

다공성 매체 내 비혼성 대체 과정에서 주입 유량이 거동 양상에 미치는 영향

박규령¹ · 김선옥¹ · 이민희² · 왕수균^{1*}

¹부경대학교 에너지자원공학과

²부경대학교 지구환경과학과

The Effect of Flow Rate on the Process of Immiscible Displacement in Porous Media

Gyuryeong Park¹ · Seon-ok Kim¹ · Minhee Lee² · Sookyun Wang^{1*}

¹Department of Energy Resources Engineering, Pukyong National University

²Department of Earth Environmental Science Engineering, Pukyong National University

ABSTRACT

A series of experiments using transparent micromodels with an artificial pore network etched on glass plates was performed to investigate the effects of flow rate on the migration and distribution of resident wetting porewater (deionized water) and injecting non-wetting fluid (*n*-hexane). Multicolored images transformed from real RGB images were used to distinguish *n*-hexane from porewater and pore structure. Hexane flooding followed by immiscible displacement with porewater, migration through capillary fingering, preferential flow and bypassing were observed during injection experiments. The areal displacement efficiency increases as the injection of *n*-hexane continues until the equilibrium reaches. Experimental results showed that the areal displacement efficiency at equilibrium increases as the flow rate increases. Close observation reveals that preferential flowpaths through larger pore bodies and throats and clusters of entrapped porewater were frequently created at lower flow rate. At higher flow rate, randomly oriented forward and lateral flowpaths of *n*-hexane displaces more porewater at an efficiency close to stable displacement. It may resulted from that the pore pressure of *n*-hexane, at higher flow rate, increases fast enough to overcome capillary pressure acting on smaller pore throats as well larger ones. Experimental results in this study may provide fundamental information on migration and distribution of immiscible fluids in subsurface porous media.

Key words : Immiscible displacement, Migration pattern, Flow rate, Micromodel, Displacement efficiency

1. 서 론

지하수로 포화된 대수층 내로의 소수성 액상 오염물질 유입, 저류층에 잔류하는 탄화수소의 생산증진을 위한 외부 유체 주입, 지하 심부의 지질 구조를 대상으로 하는 이산화탄소 지중 저장 등 하나 또는 그 이상의 유체로 포화된 다공성 매체 내부로 성질이 다른 유체가 주입됨으로써 야기되는 다상 다중 성분의 유체와 연관된 물리·화학 현상들은 지하수공학이나 저류공학 분야가 다루는 주요한 연구 분야 중 하나이다. 특히, 이들 유체가 서로

섞이거나 용해되지 않는 경우에 발생하는 비혼성 대체 (immiscible displacement) 과정에서의 유체 거동과 분포는 다공성 매체의 수리지질학적 특성 및 매체-초기 포화 유체-주입 유체 간 계면장력, 모관압, 습윤성, 물질 이동 등의 상호작용에 의해 영향 받는 현상으로 다양한 관점에서 연구가 진행되어 왔다(Yang et al., 2005; Chalbaud et al., 2010; Wang et al., 2012). 이러한 영향 기작들 중에서 유체에 작용하는 점성력(viscous force)과 모관력(capillary force)은 유체의 거동과 분포에 직접적인 영향을 미치는 요소로서, 각각 유체의 점도와 다공성 매체의 공

*Corresponding author : sookyun@pknu.ac.kr

Received : 2017. 12. 12 Reviewed : 2018. 1. 2 Accepted : 2018. 1. 8

Discussion until : 2018. 4. 30

극 구조에 작용하는 모관압에 의해 결정된다. 온도에 직접적인 영향을 받는 점도와 함께 모관압(capillary pressure)은 공극 구조 내로 유체가 진입하기 위해 필요한 공극 진입 압력(entry pore pressure)을 결정하는 중요한 물리적 특성으로, Young-Laplace 식으로 표현될 수 있다 (Chiquet et al., 2007; Aggelopoulos et al., 2010; Kim et al., 2012).

$$P_c = \frac{2\gamma\cos\theta}{r} \quad (1)$$

여기서, P_c 는 모관압 [mN/m^2], γ 는 초기 포화 유체와 주입 유체 간 계면장력 [mN/m], θ 는 고체 표면에서 유체의 접촉각 [$^\circ$], r 은 공극의 직경 [mm]이다. 여기서 두 유체의 경계면에 작용하는 계면장력은 모관압을 산정하기 위한 필수적인 계면 특성으로, 압력, 온도, 염도 등 다양한 환경조건에 직접적인 영향을 받는다(Chiquet et al., 2007; Cao et al., 2016). 이와 같이 비혼성 대체 과정에서의 유체 거동과 분포를 결정하는 점성력과 모관력의 상대적인 크기는 점성비(viscous ratio, M)와 모관수(capillary number, Ca)의 두 무차원수로 표현될 수 있으며(Lenormand et al., 1988; Lenormand et al., 1990, Zhang et al., 2011), 다음과 같은 식으로 표현될 수 있다.

$$M = \frac{\mu_2}{\mu_1} \quad (2)$$

$$Ca = \frac{\mu_2 v_2}{\gamma\cos\theta} \quad (3)$$

여기서, μ_1 과 μ_2 는 각각 초기 포화 유체와 주입 유체의 점도 [$\text{Pa} \cdot \text{s}$]이며, v_2 는 주입 유체의 속도 [cm/min]이다. Lenormand et al. (1988)는 점성비와 모관수를 기준으로 다공성 매체 내에서 일어나는 주입 유체의 거동 양상을 안정 대체(stable displacement), 점성 핑거링(viscous fingering), 모세관 핑거링(capillary fingering)의 세 가지 형태로 분류하였다(Fig. 1). 안정 대체는 모관력에 비하여 점성력이 매우 큰 경우에 나타나는 현상으로, 높은 점도를 가진 유체가 빠른 속도로 유입됨에 따라 다공성 매체 내에 포화되어 있던 대부분의 초기 포화 유체가 주입 유체로 대체되어 가장 높은 대체율을 나타낸다. 점성 핑거링은 초기 포화 유체에 비하여 주입 유체의 점도가 낮은 경우에 나타나는 현상으로, 높은 점성력을 가진 초기 포화 유체가 공극 구조 내에서 쉽게 유동하지 않기 때문에 주입 유체의 흐름 경로가 연속적으로 분리되고 좁은 흐름

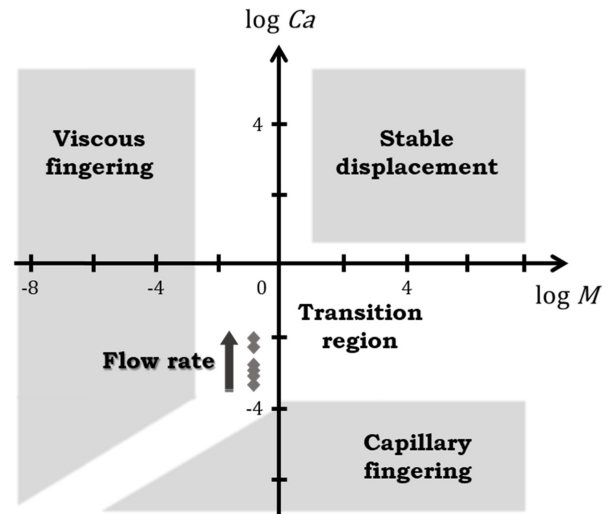


Fig. 1. Log M - Log Ca phase diagram showing three invading pattern of immiscible fluids in porous media and the area of the hexane-water displacement experiments performed in this study (adapted from Lenormand, 1988).

경로를 형성하며 확산하는 양상을 나타낸다. 이 과정에서 공극수 등 초기 포화 유체의 대체는 제한적으로 이루어지므로 매우 낮은 대체율을 나타내게 된다. 모세관 핑거링은 점성력에 비하여 모관력의 영향이 상대적으로 큰 경우에 나타나는 현상으로, 주입 유체가 상대적으로 넓은 공극목(pore throat)을 통과하는 선택적 흐름(preferential flow)이 형성된다. 이 경우, 주입 유체의 흐름이 모든 방향으로 확산되면서 고리 모양의 흐름 경로를 형성하고, 고리 내부에는 흐름이 정체된 초기 포화 유체가 잔류하게 됨으로써 점성 핑거링에 비하여 높은 대체율을 나타낸다. 따라서, 다공성 매체 내로 주입된 비혼성 유체의 대체율 또는 저장 효율은 이러한 세가지 형태의 대체 양상에 의하여 영향을 받으므로, 점성비와 모관수를 결정하는 주입 유량, 주입 온도, 유체의 점도, 계면 특성 등 주입 환경 및 조건을 변화시킴으로써 외부 유체 주입의 효과를 향상시키기 위한 다양한 연구가 진행되고 있다(O'Carroll and Sleep, 2007, Wildenschild et al., 2011, Cao et al., 2016, Zheng et al., 2017).

본 연구에서는 투명한 유리판에 식각된 공극 구조로 이루어진 마이크로모델을 활용한 실험을 통하여 다공성 매체 내에서 일어나는 비혼성 유체 간 대체과정을 시각적으로 관찰하고, 관찰 결과에 대한 이미지 분석을 통하여 주입 유량에 따른 주입 유체(헥산)와 초기 포화 유체(탈이온수)의 거동 및 분포 양상과 대체 효율에 미치는 영향을 정량적으로 규명하고자 하였다. 본 연구의 결과는 지하 환

경의 오염 복원, 이산화탄소 지중저장, 석유회수증진 등 공극 규모에서의 비혼성 대체 과정이 대수층 또는 저류층 규모에서의 효율과 성패에 중요한 영향을 미치는 지중 프로젝트의 설계와 운영에 대한 기본적인 이해와 정보를 제공할 수 있을 것으로 판단된다.

2. 실험 재료 및 방법

2.1. 헥산과 탈이온수

본 실험은 습윤성 유체(wetting fluid)로 포화되어 있는 다공성 매체 내부로 비습윤성 유체(non-wetting fluid)가 주입된 경우에 발생하는 비혼성 대체 과정을 고찰하기 위하여 습윤성 유체로는 탈이온수를, 비습윤성 유체로는 헥산(*n*-hexane, C_6H_{14})을 사용하였다. 헥산은 식품가공업을 비롯한 다양한 산업 분야에서 유지의 추출용 용제로 사용되는 물질로서, 끓는점은 $62\sim 82^\circ C$ 로 상온·상압 조건에서 액체 상태로 존재하며 물에 대한 용해도는 매우 낮은 것으로 알려져 물과의 비혼성 대체 과정을 관찰하기 위한 실험에 적합한 것으로 판단되었다. 이러한 특성을 활용한 유사 분야의 선행 연구로는 다공성 매체 내에서 점성력과 모관력이 비혼성 대체 과정에 미치는 영향(Zhang et al., 2011), 유체의 습윤성이 상대 투수율에 미치는 영향(Dicarlo et al., 2000), 물에 대한 오일의 습윤 거동 양상(Bertrand et al., 2002) 등을 규명하기 위하여 실험적 연구가 보고된 바 있다. 다만, 헥산과 탈이온수는 모두 무색의 투명한 액체이므로 비혼성 대체 과정에서 혼재하는 두 유체의 경계를 시각적으로 구분하는 것은 매우 어렵다. 따라서, 유체의 거동과 분포를 시각적으로 관찰하기 위하여 헥산에 Sudan IV($C_{24}H_{20}N_{40}O$, Sigma Aldrich)를 첨가하여 붉은색으로 염색하고, 탈이온수에는 메틸렌블루($C_{16}H_{18}ClN_3S \cdot 2\sim 3H_2O$, Junsei)를 첨가하여 푸른색으로

염색하여 실험에 사용하였다.

헥산과 탈이온수의 점도와 밀도, 두 유체 간 계면장력 등 기본적인 물성은 기존 문헌에서 보고된 값을 적용하였다(Table 1) (Mekhtiev et al., 1975; IAPWS, 2008; Zeppieri et al., 2001). 상온·상압 조건에서의 헥산과 탈이온수의 물성에 본 실험의 유량 조건을 적용하여 산정된 점성비와 모관수의 범위를 Fig. 1에 표시하면, 두 유체의 조합은 Lenormand(1988)이 제시한 흐름 영역에서 모세관 팽거림과 점성 팽거림 영역 사이의 천이역에 해당하는 것으로 나타났다.

2.2. 마이크로모델

2차원 공극 구조 내에서 거동하고 분포하는 주입 유체와 초기 포화 유체의 비혼성 대체 과정을 시각적으로 관찰하기 위하여 Micronit Microfluidics BV에서 제작된 마이크로모델을 사용하여 실험을 수행하였다(Fig. 2). 마이크로모델은 외부 관찰이 가능하도록 두 개의 투명한 봉규산 유리판(borosilicate glass pannels)에 $20\text{ mm} \times 10$

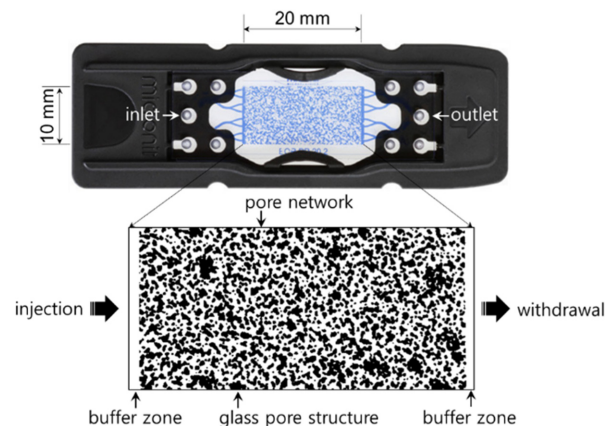


Fig. 2. Physical network micromodel and its pore structure.

Table 1. Fluid properties of *n*-hexane and water at ambient pressure

Temperature ($^\circ C$)	Density of hexane (kg/m^3)	Viscosity of hexane (cP)	Density of water (kg/m^3)	Viscosity of water (cP)	Interfacial tension (mN/m)	Viscous ratio (Log M)
15	663.70	0.327	999.10	1.138	51.43	-0.435
20	659.50	0.313	998.21	1.002	51.11	-0.454
25	654.80	0.297	997.05	0.890	50.80	-0.477
30	650.70	0.289	995.65	0.797	50.38	-0.488
35	645.20	0.279	994.04	0.719	49.96	-0.504
40	641.30	0.267	992.22	0.653	49.44	-0.522
45	631.90	0.257	990.22	0.596	48.92	-0.539
50	629.78	0.248	988.05	0.547	48.52	-0.555
55	624.86	0.231	985.70	0.504	48.13	-0.586

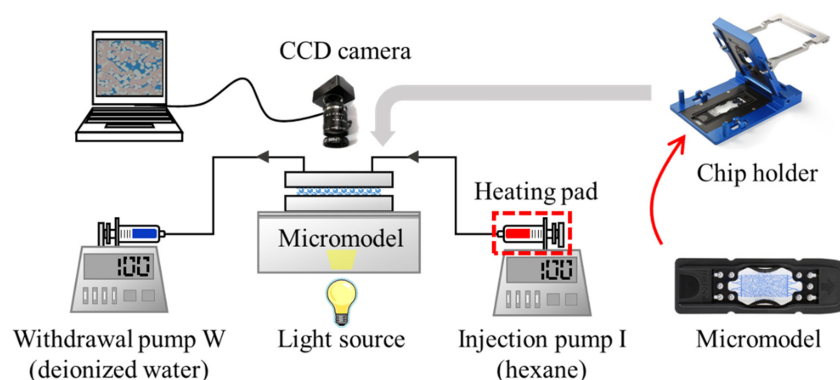


Fig. 3. Schematic diagram of the displacement experimental set-up.

mm 규모의 공극 구조를 대칭적으로 식각한 후 두 판을 접합하고 모델의 양 끝에 위치한 연결구를 통하여 유체의 주입과 배출이 이뤄질 수 있도록 제작되었다. 다양한 형태로 제작된 마이크로모델 중에서 본 실험에서는 실제 암석의 공극 구조를 모사하여 제작된 실물형 공극 모델 (physical network model)을 사용하였다. 마이크로모델 내부에 조성된 공극의 두께는 $20\ \mu\text{m}$ 이며, 유입부와 유출부를 제외한 공극의 부피는 $2.3\ \mu\text{L}$, 공극률과 투과율은 각각 0.57와 $2.47 \times 10^{-8}\ \text{cm}^2$ 로 측정되었다.

2.3. 실험 장치

마이크로모델의 2차원 공극 구조 내로 hexan을 주입하기 위한 실험장치는 마이크로모델의 유입구와 유출구에 각각 50 mL 용량의 주입용 주사기(Top Syringe Manufacturing Company Pvt. Ltd.)가 부착된 주입용 시린지 펌프(NE-300, New Era Pump Systems, Inc.)와 10 mL 용량의 배출용 주사기(Becton Dickinson & Co.)가 부착된 배출용 시린지 펌프(NE-1010, New Era Pump Systems, Inc.)를 1/16" 직경의 테플론 튜브로 연결하여 구성된다 (Fig. 3). 마이크로모델은 마이크로모델 홀더(Micronit Microfluidics BV)에 장착하여 테플론 튜브와 연결하고, 투명한 아크릴판 위에 수평으로 배치·고정하였다. 아크릴판 하부에는 주광색의 LED 조명을 설치하여 공극 구조 내에서 일어나는 유체의 흐름을 모델 상부로부터 관찰할 수 있도록 배치하였다. 주입용 주사기 외부는 온도조절기(New Era Pump Systems, Inc.)가 부착된 히팅 패드(New Era Pump Systems, Inc.)로 덮여 주사기 내 주입 유체의 온도를 설정 온도로 조절·유지하였다.

마이크로모델 내에서의 hexan과 잔류 공극수의 거동 및 분포를 관찰하고 분석하기 위한 이미지 관측 시스템은 매크로 비디오 줌 렌즈(100-MZ6, Opto)를 부착한 고해상도

현미경 카메라(DA-Ri1-U3, Nikon)와 이미지 관측 소프트웨어(NIS-Elements D, Nikon) 및 이미지 분석 프로그램인 ImageJ(US National Institutes of Health)가 설치된 컴퓨터로 구성된다. 현미경 카메라는 hexan과 공극수의 비혼성 대체 과정 관찰을 위하여 마이크로모델 상부에 설치하였으며, 이미지 관측 소프트웨어를 이용하여 영상의 크기, 초당 프레임 수(FPS), 노출 시간 등의 촬영 조건을 조절할 수 있도록 설계하였다. 저장된 영상은 이미지로 추출한 후, 이미지 처리 프로그램을 이용하여 hexan의 대체 면적비(area displacement efficiency) 산정에 사용하였다.

2.4. 실험 방법

본 연구에서 수행된 실험의 기본 조건은 압력 0.1 MPa, 온도 25°C , 유량 0.01 mL/min로 설정하였으며, 유량을 0.003 mL/min ~ 0.05 mL/min의 범위에서 변화시키며 반복 실험을 수행하였다. 다음은 주입 유체 hexan과 공극수의 거동과 분포에 대한 주입 유량의 영향을 규명하기 위한 실험의 절차와 방법을 기술한 것이다.

1. 주입용 주사기에 hexan 2 mL를 주입하고, 주사기를 감싸고 있는 히팅 패드에 부착된 온도조절기를 이용하여 마이크로모델 내로 주입되는 hexan의 온도를 조절하고, 온도가 안정화될 수 있도록 일정 시간을 유지한다.
2. 배출용 펌프를 이용하여 염색된 탈이온수를 흡입하여 마이크로모델 내부와 마이크로모델에 연결된 테플론 튜브를 탈이온수로 포화시킨다.
3. 주입용 펌프를 통하여 설정된 유량으로 hexan을 마이크로모델 내부로 주입하고 배출용 펌프를 통하여 마이크로모델 내부에 포화되어 있던 탈이온수를 배출한다.
4. hexan이 주입됨에 따라 테플론 튜브와 마이크로모델 내에 포화되어 있던 탈이온수의 배출이 일어나고, 그

과정에서 발생하는 핵산과 탈이온수 간 비혼성 대체를 고해상도 현미경 카메라를 통하여 관찰하고 기록한다.

5. 핵산이 공극 구조 내로 주입되기 시작할 때부터 마이크로모델 내 핵산과 공극수의 분포가 더 이상 변화하지 않는 평형상태를 이룰 때까지의 대체 과정을 영상으로 기록한 후, 두 펌프의 작동을 중단한다.
6. 실험이 완료되면 핵산 등 공극 구조의 표면 특성에 영향을 미칠 수 있는 물질들이 마이크로모델 내에 잔존하지 않도록 메탄올(CH_3OH , Duksan), 아세톤(CH_3COCH_3 , Junsei), 탈이온수를 차례로 주입하여 세척한다. 이 때, 세척액이 모델 내 유체가 존재하던 모든 공간을 지나며 잔존하는 유체들을 배출시킬 수 있도록 고압펌프(260D Syringe Pump, Teledyne Isco)를 이용하여 높은 압력으로 세척액을 주입하고, 세척이 완료된 후에는 50°C 의 오븐에서 24시간 이상 건조시킨다.
7. 정해진 실험 계획에 따라 주입 유량을 변화시키며 이상의 과정을 3회씩 반복 수행한다.

2.5. 이미지 변환 및 분석

주입 조건의 변화에 따른 초기 포화 유체와 주입 유체 간 대체 양상을 비교 분석하기 위하여 공극수와 핵산의 비혼성 대체 과정을 시각적으로 관찰하고 이를 동영상으로 기록하였다. 저장된 동영상은 이미지 관측 프로그램을 이용하여 0.11초 간격의 정지 영상으로 변환한 후, 1280×1024 픽셀의 이미지 파일로 저장하고, 저장된 전체 이미지 파일 중에서 공극 구조 내로 핵산이 주입되는 시점부터 비혼성 대체가 완료되는 시점까지 일정한 시간 간격으로 이미지를 추출하여 이미지 분석에 활용하였다.

동영상으로부터 추출된 원 이미지는 빨강, 초록, 파랑의 세 가지 색을 각각 256가지의 단계를 두고 조합하여 이루어진 RGB 이미지(Fig. 4a, b)로서 색과 밝기에 따라 0부터 16,777,216까지 넓은 범위의 색상값을 가진다. 이러한 색상값 중에서 흑백의 이원화상 제작을 위한 특정한 임계값(threshold value)을 설정하는 어려움을 극복하기 위하여 이미지 분석 프로그램인 ImageJ를 이용하여 RGB 이미지를 가장 어두운 0부터 가장 밝은 255까지 명도에 따라 표현하는 그레이 이미지(gray image)로 변환시켰다. 이후에는 이미지의 선명도를 제고하기 위하여 명암비(contrast ratio)를 증가시켜 공극 영역에 존재하는 핵산과 공극수, 공극 구조를 구성하는 유리 사이의 밝기 차를 명확하게 구분하고, 이와 함께 블러링(blurring) 처리를 통하

여 명암비가 증가하면서 나타나는 잡음(noise)을 제거하였다(Fig. 4c, d). 전처리를 완료한 이미지로부터 핵산으로 대체된 면적을 구분하기 위하여 그레이 이미지를 이원화상으로 변환하는 MATLAB 프로그램을 이용하였다. 그레이 이미지를 구성하는 각각의 픽셀에 대하여 특정한 임계값을 기준으로 더 어두운 부분은 1, 더 밝은 부분은 0의 값을 부여하여 구분함으로써 공극수로 채워진 흰색 영역(1)과 유리 또는 핵산으로 채워진 검은색 영역(0)으로 표현되는 이원화상을 제작하였다(Fig. 4e, f). 이렇게 생성된 이원화상에서 공극수로 포화된 공극의 면적은 흰색으로 표현되어 쉽게 계산할 수는 있는데 반하여, 유리로 이루어진 공극 구조와 핵산으로 채워진 공극은 모두 검은색으로 표현되기 때문에 핵산으로 대체된 면적만을 구분하여 계산할 수 없다. 따라서, 핵산이 주입되기 전 공극수로만 포화되어 있던 초기 환경에 대한 이원화상(Fig. 4e)의 각 픽셀에 부여된 1과 0의 픽셀값으로부터 대체 과정이 이루어져 공극수와 핵산이 혼재하는 이원화상(Fig. 4f)의 픽셀값을 빼줌으로써 유리와 잔류 공극수는 검은색으로 표현되고 핵산으로 대체된 영역이 흰색으로 표현되는 또 다른 이원화상을 생성하였다(Fig. 4g). 이 이원화상으로부터 전체 공극에 대한 핵산의 대체 면적비(E_D)는 다음과 같은 식으로 산정한다.

$$E_D(t) = \frac{S_{wi} - S_w(t)}{S_{wi}} = \frac{S_{hexane}(t)}{S_{wi}} \quad (4)$$

여기서, t 는 핵산 주입이 개시된 이후의 경과 시간[sec], S_{wi} 는 핵산 주입 이전 탈이온수로 포화된 전체 공극의 면적[mm^2], S_w 는 대체 과정에서 잔류하는 공극수가 차지하는 면적[mm^2](Fig. 4f), S_{hexane} 은 핵산으로 대체된 면적[mm^2](Fig. 4g)이다. 공극 구조 내로 핵산이 주입되기 전 초기 이원화상(Fig. 4e)의 흰색 영역에 대한 픽셀 수를 공극수로 포화된 전체 공극의 면적으로 정의하였으며, 핵산의 주입이 개시된 시점부터 평형상태에 도달하는 시점까지의 각 이원화상에서 흰색 영역으로 표시된 영역의 픽셀 수를 핵산으로 대체된 면적으로 정의하였다.

마지막으로, 핵산이 주입되기 전 초기 이원화상(Fig. 4e)에서 공극수로 포화된 영역을 파란색으로 나타내고, 일정한 시간 간격에 따라 제작된 핵산과 공극수 간 대체 과정의 이원화상(Fig. 4g)에서 핵산으로 대체된 영역을 빨간색으로 나타낸 후 두 이원화상을 중첩하여 공극 구조 내로 주입되는 핵산의 거동과 분포 및 잔류 공극수의 분포를 시각적으로 구분할 수 있는 최종적인 삼색 이미지를 완성하였다(Fig. 4h).

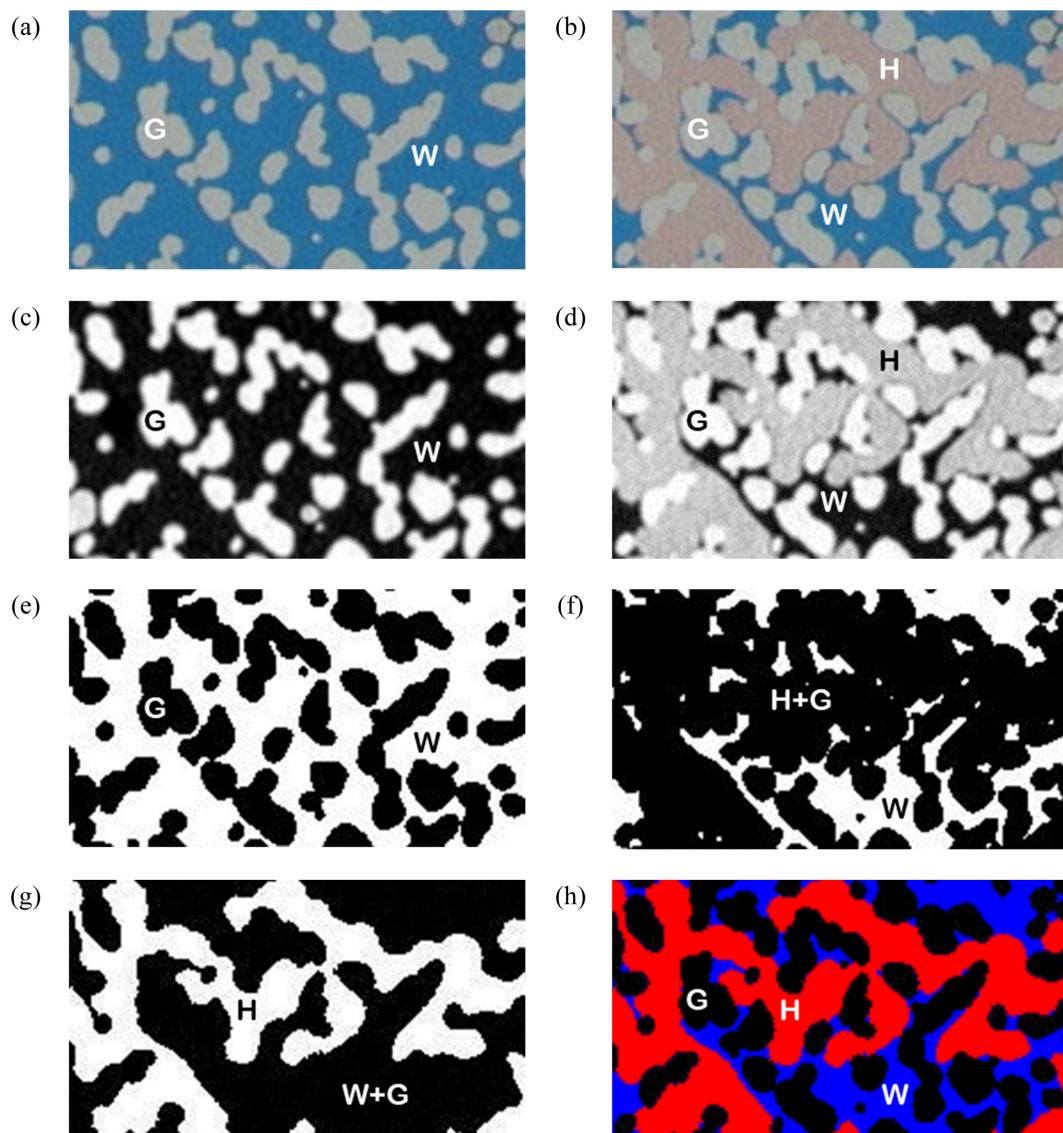


Fig. 4. Image processing procedure (G: glass, W: water, H: hexane); (a) a real image before *n*-hexane injection, all of pore was initially saturated with water, (b) a real image after *n*-hexane injection, a portion of water was displaced by *n*-hexane, (c) the gray image transformed from the real image (a), (d) the gray image transformed from the real image (b), (e) the binary image transformed from the real image (c), (f) the binary image transformed from the real image (d), (g) the binary image of distribution *n*-hexane (white) in pore network with porewater (black), (h) the finalized multicolor image of distribution for *n*-hexane (red), water (blue) and glass (black).

3. 결과 및 토의

3.1. 시간 경과에 따른 헥산-공극수 대체 양상

습윤성 유체인 탈이온수로 포화된 공극 구조 내로 비습윤성 유체인 헥산이 주입됨에 따라 탈이온수의 배수과정이 진행되면서 서로 혼합되지 않는 두 유체 간의 비혼성 대체가 이루어진다. Fig. 5는 0.1 MPa와 25°C의 상온·상압 조건에서 마이크로모델의 공극 구조 내로 헥산을 0.01 mL/min의 유량으로 주입한 세 번의 반복 실험 중 평형

상태의 대체 면적비가 중간값을 나타낸 실험의 결과로서, 시간 경과에 따른 헥산과 탈이온수 간 비혼성 대체 양상과 헥산으로 인한 각 시점에서의 대체 면적비를 나타낸 것이다. 주입관을 통하여 헥산의 주입이 시작되면 주입된 헥산은 마이크로모델의 공극 구조와 연결된 완충대(buffer zone)로 우선 유입된다(Fig. 5a, $t = 0.77$ sec). 헥산의 주입이 지속되어 완충대 내 헥산의 압력이 마이크로모델 공극 구조의 진입 압력을 초과하면 비로소 공극 구조 내로의 진입이 시작되고 공극으로 이어진 흐름 경로를 형성하

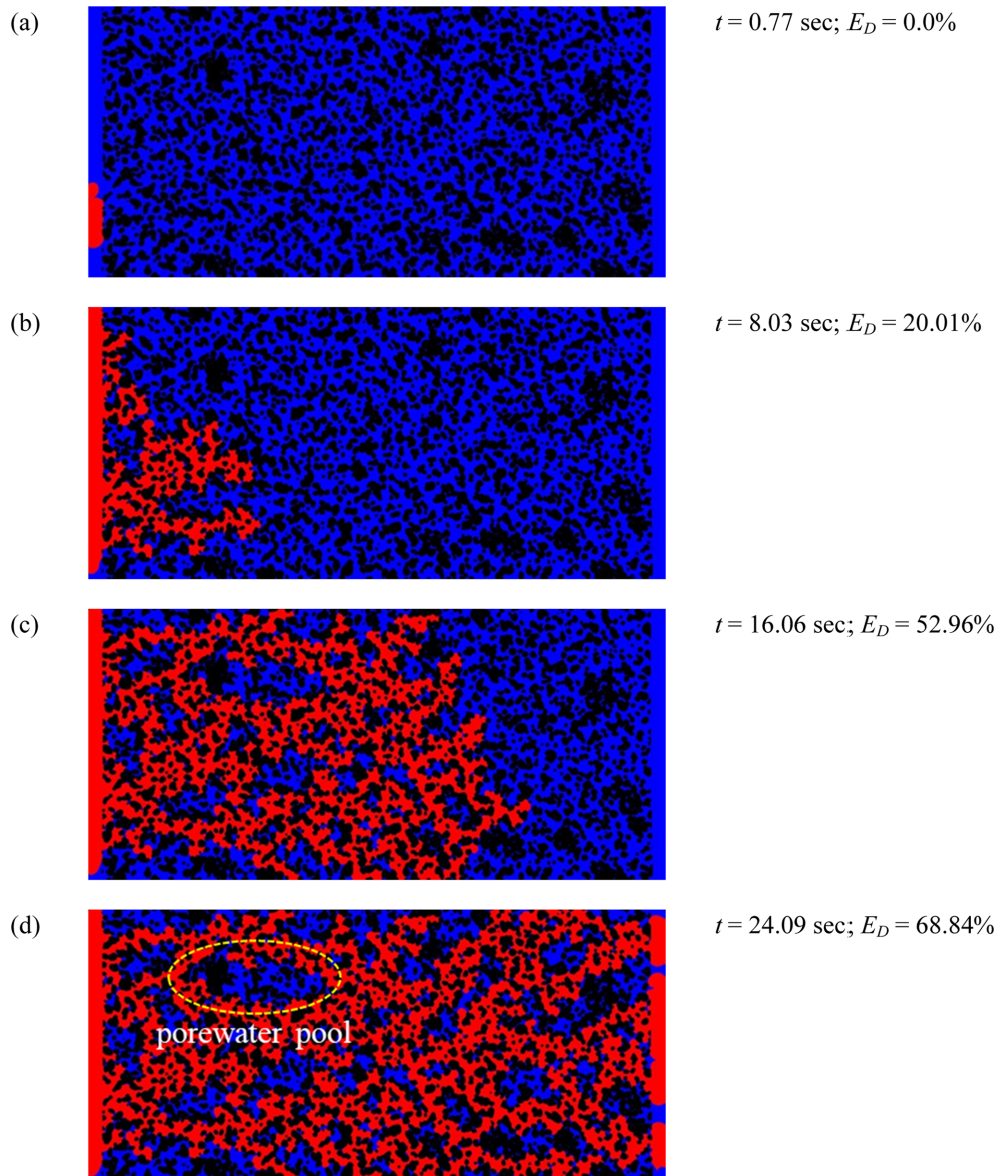


Fig. 5. Sequential images of the immiscible displacement process of residing deionized water (blue) by injecting n-hexane (red) in a micromodel (a) $t = 0.77 \text{ sec}$, (b) $t = 8.03 \text{ sec}$, (c) $t = 16.06 \text{ sec}$, (d) $t = 24.09 \text{ sec}$ (Experimental conditions: 0.1 MPa, 25°C and 0.01 mL/min).

며 헥산이 확산되기 시작한다(Fig. 5b, $t = 8.03 \text{ sec}$). 헥산의 흐름이 진행됨에 따라 하나의 공극(pore body)을 채운 헥산은 인접 공극으로 연결되는 공극목을 통과하여 인접 공극으로 진입하고 포화되어 있던 공극수를 밀어내며 공극을 차지하기를 반복하면서 연속적인 흐름 경로가 성장한다(Fig. 5c, $t = 16.06 \text{ sec}$) (Lenormand et al., 1988). 이와 같은 과정을 통하여 헥산은 공극수가 더 이상 배출되지 않을 때까지 공극 구조 내에서 계속적으로 확산되고, 헥산으로 대체된 면적은 시간의 경과에 따라 헥산의 유입량에 비례하여 증가한다. 불규칙한 마이크로모델의 공극

구조를 따라 진행되는 헥산의 흐름 경로는 나누어지고 이어지며 하류부의 완충대에 도달하고 배출관을 통해 외부로 배출된다. 이 과정에서 헥산의 침투없이 헥산의 흐름 경로로 둘러싸여 폐쇄된 공극수 영역(porewater pool) 내에 존재하던 공극수는 헥산의 주입과 흐름이 지속되어도 배출되지 않고 잔류하게 되며, 유입된 헥산은 이미 형성된 흐름 경로를 따라 그대로 배출되면서 헥산과 공극수의 공간적 분포가 더 이상 변화하지 않는 평형상태에 도달하게 된다(Fig. 5d, $t = 24.09 \text{ sec}$). 식 (4)로 산정된 헥산의 대체 면적비를 적용하여 시간에 따른 헥산과 공극수 간

대체 과정을 정량적으로 표현하면 마이크로모델 내 공극은 hexan의 주입이 개시된 이후 8.03 sec, 16.06 sec, 24.09 sec가 경과했을 때 각각 11.23%, 47.05%, 68.03%의 면적이 hexan으로 대체되었다. Fig. 6은 전체 관측 기간 동안 대체 면적비의 변화 양상을 나타낸 것으로, hexan의 대체면적비는 주입 초기 hexan의 유입량에 비례하여 지속적으로 증가하다가 hexan의 흐름 경로가 마이크로모델의 공극 구조를 관통하여 주입구로부터 유출구까지의 통로가

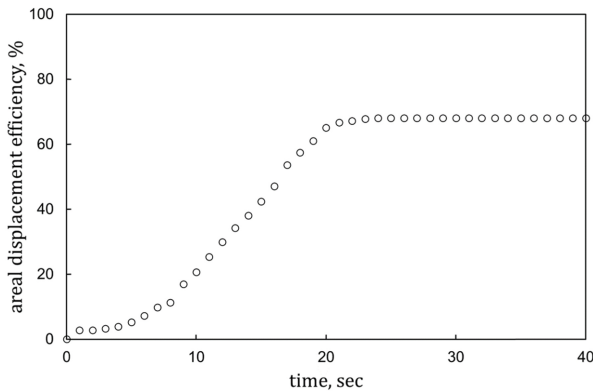


Fig. 6. Temporal profile of areal displacement efficiency of *n*-hexane in a micromodel (Experimental conditions: 0.1 MPa, 25°C and 0.01 mL/min).

형성된 이후에는 그 증가율이 급격하게 감소한다. 주입 개시 후 24 sec가 경과하면 대체 면적비는 이 실험에서의 최대값인 68.03%를 나타내는데, 이후에는 새로운 공극으로의 침투와 이를 통한 흐름 경로의 생성이 추가로 이루어지지 않으면서 대체 면적비의 변화가 나타나지 않는 평형 상태를 이룬다. 이는 평형 상태에서 주입되는 hexan은 이미 형성된 흐름 경로를 따라 마이크로모델을 통과하여 유출되며, hexan의 흐름 경로 사이에 잔류하는 공극수는 hexan의 흐름에 영향받지 않고 정체되면서 hexan과 공극수의 공간적 분포에 변화가 생기지 않는다는 것을 의미한다.

3.2. hexan의 대체 효율에 대한 주입 유량의 영향

주입 유량의 변화가 hexan에 의한 공극수 대체 과정과 hexan의 대체율에 미치는 영향을 규명하기 위하여, 0.1 MPa와 25°C의 상온·상압조건에서 hexan의 주입 유량을 0.003 mL/min, 0.005 mL/min, 0.007 mL/min, 0.01 mL/min, 0.03 mL/min, 0.05 mL/min으로 변화시키며 공극수로 포화된 마이크로모델에 대한 hexan 주입 실험을 3회씩 반복하여 수행하였다. Fig. 7은 본 실험에서 적용된 최소 및 최대 유량인 0.003 mL/min과 0.05 mL/min으로 hexan을 주입하여 각 3회씩 수행된 실험 중 평형 상태의 대체 면적비가 중간값을 나타낸 경우에 대하여 평형상태 이후

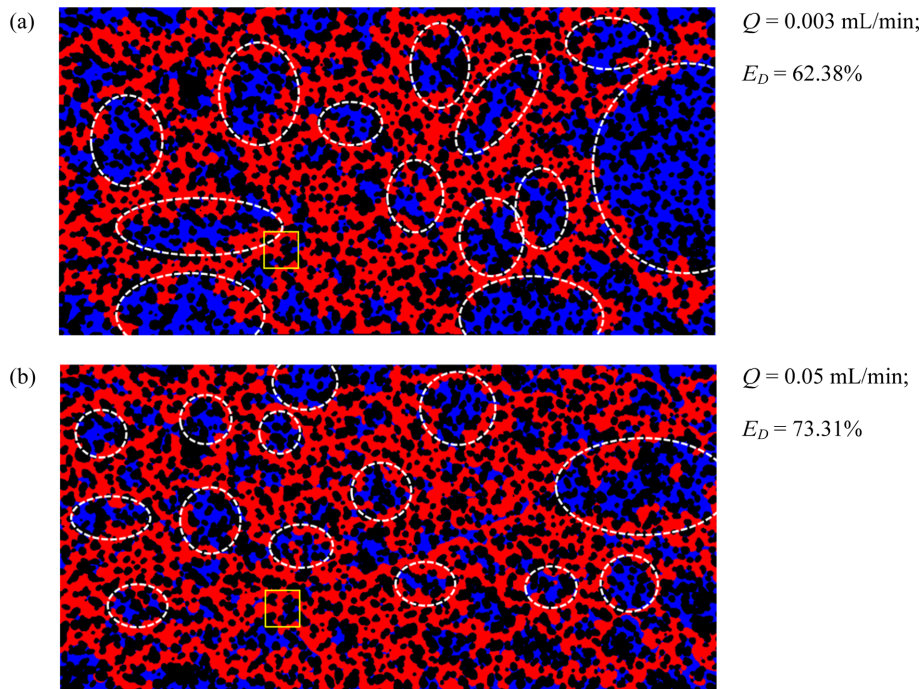


Fig. 7. Spatial distribution of deionized water (blue) and *n*-hexane (red) at the equilibrium state in the displacement experiment at a flow rate of (a) 0.003 mL/min and (b) 0.05 mL/min (Experiment conditions: 0.1 MPa, 25°C). White-circled areas denote porewater pools entrapped by flow paths of *n*-hexane. Yellow boxes are marked for further analysis on flow patterns in the pore scale.

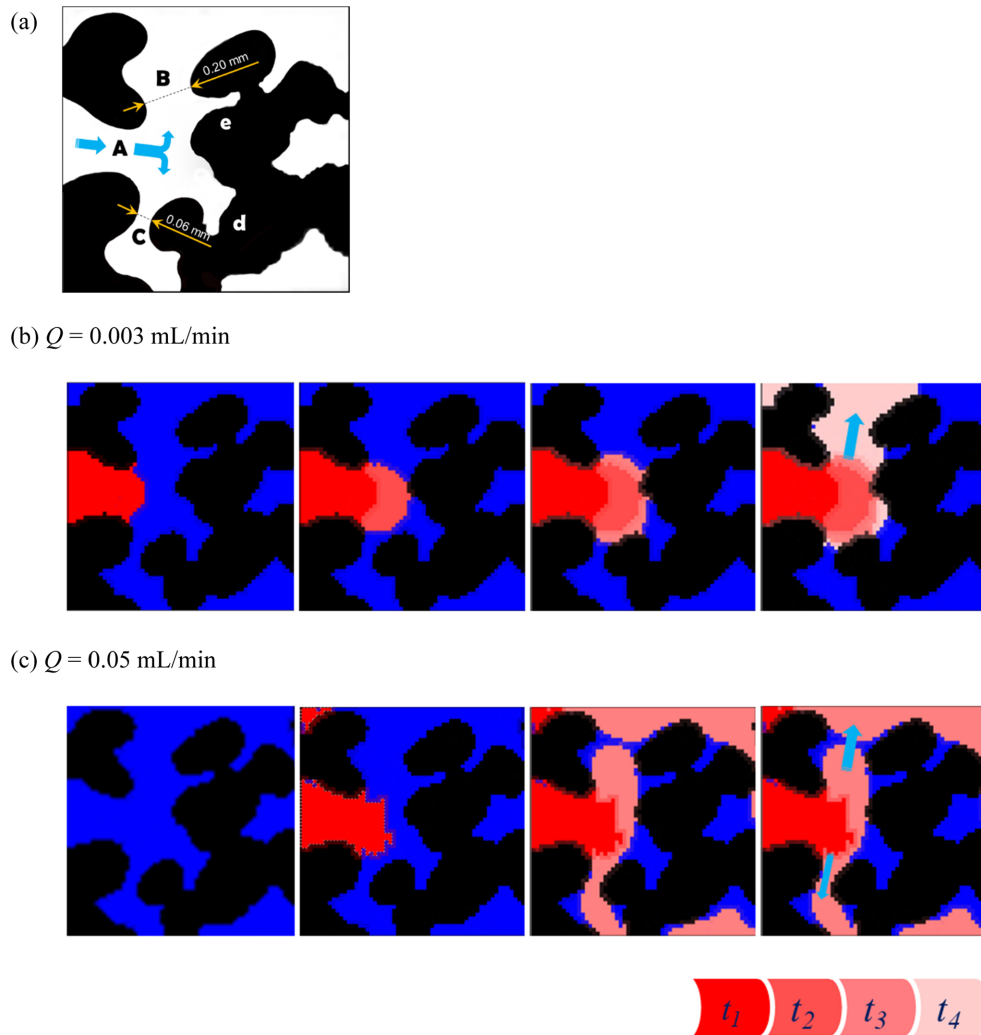


Fig. 8. Immiscible displacement process at a pore scale. (a) structure of the selected pore network in the micromodel, and the sequential progress of the displacement of deionized water by injecting *n*-hexane at a flow rate of (b) 0.003 mL/min and (c) 0.05 mL/min. The difference of the color indicates the flow path of *n*-hexane on time change (Experiment conditions: 0.1 MPa, 25°C).

헥산과 공극수의 분포를 나타낸 것이다. 이미지 분석 결과에 따르면 유량 0.003 mL/min과 0.05 mL/min 실험에서 나타난 평형상태의 대체 면적비는 각각 62.38%와 73.31%로서, 유량이 큰 경우 더 많은 양의 공극수가 헥산으로 대체된 것으로 나타났다. 마이크로모델의 불규칙한 공극 구조 특성에 비추어 헥산의 흐름 경로에서 어떠한 정형화된 양상이 나타나지는 않았지만, Fig. 7에서 푸른 색으로 표시된 공극수가 붉은 색으로 표현된 헥산의 흐름 경로에 둘러싸여 정체하고 있는 영역(Fig. 7에서 원형 점선으로 표시된 영역)은 유량이 큰 경우($\log Ca = -1.587$)에 비하여 유량이 작은 경우($\log Ca = -2.809$)에서 상대적으로 더 크고 빈번하게 발생하였다. 이러한 경향은 유량이 큰 경우에 상대적으로 더 가느다란 흐름 경로가

다양한 방향으로 형성되면서 더 많은 공극에 침투하며 내부의 공극수를 대체하는 반면에, 유량이 작은 경우에는 상대적으로 폭이 넓은 흐름의 경로가 형성되면서 경로 사이에 둘러싸여 흐름이 정체되어 잔류하는 공극수가 많아지기 때문인 것으로 판단된다. 또한, 최종적으로 유출구가 존재하는 마이크로모델의 오른쪽 면에 도달한 헥산 흐름 경로의 규모와 숫자 역시 유량이 큰 경우에서 더 작고 더 많은 것으로 나타났다.

Fig. 8은 주입 유량의 차이가 헥산의 거동 양상에 미치는 영향을 미소 규모에서 보다 면밀하게 비교·관찰하기 위하여 마이크로모델 내 공극 구조 중에서 하나의 공극을 선택하고(Fig. 8a; Fig. 7에서 사각형으로 표시된 영역), 그 공극의 내부에서 시간의 흐름에 따라 성장하는 헥산의

흐름을 색상 차이로 구분하여 표현한 것이다(Fig. 8b와 c). Fig. 8a에 나타난 바와 같이 선택된 단일 공극은 세 개의 인접 공극으로 이어지는 세 개의 공극목으로 연결되는데, 공극목 A를 통하여 유입된 핵산은 공극을 채운 후 폭 0.20 mm의 상대적으로 넓은 공극목 B와 폭 0.06 mm의 좁은 공극목 C를 통하여 인접 공극으로 확산될 수 있다. 공극목의 폭을 직경으로 가정하여 식 (1)로부터 계산된 B와 C에서의 모관압은 각각 0.50 mN/mm²와 1.68 mN/mm²로서, 공극목의 크기에 반비례하는 모관압이 각각 작용하고 있다. 이 공극 구조에는 또 다른 두 개의 공극목 e와 d가 존재하지만, 끝이 막힌 구조 때문에 이들을 통한 핵산의 흐름은 발생하지 않는다.

시간에 따른 핵산과 공극수 간 대체 양상을 살펴보면, 0.003 mL/min의 유량 조건에서는 공극목 A를 통하여 공극 내부로 유입된 핵산은 공극을 채워가다가 상대적으로 넓은 공극목 B를 따라 위쪽 공극으로 이동하며 흐름 경로를 형성하는데 반하여(Fig. 8b), 0.05 mL/min의 유량 조건에서는 공극 내로 진입된 핵산이 공극목 B 뿐만 아니라 상대적으로 좁은 공극목 C를 채우고있던 공극수를 동시에 밀어내며 상하 양방향의 인접 공극 모두로 확산되는 것을 확인할 수 있다(Fig. 8c).

단일 공극 내에서의 비혼성대체 과정은 공극목을 차지하고 있는 습윤성 유체와 공극을 포화시킨 비습윤성 유체의 접촉면에 작용하는 두 비혼성 유체의 압력에 의해 결정된다. 공극 내 핵산의 압력이 공극목의 공극수에 작용하는 모관압으로 결정되는 공극 진입 압력보다 낮은 경우에는 핵산의 흐름은 정지되고, 지속적인 주입으로 인하여 해당 공극 내 핵산의 압력이 증가하여 진입 압력을 초과하게 되면 공극목을 차지하고 있던 공극수를 밀어내고 인접 공극을 향한 흐름 경로가 확장된다. 0.003 mL/min의 낮은 주입 유량이 적용된 경우, 공극 내 핵산의 압력이 상대적으로 느리게 증가하기 때문에 좁은 공극목 C에 작용하는 모관압을 초과하는 압력이 형성되기 이전에 상대적으로 낮은 모관압이 작용하는 넓은 공극목 B를 통하여 흐름이 우선적으로 이루어진다. 일단 B를 통한 흐름이 시작되어 핵산이 인접 공극으로 유출되면 공극 내 핵산의 압력은 급격하게 감소하기 때문에 좁은 공극목 C을 관통하기 위해 필요한 압력까지 도달할 수 없으므로 이후로는 공극목 B를 통과하는 흐름만이 이어지는 선택적 흐름이 나타난다. 이와 비교하여 0.05 mL/min의 높은 유량으로 핵산이 주입되는 경우, 이전 실험과 비교하여 마이크로모델 공극 구조 내로 핵산이 유입되는 속도가 빨라지고, 이에 비례하여 단일 공극 내 핵산의 유입과 압력 증가가

빠르게 이루어지기 때문에 좁은 공극목 C의 모관압을 초과하는 핵산의 압력이 짧은 시간 안에 공극 내부에 형성될 수 있으므로 핵산이 넓은 공극목 B 뿐만 아니라 상대적으로 좁은 공극목 C에 존재하는 공극수를 동시에 밀어내며 다양한 방향의 인접 공극 내로 진입할 수 있는 것으로 판단된다.

이러한 추론을 확인하기 위하여 다양한 주입 유량에 대한 실험의 결과로부터 동일한 공극 내에서 일어나는 핵산의 흐름 양상을 추출하여 Fig. 9에 나타내었다. 상대적으로 낮은 유량이 적용된 0.003 mL/min ($\log Ca = -2.809$)과 0.007 mL/min ($\log Ca = -2.441$) 실험에서는 공극 내로 주입된 핵산이 공극을 채우며 증가하다가 공극을 거의 다 채운 후에는 위 방향의 넓은 공극목 B를 통하여 새로운 흐름 경로를 형성하며, 이후에도 아래 방향의 좁은 공극목 C로 이어진 공극으로는 흐름 경로가 형성되지 않는다(Fig. 9a와 b). 이에 반하여, 수행된 실험 중 높은 유량 범위에 속하는 0.01 mL/min($\log Ca = -2.286$)과 0.05 mL/min($\log Ca = -1.587$) 실험에서는 양 방향의 공극을 동시에 통과하는 것을 확인할 수 있다(Fig. 9c와 d). 이는 0.003~0.007 mL/min($\log Ca < -2.441$)의 유량 범위에서는 아래 방향의 좁은 공극목 C에 작용하는 모관압을 초과하는 핵산의 압력이 공극 내에서 형성되지 못하지만, 0.01~0.05 mL/min ($\log Ca > -2.286$)의 유량 범위에서는 공극목 C의 모관압을 초과하는 핵산의 압력이 형성된다는 것을 의미한다. 이러한 현상은 단일 공극 내 핵산의 압력이 유입 유량에 비례하여 빠르게 증가하는 경우에는 상대적으로 큰 공극만을 통하여 이루어지는 선택적 흐름의 형성이 감소하고 다양한 방향으로의 흐름이 이어질 수 있기 때문에, 그 과정에서 핵산의 흐름 경로를 이루는 공극 내에 포화되어 있던 공극수와 대체되는 양이 증가한다는 것을 잘 보여준다. 이러한 현상에 대한 보다 명확한 근거를 제시하기 위해서는 단일 공극 내 핵산의 압력 변화에 대한 정보가 필요하지만 본 연구에서의 실험 장치를 통한 측정是不可能하기 때문에 향후 계획된 모델링 연구를 통하여 이를 정량적으로 설명할 수 있을 것으로 기대된다.

단일 공극 내에서 일어나는 미시적인 핵산의 흐름 양상을 마이크로모델 전체 공극 구조의 규모에 적용하여 거시적으로 살펴보면, 주입 유량이 낮은 경우에는 핵산의 흐름이 상대적으로 넓은 공극목으로 이어지면서 유입구에서 배출구로 향하는 주흐름 방향 뿐만 아니라 흐름을 가로지르는 방향으로도 확산하는 모세관 핑거링이 나타난다. 이로 인하여 핵산의 흐름 경로가 다양한 방향으로 분리되며 성장하고 다시 접점에서 만나기를 반복하면서 고리 모양

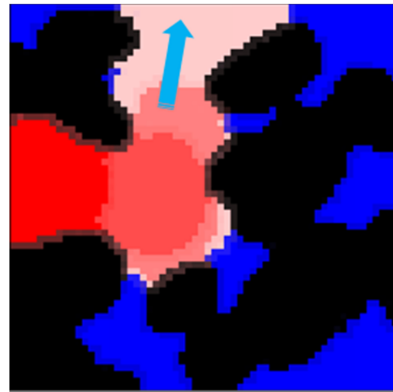
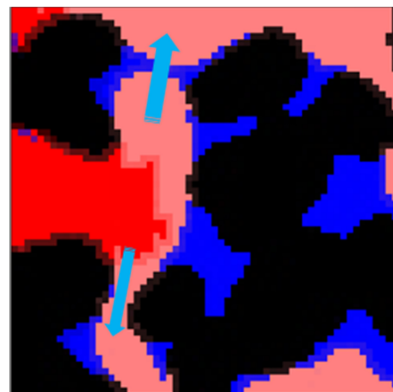
(a) $Q = 0.003$ mL/min(b) $Q = 0.007$ mL/min(c) $Q = 0.01$ mL/min(d) $Q = 0.05$ mL/min

Fig. 9. Sequential progress of the displacement of deionized water by injecting *n*-hexane at different flow rate; (a) 0.003 mL/min, (b) 0.007 mL/min, (c) 0.01 mL/min and (d) 0.05 mL/min. The difference of the color indicates the flow path of *n*-hexane on time change (Experiment conditions: 0.1 MPa, 25°C).

을 형성하고, 그 과정에서 공극수가 고리 모양의 흐름 경로에 둘러싸여 배출되지 못하고 고리 내부에 잔류하게 된다. 또한, 유입구에서 배출구까지의 흐름 경로가 일단 형성되고 난 이후에 주입되는 헥산은 이미 형성된 경로를 따라 흐름을 이어가기 때문에 잔류하는 공극수의 대체가 더 이상 이루어지지 않음으로써 상대적으로 많은 양의 공극수가 마이크로모델 내부에 잔류하게 되고 헥산의 대체 면적비는 낮게 나타난다. 이에 반하여 주입 유량이 높은 경우에는 헥산이 상대적으로 넓은 공극목을 통과하여 형성되는 선택적 흐름이 감소하고 다양한 크기의 공극목들을 통과하며 동시에 여러 개의 흐름 경로를 형성하며 확산된다. 이로 인해 낮은 유량의 경우에 비하여 상대적으로 더 많은 양의 공극수와 대체가 이루어짐으로써 안정 치환에 가까운 높은 대체 면적비를 나타내는 것으로 판단된다.

Fig. 10은 주입 유량의 변화에 대한 헥산의 대체 면적비를 나타낸 것으로, 주입 유량이 증가함에 따라 최종적인 평형상태의 대체 면적비가 증가하는 것을 확인할 수 있다. 이는 주입 유량이 증가함에 따라 공극 구조 내 헥산의 대체 효율(또는 저장 효율)이 증가한다는 것을 의미한다. 이는 주입 유량의 증가가 마이크로모델 내부로 유입되는 헥산의 유속과 공극 내 압력의 증가를 야기하고, 이로 인하여 헥산이 넓은 공극목으로 연결되는 공극 뿐만 아니라 상대적으로 좁은 공극목으로 연결되는 보다 많은 공극 내로 침투할 수 있기 때문에 더 많은 공극수를 밀어내고 전체적인 대체율이 증가한다. 본 실험의 결과로부터 도출된 주입 유량에 따른 헥산과 공극수 간 대체 양상 및 헥산의 대체 효율 변화는 주입 유체의 유속 증가로 인하여 모세관 핑거링 현상이 줄어들고 비교적 안정적

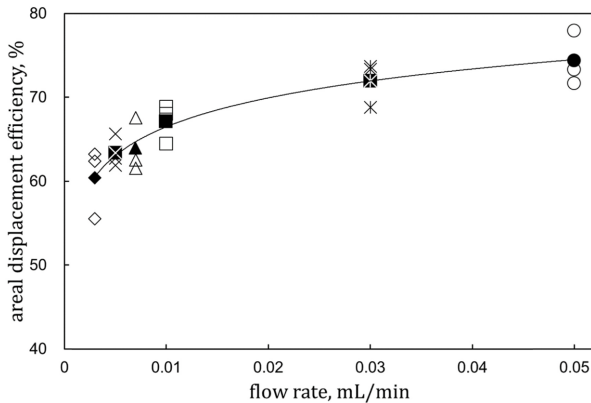


Fig. 10. Variation in the areal displacement efficiency of *n*-hexane in a micromodel at different flow rate (Experimental conditions: 0.1 MPa and 25°C) (solid symbols : averaged values of three attempts for each flow rate).

으로 대체가 이루어지는 것을 잘 보여준다(Naderi and Babadagli, 2011). 이러한 실험의 결과는 지하 심부의 지질구조 내부로 유체를 주입하여 격리 또는 저장하는 경우, 높은 주입 유량을 유지하는 것은 공극 구조 내에서의 유체의 선택적인 흐름을 감소시키고 저장 효율을 제고할 수 있음을 보여준다. 그러나, 유체 주입 과정에서 발생할 수 있는 과도한 지층 압력의 증가는 공극 구조의 변화나 지층 균열의 생성 등을 야기하여 저장 유체의 누출 등 다양한 경제적 및 환경적 영향을 미칠 수 있다. 따라서 지층 환경이 허용하는 범위 내에서 적절한 주입 유량을 조절하는 동시에 주입 유체의 점성을 높이거나 주입 유체-초기 포화 유체 간 계면장력을 감소시키는 등 모관수를 증가시킬 수 있는 추가의 기술적 노력을 통하여 주입 유체의 대체율 또는 저장 효율이 제고되어야 한다고 판단된다. 이와 함께, 높은 유량으로 주입된 비수용성 유체는 주입공 부근에서는 안정적인 대체가 이루어지지만, 주입공으로부터 방사상으로 확산해감에 따라 국부적인 공극 규모에서의 주입 유량은 급격하게 감소함에 따라 핑거링 현상이 발생하고 저장 효율은 점차 감소할 것으로 예측할 수 있다.

4. 결 론

본 연구에서는 포화된 다공성 매체 내부로 비혼성의 유체가 주입되는 과정에서 주입 유량의 변화가 주입 유체의 거동과 초기 포화 유체의 잔류 특성 및 주입 유체의 대체율에 미치는 영향을 규명하기 위하여 유리판에 공극 구조를 식각하여 제작된 투명한 마이크로모델을 이용한 관

찰 실험을 수행하였다. 이미지 변환을 통해 관찰된 핵산의 주입 과정에 따르면, 마이크로모델 내로 주입된 핵산은 불규칙한 공극 구조를 통해 거동하면서 초기에 공극수로 포화되어 있던 공극과 공극목을 차지하며 연속적인 흐름 경로를 형성한다. 이러한 확산 과정에서 정체하던 공극수는 핵산에 공극을 내주면서 하류부로 유출되는데, 핵산의 흐름 경로로 둘러싸인 공극 내부에 위치한 일부 공극수는 핵산과 대체되지 않고 잔류하게 된다. 일단 핵산의 흐름이 다양한 흐름 경로를 형성하며 하류부까지 마이크로모델을 관통하게 되면 추가의 흐름 경로의 형성없이 지속적인 흐름이 이루어지고 마이크로모델 내부의 핵산과 공극수의 공간적인 분포가 변화하지 않는 평형 상태에 도달하게 되고, 유입량에 비례하여 증가하던 핵산의 대체 면적비는 최대값을 유지하게 된다.

주입 유량의 변화가 주입 유체와 초기 포화 유체 간 대체 과정과 대체율에 미치는 영향을 규명하기 위한 주입 실험의 결과에 따르면, 유량이 0.003 mL/min에서 0.05 mL/min으로 증가함에 따라 핵산의 대체 면적비가 평균 62.38%에서 73.31% 증가하는 것으로 나타나 주입 유량이 증가할수록 더 많은 공극수가 주입 유체 핵산에 의해 대체됨을 확인할 수 있었다. 이러한 마이크로모델 규모에서의 대체율 증가 경향은 단일 공극 규모에서의 관찰 결과를 통해 그 원인이 추정될 수 있다. 마이크로모델로 주입되는 유량의 증가는 마이크로모델 내부의 단일 공극으로 유입되는 핵산의 유속 뿐만 아니라 공극 내 핵산의 압력 증가율을 높이게 된다. 따라서, 유량이 낮은 경우에는 공극 내 핵산의 압력이 큰 공극목으로 집입하는데 필요한 압력 이상으로 증가하기 어려운데 반하여, 유량이 높은 경우에는 핵산의 압력이 단시간 내에 큰 공극목은 물론 작은 공극목을 관통하기에 충분한 수준으로 증가됨으로써 상대적으로 큰 공극목만을 통과하는 선택적인 흐름의 생성은 감소하고 다양한 방향으로 흐름 경로가 형성되며, 결과적으로, 공극 구조 내에 포화되어 있던 많은 양의 공극수와 대체가 이루어짐으로써 대체율이 증가하게 된다. 본 연구에서 도출된 다공성 매체 내에서 일어나는 비혼성 유체 간 대체 및 거동 양상, 주입 조건에 따른 대체율의 변화 경향은 지하환경의 오염 복원, 석유회수증진, 이산화탄소 지중저장 등 다양한 분야에서의 주입 유체-초기 포화 유체의 거동과 분포 양상 예측에 활용될 수 있을 것으로 판단된다. 다만, 본 연구에서 수행된 실험에서는 주입 조건에 따른 공극 구조 내 주입 유체의 압력 변화에 대한 정보를 획득하는 것이 불가능하기 때문에 유체 주입 과정에서의 공극 구조 내 압력 변화가 실제 지질구조에

미치는 영향을 정량적으로 설명할 수 없다. 따라서 향후 모델링 연구를 통하여 이와 같은 한계점을 보완함으로써 실제 지질구조 내로 유체를 격리 또는 저장하는 경우에 적용하기 위한 노력이 이루어져야 할 것으로 판단된다.

사 사

이 논문은 부경대학교 자율창의학술연구비(2016년)에 의하여 연구되었습니다.

References

- Bertrand, E., Bonn, D., Broseta, D., Dobb, H., Indekeu, J.O., Meunier, J., Ragil, K., and Shahidzadeh, N., 2002, Wetting on alkanes on water, *J. Petrol. Sci. Eng.*, **33**, 217-222.
- Cao, S.C., Dai, S., and Jung, J., 2016, Supercritical CO₂ and brine displacement in geological carbon sequestration: Micro-model and pore network simulation studies. *Int. J. Greenh. Gas Con.*, **44**, 104-114.
- Chalbaud, C., Robin, M., Lombard, J.M., Martin, F., Bertin, H., and Egermann, P., 2010, Brine/CO₂ interfacial properties and effects on CO₂ storage in deep saline aquifers, *Oil Gas Sci. Technol.*, **65**(4), 541-555.
- Chiquet, P., Broseta, D., and Thibeau, S., 2007, Wettability alteration of caprock minerals by carbon dioxide, *Geofluids*, **7**, 112-122.
- Dicarlo, D.A., Sahni, A., and Blunt, M.J., 2000, The effect of wettability on three-phase relative permeability, *Transp. Porous Media*, **39**, 347-366.
- IAPWS, 2008, Release on the IAPWS Formulation 2008 for the Thermodynamic Properties of Seawater. The International Association for the Properties of Water and Steam, Berlin, Germany.
- Lenormand, R., Touboul, E., and Zarcone, C., 1988, Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media, *J. Fluid Mech.*, **189**, 165-187.
- Lenormand, R., 1990, Liquids in porous media, *J. phys.*, **2**, 79-88.
- Mekhtiev, S.I., Mamedov, A.A., Khalilov, Sh.Kh., and Aleskerov, M.A., 1975, *Izv. Vyssh. Uchebn. Zaved. Neft. Gaz*, **3**, 64.
- Naderi, K. and Babadagli, T., 2011, Pore-scale investigation of immiscible displacement process in porous media under high-frequency sound waves, *J. Fluid Mech.*, **680**, 336-360.
- O'Carroll, D.M. and Sleep, B.E., 2007, Hot water flushing for immiscible displacement of a viscous NAPL, *J. Contam. Hydrol.*, **91**, 247-266.
- Wang, Y., Zhang, C.Y., Wei, N., Oostrom, M., Wietama, T.W., Li, X.C., and Bonneville, A., 2013, Experimental study of cross-over from capillary to viscous fingering for supercritical CO₂-water displacement in a homogeneous pore network, *Environ. Sci. Technol.*, **47**(1), 212-218.
- Wildenschild, D., Armstrong, R.T., Herring, A.L., Young, I.M., and Carey, J.W., 2011, Exploring capillary trapping efficiency as a function of interfacial tension, viscosity, and flow rate, *Energy Procedia*, **4**, 4945-4952.
- Yang, D., Tontiwachwuthikul, P., and Gu, Y., 2005, Interfacial interactions between reservoir brine and CO₂ at high pressure and elevated temperature, *Energy Fuels*, **19**, 216-223.
- Zeppieri, S., Rodriguez, J., and Ramos, A.L., 2001, Interfacial tension of alkane + water systems, *J. Chem. Eng. Data*, **46**, 1086-1088.
- Zheng, X., Mahabadi, N., Yun, T.S., and Jang, J., 2017, Effect of capillary and viscous force on CO₂ saturation and invasion pattern in the microfluidic chip, *J. Geophys. Res.: Solid Earth*, **122**, 1634-1647.
- Zhang, C., Oostrom, M., Wietsma, T.W., Grate, J.W., and Warner, M.G., 2011, Influence of viscous and capillary forces on immiscible fluid displacement: Pore-scale experimental study in a water-wet micromodel demonstrating viscous and capillary fingering, *Energy Fuels*, **25**, 3493-3505.