

천부대수층 내 이산화탄소 주입에 의한 물-암석-CO₂ 반응에 대한 수리지구화학적 모델링

이설희¹ · 김순오^{1,*} · 최병영² · 도현권³ · 윤성택³ · 전성천⁴

¹경상대학교 지질학과 및 기초과학연구소

²한국지질자원연구원 CO₂ 지중 저장 연구단

³고려대학교 지구환경과학과 및 K-COSEM 연구단

⁴(주)지오그린21

요 약

인위누출시험에 의하여 천부대수층으로 주입된 이산화탄소 플룸의 확산을 예측하고 장기간의 물-암석-이산화탄소 반응에 의한 광물학적 조성변화를 고찰하기 위하여 다차원-다상 수리지구화학적 반응성 이동 모델링을 수행하였다. 주입된 이산화탄소는 지하수의 흐름방향으로 확산될 것이라는 예상과 달리 모델 시뮬레이션 결과, 이산화탄소 주입수의 플룸은 초기에 등방성을 가지며 확산되나 이후 주입정으로부터 북동쪽으로 우선적으로 확산되는 것으로 나타났다. 이러한 결과는 주입관정이 위치한 구역 하부에서 나타나는 상대적으로 높은 전기비저항값과 주입관정을 중심으로 북동쪽으로 위치하는 상대적으로 낮은 전기비저항값의 분포와 연관이 있다고 판단하였다. 또한 이산화탄소 주입에 따른 물-암석-이산화탄소 반응으로 나타나는 광물조성의 체적 분율 변화를 1,000년 동안 관찰한 결과, 대상 지층 내 자연적으로 존재하는 정장석, 조장석, 회장석, 녹니석, 카올리나이트 및 해록석은 낮아진 pH 조건하에 용해반응이 지속적으로 일어나며 석영과 일라이트는 침전반응이 우세하게 일어남을 볼 수 있었다. 그리고 이산화탄소의 탄산염광물로의 포획기작은 대부분 방해석과 백운석을 통해 발생하는 것으로 판단되며 마그네사이트는 체적 분율의 변화가 없는 것으로 보아 주어진 온도 및 압력 조건하에서는 침전되지 않는 것으로 판단되었다. 이러한 수치 모델링의 결과들은 장기간 이산화탄소 지중 저장에 있어 광물포획의 효율성을 정량적으로 평가하는 지표로써 활용될 수 있을 것이라 기대된다.

주요어: 이산화탄소 지중 저장, 인위누출시험, 천부대수층, 물-암석-이산화탄소 반응, 수리지구화학 모델링

Seol Hee Lee, Soon-Oh Kim, Byoung-Young Choi, Hyun-Kwon Do, Seong-Taek Yun and Seong-Chun Jun, 2017, Hydrogeochemical modeling on water-rock-CO₂ interactions within a CO₂-injected shallow aquifer. *Journal of the Geological Society of Korea*, v. 53, no. 5, p. 657-673

ABSTRACT: Multi-dimensional and multi-phase hydrogeochemical reactive transport modeling was conducted to predict the dispersion of CO₂ plume after its injection into a shallow aquifer via a controlled release test within the environmental impact evaluation test facility on seepage of geologically stored CO₂ (EIT) site. In addition, the model simulations aimed at observing the change of mineralogical composition occurring as a result of water-rock-CO₂ interactions. Contrary to the expectation that the injected CO₂ dispersed in the direction of groundwater flow, the model simulations showed that the CO₂ plume was isotopically dispersed initially and then transported preferentially towards the northeastern direction of the injection well. This result can be related to the zone of a relatively higher electrical resistivity (ER) where the injection well existed and the northeastern zone where a relatively lower ER was distributed. The results of model simulations on the change of volume fractions of major minerals via water-rock-CO₂ interactions for the period of 1,000 years after the CO₂ injection indicate that naturally-occurring K-feldspar, albite, anorthite, chlorite, kaolinite, and glauconite seemed to be continuously dissolved as a result of decreasing pH, whereas quartz and illite were observed to be predominantly precipitated. Furthermore, it is likely that the mineral trapping of the injected CO₂ was mostly contributed to calcite and dolomite. However, the volume fraction of magnesite seemed not to be changed, and which indicates that it was not precipitated under the given conditions of temperature and pressure. It is expected that these results of model simulations can be applied as one of indicators to quantitatively evaluate the long-term efficiency of mineral trapping of injected CO₂.

* Corresponding author: +82-55-772-1477, E-mail: sokim@gnu.ac.kr

Key words: carbon dioxide geologic storage, controlled release test, shallow aquifer, water-rock-CO₂ interaction, hydrogeochemical modeling

(Seol Hee Lee and Soon-Oh Kim, Department of Geology and Research Institute of Natural Science (RINS), Gyeongsang National University, Jinju 52828, Republic of Korea; Byoung-Young Choi, Center for CO₂ Geological Storage, Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources, Daejeon 34132, Republic of Korea; Hyun-Kwon Do and Seong-Taek Yun, Department of Earth and Environmental Sciences and K-COSEM Research Center, Korea University, Seoul 02841, Republic of Korea; Seong-Chun Jun, GeoGreen21 Co. Ltd., Seoul 08376, Republic of Korea)

1. 서론

산업혁명 이래로 지구온난화의 심각성은 나날이 증가하여 현재 전 세계적으로 가장 큰 이슈 중 하나이다. 지구온난화를 일으키는 여러 온실가스들 중 이산화탄소가 가장 많은 비율을 차지하기 때문에 연구자들에 의해 대기 중 이산화탄소의 농도 완화를 위한 여러 방안들이 제시되고 있다. 그 중 이산화탄소 지중 저장(carbon dioxide geologic storage, CGS) 기술은 온실가스의 최대 발생지인 발전소나 공장 등에서 대기로 방출되는 이산화탄소를 포집하여 지하 심부 대수층 등에 격리시키는 방법으로서 저장용량 또는 저장능 그리고 장기적인 안정성 측면에서 가장 효과적인 방법으로 주목받고 있다(Holloway, 1997). 이산화탄소 지중 저장 또는 격리는 심부 대수층에 주입된 이산화탄소가 부력의 차이에 의해 상부로 이동하여 덮개암 등의 불투수층 내 균열과 같은 구조적 매체에 저장되는 구조적 포획(structural trapping), 매질의 공극 내 자유 유체상으로 저장되는 잔류 포획(residual trapping), 이산화탄소가 지하수에 용해되어 중 탄산 이온의 형태나 탄산이온의 형태로 저장되는 용해성 포획(solubility trapping)과 대상 대수층에 자연적으로 존재하는 일차 광물과 이산화탄소와 지하수와의 반응에 의하여 방출되는 주 양/음 이온이 용존상으로 존재하는 중 탄산 및 탄산이온과 반응하여 탄산염 광물 형태로 새로이 생성되는 광물 포획(mineral trapping)의 네 가지 포획기작으로 격리되는 것을 말한다(IPCC, 2005). 구조적, 잔류 포획과 용해성 포획의 과정을 거쳐 최종적으로 광물학적 포획으로 저장되게 되는데 광물학적 포획은 앞서 언급한 세 가지의 포획기작보다 저장용량과 안정성 측면에 있어서 보다 더 효율적이다(Xu *et al.*, 2004b).

현재 전 세계적으로 CGS 기술에 대한 연구가 활발히 이루어지고 있는데 세부적인 연구 방법으로는 실내 모사 실험, 자연 유사물 연구와 지구화학 모델

링 연구 세 가지로 분류할 수 있다. 먼저 국외에서는 이질성을 갖는 포화 매질 환경에서 CO₂ 가스 이동 분석연구와 다양한 환경에서의 지질 매체 시료와 수질 시료를 바탕으로 짧은 기간 동안의 물-암석-이산화탄소 반응을 모사한 실내 배치실험의 사례(Qafoku *et al.*, 2014; Lassen *et al.*, 2015; Yang *et al.*, 2015; Wan *et al.*, 2017) 등이 있으며, 자연 발생 CO₂ 가스의 생성 기작이나 이차적으로 침전된 도소나이트(dawsonite), 마그네사이트(magnesite), 방해석(calcite), 백운석(dolomite)와 앵커라이트(ankerite)와 같은 탄산염 광물을 중심으로 그 생성 기작에 대한 연구가 진행된 바 있다(Liu *et al.*, 2011). 또한 PHREEQC (Parkhurst and Appelo, 1999), Geochemist's Workbench와 TOUGH2 (Pruess *et al.*, 1999) 계열 등의 다양한 지구화학 모델링 프로그램을 이용하여 수천 년에 이르는 장기간의 이산화탄소 격리 및 예측 모델링이 수행된 바 있다(Xu *et al.*, 2004a; Wan *et al.*, 2017).

국내에서의 자연유사물에 관한 연구는 강원, 경북지역과 충청지역을 중심으로 산출되는 탄산염수의 생성기원과 수리화학적 및 환경동위원소적 특성에 대한 연구가 많이 진행된 상태이다(Choi, B.Y. *et al.*, 2000; Koh *et al.*, 2000; Yun and Kim, 2000; Choi, H.S. *et al.*, 2002, 2014; Jeong, 2004; Jeong *et al.*, 2011). 지구화학적 모델링에 관한 연구는 PHREEQC를 이용한 반응성 용질 이동 모델링으로 초입계상 이산화탄소의 주입과 이에 따른 물-암석 반응을 모사함으로써 지중 처분 효율을 평가하였고(Choi *et al.*, 2009), 모델 도메인을 구성하는데 있어서 격자 차별화에 의한 영향을 TOUGH2를 이용하여 정량적으로 평가하여 이산화탄소 지중 저장 효율을 최적화하고자 한 사례가 있다(Lee *et al.*, 2015). 또한 TOUGHREACT를 이용한 사례로는 심부 사암 대수층 내 임의의 광물 조성과의 변화에 대한 변화가 지중 저장의 효율성과 안정성에 어떠한 영향을 미치는지에 대한 연구(Kihm *et al.*, 2009)와 포항분지 영일만에 위치한 소규모

CO₂ 주입 실증 부지의 실제 지층 구조와 광물 조성을 반영한 연구가 제시된 바 있다(Choi *et al.*, 2015b, 2017).

위의 제시된 세 가지 연구 방법 중 수리지구화학 모델링은 실행된 기간이 짧은 CGS기술의 단점을 보완하고 1,000년 이상의 오랜 세월에 걸쳐 일어나는 물-암석-이산화탄소간의 반응에 대한 고찰이 가능하며 광물로써 포획되는 이산화탄소의 정량적인 평가가 가능하다는 장점 때문에 가장 핵심적인 연구방법으로의 역할을 수행하고 있다.

따라서 본 연구에서는 다차원 수치 모델링 프로그램인 TOUGHREACT를 이용하여 환경부의 ‘CO₂ 지중 저장 환경관리기술개발’사업의 실증현장인 충북 음성군의 인위누출조절 시설(controlled release facility)을 갖춘 environmental impact evaluation test facility on seepage of geologically stored CO₂ (EIT)부지에 있는 포화대 내 이산화탄소의 주입을 모사하고자 하였다. 포화대 부지를 대상으로 측정된 전기비저항 탐사 결과를 이용하여 지질 매체의 투과율을 보다 정밀하게 세분하여 적용하였고 이에 따른 플룸의 변화 양상을 예측하고자 하였다. 또한 장기간 모니터링을 통하여 주입된 물-암석-이산화탄소간의 반응의 결과로서 광물조성의 변화에 대하여 고찰하고자 하였다.

2. 연구방법

2.1 연구지역 및 지구화학적 특성

연구지역은 환경부의 ‘CO₂ 지중 저장 환경관리기술개발’사업의 실증현장인 충청북도 음성군 대소면에 위치한 EIT 부지의 포화대 지역이다(그림 1). 연구부지는 구조적으로 경기육괴에 속하고 주변은 선캄브리아기 편마암류와 쥐라기 흑운모 화강암류 그리고 신생대 제 4기 퇴적암류들이 분포하고 있다(Jun *et al.*, 2017). EIT 부지는 제 4기 퇴적암류에 속하는 충적층 지역 내 속하며 풍화가 매우 깊게 이루어져 풍화대가 수십 m 깊이까지 발달하는 것이 특징이며 주를 이루고 있는 광물은 석영, 회장석, 조장석, 흑운모 등이다. 연구부지 내 포화대의 지하수면은 지표면하 약 12.4~17.6 m에 분포하고 지하수의 흐름 방향은 북서에서 남동쪽 방향이며 수두구배는 약 0.005로 수리전도도는 2.65×10^{-4} cm/sec로 나타났다. 또한 얇은 지표층 아래 약 27~37 m 두께의 풍화토층이 존재하며 이는 중조립질의 실트질 모래로 구성되어 있다. 풍화토층 하부 약 27~40 m의 두께의 풍화암층이 분포하고 있는 것이 특징이다.

2.2 수치 모델

본 연구에서는 TOUGH계열 코드의 전/후처리를 기반

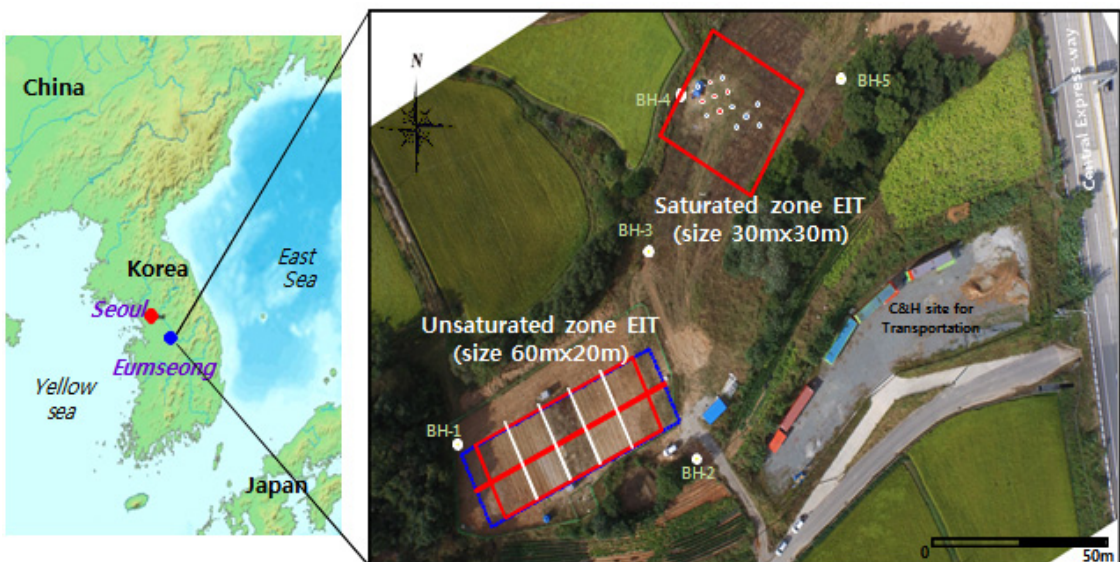


Fig. 1. Location and layout of study area (modified from Jun *et al.*, 2017).

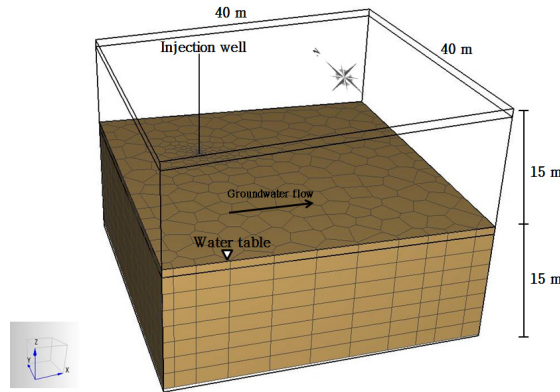
으로 한 PetraSim 2015 (Thunderhead Engineering) 프로그램 이용하여 시뮬레이션을 수행하였다. TOUGHREACT는 다차원 다상의 열-수리학적 수치모델로 수리지구화학적 반응성 이동(hydrogeochemical reactive transport)을 모사할 수 있다. 또한 지질매체의 물리·화학적 이질성을 1, 2, 3차원적 결과로 시각화 할 수 있으며 다양한 수리지구화학적 조건하에 적용할 수 있다 (Xu *et al.*, 2004b). 다양한 상태 방정식(equation of state) 모듈을 통하여 여러 유체의 특성을 적용할 수 있는데 본 연구에서는 이산화탄소와 지하수의 거동을 모사하기 위하여 ECO2N 모듈(Pruess and Spycher, 2007)을 이용하였다. ECO2N 모듈은 약 12~100°C

의 온도 범위와 최대 600 bar까지의 압력 범위 내에서 모사 가능하다.

2.3 수리지질학적 조건

모델에서 설정한 3차원 도메인의 크기는 길이 40 m, 폭 40 m와 깊이 30 m이다(그림 2a). 본 연구에서는 그림 1에 제시된 포화대 EIT 부지를 대상으로 하여 상부 불포화대층을 제외한 포화대층 내에서의 이산화탄소 거동만을 모사하였기 때문에 실질적인 깊이는 상부 불포화대층 두께 15 m를 제외한 15 m로 약 2 m 간격으로 세분하여 8개 층으로 이루어져 있다. 주입 관정은 깊이 25 m로 하부 3 m 구간에서 주

(a)



(b)

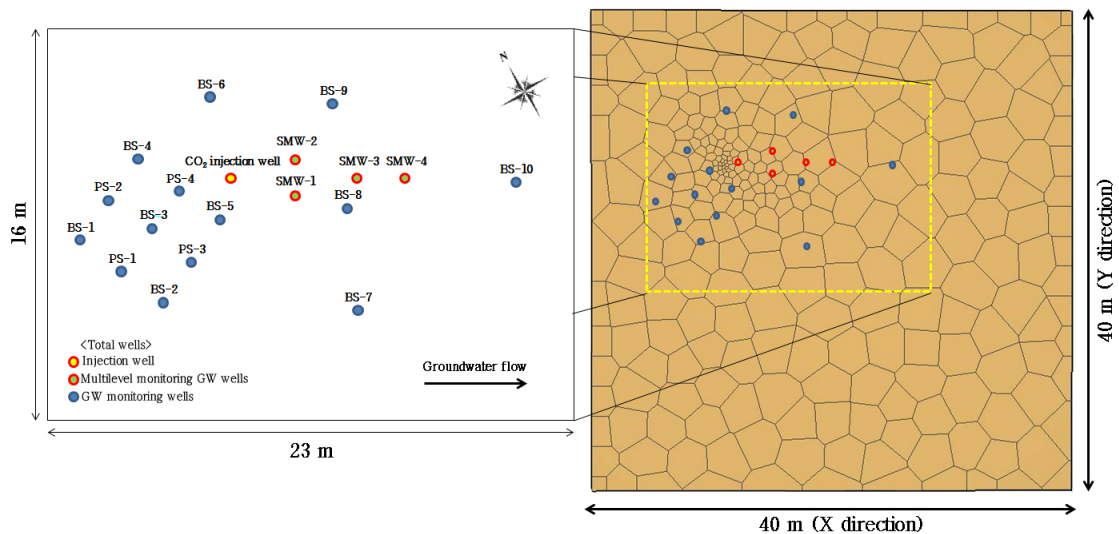


Fig. 2. Schematic diagram showing the basic framework of model grid. (a) 3-D model domain, (b) model geometry (aerial view) and location of injection and monitoring wells.

Table 1. Hydrological parameters used in the model simulations.

Parameters	Values
Porosity (%)	20
Compressibility (1/Pa)	4.5×10^{-10}
Density (kg/m ³)	2600
Relative permeability (van Genuchten-Mualem)	
Exponent, m	0.457
Residual water saturation, Slr	0.3
Residual gas saturation, Sgr	0.05
Capillary pressure (van Genuchten)	
Exponent, m	0.457
Residual water saturation, Slr	0.0
Strength coefficient (kPa)	19.61

입이 발생하도록 설정하였다. 또한 실제 부지에 설치되어있는 모니터링 관정의 위치를 대략적으로 표시하여 플룸의 변화를 보다 정확히 관찰하고자 하였다(그림 2b). 주입 관정이 설정되어있는 셀을 중심으로 모델의 격자(mesh)를 구성하였으며 보로노이(Voronoi) 다각형 형태를 선택하여 적용하였다. 보로노이 다각형은 일반 사각형 격자와는 달리 주입정 인근의 영역을 선택하여 보다 정밀한 셀을 설정할 수 있다는 장점이 있다. 주입정 인근 최대 면적은 0.05 m², 최대 셀 면적은 8.0 m²이고 모델에서 산정된 총 셀의 수는 3,400개이다. 표 1과 같이 토양의 밀도는 2,600 kg/m³, 유효 공극률은 20%로 모사되었으며(Jun *et al.*, 2017), 상대 투과율(relative permeability) 및 모세관 압력(capillary pressure) 함수는 van Genuchten-Mualem 함수와 van Genuchten 함수가 사용되었다. 함수에 사용된 변수 값들은 실제 실험을 통하여 산출되어야하는 값이지만 현재 실측값이 부재하기 때문에 ECO2N 모듈에서 가장 일반적으로 사용되는 값들을 참고하여 사용하였다(Xu *et al.*, 2004b). 그리고 수평 투과율을 수직 투과율보다 5배 큰 값으로 지정해 주었다. 일반적으로 수직 방향 투수율(Z permeability)과 수평 방향 투수율(XY permeability)의 비는 지하 심부에서 높은 압력과 온도 조건에서 수평으로 퇴적된 지질층의 특성과 공극내 유체의 투수율 이방성에 관하여 Soulis *et al.* (2000)이 제시한 자료를 바탕으로 수직 및 수평 투과율의 비를 1:10으로 설정하나 본 연구는 천부 포화대층을 대상으로 실시한 모델링이기 때문에 이 보다 작은

1:5의 비율을 적용하였다. 이산화탄소 주입은 약 5톤의 이산화탄소 과포화 주입수를 0.277 kg/s의 속도로 5시간 동안 주입하였으며 주입 종료 후 1000년간 수-암반응을 모사하였다. 여기서 모델 도메인의 상부 경계면은 포화대 내 용해된 이산화탄소가 부력의 영향으로 상승하여 일정 온도와 압력조건에 의하여 가스 상 이산화탄소로 탈기되어 불포화대로 누출됨을 예상할 수 있지만 본 연구에서는 포화대만을 대상으로 모사하였기 때문에 보수적인 결과를 위하여 비유동성경계(no-flow boundary)로 설정하였고 하부 경계면은 포화대가 위치하는 풍화토층과 암반이 존재하는 풍화암층의 경계임을 고려하여 마찬가지로 비유동성 경계로 설정하였다. 측면 경계는 지하수의 지속적인 흐름을 가정하기 위하여 유동성경계(open boundary)로 설정하였다. 또한 본 모델에서 설정해준 온도는 포화대 내 존재하는 지하수의 평균 수온인 15°C로 설정하였고 이산화탄소의 주입에 의해서 온도가 변하지 않는 등온 조건(isothermal conditions)으로 설정하였다. 초기 압력조건은 대기압인 1.213×10^5 Pa로 설정해주었으며 압력구배는 하부 방향으로 -1.2×10^4 Pa×길이(m)로 설정하였다. 또한 북서에서 남동 방향으로 유동하는 지하수의 흐름을 설정하기 위해서 초기 압력조건에 횡축으로 -506.0 Pa×길이(m)의 압력구배를 설정해주었다.

2.4 지구화학적 조건 및 매개변수

모델의 초기 광물 조성은 포화대 영역에 존재하는 관정 시추로부터 획득한 토양시료의 XRD 분석

Table 2. Kinetic rate parameters for minerals.

Minerals	Vol.% Of solid	A (cm ² /g)	Parameters for kinetic rate law							
			Acid mechanism			Neutral mechanism			Base mechanism	
			logk ₂₅ (mol/m ² /s)	E _a (KJ/mol)	n (H ⁺)	logk ₂₅ (mol/m ² /s)	E _a (KJ/mol)	logk ₂₅ (mol/m ² /s)	E _a (KJ/mol)	n (H ⁺)
Albite	15.55	9.8	-10.16	65.0	0.457	-12.56	69.8	-15.60	71.0	-0.572
Anorthite	15.55	9.8	-3.50	16.6	1.411	-9.12	17.8			
K-feldspar	20.17	9.8	-10.06	51.7	0.500	-12.41	38.0	-21.20	94.1	-0.823
Quartz	18.47	9.8				-13.99	87.7			
Kaolinite	18.64	151.6	-11.31	65.9	0.777	-13.16	22.2	-17.05	17.9	-0.472
Glaucanite	6.28	9.8	-4.80	85.0	0.700	-9.10	85.0			
Chlorite	4.27	9.8	-11.11	88.0	0.500	-12.52	88.0	-21.20	94.1	-0.823
Illite	1.07	151.6	-10.98	23.6	0.340	-12.78	35.0	-16.52	58.8	-0.4
Calcite	0	9.8				Assumed at equilibrium				
Dolomite	0	9.8	-3.19	36.1	0.500	-7.53	52.2			
Magnesite	0	9.8	-6.38	14.1	1.000	-9.34	23.5			
Muscovite	0	9.8	-11.85	22.0	0.370	-13.55	22.0	-14.55	22.0	-0.22

결과를 사용하였으며 그 값은 각각 정장석(20.17%), 카올리나이트(18.66%), 석영(16.57%), 조장석(15.55%), 회장석(15.55%), 해록석(흑운모)(6.28%), 녹니석(4.27%)와 일라이트(1.07%)이다. 따라서 본 모사에서는 이산화탄소 주입 전에 자연상에 존재하는 일차 광물로서 앞서 언급한 8 종류의 광물을 설정하였다. TOUGHREACT에서 제공하는 열역학적 데이터베이스에는 흑운모가 존재하지 않는다. 따라서 흑운모를 대체하여 해록석(glaucanite)으로 설정하였는데 해록석은 흑운모 계열의 광물로 흑운모와 화학조성이 매우 유사하기 때문에 대체하여 설정하여도 무방하다고 판단하였다(Xu *et al.*, 2004a). 그리고 주입된 이산화탄소와 기존의 일차 광물과 지하수의 수-암 반응으로 인하여 새로이 생성 가능하다고 판단되는 이차 광물들로는 탄산염 광물인 방해석(calcite), 백운석(dolomite), 마그네사이트(magnesite)를 설정하였고 추가로 백운모(muscovite)를 설정하였다(표 2). 또한 초기 물 성분은 실제 연구부지의 배경지하수와 인위누출시험 시 이용된 이산화탄소 과포화용액의 ICP-OES 및 IC분석 데이터를 사용하였다(표 3). TOUGHREACT에서 기본적으로 제공하는 광물과 화학종의 열역학 데이터베이스는 EQ3/6 database v 7.2b (Wolery and Daveler, 1992)를 변환한 것으로 일반적인 광물의 용해-침전

반응의 속도(kinetic reaction rate)식은 다음과 같다(Lasaga, 1995).

$$r = kA[1 - (\frac{Q}{K})^\theta]^\eta$$

여기에서 r 은 반응 속도(reaction rate), k 는 반응 속도 상수(kinetic reaction rate constant), A 는 광물의 반응 표면적(mineral reactive surface area), K 는 물-암석간의 평형상수(equilibrium constant), Q 는 반응지수(reaction constant)이고 θ 와 η 는 실험에 의하여 결정되는 값이지만 일반적으로 1을 사용한다. 속도상수 k 는 pH 범위에 따라 산성기작, 중성기작, 염기성기작으로 나눌 수 있는데 본 연구에서 사용된 매개변수들은 Palandri and Kharaka (2004)의 자료를 참고하여 설정하였다. 세 가지 기작에 대한 k 값은 다음과 같은 식으로 표현된다.

$$k = k_N^{25} \exp\left[-\frac{E_N}{R}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{298.15}\right)\right] + k_H^{25} \exp\left[-\frac{E_H}{R}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{298.15}\right)\right] a_H^{n_H} + k_{OH}^{25} \exp\left[-\frac{E_{OH}}{R}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{298.15}\right)\right] a_{OH}^{n_{OH}}$$

Table 3. Compositions of initial water and injection water used in the model simulations.

Parameter	Initial water	Injection water
pH	6.7	4.5
Temperature (°C)	15.0	15.0
Elements	Concentration(mol/kg H ₂ O)	
Na ⁺	6.37E-04	6.77E-04
Ca ²⁺	3.08E-04	2.75E-04
K ⁺	2.97E-05	2.56E-05
Mg ²⁺	9.59E-05	7.40E-05
HCO ₃ ⁻	1.05E-03	3.75E-04
Cl ⁻	2.29E-04	5.37E-07
SO ₄ ²⁻	1.90E-05	7.29E-06
Fe ²⁺	8.03E-07	1.83E-05
AlO ₂ ⁻	1.60E-06	2.46E-07
SiO _{2(aq)}	5.65E-04	5.45E-04
O _{2(aq)}	2.00E-04	2.47E-05

여기에서 N, H, OH는 각각 중성(neutral), 산성(acid)과 염기성(base)기작을 뜻한다. E 는 활성화 에너지(activation energy), k_{25} 는 25°C에서 반응속도 상수(rate constant), R 은 가스 상수(gas constant), T 는 절대온도(absolute temperature), a 는 활동도(activity), n 은 반응 차수(reaction order)를 나타낸다. 본 모사에서 설정된 일차 및 이차광물의 k_{25} 와 활동도 에너지(E_a)를 표 2에 나타내었다. 여기에서 방해석은 반응속도가 다른 광물들에 비해 매우 빠르다고 판단되어지므로 평형으로 가정하였다. 실제 자연상에서 광물의 침전속도와 용해속도는 같지 않지만 그 차이가 미미하기 때문에 같다고 가정하여 설정하였으며 광물의 반응성 표면적은 Xu *et al.* (2004b)을 참고하여 설정하였다.

2.5 전기비저항 탐사의 적용

본 연구에서 이용한 전기비저항 탐사의 결과는 환경부의 이산화탄소 지중저장 환경관리 연구단(K-COSEM)의 세부 연구팀에 의해 측정되었으며 EIT 부지를 대상으로 약 2주간 수행되었다. 2차원 전기비저항 탐사는 지구물리탐사 기법 중에서 가장 널리 쓰이는 방법으로 지표면에 일정한 간격의 전극을 설치한 후 지하에 인공적으로 전류를 흘려보내고 이때 심도에 따라 다르게 나타나는 전기비저항 값의 변화를 측정하여 지하의 구조를 더욱 상세하게 파악하는 방법이

다(Yi *et al.*, 2000). 이러한 전기비저항 값의 결과는 토양 입자크기의 분포, 광물학적 조성, 공극률과 공극간의 연결성, 수분함량, 온도, 유체의 이온농도 등의 변수들에 의하여 결정된다(Samouëlian *et al.*, 2005). 또한 전기비저항 탐사의 결과는 지질 매체의 밀도와 연관 지어 설명할 수 있기 때문에 본 연구에서는 부지 내 포화대 구역을 대상으로 실시된 전기비저항 탐사결과를 바탕으로 모델을 설정하는데 있어서 보다 세분화된 매질의 설정을 수행하였다. 포화대의 전기비저항 탐사 결과 값의 전반적인 분포범위는 1.50~3,300 ohm-m 이내로 나타났으며 연두색으로 나타난 구간(약 600 ohm-m)이 가장 많이 분포 하는 것을 볼 수 있다(그림 3a, 3b, 3c, 3d, 3e, 3f). 포화대 영역의 전기비저항 값은 대체로 낮은 범위로 분포하였으며 특히 지하수 흐름의 하부 방향에 고비저항 이상대가 나타나는 것과 주입관정을 중심으로 북서쪽 방향으로 낮은 전기비저항대가 나타나는 것이 특징이다. 한편 포화대층에서 측정된 수리전도도 값을 바탕으로 모델 격자에 적용한 투과율($3.086 \times 10^{-13} \text{ m}^2$)을 계산하였고 이 값을 연두색을 띠는 전기비저항 값과 일치시키고 파랑(약 100 ohm-m), 하늘(약 200 ohm-m), 초록(약 240 ohm-m), 노랑(약 1,000 ohm-m), 빨강(약 3,000 ohm-m)의 총 6개의 종류로 나눈 뒤 연두색의 600 ohm-m을 기준으로 각 색깔의 비율을 투과율에 동일하게 설정하여 세분화하였으며 이를 모

텔 격자를 구성하는데 적용하였다(그림 3g, 3h, 3i, 3j). 전기비저항의 비율에 따른 투과율의 값은 표 4에 정리하였다.

3. 결과 및 토의

3.1 이산화탄소 플룸의 변화

모델 시뮬레이션 결과에서 얻은 pH 변화를 바탕

으로 시간에 따른 이산화탄소 플룸 변화 양상을 확인하여 실제 EIT 부지 포화대 내 주입된 이산화탄소가 어떻게 확산되는지 예측하였다. 포화대 구역에서 진행된 전기비저항 탐사 결과 도면을 살펴보면 주입정이 위치한 영역 및 주입이 이루어지는 22~25 m 구간에 상대적으로 높은 비저항대가 분포하는 것을 볼 수 있다. 또한 BS-6과 BS-9 모니터링 관정 주변으로 상대적으로 낮은 전기비저항대가 분포하며 지하

Table 4. Vertical and horizontal permeabilities obtained from electrical resistivity survey.

	Blue	Sky	Green	Light green	Yellow	Red
XY permeability (m ²)	1.76×10 ⁻¹²	9.23×10 ⁻¹³	7.73×10 ⁻¹³	3.09×10 ⁻¹³	1.86×10 ⁻¹³	6.18×10 ⁻¹⁴
Z permeability (m ²)	3.52×10 ⁻¹³	1.85×10 ⁻¹³	1.55×10 ⁻¹⁴	6.18×10 ⁻¹⁴	3.72×10 ⁻¹⁴	1.24×10 ⁻¹⁴

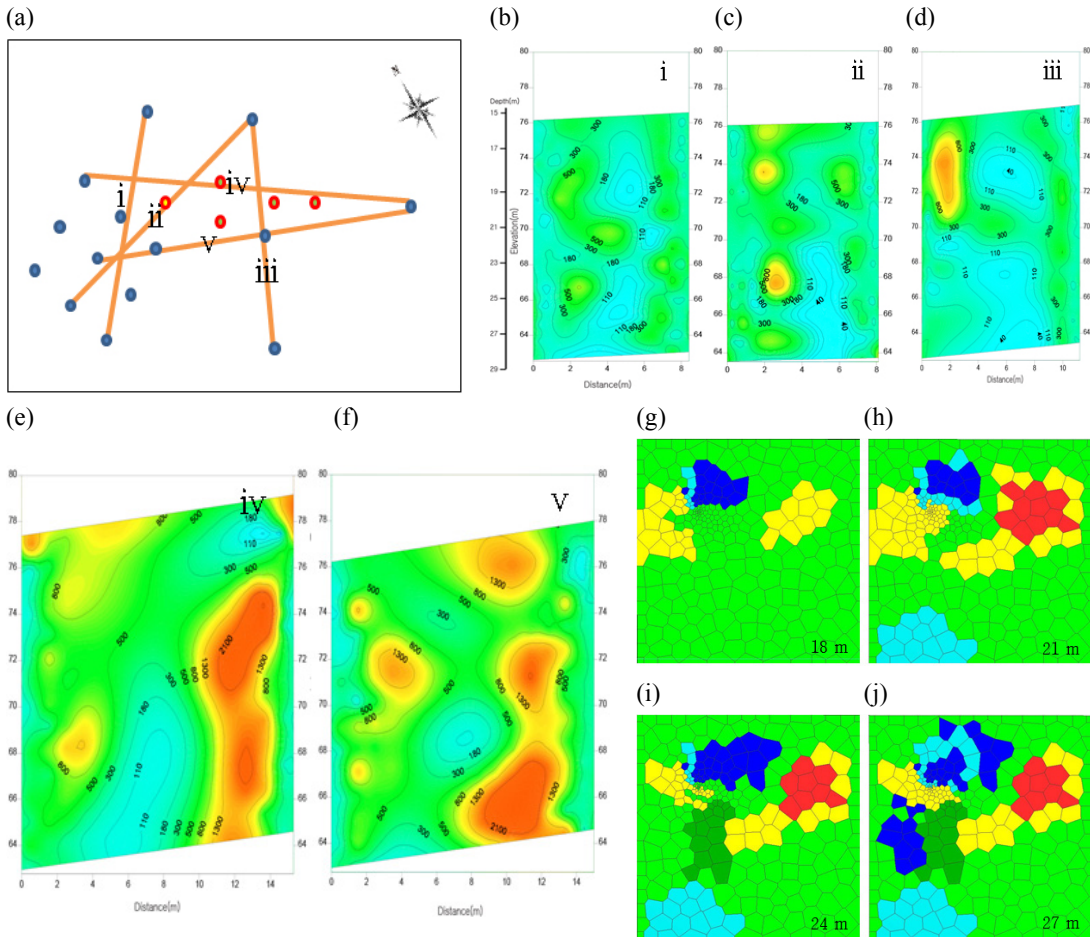


Fig. 3. (a) The 2-D electrical resistivity survey lines. The results of each line: (b) Line i, (c) Line ii, (d) Line iii, (e) Line iv, and (f) Line v. Model domains of each depth formulated via reflecting the results of 2-D electrical resistivity survey: (g) 18 m, (h) 21 m, (i) 24 m, and (j) 27 m.

수 흐름의 하부 및 BS-10 모니터링 관정이 위치한 구역에는 고비저항 이상대가 분포함을 볼 수 있다. 이러한 결과를 토대로 모델 격자의 투과율을 달리 설정하였고 이에 따른 pH의 변화 양상을 그림 4에 도시하였다. 주입이 이루어지는 5시간과 주입이 종료된 후 150일간의 결과를 심도 23 m의 단면도(그림 4a, 4b, 4c, 4d)에서 보면 주입 초기에는 일정한 방향으로 확산되는 분포 양상을 보이거나 시간이 지남에 따라서 북동쪽 방향으로 퍼져나감을 볼 수 있는데 이는 지하수의 흐름 방향과 상대적으로 낮은 전기비저항을 갖는 즉, 큰 투과율을 갖는 매질을 따라 우선적으로 확산되는 것으로 판단된다. 플룸이 지하수의 흐름 방향으로 확산될 것이라는 예상과는 달리 주입정과 가장 가까운 거리에 위치하는 SMW-2 관정에는 플룸이 주입과 동시에 도달함을 볼 수 있지만 주입정으로부터 상대적으로 가깝고 지하수 흐름방향에 위치한 SMW-1, SMW-3, BS-8 관정에는 플룸이 예상보다 적게 영향을 미치는 것으로 관찰된다. 반면에 BS-9 관정은 주입 후 100일 이후부터 서서히 이산화탄소 플룸의 영향을 받는 것으로 보인다. 심도별로 이산화탄소 플룸의 확산 양상을 파악하기 위하여 3차원 도면을 확인한 결과 플룸은 주입이 이루어지는 심도 23 m에서 가장 넓게 퍼져나갔으며 수직으로는 최대 19.5 m까지 상승함을 볼 수 있다(그림 4e, 4f, 4g, 4h). 이에 지하수면 근처인 15 m 부근에서는 플룸이 거의 도달하지 못하는 것으로 판단된

다. 이는 주입형태에 따른 영향으로 기체상으로 주입된 이산화탄소는 부력의 영향으로 상부로 확산하려는 힘이 강하지만 본 연구에서처럼 용존상으로 주입된 이산화탄소는 밀도와 비중의 차이에 의하여 상부로 확산하려는 힘이 상대적으로 작기 때문이라 판단된다(Class *et al.*, 2009).

3.2 pH의 변화

이산화탄소 주입에 따른 pH의 변화를 주입관정과 주입관정으로부터 약 2.5 m 그리고 5 m 떨어진 SMW-2 관정과 BS-9 관정을 선택하여 관찰하였다. 이에 대한 결과를 그림 5에 도시하였다. 실제 현장 데이터는 100일 이후에 반등하는 결과를 보이지만 그 경향성은 어느 정도 일치하게 나타나는 것을 볼 수 있다. 주입관정에서는 이산화탄소 주입수의 주입과 동시에 초기 pH인 6.7에서 5.7까지 급격하게 감소함을 보였고 이후 플룸이 북동쪽으로 퍼져나감으로서 점차 상승하는 양상을 보인다(그림 5a). SMW-2 관정에서는 주입 후 약 40일부터 플룸이 도달하여 pH가 약 6.0까지 감소함을 보인다(그림 5b). 이는 이산화탄소 플룸이 이동하는 동안 발생하는 희석작용의 영향으로 주입관정에서의 pH가 5.7만큼 낮게 감소하지 않는 것으로 판단된다. 또한 BS-9 관정에서는 약 120일 후부터 pH의 변화가 발생하는데 그 변화폭은 크지 않은 것으로 나타났다(그림 5c). 이는 120일 동안 희석작용이 더욱 많이 발생하였음을 판

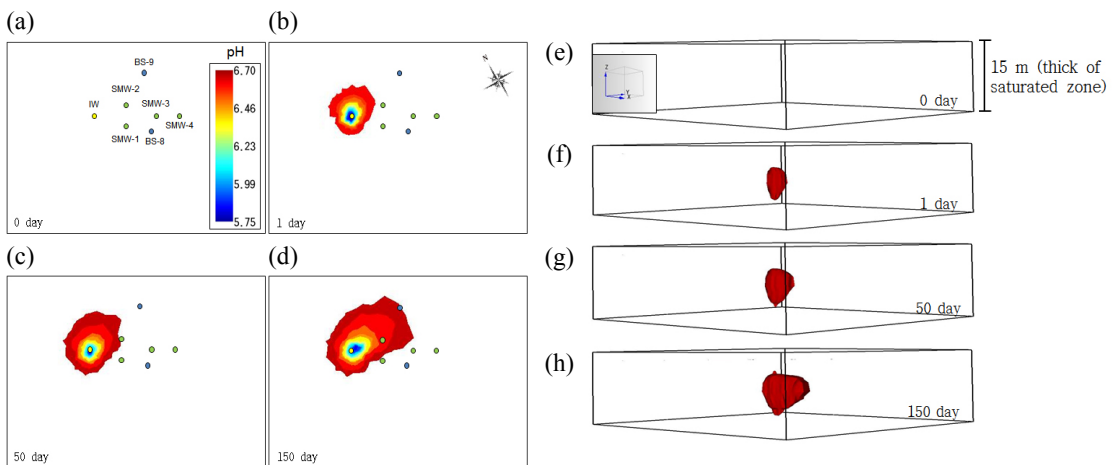


Fig. 4. Spatial distribution of pH at the depth of 23 m after the CO₂ injection. (a, e) 0 day, (b, f) 1 day, (c, g) 50 days, and (d, h) 150 days.

단할 수 있다. 주입관정과 SMW-2 관정에서의 실제 측정데이터와 모델링결과 데이터는 그 경향성이 일치하는 것으로 나타나는 것에 반해 BS-9에서의 결과는 다소 차이가 보인다. 이러한 이유는 SMW-2 관정과 BS-9 관정의 현장측정 데이터의 경향성이 거의 일치하게 나타나는 것으로 보아 실제 이산화탄소는 모델링 결과보다 빠른 속도로 북동쪽방향으로 퍼져나감을 예상할 수 있다.

3.3 지하수 수질의 변화

장기간의 모델링을 수행하기 앞서 모델의 신뢰도를 높이기 위하여 주입정을 중심으로 이루어진 단기

간의 모델링 결과와 실제 부지에서 진행된 이온 분석 결과를 비교하여 그림 6에 제시하였다. 300일 동안의 단기간 모델링 결과와 120일 동안 수행된 이온 분석 결과가 어느 정도 경향성이 일치하는 것을 확인하였고 이것을 바탕으로 1000년간 물-암석-이산화탄소간의 반응을 고찰하였다.

이산화탄소 주입에 따른 지하수 수질의 시간적 변화양상을 그래프로 도시하여 (그림 7)에 나타내었다. 먼저 Ca^{2+} 의 농도는 주입과 동시에 급격하게 상승하는데 Ca^{2+} 를 포함하는 광물인 회장석이 이산화탄소 주입에 따른 pH 감소에 의하여 용해되어 Ca^{2+} 를 공급한 것으로 판단된다(그림 7a). 또한 이산화탄소 주입 종료 후 약 200년 이후부터 1000년까지 Ca^{2+} 농도가 소량 감소하는 양상을 보이는데 이는 회장석의 재침전에 따라 소모된 것으로 사료된다. Na^+ 는 이산화탄소 주입 후 1000년 동안 농도가 계속해서 상승함을 볼 수 있다(그림 7b). 이는 조장석과 해록석(glaucanite)에 포함되어있는 Na^+ 가 낮아진 pH의 조건하에 발생하는 광물의 용해에 의하여 공급되는 것으로 판단되고 이후 Na^+ 를 포함하는 이차광물의 침전이 발생하지 않기 때문에 물속에 용존상으로 존재하게 되어 그 농도가 계속해서 증가하는 것으로 판단된다. HCO_3^- 의 농도는 탄산염광물로서 침전되는 방해석의 농도와 연관이 있으며 방해석이 침전되는 초기에는 농도가 급격히 감소하다가 주입 후 약 100년 후 부터는 서서히 증가하는 것으로 나타났다(그림 7c). K^+ 는 정장석(K-feldspar)과 해록석이 낮아진 pH 조건에서 용해되어 농도가 증가하는 것으로 판단되며(그림 7d) Mg^{2+} 는 초기농도에서 100년까지 급격히 감소하여 100년 이후에는 거의 0에 가까운 농도 값을 보인다(그림 7e). 이는 녹니석의 용해로부터 방출되는 Mg^{2+} 가 곧바로 백운석과 일라이트의 침전으로 소모됨을 의미한다. 또한 AlO_2^- 은 이산화탄소 주입을 포함한 전체기간동안 꾸준히 상승하는 양상을 보이는데 이는 정장석, 조장석 등 AlO_2^- 을 포함하는 규산염 광물의 지속적인 용해로부터 공급됨을 확인할 수 있다(그림 7f). 또한 SiO_2 의 농도는 초기 석영의 침전에 의한 급속한 농도 감소가 나타나며 이후 석영을 제외한 규산염 광물의 용해로부터 SiO_2 가 공급되어 그 농도가 증가하며 이후 회장석의 재침전에 의한 SiO_2 의 소모로 점차 감소하는 것으로 판단된다(그림 7g).

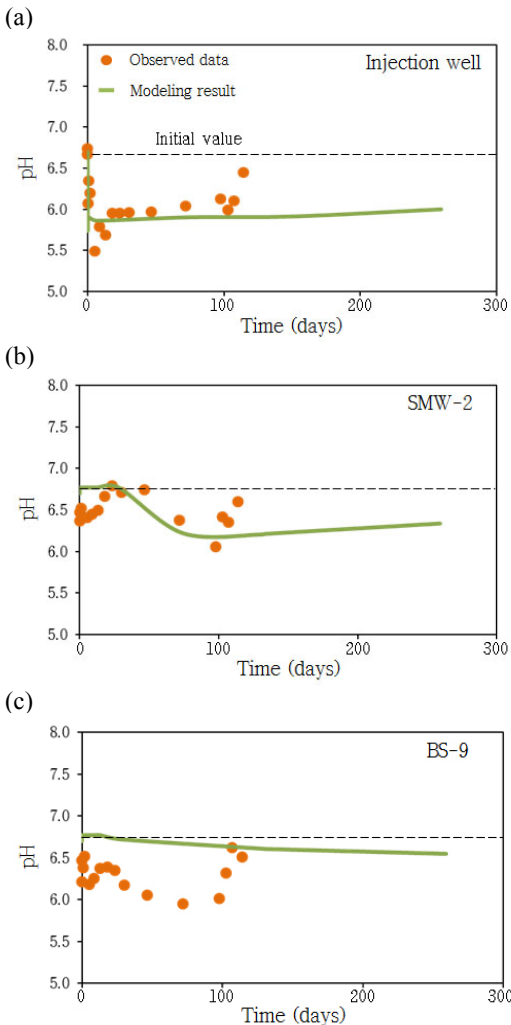
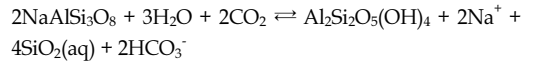


Fig. 5. Temporal distribution of pH. (a) Injection well and two monitoring wells, (b) SMW-2, and (c) BS-9.

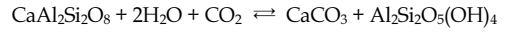
3.4 광물학적 변화

포화대 지층 내 기존에 존재하는 일차광물들의 시간에 따른 체적 분율 변화를 그림 8에 도시하였다. 광물의 체적 분율은 공극률의 증가 및 감소에 영향을 미치며 각 광물의 부피비를 총 고형물의 부피비로 나눈 값으로 계산된다(Xu *et al.*, 2004a). 일반적으로 지층 내 이산화탄소를 주입하였을 때 일차광물과 물과 이산화탄소간의 반응은 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

조장석(albite) :



회장석(anorthite) :



녹니석(chlorite) :

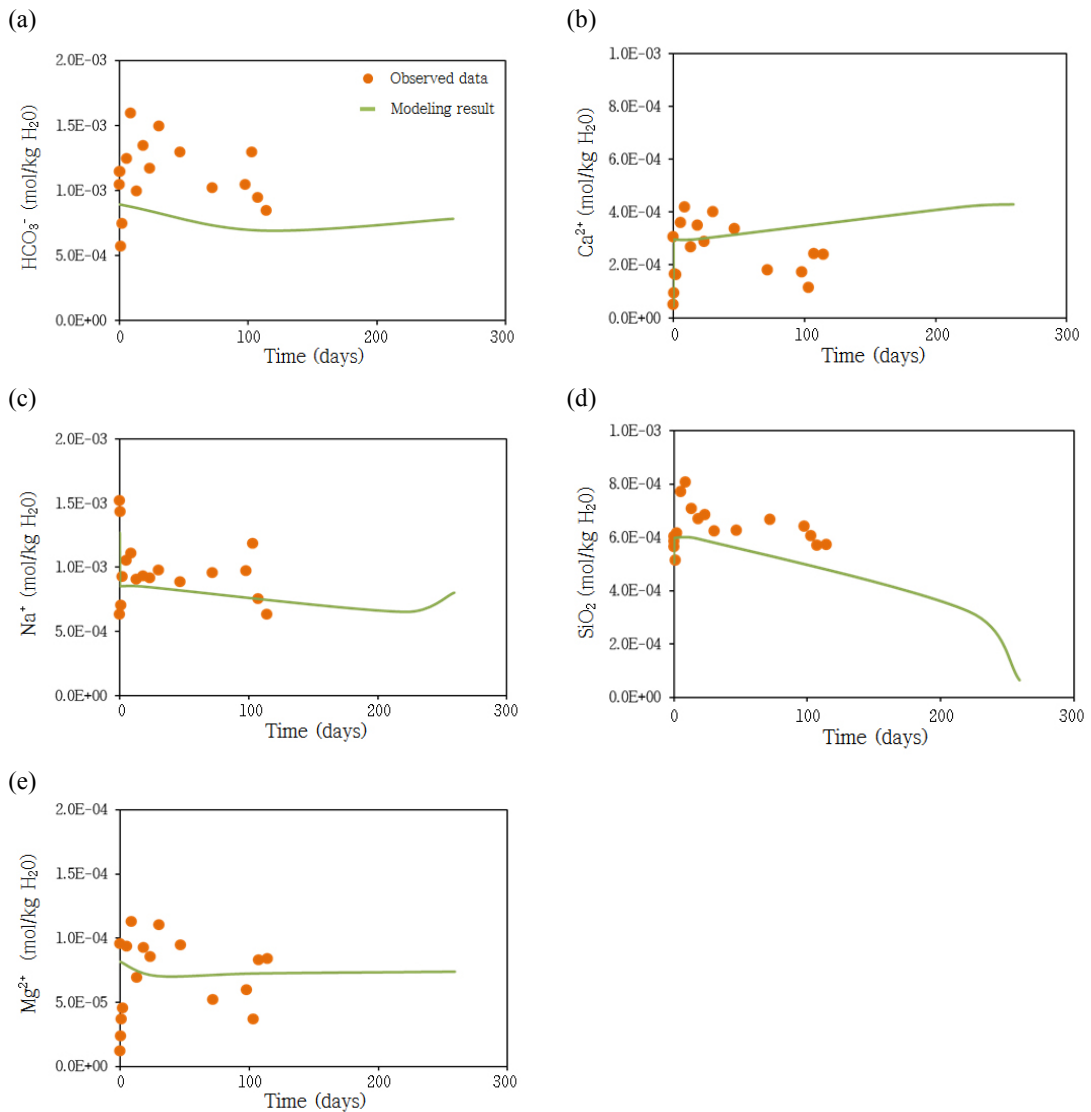
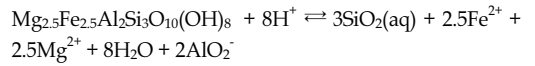


Fig. 6. Comparison of the concentrations of different chemical constituents between field measurements and simulation results during a relatively shorter period. (a) HCO_3^- , (b) Ca^{2+} , (c) Na^+ , (d) SiO_2 , and (e) Mg^{2+} .

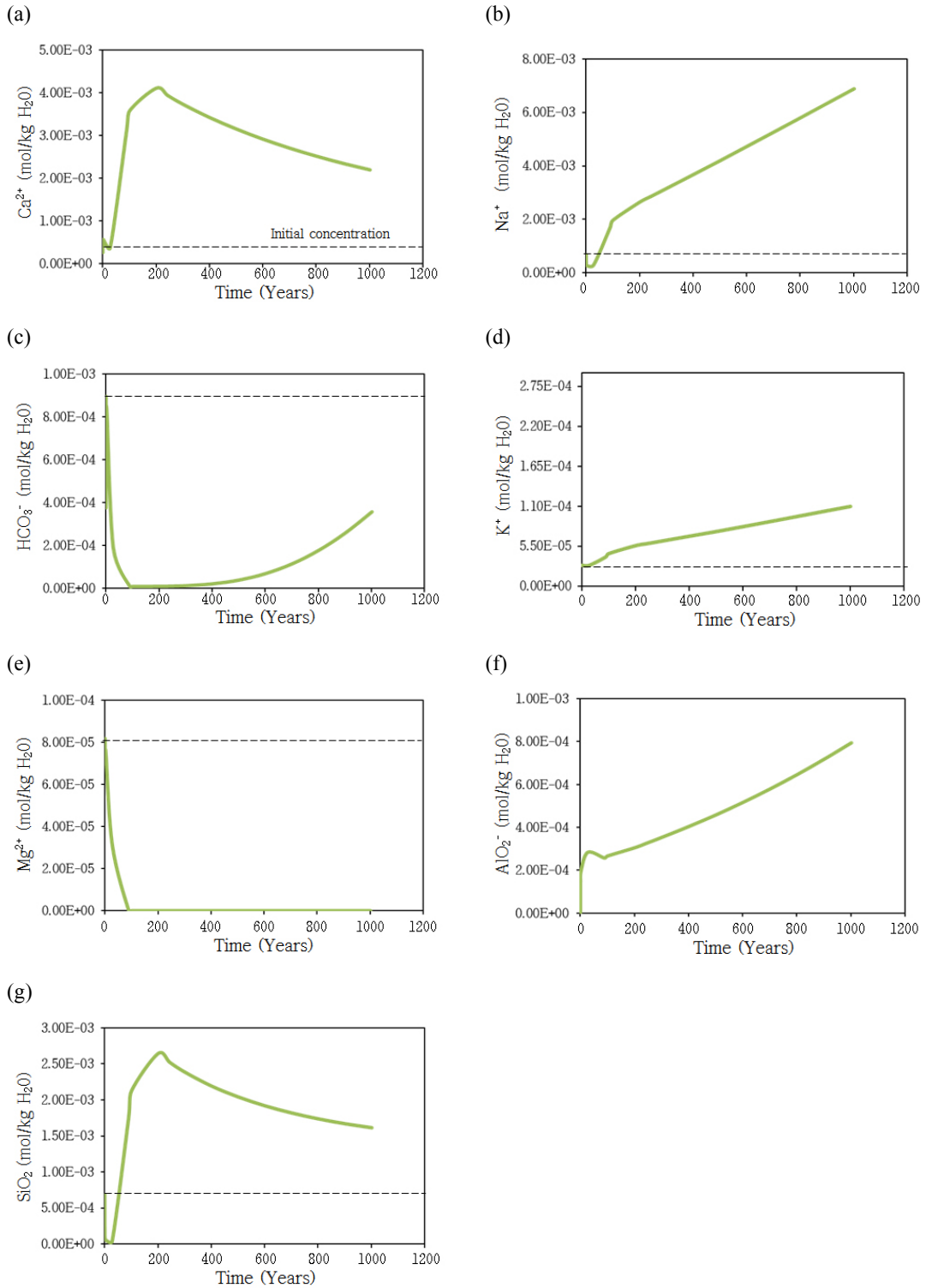


Fig. 7. Comparison of the concentrations of different chemical constituents between field measurements and simulation results during a relatively longer period. (a) Ca^{2+} , (b) Na^+ , (c) HCO_3^- , (d) K^+ , (e) Mg^{2+} , (f) AlO_2^- , and (g) SiO_2 .

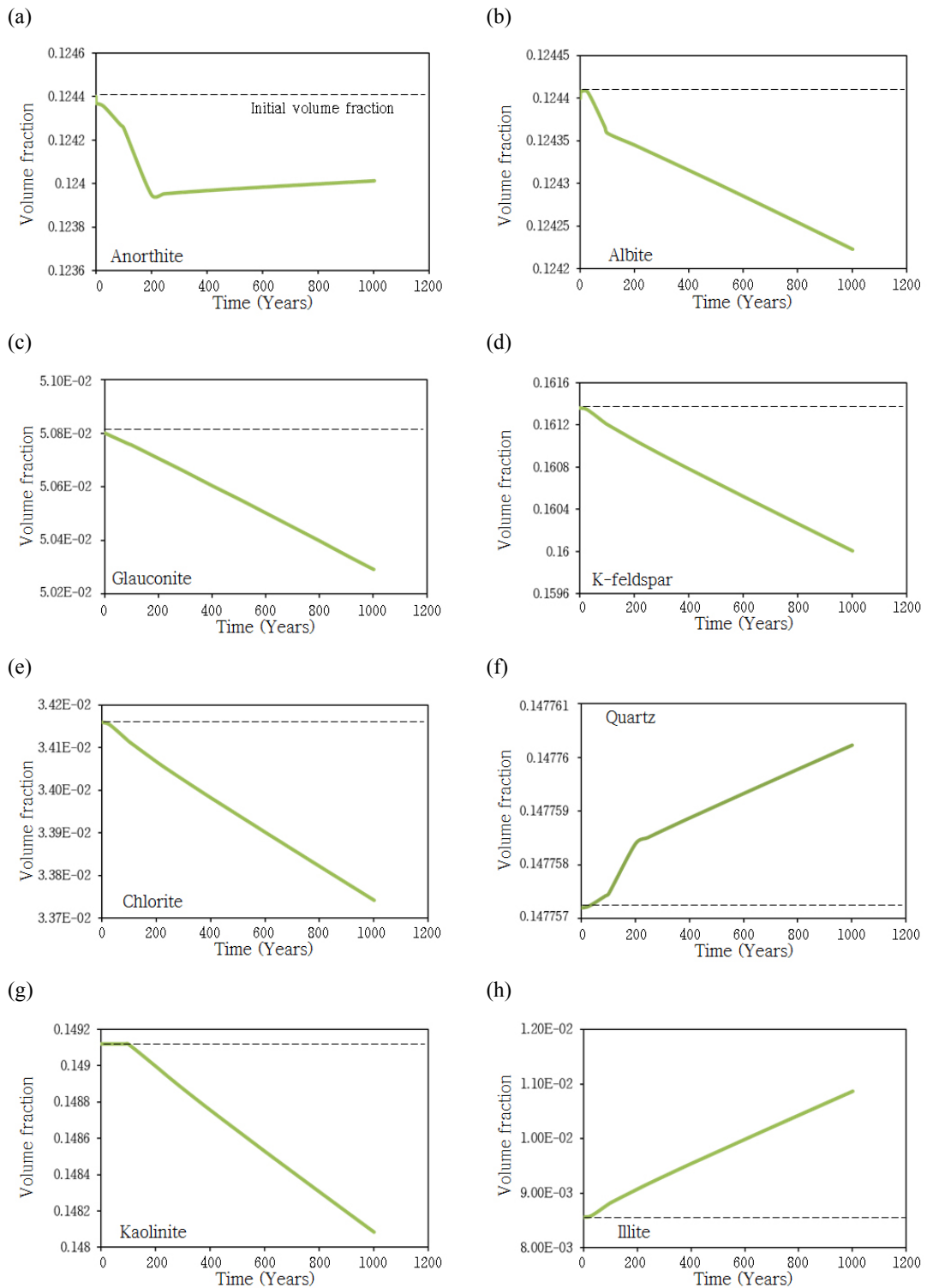
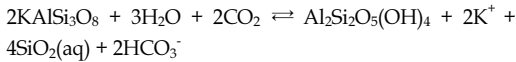
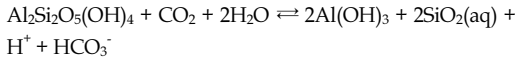


Fig. 8. Changes in the volume fraction of different minerals obtained from the model simulations during a relatively longer period. (a) Anorthite, (b) Albite, (c) Glauconite, (d) K-feldspar, (e) Chlorite, (f) Quartz, (g) Kaolinite, and (h) Illite.

정장석(K-feldspar) :

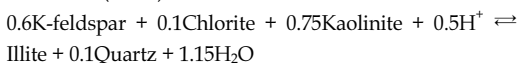


카올리나이트(kaolinite) :



먼저 회장석은 이산화탄소의 주입에 의하여 발생하는 낮은 pH 조건하에 용해되어 Ca^{2+} 의 공급원으로서 역할을 하며 이는 방해석과 백운석의 침전에 영향을 미치게 된다(그림 8a). 조장석은 낮은 pH 조건하에 지속적으로 용해되어 물속에 용존상의 Na^+ 를 공급하며(그림 8b) 해록석(glaucanite) 또한 1000년 동안 지속적으로 용해되며 소량의 Na^+ 및 K^+ 와 AlO_2^- 을 공급하는 것으로 확인하였다(그림 8c). 정장석(K-feldspar) 및 녹니석 또한 모사 기간 동안 지속적으로 용해되어 K^+ 와 Mg^{2+} 을 방출하는 것을 확인하였다(그림 8d, 8e). 녹니석에서 공급되는 Mg^{2+} 는 백운석의 침전에 영향을 미치는 것으로 판단된다. 석영은 주입 이후 1000년 동안 지속적으로 침전됨을 확인하였는데 이러한 결과는 일차광물로서 설정된 조장석의 용해나 일라이트와 같은 이차광물의 침전으로부터 발생하는 것으로 판단할 수 있다(그림 8f). 카올리나이트는 일반적으로 조장석과 회장석 그리고 정장석의 용해로부터 침전하는 것으로 알려져 있는데(Xu *et al.*, 2006; Tian *et al.*, 2015) 본 모델링 결과에서는 초기 100년 동안은 큰 변화가 관찰되지 않다가 100년 후부터 체적 분율이 감소하는 것을 볼 수 있다(그림 8g). 이러한 차이가 발생하는 이유는 초기에 일차광물로서 존재한 카올리나이트가 낮은 pH 조건하에 용해되고 일라이트의 침전에 AlO_2^- 의 공급원으로서 기여하기 때문이라고 판단하였다(Xu *et al.*, 2004a; Choi *et al.*, 2017). 일라이트는 모사 기간 동안 지속적으로 침전되는 것을 확인하였는데(그림 8h) 일라이트의 침전은 다음과 같은 식으로 정의할 수 있다.

일라이트(illite) :



위의 식과 같이 일라이트는 정장석과 녹니석 및

카올리나이트로부터 공급되는 K^+ 와 Mg^{2+} 그리고 AlO_2^- 을 소모하여 침전하게 된다(Xu *et al.*, 2014; Wan *et al.*, 2017).

3.5 탄산염 광물의 변화

본 연구에서 이차적으로 침전하여 생성될 수 있으리라 판단되는 이차 탄산염광물은 방해석과 백운석 그리고 마그네사이트이다. 이에 대한 시간적 체적 분율 변화를 보면 먼저 방해석은 주입과 동시에 급격하게 상승하여 약 100년 후에 최대값을 나타내며 이후에 서서히 그 체적 분율이 감소함을 보인다(그림 9a). 이는 Ca^{2+} 의 공급원인 회장석의 재침전에 의한 Ca^{2+} 이온의 소모 때문으로 판단된다. 백운석은 주입 초기의 100년 동안 급속도로 침전 및 용해 과정을 거쳐 100년 이후로는 체적 분율이 거의 0에 가까운 것을 볼 수 있는데(그림 9b) 이러한 결과는 초기 방해석의 침전으로 소모되는 Ca^{2+} 와 일라이트의 침전에 의하여 소모되는 Mg^{2+} 의 영향으로 더 이상 백운석의 침전이 발생하지 않는 것으로 판단된다. 또한 마그네사이트는 그래프로 도시하지는 않았지만 모든 기간에 걸쳐 침전이나 용해작용이 발생하지 않는 것으로 나타났다. 이것은 앞서 언급한 바와 같이 녹니석의 용해로부터 방출되는 Mg^{2+} 가 일라이트의 침전에 소모되기 때문에 침전이 불가능한 것으로 판단하였다. 본 연구에서 이루어진 탄산염 광물 형태의 광물학적 포획기작은 이산화탄소의 광물로의 격리 용량을 나타내는 $\text{smCO}_2(\text{CO}_2 \text{ sequestered in minerals})$ 의 값에서 나타난 바와 같이 방해석의 용해 및 침전 양상과 거의 흡사하게 나타나는 것으로 미루어보아 방해석의 형태로 광물학적 포획이 발생함을 나타내며 그 양은 최대 $0.9\text{E-}05 \text{ kg/m}^3$ 으로 아주 소량인 것을 확인하였다(그림 9c). 또한 이산화탄소 주입에 따른 일차광물의 용해가 우세하게 일어남에 따라 공극률이 증가하는 것으로 판단된다(그림 9d).

4. 결론

본 연구에서는 천부대수층을 대상으로 주입된 이산화탄소의 단기간의 유동과 장기간의 수리지구학적 변화를 고찰하기 위하여 다차원-다상 수리화학적 수치 모델링을 수행하였다. 또한 보다 세밀한 매질의 특성을 반영하기 위하여 전기비저항 탐사 결과

를 모델 격자의 구성에 반영하였다. 먼저 단기간 모델링 결과 이산화탄소의 플룸은 지하수의 흐름방향인 남동쪽방향으로 확산될 것이라는 예상과는 달리 북동쪽으로 확산되는 양상을 관찰할 수 있는데 이것은 지하수 흐름방향의 하부에 존재하는 고비저항 이상대와 주입정으로부터 북쪽으로 분포하고 있는 상대적으로 낮은 전기비저항대의 영향으로 판단하였다. 또한 수리지구화학적 모델링 결과 실제 현장에 주입된 이산화탄소의 영향에 따른 수리화학적 분석 결과와 그 경향성이 일치함을 확인하여 모델의 신뢰성을 확보하였으며 이를 바탕으로 장기간의 수치모의를 수행하였다. 장기간의 모델링 결과 조장석, 회장석, 정장석, 녹니석, 해록석 및 카올리나이트 같은 일차 광물은 이산화탄소의 주입과 이에 따른 pH의 감소로 인하여 모델링 기간 동안 지속적으로 용해됨을 확인하였고 이러한 규산염 광물의 용해로 인하여 석영이 침전함을 확인하였으며 정장석과 녹니석으로부터 방출된 K⁺, Mg²⁺에 의하여 일라이트가 침전됨을 판단하였다. 본 연구에서 탄산염 형태로 이산

화탄소를 포획한 광물은 방해석과 백운모로 판단이 되는데 먼저 백운모는 모델링 기간 초기에 급격한 침전과 용해반응을 보였으며 이후 체적 분율은 거의 0에 가까운 값을 나타내는데 이것은 일라이트의 침전으로 인하여 소모되는 Mg²⁺의 영향 때문인 것으로 판단된다. 그리고 방해석은 회장석의 용해로부터 공급되는 Ca²⁺의 영향에 의하여 소량 침전되며 주입 후 100년 이후에는 체적 분율의 감소를 보인다. 이것은 100년 후부터 회장석의 재침전으로 인하여 Ca²⁺를 소모하기 때문이라고 판단하였다. 이산화탄소의 광물학적 포획을 정량적으로 나타내는 smCO₂의 그래프는 방해석과 그 경향성이 같음을 확인할 수 있는데 이를 미루어 보아 본 연구에서의 이산화탄소의 광물학적 포획은 방해석의 형태로써 저장되는 것이라 판단하였다. 이러한 연구 결과들은 장기간의 이산화탄소 지중 저장에 있어서 그 효율성과 저장 기간에 있어서 지질 매체의 물리 화학적 특성 및 저장층 내의 광물조성과 지하수의 수질 조성이 중요한 매개변수로 작용함을 시사한다.

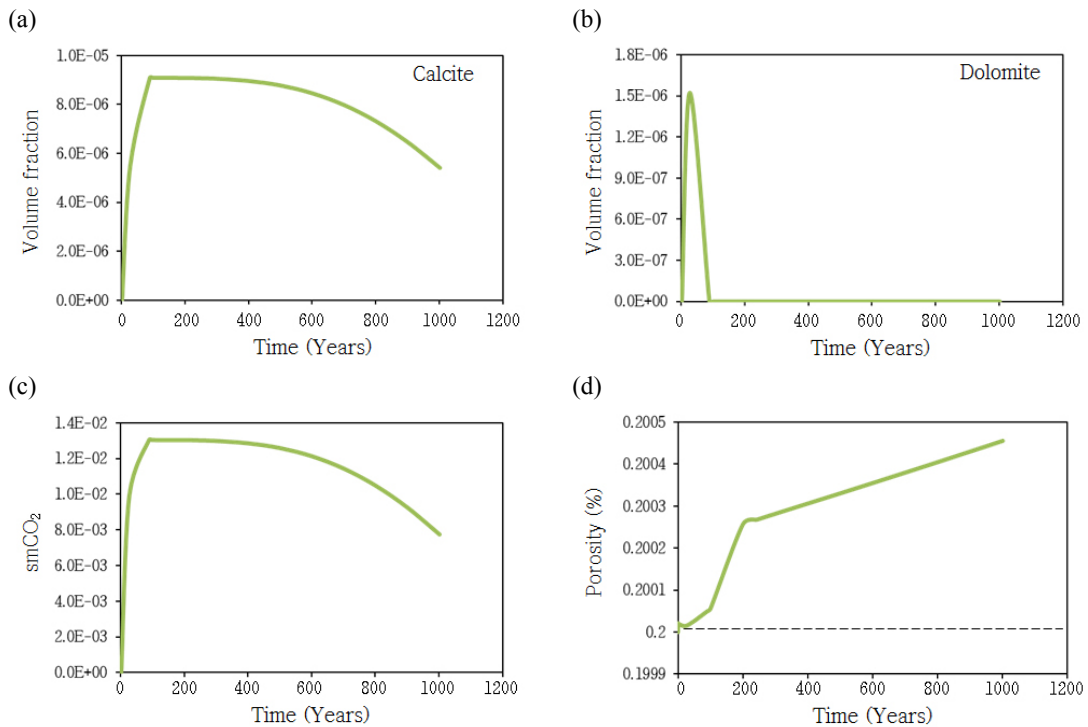


Fig. 9. Results of model simulations for a relatively longer period. Changes in the volume fraction of carbonate minerals: (a) Calcite and (b) Dolomite. (c) Changes in the amount of CO₂ sequestered by mineral trapping (smCO₂). (d) Changes in the porosity.

사 사

본 연구는 환경부(한국환경산업기술원)의 “K-COSEM 연구센터(과제번호 2014001 810001)”의 지원과 한국지질자원연구원 주요사업(GP2017-027)의 부분적인 지원에 의해 수행되어졌다.

REFERENCES

- Choi, B.Y., Chae, G.T., Kim, K.H., Koh, Y.K. and Yun, S.T., 2009, Application of conceptual reactive transport modeling to geologic CO₂ sequestration. *Journal of the Geological Society of Korea*, 45(1), 55-67 (in Korean with English abstract).
- Choi, B.Y., Park, Y.C., Shinn, Y.J., Kim, K.Y., Chae, G.T. and Kim, J.C., 2015a, Preliminary results of numerical simulation in a small-scale CO₂ injection pilot site: 1. Prediction of CO₂ plume migration. *Journal of the Geological Society of Korea*, 51(5), 487-496 (in Korean with English abstract).
- Choi, B.Y., Shinn, Y.J., Park, Y.C. and Park, J.Y., 2015b, Preliminary results of numerical simulation in a small-scale CO₂ injection pilot site: 2. Effect of SO₂ impurity on CO₂ storage. *Journal of the Geological Society of Korea*, 51(5), 497-509 (in Korean with English abstract).
- Choi, B.Y., Shinn, Y.J., Park, Y.C., Park, J.Y., Kwon, Y.K. and Kim, K.Y., 2017, Simulation of CO₂ injection in a small-scale pilot site in the Pohang Basin, Korea: Effect of dissolution rate of chlorite on mineral trapping. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 59, 1-12.
- Choi, B.Y., Yun, S.T., Kim, K.H., Choi, H.S., Chae, G.T. and Lee, P.K., 2014, Geochemical modeling of CO₂-water-rock interactions for two different hydrochemical types of CO₂-rich springs in Kangwon District, Korea. *Journal of Geochemical Exploration*, 144, 49-62.
- Choi, H.S., Koh, Y.K., Kim, C.S., Bae, D.S. and Yun, S.T., 2000, Environmental isotope characteristics of CO₂-rich water in the Kangwon province. *Economic and Environmental geology*, 33(6), 491-504 (in Korean with English abstract).
- Choi, H.S., Koh, Y.K., Yun, S.T. and Kim, C.S., 2002, Geochemical study on the mobility of dissolved elements by rock-CO₂-rich waters interaction in the Kangwon province. *Economic and Environmental geology*, 35(6), 533-544 (in Korean with English abstract).
- Class, H., Edigbo, A., Helmig, R., Dahle, H.K., Nordbotten, J.M., Celia, M.A., Audigane, P., Darcis, M., Ennis-King, J., Fan, Y., Flemisch, B., Gasda, S.E., Jin, M., Krug, S., Labregere, D., Naderi, B.A., Pawar, R.J., Sbaji, A., Thomas, S.G., Trenty, L. and Wei, L., 2009, A Benchmark study on problems related to CO₂ storage in geologic formations: Summary and discussion of the results. *Computational Geosciences*, 13(4), 409-434.
- Holloway, S., 1997, An overview of the underground disposal of carbon dioxide. *Energy Conversion and Management*, 38, 193-198.
- IPCC, 2005, IPCC Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage. Prepared by Working Group III of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Metz, B., O. Davison, H.C. de Coninck, M. Loos, and L.A. Meyer (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 195-276.
- Jeong, C.H., 2004, Hydrochemistry and formation environment of CO₂-rich springs from the Kangwon province. *Journal of the Mineralogical Society of Korea*, 17(1), 61-73 (in Korean with English abstract).
- Jeong, C.H., Yoo, S.W., Kim, K.H. and Nagao, K., 2011, Hydrochemistry and origin of noble gases and CO₂ gas within carbonated mineral waters in the Kyeoungbuk-Kangwon province, Korea. *The Journal of Engineering Geology*, 21(1), 65-77 (in Korean with English abstract).
- Jun, S.C., Cheon, J.Y., Yi, J.H. and Yun, S.T., 2017, Controlled release test facility to develop environmental monitoring techniques for geologically stored CO₂ in Korea. *Energy Procedia*, 114, 3040-3051.
- Kihm, J.H., Kim, J.M. and Wang, S.K., 2009, Numerical simulation of impacts of mineralogical compositions on efficiency and safety of geologic storage of carbon dioxide in deep sandstone aquifers. *Journal of the Geological Society of Korea*, 45(5), 493-516 (in Korean with English abstract).
- Koh, Y.K., Kim, C.S., Choi, H.S., Park, M.E. and Bae, D.S., 2000, Geochemical studies of CO₂-rich mineral water in the Kangwon province. *Journal of the Geological Society of Korea*, 7(2), 73-88 (in Korean with English abstract).
- Lasaga, A.C., 1995, Fundamental approaches in describing mineral dissolution and precipitation rates. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 31, 23-86.
- Lassen, R.N., Plampin, M., Sakaki, T., Illangasekare, T., Gudbjerg, J., Sonnenborg, T. and Jensen, K.H., 2015, Effects of geologic heterogeneity on migration of gaseous CO₂ using laboratory and modeling investigations. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 43, 213-224.
- Lee, S.H., Kim, J.M. and Kihm, J.H., 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, 51(2), 191-202 (in Korean with English abstract).
- Liu, F., Lu, P., Zhu, C. and Xiao, Y., 2011, Coupled reactive flow and transport modeling of CO₂ sequestration in the Mt. Simon sandstone formation, Midwest USA. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 5, 294-307.
- Palandri, J.L. and Kharaka, Y.K., 2004, A compilation of rate parameters of water-mineral interaction kinetics for application to geochemical modeling. U.S. Geological Survey. Open File Report 2004-1068.
- Parkhurst, D.L. and Appelo, C., 1999, User's guide to PHREEQC (Version 2): A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations. U.S. Geological Survey, Water-Resources Investigation Report 99-4259.
- Pruess, K., Oldenburg, C. and Moridis, G., 1999, TOUGH2 User's Guide, Version 2. LBNL-43134, Lawrence Berkeley National Laboratory, CA.
- Pruess, K. and Spycher, N., 2007, ECO2N-A fluid property module for the TOUGH2 code for studies of CO₂ storage in saline aquifers. *Energy Conversion and Management*, 48, 1761-1767.
- Qafoku, N.P., Lawter, A.R., Shao, H., Wang, G. and Brown, C.F., 2014, Evaluating impacts of CO₂ gas intrusion into a confined sandstone aquifer: experimental Results. *Energy Procedia*, 63, 3275-3284.
- Samouëlian, A., Cousin, I., Tabbagh, A., Bruand, A. and Richard, G., 2005, Electrical resistivity survey in soil science: a review. *Soil and Tillage Research*, 83, 173-193.
- Soulis, E., Snelgrove, K., Kouwen, N., Seglenieks, F. and Versegny, D., 2000, Towards closing the vertical water balance in Canadian atmospheric models: coupling of the land surface scheme CLASS with the distributed hydrological model WATFLOOD. *Atmosphere-Ocean*, 38, 251-269.
- Tian, H., Xu, T., Li, Y., Yang, Z. and Wang, F., 2015, Evolution of sealing efficiency for CO₂ geological storage due to mineral alteration within a hydrogeologically heterogeneous caprock. *Applied Geochemistry*, 63, 380-397.
- Wan, Y., Du, S., Lin, G., Zhang, F. and Xu, T., 2017, Experimental and numerical simulation study of the mineral sequestration mechanism of the Shiqianfeng saline aquifers in the Ordos Basin, Northwest China. *Environmental Earth Sciences*, 76, 43.
- Wolery, T.J. and Daveler, S.A., 1992, EQ6, a computer program for reaction path modeling of aqueous geochemical systems: theoretical manual, user's guide and related documentation (Version 7.0). Lawrence Livermore Laboratory, University of California Livermore, CA.
- Xu, T., John, A.A. and Pruess, K., 2004a, Numerical simulation of CO₂ disposal by mineral trapping in deep aquifers. *Applied Geochemistry*, 19, 917-936.
- Xu, T., Sonnenthal, E., Spycher, N. and Pruess, K., 2004b, TOUGHREACT User's Guide: A simulation Program for Non-isothermal Multiphase Reactive Geochemical Transport in Variably Saturated Geologic Media. Earth Science Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California, Berkeley, CA 94720.
- Xu, T., Sonnenthal, E., Spycher, N. and Pruess, K., 2006, TOUGHREACT-A simulation program for non-isothermal multiphase reactive geochemical transport in variably saturated geologic media: Applications to geothermal injectivity and CO₂ geological sequestration. *Computers & Geosciences*, 36, 145-165.
- Xu, T., Yue, G., Wang, F. and Liu, N., 2014, Using natural CO₂ reservoir to constrain geochemical models for CO₂ geological sequestration. *Applied Geochemistry*, 43, 22-34.
- Yang, Q., Matter, J., Takahashi, T., Stute, M., O'Mullan, G., Clauson, K., Umemoto, K. and Goldberg, D., 2015, Groundwater geochemistry in bench experiments simulating CO₂ leakage from geological storage in the Newark Basin. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 42, 98-108.
- Yi, M., Kim, J., Song, Y. and Chung, S., 2000, Dam seepage investigation using two-and three-dimensional resistivity surveys. Proceedings of the 2nd special symposium, KSEG.
- Yun, J.A. and Kim, K.H., 2000, Geochemistry and stable isotopes of carbonated waters in south Korea. *Journal of the Korean Society of Groundwater Environment*, 7(3), 116-124 (in Korean with English abstract).

Received : August 9, 2017

Revised : September 8, 2017

Accepted : September 11, 2017