

Research Paper

인위적 CO₂ 누출에 따른 토양 CO₂ 플럭스와 농도의 시공간적 모니터링

김현준* · 한승현** · 김성준** · 윤현민** · 전성천*** · 손요환**

고려대학교 BK21 Plus 에코리더양성사업단*, 고려대학교 대학원 환경생태공학과**, (주)지오그린21***

Spatio-Temporal Monitoring of Soil CO₂ Fluxes and Concentrations after Artificial CO₂ Release

Hyun-Jun Kim* · Seung Hyun Han** · Seongjun Kim** ·
Hyeon Min Yun** · Seong-Chun Jun*** · Yowhan Son**

Korea University*,**
GeoGreen21 Co., Ltd.***

요약 : CCS (Carbon Capture and Storage)는 공업용 자원이나 에너지 기반의 자원으로부터 CO₂를 포집하여 고갈 유·가스전, 석탄층, 바다, 심부 대염수층 등에 저장하는 기술이다. 그러나 잠재적인 CO₂ 누출은 환경문제를 유발할 수 있기 때문에 저심도에서 CO₂의 누출을 검출할 수 있는 모니터링 기술이 필요하다. 따라서 본 연구는 인위적인 CO₂ 누출실험을 통해 지표면 부근에서 토양 CO₂가 확산되는 경향을 분석하고자 실시하였다. 시험대상지 “The Environmental Impact Evaluation Test Facility (EIT)”는 2015년에 충북 음성군 대소면에 설치되었다. 총 5개의 구역 중 2, 3, 4구역에서 약 34 kg CO₂/day/zone의 CO₂를 2015년 10월 26일부터 30일까지 주입하였다. CO₂ 플럭스는 LI-8100A를 이용하여 3구역의 누출구로부터 0m, 1.5m, 2.5m, 10m 지점의 지표면에서 11월 13일까지 매 30분마다 측정하였으며, CO₂ 농도는 GA5000을 이용하여 3개 구역의 누출구로부터 0m, 2.5m, 5.0m, 10m 지점의 15cm, 30cm, 60cm 깊이에서 11월 28일까지 1일 1회 측정하였다. CO₂ 플럭스는 누출시작 5일 후에 누출구로부터 0m 지점에서 확인되었으며 누출이 종료된 이후에도 11월 13일까지 계속 증가하였다. 2.5m, 5.0m, 10m 지점의 CO₂ 플럭스 간에는 유의한 차이를 보이지 않았다. 한편, CO₂ 농도는 인위적인 CO₂ 누출이후 둘째 날에 3구역의

First Author: Hyun-Jun Kim, BK21 Plus Eco-Leader Education Center, Korea University, Seoul 02841, Korea, Tel: +82-2-3290-4778, E-mail: hjkim0837@gmail.com

Corresponding Author: Yowhan Son, Dept. of Environmental Science and Ecological Engineering, Graduate School, Korea University, Seoul 02841, Korea, Tel: +82-2-3290-3015, E-mail: yson@korea.ac.kr

Co-Authors: Seung Hyun Han, Dept. of Environmental Science and Ecological Engineering, Graduate School, Korea University, Seoul 02841, Korea, Tel: +82-2-3290-3469, E-mail: aryian@naver.com

Seongju Kim, Dept. of Environmental Science and Ecological Engineering, Graduate School, Korea University, Seoul 02841, Korea, Tel: +82-2-3290-3469, E-mail: dao1129@hanmail.net

Hyeon Min Yun, Dept. of Environmental Science and Ecological Engineering, Graduate School, Korea University, Seoul 02841, Korea, Tel: +82-2-3290-3469, E-mail: chrisy1505@gmail.com

Seong-Chun Jun, GeoGreen21 Co., Ltd., Seoul 02841, Korea, Tel: +82-6330-2539, E-mail: sc-jun@daum.net

Received : 25 November, 2016. Revised: 3 March, 2017. Accepted: 3 March, 2017.

누출구로부터 0m 지점의 60cm 깊이에서 38.4%로 측정되었다. CO₂ 농도는 시간이 지날수록 수평적으로 더 넓게 확산되었으나, CO₂ 누출을 종료할 때까지 모든 구역에서 누출구로부터 5m 지점까지만 검출되었다. 또한, CO₂ 누출 마지막 날에 30cm와 60cm 깊이에서 CO₂ 농도는 각각 50.6±25.4%와 55.3±25.6%로 유사하게 측정되었으나, 15cm 깊이에서는 31.3±17.2%로 다른 지점에 비해 유의하게 낮은 것으로 나타났다. CO₂ 누출을 종료한 후 모든 구역의 모든 깊이에서 CO₂ 농도는 약 1달 동안 서서히 감소하였지만 누출 직후보다는 여전히 높았다. 결론적으로 누출구로부터 가깝고 깊이가 깊을수록 CO₂ 플럭스와 농도는 높은 것으로 나타났으며, 누출이 된 CO₂ 기체는 누출이 멈추더라도 장기간 토양 내에 잔류할 수 있기 때문에 장기 모니터링이 필요할 것으로 판단된다.

주요어 : 이산화탄소 포집 및 저장(CCS), 누출, 모니터링 시스템, 이산화탄소 플럭스, 이산화탄소 농도

Abstract : CCS (Carbon Capture and Storage) is a technical process to capture CO₂ from industrial and energy-based sources, to transfer and sequester impressed CO₂ in geological formations, oceans, or mineral carbonates. However, potential CO₂ leakage exists and causes environmental problems. Thus, this study was conducted to analyze the spatial and temporal variations of CO₂ fluxes and concentrations after artificial CO₂ release. The Environmental Impact Evaluation Test Facility (EIT) was built in Eumseong, Korea in 2015. Approximately 34kg CO₂ / day / zone were injected at Zones 2, 3, and 4 among the total of 5 zones from October 26 to 30, 2015. CO₂ fluxes were measured every 30 minutes at the surface at 0m, 1.5m, 2.5m, and 10m from the CO₂ releasing well using LI-8100A until November 13, 2015, and CO₂ concentrations were measured once a day at 15cm, 30cm, and 60cm depths at every 0m, 1.5m, 2.5m, 5m, and 10m from the well using GA5000 until November 28, 2015. CO₂ flux at 0m from the well started increasing on the fifth day after CO₂ release started, and continued to increase until November 13 even though the artificial CO₂ release stopped. CO₂ fluxes measured at 2.5m, 5.0m, and 10m from the well were not significantly different with each other. On the other hand, soil CO₂ concentration was shown as 38.4% at 60cm depth at 0m from the well in Zone 3 on the next day after CO₂ release started. Soil CO₂ was horizontally spreaded over time, and detected up to 5m away from the well in all zones until CO₂ release stopped. Also, soil CO₂ concentrations at 30cm and 60cm depths at 0m from the well were measured similarly as 50.6±25.4% and 55.3±25.6%, respectively, followed by 30cm depth (31.3±17.2%) which was significantly lower than those measured at the other depths on the final day of CO₂ release period. Soil CO₂ concentrations at all depths in all zones were gradually decreased for about 1 month after CO₂ release stopped, but still higher than those of the first day after CO₂ release started. In conclusion, the closer the distance from the well and the deeper the depth, the higher CO₂ fluxes and concentrations occurred. Also, long-term monitoring should be required because the leaked CO₂ gas can remain in the soil for a long time even if the leakage stopped.

Keywords : CCS (Carbon Capture and Storage), Leakage, Monitoring system, CO₂ flux, CO₂ concentration

I. 서론

화석연료의 사용으로 계속적으로 지구의 기온은 증가하여 왔으며 21세기 말에는 지구의 표면온도가 현재보다 평균 0.3~4.8℃ 증가할 것으로 예측되고

있다(IPCC 2013). 그리고 이로 인해 많은 문제가 발생하고 있으며 앞으로 더욱 심해질 것으로 내다보고 있다(Kim 2011). 세계기상기구(WMO)와 국제연합환경계획(UNEP)은 화석연료 사용으로 인해 급증한

이산화탄소를 지구온난화의 주범으로 지적하였다(Houghton et al. 1990). 이에 산업과정 중에 발생하는 이산화탄소를 포집하여 지하에 매립하는 이산화탄소 포집 및 저장기술(carbon capture and storage: CCS)이 지구온난화 방지를 위한 효과적인 방법으로 제시되었다(IPCC 2005).

현재 국제적으로 CCS의 상용화와 관련된 정책이 추진되고 있으며 CCS 시장 선점을 위한 경쟁이 가속화되고 있는 실정이다(Lee et al. 2012). 대표적으로 북아프리카의 인살라, 노르웨이의 슬레이프너와 스노허빗, 미국의 Shute Creek Gas Processing Facility 등에서 CCS 사업이 이루어져 왔으며, 이외에도 캐나다, 영국, 알제리, 사우디아라비아, 중국, 호주 등 많은 나라들에서 약 40개의 큰 규모의 CCS 프로젝트들이 운영되고 있다. 국내에서는 현재 CCS 사업이 상용화단계는 아니지만 CCS와 관련된 기초 연구들이 활발히 진행되고 있으며 2020년부터 1 Mtpa의 CO₂를 해양에 저장할 계획이 있다(Global CCS Institute homepage).

한편 CO₂의 지중저장에는 적절한 부지선정과 정확한 포집·저장 기술을 개발하더라도 잠재적인 누출의 위험을 완전히 배제할 수는 없다(Lewicki et al. 2005; Cortis et al. 2008; Lee et al. 2009). 저장된 CO₂가 누출되는 시나리오는 주입정 또는 폐공을 통한 급격한 누출과 미 탐지된 단층과 같은 지질학적인 미세한 결함으로 인한 점진적인 누출 등 크게 2가지로 나누어 볼 수 있다(Lee et al. 2009; Hwang et al. 2010; Kang et al. 2015). 특히, 단층 등과 같은 누출 경로는 그 존재유무나 규모의 정도를 정확하게 파악하는 것은 쉽지 않다. 또한, Lee et al. (2012)은 지중 CO₂ 저장은 주입시간에 따라 저장량이 많아질수록 저장소의 압력이 증가하게 되어 저장된 CO₂의 누출 위험도가 증가할 것이라고 예상했다. 이러한 잠재적인 CO₂의 누출은 많은 환경문제를 발생시킬 수 있으며(Schloemer et al. 2013), 식물의 생육을 저해(He et al. 2016)하거나 토양과 수질의 화학적 반응이 발생(Moonis et al. 2016)할 수 있다. 따라서 안전하고 효과적인 CCS를 위해서는 잠재적인 CO₂ 누출을 검출하고 정량화 할 수 있는 모니터링 기술이

필요하며(Lewicki et al. 2010; Schloemer et al. 2013), 특히 지표면 부근의 저심도 CO₂ 검출 모니터링은 매우 중요하다.

국외의 저심도 권역 CO₂ 지중저장 환경관리 기술 개발은 인위조절시험부지에서의 누출시험을 통한 환경영향평가 및 누출탐지 기술에 초점을 맞추고 있다. 대표적인 사례에는 미국의 Zero Emissions Research and Technology (ZERT) 프로젝트, 노르웨이의 Svelvik Ridge Shallow CO₂ Injection Field Lab, 호주의 Ginninderra Experiment Station 누출 시설, 영국의 Artificial Soil Gassing and Response Detection (ASGARD) 시설 등이 있다. 미국 ZERT 프로젝트는 몬타나주립대 보스만 캠퍼스 내에 소재하고 있으며, 수평관정을 1.8m 깊이에 매립하여 CO₂를 인위적으로 누출한 다음 토양에서 대기까지의 CO₂ 이동을 모니터링하고 있다. 여기에서는 CO₂의 검출은 관정으로부터 0~10m (2.5m 간격) 지점의 30cm 깊이에서 NDIR 센서를 설치하여 측정하였으며, 지표면에서는 휴대용 토양호흡 측정기를 이용하여 CO₂ 플럭스를 측정하였다. 노르웨이의 CO₂ Field Lab에서는 20m 깊이에서 6일간 총 1.7 t CO₂를 누출시킨 후 지진파를 이용하여 CO₂의 이동을 측정하였다. 영국의 ASGARD 시설에서는 0.6m 깊이에서 인위적으로 CO₂를 누출시킨 후 식물의 반응을 관찰하였다. 그리고 CO₂ 농도는 누출지점으로부터 0.15m와 0.7m 지점의 지표면 및 0.5m 깊이에서 측정하였다.

본 연구에서는 CCS 기술을 통해 지중 저장된 CO₂의 누출을 정확하게 감지하고 정량화하는데 필요한 기초자료를 제공하기 위해 인위적으로 지중에서 CO₂를 누출시킨 후 시간, 거리, 깊이별 농도를 측정함으로써 누출된 CO₂의 시공간적 확산경향을 분석하고자 하였다.

II. 재료 및 방법

1. 연구 대상지 및 실험설계

연구 대상지(Environmental Impact Evaluation Test Facility on Seepage of Geologically Stored CO₂: EIT)는 충북 음성군 대소면 내산리 산6-3번지

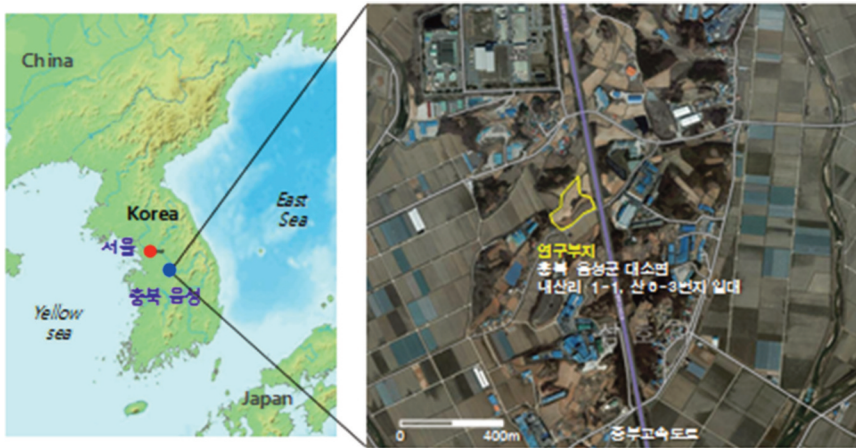


Figure 1. Location of artificial CO₂ release experiment site (EIT).

(36° 57' 44.2" N, 127° 28' 03.1" E)에 위치하였다 (Figure 1). 이 지역 최근 5년간(2010~2014)의 평균 기온과 강수량은 각각 11.7℃와 1,315.6mm이고 대륙성기후를 보인다(음성군청 통계연보 2015). 연구 부지의 지층 분포와 지질구조 등을 확인하기 위하여 지표지구물리탐사와 정밀시추조사를 2014년 8월부터 9월까지 실시한 결과, 토성은 수심 약 10m 부근 까지 사질양토이고, 경사는 북향, 부지 내 최남단과 최북단의 고저 차는 약 2m인 것으로 조사되었다.

본 시험지는 대조구를 포함하여 총 5개의 구역 (Zone)으로 구성되어 있고 한 개의 구역은 East line 과 West line 등 2개로 이루어져 있다(Figure 2). CO₂ 주입관은 지하수면 상부의 2.5m 깊이에 수평으로 매설하였으며, 누출구로부터 각 구역에 운반되어 누출 되는 CO₂의 양이 구역별로 동일하도록 유도하기 위해 각 구역별로 분리된 개별적인 파이프관을 이용하

여 CO₂를 주입하는 시스템을 도입하였다. 한 개 구역의 너비는 10m, 세로길이는 20m이다. 천공이 뚫린 CO₂ 누출구의 폭은 1m이고 간격은 4m로 충분한 공간을 확보하도록 하였다. 모든 구역과 구역 사이, 누출구와 누출구 사이는 흙다짐을 하여 상호간에 수평적 확산으로 인한 영향을 최소화하도록 설계하였다.

인위적인 지중 CO₂ 주입은 미국의 ZERT 프로젝트와 영국의 ASGARD 시설 등의 여러 국의 선행연구를 검토하여 그들과 유사한 12 L/min (약 34 kg CO₂/day/zone)의 속도로 2015년 10월 26일부터 30일까지 총 5개의 구역 중 2, 3, 4구역에 한하여 실시하였다.

2. 측정방법 및 자료분석

CO₂ 플럭스는 CO₂ 플럭스자동측정장비(LI-

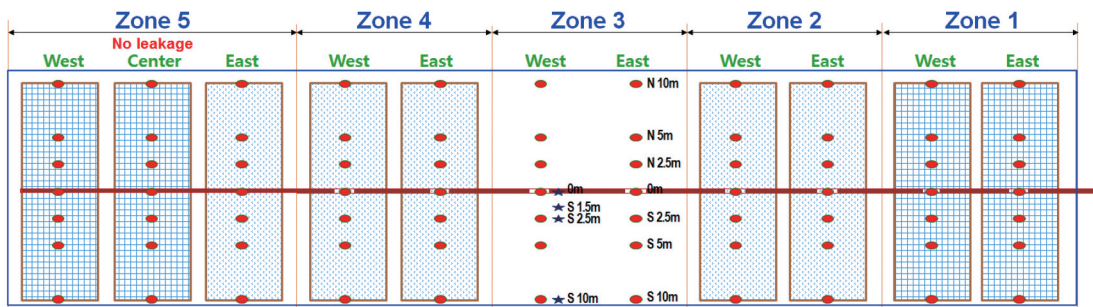


Figure 2. Controlled artificial CO₂ release experiment site (EIT) in Eumsung, showing locations of soil CO₂ concentration (circles) and flux (stars) measurements.

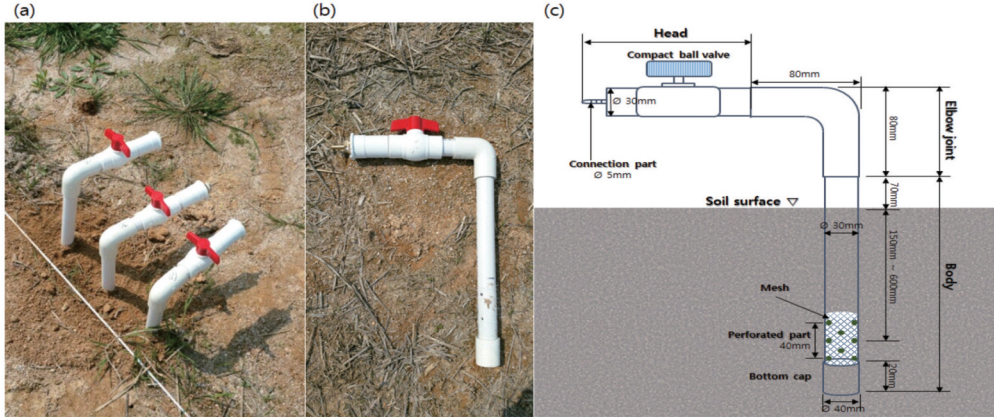


Figure 3. (a) Immersed PVC pipes, (b) their side view, and (c) its blueprint.

8100A, LI-COR, USA)를 이용하여 3구역 West line의 CO₂ 누출구로부터 남쪽방향으로 0m, 1.5m, 2.5m, 10m 지점의 지표면에서 매 30분마다 측정하였다. 이 장비는 여러 개의 long-term 챔버를 지표면에 고정시켜 지표면에서 CO₂ 플럭스를 모니터링하는데 사용되는 것으로써 본 연구에서는 4개의 long-term 챔버를 설치하였다. 측정기간은 2015년 10월 26일부터 2015년 11월 13일까지이며, 1회 측정시간은 150초로 설정하였다. 또한, 매 초당 지표면 CO₂ 농도와 함께 환경인자(토양온도, 토양수분, 상대습도, 대기압)를 측정하여 150초에 대하여 평균하였다. 취득한 데이터는 다음의 식을 이용하여 CO₂ 플럭스를 산출하였다.

$$Flux = \frac{10VP \left(1 - \frac{W}{1000}\right)}{RS(T + 273.15)} \cdot \frac{\partial C}{\partial t} \quad (1)$$

여기에서, $Flux$ 는 CO₂ 플럭스($\mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$), V 는 챔버 부피(cm^3), P 는 대기압(kPa), W 는 토양수분의 물분율 (mmol/mol), R 은 기체 상수 ($8.314 \text{ Pa m}^3/\text{K}/\text{mol}$), S 는 챔버 단면적(cm^2), T 는 대기온도 ($^{\circ}\text{C}$), 그리고 $\frac{\partial C}{\partial t}$ 는 CO₂ 물분율의 변화율이다($\mu\text{mol}/\text{mol}$).

CO₂ 농도는 휴대형 가스분석기(GA5000, Geotech, England)를 이용하여 2, 3, 4구역의 누출구로부터 남북 양방향으로 0m, 2.5m, 5.0m, 10.0m 떨어진 지점의 15cm, 30cm, 60cm 깊이에서 측정하였다. 이 장비

는 튜브를 통해 토양 내 기체를 흡입하여 CO₂와 O₂의 농도를 분석하는 것으로써 측정 정확도는 CO₂는 $\pm 0.5\%$ 이고 O₂는 $\pm 1.0\%$ 이다. 본 연구에서는 지중 CO₂ 농도를 지상에서 측정하기 위하여 특수 제작된 7자형 PVC 파이프관을 각 측정점에 설치하였다 (Figure 3). 본 파이프관의 머리부위에는 compact ball 밸브를 설치하여 액체상태의 수분이나 기타 이물질 등이 파이프관 안으로 유입되는 것을 방지하였다. 몸통의 끝부분에는 bottom cap을 끼워 하단부로 토양입자나 토양 소동물의 유입을 차단하였고, 대신 파이프관의 끝부분에 4방향으로 다수의 천공을 뚫고 망을 씌워 CO₂ 기체가 유입될 수 있는 구조로 설계하였다. 토양 CO₂ 농도의 측정기간은 CO₂ 누출이 시작된 2015년 10월 26일부터 2015년 11월 28일까지였으며 10시부터 16시 사이에 1일 1회 측정하였다.

인위적인 CO₂ 누출 실험기간 동안의 토양온도, 토양수분, 상대습도, 대기압은 Figure 4와 같은 시계열적 변화를 보였다. 토양온도는 오후 2~3시경에 가장 높고 오전 6~7시경에 가장 낮게 나타났으며 실험기간 동안 평균온도는 8.71 $^{\circ}\text{C}$ 이고 최저와 최대온도는 각각 -4.21 $^{\circ}\text{C}$ 와 27.93 $^{\circ}\text{C}$ 였다. 그리고 토양수분은 2.79%~18.04%로 평균 7.38%를 보였다. 상대습도는 온도의 영향을 받기 때문에 낮에는 기온이 높아 포화수증기량이 크므로 상대습도가 낮아지고, 밤이나 새벽에는 기온이 낮아 반대로 포화수증기량이 작아서 상대습도가 높아지는 경향을 보였다. 상대습도

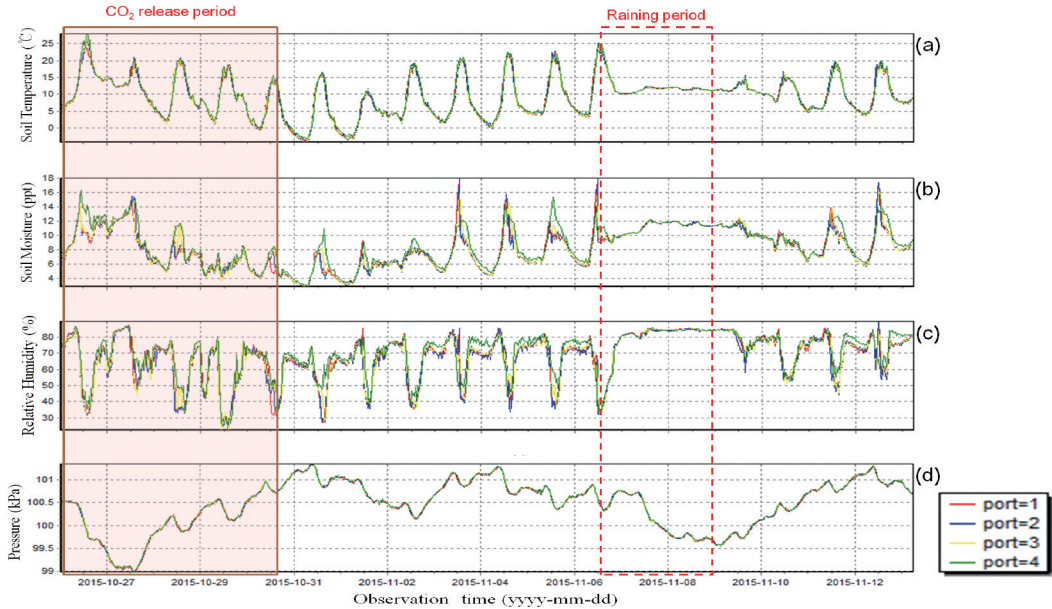


Figure 4. Time series of (a) soil temperature, (b) soil moisture, (c) relative humidity, and (d) atmospheric pressure measured at 0m (port 1), 1.5m (port 2), 2.5m (port 3), and 10m (port 4) from the well.

의 범위는 22.26%~87.60%(평균 64.15%)로 편차가 매우 심한 것으로 나타났다. 대기압은 다른 환경인자들보다 시계열적으로 뚜렷한 경향이 나타나지 않았으며, 최저(98.98kPa)와 최고(101.34kPa) 간의 표준편차(0.54)가 환경인자들(토양온도, 6.70; 토양수분, 2.74; 상대습도, 14.58) 중에서 가장 낮게 나타났다. 평균 대기압은 100.50kPa이다.

모든 자료의 통계분석에는 SAS 9.3 software (SAS Institute Inc., USA)를 사용하였다. 측정거리 간 평균 CO₂ 플럭스의 차이와 측정깊이 간 평균 CO₂ 농도의 차이에는 일원분산분석을 실시하였으며, 사후분석으로는 Duncan 다중비교분석을 통해 분석조건에 따른 유의성을 파악하였다. 그리고 CO₂ 플럭스와 환경인자들 간의 상관분석을 실시하였다.

III. 결과 및 고찰

1. CO₂ 플럭스

EIT 부지 중 3구역의 4개 지점(누출지점으로부터 0m, 1.5m, 2.5m, 10m 거리)에서 관찰된 CO₂ 플럭스는 Figure 5와 같다. 누출실험기간 동안 CO₂ 플럭스

의 단기적인 일변화는 무시할 수 있을 정도로 차이는 작지만, 장기적인 변화에서는 훨씬 더 확연한 차이를 보인다(Schloemer et al, 2013). 본 연구에서도 CO₂ 플럭스의 일변화는 누출지점으로부터의 거리에 따라 매우 유사한 일변화를 보이는 반면에, 누출구로부터 0m 지점에서 CO₂ 플럭스가 증가하기 시작하는 10월 31일부터 관측 마지막 날인 11월 13일까지 측정거리 별 CO₂ 플럭스 간에는 명확한 차이를 보이고 있었다.

누출기간 동안 모든 측정위치에서 평균 CO₂ 플럭스가 각각 0.43±0.14 μmol/m²/s (0m 지점), 0.19±0.08μmol/m²/s (1.5m 지점), 0.21±0.08 μmol/m²/s (2.5m 지점), 0.47±0.20 μmol/m²/s (10m 지점)으로 비교적 안정적인 상태를 보였다. 누출지점으로부터 가장 거리가 먼 지점(10m)과 비교하여 모든 측정위치에서 유의적인 차이가 없거나 낮은 평균값을 보여 거리에 따른 인위적인 CO₂ 누출의 효과는 없는 것으로 분석되었다. 그러나 누출이 종료된 시점부터 11월 7일까지의 평균 CO₂ 플럭스는 누출지점에서 1.36±0.35 μmol/m²/s로 가장 높게 나타났으며 다른 모든 지점에서의 평균 CO₂ 플럭스와 유의적인 차이를 보였다. 반면, 누출지점으로부터 1.5m,

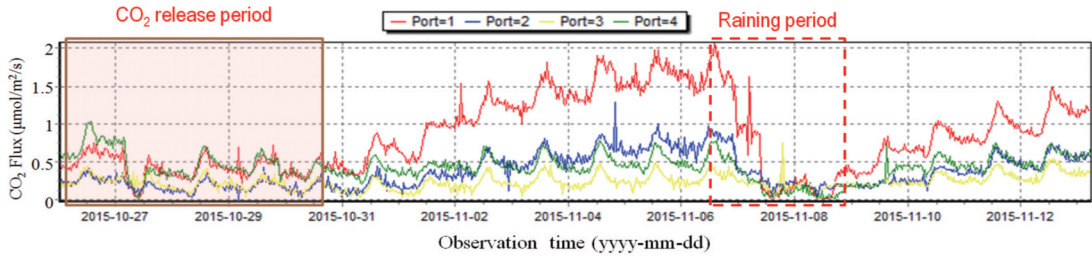


Figure 5. Time series of CO₂ fluxes measured at 0m (port 1), 1.5m (port 2), 2.5m (port 3), and 10m (port 4) from the well on West line of Zone 3.

2.5m, 10m 지점에서는 각각 $0.56 \pm 0.21 \mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$, $0.24 \pm 0.10 \mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$, $0.48 \pm 0.11 \mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$ 로 유의한 차이를 보이지 않았다. 이처럼 CO₂ 누출 종료이후 거리에 따른 CO₂ 플럭스는 누출지점으로부터 0m 지점에서만 유의한 수준으로 높은 것으로 나타났다. 이처럼 CO₂의 누출은 토양의 물리적인 성질로 인해 수평적인 확산이 제한적이기 때문에 누출구로부터 수평적으로 가까운 거리에서, 그리고 작은 면적(반경 2.5m 이내)에서 발생하는 것으로 보인다. 따라서 토양 내 CO₂ 기체의 이동은 수평적인 확산보다 주로 수직적으로 확산되는 것으로 사료된다.

또한, Wong and Agar (2009)와 Jones et al. (2014)은 장기적인 측정이 중요하다고 주장하였으며, Schloemer et al. (2013) 역시 Weyburn 부지에서 수행한 CO₂ 지중저장이 장기적으로 지표면의 생태계나 생활환경 등에 영향을 미칠 수 있으므로 장기적인 모니터링이 수반되어야 한다고 언급하였다. 본 연구에서도 인위적인 CO₂ 누출이 10월 30일에 종료되었음에도 불구하고 CO₂ 플럭스는 누출구로부터 0m 지점에서 비가 내린 기간을 제외하고 11월 13일까지 지속적으로 증가하는 경향이 나타났다. 이처럼 지중에서 누출된 CO₂는 토양 내에 오랫동안 잔류함으로써 장기누출의 가능성을 보여주었다. 따라서 CCS 사업의 모니터링 계획을 수립할 때에는 CO₂의 누출이 장기적으로 이루어질 경우 지표층의 생태계 및 환경에 여러 문제를 초래할 가능성을 신중하게 고려해야 할 것으로 사료된다.

한편, 11월 7일~8일에는 비가 내렸고 CO₂ 플럭스는 거의 $0 \mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$ 에 가까워졌다가 비가 멈춘 뒤

다시 증가하는 것으로 나타났다. 이는 비가 내릴 경우 토양공극을 수분이 채움으로써 CO₂의 이동과 확산을 억제시켜 누출량이 줄어든 것으로 판단된다.

Figure 6은 CO₂ 플럭스와 여러 환경인자들 간의 상관관계를 보여주고 있다. CO₂ 플럭스는 토양의 온도 및 수분과 양의 상관관계를 보인 반면에 대기압 및 상대습도와는 음의 상관관계를 보였다. 일반적으로 대기 중 CO₂ 플럭스는 식물체의 광합성 활동으로 인해 낮에 감소하고 밤에 증가(Klusman 2003; Mahesh et al. 2014; Cohen et al. 2015; Suh et al. 2015)하는 반면에 토양 내 CO₂ 플럭스는 낮에 증가하고 밤에 감소하는 경향을 보인다(Lewicki et al. 2010; Klusman 2011). EIT 부지 내 지표면에서 측정된 CO₂ 플럭스의 일변화는 토양 내 CO₂ 플럭스와 유사한 경향을 보였으며, 특히 오후 2시경에 가장 높게 나타났다(Figure 5). 또한, CO₂ 플럭스는 환경인자들 중에서 토양온도와 가장 높은 상관관계 ($R=0.71$, $p<0.0001$)를 보였다. 따라서 토양온도가 CO₂ 기체의 확산에 가장 큰 영향을 미치는 것으로 사료된다.

2015년 7월 1일부터 10월 26일까지 실시한 기초조사에서도 평균 CO₂ 플럭스는 평균기온이 가장 높은 8월에 $1.55 \pm 0.08 \mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$ 로 가장 높고 평균기온이 가장 낮은 10월에 $0.45 \pm 0.02 \mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$ 로 가장 낮은 것으로 나타났다. 그리고 평균 CO₂ 플럭스는 7월과 9월에 각각 $1.27 \pm 0.06 \mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$ 와 $0.77 \pm 0.04 \mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$ 로 분석되었다. 이처럼 CO₂ 플럭스는 여름철과 가을철에 유의미한 차이를 보이고 있었으며, 온도의 영향을 크게 받는 것으로 보인다.

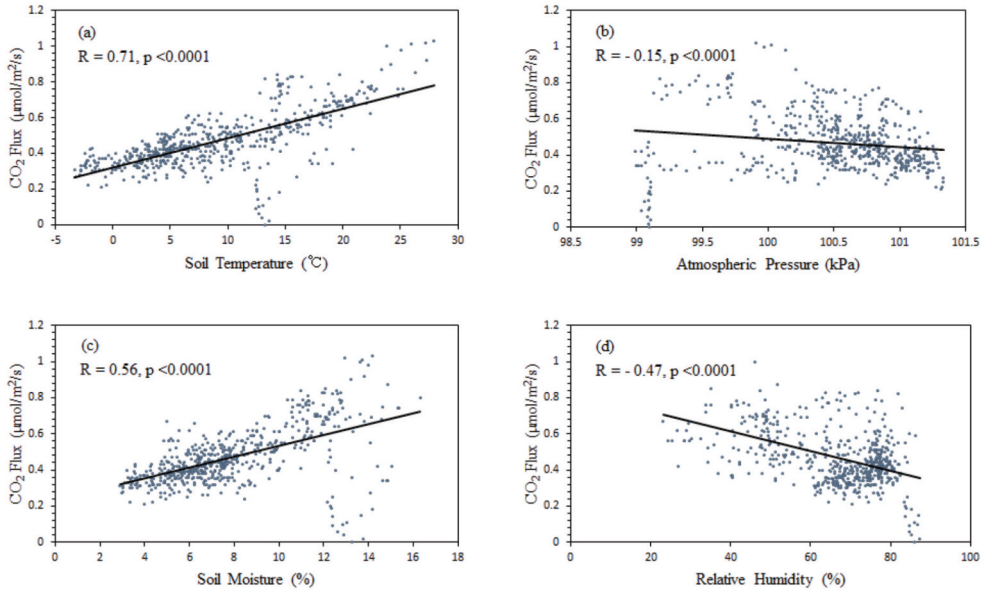


Figure 6. Relationships between CO₂ flux and (a) soil temperature, (b) atmospheric pressure, (c) soil moisture, and (d) relative humidity.

다. 그러므로 동일한 양의 CO₂가 지중에서 누출되더라도 여름철에 더 많은 양의 CO₂ 플럭스가 지표면에서 검출될 것으로 예상되며, 이에 CO₂ 플럭스의 계절적 변화를 분석할 필요가 있는 것으로 사료된다.

또한, 토양온도의 증가는 토양수분의 이동을 활발하게 하여 결과적으로 CO₂ 플럭스 증가에 영향을 미친다(Zhang et al, 2010). 이러한 이유로 토양수분은 CO₂ 플럭스와 비례하는 것으로 나타났다(R=0.56, p<0.0001). 대기압 역시 낮은 고도의 대기와 저심도의 지중에 있는 CO₂를 포함한 모든 기체의 활동에 영향을 미친다(Lewicki et al, 2010; Klusman 2011). 즉, 기압이 낮아지면 CO₂ 기체는 지중에서 대기로 더 빠르게 확산되지만 기압이 상승하면 상대적으로 더 느리게 대기 중으로 확산된다. 그러나 본 연구에서는 CO₂ 플럭스와 대기압과의 상관관계수는 -0.15로 매우 낮은 것으로 나타났다. 따라서 본 연구와 같이 밀폐형 챔버를 사용할 경우에는 챔버 내부의 기체가 외부의 대기로부터 격리되기 때문에 대기압이 CO₂ 기체의 확산에 미치는 영향은 매우 낮은 것으로 사료된다.

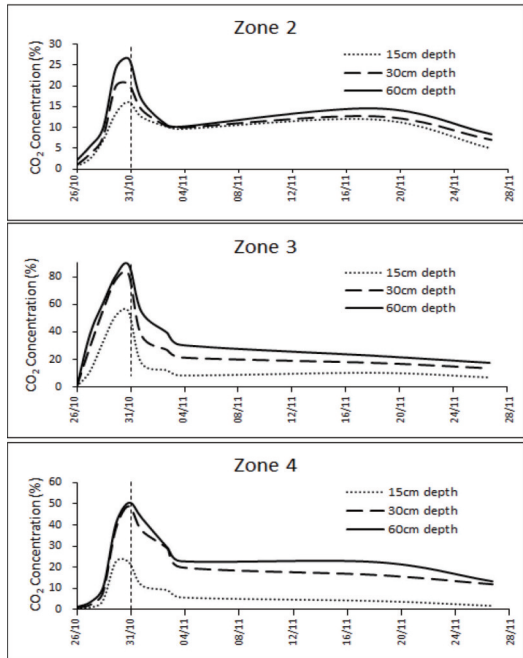


Figure 7. CO₂ concentration curves considering soil depths at 0m from well. Vertical dashed lines show end of the CO₂ release.

2. CO₂ 농도

누출실험 관측기간 동안 각 구역 누출지점의 깊이

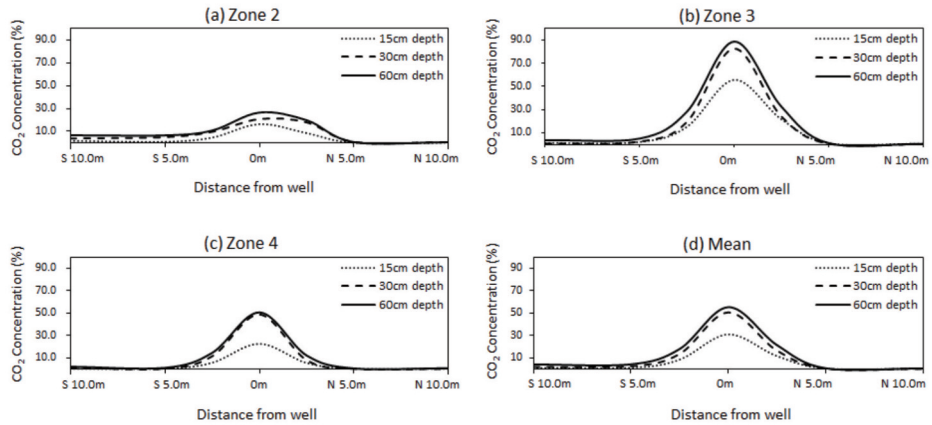


Figure 8. Spatial distributions of CO₂ concentrations by (a, b, and c) zones and (d) mean CO₂ concentrations based on distance from the well on the final day of CO₂ release period (October 30, 2015).

별 CO₂ 농도의 변화는 Figure 7에 나타내었다. 인위적인 CO₂ 누출을 진행하는 동안에는 모든 구역에서 CO₂의 농도가 급격히 증가하였다. 누출실험 시작 후 둘째 날에 3구역의 60cm 깊이에서 38.4%의 CO₂ 농도가 검출되었으며 다른 구역에 비해 가장 빨리 누출이 확인되었다. 인위적인 CO₂ 누출이 종료된 시점인 10월 30일에 모든 누출구역에서 CO₂ 농도가 최대치에 도달하였으며, 그 이후부터 11월 2일까지는 급격히 감소하였다. 그리고 11월 28일까지 CO₂ 농도는 서서히 감소하는 것으로 나타났으며, Humphries et al.(2008) 및 Lewicki et al.(2010)의 연구와 CO₂ 농도의 시간적 변동이 유사한 경향을 보였다. 이와 같이 토양의 물리적 성질이 다른 지역에서 전반적인 CO₂의 시간적 확산경향이 매우 유사한 것으로 보아 CO₂의 수직적 확산은 토양조건의 영향을 크게 받지 않는 것으로 사료된다.

누출 종료 후 약 1개월이 지난 시점에서도 모든 구역에서 CO₂ 농도가 누출 직후의 수치보다 높게 나타났다. 이처럼 누출의 영향이 오랜 시간 지속될 경우 총 발생량은 훨씬 많아질 수 있는 반면에 순간 농도는 낮기 때문에 검출확인은 더 어려워 질 수 있다 (Kang et al. 2015). 따라서 CCS 기술을 통해 지중에 저장한 CO₂가 누출될 경우에는 그 검출농도가 비교적 심각할 정도로 높은 경우가 아니라도 신중하게 대처해야 할 필요가 있다.

인위적인 CO₂ 누출이 종료된 시점(2015년 10월 30일)에서 구역과 깊이별 CO₂의 수평적 확산경향은 모든 구역에서 종 형태의 곡선으로 나타났다(Figure 8). 즉, 누출지점에서 CO₂ 농도가 가장 높았으며 누출지점으로부터 거리가 멀어질수록 CO₂의 농도는 낮아졌고, 그 결과 모든 구역에서 누출구로부터 0m와 2.5m 지점의 CO₂ 농도는 유의한 수준으로 높게 나타났다. 반면에, 누출구로부터 5m와 10m 지점에서는 CO₂ 농도 간에는 유의한 차이가 나타나지 않았다. 즉, CO₂는 누출구로부터 5m 이내까지만 확산이 되는 것으로 나타났으며, 다른 저심도 누출실험에서도 유사한 결과가 관찰되었다(Lewicki et al. 2009; Strazisar et al. 2009). 이에 CO₂의 수평적 확산은 토양조건의 영향을 크게 받으며, 누출구로부터 5m 내외의 수평거리가 인위적인 CO₂ 누출의 수평적 확산한계선인 것으로 판단된다. 따라서 잠재적인 CO₂ 누출을 검출하기 위한 모니터링 시스템을 구축할 때에는 이러한 점을 고려하여 10m 이내의 측정간격을 유지하는 것이 효율적인 것으로 사료된다(Jones et al. 2014).

누출구로부터 0m 지점의 평균 CO₂ 농도는 15cm 깊이에서 $31.3 \pm 17.2\%$ 로 30cm($50.6 \pm 25.4\%$)와 60cm($55.3 \pm 25.6\%$) 깊이에 비해 유의하게 낮았다. 반면에 30cm와 60cm 깊이의 평균 CO₂ 농도에서는 유의한 차이가 나타나지 않았다. 일반적으로 CO₂ 기

체의 이동은 토양과 대기의 상태에 따라 경향이 달라 지는데(Schloemer et al, 2013), 대기압의 차이로 인해 발생하는 바람의 세기가 증가할수록 지표면에서의 CO₂ 플럭스의 확산은 활발하게 이루어진다(Lewicki et al, 2010). 그 결과, 지표면 부근의 지층에서는 CO₂ 기체가 지표면 밖으로 빠르게 이동하게 되어 심층에 비해 CO₂ 농도가 상대적으로 낮은 경향을 보이는 것으로 사료된다.

IV. 결론

본 연구는 인위적인 CO₂ 누출에 따른 저심도에서 CO₂ 기체의 확산경향을 분석하고자 수행하였으며, 연구결과 저심도 CO₂의 시간과 공간에 따라 확산되는 경향이 뚜렷하게 나타났다. 일반적으로 CO₂ 기체의 확산은 대기압의 영향을 받기 때문에 깊이에 따라 다른 경향을 보인다(Clements and Wilkening 1974; Nilson et al, 1991; Takle et al, 2004). EIT 부지 내 CO₂ 누출기간 동안 CO₂ 플럭스는 지표면에서 검출이 되지 않은 반면에 CO₂ 농도는 누출지점의 15cm, 30cm, 60cm 깊이에서 급속히 증가하는 것으로 나타났다. 또한, 깊이가 깊을수록 CO₂ 농도는 높아졌으며 15cm 깊이에서 유의한 수준으로 CO₂ 농도가 낮은 것으로 분석되었다. 이는 대기압의 영향으로 인해 지표면에 가까울수록 CO₂의 이동 속도가 느려지거나 대기로 빠르게 빠져나감으로써 CO₂ 농도가 희석되어 낮아지는 것으로 사료된다. 그러므로 CO₂ 누출 모니터링을 지층에서 실시할 경우 지표면에서 실시하는 것보다 더 빨리 CO₂의 누출을 감지할 수 있을 것으로 판단된다.

인위적인 CO₂ 누출이 종료된 후 CO₂ 농도는 서서히 낮아졌지만, 누출 종료 약 1달 후에도 모든 깊이에서 CO₂ 누출 직후보다는 높은 것으로 관측되었다. 이와 같이 일단 누출이 된 CO₂는 심지어 누출이 종료된 이후에도 지층에 장기간 잔존하게 될 가능성이 높으며, 그로 인한 영향도 장기간에 걸쳐 지속적으로 발생할 수 있다. 이렇게 장기간 발생하는 CO₂의 양을 정확하게 정량화하기 위해서는 장기 모니터링을 실시해야 할 필요가 있는 것으로 판단된다. 또한, CO₂

의 확산은 토양의 온도와 수분의 영향을 많이 받기 때문에 장기모니터링을 통해 계절적으로 CO₂ 플럭스와 농도의 변화에 대하여 분석할 필요가 있다.

안정적인 CCS 사업을 위해서는 CO₂의 누출을 정확하게 검출하고 그 누출량을 정량화할 수 있는 모니터링 기술이 필요하지만 CCS 저장지역의 광범위한 면적을 모두 모니터링하는 것은 쉽지 않다. 그러므로 CO₂가 토양 내에서는 주로 수직으로 이동하는 점을 고려하여 지질층의 구조를 분석함으로써 단층 등의 누출가능 지점을 선정한 후 해당 지점을 기준으로 선형 또는 면형 측정이 이루어져야 할 것으로 판단된다. 한편, 본 연구에서는 시험지의 토양성질이 모두 동일한 것으로 간주하여 측정위치별로 토양조사를 실시하지 않았지만, 추후 연구에서는 각 위치별 토양의 물리적 성질을 분석하여 CO₂ 기체의 거동에 미치는 영향을 구명할 필요가 있는 것으로 사료된다.

사 사

본 논문은 환경부 『CO₂ 저장 환경관리기술 개발사업(과제번호: 2014001810002)』의 지원을 받아 수행한 K-COSEM project 연구결과의 일부입니다.

References

- Clements WE, Wilkening MH. 1974. Atmospheric pressure effects on Rn²²² transport across the earth-air interface. *Journal of Geophysical Research* 79: 5025-5029.
- Cohen LR, Raz-Yaseef N, Curtis JB, Young JM, Rahn TA, Wilson CJ, Wullschlegel SD, Newman BD. 2015. Measuring diurnal cycles of evapotranspiration in the Arctic with an automated chamber system. *Ecology* 8: 652-659.
- Cortis A, Oldenburg CM, Benson SM. 2008. The role of optimality in characterizing CO₂ seepage from geologic carbon sequestration sites. *International Journal of Greenhouse*

- Gas Control 2: 640-652.
- Eumseong Country. 2015. Eumseong Statistical Yearbook.
- Global CCS Institute: Large scale CCS projects [Internet]. Australia. Available from: <http://www.globalccsinstitute.com>.
- He W, Moonis M, Chung H, Yoo G. 2016. Effects of high soil CO₂ concentrations on seed germination and soil microbial activities. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 53: 117-126.
- Houghton JT, Jenkins GJ, Ephraums JJ. 1990. *Climate change: The IPCC scientific assessment*. Cambridge University Press.
- Humphries SD, Nehrir AR, Keith CJ, Repasky KS, Dobeck L, Carlsten L, Spangler L. 2008. Testing carbon sequestration site monitoring instruments using a controlled carbon dioxide release facility. *Applied Optics* 47(4): 548-555.
- Hwang JH, Kang SG, Park YG. 2010. Technical review on risk assessment methodology for carbon marine geological storage systems. *Journal of the Korean Society for Marine Environmental Engineering* 13(2): 121-125.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC). 2005. *IPCC special report on carbon dioxide capture and storage*. Cambridge University Press, New York.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC). 2013. *Summary for policy makers*. In: *climate change 2013: The physical science basis. Contribution of working group I to the fifth assessment report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, New York.
- Jones DG, Barkwith AKAP, Hannis S, Lister TR, Gal F, Graziani S, Beaubien SE, Widory D. 2014. Monitoring of near surface gas seepage from a shallow infection experiment at the CO₂ Field Lab, Norway. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 28: 300-317.
- Kang K, Huh C, Kang SG. 2015. A numerical study on the CO₂ leakage through the fault during offshore carbon sequestration. *Journal of the Korean Society for Marine Environment and Energy* 18(2): 94-101. [Korean Literature]
- Kim HJ. 2011. *Estimating absorption of carbon dioxide and developing allometric equation for Quercus acuta*. Master thesis. Chonbuk National University, Jeonju. [Korean Literature]
- Klusman RW. 2003. Evaluation of leakage potential from a carbon dioxide EOR/sequestration project. *Energy Conversion and Management* 44: 1921-1940.
- Klusman RW. 2011. Comparison of surface and near-surface geochemical methods for detection of gas microseepage from carbon dioxide sequestration. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 5(6): 1369-1392.
- Lee SI, Lee SK, Hwang JH. 2009. Fault tree analysis for risk assessment of CO₂ leakage from geologic storage. *Journal of Environmental Impact Assessment* 18(6): 359-366. [Korean Literature]
- Lee SI, Sung J, Hwang JH. 2012. Public awareness and acceptance of carbon dioxide capture and storage. *Journal of Environmental Impact Assessment* 21(3): 469-481. [Korean Literature]
- Lewicki JL, Hilley GE, Dobeck L, Spangler L.

2010. Dynamics of CO₂ fluxes and concentrations during a shallow subsurface CO₂ release. *Environmental Earth Sciences* 60(2): 285-297.
- Lewicki JL, Hilley GE, Fischer ML, Pana L, Oldenburg CM, Dobeck L, Spangler L. 2009. Detection of CO₂ leakage by eddy covariance during the ZERT project's CO₂ release experiments. *Energy Procedia* 1(1): 2301-2306.
- Lewicki JL, Hilley GE, Oldenburg CM. 2005. An improved strategy to detect CO₂ leakage for verification of geologic carbon sequestration. *Geophysical Research Letters* 32: L19403. doi: 10.1029/2005GL024281.
- Mahesh P, Sharma N, Dadhwal VK, Rao PVN, Apparao BV, Ghosh AK, Mallikarjun K, Ali MM. 2014. Impact of land-sea breeze and rainfall on CO₂ variations at a coastal station. *Earth Science and Climatic Change* 5(6): 201. doi: 10.4172/2157-7617.1000201.
- Moonis M, He W, Kim Y, Yoo G. 2016. Effect of potential CO₂ leakage from carbon capture and storage sites on soil and leachate chemistry. *KSCCE Journal of Civil Engineering* doi:10.1007/s12205-016-1867-5.
- Nilson RH, Peterson EW, Lie KH, Burkhard NR, Hears JR. 1991. Atmospheric pumping: a mechanism causing vertical transport of contaminated gases through fractured permeable media. *Journal of Geophysical Research* 96: 21933-21948.
- Schloemer S, Furche M, Dumke I, Poggenburg J, Bahr A, Seeger C, Vidal A, Faber E. 2013. A review of continuous soil gas monitoring related to CCS - Technical advances and lessons learned. *Applied Geochemistry* 30: 148-160.
- Stražisar BR, Wells AW, Diehl JR, Hammack RW, Veloski GA. 2009. Nearsurface monitoring for the ZERT shallow CO₂ injection project. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 3(6): 736-744.
- Suh S, Choi E, Jeong H, Lee J, Kim G, Lee J, Sho K. 2015. The study on carbon budget assessment in pear orchard. *Korean Journal of Environmental Biology* 33(3): 345-351. [Korean Literature]
- Take ES, Massman WJ, Brandlec JR, Schmidt RA, Zhou X, Litvina IV, Garcia R, Doyle G, Rice CW. 2004. Influence of high-frequency ambient pressure pumping on carbon dioxide efflux from soil. *Agricultural and Forest Meteorology* 124: 193-206.
- Wong TT, Agar JG. 2009. Development of a technically defensible soil gas sampling strategy for vapour intrusion assessments. *Canadian Geotechnical Journal* 46: 102-113.
- Zhang LH, Chen YN, Zhao RF, Li WH. 2010. Significance of temperature and soil water content on soil respiration in three ecosystems in Northwest China. *Journal of Arid Environments* 74: 1200-1211.