa, указывают на то, что методы SI, Jamal, M Jamal и CSI работали лучше, чем другие методы прогнозирования. Методы CII и CSC дают одинаковые прогнозы. TNR для всех методов прогнозирования равен 1, потому что все методы прогнозирования правильно предсказывают одну нестабильную пробу. В этом случае значение TNR может вводить в заблуждение, поскольку оно влияет на такой параметр, как BCR, давая

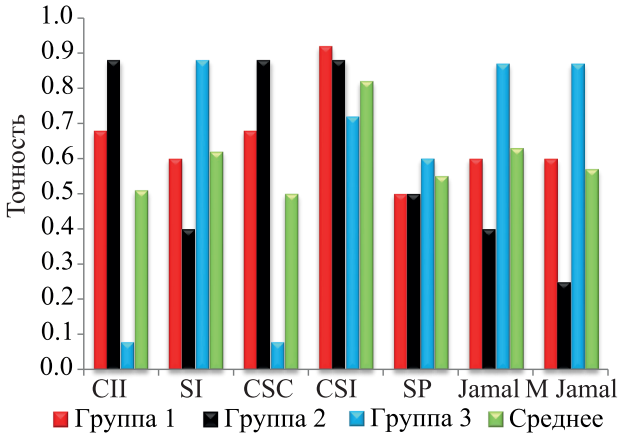

Рис. 2. Точность методов прогнозирования для каждой группы по сравнению со средней точностью.

более высокие значения для CII и CSC вместо их низких показателей. PPV всех методов прогнозирования равен 1, потому что ни одна нестабильная проба не предсказана как стабильная. Более высокий TPR и более низкий NPV для SI, Jamal, M Jamal и CSI указывают на то, что эти методы прогнозирования, правильно предсказывая более стабильные пробы, предсказали несколько стабильных проб как нестабильные. GM для CII и CSC равен нулю, потому что ни одна из стабильных проб не предсказывается правильно. В этом случае SI, Jamal, M Jamal и CSI хорошо предсказывают стабильность, но, с другой стороны, нестабильность превосходно предсказывается всеми методами прогнозирования. Здесь суждения о нестабильности могут быть обманчивыми, потому что вывод делается на основе только одной пробы. Наконец, эффективность различных методов прогнозирования располагаются в следующей последовательности: SI, Jamal, M Jamal > CSI > SP > CII, CSC.

Обобщая полученные данные, можно сделать вывод, что эффективность методов прогнозирования значительно варьируется в каждой группе нефти. Это связано с тем, что способ определения стабильности или факторов, влияющих на пробы нефти каждой группы, различается. В каждой группе выявлено несколько случаев, когда большинство или все методы прогнозирования не давали правильных прогнозов. Это происходило из-за того, что стабильность нефти вместе с ее составом зависит от таких факторов, как физико-химические свойства дисперсной и непрерывной фаз [15], а также от состава и структурных параметров асфальтенов и смол [40]. К сожалению, данные методы прогнозирования не принимают во внимание эти факторы в своих расчетах.

Метод CSI показал лучшие результаты во всех случаях, поскольку он хорошо предсказывает как стабильность, так и нестабильность. Методы CII и CSC дали одинаковые результаты во всех случаях. Методы CII, CSC, CSI, M Jamal и SP предсказывают нестабильность лучше, чем стабильность (кроме методов CII, CSI и CSC для группы 2). Напротив, SI и Jamal предсказывают стабильность лучше, чем нестабильность. Кроме того, также очень важно упомянуть, что эффективность методов прогнозирования стабильности зависит от групп нефти. Можно видеть, что для группы 3 точность методов SI и Jamal улучшилась, потому что предсказано 14 стабильных проб из 15, и эти методы прогнозирования лучше предсказывают стабильность. Несмотря на то, что метод M Jamal лучше прогнозирует нестабильность, он хорошо работает в группе 3. Он правильно предсказывает большое количество стабильных проб, потому что значение Asph/Resin для стабильных проб в этом наборе проб чрезвычайно низкое.

На рис. 2 показана средняя точность всех параметров стабильности. Метод CSI предсказывает стабильность нефти во всех трех группах с высокой точностью. Возможная причина его превосходной эффективности связана с тем, что он учитывает уровень стабильности сырой нефти для использования диэлектрической проницаемости асфальтенов и смолы в своей формуле. Эта практика обеспечивает методу CSI хорошие результаты прогнозирования. Но для любого метода прогнозирования важно точно предсказывать характер стабильности нефти без какой-либо предварительной информации о ее состоянии, чего нельзя сказать о методе CSI.

Из этого исследования можно сделать следующие выводы:

1. Как правило, методы CII, CSC, SP и M Jamal хорошо предсказывают нестабильность, в то время как SI и Jamal хорошо предсказывают стабильность нефти.

2. Метод CSI предсказывает оба свойства (стабильность и нестабильность) с хорошей точностью

благодаря включению в его формулу различных диэлектрических постоянных для смол и асфальтенов после рассмотрения состояния стабильности нефти.

ИНФОРМАЦИЯ ОБ АВТОРАХ

Syed Imran Ali, ORCID: http://orcid.org/0000-0003-0133-9455

Shaine Mohammadali Lalji, ORCID: http://orcid.org/0000-0002-0253-8248

Javed Haneef, ORCID: http://orcid.org/0000-0001-8901-2267

Muhammad Arqam Khan, ORCID: http://orcid.org/0000-0001-8665-7705

Clifford Louis, ORCID: http://orcid.org/0000-0001-7673-2302

БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы благодарны г-же Зехре Мусса (Ms. Zehra Moussa) за дополнительную поддержку и руководство.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов, требующего раскрытия в данной статье.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Karambeigi M.A., Kharrat R., Mahdavi S.* Investigation of inhibitors' performance on different asphaltenic crude oils // Energy Sources. Part A: Recovery, Utilization, and Environmental Effects. 2015. V. 37. P. 1715–1722. https://doi.org/10.1080/15567036.2011.585380
2. *Creek J.L.* Freedom of action in the state of asphaltenes: Escape from conventional wisdom // Energy Fuels. 2005. V. 19. P. 1212–1224. https://doi.org/10.1021/ef049778m
3. *Boek E.S., Wilson A.D., Padding J.T., Headen T.F., Crawshaw J.P.* Multi-scale simulation and experimental studies of asphaltene aggregation and deposition in capillary flow // Energy Fuels. 2010. V. 24. P. 2361–2368. https://doi.org/10.1021/ef9010059
4. *Seifried C.M.* Asphaltene precipitation and deposition from crude oil with CO_2 and hydrocarbons: Experimental investigation and numerical simulation. Imperial College London, Department of Chemical Engineering. Sept. 2016.
5. *Shadman M.M., Dehaghani A.H.S., Badizad M.H.* How much do you know about the methods for determining onset of asphaltene precipitation? // Petroleum. 2017. V. 3. P. 287–291. https://doi.org/10.1016/j.petlm.2016.08.011
6. *Davudov D., Moghanloo R.G., Flom J.* Scaling analysis and its implication for asphaltene deposition in a wellbore // SPE J. 2018. V. 23. P. 274–285. https://doi.org/10.2118/187950-pa
7. *Flom J., Moghanloo R.G., Davudov D.* Effects of hydrodynamic properties on asphaltene deposition in wellbore // J. Petrol. Sci. Eng. 2017. V. 157. P. 451–460. https://doi.org/10.1016/j.petrol.2017.07.048
8. *Melendez-Alvarez A.A., Garcia-Bermudes M., Tavakkoli M., Doherty R.H., Meng S., Abdallah D.S., Vargas F.M.* On the evaluation of the performance of asphaltene dispersants // Fuel. 2016. V. 179. P. 210–220. https://doi.org/10.1016/j.fuel.2016.03.056
9. *Fan T., Buckley J.* Rapid and accurate SARA analysis of medium gravity crude oils // Energy Fuels. 2002. Vol. 16. P. 1571–1575. https://doi.org/10.1021/ef0201228
10. *Ashoori S., Sharifi M., Masoumi M., Salehi M.M.* The relationship between SARA fractions and crude oil stability // Egyptian Journal of Petroleum. 2017. V. 26. P. 209–213. https://doi.org/10.1016/j.ejpe.2016.04.002
11. *Struchkov I.A., Rogachev M.K., Kalinin E.S., Roschin P.V.* Laboratory investigation of asphaltene-induced formation damage // J. Petrol. Explor. Prod. Technol. 2019. V. 9. P. 1443–1455. https://doi.org/10.1007/s13202-018-0539-z
12. *Holmes J.W., Bullin J.A.* Fuel oil compatibility probed // Hydrocarbon Process. 1983. Vol. 62. № 9. P. 101–103.
13. *Gharbi K., Benyounes K., Khodja M.* Removal and prevention of asphaltene deposition during oil production: A literature review // J. Pet. Sci. Eng. 2017. V. 158. P. 351–360. https://doi.org/10.1016/j.petrol.2017.08.062
14. *Buenrostro-Gonzalez E., Lira-Galeana C., Gil-Villegas A., Wu J.* Asphaltene precipitation in crude oils. Theory and Experiments // AIChE J. 2004. V. 50. P. 2552–2570. https://doi/org/10.1002/aic.10243
15. *Guzman R., Ancheyta J., Trejo F., Rodriguez S.* Methods for determining asphaltene stability in crude oils // Fuel. 2017. V. 188. P. 530–543. https://doi.org/ 10.1016/j.fuel.2016.10.012
16. *Carrier H., Plantier F., Daridon J.L., Lagourette B., Lu Z.* Acoustic method for measuring asphaltene flocculation in crude oils // J. Pet. Sci. Eng. 2000. V. 27. P. 111–117. https://doi.org/10.1016/S0920-4105(00)00052-8
17. *Wang J., Creek J.L., Buckley J.S.* Screening for potential asphaltene problems. SPE Annual Technical Conference and Exhibition, 24–27 September. San Antonio, Texas, USA. 2006. https://doi.org/10.2118/103137-MS

18. *Jamaluddin A.K.M., Creek J., Kabir C.S., McFadden J.D., D'Cruz D., Manakalathil J., Joshi N., Ross B*. A comparison of various laboratory techniques to measure thermodynamic asphaltene instability, SPE Asia Pacific Improved Oil Recovery Conference. 2001. https://doi.org/10.2118/72154-MS
19. *Likhatsky V.V., Syunyaev R.Z.* New colloidal stability index for crude oils based on polarity of crude oil components // Energy Fuels. 2010. V. 24. P. 6483–6488. https://doi.org/10.1021/ef101033p
20. *Moura L.G.M., Santo M.F.P., Zilio E.L., Rolemberg M.P., Ramos A.C.S*. Evaluation of indices and of models applied to the prediction of the stability of crude oils // J. Pet. Sci. Eng. 2010. V. 74. P. 77–87. https://doi.org/10.1016/j.petrol.2010.08.011
21. *Prakoso A., Punase A., Rogel E., Ovalles C., Hascakir B*. Effect of asphaltene characteristics on its solubility and overall stability // Energy Fuels. 2018. V. 32. P. 6482–6487. https://doi.org/ 10.1021/acs.energyfuels.8b00324
22. Carbognani L., Espidel J. Characterization of solid deposits from production facilities. Identification of possible causes of deposits formation // Vision Technologica. 1995. V. 3, P. 35–42.
23. *Punase A., Prakoso A., Hascakir B*. The polarity of crude oil fractions affects the asphaltenes stability, SPE Western Regional Meeting, Anchorage, Alaska, USA, 2016. https://doi.org/10.2118/180423-MS
24. *Leontaritis K.J., Mansoori G.A.* Asphaltene flocculation during oil production and processing: A thermodynamic colloidal model, SPE Int. Symp. on Oilfield Chemistry, San Antonio, Texas, 1987, Paper Number: SPE-16258-MS. https://doi.org/10.2118/16258-MS
25. *Ocanto O., Marcano F., Castillo J., Fernåndez A., Caetano M., Chirinos J., Ranaudo M.A*. Influence of experimental parameters on the determination of asphaltenes flocculation onset by the titration method // Energy Fuels. 2009. V. 23. P. 3039–3044. https://doi.org/10.1021/ef900106f
26. Higuerey I., Orea M., Pereira P. Estimation of visbroken and selective catalytic steam cracked product stability using iatroscan TLC-FID. *ACS Division of Fuel Chemistry*, 2002, vol. 47, pp. 656-658. CODEN: PSADFZ
27. *Pereira V.J., Setaro L.L.O., Costa G.M.N., Vieira de Melo S.A.B*. Evaluation and improvement of screening methods applied to asphaltene precipitation // Energy Fuels. 2017. V. 31. P. 3380–3391. https://doi.org/10.1021/acs.energyfuels.6b02348
28. *Sulaimon A.A., Mendoza De Castro J.K., Vatsa S.* New correlations and deposition envelopes for predicting asphaltene stability in crude oils // J. Pet. Sci. Eng. 2020. V. 190. P. 106782. https://doi.org/10.1016/j.petrol.2019.106782
29. *Asomaning S.* Test methods for determining asphaltene stability in crude oils // Petrol. Sci. Technol. 2003. V. 21. P. 581–590. https://doi.org/10.1081/LFT-120018540
30. *Kumar R., Voolapalli R.K., Upadhyayula S.* Prediction of crude oil blends compatibility and blend optimization for increasing heavy oil processing // Fuel Process. Technol. 2018. V. 177. P. 309–327. https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2018.05.008
31. *Shokrlu Y.H., Kharrat R., Ghazanfari M.H., Saraji S.* Modified screening criteria of potential asphaltene precipitation in oil reservoirs // Petrol. Sci. Technol. 2011. V. 29. P. 1407–1418. https://doi.org/10.1080/10916460903567582
32. *Asomaning S., Watkinson A.P.* Petroleum stability and heteroatom species effects in fouling of heat exchangers by asphaltenes // Heat Transfer Eng. 2000. V. 21. P. 10–16. https://doi.org/10.1080/014576300270852
33. *Stankiewicz A.B., Flannery M.D., Fuex N.Q., Broze G., Couch J.L., Dubey S.T., Iyer S.D., Ratulowski J., Westrich J.* Prediction of asphaltene deposition risk in E & P operations, In: Proceeding of Third International Symposium on Mechanisms and Mitigation of Fouling in Petroleum and Natural Gas Production, March 10–14, 2002.
34. *Chamkalani A.* Application of LS-SVM classifier to determine stability state of asphaltene in oilfields by utilizing SARA fractions // Petrol. Sci. Technol. 2015. V. 33. P. 31–38. https://doi.org/10.1080/10916466.2011.651237
35. *Zendehboudi S., Shafiei A., Bahadori A., James L.A., Elkamel A., Lohi A.* Asphaltene precipitation and deposition in oil reservoirs – technical aspects, experimental and hybrid neural network predictive tools // Chem. Eng. Res. Des. 2014. V. 92. P. 857–875. https://doi.org/10.1016/j.cherd.2013.08.001
36. *Tharwat A.* Classification assessment methods // Applied Computing and Informatics, 2020, Vol. ahead-of-print No. ahead-of-print. https://doi.org/10.1016/j.aci.2018.08.003
37. *Akosa J.S.* Predictive Accuracy: A Misleading Performance Measure for Highly Imbalanced Data (Oklahoma State University, 2017; Paper 942).
38. *Rogel E., León O., Contreras E., Carbognani L., Torres G., Espidel J., Zambrano A.* Assessment of asphaltene stability in crude oils using conventional techniques // Energy Fuels. 2003. V. 17. P. 1583–1590. https://doi.org/10.1021/ef0301046
39. *Marcano F., Flores R., Chirinos J., Ranaudo M.A.* Distribution of Ni and V in A1 and A2 asphaltene fractions in stable and unstable Venezuelan crude oils // Energy Fuels. 2011. V. 25. P. 2137–2141. https://doi.org/10.1021/ef200189m
40. *Solaimany Nazar A.R., Bayandory L.* Investigation of asphaltene stability in the Iranian crude oils // Iran. J. Chem. Eng. 2008. V. 5. P. 3–12.