

# 마이크로 모델을 이용한 고령토 입자의 유동 특성 연구

## Study of Kaolin Particle Migration and Clogging Using a Micromodel

하 민 규<sup>1</sup> Ha, Minkyu

정 종 원<sup>2</sup> Jung, Jongwon

### Abstract

Hydrate dissociation is required to produce methane, which generates both water and methane. Thus, multiphase fluid flow and desalination are expected during methane production, which causes the fine migration and clogging in pores. The goal of this study is to explore the effects of both multiphase fluid flow and desalination on the migration and clogging of kaolin particles as typical fines. The results are as follows : (1) the larger the pore size is, the more mounting the critical clogging concentration is, (2) kaolin particles are more easily clustering and clogging in deionized water than salty water, and (3) the critical clogging concentration of kaolin in multiphase fluid flow is lower than in singlephase fluid flow. Therefore, clustering and clogging of kaolin within pore occur easily due to desalination and multiphase fluid flow when methane is produced from hydrates, and the efficiency of methane production is expected to decrease due to the degradation of permeability coefficient.

### 요 지

메탄을 생산하기 위한 하이드레이트 해리시 물과 메탄이 동시에 발생한다. 따라서, 지반 내 이온수의 담수화 및 다상유체의 흐름이 예상되고, 흡입자의 이동 및 막힘에 영향을 주게 된다. 본 연구는 담수화 및 다상유체 흐름이 대표적 세립토인 고령토 입자의 이동 및 막힘에 어떻게 영향을 주는지 규명하고자 한다. 연구 결과는 다음과 같다. (1) 공극의 크기가 커질수록 최소 막힘 발생 농도가 증가한다. (2) 고령토 입자는 소금물보다 담수에서 쉽게 뭉침 및 공극 막힘이 발생한다. (3) 다상유체 흐름 내에서 고령토의 최소 막힘 발생 농도는 단상유체 흐름에 비해 감소한다. 따라서, 하이드레이트로부터 메탄 생산 시, 담수화 및 다상유체의 흐름 발생으로 인해 고령토의 공극 막힘이 쉽게 발생할 수 있고, 이로 인해 투수계수의 저하로 메탄 생산효율의 저하가 예상됨을 설명하였다.

**Keywords** : Hydrate, Fine particle, Singlephase fluid flow, Multiphase fluid flow, Migration, Clustering, Clogging

### 1. 서 론

하이드레이트(hydrate)는 물과 메탄으로 이뤄진 물질

로서, 하이드레이트 내의 메탄은 에너지 자원으로 알려져 있다(Collett, 2002; Dallimore and Collett, 2005; Grauls, 2001; Holder et al., 1984; Ruppel, 2007). 동해 울릉분지

1 정회원, 충북대학교 토목공학부 박사과정 (Member, Ph.D Candidate, School of Civil Engrg., Chungbuk National Univ.)

2 정회원, 충북대학교 토목공학부 부교수 (Member, Associate Prof., School of Civil Engrg., Chungbuk National Univ., Tel: +82-43-261-2405, Fax: +82-43-275-2377, jjung@chungbuk.ac.kr, Corresponding author, 교신저자)

\* 본 논문에 대한 토의를 원하는 회원은 2019년 10월 31일까지 그 내용을 학회로 보내주시기 바랍니다. 저자의 검토 내용과 함께 논문집에 게재하여 드립니다.

남부 지역에 많은 양의 하이드레이트가 존재하고 있는 것으로 알려져 있어, 하이드레이트에서 메탄을 생산하기 위한 기술의 연구는 국내에서도 크게 관심을 받고 있다. 하이드레이트를 포함한 지반에서 메탄을 생산하기 위해서는 물과 메탄으로 분리하는 하이드레이트의 해리 과정이 필수적이고, 이는 물과 메탄을 생성함에 따라 지반 내에 다상유체의 흐름(multiphase fluid flow)을 발생시킨다. 최근 연구에 따르면 점토질 세립토(fine particle)가 포함되어 있는 지반에서 다상유체의 흐름이 발생하는 경우 흡입자의 이동(migration of fine particle) 및 공극 막힘(clogging) 현상 발생이 발생하고, 이는 투수율의 저하 및 지반의 강도 저하 등에 영향을 줄 수 있다고 발표 되었다(Jung et al., 2018). 또한, 하이드레이트를 포함한 지반에 존재하는 지하수는 전기적 성질을 띠고 있는 이온수인데 반해, 하이드레이트의 해리로 인해 생성되는 물은 담수이다. 따라서 하이드레이트에서의 메탄 생산은 지반 내 지하수(이온수)의 담수화가 발생하고, 이는 흡입자의 이동, 공극 막힘 및 이로 인한 투수성의 저하 등에 크게 영향을 줄 것으로 예상된다.

한 가지 종류의 유체만 흐르는 단상유체의 흐름(single-phase fluid flow)이 발생 시, 지반 내 흡입자의 이동 및 막힘 현상은 세립토의 농도, 세립토-지반 입자의 크기 비율( $d/D$ ) 및 세립토-공극의 크기 비율( $d/o$ )에 의해 영향을 받는다고 알려져 있다(Bingo et al., 1994; Oyenyin et al., 1995; Khilar and Fogler, 1998). Fig. 1은 세립토의 농도가 낮을수록, 세립토-지반 입자의 크기 비율( $d/D$ ) 및 세립토-공극의 크기 비율( $d/o$ )이 작을수록 세립토는

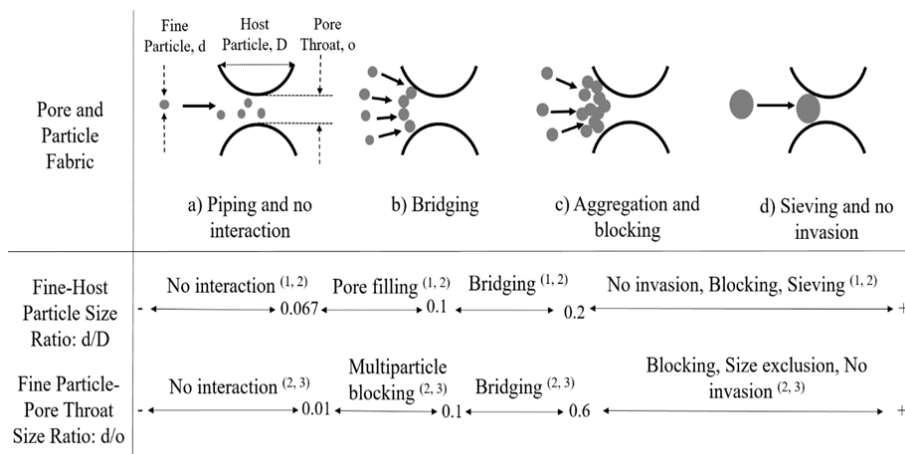
원활하게 이동할 수 있으나, 반대인 경우 세립토의 막힘 현상이 발생함을 보여주고 있다. 하지만, 다상유체의 흐름 속에서 흡입자의 이동 및 막힘에 대한 연구는 부족하다. 또한, 이온수의 담수화에 따른 흡입자의 이동 및 막힘에 대한 이해도 부족한 실정이다. 따라서 본 연구에서는 새로이 개발된 마이크로 모델을 활용하여 다상유체 흐름 및 유체의 전기적 성질이 대표적 세립토인 고령토의 이동 및 막힘 특성에 어떻게 영향을 주는지 규명하고자 한다.

## 2. 실험 재료 및 방법

### 2.1 실험 시료

2차원 마이크로모델(micromodel or micro fluidic model)은 지반내의 유체흐름 및 고령토의 이동 및 막힘 현상 관찰이 가능한 실험 장비로써, 다양한 지반 및 환경조건의 묘사가 가능하다. 마이크로 모델을 이용한 다상유체 흐름 실험장비 및 모식도는 Fig. 2와 같다.

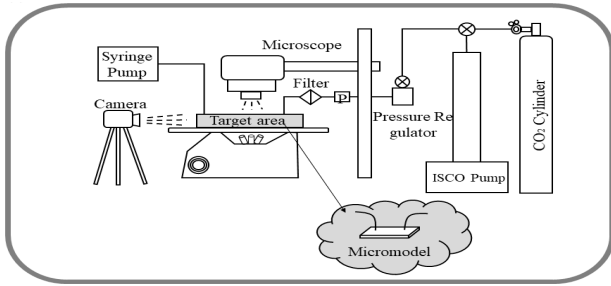
마이크로모델은 유체의 주입 및 배출을 위한 두 개의 구멍이 존재 한다(Fig. 2). 한쪽의 구멍은 고압 유체펌프(ISCO pump)와 연결되어 마이크로모델 내로 이산화탄소를 주입하고, 마이크로모델 내의 압력을 실험 중 일정하게 유지한다. 또한, 고압 유체펌프(ISCO pump)와 마이크로모델 사이에 위치한 압력 조절 장치(pressure regulator)를 통해 압력을 미세하게 조절하고, 압력계(P)를 통해 실험 중 압력을 지속적으로 측정한다. 마이크로모델의



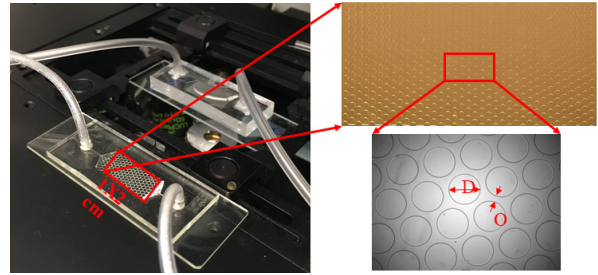
\* (1) Bingo et al, 1994; (2) Oyenyin et al, 1995; (3) Khilar and Fogler, 1998.

Host particle diameter (D), fine particle diameter (d), and pore throat width (o)

Fig. 1. Affecting parameters on fines migrating and clogging during a singlephase fluid flow (Cao et al., 2019)



(a) A schematic design of an experimental setup



(b) A micromodel

Fig. 2. Experimental setup (Cao et al., 2019)

다른 쪽 구멍은 시린지 펌프(syringe pump)에 연결되어 있어, 초기에 물을 마이크로모델 안으로 주입하고, 일정한 속도로 마이크로모델 내의 유체(물 및 이산화탄소)를 배출시킨다.

마이크로 모델의 크기는  $2\text{cm} \times 1\text{cm}$ 이다. 원형의 직경(D)은 지반의 흡입자 크기를 나타낸다. 공극(o)은 실제 지반의 흡입자 최소 간격을 분석하여, 공극 크기를 40, 60, 100, 200 $\mu\text{m}$ 로 결정하였다. 공극 높이는 공극 크기의 최대값인 200 $\mu\text{m}$ 을 적용하였다. 본 연구에서는 하이드레이트 지반 내에 많이 존재하는 고령토를 실험재료로 활용하였다. 본 연구에서 이용된 고령토의 입자크기를 나타낸  $d_{50}$ 는 4 $\mu\text{m}$ 이다.

## 2.2 실험 방법

실험은 단상유체 및 다상유체의 흐름 두 단계로 나누어 실시하였다. 첫 번째 단계는 (1) 단상유체 흐름 내에서의 고령토의 농도, (2) 고령토-공극의 크기 비율( $d/o$ ) 및 (3) 유체의 담수화가 고령토의 이동 및 막힘에 어떻게 영향을 규명하고자 한다. 두 번째 단계는 다상유체 흐름 내에서 고령토의 이동 및 막힘 현상을 관찰함으로써, (4) 단상유체에 비해 다상유체 흐름이 고령토의 이동 및 막힘에 어떻게 다르게 영향을 주는 지 규명하고자 한다.

첫 번째 단계인 단상유체 흐름은 Fig. 2와 같이 모든 장비를 연결한 후, 시린지 펌프(syringe pump)를 이용해 고령토를 포함한 유체(물)를 마이크로모델 내 공극으로 주입한다. 고령토의 농도, 고령토-공극의 크기 비율( $d/o$ ), 및 유체의 이온화 정도를 조절하면서 실험을 반복하였고, 실험의 모든 과정은 고성능 현미경을 통해 관찰되고 저장된다.

두 번째 단계인 다상유체 흐름은 유체 주입 후 시린

지 펌프(syringe pump)를 정지하고, 다른 쪽 구멍에 연결된 고압 유체펌프(ISCO pump) 내의 이산화탄소를 마이크로모델 안으로 유입하여 이산화탄소와 물의 흐름이 동시에 생기는 다상유체 흐름 발생 및 이에 따른 고령토의 거동에 대하여 관찰하였다. 하이드레이트에서 가스를 생산할 경우, 메탄의 흐름이 예상되나 실험의 안정성을 위해 유사한 흐름을 보이는 이산화탄소를 활용하여 다상유체의 흐름을 묘사 하였다 (Cao et al., 2019).

## 3. 실험 결과 및 분석

### 3.1 단상유체 흐름에서 세립토-공극 크기 비율( $d/o$ )에 따른 고령토 입자 이동 및 막힘

다양한 크기(40, 60, 100, 200 $\mu\text{m}$ )의 공극으로 제작된 마이크로모델이 준비되었다. 먼저, 0.05% 농도의 고령토를 포함한 담수(deionized water, DW)를 단상유체 흐름 조건으로 40 $\mu\text{m}$  공극 크기(pore size)인 마이크로모델로 주입하였다. 그 결과, 고령토는 마이크로모델을 통과하여 쉽게 빠져나갔다. 40 $\mu\text{m}$  공극의 마이크로모델을 깨끗이 씻은 후, 0.1% 농도의 고령토를 포함한 담수(deionized water, DW)를 주입하였다. 같은 방법으로 막힘 현상이 발생할 때까지, 고령토의 농도를 증가시키면서 실험은 반복되었다. 막힘이 발생하면, 그 때의 고령토 농도를 최소 막힘 발생 농도(critical clogging concentration)라 정의하였다. 예를 들어, 40 $\mu\text{m}$  공극의 마이크로모델에서 고령토의 막힘 현상은 0.1% 농도를 사용했을 때 발생하였다. 따라서 40 $\mu\text{m}$  공극의 마이크로모델의 최소 막힘 발생 농도는 0.1%이다. 이와 같은 방법으로, 다른 공극 크기(60, 100, 200 $\mu\text{m}$ )의 마이크로모델을 가지고 실험은 반복되었다.

Fig. 3은 40 $\mu\text{m}$  및 60 $\mu\text{m}$  공극 크기(pore size)인 마이

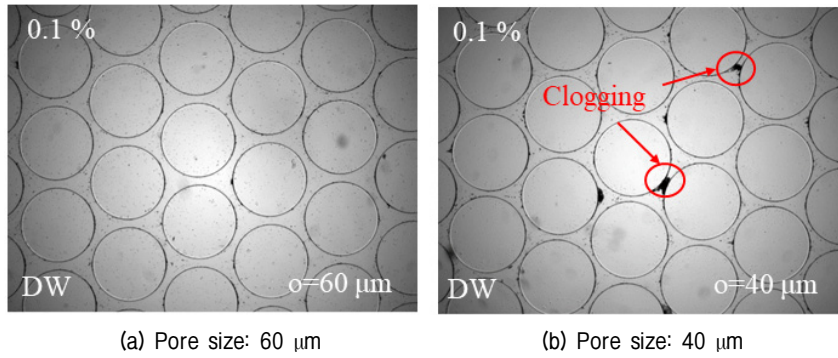


Fig. 3. Effects of pore throat size ratio on clogging

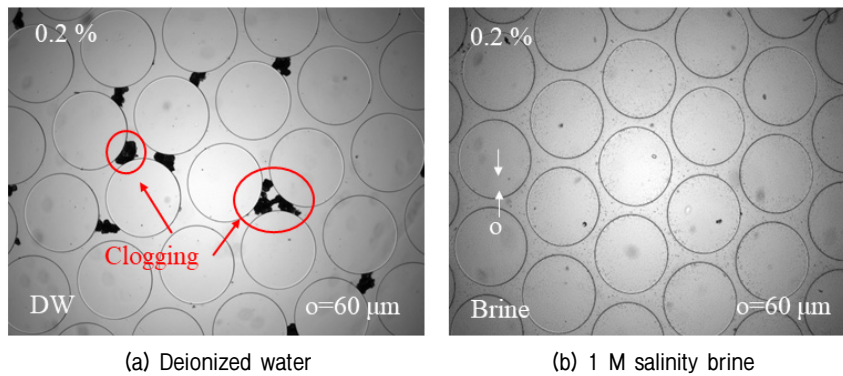


Fig. 4. Effects of pore fluid salinity on clogging

크로모텔을 가지고 수행한 실험 결과를 나타낸다. 0.1% 농도의 고령토는 60 $\mu\text{m}$  공극의 마이크로모텔에서 막힘이 발생되지 않았지만(Fig. 3a), 40 $\mu\text{m}$  공극의 마이크로모텔에서 막힘이 발생하였다(Fig. 3b). 따라서 40 $\mu\text{m}$  공극의 마이크로모텔의 최소 막힘 발생 농도는 0.1% 이다. 60 $\mu\text{m}$  공극의 마이크로모텔은 농도를 증가 시켜 반복하였다. 이와 같은 실험의 반복을 통해, 고령토-공극의 크기가 작아질수록, 최소 막힘 발생 농도(critical clogging concentration)가 증가하고 있음을 규명하였다(Fig. 4).

### 3.2 단상유체 흐름에서 전기적 특성에 따른 고령토 입자 이동 및 막힘

유체의 전기적 특성에 따른 고령토 이동 및 막힘 현상 규명을 위해 고령토를 포함한 담수(deionized water, DW) 및 소금물(1 M brine)을 마이크로모텔에 각각 주입하여 결과를 비교·분석하였다. 실험 방법은 위의 3.1에서와 같이, 일정한 농도의 고령토를 특정 공극 크기(40, 60, 100, 200 $\mu\text{m}$ )의 마이크로모텔로 주입하고, 고령토의 농도를 단계적으로 높여가면서 막힘 현상이 관찰될 때까지, 실험을 반복하였다(Fig. 5).

예를 들어, 60 $\mu\text{m}$  공극 크기(pore size)의 마이크로모텔에서 0.2% 농도의 고령토를 포함한 담수(deionized water, DW)를 주입하였을 때, 공극 막힘 현상이 발생하였다(Fig. 4a). 따라서 0.2%의 고령토는 60 $\mu\text{m}$  공극 크기의 최소 막힘 발생 농도(critical clogging concentration)이다. 하지만, 동일한 공극 크기(60 $\mu\text{m}$ ) 및 고령토 농도(0.2%)임에도 불구하고, 소금물의 흐름 내에서는 막힘 현상이 발생하지 않았다(Fig. 4b). 이에 공극 막힘이 발생할 때까지, 고령토의 농도를 단계적으로 증가시키면서 소금물을 60 $\mu\text{m}$  마이크로모텔로 주입하여 실험을 반복하였다. 다른 공극 크기의 마이크로모텔을 가지고 실험을 반복

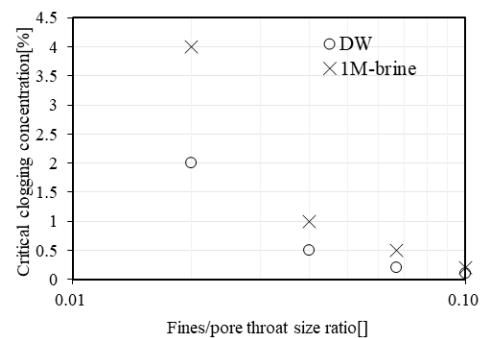


Fig. 5. Effects of pore fluid salinity on critical clogging concentration



한 결과, 모든 공극 크기에서 소금물의 최소 막힘 발생 농도(critical clogging concentration)가 담수보다 높게 나타났다(Fig. 5). 이러한 결과는 고령토가 소금물보다 담수에서 쉽게 뭉침(clustering)이 발생함을 나타낸다. 고령토 입자는 쿨롱의 힘(Coulombic force)에 의해 소금물 내에서 면과 면 구조(face to face)를 나타내지만, 담수 내에서는 면모(face to edge) 구조를 나타낸다. 따라서 담수(deionized water, DW) 내에서는 보다 쉽게 뭉쳐지고, 뭉쳐진 입자 부피가 크기 때문에 공극 막힘이 상대적으로 쉽게 발생하는 것이다. 본 연구의 결과로 비추어, 고령토가 풍부한 지반내의 하이드레이트로부터 메탄을 생산하게 되면 담수화가 발생하고, 이로 인해 고령토의 입자 구조 변경으로 인한 공극 막힘이 예상된다. 이는 투수율의 저하로 메탄 생산율의 저하에 영향을 줄 것이다.

### 3.3 다상유체 흐름내에서 고령토 입자 이동 및 막힘

고령토를 포함한 담수를 마이크로모델로 주입 한 후, 이산화탄소를 마이크로모델로 주입하였다. 이는 다상유체 흐름을 발생시켰고 고령토 입자의 이동 및 막힘 현상에 영향을 주었다. Fig. 6은 다상유체 흐름 시 관찰된 실험 결과중 하나이다. 고령토를 포함한 담수로 포화된 60  $\mu\text{m}$  공극크기의 마이크로모델 안으로 50 $\mu\text{l}/\text{min}$  주입속도로 이산화탄소를 주입하였다. 이산화탄소의 주입 전인 단상유체에서는 몇 개의 막힘이 관찰되었다(Fig. 6a). 하지만, 다상유체에서는 이산화탄소를 주입하자마자, 마이크로모델내의 모든 공극에서 막힘이 발생하였다(Fig. 6b).

동일한 방법으로 모든 공극 크기(40, 60, 100, 200 $\mu\text{m}$ )의 마이크로모델에 대하여 실험을 반복한 결과 단상유체 흐름에 비해 다상유체 흐름이 발생할 경우 최소 막힘

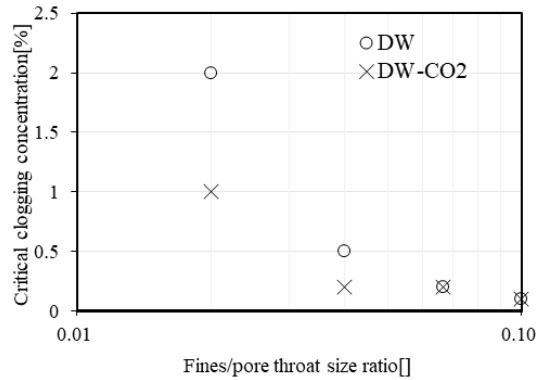


Fig. 7. Effects of multi-phase fluids flow on critical clogging concentration

발생 농도(critical clogging concentration)가 감소함을 확인하였다(Fig. 7). 앞서 언급한 바와 같이 하이드레이트 지반에서 메탄 생산 시, 메탄과 물이 동시에 흐르는 다상유체 흐름의 발생이 예상된다. 따라서 메탄 생산 시 고령토 입자의 막힘이 쉽게 발생할 것으로 예상되며, 이는 가스 생산율의 저하에 영향을 끼칠 것이다.

## 4. 결론

국내 동해안 지역에 매장된 하이드레이트에서 메탄을 생산하기 위해서는 지반 내 흡입자의 이동 및 막힘에 의해 크게 영향을 받는다. 또한 하이드레이트 해리시 발생하는 물과 메탄은 지반 내 이온수(지하수)의 담수화 및 다상유체를 발생하며, 이는 흡입자의 이동 및 막힘에 영향을 주게 된다. 따라서 본 연구는 대표적인 세립토인 고령토 입자의 이동 및 막힘이 담수화 및 다상유체 흐름에 의해 어떻게 영향을 받는지 다음과 같이 규명하였다.

(1) 담수(deionized water) 및 소금물(1 M)의 단상유체 흐

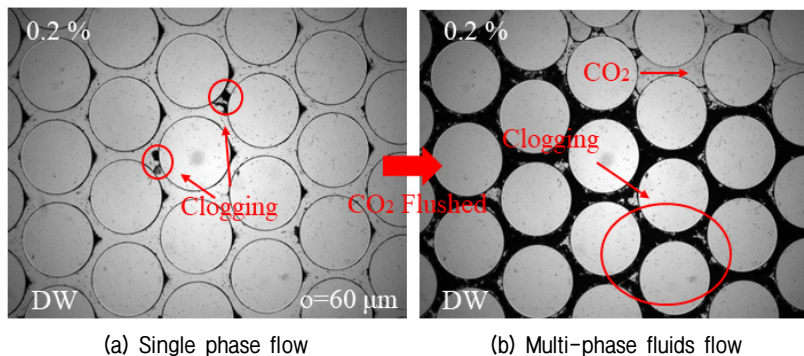


Fig. 6. Effects of multi-phase fluids flow on clogging

를 발생시 공극 크기(pore size)가 커질수록, 최소 막힘 발생 농도(critical clogging concentration)가 증가함을 규명하였다. 이는 고령토-공극 크기 비율(d/o)이 커질수록, 최소 막힘 발생 농도(critical clogging concentration)가 감소함을 나타낸다.

- (2) 고령토의 최소 막힘 발생 농도(critical clogging concentration)는 소금물(1 M)보다 담수(deionized water, DW)가 낮음을 규명하였다. 이는 하이드레이트 지반에서 메탄 생산 시, 담수화로 인해 고령토의 공극 막힘이 쉽게 발생하여 메탄 생산효율의 저하가 예상됨을 규명하였다.
- (3) 다상유체 흐름 내에서 고령토의 최소 막힘 발생 농도(critical clogging concentration)는 단상유체 흐름에 비해 낮게 나타났다. 이는 하이드레이트 지반에서 메탄 생산 시, 다상유체 흐름 발생에 따른 고령토의 공극 막힘 및 투수계수 저하로 메탄 생산효율의 저하가 예상됨을 규명하였다.
- (4) 하이드레이트에서 메탄 생산율을 예측할 경우, 담수화 및 다상유체 흐름으로 인한 고령토의 공극 막힘 및 투수계수 저하를 고려하여야 보다 정확한 생산율 예측이 가능할 것이다.

## 감사의 글

본 연구는 행정안전부 극한 재난대응 기반기술개발 사업의 연구비 지원(2018-MOIS31-009)에 의해 수행되었으며, 이에 깊은 감사를 드립니다.

## 참고문헌 (References)

1. Kampel G and Goldshtein GH. (200), Plugging in porous media: maximum clogged porosity and optimal filter topologies. *Appl Phys Lett* 92(8):084101.
2. MacDonald JC, Whitesides, GM. (2002), Poly(dimethylsiloxane) as a material for fabricating microfluidic devices. *Acc Chem Res* 35(7):491-499.
3. Valdes, J.R. and Santamarina, J.C. (2007), Particle transport in a nonuniform flow field: Retardation and clogging. *Applied Physics*

Letters 90, 244101, doi:10.1063.1. 2748850, 3p.

4. Jung, J., Cao, S. C., Shin, Y. H., Al-Raoush, R. I., Alshibli, K., and Choi, J. W. (2018), A microfluidic pore model to study the migration of fine particles in single-phase and multi-phase flows in porous media. *Microsyst. Technol.*, 24: 1071-1080.
5. Bahk, J. J., Kim, D. H., Chun, J. H., Son, B. K., Kim, J. H., Ryu, B. J., Torres, M. E., Riedel, M., and Schultheiss, P. (2013), Gas hydrate occurrences and their relation to host sediment properties: Results from Second Ulleung Basin Gas Hydrate Drilling Expedition, East Sea. *Marine and Petroleum Geology*, 47: 21-29.
6. Winters, W. J., Wilcox-Cline, R. W., Long, P., Dewri, S. K., Kumar, P., Stern, L., and Kerr, L. (2014), Comparison of the physical and geotechnical properties of gas-hydrate-bearing sediments from offshore India and other gas-hydrate-reservoir systems. *Marine and Petroleum Geology*, 58, 139-167.
7. Egawa, K., Nishimura, O., Izumi, S., Fukami, E., Jin, Y., Kida, M., Konno, Y., Yoneda, J., Ito, T., Suzuki, K., Nakatsuka, Y., and Nagao, J. (2015), Bulk sediment mineralogy of gas hydrate reservoir at the East Nankai offshore production test site. *Marine and Petroleum Geology*, 66: 379-387.
8. Cha, Y., Yun, T., Kim, Y., Lee, J., and Kwon, T.-H. (2016), Geomechanical, Hydraulic and Thermal Characteristics of Deep Oceanic Sandy Sediments Recovered during the Second Ulleung Basin Gas Hydrate Expedition. *Energies* 9, 775, doi:10.3390/en9100775.
9. Kwon, T. H., Lee, K. R., Cho, G. C., and Lee, J. Y. (2011), Geotechnical properties of deep oceanic sediments recovered from the hydrate occurrence regions in the Ulleung basin, Eastsea, offshore Korea. *Mar. Petrol. Geol.*, 28, 1870-1883, doi: 10.1016/j.marpetgeo.2011.02.003.
10. Park, T., Lee, J. Y., and Kwon, T. (2018), Effect of pore size distribution on dissociation temperature depression and phase boundary shift of gas hydrate in various fine-grained sediments. *Energy & Fuels*, 32 (4). DOI: 10.1021/acs.energyfuels.8b00074.
11. Arnott, R. (1965), Particle sizes of clay minerals by small-angle X-ray scattering. *The American Mineralogist*, 50: 1563-1575.
12. Sogami, I. and Ise, N. (1984), On the electrostatic interaction in macroionic solutions. *The Journal of Chemical Physics*, 81(12), 6320-6332.
13. Sposito, G. (1989), *The Chemistry of Soils*. Oxford University Press, New York.
14. Cao, S.C, Jang, J., Jung, J., Waite, W.F., Collett, T.S., and Kumar, P. (2019), 2D micromodel study of clogging behavior of fine-grained particles associated with gas hydrate production in NGHP-02 gas hydrate reservoir sediments, *Marine and Petroleum Geology* (In Press).

Received : March 7<sup>th</sup>, 2019

Revised : April 22<sup>nd</sup>, 2019

Accepted : April 24<sup>th</sup>, 2019