

文章编号:1009-9603(2021)04-0071-06

DOI:10.13673/j.cnki.cn37-1359/te.2021.04.008

CO₂在饱和油岩心中扩散系数的测试方法及扩散规律

吕广忠^{1,2},王杰^{1,2},顾辉亮^{1,2},王明^{1,2},程静³

(1.中国石化胜利油田分公司勘探开发研究院,山东东营 257015; 2.山东省非常规油气勘探开发重点实验室,山东东营 257015; 3.中国石化胜利油田分公司滨南采油厂,山东滨州 256600)

摘要:CO₂驱油技术能够在有效提高采收率的同时实现碳埋存,兼顾经济效益与环境保护,因此研究CO₂在油藏中的扩散规律很有必要。通过自行设计的高温高压扩散夹持器进行CO₂在饱和油岩心中的扩散实验,建立计算CO₂在饱和油岩心中扩散系数的数学模型,拟合实测压力曲线和计算的理论压力曲线,从而得到CO₂扩散系数,并分析渗透率对CO₂在饱和油岩心中扩散的影响规律。结果表明,该数学模型能够较为准确地反映CO₂在饱和油岩心中的扩散规律,所测得的扩散系数具有较高的精度;在实验范围内CO₂在饱和油岩心中的扩散系数处于10⁻⁸ m²/s数量级;CO₂在岩心中的扩散系数随着渗透率的增加而增加,但增幅越来越小。

关键词:CO₂驱油;岩心;扩散系数;测试方法;渗透率

中图分类号:TE357.45

文献标识码:A

Diffusion coefficient test method and diffusion of CO₂ in oil-saturated cores

LÜ Guangzhong^{1,2}, WANG Jie^{1,2}, GU Huiliang^{1,2}, WANG Ming^{1,2}, CHENG Jing³

(1.Exploration and Development Research Institute, Shengli Oilfield Company, SINOPEC, Dongying City, Shandong Province, 257015, China; 2.Key Laboratory on Exploration and Development for Unconventional Oil and Gas, Dongying City, Shandong Province, 257015, China; 3.Binnan Oil Production Plant, Shengli Oilfield Company, SINOPEC, Binzhou City, Shandong Province, 256600, China)

Abstract: CO₂ flooding can substantially improve recovery while achieving carbon storage, maintaining a balance between economic benefits and environmental protection. Accordingly, it is necessary to research the diffusion law of CO₂ in reservoirs. Experiments of CO₂ diffusion in oil-saturated cores were conducted with self-designed HTHP diffusion sample holders. A mathematical model was established for calculating the diffusion coefficient of CO₂ in oil-saturated cores. The measured pressure curves were fitted with the theoretical pressure curves to determine the CO₂ diffusion coefficient. In addition, the influence of permeability on CO₂ diffusion in oil-saturated cores was analyzed. The research results demonstrate that the mathematical model can faithfully reflect the CO₂ diffusion law in oil-saturated cores, and the measured diffusion coefficients are highly accurate. The diffusion coefficient of CO₂ in oil-saturated cores is at the order of magnitude of 10⁻⁸ m²/s within the experimental range. The diffusion coefficient of CO₂ in cores increases with the rise in permeability, but the increment declines.

Key words: CO₂ flooding; core; diffusion coefficient; test method; permeability

在CO₂提高原油采收率和地质封存的过程中,CO₂在地层原油或地层水中的扩散作用至关重要^[1-6]。扩散系数是描述分子扩散的关键参数^[7],决定了油藏中不同时间的气体分布,影响其改善原油物性的程度。自20世纪80年代,国外学者就开始

研究CO₂在流体中的分子扩散。GROGAN等通过直接观察CO₂扩散时烃或水的界面移动,建立了常压条件下扩散系数的数学模型^[8]。RENNER运用人造岩心测试高压下CO₂和富气在原油中的扩散系数^[9]。RIAZI等采用压力降落法进行气体与原油间

收稿日期:2020-10-15。

作者简介:吕广忠(1974—),男,山东高唐人,研究员,博士,从事油气田开发研究与管理工。E-mail:lvguangzhong.slyt@sinopec.com。

基金项目:国家科技重大专项“渤海湾盆地济阳拗陷致密油开发示范工程”(2017ZX05072),中国石化科技攻关项目“滩坝砂低渗透油藏CO₂气水交替驱提高采收率技术”(P20070-2)。

的扩散系数研究^[10-11]。中国学者李海燕等系统描述了CO₂混相驱扩散渗流方程、分子扩散系数和物理弥散系数模型以及有关实验测定方法^[12-14]。赵仁保等提出了适用于压降法的变扩散系数的近似计算模型^[15],但未考虑原油膨胀对扩散的影响。总之,中外对于大气压条件下分子扩散的理论研究较多,但高温高压条件下的适用性需深入研究,同时,计算CO₂在岩心中的气体扩散系数很少考虑原油膨胀对扩散的影响。因此,针对实际的复杂油藏条件,在考虑原油膨胀的基础上,通过压降法进行CO₂在饱和油岩心中的扩散实验并建立数学模型,计算CO₂在饱和油岩心中的扩散系数,分析渗透率对CO₂在饱和油岩心中扩散的影响规律并揭示其内在机理。

1 实验器材与方法

实验装置 实验装置主要包括高精度恒流柱塞泵、高温高压扩散夹持器、恒温水浴箱、增压泵、调压阀、中间容器、缓冲容器、手摇泵、回压阀、压力表及数据采集系统等(图1)。

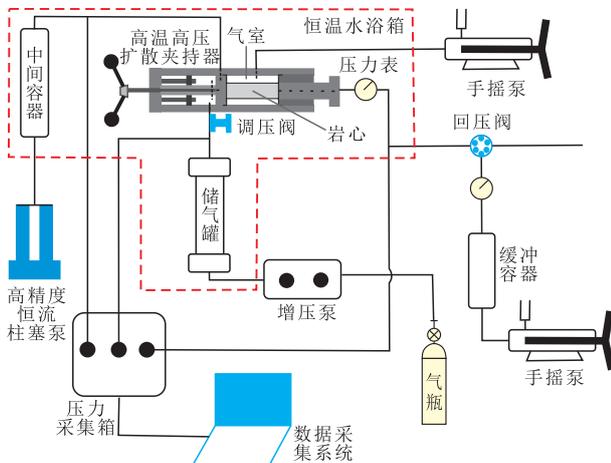


图1 CO₂在饱和油岩心中扩散实验装置
Fig.1 Experimental device for CO₂ diffusion in oil-saturated cores

高温高压扩散夹持器的工作温度为200.0℃,工作压力为70.0MPa。活塞容器容积为500.0mL,工作温度为150.0℃,工作压力为60.0MPa。实验过程中活塞容器通过100D高精度恒流柱塞泵驱动,工作压力为68.9MPa。实验过程中气室内的压力变化通过高精度压力传感器监测并采集,为提高实验测量精度,针对不同的压力条件选取3种压力传感器,型号分别为DG1300-BZ-B-2-10, DG1300-BZ-B-2-20和P51,传感器量程分别为10.0, 20.0和40.0MPa;测量精度分别为最大量程的0.25%, 0.25%和

0.50%。实验过程中温度通过恒温水浴箱控制,测量精度为0.1℃。

高温高压扩散夹持器气室与岩心室之间设有气体通道,螺杆在气室一侧,控制气体通道的闭合,与文献[9, 16-21]中不同,该高温高压扩散夹持器可以进行饱和油岩心中的CO₂轴向扩散实验,与实际油藏含溶解气情况相符合,并且所需岩心较小。

实验材料 实验岩样和油样均取自胜利油区樊143块。岩心平均直径为25.15mm,平均长度为98.21mm,岩心基础参数如表1所示。实验油样50.0℃下黏度为1.9mPa·s。CO₂采用实验室液态CO₂,纯度大于99.99%。

表1 岩心基础参数

编号	直径/mm	长度/mm	渗透率/mD	孔隙度/%
A	25.2	99.92	10.03	8.35
B	25.3	97.06	16.35	10.64
C	25.1	96.75	57.83	16.67
D	25.0	99.10	389.67	19.31

实验方法 选取4组不同渗透率的岩心采用压降法进行CO₂在饱和油岩心中的扩散实验,以判断岩心渗透率对CO₂在饱和油岩心中扩散系数的影响。具体实验步骤包括:①原油组分分析。利用气相色谱法进行原油组分分析^[22]。②气密性检查。对装置的管路进行清洗并干燥后检测装置气密性。③岩心处理。按照SY/T 5336—2006第3章的6—7节对岩心进行洗油烘干^[16]。④扩散装置加温。将高温高压扩散夹持器、中间容器和储气罐放入恒温水浴箱中,设置恒温箱温度至实验所需温度,将CO₂充入高温高压扩散夹持器内的气室中,通过调压阀调节压力采集箱中气体进口压力至实验压力,静置5h以上,确保CO₂与原油达到平衡状态。⑤岩心加围压。使用手摇泵给岩心环空加围压,围压高于气室压力2MPa以上,确保扩散只沿岩心轴向进行。⑥岩心抽真空饱和油。通过手摇泵抽真空使真空度小于100Pa,向高温高压扩散夹持器内岩心注入油样。若饱和油样为含溶解气原油,需使用手摇泵,调节岩心回压大于油样泡点压力2MPa以上;若饱和油样为脱水脱气后的原油,则岩心回压设置为2MPa。岩心饱和原油2PV以上,关闭所有阀门,静置48h以上以确保岩心孔隙完全饱和油。⑦CO₂扩散过程。岩心回压设置为气室压力2MPa以上,后退高温高压扩散夹持器螺杆,使气室中CO₂与岩心端面接触,由于存在浓度差异CO₂开始向饱和油岩心中扩散。通过压力采集箱记录气室压力变化。

当气室压力不再明显降低时,扩散实验结束。⑧扩散设备清理。关闭恒温水浴箱,设备冷却后释放气室内的CO₂,清洗设备准备下一组实验。

2 模型建立与求解方法

2.1 数学模型的假设与简化

为了简化模型并减少计算量,假设如下:①岩心具有均质性及各向同性,即原油在岩心中均匀分布。②岩心中所有孔隙均被原油饱和,即含油饱和度为100%。③岩心表面油相中CO₂的浓度恒定不变,即岩心与气室接触的端面为定浓度边界。④因CO₂溶解后原油体积膨胀而引起的流动仅发生在轴向,方向与CO₂扩散方向相反。⑤忽略油相的蒸发作用及CO₂对轻质组分的抽提作用,即扩散过程为单向过程。⑥扩散装置内温度恒定,传质过程中不存在热量传递。

2.2 饱和油岩心内的Fick扩散模型

Fick扩散定律是描述分子扩散的基本定律,基于浓度差驱动的扩散传质过程都可以通过该模型进行描述。Fick扩散定律的基本形式为:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \quad (1)$$

在扩散过程中,CO₂的溶解会导致岩心内原油的体积膨胀,从而在孔隙中产生与扩散方向相反的轴向流动。耦合扩散场与流动场,得到CO₂在饱和油岩心中扩散的控制方程为:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - c \frac{\partial u}{\partial x} - u \frac{\partial c}{\partial x} \quad (2)$$

为了便于模型求解,需要将微分方程进行无量纲化。所使用的无量纲化参数表达式分别为:

$$x_D = \frac{x}{x_0} \quad (3)$$

$$c_D = \frac{c}{c_0} \quad (4)$$

$$t_D = \frac{tD}{x_0^2} \quad (5)$$

$$u_D = \frac{uD}{x_0^2} \quad (6)$$

无量纲化后,(2)式可写为:

$$\frac{\partial c_D}{\partial t_D} = \frac{\partial^2 c_D}{\partial x_D^2} - c_D \frac{\partial u_D}{\partial x_D} - u_D \frac{\partial c_D}{\partial x_D} \quad (7)$$

2.3 边界条件与初始条件

当CO₂在饱和油岩心中扩散时,根据所建模型的假设及扩散过程仅由浓度差驱动的特点,与气室

接触的岩心端面可认为是定浓度的狄利克雷边界,即岩心左端面处的CO₂无量纲浓度在扩散过程中恒定为1;岩心右端面处可认为是封闭边界,岩心右端面处的CO₂无量纲浓度在轴向上的导数恒定为0。初始时刻可认为岩心内部的CO₂浓度场及原油流动速度场均为0。因此,无因次边界条件及初始条件分别为:

$$\begin{cases} c_D = 1 (x_D = 0, t_D > 0) \\ u_D = 0, \frac{\partial c_D}{\partial x_D} = 0 (x_D = 1, t_D \geq 0) \end{cases} \quad (8)$$

$$\begin{cases} u_D = 0, c_D = 1 (x_D = 0, t_D = 0) \\ u_D = 0, c_D = 0 (x_D > 0, t_D = 0) \end{cases} \quad (9)$$

2.4 扩散方程的求解

首先将微分方程离散化为差分方程组,进而迭代求解。采用全隐式有限差分方法对模型进行求解,离散过程中,CO₂浓度和原油流动速度对空间的导数采用二阶中心差分格式,CO₂浓度对时间的导数采用一阶向前差分格式,则(7)式改写为差分方程,其表达式为:

$$a_i \bar{c}_{i-1}^{n+1} + b_i \bar{c}_i^{n+1} + e_i \bar{c}_{i+1}^{n+1} = \bar{c}_i^n \quad (10)$$

其中:

$$a_i = -\frac{\Delta t_D}{\Delta x_D^2} - \frac{\Delta t_D}{2\Delta x_D} u_{D,i}^{n+1} \quad (11)$$

$$b_i = 1 + \frac{2\Delta t_D}{\Delta x_D^2} + \frac{\Delta t_D}{2\Delta x_D} (u_{D,i+1}^{n+1} - u_{D,i-1}^{n+1}) \quad (12)$$

$$e_i = -\frac{\Delta t_D}{\Delta x_D^2} + \frac{\Delta t_D}{2\Delta x_D} u_{D,i}^{n+1} \quad (13)$$

再结合(5)式与(6)式,可计算得到CO₂浓度场。当CO₂浓度场确定后,原油流动的速度场计算式为:

$$u_{D,i+1}^{n+1} = u_{D,i}^{n+1} + \frac{[(c_{D,i+1}^{n+1} + c_{D,i}^{n+1}) - (c_{D,i+1}^n + c_{D,i}^n)] \phi f_v(c) c_0 dx_D}{2t_D} \quad (14)$$

2.5 PR状态方程

压降法是通过一定方法将实验压力曲线与理论压力曲线拟合,从而得到CO₂在饱和油岩心中的扩散系数。因此,数学模型预测的理论压力的精度决定了最终处理得到的CO₂扩散系数的准确程度。通过引入PR状态方程^[17]对气室内压力进行科学准确的预测,其要求明确体系中各种组分的相关参数及各组分间的二元作用系数。PR状态方程的基本形式为:

$$p = \frac{RT}{V - b} - \frac{a}{V(V + b) + b(V - b)} \quad (15)$$

其中:

$$a = \frac{0.457\ 235R^2T_c^2}{P_c} \alpha(T_r, \omega) \quad (16)$$

$$b = \frac{0.077\ 796\ 9RT_c}{P_c} \quad (17)$$

针对CO₂-原油体系的特点,引入一套计算 $\alpha(T_r, \omega)$ 的关联式表征原油与CO₂的相互作用^[18-19],使用范德华混合规则^[18]对CO₂-原油体系的相关参数进行整合,引入Chueh-Prusnitz方法对多组分之间的二元作用系数进行计算,其对表征CO₂和烃类的混合体系具有较好效果^[20]。

2.6 原油拟组分划分

对于多组分体系,随着组分数的增多,二元作用系数矩阵的阶数会迅速增长,PR状态方程中数学模型的计算量也随之增加,因此在不影响PR状态方程计算精度的情况下,需要对原油进行合理的拟组分划分。主要步骤包括:①通过气相色谱法定量分析原油的组分及含量。②将原油拆分为一系列单碳数烃类组分,通过经验公式预测单碳数组分的主要参数,计算得到的参数将作为计算各拟组分性质的基础。③依据DANESH等提出的模型^[21],进行原油拟组分划分。④通过WU等提出的方法^[23],同时考虑单碳数烃组分的摩尔分数与摩尔质量进行加权计算,得到拟组分的相应参数。

2.7 CO₂扩散系数的计算方法

数学模型求解CO₂扩散系数的流程包括:①通过气相色谱测定原油碳数分布。②通过经验模型确定各单碳数组分的物性参数。③将单碳数烃类组分拼合为若干个拟组分。④通过范德华混合规则,使用单碳数组分物性参数确定拟组分的相关参数。⑤确定CO₂-拟组分体系的二元作用系数矩阵。⑥求解扩散模型,获得扩散过程中不同时间网格处CO₂无量纲浓度分布及原油无量纲速度分布。⑦设定扩散系数初始值,代入(2)式使模型的解有量纲化。⑧使用PR状态方程,计算每一时间网格处气室的理论压力。⑨使用智能算法拟合实测压力与理论压力曲线。⑩重复第⑥—⑨步,直到理论压力曲线与实测压力间误差最小,此时的扩散系数即为实验条件下CO₂在饱和油岩心中的扩散系数。

3 结果与分析

对比实测压力与理论压力曲线(图2)可知,随

着渗透率的增大,扩散实验的压降也呈增大趋势。这说明随着渗透率增大,岩心中孔隙度也呈增大趋势,能够容纳更多的流体进入岩心中。

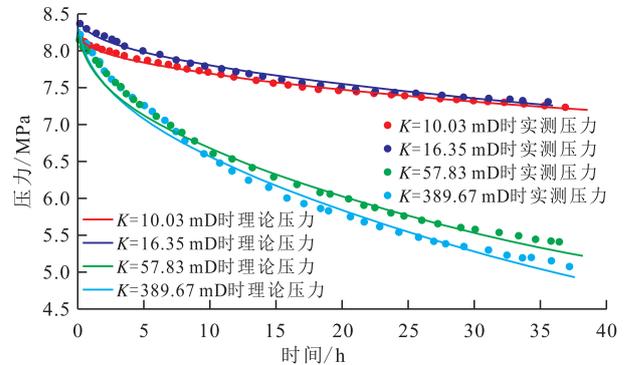


图2 不同渗透率岩心CO₂扩散引起的压力变化曲线

Fig.2 Pressure fall-off curve of cores induced by CO₂ diffusion with different permeability

在温度为80℃、压力为8MPa的条件下,CO₂在不同渗透率的饱和油岩心中的扩散系数(图3)表明,当岩心渗透率为10.03~389.67mD时,随着岩心渗透率的增大,扩散系数从 $2.09 \times 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$ 增大到 $2.32 \times 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$,但增幅随着渗透率的增大而变小。渗透率对CO₂在饱和油岩心中扩散系数的影响主要为:①随着岩心渗透率增大,岩心中孔径逐渐变大,孔隙壁面对CO₂的传质过程的影响逐渐减少。②随着岩心渗透率增大,岩心内孔隙通道的迂曲度降低,有利于CO₂在饱和油岩心内的扩散。

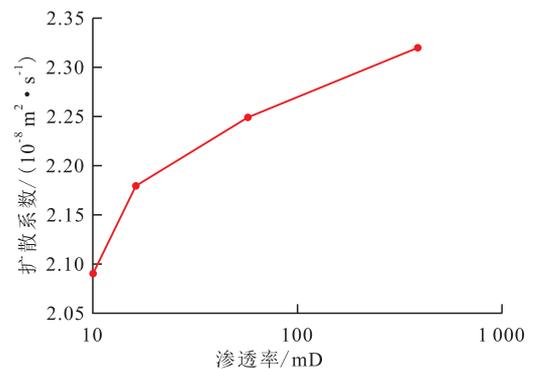


图3 渗透率对CO₂在饱和油岩心中扩散系数的影响

Fig.3 Influence of permeability on diffusion coefficient of CO₂ in oil-saturated cores

由表2可以看出:本文计算得到的CO₂扩散系数与LI等结果^[24-25]相近,是因为油样黏度和实验温度相近;略大于RENNER^[9]的结果,是因为实验压力和温度都略大于文献[9];较大于ZHOU等^[26]、杜林等^[27]和ZHANG等^[28]的结果,这是因为ZHOU等^[26]、杜林等^[27]和ZHANG等^[28]实验用油为稠油,原油黏度越大,CO₂扩散系数越小^[15]。综上,本文计算得到的扩散系数与文献具有一致性。另外,文献实验多为CO₂在岩心中的径向扩散^[9,17-21,23-28],且岩心不能

表2 CO₂在饱和油岩心中扩散系数结果对比
Table2 Comparison between diffusion coefficients of CO₂ in oil-saturated cores

压力/MPa	温度/℃	渗透率/mD	油样黏度/(mPa·s)	扩散系数/(10 ⁻⁸ m ² ·s ⁻¹)	来源
8.20~8.37	80	10.03~389.67	1.9(50℃)	2.09~2.32	本文
15.22~15.34	70	0.1~301.54	4.27(50℃)	1.03~1.85	LI等 ^[24]
5.0~23.4	70	0.058~0.192	7.26(50℃)	0.70~10.22	LI等 ^[25]
1.44~5.82	38		1.17(40℃)	1.04~1.26	RENNER ^[9]
5	21	8 180	2 200(21℃)	0.32	ZHOU等 ^[26]
7.5	50		2 000(50℃)	0.010 25	杜林等 ^[27]
15.29~15.36	70	0.096~0.103	1 770.91(50℃)	0.55~1.08	ZHANG等 ^[28]

一直处于实验压力环境中,都不能进行CO₂在饱和油岩心中的扩散^[15,24-28],本文实验扩散装置为新型的高温高压扩散夹持器,可以进行CO₂在饱和油岩心的轴向扩散实验,且所需岩心较小。

在低渗透致密油藏CO₂驱或者吞吐过程中,扩散系数影响着油藏环境下原油与CO₂达到相态平衡的速度,决定着注气方式和焖井周期,并影响着油藏的采收率。准确的扩散系数可以作为油藏数值模拟的输入参数,以便于制定更合理的油藏开发方案,获取最佳注气效果和经济效益,从而降低开采成本和风险。

4 结论

自行设计CO₂向饱和油岩心中轴向扩散的高温高压扩散夹持器,该扩散夹持器气室与岩心室一体化,能够进行CO₂在饱和油岩心的扩散实验,计算CO₂在饱和油岩心中扩散系数,所需岩心较小,并且能够满足高温高压环境。

在考虑原油膨胀的基础上,耦合了岩心中的Fick扩散方程与PR状态方程,建立了描述CO₂向饱和油岩心中轴向扩散的数学模型,并通过智能算法对实测压力和计算得到的理论压力曲线进行拟合,从而得到CO₂在饱和油岩心中的扩散系数。

当温度为80℃、压力为8 MPa、岩心渗透率为10.03~389.67 mD时,CO₂在饱和油岩心中的扩散系数处于10⁻⁸ m²/s数量级;扩散系数随着岩心渗透率的增大而增大,但增幅随着渗透率的增大而变小。

符号解释

c ——扩散物质的摩尔浓度, mol/m³;
 c_0 ——实验条件下CO₂在原油中的饱和摩尔浓度, mol/m³;
 c_D ——扩散物质的无量纲浓度;

D ——扩散物质的扩散系数, m²/s;
 $f_v(c)$ ——原油的体积系数函数;
 i ——空间网格数, 其值为1, 2, 3, …;
 n ——时间步长, 其值为1, 2, 3, …;
 p ——体系压力, Pa;
 p_c ——临界压力, Pa;
 R ——通用气体常数, J/(mol·K), 其值为8.314;
 t ——扩散时间, s;
 t_D ——扩散无量纲时间;
 T ——体系温度, K;
 T_c ——临界温度, K;
 u ——原油因体积膨胀而产生的流动速度, m/s;
 u_D ——原油因体积膨胀而产生的无量纲流动速度;
 V ——摩尔体积, m³/mol;
 x ——岩心中某点到岩心左端面的距离, m;
 x_0 ——岩心长度, m;
 x_D ——岩心中某点到岩心左端面的无量纲距离;
 $\alpha(T_r, \omega)$ ——关于相对温度 T_r 和偏心因子 ω 的alpha方程;
 ϕ ——孔隙度, f。

参考文献

- [1] 秦积舜, 李永亮, 吴德彬, 等. CCUS全球进展与中国对策建议[J]. 油气地质与采收率, 2020, 27(1): 20-28.
QIN Jishun, LI Yongliang, WU Debin, et al. CCUS global progress and China's policy suggestions[J]. Petroleum Geology and Recovery Efficiency, 2020, 27(1): 20-28.
- [2] 刘苗苗, 孟令东, 王海学, 等. 二氧化碳地质封存中盖层力学完整性数值模拟研究综述[J]. 特种油气藏, 2020, 27(2): 8-15.
LIU Miaomiao, MENG Lingdong, WANG Haixue, et al. Review on mechanical integrity simulation of caprock in the geological storage of CO₂[J]. Special Oil & Gas Reservoirs, 2020, 27(2): 8-15.
- [3] 孙焕泉, 王海涛, 吴光焕, 等. 稠油油藏注CO₂提高采收率影响因素研究[J]. 石油实验地质, 2020, 42(6): 1 009-1 013, 1 023.
SUN Huanquan, WANG Haitao, WU Guanghuan, et al. CO₂ EOR factors in heavy oil reservoirs[J]. Petroleum Geology & Experiment, 2020, 42(6): 1 009-1 013, 1 023.
- [4] 张海龙. CO₂混相驱提高石油采收率实践与认识[J]. 大庆石油

- 地质与开发, 2020, 39(2): 114–119.
- ZHANG Hailong. Practice and understanding of enhancing the oil recovery by CO₂ miscible flooding [J]. *Petroleum Geology & Oilfield Development in Daqing*, 2020, 39(2): 114–119.
- [5] 高敬善, 但顺华, 杨涛, 等. CO₂在准噶尔盆地昌吉油田吉7井区稠油中的溶解性研究[J]. *中国石油勘探*, 2018, 23(5): 65–72.
- GAO Jingshan, DAN Shunhua, YANG Tao, et al. Study on CO₂ solubility in heavy oil in Well Ji7, Changji oilfield, Junggar Basin [J]. *China Petroleum Exploration*, 2018, 23(5): 65–72.
- [6] 杨寨, 郑玉飞. 渤海油田多轮次层内生成CO₂调驱效果优化[J]. *断块油气田*, 2019, 26(1): 123–126.
- YANG Zhai, ZHENG Yufei. Multi-round profile control effect optimization of in-situ carbon dioxide generation in Bohai Oilfield [J]. *Fault-Block Oil and Gas Field*, 2019, 26(1): 123–126.
- [7] PRAUSNITZ J M, LICHTENTHALER R N, AZEVEDO E G D. *Molecular thermodynamics of fluid-phase equilibria* [M]. Englewood: Prentice Hall, 1969.
- [8] GROGAN A T, PINCZEWSKI W V. The role of molecular diffusion processes in tertiary CO₂ flooding [J]. *Journal of Petroleum Technology*, 1987, 39(5): 591–602.
- [9] RENNER T A. Measurement and correlation of diffusion coefficients for CO₂ and rich-gas applications [J]. *SPE Reservoir Engineering*, 1988, 3(2): 517–523.
- [10] RIAZI M R. A new method for experimental measurement of diffusion coefficients in reservoir fluids [J]. *Journal of Petroleum Science & Engineering*, 1996, 14(3/4): 235–250.
- [11] ZHANG Y P, HYNDMAN C L, MAINI B B. Measurement of gas diffusivity in heavy oils [J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2000, 25(1/2): 37–47.
- [12] 李海燕, 付广, 彭仕宓. 天然气扩散系数的实验研究[J]. *石油实验地质*, 2001, 23(1): 108–112.
- LI Haiyan, FU Guang, PENG Shimi. Experimental study on the diffusion coefficients of natural gas [J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2001, 23(1): 108–112.
- [13] 傅广, 杜春国, 孟庆芬, 等. 芳深9井CO₂气藏CO₂气扩散特征及损失量[J]. *大庆石油学院学报*, 2003, 27(4): 1–4.
- FU Guang, DU Chunguo, MENG Qingfen, et al. Diffusion characteristics and loss amount of carbon dioxide gas in FS9 well [J]. *Journal of Daqing Petroleum Institute*, 2003, 27(4): 1–4.
- [14] 王利生. 驱替气体在油藏流体中的对流扩散(I) [J]. *石油勘探与开发*, 1996, 23(6): 62–66, 97.
- WANG Lisheng. Convective diffusion of driving gases in reservoir fluids (I) [J]. *Petroleum Exploration and Development*, 1996, 23(6): 62–66, 97.
- [15] 赵仁保, 敖文君, 肖爱国, 等. CO₂在原油中的扩散规律及变扩散系数计算方法[J]. *中国石油大学学报: 自然科学版*, 2016, 40(3): 136–142.
- ZHAO Renbao, AO Wenjun, XIAO Aiguo, et al. Diffusion law and measurement of variable diffusion coefficient of CO₂ in oil [J]. *Journal of China University of Petroleum: Edition of Natural Science*, 2016, 40(3): 136–142.
- [16] 曲岩涛, 戴志坚, 李桂梅, 等. 岩心分析方法: SY/T 5336—2006 [S]. 北京: 石油工业出版社, 2006.
- QU Yantao, DAI Zhijian, LI Guimei, et al. Practices for core analysis: SY/T 5336—2006 [S]. Beijing: Petroleum Industry Press, 2006.
- [17] PENG Dingyu, ROBINSON D B. A new two-constant equation of state [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals*, 1976, 15(1): 92–94.
- [18] ZHENG Sixu, LI Huazhou, SUN Huijuan, et al. Determination of diffusion coefficient for alkane solvent-CO₂ mixtures in heavy oil with consideration of swelling effect [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2016, 55(6): 1533–1549.
- [19] LI Huazhou, YANG Daoyong. Modified α function for the Peng-Robinson equation of state to improve the vapor pressure prediction of non-hydrocarbon and hydrocarbon compounds [J]. *Energy & Fuels*, 2011, 25(1): 1–4.
- [20] FATEEN S E K, KHALIL M M, ELNABAWY A O. Semi-empirical correlation for binary interaction parameters of the Peng-Robinson equation of state with the van der Waals mixing rules for the prediction of high-pressure vapor-liquid equilibrium [J]. *Journal of Advanced Research*, 2013, 4(2): 137–145.
- [21] DANESH A, XU Donghai, TODD A C. A grouping method to optimize oil description for compositional simulation of gas-injection processes [J]. *SPE Reservoir Engineering*, 1992, 7(3): 343–348.
- [22] 李楠, 冉竹叶, 何怀涛, 等. 原油中正辛烷及以前烃组分分析气相色谱法: SY/T 7504—2008 [S]. 北京: 石油工业出版社, 2008.
- LI Nan, RAN Zhuye, HE Huaitao, et al. Determination of octane and hydrocarbon components before octane in crude petroleum-Gas chromatography: SY/T 7504—2008 [S]. Beijing: Petroleum Industry Press, 2008.
- [23] WU R S, BATYCKY J P. Pseudocomponent characterization for hydrocarbon miscible displacement [J]. *SPE Reservoir Engineering*, 1988, 3(3): 875–883.
- [24] LI Songyan, QIAO Chenyu, ZHANG Chao, et al. Determination of diffusion coefficients of supercritical CO₂ under tight oil reservoir conditions with pressure-decay method [J]. *Journal of CO₂ Utilization*, 2018, 24: 430–443.
- [25] LI Songyan, QIAO Chenyu, LI Zhaomin, et al. The effect of permeability on supercritical CO₂ diffusion coefficient and determination of diffusive tortuosity of porous media under reservoir conditions [J]. *Journal of CO₂ Utilization*, 2018, 28: 1–14.
- [26] ZHOU Xiang, JIANG Qi, YANG Qingwang, et al. Determining CO₂ diffusion coefficient in heavy oil in bulk phase and in porous media using experimental and mathematical modeling methods [J]. *Fuel*, 2020, 263: 116–205.
- [27] 杜林, 王仕莉, 袁京素, 等. CO₂在饱和稠油岩心中的扩散及仿真模拟[J]. *成都理工大学学报: 自然科学版*, 2019, 46(6): 697–703.
- DU Lin, WANG Shili, YUAN Jingsu, et al. Research on the diffusion of CO₂ in porous media saturated by heavy oil and simulation for its diffusion process [J]. *Journal of Chengdu University of Technology: Science & Technology Edition*, 2019, 46(6): 697–703.
- [28] ZHANG Chao, QIAO Chenyu, LI Songyan, et al. The effect of oil properties on the supercritical CO₂ diffusion coefficient under tight reservoir conditions [J]. *Energies*, 2018, 11(6): 1495–1514.