

Original Article

해양지중에 저장된 이산화탄소의 단층을 통한 누출 위험 평가에 관한 수치해석 연구

강관구¹ · 허 철^{2,†} · 강성길³

¹선박해양플랜트연구소 해양 CCS연구단

²한국해양대학교 해양과학기술융합학과

³선박해양플랜트연구소 해양안전연구부

A Numerical Study on the CO₂ Leakage Through the Fault During Offshore Carbon Sequestration

Kwangu Kang¹, Cheol Huh^{2,†} and Seong-Gil Kang³

¹Offshore CCS Unit, Korea Research Institute of Ships & Ocean Engineering, 32 1312 Beon-gil,
Yuseong-daero, Yuseong-gu, Daejeon 305-343, Korea

²Ocean Science & Technology School, Korea Maritime and Ocean University,
727 Taejong-ro, Youngdo-gu, Busan 606-791, Korea

³Offshore Safety Research Division, Korea Research Institute of Ships & Ocean Engineering,
32 1312beon-gil, yuseong-daero, Daejeon 305-343, Korea

요 약

CO₂ 배출을 줄이기 위해서 최근 CO₂ 포집 및 저장 기술에 관한 연구가 전세계적으로 활발히 진행되고 있다. 국내에서는 해양퇴적층을 대상으로 한 CO₂ 저장 연구가 활발히 진행되고 있다. 이러한 CO₂ 저장 연구에서 가장 중요한 요소 중 하나는 안전성 확보이다. 지중저장의 안전성 확보를 위해서 저장 CO₂의 누출 가능성과 누출 특성을 예측하는 것은 매우 중요하다. 본 연구에서는 해양지중에 저장된 CO₂가 단층을 통하여 누출될 수 있는 시나리오를 가정한 후, 지중공간 내 CO₂ 확산 및 누출 거동을 TOUGH2-MP ECO2N을 사용하여 시뮬레이션 하였다. 대상 저장지는 150 m 수심의 대륙붕 해저 825 m 지점에 있는 두께 150 m의 대염수층이고, 누출이 진행되는 경로는 주입정에서 1,000 m 떨어진 단층이다. 저장된 CO₂는 주입 압력과 밀도차에 의한 부력에 의해서 이동하게 된다. CO₂가 해수면으로 누출되기 위해서는 주입정에서 인가된 압력차가 CO₂를 단층 하단에 도달할 수 있게 할 만큼 충분히 커야 한다. 단층 하단에 도달한 CO₂는 추가적인 압력 구배가 없어도 부력에 의해서 누출된다. CO₂ 주입과 동시에 공극수는 CO₂가 누출되기 전까지 지속적으로 해저면으로 누출된다. CO₂가 해저면에 도착하면 공극수의 누출은 중단되고, 누출되는 CO₂질량에 상응하는 해수가 부력의 반대 작용으로 인해 단층으로 유입되는 것으로 계산되었다. 주입량이 누출에 미치는 영향을 평가하기 위하여 연간 CO₂ 주입량 100만 톤, 75만 톤, 50만 톤에 대한 민감도분석을 수행하였으며, 누출이 일어난 시점은 주입 후 각각 11.3년, 15.6년, 23.2년으로 계산되었다. 또한, 주입이 종료 된 이후에도 누출은 특정 기간 동안 지속되는 것으로 계산되었다. 누적 주입량 대비 누적 누출량은 연간 CO₂ 주입량이 100만 톤, 75만 톤, 50만 톤인 경우, 각각 19.5%, 11.5%, 2.8%이다.

Abstract – To mitigate the greenhouse gas emission, many carbon capture and storage projects are underway all over the world. In Korea, many studies focus on the storage of CO₂ in the offshore sediment. Assurance of safety is one of the most important issues in the geological storage of CO₂. Especially, the assessment of possibility of leakage and amount of leaked CO₂ is very crucial to analyze the safety of marine geological storage of CO₂. In this study, the leakage of injected CO₂ through fault was numerically studied. TOUGH2-MP ECO2N was used to simulate the subsurface behavior of injected CO₂. The storage site was 150 m thick saline aquifer located 825 m under the continental shelf. It was assumed that CO₂ leak was happened through the fault located 1,000 m away from the injection well. The injected CO₂ could migrate through the aquifer by both pressure difference driven by injection and buoyancy force. The enough pressure differences made it possible the CO₂ to migrate to the bottom of the

[†]Corresponding author: cheolhuh@kmou.ac.kr

fault. The CO₂ could be leaked to seabed through the fault due to the buoyancy force. Prior to leakage of the injected CO₂, the formation water leaked to seabed. When CO₂ reached the seabed, leakage of formation water stopped but the same amount of sea water starts to flow into the underground as the amount of leaked CO₂. To analyze the effect of injection rate on the leakage behavior, the injection rate of CO₂ was varied as 0.5, 0.75, and 1 MtCO₂/year. The starting times of leakage at 1, 0.75 and 0.5 MtCO₂/year injection rates are 11.3, 15.6 and 23.2 years after the injection, respectively. The leakage of CO₂ to the seabed continued for a period time after the end of CO₂ injection. The ratios of total leaked CO₂ to total injected CO₂ at 1, 0.75 and 0.5 MtCO₂/year injection rates are 19.5%, 11.5% and 2.8%, respectively.

Keywords: Carbon Capture and Storage(CCS, 이산화탄소 포집 및 저장), Offshore Geological Storage(해양지중 저장), CO₂ Leakage(CO₂ 누출), Numerical Simulation(수치해석)

서 론

최근 기후변화로 인하여 대기로의 CO₂ 배출을 줄이려는 노력이 전세계적으로 이루어지고 있다. 이산화탄소 포집 및 저장(CCS, Carbon Capture and Storage) 기술은 화력발전, 철강, 시멘트 산업과 같은 대량의 CO₂ 배출원에서 CO₂를 포집 후 지중에 저장하는 기술로 대기로의 CO₂ 배출을 획기적으로 줄일 수 있어 최근 매우 각광받고 있다. CO₂ 저장가능 후보지로는 고갈 유가스전, 석탄층, 심부 대염수층 등이 주로 거론되는데, 이중 대염수층이 저장 가능 용량이 가장 크고 전세계적으로 광범위로 분포되어 있어, 대염수층에 저장하는 방법에 관한 연구가 최근 활발하게 진행되고 있다(IPCC[2005]).

CCS 기술을 실증 및 상용화하는데 있어 가장 중요한 요소는 경제적 타당성과 더불어 누출 가능성 등을 포함한 안정성의 확보다 (Folger[2009]). CCS 프로젝트에서 CO₂ 누출은 저장으로 인한 감축량을 상쇄시킬 뿐만 아니라 CO₂ 배출권 거래제도를 통해 획득한 배출권의 상실 및 CCS의 안전성에 대한 사회적 이슈를 야기시킬 수 있다. 현재 여러 국가들이 교토의정서 체제하에서 온실가스를 줄이기 위해 노력하고 있다. CCS 사업을 통해서 감축된 온실가스 배출권을 국가간에 거래하기 위해서는 공동이행제도(JI, Joint Implementation) 또는 청정개발제도(CDM, Clean Development Mechanism)의 규약을 만족시켜야 하고, 이를 위해서는 감축량에 대한 명확한 산정이 요구된다. 만약에 대규모의 누출이 발생하게 되면, 정확한 누출량의 파악이 어려울 뿐만 아니라, 이러한 누출로 인한 CO₂ 감축량의 모호성은 JI 또는 CDM 사업의 승인 자체를 어렵게 하는 장애물이 될 수 있다.

국내에서 해양 퇴적층을 대상으로 한 CO₂ 저장소의 승인 여부는 저장소의 지질학적 완결성 뿐만 아니라 저장된 CO₂가 누출될 경우 환경피해 범위의 산정과 같은 환경 영향 평가에 의하여 결정될 것이다. 또한 누출된 CO₂가 국경을 넘어 인접국가로까지 확산되면 외교적인 마찰도 야기할 수도 있다. 따라서 CO₂ 해양지중저장의 성공여부는 누출의 위험도가 매우 낮다는 것을 사전에 명확히 보여주는데 있다고 할 수 있고, 누출에 대한 가능성, 누출량, 그리고 사후 적절한 대응 방안은 CCS 사업을 시작하기에 앞서 반드시 마련되어야 한다.

CO₂ 저장소가 누출의 위험이 없기 위해서는 다음과 같은 4가지 조건을 만족해야 한다(IPCC[2005]); 1) 낮은 투수성의 덤개암, 2)

지질학적 안정성, 3) 단층 등과 같은 누출 경로의 부재, 4) 적절한 포획 (trapping) 메커니즘. 일반적으로 누출은 상기 3)에 해당하는 누출 경로가 있을 때 일어난다. 일반적으로 누출 시나리오는 크게 2 가지로 나뉘어 있는데, 첫 번째는 주입정 또는 폐공(abandoned well)을 통한 급격한 누출이고, 두 번째는 미 탐지된 단층과 같은 지질학적 미세 결함으로 인한 점진적인 누출이다. 주입정 및 폐공을 통한 누출의 경우 일차적으로 누출 지역 근처의 근로자 및 생태계에 큰 위협이 된다. 현재까지 알려진 바에 의하면 CO₂의 공기 중 농도가 7-10% 보다 커지게 되면 인간의 생명과 건강에 큰 위험이 되기 때문이다. 이러한 종류의 누출은 수시간에서 수일에 걸쳐서 일어나는 게 대부분이며 CO₂의 누출량은 전체 유입량에 비교하면 매우 적은 것으로 알려지고 있다(IPCC[2005]). 미 탐지된 단층, 균열을 통해서 누출이 이루어지는 경우는 주입정, 폐공을 통한 누출보다 점진적이고 확산적이다. 이 경우 음용수층을 포함한 지하수층과 지표 등 CO₂가 축적되는 영역의 생태계에 주로 영향을 미치게 된다. 또한, 토질의 산성화 및 토질내의 산소 결핍과 같은 이차적인 문제도 야기된다. 만약 CO₂가 대기 중으로 누출되면 저지대, 지하실, 공동구 등의 장소에 큰 위험요인이 될 수 있다. 본 연구에서 관심을 가지고 있는 해양지중의 경우 내륙에서의 경우 보다 인간에게 미치는 영향은 적다고 할 수 있으나 해양생태계 파괴 및 해양산성화 등 여러 가지 문제를 야기할 수 있다.

최근 CCS 프로젝트의 안전에 대한 관심이 전세계적으로 증대됨에 따라, CO₂ 지중 저장소에서 지표면으로의 CO₂ 누출에 관한 수치해석 연구들이 많이 발표되고 있다. Zeidouni 등(Zeidouni *et al.* [2014])은 2차원 수치해석을 통해 공극수와 CO₂ 누출 시 야기되는 온도의 변화를 계산하였고, 이를 통해 누출 단층에서 CO₂의 누출을 모니터링 할 수 있는 방법을 제안하였다. Esposito와 Benson(Esposito and Benson[2011])은 TOUGH2 소프트웨어를 사용하여 CO₂ 누출 시 대응 방안에 대한 수치해석을 하였다. 하지만 Esposito와 Benson의 연구의 경우, 구체적인 CO₂ 누출 경로가 해석 대상에 포함되지 않았기 때문에, 누출로 인한 CO₂의 변화를 고려할 수 없다는 단점이 있다. Pruess(Pruess[2008])는 3차원 형상의 지중에서 CO₂의 누출과 정에 대한 수치해석을 수행하였다. Pruess 연구의 경우 지표면 근처에서의 누출 과정만을 해석 대상으로 고려하여, 지표 근처에서의 CO₂ 거동을 비교적 정확히 모사했다는 장점이 있으나, CO₂ 주입의 영향 및 누출 경로에 대한 내용은 고려되지 못했다. Aoyagi 등

(Aoyagi *et al.*[2011])은 주입정 근처에 대규모 단층이 2개가 있는 경우, 단층으로의 CO₂ 누출과정을 TOUGH2 소프트웨어를 사용하여 해석하였다. Aoyagi 등의 연구는 해양 지중을 대상으로 수치해석 하였으나, 해양의 영향을 경계조건에 구체적으로 적용하지 못했고, 주입량도 실증 사업에 적합한 연간 100만 주입량에 절반에 해당하는 연간 50만 톤 주입량을 해석 조건으로 설정하였다. 국내에서도 CO₂ 지중저장 시 누출에 대한 연구가 최근에 발표되고 있다. 김현우 등(Kim *et al.*[2013])은 기존 연구들을 분석하여, 현지조사를 통한 현지응력의 크기와 방향, 유체압력 분포, 단층 분포 등에 대한 불확실성 평가 연구, 부지 선정 결정 단계에서의 모델링 수행 연구, 단층 활성화 가능성 평가 및 추정 연구 등을 통해 CO₂ 지중 저장 시 단층의 안정성을 평가할 수 있는 방법을 소개하였다. 기존의 연구 사례를 종합해 보면, CO₂ 주입과 누출을 모두 포함하는 해석을 수행한 경우는 많지 않고, 또한 현재 전세계적으로 계획하고 있는 연간 100만 톤급 이상의 주입량을 해석한 경우도 거의 없다. 그리고 국내에서 CO₂ 지중 저장으로 계획하고 있는 해양 지중 저장을 대상으로 누출을 해석한 경우도 그 사례를 찾아보기가 매우 힘들다.

본 연구에서는 CO₂를 해양의 퇴적층 중 대염수층에 저장할 때, 주입정으로부터 1 km 떨어진 곳에 존재하는 대규모 단층을 통하여 CO₂가 누출되는 시나리오를 가정하여 수치해석 연구를 수행하였다. 실제 저장 사업이 이루어 진다면, 본 연구에서 검토하는 시나리오가 발생할 가능성이 거의 없는 안전한 지층구조가 저장지로 선택될 것이다. 하지만 본 연구에서 다루는 최악의 시나리오에 대한 검토는 안정성 평가 능력 확보차원에서 반드시 필요하다. CO₂ 주입량의 영향, 시간대별 CO₂의 분포, 해저면으로의 CO₂ 누출율, 누출 특성, 누적 누출량 등이 본 연구의 주된 연구 내용이다. 대기 중으로 누출이 아닌, 해양으로 누출이라는 조건을 경계조건에 반영하여, 기존 연구와 차별화를 시도하였다. 대염수층의 경우, 고갈 유가스전과는 달리 폐공이 존재하는 경우가 제한적이므로, 폐공으로 인한 누출은 본 연구에서는 고려하지 않았다.

2. 해석 대상 및 수치해석 방법

본 연구에서는 대륙붕 대염수층에 CO₂ 저장 시 단층으로의 누출율을 정량적으로 예측하기 위해서 수치해석적 연구를 수행하였다. 다공성 물질 내에서 다상, 다성분, 비 단열 유동을 해석할 수 있는 TOUGH2-MP/ECO2N(Pruess *et al.*[1999]; Pruess[2005]; Zhang *et al.*[2008])가 수치해석에 사용되었다. TOUGH2는 지열, 석유 및 천연가스 저장소, 핵폐기물 처리 등의 분야에서 널리 사용되어 왔으며, 최근에는 CO₂ 지중저장 분야에서도 많이 사용되고 있다. TOUGH2는 기체와 액체의 유동, 잠열 및 혼열의 이송, 기상/액상 간의 상변화 등을 모두 해석할 수 있다. 높은 압력하에서 중력을 고려한 점성 유동은 Darcy's Law(Kaviany[1995])를 사용하여 계산된다. 상대 투수성 함수를 사용하여 기상과 액상간의 상호 간섭을 표현하고, 모세관압을 고려한 액체의 거동을 계산한다. 온도장은 에너지 방정식을 사용하여 해석되고, 전도, 대류, 그리고 혼열과 잠

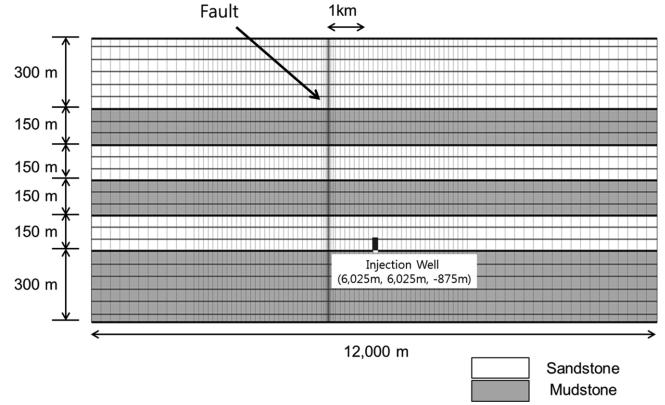


Fig. 1. Cross sectional schematic of geometry including location of injection well and faults. The white and grey colors represent sandstone and mudstone respectively. Axes are not scaled.

열의 이원 확산을 고려할 수 있다.

본 연구는 울릉분지 돌고래 II 시추공의 주상도(well logging data)와 유사한 지형을 단순화하여 모델링 하였고, Fig. 1은 모델링 된 충서 단면(stratigraphic profile)과 해석 격자를 보여준다. 해석 영역의 경계에서 CO₂ 주입으로 인한 압력 상승의 영향이 있게 되면 수치해석적으로 경계조건을 적용하기가 매우 어렵게 된다. 따라서 해석 영역의 경계에서 CO₂ 주입으로 인한 압력 상승의 영향을 배제하기 위해서 전체 해석 영역을 Fig. 2처럼 1.2 km의 두께를 갖는 12 km×12 km의 3차원 공간으로 선정하였다. Fig. 1에서 해석영역은 해양의 지중공간만 포함하고, 단면 상부 경계는 해저면으로 수심은 150 m로 가정되었다. 해저 면에서 300 m 하부 영역에는 사암층이 존재하고, 그 아래로 150 m 간격으로 이암(mudstone)과 시암이 번갈아 가며 해저면 900 m까지 존재한다. 해저 900 m 아래의 바닥 부분에는 이암이 존재한다고 가정하였다. CO₂는 사암층에 주입되며 구체적인 주입 지점은 Fig. 1에 표기한 바와 같이 X=6,025 m, Y=6,025 m, Z=-875 m이다. 단층 1은 주입 정으로부터 X 방향으로 -1,000 m 떨어져 있다고 가정되었다. 현실적으로 주입정주위 반경 1 km 안에 거대 단층이 존재하기는 매우 어려우나 본 연구에서는 극단적 상황을 가정하여 저장의 안정성을 평가하고자 한다. 실제 단층의 너비가 1 m 보다 큰 경우는 거의 없으나(Walsh *et al.*[1998]), 본 연구에서는 수치해석적 안정성을 확보하기 위해서 단층의 크기를 6 m로 가정하였다. 본 연구에서처럼 수치해석 영역의 크기가 12 km × 12 km × 1.2 km 로 매우 크고, 100 년이라는 긴 시간을 수치해석하기 위해서는, 시간 간격(Δt)이 매우 커야 하고, 따라서 CFL (Courant-Friedrichs-Lowy) 조건을 만족시키기 위해서는 격자의 크기를 미터 단위 이하로 작게 할 수는 없다. 따라서 본 연구에서는 안정적인 수렴해를 얻기 위해서 단층의 크기를 불가피하게 실제보다 크게 가정하였다. 총 해석 격자 수는 101×80×26 개이다. 주입 정 및 단층 요소 주변의 격자 너비는 100 m이고 그 이외의 지역은 200 m이다. 단층의 격자 너비는 2 m로 조밀하게 구성하였고, 단층 주위의 격자도 Fig. 1에 도시된 바와 같이 단층에 근접할수록 조밀

Table 1. Properties of rock materials

Parameter	Sandstone	Mudstone	Fault
Density	2,640 kg/m ³	2,445 kg/m ³	2,640 kg/m ³
Porosity	0.2	0.1	0.2
Permeability (direction)	100 mD (X, Y) 10 mD (Z)	500 nD (X, Y) 50 nD (Z)	100 mD (X) 10,000 mD (Y, Z)

Table 2. Relative permeability parameters

Parameter	Value
Irreducible liquid saturation, S_{lr}	0.3
Irreducible gas saturation, S_{gr}	0.05

하게 생성하였다. 암석과 단층의 물성치는 Table 1에 기술하였다 (Hildenbrand *et al.*[2002]; Aoyagi *et al.*[2011]).

본 연구에 사용된 상대 투수성 모델과 모세관 압력 모델은 TOUGH2-ECO2N(Pruess[2005]) 문헌에 사용된 모델과 같은 모델을 차용하였다. 참고문헌에서 사용된 모델은 CO₂ 저장에 적합한 높은 상대 투수성과 다공도를 가지는 전형적인 CO₂ 저장 지층을 모사할 수 있는 모델이다. 상대 투수성 모델로는 Corey 모델(Corey[1954])을 이용하였고, 구체적인 수식은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} k_{rl} &= \hat{S}^4, \quad k_{rg} = (1 - \hat{S})^2(1 - \hat{S}^2), \text{ when } S_{lr} < S_l < S_{gr} \\ k_{rl} &= 0, \quad k_{rg} = 1, \text{ when } S_l < S_{lr} \\ k_{rl} &= 1, \quad k_{rg} = 0, \text{ when } S_l > S_{gr} \end{aligned} \quad (1)$$

여기서, k_{rl} , k_{rg} 는 각각 액상과 기상의 상대 투수성, S_l 은 수포화도 (liquid saturation), S_{lr} 은 irreducible liquid saturation, S_{gr} 는 irreducible gas saturation이다. 여기에 사용된 변수는 Table 2에 나타내었다. 그리고 \hat{S} 는 무차원 수포화도로 아래와 같이 정의 된다.

$$\hat{S} = \frac{(S_l - S_{lr})}{(1 - S_{lr} - S_{gr})} \quad (2)$$

모세관 압력 모델로는 van Genuchten 함수(Van Genuchten [1980])를 사용하였고, 다음과 같다.

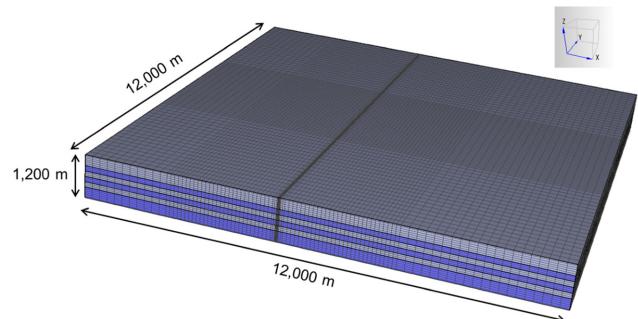
$$\begin{aligned} P_{cap} &= -P_0([S^*]^{-1/\gamma} - 1)^{1-\gamma} \quad \text{when } S_{lr} < S_l < S_{gr} \\ P_{cap} &= -P_{max}, \quad \text{when } S_l > S_{gr} \end{aligned} \quad (3)$$

$$S^* = \frac{(S_l - S_{lr})}{(1 - S_{lr})} \quad (4)$$

여기서 P_{cap} 는 모세관 압, P_0 은 강도 계수, P_{max} 는 최대 모세관 압, S^* 은 무차원 수포화도이다. 여기서 사용된 변수들(NIAIST [2001];

Table 3. Capillary pressure parameters

Parameter	Value
Irreducible liquid saturation, S_{lr}	0.29
Exponent, γ	0.457
Strength Coefficient, P_0	18.7 kPa (Sandstone) 59.10 kPa (Mudstone)
Maximum capillary pressure, P_{max}	10 ⁷ Pa

**Fig. 2.** Three-Dimensional meshes.

Pruess *et al.*[2002])은 Table 3에 명시하였다.

계산에 사용된 경계조건은 다음과 같다. 대륙붕의 수심을 150 m로 가정하여 해저면(Fig. 1의 상단 경계)이 절대압력 16 기압의 등압, 10 °C의 등온 경계조건을 가진다고 가정하였고, 계산이 진행되어도 초기의 압력과 온도 값을 유지하도록 하였다. 이는 해저면은 무한대의 저장소와 같은 역할을 하므로 특정 해저 면에서의 압력과 온도는 항상 일정한 값이 유지되기 때문이다. 해저면 이외의 다른 경계면은 유동의 유출입이 없는 경계 조건(no-flow boundary condition)을 적용하였다. 비투과 경계지층이 경계에 존재하는 경우 물리적으로 no-flow 조건과 매우 유사하고, 그 반대의 경우에는 공극수 등이 잘 투과할 수 있는 경계가 된다. No-flow 조건의 경우, 주입된 CO₂에 의해서 어떤 유체도 경계 밖으로 흘러나가지 않게 되므로 저류층 내에 압력은 지속적으로 상승하게 된다. 하지만 본 연구에서처럼 단층으로의 누출이 있는 경우는 공극수 내지 주입된 CO₂가 해저면을 통하여 외부로 누출되기 때문에 저류층 내에서의 압력상승은 제한적일 수밖에 없다. 또한 전체 계산 영역을 CO₂가 저장되는 공간보다 충분히 크게 설정하여, 계산된 저류층 내 압력의 최대 상승치는 약 3 MPa로 덮개암의 임계 압력치인 40 MPa(Goodarzi and Settari[2009]) 보다 훨씬 작아 압력 상승은 덮개암 파괴가 일어나지 않는 범위 내로 한정된다.

초기 조건으로 정수압분포와 지열온도분포를 주었다. 해저면의 압력을 고정시키고, CO₂ 주입 없이 계산하여 해양지중 내에서의 정수압 분포를 얻었다. 지열온도분포는 정수압 조건을 얻은 후, 지열 온도 구배를 0.03 °C/m로 가정하고, 정수압 조건 계산 때와 마찬가지로 해저 면의 온도를 고정시킨 후 CO₂ 주입 없이 계산하여 초기 온도 조건을 얻었다. 초기 조건 계산 결과, 계산 영역의 하부인 지중 z=-1,200 m인 경계에서 압력과 온도는 각각 13.6 MPa, 46 °C로 계산되었다.

주입되는 CO₂의 양을 연간 50 만 톤, 100 만 톤으로 바꾸어 가며 계산하였고, 주입 기간은 30 년이다. 여기서 주입량 100 만 톤은 국내 CCS 실증사업으로 계획하고 있는 주입량이다. 총 시뮬레이션 시간은 40 년으로, 주입기간 10 년과 주입종료 후 10 년을 추가로 계산하여 주입이 완료된 이후의 CO₂ 거동을 모사하였다. CO₂ 주입 중 온도장은 계산하지 않고, 각 셀에서 CO₂ 및 공극수의 온도는 초기조건에서 계산된 온도 값과 항상 같다고 가정하였다. 본

연구에서 지열 온도 구배는 고려하였으나, 온도장을 계산하지 않았기 때문에 해저면 근처에서 하이드레이트의 생성과 같은 효과는 고려할 수 없다. 또한 해석시간 단축을 위해서 성긴 격자계를 사용하였기 때문에 사암에서 부력의 효과가 다소 작게 예측되었을 가능성이 있다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 3은 CO_2 주입율이 1 $\text{MtCO}_2/\text{year}$ 인 경우, 주입정을 가로지르는 $Y=6,025 \text{ m}$ 단면에서 시간에 따른 기체의 포화도(Saturation of gas)의 변화를 나타내는 그림이고, Fig. 4는 단층의 단면을 나타내는 $X=5,025 \text{ m}$ 에서의 기체 포화도의 변화를 나타낸다. 본 연구에서 해석되는 압력과 온도의 범위 내에서, 기상의 공극수가 전체 기체상태의 질량에서 차지하는 최대 비율은 0.5~1.8% 정도이기 때문에 (Spycher *et al.*[2003]) 대부분의 기상은 CO_2 로 이루어져 있다. Fig. 3과 4는 CO_2 가 단층을 거쳐 해저면으로 유출되는 과정을 시간경과에 따라 보여주고, 원으로 표시된 곳은 CO_2 누출이 시작되었을 때와 누출이 중단되었을 때를 각각 보여준다. Fig. 3과 4에서 주입된 CO_2 는 주입이 멈추어진 $t=30 \text{ years}$ 이후 이송이 급격히 더디어지는 경향을 보여준다. 주입된 CO_2 는 압력 구배와 부력에 의해 움직이게 된다. 압력 구배는 주입된 CO_2 의 높은 압력으로 인하여 유발되나, 주입이 중단된 이후에는 주위 유체와 급격히 평형을 이루게 되므로 대부분의 압력 구배는 소멸된다. 주입 중단 이후 소멸된 압력 차는 CO_2 의 이송 추진력(driving force) 감소의 원인이 된다.

Fig. 3과 4에서 $t=30 \text{ year}$ 인 경우, 단층에서 상당량의 기체 포화도가 나타났다. 단층에 도달한 CO_2 는 대부분 부력에 의해서 상승하기 때문에, 단층에서의 높은 CO_2 분율은 부력의 힘이 강하다는 것을 나타내고 따라서 CO_2 가 해저면으로 유출된다는 것을 뜻한다. 계산의 마지막 지점인 $t=40 \text{ year}$ 에서는 단층과 해저 면이 만나는 부

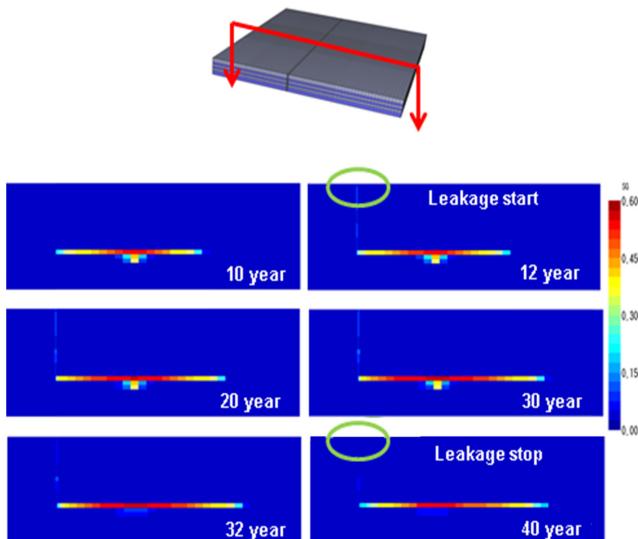


Fig. 3. Cross sectional section contours of CO_2 gas concentration at $Y=6,025 \text{ m}$ at 1 $\text{MtCO}_2/\text{year}$ injection rate.

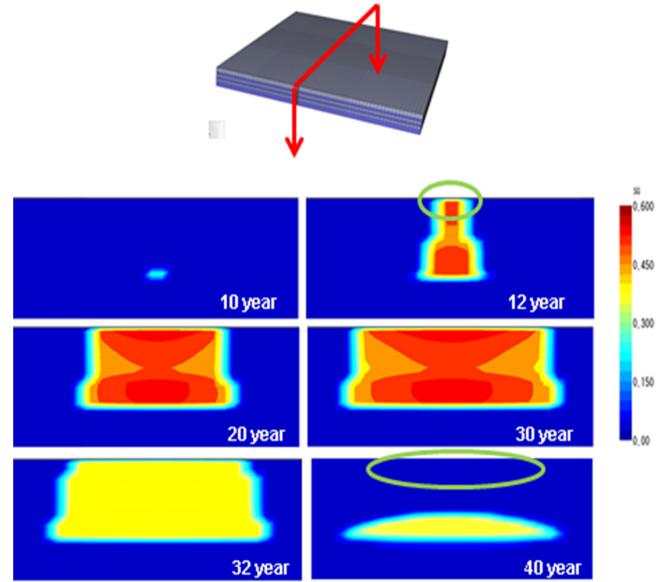


Fig. 4. Cross-sectional contours of CO_2 gas concentrations at fault at 1 $\text{MtCO}_2/\text{year}$ injection rate.

근에서 CO_2 의 분율은 0.0이었고, 단층에서의 CO_2 분율도 0.05 이하로 존재한다. CO_2 가 해저면으로 지속적으로 누출되면서 단층에서의 CO_2 분율이 0.05 이하로 작아지게 되고, Corey 모델에 의해서 기체의 상태 투수성은 0이 된다. 이는 단층 내에서 기체 포화도가 0.05 이하 상태로 존재하는 CO_2 는 잔류 포획(residual trapping)으로 인해 CO_2 가 더 이상 움직이지 않고 정체되어 있다고 해석될 수 있다. CO_2 거동에 가장 큰 영향을 미치는 압력구배는 CO_2 주입기간에는 존재하나 주입이 종료되면 구배는 사라지기 때문에, 주입기간에 CO_2 가 단층에 도달하지 못하면 단층에서 누출이 일어날 가능성은 매우 낮아진다.

Fig. 5와 6은 단층의 중심부와 해저면이 만나는 지점인 $X=5,025 \text{ m}$, $Y=6,025 \text{ m}$, $Z=-17.1 \text{ m}$ 지점에서, 주입량의 변화에 따른 압력변화 및 시간 별 누출량을 각각 보여준다. Fig. 7은 같은 지점에서 주입

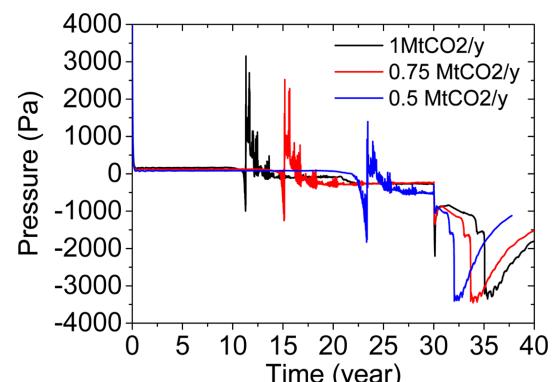


Fig. 5. Pressure changes as a function of time at point where fault and seabed meet at different injection rates of 0.50 $\text{MtCO}_2/\text{year}$, 0.75 $\text{MtCO}_2/\text{year}$ and 1 $\text{MtCO}_2/\text{year}$.

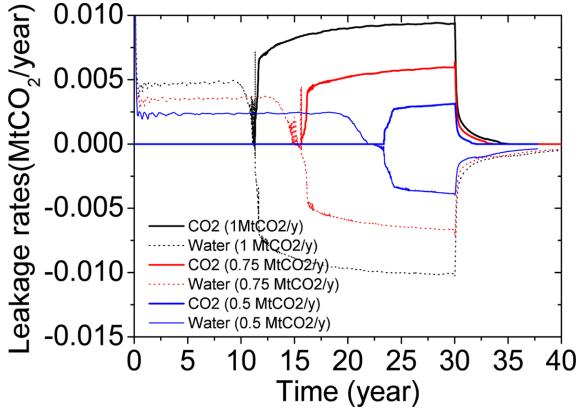


Fig. 6. CO₂ and brine leakage rates as a function of time at point where fault and seabed meet at different injection rates of 0.50 MtCO₂/year, 0.75 MtCO₂/year and 1 MtCO₂/year.

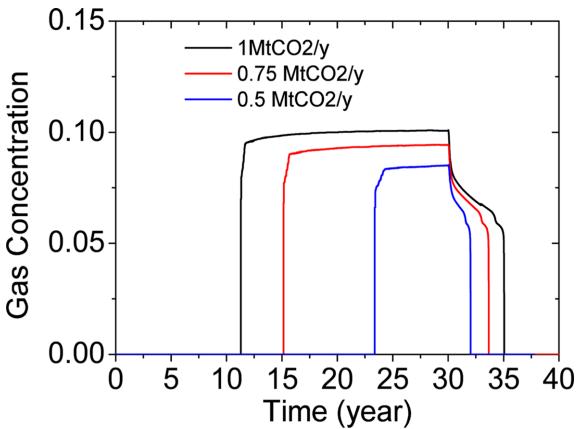


Fig. 7. CO₂ gas concentrations as a function of time at point where fault and seabed meet at different injection rates of 0.50 MtCO₂/year, 0.75 MtCO₂/year and 1 MtCO₂/year.

량 별 CO₂의 포화도를 나타낸다. 이 지점은 단층 중에서 주입정과 같은 Y좌표에 있는 지점으로, 주입정에서 단층과 해저 면이 만나는 지점까지 최단 거리로 인해 누출량이 가장 많은 지점이다. 참고로 Fig. 2에서처럼 단층은 전체 도메인에 걸쳐 Y축과 평행하게 펼쳐져 있다. 압력 차는 주입과 동시에 일정량 증가하게 되고, 압력 차에 비례해서 공극수도 Fig. 6에서처럼 CO₂주입과 거의 동시에 누출이 시작된다. CO₂가 해저 면에 도착하면서 압력 차는 급격히 상승하게 되고, CO₂가 본격적으로 누출되기 시작하는 시점에서 압력 차는 정점을 이룬다. CO₂누출 시작 시점은 주입율이 1, 0.75, 0.5 MtCO₂/year일 때 각각 11.3, 15.6, 23.2 년이다. 압력 차는 주입이 멈추게 되는 $t=30$ year 이후 음의 값을 가지게 되고, CO₂ 누출이 멈추는 지점에서 최저값에 도달한 이후 점진적으로 '0'에 수렴한다.

CO₂ 주입으로 인해 발생한 압력 차로 인하여 CO₂가 해저 면에 도달하기 전까지는 공극수가 해저면으로 누출된다. 공극수의 누출은 음용·지하수를 오염시킬 뿐만 아니라, 공극수에 포함되어 있는 중금속으로 인하여 해양으로 누출될 경우, 해양생태계에도 피해가 예상된다(Kharaka *et al.*[2009]; Prigobbe *et al.*[2014]). 따라서 공

극수 누출에 대한 모니터링은 CO₂ 누출을 사전에 탐지할 수 있다라는 장점 이외에도 공극수로 인한 환경 오염 방지를 위해서라도 반드시 필요하고 이에 관한 연구들도 최근 많이 진행되고 있다(Nogues *et al.*[2011]; Zeidouni *et al.*[2014]). CO₂가 해저 면에 도착하면서 공극수의 누출도 급격히 상승하여 최고치를 이룬 후 급격히 하락하면서 음의 값을 가지게 된다. 음의 값을 가진다는 것은 공극수가 해저면으로 누출되는 게 아니라 반대로 해수가 지층으로 유입된다는 것을 뜻한다. 즉, CO₂가 본격적으로 해저면으로의 누출이 시작되면 공극수도 같이 누출되는 게 아니라 오히려 해수가 지층으로 유입된다. 이러한 해수의 유입은 이전 연구 결과에서는 발표되지 않은 현상으로, CO₂ 해양 지중 저장 시 누출의 경우, 지표면이 아닌 해수면으로 누출이 이루어지기 때문에 2장에서 설명된 경계 조건의 중요성을 보여주는 결과라 할 수 있다. 이 현상을 설명하기 위해서 Chenj 등(Chenj *et al.*[2006])이 제안한 습윤상(wetting phase)과 비습윤상(non-wetting phase)의 속도를 나타내는 수식을 사용하였다.

$$\mathbf{u}_w = f_w \mathbf{u} + k \lambda_o f_w (\nabla P_{cap} + (\rho_w - \rho_o) g \nabla z) \quad (5)$$

$$\mathbf{u}_o = f_o \mathbf{u} + k \lambda_w f_o (\nabla P_{cap} + (\rho_o - \rho_w) g \nabla z) \quad (6)$$

위의 식에서 \mathbf{u} 는 속도 벡터, ρ 는 밀도, g 는 중력가속도, z 는 중력방향좌표, 하침자 w, o 는 각각 습윤상, 비습윤상을 뜻한다. λ_o 와 λ_w 는 각 상의 이동도(phase mobility)와 총 이동도(total mobility)로 아래와 같이 정의 된다.

$$\lambda_o = k_{ra}/\mu_o \quad (7)$$

$$\lambda = \lambda_w + \lambda_o \quad (8)$$

여기서 하침자 α 는 습윤상과 비습윤상 중 하나를 뜻한다. 분할 유동(fractional flow) 함수는 아래와 같이 정의 된다.

$$f_\alpha = \lambda_\alpha / \lambda \quad (9)$$

식 (5)의 우변에서 괄호 안의 두 항을 비교하면 부력이 해수의 유입에 미치는 영향의 정도를 알 수 있다. 모세관 압 계산에 사용된 Corey model에 의하면, 기체의 포화도가 클수록 모세관 압의 절대값은 커진다. CO₂가 해저 면에 도착하게 되면 Fig. 7에서처럼 해저 면에서 기체의 포화도가 커지게 되고 이는 Corey model에 의해서 모세관 압 절대값의 상승을 초래한다. 주입율 0.75 MtCO₂/year의 경우, 모세관 압의 절대값은 10 kPa 정도의 값을 가지게 된다. CO₂가 용해된 물의 밀도는 1,010 kg/m³ 정도이고 Fig. 1, 2에서 해수면에 닿은 CO₂의 밀도는 약 70 kg/m³이다. 이 값을 이용하여 식 (5)의 마지막 항을 계산하면 약 500 kPa로 모세관 압 차이보다 50배 큰 값을 가진다. 따라서 모세관 압이 해수의 유입에 미치는 영향은 미비하다고 할 수 있고, 이는 Fig. 6에서 CO₂의 누출량과 해수의 유입량이 비슷한 값을 가지는 근거가 된다.

Fig. 8(a)는 전체 단층 영역에서 시간에 따른 CO₂ 총 누출율 변화를 주입량에 따라 보여주고, Fig. 8(b)는 시간에 따른 누적 CO₂ 누출량 변화를 보여주는 그림으로 Fig. 8(a)를 적분하여 계산된 그

Table 4. Injected CO₂ mass and leaked CO₂ mass

Injection rate	Injected CO ₂ mass for 30 years	Total leaked CO ₂ mass	Ratio of leaked CO ₂ mass to injected mass
1.0 MtCO ₂ /year	30.0 MtCO ₂	5.86 MtCO ₂	19.5%
0.75 MtCO ₂ /year	22.5 MtCO ₂	2.58 MtCO ₂	11.5%
0.5 MtCO ₂ /year	15.0 MtCO ₂	0.42 MtCO ₂	2.8%

림이다. Table 4는 CO₂ 누적 주입량, 누적 누출량, 누적 주입량 대 누적 누출량 비율을 나타낸다. Fig. 8(a)에서 누출율이 증가하는 구간에서 계단 형태의 증가는 해석 격자의 성김과 수치 시간 간격이 조밀하지 못함에 근거한다. CO₂ 주입율이 클수록 단층으로 누출되는 CO₂의 유속은 커지므로 주입율이 1 MtCO₂/y 일 때 누출율은 가장 큰 값을 가지게 된다. 주입율이 1 MtCO₂/y 인 경우, 최대 누출율은 약 0.4 MtCO₂/y 정도의 값으로 주입율이 1 MtCO₂/y의 절반인 0.5 MtCO₂/y 일 때의 최대 누출율인 약 0.1 MtCO₂/y의 4배 이상의 값을 가지게 된다. 누출이 시작되는 시점도 Fig. 6과 마찬가지로 주입율이 작을수록 늦어져서 누적 CO₂ 누출량은 Fig. 8(b)에서 나타난 봄과 같이 주입율이 1 MtCO₂/y 일 때, 0.5 MtCO₂/y의 경우 보다 13배 이상 크게 된다. 따라서 주입량의 증가에 따른 누출량의 증가는 주입량에 선형적으로 비례하지 않고, 주입량의 증가분보다 훨씬 더 큰 폭의 누출이 발생하게 된다. 이러한 현상은 Table

4의 누적 주입량 대 누적 누출량의 비를 보면 좀 더 명확히 알 수 있다. 총 주입량 대 누출량 비율은 주입율 1 MtCO₂/year의 경우 19.5%로 0.5 MtCO₂/year 의 2.8% 대비 약 7배 정도에 해당한다. 단층이 주입정에 매우 가까운 1 km 반경에 존재하는 죄악의 시나리오의 경우에도 주입량 전체가 누출되는 것이 아니라 각종 포획 기작에 의해 주입량의 약 20% 정도만 누출된다.

4. 결 론

본 연구에서는 TOUGH2-ECO2N을 이용하여 CO₂ 해양지중 저장 시 주입정 근처에 존재하는 단층으로의 누출 과정을 수치해석 하였다. 주입된 CO₂의 주된 거동 메커니즘은 주입 압력과 부력이다. 주입부 압력이 CO₂를 단층의 하단으로 이송시킬 수 있을 만큼 충분히 커야 해수면으로 누출이 이루어 진다. 단층에 도달한 CO₂는 추가적인 압력 구배가 없어도 부력에 의해 누출된다. 단층 존재 시, 초기에는 공극수가 해저면으로 누출되다가 주입 후 10~25년 사이에 CO₂가 누출되기 시작한다. CO₂가 해저면에 도착하면 공극수의 누출은 중단되고, 누출되는 CO₂ 질량에 상응하는 해수가 단층으로 유입된다. 누적 주입량 대비 누적 누출량은 연간 CO₂ 주입량이 100 만 톤, 75 만 톤, 50 만 톤인 경우, 각각 19.5%, 11.5%, 2.8%이다.

후 기

본 논문은 2015년 해양수산부의 재원으로 한국해양과학기술진흥원의 지원을 받아 수행된 ‘CO₂ 해양지중저장기술개발’의 연구결과이며 지원에 감사 드립니다.

References

- [1] Aoyagi, R. et al., 2011, “Study on role of simulation of possible leakage from geological CO₂ storage in sub-seabed for environmental impact assessment”, Energy Procedia, Vol. 3, No. 1, 1-8.
- [2] Chenj, Z. et al., 2006, Computational method for multiphase flows in porous media, Society for Industrial and Applied Mathematics.
- [3] Corey, A. T., 1954, “The interrelation between gas and oil relative permeabilities”, Producers Monthly, Vol. 19, No. 1, 38-41.
- [4] Esposito, A. and S. M. Benson, 2011, “Remediation of possible leakage from geologic CO₂ storage reservoirs into groundwater aquifers”, Energy Procedia, Vol. 4, 3216-3223.
- [5] Folger, P., 2009, Carbon Capture and Sequestration (CCS), Con-

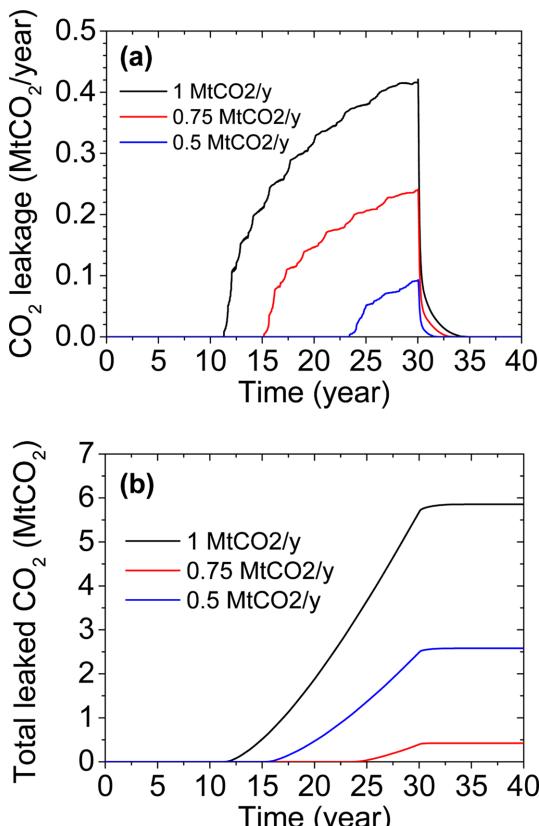


Fig. 8. (a) Total CO₂ leakage rates and (b) total accumulated leaked CO₂ mass at different injection rates of 0.50 MtCO₂/year, 0.75 MtCO₂/year and 1 MtCO₂/year.

- gressional Research Service.
- [6] Goodarzi, S. and A. T. Settari, 2009, Geomechanical modeling and analysis: Wabamun area CO₂ sequestration project (WASP), Institute for Sustainable Energy, Environment and Economy.
 - [7] Hildenbrand, *et al.*, 2002, "Gas breakthrough experiments on fine-grained sedimentary rocks", *Geofluids*, Vol. 2, No. 1, 3-23.
 - [8] IPCC, 2005, IPCC special report on carbon dioxide capture and storage, Cambridge Univ. Press.
 - [9] Kaviany, M., 1995, Principles of heat transfer in porous media, Springer.
 - [10] Kharaka, Y. K. *et al.*, 2009, "Potential environmental issues of CO₂ storage in deep saline aquifers: Geochemical results from the Frio-I Brine Pilot test, Texas, USA", *Applied Geochemistry*, Vol. 24, 1106-1112.
 - [11] Kim, H. *et al.*, 2013, "Case Study on Stability Assessment of Pre-existing Fault at CO₂ Geologic Storage", *TUNNEL & UNDERGROUND SPACE*, Vol. 23, No. 1, 13-30.
 - [12] NIAIST, 2001, "Physical Property of Rocks of Japan", from <https://gbank.gsj.jp/prock/welcome.html>.
 - [13] Nogues, J. P. *et al.*, 2011, "Detecting leakage of brine or CO₂ through abandoned wells in a geological sequestration operation using pressure monitoring wells", *Energy Procedia*, Vol. 4, 3620-3627.
 - [14] Prigobbe, V. *et al.*, 2014, "Enhanced transport of heavy metals due to a CO₂-acidified brine", *Energy Procedia*, Vol. 63, 3261-3267.
 - [15] Pruess, K., 2005, ECO2N: A TOUGH2 fluid property module for mixtures of water, NaCl, and CO₂, Lawrence Berkeley National Laboratory LBNL-57952.
 - [16] Pruess, K., 2008, "On CO₂ fluid flow and heat transfer behavior in the subsurface, following leakage from a geologic storage reservoir", *Environmental Geology*, Vol. 54, No. 8, 1677-1686.
 - [17] Pruess, K. *et al.*, 2002, Intercomparison of numerical simulation codes for geologic disposal of CO₂, Lawrence Berkeley National Laboratory, LBNL-51813.
 - [18] Pruess, K. *et al.*, 1999, TOUGH2 user's guide, version 2.0, Lawrence Berkeley National Laboratory LBNL-43134.
 - [19] Spycher, N. *et al.*, 2003, "CO₂-H₂O mixtures in the geological sequestration of CO₂. I. Assessment and calculation of mutual solubilities from 12 to 100 °C and up to 600 bar", *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol. 67, No. 16, 3015-3031.
 - [20] Van Genuchten, M. T., 1980, "A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils", *Soil Science Society of America Journal*, Vol. 44, No. 5, 892-898.
 - [21] Walsh, J. J. *et al.*, 1998, "Representation and scaling of faults in fluid flow models", *Petroleum Geoscience*, Vol. 4, 241-251.
 - [22] Zeidouni, M. *et al.*, 2014, "Monitoring above-zone temperature variations associated with CO₂ and brine leakage from a storage aquifer", *Environmental Earth Sciences*, Vol. 72, 1733-1747.
 - [23] Zhang, K. *et al.*, 2008, User's Guide for TOUGH2-MP: A Massively Parallel Version of the TOUGH2 Code, Lawrence Berkeley National Laboratory LBNL-315E.

Received 17 December 2014

1st Revised 12 January 2015, 2nd Revised 4 May 2015

Accepted 7 May 2015