

## 심부 저장 지층에 주입된 이산화탄소의 거동 및 포획 기작 수치 모델링에 대한 격자 세분화의 영향 평가

이성호<sup>1</sup> · 김준모<sup>1,\*</sup> · 김중휘<sup>2</sup>

<sup>1</sup>서울대학교 지구환경과학부  
<sup>2</sup>중원대학교 자원순환환경공학과

### 요 약

심부 저장 지층에 주입된 이산화탄소(CO<sub>2</sub>)의 거동 및 포획 기작 수치 모델링에 대한 격자 세분화의 영향을 정량적으로 평가하기 위하여 병렬 다상 열-수리학적 수치 모델을 이용한 일련의 수치 모델링을 수행하였다. 수치 모델링 결과는 격자 세분화가 주입된 이산화탄소의 거동 및 포획 기작 수치 모델링에 중요한 영향을 미침을 보여준다. 이는 격자 크기에 따라서 다상 유체 유동을 통해서 이산화탄소의 압력, 온도, 밀도, 점성 및 유동 속도의 공간적 분포와 그 전단면의 기울기가 민감하게 변하기 때문이다. 그 결과 격자 크기가 증가할수록 자유 유체 상(포화도) 및 수용액상(질량 분률) 이산화탄소는 공간적으로 보다 더 넓은 지역에 걸쳐 전체적으로 더 완만하게 분포하는 반면에 덮개암 바로 아래에서 수평 방향의 영향 반경은 과소평가된다. 그리고 격자가 세분화됨에 따라서 수용액상 이산화탄소의 중력 운지는 덮개암 바로 아래에서 그 발생 빈도가 증가한다. 한편 격자가 세분화됨에 따라서 주입된 이산화탄소의 수리동역학적 포획 효율은 증가하며, 그와 반대로 주입된 이산화탄소의 용해 포획 효율은 감소한다. 이러한 결과는 이산화탄소 지층 저장 수치 모델링에서 격자 크기가 증가할수록 실제 물리적 현상에 비해서 주입된 이산화탄소의 수리동역학적 포획 효율은 과소평가되며, 그만큼 주입된 이산화탄소의 용해 포획 효율은 과대평가될 수 있음을 시사한다.

**주요어:** 이산화탄소, 지층 저장, 심부 저장 지층, 거동 기작, 포획 기작, 수치 모델링, 격자 세분화

**Sungho Lee, Jun-Mo Kim and Jung-Hwi Kihm, 2015, Evaluation of impacts of grid refinement on numerical modeling of behavior and trapping mechanisms of carbon dioxide injected into deep storage formations. Journal of the Geological Society of Korea. v. 51, no. 2, p. 191-202**

**ABSTRACT:** A series of numerical modeling is performed using a parallel multi-phase thermo-hydrological numerical model to evaluate quantitatively impacts of the grid refinement on numerical modeling of behavior and trapping mechanisms of carbon dioxide (CO<sub>2</sub>) injected into deep storage formations. The results of the numerical modeling show that the grid refinement has significant impacts on numerical modeling of behavior and trapping mechanisms of injected carbon dioxide. This arises because the spatial distributions of pressure, temperature, density, viscosity, and Darcian mass flux of carbon dioxide and their front slopes change sensitively through multi-phase fluid flow depending on the grid sizes. As a result, the free fluid (saturation) and aqueous (mass fraction) phases of carbon dioxide are more smoothly distributed over more wide regions, whereas their influence radii in the horizontal direction are underestimated beneath the cap rock as the grid size increases. In addition, gravity fingering of the aqueous phase of carbon dioxide occurs more frequently beneath the cap rock as the grid size refines. On the other hand, the efficiency of hydrodynamic trapping of injected carbon dioxide increases, while the efficiency of solubility trapping of injected carbon dioxide decreases as the grid size refines. These results suggest that the efficiency of hydrodynamic trapping of injected carbon dioxide can be underestimated, and thus the efficiency of solubility trapping of injected carbon dioxide can be overestimated compared with actual physical phenomena as the grid size increases in numerical modeling of geologic carbon dioxide storage.

**Key words:** carbon dioxide, geologic storage, deep storage formations, behavior mechanism, trapping mechanism, numerical modeling, grid refinement

\* Corresponding author: +82-2-880-8190, E-mail: junmokim@snu.ac.kr

(Sungho Lee and Jun-Mo Kim, School of Earth and Environmental Sciences, Seoul National University, Seoul 151-742, Republic of Korea; Jung-Hwi Kihm, Department of Resources Recycling and Environmental Engineering, Jungwon University, Goesan-gun 367-805, Republic of Korea)

## 1. 서론

이산화탄소 지중 저장(geologic carbon dioxide storage)은 최근 전 지구적인 기후 변화의 원인으로 주목 받고 있는 이산화탄소의 배출량을 저감하는 가장 효과적인 방법 중의 하나로 고려되고 있다(Holloway, 1997; Metz *et al.*, 2005). 이산화탄소 지중 저장은 대염수층(saline aquifers, formations), 석유-가스층(oil and gas reservoirs) 및 석탄층(coal beds) 등과 같은 대상 지층(target geologic formations)에 주입된 이산화탄소가 일련의 다양한 포획 기작을 거치면서 대기로부터 완전하게 격리 및 처분되는 과정을 의미한다(Metz *et al.*, 2005).

이산화탄소 지중 저장에는 다양한 요소 기술(key technology)이 활용되며, 그 중에서 필수적으로 확보되어야 하는 6대 요소 기술은 (1) 지층(부지) 특성화 및 평가 기술, (2) 시추 및 주입 기술, (3) 거동 예측(수치 모델링) 기술, (4) 거동 관측(모니터링) 기술, (5) 환경 영향 평가 기술 및 (6) 주입 후 부지 관리 및 활용 기술 등이다(Metz *et al.*, 2005). 그리고 이 중에서 (3), (4), (5) 및 (6)에 해당하는 요소 기술들은 감시-저감-검증(monitoring, mitigation, and verification, MMV) 또는 감시-검증-회계(결산)(monitoring, verification, and accounting, MVA) 기술로 구분되기도 한다(Metz *et al.*, 2005; Litynski *et al.*, 2012). 특히 2007년 인도네시아에서 열린 제13차 유엔기후변화협약(United Nations Framework Convention on Climate Change, UNFCCC) 당사국총회(Conference of the Parties, COP)에서 채택된 발리로드맵(Bali Road Map)에서 측정, 보고 및 검증 가능한 이산화탄소 배출 감축 방안에 대한 개념이 등장함에 따라서 이와 같은 MMV 또는 MVA 기술의 중요성이 더욱 부각되고 있는 실정이다.

이산화탄소 거동 예측(수치 모델링) 기술은 일반적으로 다상 열-수리-역학적-화학적(multi-phase thermo-hydro-mechanical-chemical, T-H-M-C) 수치 모델링을 통하여 대상 분지 또는 부지 내에 주입된 이산화탄소의 유동 기작을 분석하고 이산화탄소의 포

획 및 누출 기작을 평가하는 기술이다. 이러한 이산화탄소의 거동(유동, 포획, 누출 기작) 예측 기술은 이산화탄소 지중 저장 대상 지층 시스템(저장암, 덮개암 및 지하수)의 성능(저장, 밀봉, 주입 성능) 평가와 폐공 및 단층 등을 통한 이산화탄소 누출 위험 분석에 직접적으로 또는 삼차원 지질 모델링 기술과 같은 기타 모델링 기술들과 연계하여 활용됨으로써 이산화탄소 지중 저장 통합 수치 모델링 기술의 전체 구현에 있어서 가장 중심적인 역할을 한다(Litynski *et al.*, 2012). 따라서 이산화탄소 지중 저장 프로젝트의 성공적인 수행을 위해서는 이러한 이산화탄소 거동 예측 기술을 활용하는 것이 필수적이다.

국외에서는 TOUGH2 (Pruess *et al.*, 1999), STOMP (White and Oostrom, 2006) 및 GEM-GHG (Computer Modelling Group, 2009) 등과 같은 다양한 거동 예측 수치 모델들이 대상 지층에 주입된 이산화탄소의 거동 및 포획 기작을 예측하고 이에 수반되는 다양한 현상들을 분석하는데 적용되어오고 있다(예, Rutqvist *et al.*, 2002; Johnson *et al.*, 2004; White *et al.*, 2005; Lindeberg *et al.*, 2009; Zhang *et al.*, 2009; Scottish Carbon Capture and Storage, 2011; Smith *et al.*, 2011; Xu *et al.*, 2011). 국내에서도 최근 들어 거동 예측 수치 모델들을 이용한 이산화탄소의 거동 기작 분석 및 포획 기작 평가가 활발하게 진행되고 있는 추세이다. 먼저 이산화탄소 지중 저장에 의한 다상 유체 유동 및 열 이동을 통합적으로 규명하기 위하여 지질 구조와 지층의 분포를 간략화한 부지 규모의 이차원 수직 단면 영역에서(Kihm and Kim, 2007; Kim, 2008, 2009) 일련의 열-수리학적 수치 모델링이 수행되었다. 그리고 이산화탄소 지중 저장에 의한 다상 유체 유동, 열 이동 및 지반 변형을 통합적으로 평가하기 위하여 습곡과 단층 등의 지질 구조를 고려한 분지 규모의 이차원 수직 단면 영역에서(Kihm and Kim, 2008), 그리고 사암과 셰일이 교호하는 층상 구조를 고려한 분지 규모의 이차원 방사상 축대칭 영역에서(Park *et al.*, 2011) 각각 일련의 열-수리-역학적 수치 모델링이 수행되었다. 또한 이산화탄소 지중 저장에 의한 다상 유체 유동, 열 이동

및 수리지구화학적 반응성 용질 이동을 통합적으로 분석하고 이를 바탕으로 주입된 이산화탄소의 거동 및 포획 기작을 평가하기 위하여 저장 지층만이 고려된 이차원 방사상 축대칭 영역에서(Kihm *et al.*, 2012a, 2012b) 일련의 열-수리-화학적 수치 모델링이 수행되었다. 이러한 연구들은 이산화탄소 거동 예측 기술이 국내에 처음으로 도입되기 시작한 시점부터 수행되어 온 것으로서 주로 비교적 단순한 수치 모델링 영역에 대하여 이산화탄소 지중 저장과 관련된 다양한 열-수리학적, 열-수리-역학적 및 열-수리-화학적 현상들을 각각 적합한 거동 예측 수치 모델을 이용하여 분석하고 그 적용성을 평가하였다. 즉 이러한 연구들은 이산화탄소 지중 저장에 필요한 6대 요소 기술의 하나로서의 이산화탄소 거동 예측 기술 확보를 주요 목적으로 하여 수행되어 왔다.

한편 이산화탄소의 열물리적 물성(thermophysical property)인 밀도(density)와 점성(viscosity)은 압력(P), 온도(T) 및 지하수 염도(X)의 함수이며, 특히 이산화탄소의 압축성이 크기 때문에 압력 및 온도에 대해서 강한 비선형적 특성을 지닌다. 게다가 이산화탄소의 밀도와 점성은 다상 유체 유동 지배 방정식의 중요한 요소이다. 따라서 이러한 이유 때문에 이산화탄소의 거동 양상은 일반적으로 수치 모델링 영역의 공간 이산화(spatial discretization)에 매우 민감한 것으로 알려져 있다. 그 결과 국외에서는 이산화탄소의 거동 및 포획 기작 수치 모델링에 대한 격자 크기(size)와 모양(shape)의 영향에 대한 몇몇 연구가 수행되었다(예, Doughty and Pruess, 2004; Yamamoto and Doughty, 2011). 먼저 Doughty and Pruess (2004)는 텍사스주 Gulf 해안 하부의 Frio 층을 대상으로 이산화탄소 지중 저장 수치 모델링 시 수직 방향으로의 격자 세분화(grid refinement)의 영향과 삼각주 하상 퇴적에 의한 지층의 불균질성의 역할을 평가하였다. 이후 Yamamoto and Doughty (2011)는 캘리포니아주 San Joaquin 계곡 하부의 Vedder 층을 대상으로 이산화탄소 지중 저장 수치 모델링 시 수직 방향으로의 격자 세분화와 격자 모양의 영향을 평가하였다. 이러한 격자 세분화에 대한 선행 연구들은 수직 방향으로 성근(조립, 조) 격자(coarse grid)에 주입된 이산화탄소의 영향 반경이 과소평가될 수 있음을 강하게 시사한다. 하지만 Doughty and Pruess (2004)의 연구에서는 이

산화탄소 주입량 대비 저장 지층(수치 모델링 영역)이 너무 작아서 수치 모델링 결과가 경계 조건의 영향을 많이 받았다. 또한 이러한 격자 세분화에 대한 선행 연구들에서는 주입된 이산화탄소가 수직 방향은 물론 수평 방향으로도 유동함에도 불구하고 오직 수직 방향으로의 격자 세분화의 영향만 평가하였다. 반면에 국내에서는 아직 격자 크기 또는 모양이 이산화탄소의 거동 및 포획 기작 수치 모델링에 미치는 영향을 평가한 연구가 없다. 하지만 국내 이산화탄소 지중 저장 유망 분지 중의 하나인 경상분지 내 군위-의성의 YB-1 지역을 대상으로 수행한 Kim (2014)의 이산화탄소 거동 예측 모델링 결과는 이산화탄소 주입량이 작은 경우에는 부지 규모에서도 주입된 이산화탄소가 전부 지하수에 용해 포획(solubility trapping)되어 이산화탄소의 수리동역학적 포획(hydrodynamic trapping)이 발생하지 않음을 지적하였다. 따라서 저장 지층에 주입된 이산화탄소의 거동 및 포획 기작 수치 모델링에 대한 수직 및 수평 방향으로의 격자 세분화의 영향 평가와 이산화탄소 주입량의 규모 또는 저장 지층(수치 모델링 영역)의 크기에 맞는 적합한 최적의 수직 및 수평 방향의 격자 크기 선정에 대한 연구가 필요하다. 그리고 실제의 이산화탄소 지중 저장 지층에 대해서 수직 및 수평 방향으로의 격자 세분화 연구가 수행되어야 하지만 우선 이에 앞서 기초 연구로서 가상의 이산화탄소 지중 저장 지층에 대한 수직 및 수평 방향으로의 격자 세분화 연구가 선행되어야 한다.

본 연구의 목적은 다상 열-수리학적 수치 모델을 이용하여 가상의 저장 지층에 주입된 이산화탄소의 거동 및 포획 기작 수치 모델링에 대한 격자 세분화의 영향을 정량적으로 평가하는 것이다. 이를 달성하기 위하여 저장 지층을 먼저 일정한 크기의 격자로 이산화한 대표 경우(base case, Case 1)의 격자망과 이를 추가로 수직 및 수평 방향으로 모두 2배(Case 2), 4배(Case 3) 및 8배(Case 4)로 격자 크기를 세분화한 격자망에 대한 일련의 수치 모델링을 수행하였다.

## 2. 수치 모델

본 연구에 사용된 다차원 수치 모델은 TOUGH2-MP (Zhang *et al.*, 2008)이다. TOUGH2-MP (Zhang *et*

al., 2008)는 다차원 다상 열-수리학적 수치 모델인 TOUGH2 (Pruess et al., 1999)를 이용하여 메시지 전달 인터페이스(Message Passing Interface, MPI) 기반으로 개발한 병렬 다차원 다상 열-수리학적 수치 모델이다. TOUGH2-MP (Zhang et al., 2008)는 적분 유한 차분법(integral finite difference method, IFDM) (Narasimhan and Witherspoon, 1976)을 이용하여 복잡한 공간을 불균일한 격자로 유연하게 이산화하며, METIS 소프트웨어(Karypsis, 2013)를 이용하여 대규모 계산 노드 영역을 효율적으로 분해한다. 따라서 다양하고 복잡한 대규모의 지질 조건에서의 다상 유체 유동 및 열 이동을 모의하는데 매우 적합하다. 또한 TOUGH2-MP (Zhang et al., 2008)는 다양한 상태 방정식(equation of state, EOS) 모듈을 통하여 여러 유체의 특성을 고려할 수 있다. 본 연구에서는 일반적인 이산화탄소 지중 저장 환경에서의 이산화탄소 및 지하수의 유체 특성을 합리적으로 고려할 수 있는 ECO2N 모듈(Spycher and Pruess, 2005)을 사용하였다.

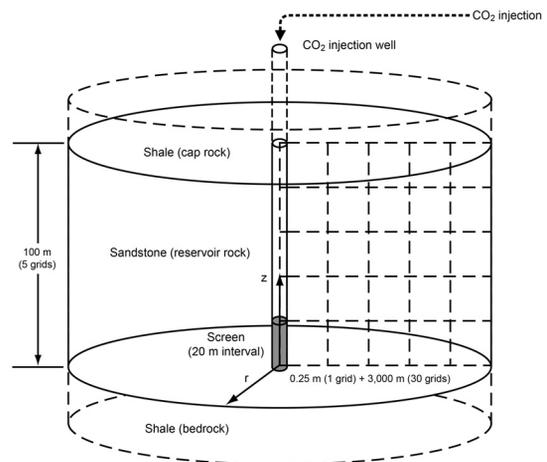
### 3. 수치 모델링 개요

Hosa et al. (2011)은 심부 대염수층에 이산화탄소를 저장하는 전 세계 20개의 프로젝트에 대해서 조사하고 그 특징들을 분류하였다. 그의 조사 결과에 의하면 1년에 이산화탄소를 1 Mton 이상 주입하는 대규모 상업용 이산화탄소 지중 저장 프로젝트에는 노르웨이의 Sleipner 및 Snøhvit, 캐나다의 Weyburn, 알제리의 In Salah, 호주의 Gorgon 프로젝트가 있으며, 이들 프로젝트에서 이산화탄소가 주입되는 저장 지층 또는 저장암(reservoir rock)의 두께는 29~500 m이고 심도는 800~2,550 m이다. 따라서 본 연구에서는 실제의 대규모 이산화탄소 지중 저장 프로젝트의 지질학적 조건인 저장 지층의 두께와 심도를 반영한 가상의 저장 지층을 고려하였다. 가상의 저장 지층은 두께가 100 m인 사암(sandstone)으로 구성되어 있으며, 지표면으로부터 심도 1,500 m ( $z = 100$  m)와 1,600 m ( $z = 0$  m) 사이에 존재한다. 그리고 상부면과 하부면은 각각 불투수성의 셰일(shale)로 구성된 덮개암(cap rock)과 기반암(bedrock)으로 둘러싸여 있다(그림 1).

이산화탄소 주입정을 중심으로 두께가 100 m이

고 반경이 3,000.25 m (주입정 반경 0.25 m 포함)인 이차원 방사상 축대칭 모양의 수치 모델링 영역(modeling domain)을 구축하였다(그림 1). 먼저 이러한 수치 모델링 영역을 수직( $z$ ) 방향의 길이는 20 m 간격으로 5등분을, 주입정을 제외한 수평( $r$ ) 방향의 길이는 100 m 간격으로 30등분을, 주입정의 수평( $r$ ) 방향의 길이는 0.25 m 간격으로 1등분을 하여 총 155개의 직사각형 격자로 이산화하여 대표 경우(base case, Case 1)의 격자망(grid net)을 구성하였다. 그런 다음 대표 경우의 격자망을 추가로 수직( $z$ ) 및 주입정을 제외한 수평( $r$ ) 방향으로 모두 2배(Case 2), 4배(Case 3) 및 8배(Case 4)로 격자 크기를 세분화한 격자망을 구성하였다. 그 결과 Case 2의 격자망은 610개, Case 3의 격자망은 2,420개, Case 4의 격자망은 9,640개의 보다 더 세밀한 직사각형 격자로 이산화되었다.

앞에서 구성한 수치 모델링 영역의 격자망에 대하여 다음과 같은 초기 및 경계 조건을 설정하고 비정상 상태의 이산화탄소 주입 수치 모델링을 수행하였다. 먼저 수치 모델링 영역 전체에 지표면으로부터의 심도가 깊어질수록 유체 압력이 증가하는 정수압 상태(hydrostatic condition)를 고려하여 다상 유체 유동에 대해서 비유동(no-flow) 초기 조건을 적용하였으며, 지표면 평균 온도 15.0°C와 지온 구배(geothermal gradient) 0.025°C/m를 고려하여 열 이



**Fig. 1.** Schematic diagram of the storage formation and carbon dioxide injection well (modeling domain) with the grid net for Case 1 (base case, coarsest grids). The vertical coordinate axis is exaggerated about 33 times.

동에 대해서 상부면 온도인 52.5°C로 균일한 비이동(no-transport) 초기 조건을 적용하였다. 그리고 초기 지하수 염도는 35,000 ppm으로 설정하였다. 그런 다음 수치 모델링 영역의 상부면 및 하부면에는 불투수성의 셰일로 구성된 덮개암과 기반암을 고려하여 다상 유체 유동 및 열 이동에 대해서 비유동(no-flow) 및 비이동(no-transport) 경계 조건을 적용하였다. 수치 모델링 영역의 좌측면에도 이산화탄소 주입정을 중심으로 한 방사상 축대칭을 고려하여 다상 유체 유동 및 열 이동에 대해서 비유동(no-flow) 및 비이동(no-transport) 경계 조건을 적용하였다. 수치 모델링 영역의 우측면에는 수평으로 무한한 지층을 고려하기 위해 다상 유체 유동 및 열 이동에 대해서 초기 조건과 동일한 압력 및 온도 고정(Dirichlet) 경계 조건을 적용하였다.

수치 모델링에 사용된 저장 지층(사암)의 수리지질학적 물성은 삼차원적으로 균질하고 등방성을 가지는 것으로 가정하였다. 본 연구에서는 기존 문헌(Xu *et al.*, 2012)으로부터 얻어진 사암의 수리지질학적 물성 값을 사용하였으며, 표 1에 정리되어 있다.

이산화탄소는 이산화탄소 주입정 하부 20 m 주입 구간의 스크린을 통해 1 Mton/year (31.71 kg/sec)

의 일정한 주입률(injection rate)로 1년 동안 주입되었다. 수치 모델링 기간은 이산화탄소 주입 기간 1년을 포함하여 200년이다.

#### 4. 수치 모델링 결과

##### 4.1 자유 유체상 및 수용액상 이산화탄소 거동

격자 크기에 무관하게 주입된 자유 유체상(free fluid phase) 이산화탄소는 처음에는 압력 구배(pressure gradient) 및 부력(buoyancy)에 의해 주변 지하수를 밀치면서 덮개암을 향해 상부 방향으로 유동하다가 덮개암을 만나면서 저장암과 덮개암의 경계를 따라서 수평 방향으로 유동하며, 최종적으로 자유 유체상 이산화탄소의 대부분은 덮개암 바로 아래에 축적(accumulation)된다. 그 결과 주입된 이산화탄소의 수리동역학적 포획이 발생한다. 이와 동시에 유동 및 수리동역학적 포획 중인 자유 유체상 이산화탄소의 일부는 공존하는 지하수에 지속적으로 용해(dissolution)되면서 그 양(포화도)은 감소하며, 지하수 내 수용액상(aqueous phase) 이산화탄소의 양(질량 분률)은 증가한다. 그 결과 오랜 기간에 걸쳐 주입된 이산화탄소의 수리동역학적 포획은 점점 감소하며, 그만큼 주입된 이산화탄소의 용해 포획은

**Table 1.** Hydrogeological properties of the storage formation (sandstone).

Property	Value
Porosity	0.30
Intrinsic permeability [m <sup>2</sup> ]	1.00 × 10 <sup>-13</sup>
Compressibility [Pa <sup>-1</sup> ]	4.51 × 10 <sup>-10</sup>
Relative permeability of liquid (van Genuchten, 1980)	
$k_{r,l} = \sqrt{S^*} \{1 - [1 - (S^*)^{1/m}]^m\}^2$ where $S^* = (S_l - S_{lr}) / (1 - S_{lr})$	
Residual (irreducible) liquid saturation $S_{lr}$	0.30
Exponent $m$	0.457
Relative permeability of gas (Corey, 1954)	
$k_{r,g} = (1 - \hat{S})^2 (1 - \hat{S}^2)$ where $\hat{S} = (S_l - S_{lr}) / (1 - S_{lr} - S_{gr})$	
Residual (irreducible) gas saturation $S_{gr}$	0.05
Capillary pressure (van Genuchten, 1980)	
$P_c = -P_0 [(S^*)^{-1/m} - 1]^{1-m}$ where $S^* = (S_l - S_{lr}) / (1 - S_{lr})$	
Residual (irreducible) liquid saturation $S_{lr}$	0.00
Exponent $m$	0.457
Strength coefficient (gas entry pressure) $P_0$ [Pa]	1.961 × 10 <sup>4</sup>

점점 증가한다. 한편 지하수 내 수용액상 이산화탄소의 양이 증가함에 따라 지하수 밀도가 증가하여 밀도 의존적 대류성 다상 유체 유동이 발생하며, 수용액상 이산화탄소의 대부분은 주입정 주변 및 기반암 위에 축적된다. 그리고 덮개암 바로 아래에서 자유 유체상 이산화탄소의 용해에 의해 밀도가 증가한 지하수는 중력 운지(gravity fingering) 양상을 보이면서 하부 방향으로 천천히 유동한다. 이러한 중력 운지는 대류성 열 및 용질 이동에 의해 발생하는 엘더 효과(Elder effect, problem) (Elder, 1967; Voss, 1984; Voss and Souza, 1987; Guo and Langevin, 2002)와 매우 유사하다.

#### 4.2 자유 유체상 이산화탄소 포화도: 수리동역학적 포획

다양한 격자 크기에서 이산화탄소 주입 시작 이후 여러 시점에서의 수리동역학적 포획의 척도인 자유 유체상 이산화탄소 포화도의 공간적 분포가 그림 2 (주입 시작 이후 1일), 그림 3 (주입 시작 이후 1년) 및 그림 4 (주입 시작 이후 200년)에 도시되어 있다.

이들 그림에서 보다시피 4.1장에서 언급한 바와 같이 자유 유체상 이산화탄소의 전반적인 거동 양상은 격자 크기에 무관하게 유사하지만 그 세부적인 거동 양상은 격자 크기에 따라서 시공간적으로 매우 다르다. 이러한 세부적인 거동 양상의 차이는 초기에 이산화탄소가 존재하지 않는 저장암(CO<sub>2</sub>-free reservoir rock) 내 자유 유체상 이산화탄소 주입(injection)이 초기에 지하수나 비수용액상액체(non-aqueous phase liquids, NAPLs)가 존재하지 않는 불포화대(unsaturated zone, vadose zone) 내 지하수나 비수용액상액체 침투(infiltration)와 유사한 현상이라는 관점에서 보면 쉽게 이해되고 설명될 수 있다. 즉 이산화탄소 주입 바로 초기(주입 시작 이후 1일)에는 지하수 및 자유 유체상 이산화탄소의 다상 유체 유동에 따른 모세관 방벽 효과(capillary barrier effect)에 의해서 주입정 하부의 주입 구간 주변에서만 자유 유체상 이산화탄소(포화도)가 좁은 지역에 걸쳐 가파른 전단면(sharp front)을 가진다(그림 2d). 그러한 조건에서는 자유 유체상 이산화탄소의 압력, 밀도, 점성, 그리고 유동 속도(Darcian mass flux)도 매우 가파른 공간적 분포를 가진다. 그

런데 이를 반영할 수 있을 만큼 충분히 작지 않은 크기의 격자망에서는 자유 유체상 이산화탄소의 압력, 밀도, 점성, 그리고 유동 속도가 매우 완만한 공간적 분포를 가진다. 그 결과 자유 유체상 이산화탄소(포화도)도 넓은 지역에 걸쳐 완만한 전단면(smooth front)을 가질 수밖에 없다(그림 2a, 2b, 2c).

상기한 이산화탄소 주입 바로 초기에서와 유사하게 격자 크기 변화에 따른 자유 유체상 이산화탄소의 세부적인 거동 양상의 공간적 분포 차이는 주입 종료 시점(주입 시작 이후 1년, 그림 3) 및 주입 종료 후 장기 시점(주입 시작 이후 200년, 그림 4)에서도 발생한다. 그 결과 격자 크기가 증가할수록 자유 유체상 이산화탄소(포화도)는 공간적으로 보다 더 넓은 지역에 걸쳐 전체적으로 더 완만하게 분포하는 반면에 덮개암 바로 아래에서 수평 방향의 영향 반경은 과소평가된다.

#### 4.3 수용액상 이산화탄소 질량 분률: 용해 포획

다양한 격자 크기에서 이산화탄소 주입 시작 이후 여러 시점에서의 용해 포획의 척도인 수용액상 이산화탄소 질량 분률의 공간적 분포가 그림 5 (주입 시작 이후 1일), 그림 6 (주입 시작 이후 1년) 및 그림 7 (주입 시작 이후 200년)에 도시되어 있다.

이들 그림에서 보다시피 4.1장에서 언급한 바와 같이 수용액상 이산화탄소의 전반적인 거동 양상은 격자 크기에 무관하게 유사하지만 그 세부적인 거동 양상은 격자 크기에 따라서 시공간적으로 매우 다르다. 이러한 세부적인 거동 양상의 차이는 상기한 이산화탄소가 존재하지 않는 저장암 내 자유 유체상 이산화탄소 주입이 불포화대 내 지하수나 비수용액상액체 침투와 유사한 현상이라는 관점 및 수용액상 이산화탄소가 자유 유체상 이산화탄소의 공존하는 지하수 내 용해에 의해 생성되는 것이라는 관점에서 보면 쉽게 이해되고 설명될 수 있다. 즉 이산화탄소 주입 바로 초기(주입 시작 이후 1일)에는 지하수 및 자유 유체상 이산화탄소의 다상 유체 유동에 따른 모세관 방벽 효과에 의해서 주입정 하부의 주입 구간 주변에서만 자유 유체상 이산화탄소(포화도)가 좁은 지역에 걸쳐 가파른 전단면을 가진다(그림 2d). 그러한 조건에서는 수용액상 이산화탄소(질량 분률)도 매우 가파른 공간적 분포를 가진다(그림 5d). 그런데 이를 반영할 수 있을 만큼 충분히 작지 않은

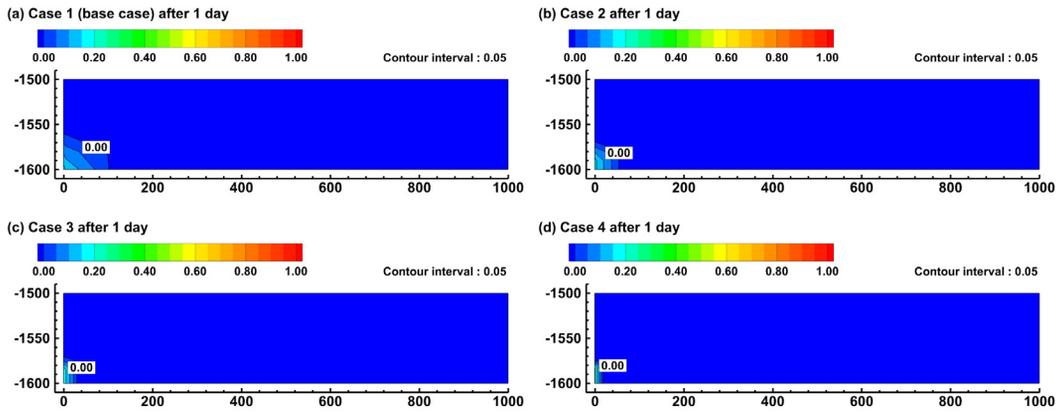


Fig. 2. Spatial distributions of saturation of free fluid phase of carbon dioxide in the storage formation for (a) Case 1 (base case, coarsest grids), (b) Case 2, (c) Case 3, and (d) Case 4 (finest grids) after 1 day since the start of CO<sub>2</sub> injection. The vertical coordinate axis is exaggerated 2 times.

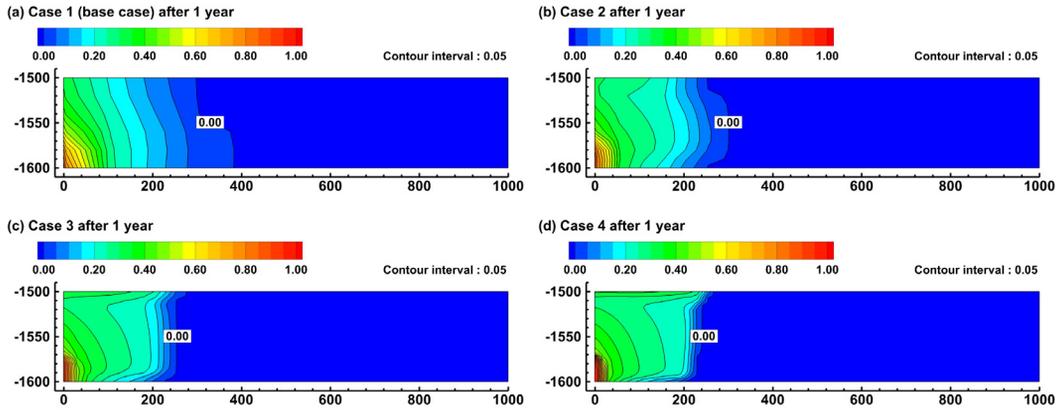


Fig. 3. Spatial distributions of saturation of free fluid phase of carbon dioxide in the storage formation for (a) Case 1 (base case, coarsest grids), (b) Case 2, (c) Case 3, and (d) Case 4 (finest grids) after 1 year since the start of CO<sub>2</sub> injection. The vertical coordinate axis is exaggerated 2 times.

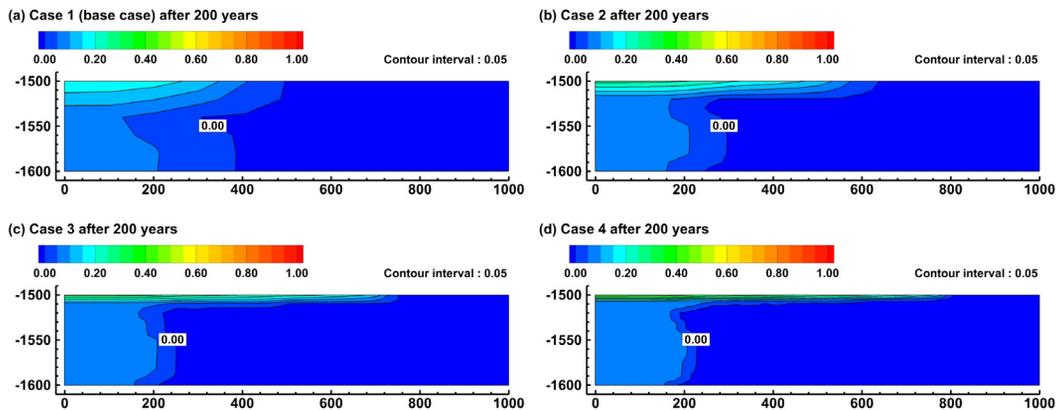


Fig. 4. Spatial distributions of saturation of free fluid phase of carbon dioxide in the storage formation for (a) Case 1 (base case, coarsest grids), (b) Case 2, (c) Case 3, and (d) Case 4 (finest grids) after 200 years since the start of CO<sub>2</sub> injection. The vertical coordinate axis is exaggerated 2 times.

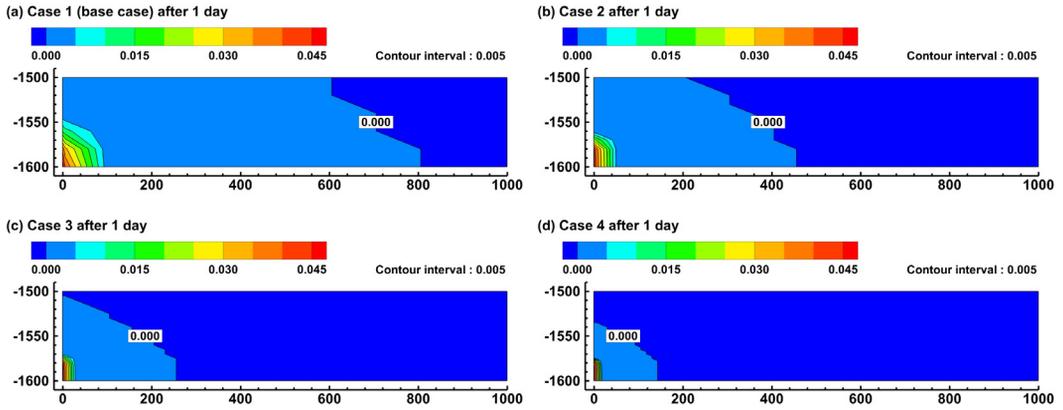


Fig. 5. Spatial distributions of mass fraction of aqueous phase of carbon dioxide in the storage formation for (a) Case 1 (base case, coarsest grids), (b) Case 2, (c) Case 3, and (d) Case 4 (finest grids) after 1 day since the start of CO<sub>2</sub> injection. The vertical coordinate axis is exaggerated 2 times.

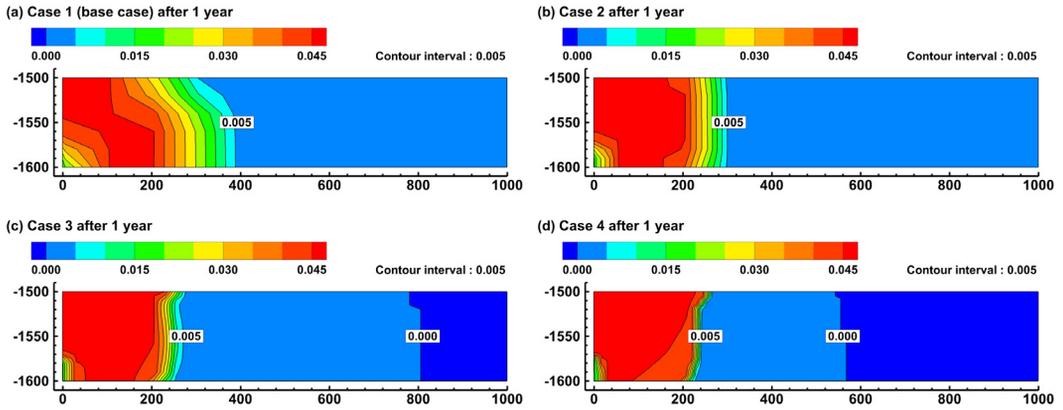


Fig. 6. Spatial distributions of mass fraction of aqueous phase of carbon dioxide in the storage formation for (a) Case 1 (base case, coarsest grids), (b) Case 2, (c) Case 3, and (d) Case 4 (finest grids) after 1 year since the start of CO<sub>2</sub> injection. The vertical coordinate axis is exaggerated 2 times.

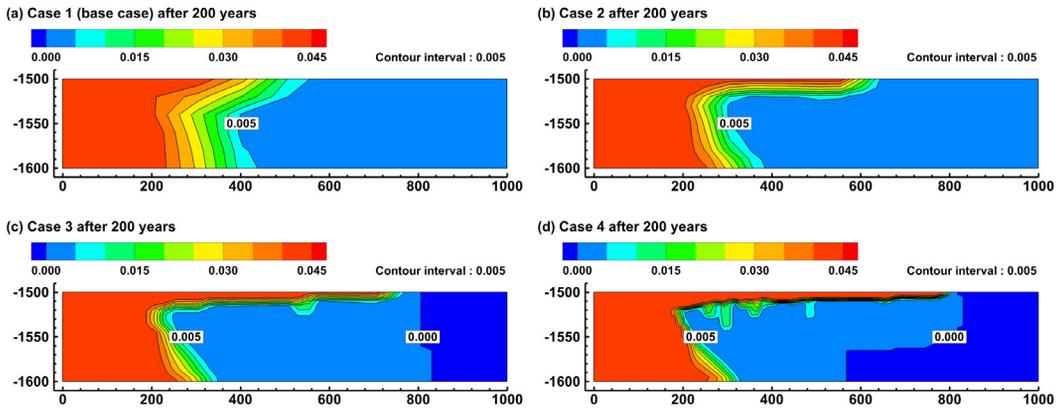


Fig. 7. Spatial distributions of mass fraction of aqueous phase of carbon dioxide in the storage formation for (a) Case 1 (base case, coarsest grids), (b) Case 2, (c) Case 3, and (d) Case 4 (finest grids) after 200 years since the start of CO<sub>2</sub> injection. The vertical coordinate axis is exaggerated 2 times.

크기의 격자망에서는 자유 유체상 이산화탄소(포화도)가 넓은 지역에 걸쳐 완전한 전단면을 가진다(그림 2a, 2b, 2c). 그 결과 수용액상 이산화탄소(질량 분률)도 매우 완전한 공간적 분포를 가질 수밖에 없다(그림 5a, 5b, 5c).

상기한 이산화탄소 주입 바로 초기에서와 유사하게 격자 크기 변화에 따른 수용액상 이산화탄소의 세부적인 거동 양상의 공간적 분포 차이는 주입 종료 시점(주입 시작 이후 1년, 그림 6) 및 주입 종료 후 장기 시점(주입 시작 이후 200년, 그림 7)에서도 발생한다. 그 결과 격자 크기가 증가할수록 수용액상 이산화탄소(질량 분률)는 공간적으로 보다 더 넓은 지역에 걸쳐 전단면에서만 더 완만하게 분포하는 반면에 덮개암 바로 아래에서 수평 방향의 영향 반경은 과소평가된다. 그리고 격자가 세분화됨에 따라서 수용액상 이산화탄소의 중력 운지는 덮개암 바로 아래에서 그 발생 빈도가 증가한다.

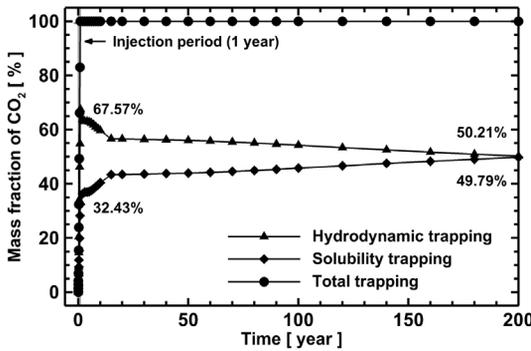
#### 4.4 이산화탄소 포획 효율

다양한 격자 크기에서 주입된 이산화탄소의 수리동역학적 포획 및 용해 포획 효율의 시간적 변화가 그림 8에 도시되어 있다.

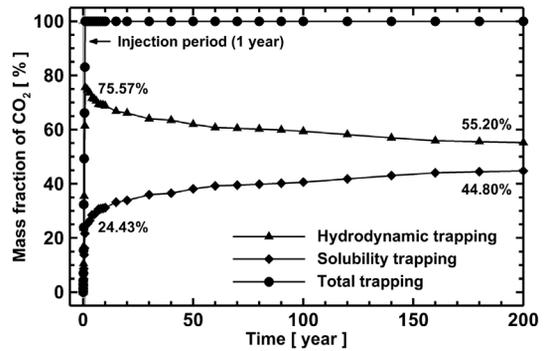
그림에서 보듯이 격자 크기에 무관하게 이산화탄소 주입과 동시에 주입된 이산화탄소의 수리동역학적 포획 효율은 빠르게 증가하다가 주입 종료 시점(주입 시작 이후 1년)에서 그 값이 최대에 이른다(그림 8). 그리고 주입 종료 이후에는 상기한 바와 같이 수리동역학적으로 포획된 자유 유체상 이산화탄소가 지하수에 용해되면서 수용액상 이산화탄소로 전환되기 때문에 주입된 이산화탄소의 수리동역학적 포획 효율은 느리게 감소하며, 그만큼 주입된 이산화탄소의 용해 포획 효율은 느리게 증가한다(그림 8).

주입 종료 시점(주입 시작 이후 1년)에서는 격자가 세분화됨에 따라서 주입된 이산화탄소의 수리동역학적 포획 효율은 67.57%, 75.57%, 79.95%, 81.75%

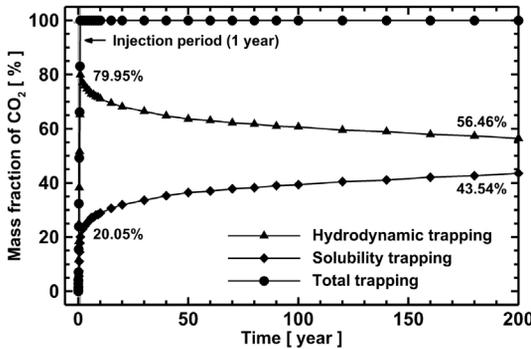
(a) Case 1 (base case)



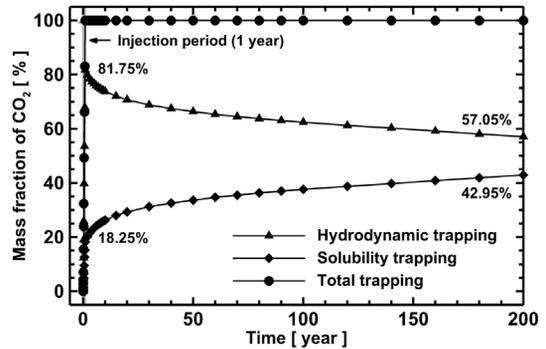
(b) Case 2



(c) Case 3



(d) Case 4



**Fig. 8.** Temporal changes in mass fractions of carbon dioxide stored by hydrodynamic and solubility trapping mechanisms in the storage formation for (a) Case 1 (base case, coarsest grids), (b) Case 2, (c) Case 3, and (d) Case 4 (finest grids).

순으로 증가하며, 그와 반대로 주입된 이산화탄소의 용해 포획 효율은 32.43%, 24.43%, 20.05%, 18.25% 순으로 감소한다(그림 8). 이와 유사하게 주입 종료 후 장기 시점(주입 시작 이후 200년)에서도 격자가 세분화됨에 따라서 주입된 이산화탄소의 수리동역학적 포획 효율은 50.21%, 55.20%, 56.46%, 57.05% 순으로 증가하며, 그와 반대로 주입된 이산화탄소의 용해 포획 효율은 49.79%, 44.80%, 43.54%, 42.95% 순으로 감소한다(그림 8). 이와 같이 격자가 세분화됨에 따라서 주입된 이산화탄소의 수리동역학적 포획 효율이 증가하는 것은 상기한 바와 같이 격자 크기가 감소할수록 자유 유체상 이산화탄소가 공간적으로 보다 더 좁은 지역에 걸쳐 보다 높은 포화도를 가지면서 분포하기 때문이다. 자유 유체상 이산화탄소의 포화도가 높은 지역은 주입 기간에는 주로 주입정 하부의 주입 구간 주변이며, 주입 이후 기간에는 주로 덮개암 바로 아래 주변이다. 한편 격자가 세분화됨에 따라서 주입된 이산화탄소의 용해 포획 효율이 감소하는 것은 상기한 바와 같이 격자 크기가 감소할수록 자유 유체상 이산화탄소가 공간적으로 보다 더 좁은 지역에 걸쳐 보다 높은 포화도를 가지면서 자유 유체상 이산화탄소와 지하수가 공존 또는 접촉하는 지역이 감소하고 따라서 자유상 이산화탄소의 지하수 내 용해가 감소하기 때문이다. 이러한 결과는 이산화탄소 지중 저장 수치 모델링에서 격자 크기가 증가할수록 실제 물리적 현상에 비해서 주입된 이산화탄소의 수리동역학적 포획 효율은 과소평가되며, 그만큼 주입된 이산화탄소의 용해 포획 효율은 과대평가될 수 있음을 시사한다.

## 5. 결론

심부 저장 지층에 주입된 이산화탄소의 거동 및 포획 기작 수치 모델링에 대한 격자 세분화의 영향을 정량적으로 평가하기 위하여 병렬 다상 열-수리학적 수치 모델을 이용한 일련의 수치 모델링을 수행하였다. 이를 위하여 저장 지층을 먼저 일정한 크기의 격자로 이산화한 대표 경우의 격자망과 이를 추가로 수직 및 수평 방향으로 모두 2배, 4배 및 8배로 격자 크기를 세분화한 격자망을 고려하였다. 수치 모델링 결과는 격자 세분화 시 주입된 이산화탄소의 거동 및 포획 기작 수치 모델링에 중요한 영향을

미침을 보여준다. 즉 자유 유체상(포화도) 및 수용액상(질량 분률) 이산화탄소의 전반적인 거동 및 포획 양상은 격자 크기에 무관하게 유사하지만 그 세부적인 거동 및 포획 양상은 격자 크기에 따라서 시공간적으로 매우 다르다. 이는 격자 크기에 따라서 다상 유체 유동을 통해서 이산화탄소의 압력, 온도, 밀도, 점성 및 유동 속도의 공간적 분포와 그 전단면의 기울기가 민감하게 변하기 때문이다. 그 결과 격자 크기가 증가할수록 자유 유체상(포화도) 및 수용액상(질량 분률) 이산화탄소는 공간적으로 보다 더 넓은 지역에 걸쳐 전체적으로 더 완만하게 분포하는 반면에 덮개암 바로 아래에서 수평 방향의 영향 반경은 과소평가된다. 그리고 격자가 세분화됨에 따라서 수용액상 이산화탄소의 중력 운지는 덮개암 바로 아래에서 그 발생 빈도가 증가한다. 한편 격자가 세분화됨에 따라서 주입된 이산화탄소의 수리동역학적 포획 효율은 증가하며, 그와 반대로 주입된 이산화탄소의 용해 포획 효율은 감소한다. 이는 상기한 바와 같이 격자 크기가 감소할수록 자유 유체상 이산화탄소가 공간적으로 보다 더 좁은 지역에 걸쳐 보다 높은 포화도를 가지면서 분포하며, 자유 유체상 이산화탄소와 지하수가 공존 또는 접촉하는 지역이 감소하고 따라서 자유상 이산화탄소의 지하수 내 용해가 감소하기 때문이다. 이러한 결과는 이산화탄소 지중 저장 수치 모델링에서 격자 크기가 증가할수록 실제 물리적 현상에 비해서 주입된 이산화탄소의 수리동역학적 포획 효율은 과소평가되며, 그만큼 주입된 이산화탄소의 용해 포획 효율은 과대평가될 수 있음을 시사한다. 이와 같이 본 연구를 통해서 제시된 병렬 다상 열-수리학적 수치 모델링 기술과 심부 저장 지층에 주입된 이산화탄소의 거동 및 포획 기작 수치 모델링에 대한 격자 세분화의 영향 평가 결과들은 이산화탄소 주입량의 규모 또는 저장 지층(수치 모델링 영역)의 크기에 맞는 적합한 최적의 수직 및 수평 방향의 격자 크기 선정을 통해서 향후 심부 저장 지층 내 이산화탄소 지중 저장의 성능 및 효율을 정량적으로 평가하고 최적화하는 데에 매우 유용하게 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

## 사 사

본 연구는 미래창조과학부 산하 한국연구재단의

Korea CCS 2020 사업 연구비 지원에 의해 수행되었습니다. 본 연구는 또한 부분적으로 미래창조과학부 산하 한국연구재단의 Brain Korea 21 사업 지원에 의해 수행되었습니다. 아울러 본 논문의 심사 과정에서 발전적인 조언과 비판을 해주신 익명의 두 심사자님께 깊은 감사를 드립니다.

## REFERENCES

- Computer Modelling Group, 2009, GEM user's guide, version 2009: Advanced compositional and GHG reservoir simulator. Technical Report, Computer Modelling Group (CMG), Calgary, Alberta, Canada, 1123 p.
- Corey, A.T., 1954, The interrelation between gas and oil relative permeabilities. *Producers Monthly*, 19 (November), 38-41.
- Doughty, C. and Pruess, K., 2004, Modeling supercritical carbon dioxide injection in heterogeneous porous media. *Vadose Zone Journal*, 3, 837-847.
- Elder, J.W., 1967, Transient convection in a porous medium. *Journal of Fluid Mechanics*, 27, 609-623.
- Guo, W. and Langevin, C.D., 2002, User's guide to SEAWAT: A computer program for simulation of three-dimensional variable-density ground-water flow, *Techniques of Water-Resources Investigations*, Book 6, Chapter A7. Technical Report TWI 6-A7, United States Geological Survey, Tallahassee, Florida, USA, 77 p.
- Holloway, S., 1997, An overview of the underground disposal of carbon dioxide. *Energy Conversion and Management*, 38, 193-198.
- Hosa, A., Esentia, M., Stewart, J. and Haszeldine, S., 2011, Injection of CO<sub>2</sub> into saline formations: Benchmarking worldwide projects. *Chemical Engineering Research and Design*, 89, 1855-1864.
- Johnson, J.W., Nitao, J.J. and Knauss, K.G., 2004, Reactive transport modeling of CO<sub>2</sub> storage in saline aquifers to elucidate fundamental processes, trapping mechanisms, and sequestration partitioning. In: Baines, S.J. and Worden, R.H. (eds.), *Geological Storage of Carbon Dioxide*, Special Publications, No. 233. Geological Society of London, London, UK, 107-128.
- Karypsis, G., 2013, METIS, version 5.1.0: A software package for partitioning unstructured graphs, partitioning meshes, and computing fill-reducing orderings of sparse matrices. Technical Report, Department of Computer Science and Engineering, University of Minnesota, Minneapolis, Minnesota, USA, 35 p.
- Kihm, J.H. and Kim, J.M., 2007, Numerical simulation of behavior characteristics and trapping mechanisms of carbon dioxide injected into a deep saline aquifer for geologic storage. *Annual Conference of the Geological Society of Korea (Abstracts)*, Chuncheon, Korea, October 25-26, 69 p (in Korean).
- Kihm, J.H. and Kim, J.M., 2008, Numerical simulation of thermo-hydro-mechanical stability evaluation of carbon dioxide geologic storage with various characteristics of geologic structures and injection locations. *Annual Conference of the Korean Society of Economic and Environmental Geology (Abstracts)*, Seoul, Korea, April 23-25, 83 p (in Korean).
- Kihm, J.H., Kim, J.M., Wang, S. and Xu, T., 2012a, Hydrogeochemical numerical simulation of impacts of mineralogical compositions and convective fluid flow on trapping mechanisms and efficiency of carbon dioxide injected into deep saline sandstone aquifers. *Journal of Geophysical Research*, 117, B06204, doi:10.1029/2011JB008906.
- Kihm, J.H., Park, S.U. and Kim, J.M., 2012b, Evaluation of carbon dioxide plume injected in the Gyeongsang Basin, Korea. *Second Korea CCS Conference (Abstracts)*, Jeju, Korea, March 14-16, 1 p (in Korean).
- Kim, J.M., 2008, Development and application of a fully coupled multiphase numerical model for thermo-hydro-mechanical analysis of optimal geologic sequestration of carbon dioxide. Final Report M102KP010017-07K1601-01710, Seoul National University, Seoul, Korea, 131 p (in Korean with English summary).
- Kim, J.M., 2009, Development and field validation of characterization, drilling, injection, and prediction technologies for geologic sequestration of carbon dioxide. Annual Report 16-2008-08-001-00, Seoul National University, Seoul, Korea, 128 p (in Korean with English summary).
- Kim, J.M., 2014, Development of integrated numerical modeling technologies for predicting behavior of geologically injected carbon dioxide. Final Report 2013M1A8A1035824, Seoul National University, Seoul, Korea, 202 p (in Korean with English summary).
- Lindeberg, E., Vuillaume, J.F. and Ghaderi, A., 2009, Determination of the CO<sub>2</sub> storage capacity of the Utsira formation. *Energy Procedia*, 1, 2777-2784.
- Litynski, J., Rodosta, T. and Brown, B., 2012, Best practices for monitoring, verification, and accounting of CO<sub>2</sub> stored in deep geologic formations - 2012 update, second edition. Technical Report DOE/NETL-2012/1568, National Energy Technology Laboratory, Washington, DC, USA, 136 p.
- Metz, B., Davidson, O., de Coninck, H.C., Loos, M. and Mayer, L.A. (eds.), 2005, *Intergovernmental Panel on*

- Climate Change Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage. Cambridge University Press, Cambridge, UK, 431 p.
- Narasimhan, T.N. and Witherspoon, P.A., 1976, An integrated finite difference method for analyzing fluid flow in porous media. *Water Resources Research*, 12, 57-64.
- Park, S.U., Kihm, J.H. and Kim, J.M., 2011, Evaluation of land deformation and stability changes due to geologic storage of carbon dioxide using a thermo-hydro-mechanical numerical model. First Korea CCS Conference (Abstracts), Jeju, Korea, April 13-15, 1 p (in Korean).
- Pruess, K., Oldenburg, C. and Moridis, G., 1999, TOUGH2 user's guide, version 2.0. Technical Report LBNL-43134, Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California, Berkeley, California, USA, 198 p.
- Rutqvist, J., Wu, Y.S., Tsang, C.F. and Bodvarsson, G., 2002, A modeling approach for analysis of coupled multiphase fluid flow, heat transfer, and deformation in fractured porous rock. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 39, 429-442.
- Scottish Carbon Capture and Storage, 2011, Progressing Scotland's CO<sub>2</sub> storage opportunities. Technical Report, Scottish Carbon Capture and Storage (SCCS), Edinburgh, UK, 60 p.
- Smith, D.J., Noy, D.J., Holloway, S. and Chadwick, R.A., 2011, The impact of boundary conditions on CO<sub>2</sub> storage capacity estimation in aquifers. *Energy Procedia*, 4, 4828-4834.
- Spycher, N. and Pruess, K., 2005, CO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O mixtures in the geological sequestration of CO<sub>2</sub>, II. Partitioning in chloride brines at 12-100°C and up to 600 bar. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 69, 3309-3320.
- van Genuchten, M.Th., 1980, A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Science Society of America Journal*, 44, 892-898.
- Voss, C.I., 1984, SUTRA: A finite-element simulation model for saturated-unsaturated, fluid-density-dependent ground-water flow with energy transport or chemically-reactive single-species solute transport. *Water-Resources Investigations Report 84-4369*, United States Geological Survey, Reston, Virginia, USA, 409 p.
- Voss, C.I. and Souza, W.R., 1987, Variable density flow and solute transport simulation of regional aquifers containing a narrow freshwater-saltwater transition zone. *Water Resources Research*, 23, 1851-1866.
- White, M.D. and Oostrom, M., 2006, STOMP user's guide: Subsurface transport over multiple phases, version 4.0. Technical Report PNNL-15782, Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington, USA, 108 p.
- White, S.P., Allis, R.G., Moore, J., Chidsey, T., Morgan, C., Gwynn, W. and Adams, M., 2005, Simulation of reactive transport of injected CO<sub>2</sub> on the Colorado Plateau, Utah, USA. *Chemical Geology*, 217, 387-405.
- Xu, T., Spycher, N., Sonnenthal, E., Zheng, L. and Pruess, K., 2012, TOUGHREACT user's guide: A simulation program for non-isothermal multiphase reactive transport in variably saturated geologic media, version 2.0. Technical Report LBNL-DRAFT, Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California, Berkeley, California, USA, 240 p.
- Xu, T., Zheng, L. and Tian, H., 2011, Reactive transport modeling for CO<sub>2</sub> geological sequestration. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 78, 765-777.
- Yamamoto, H. and Doughty, C., 2011, Investigation of gridding effects for numerical simulations of CO<sub>2</sub> geologic sequestration. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 5, 975-985.
- Zhang, K., Wu, Y.S. and Pruess, K., 2008, User's guide for TOUGH2-MP - A massively parallel version of the TOUGH2 code. Technical Report LBNL-315E, Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California, Berkeley, California, USA, 108 p.
- Zhang, W., Li, Y., Xu, T., Cheng, H., Zheng, Y. and Xiong, P., 2009, Long-term variations of CO<sub>2</sub> trapped in different mechanisms in deep saline formations: A case study of the Songliao Basin, China. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 3, 161-180.

---

Received : December 9, 2014

Revised : February 3, 2015

Accepted : February 5, 2015