

콘크리트 산업에서의 Carbon Capture Utilization/Storage (CCUS) 연구동향

State of the arts of Carbon Capture Utilization/Storage (CCUS) in the concrete industry



유일환 Ilhwan You
전북대학교
조교수
E-mail : ih-you@jbnu.ac.kr



김용선 Yong Sun Kim
전북대학교
학부연구생
E-mail : qw4126738@naver.com



김지현 Jihyeon Kim
전북대학교
학부연구생
E-mail : bbaang5@naver.com

1. 머리말

CO₂는 전체 온실가스 배출량에 90 %를 차지하며, 가장 관리가 필요한 물질로 여겨지고 있다. 파리협정 참가국들은 CO₂ 배출량을 2030년까지 2018년 대비 35% 이상 감축하는 목표(Nationally Determined Contributions, NDC)를 발표하였다. 우리나라는 이와 관련하여 총 배출량 대비 40 % 감축 (NDC 상향안)을 목표로 설정하였다 (관계부처 합동, 2021).

콘크리트 산업은 인류의 문명 발달 및 보전을 위해 많은 기여를 해왔으나, CO₂ 배출에 대해서는 막중한 책임이 있다. 콘크리트 유관 산업의 CO₂ 배출량은 산업계 중 24 %를 차지하고 있으며, 이를 전체 배출량으로 환산할 경우, 약 6.5 %에 해당한다.

콘크리트 산업에서의 탄소중립 실현을 위해 시멘트 클링커 및 화석 연료 사용의 저감 및 시멘트 생산의 효율성 증대 등의 기술이 선보되고 있으나, 이들의 기술만으로는 상기 NDC 목표 달성이 불가능한 실정이다. 국제 시멘트-콘크리트 산업 협회 (Global Cement and Concrete Association, GCCA)에서는 CO₂

5C 전략 : Clicker, Concrete, Construction, Carbonation, CCUS



그림 1. GCCA의 콘크리트 산업 탄소중립 전략(European Cement Association, 2020)

를 직접 소비할 수 있는 carbon capture utilization and storage (CCUS) 기술의 도입이 반드시 필요하다고 보고하였다. 콘크리트 산업에서의 대표적인 CCUS 기술에는 포집된 CO₂를 탄산칼슘 (CaCO₃) 등과 같은 탄산염 형태로 전환하여 콘크리트의 용골재 및 충전재로 활용하거나, 콘크리트의 구성 원료로 CO₂를 활용하는 기술이 있다. 상기 탄산염 물질은 콘크리트와 같이 pH가 높은 환경에서 용해도가 매우 낮아 물리-화학적으로 매우 안정하므로, CO₂가 다시 콘크리트 외부로 다시 방출될 위험이 적다. 이는 CO₂를 콘크리트 내부에 안정적으로 고정화할 수 있음을 의미한다. 게다가, 타 영역에 비해 거대한 물량을 가진 콘크리트 산업은 CCUS 부문에서 중추적인 역할을 할 것으로 평가되고 있다. GCCA 또한 시멘트-콘크리트 산업에서의 탄소중립을 위한 CCUS 기술의 기여도를 36%로 평가하고 있으며, 이는 관련 기술 중 가장 큰 비율을 차지한다 (<그림 1>).

범세계적인 탄소중립 최종 목표를 달성하기 위해 국내 및 국외에서 많은 CCUS 신기술이 소개되고 있으며, 이를 활용한 건설 제조업 분야에서는 비즈니스 모델까지 제시되고 있다. 본 고에서는 콘크리트 산업에서의 CCUS 기술, 즉, CO₂의 고정화 기술에 대한 기본 지식부터 최근 연구동향 그리고 산업계 동향을 살펴보고 이를 고찰하였다.

2. CCU 콘크리트의 연구동향

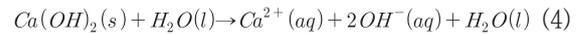
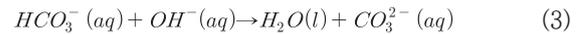
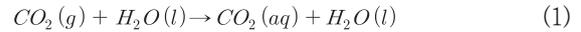
2.1 CO₂ 고정화 메커니즘

콘크리트 분야에서의 CCUS, 즉 CO₂의 고정화는 콘크리트 내구성 분야에서 잘 알려진 중성화 혹은 탄산화 현상 (자연적인 탄산화)과 매우 흡사하다. 단, 차이점이 있다면, 자연적인 탄산화는 약 400 ppm (0.04 %) 수준의 대기 중 낮은 CO₂ 농도로 콘크리트가 탄산화 되는 것이고, CCUS 기술은 인공적으로 높은 CO₂ 농도 조건을 구현하에서 콘크리트 및 관련 소재를 급속으로 탄산화 시키는 것이다 (그림 2).

콘크리트의 미시적 관점에서 탄산화 반응은 시멘트 수화물의 일종인 수산화칼슘 (Ca(OH)₂)이 CaCO₃로 전환되는 것으로 알려져 있다. 그러나 대부분의 칼슘을 함유한 수화물 (예를

들어, 칼슘-실리케이트 수화물 (C-S-H) 및 에트린자이트 (Ca₆Al₂(SO₄)₃(OH)₁₂·26H₂O 등)과 시멘트 클링커 (C₃S 및 C₂S)까지 탄산화가 될 수 있다.

대표적인 시멘트 수화물인 Ca(OH)₂를 기반한 탄산화 메커니즘은 다음과 같다.



먼저, 콘크리트 내부로 CO₂(g) 기체가 침투하면 콘크리트의 공극수로 용해 (CO₂(aq)) 된다. 이는 시멘트 수화반응으로 얻어진 수산기이온 ((OH⁻(aq))과 반응하여, 탄산수소염 (HCO₃⁻(aq))을 형성하게 되며, 이때 콘크리트 공극수의 pH가 감소하게 된다 (식 (3)). HCO₃⁻(aq)와 OH⁻(aq)의 지속적인 반응을 통해 콘크리트 공극수 내에 탄산염 이온 (CO₃²⁻(aq))이 생성하게 된다. 시멘트 수화반응으로 형성된 Ca(OH)₂(s)는 pH가 낮을수록 용해도가 높아지는 특성이 있다. 따라서 탄산화된 콘크리트의 공극수 내에는 Ca(OH)₂(s)로부터 용해된 Ca²⁺(aq)이온이 존재하게 된다. 여기서, 공극수 내, Ca²⁺(aq)와 CO₃²⁻(aq)이 과포화상태에 이르면, CaCO₃(s)이 석출되기 시작한다. 위와 같은 메커니즘을 통해서 알 수 있듯이, 탄산화 반응을 위해서는 Ca²⁺(aq)와 CO₃²⁻(aq)이 수용액에서의 이온으로 존재해야하며, 또한 물의 존재가 필수적임을 의미한다.

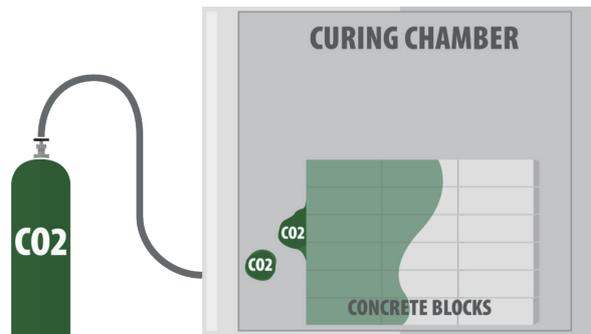


그림 2. 콘크리트 CO₂ 양생기법의 개요(KRAFT CURING. 2023)

2.2 CO₂ 고정화율 평가 방법

콘크리트가 CO₂를 저장할 수 있는 능력 (CO₂ 고정화율)을 평가하기 위해서는 열중량 분석이 중용된다. 600 °C에서 800 °C까지는 탄산염 광물에서의 CO₂가 분해되어 기체형태로 방출되며, 콘크리트 시료를 탄산화 여부에 따라 열중량 분석을 수행하면, 우리가 고정화한 CO₂의 무게를 측정할 수 있다. 다음 <그림 3>은 탄산화 여부에 따른 시멘트 페이스트 시료의 열중량 분석 결과이다.

열중량 분석을 통해 산출될 수 있는 CO₂ 고정화율은 연구자마다 상이하다. 본 고에서는 대표적인 하나의 예시를 소개하며, 다른 평가식과 그 의미는 Liu and Meng (2021)를 참고하기를 바란다.

$$CO_2 [\%] = \frac{CO_{2,c} - CO_{2,uc}}{W_c - W_{uc}} \times 100 \quad (6)$$

여기서, $CO_{2,c}$ 와 $CO_{2,uc}$ 는 각각 탄산화 된 그리고 순수한 시료에서 측정된 CO₂의 무게이며, 일반적으로 600~800 °C 사이의 중량감량이다. W_c 와 W_{uc} 는 각각 탄산화 된 그리고 순수한 시료의 중량을 의미한다. 일반적으로 시멘트에는 석회석 미분말 (탄산칼슘)이 약 5% 함유되어 있다. 따라서 고정화 된 CO₂ 무게의 과대평가를 방지하기 위해 W_{uc} 즉, 순수한 시료로부터 시멘트 본래에 존재하는 CO₂의 무게를 제외해주어야 한다.

앞서 언급된 열중량 방법은 정밀하지만, 열중량 분석기의 장비가 요구되며 분석 방법과 관련한 전문성을 요구한다. 따라서 산업에서의 적용에는 한계가 있다고 판단된다. <그림 4>와 같이, Wang et al. (2020)은 콘크리트 블록을 CO₂로 양생할 수 있는 챔버 시스템을 고안하였다. 이 챔버 시스템의 CO₂ 주입 및 배출구에는 유량계 (flow meter)가 설치되어 주입 및 배출되는 CO₂를 측정할 수 있다. 챔버가 밀실하다고 가정하면, 주입, 배출 그리고 챔버 내 잔존한 CO₂ 관계에 따라 콘크리트에 고정된 CO₂를 산출할 수 있다. 이 방법은 열중량 분석방법보다 직관적이기 때문에 대규모 물량을 다루는 콘크리트 2차 제품 제조 산업계에 적용이 용이할 것으로 판단된다.

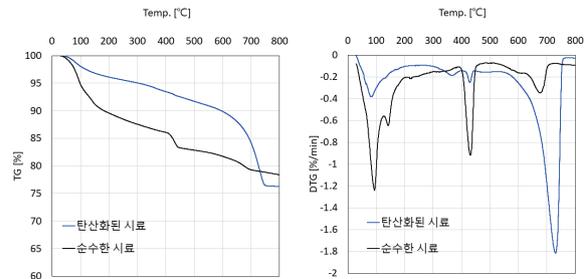


그림 3. 양생조건에 따른 시멘트 페이스트 시료의 열중량 분석결과

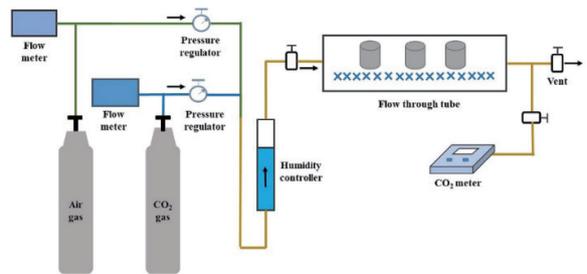


그림 4. 콘크리트 블록의 CO₂ 양생시스템 (Wang, et al. (2020))

2.3 CO₂ 고정화율에 영향을 미치는 환경적 인자

콘크리트 내 CO₂ 고정화에 영향을 미치는 환경적인 요인에는 크게 CO₂ 농도, 온도, 압력이 있다. 다음 표에 상기의 조건에 따라 CO₂ 고정화율을 나타내었다. 대체적으로 상기의 조건들이 높을수록 CO₂의 고정화율이 증가하는 것으로 보이지만, 엄밀히 말하면 CO₂ 고정화 반응속도 (탄산화 속도)를 증가시키기 때문일 것이다. 먼저 CO₂ 농도의 경우, 같은 조건의 실험체에서 CO₂의 농도가 높아질수록 CO₂의 고정화율이 증가한다. 이는 콘크리트 공극수 내 CO₂의 용해 그리고 과포화 상태로의 변화를 촉진할 수 있기 때문이다. 자연적인 대기압에서의 콘크리트 탄산화는 Fick의 확산법칙에 지배를 받는다. 챔버 내 CO₂ 압력의 증가는 CO₂를 콘크리트를 대상으로 양압조건에 놓이게 되므로 콘크리트 내부로의 침투를 촉진시킨다. 이는 마찬가지로 콘크리트 공극수 내 CO₂의 용해를 촉진시킬 수 있다. 조사된 연구들에서의 CO₂ 압력 범위는 상압에서 5 bar (0.5 MPa) 수준으로 물질의 용해도 등의 물성에 상태에 변화에는 큰 변화는 없다고 판단되므로, 이에 대한 고찰은 본 고에서 포함하지

않았다. 온도의 증가 또한 분자 활동의 증가로 인해 CO₂의 확산을 촉진 시킬 수 있다. 또한, 온도가 상승하면 콘크리트 공극의 압력이 증가하고 액체 (공극수)의 끓는점과 CO₂의 용해도 높아져, CO₂의 고정화율이 증가할 수 있다. 이에 대한 본 저자에 반론으로는 CO₂는 일반적으로 온도가 낮은 상황에서 용해도가 높다. 따라서 온도와 공극의 압력에 증가로 인한 영향에 대해서는 깊은 이해가 필요하다. 과도한 온도의 증가 (100 °C 이상)는 오히려 CO₂ 고정화율을 감소시킨다. 이는 콘크리트 내부 공극수의 증발 및 시멘트 수화물의 변화 때문으로 평가된다.

2.4 CCU 콘크리트의 물성

종래에 알려진 탄산화에 대한 인식은 철근-콘크리트 복합체의 내구성을 저해시키는 것으로 알려져 있다. 철근-콘크리트 구조로 침투된 CO₂는 철근의 부식에 의한 생성물 (Fe(OH)₂ 혹은 Fe(OH)₃)의 형성으로 인해 철근 매입부로부터 균열이 발생되는 현상을 말한다. 대체로 CO₂로 탄산화된 콘크리트에 대한 고찰이 등한시된 것으로 보이며, 마치 CO₂가 콘크리트에 부정적인 영향을 미치는 것으로 인식되어왔다. 하지만 이미 탄산화

된 콘크리트에 대한 영향이 연구된 바 있다. Chang과 Chen (2005)는 동일한 콘크리트를 일반적인 습윤 양생한 경우와 급속으로 탄산화 된 콘크리트의 공극율과 강도 그리고 탄성계수 등을 실험하였다. 그 결과, 동일한 양생 일을 기준으로 콘크리트의 공극율이 탄산화된 콘크리트가 더 낮았으며, 이로 인해 콘크리트의 강도 및 탄성계수가 증가됨을 확인하였다 (<그림 5>). 또한 Zhang et al. (2018)과 Sharma. (2020)은 각각 탄산화 된 콘크리트가 일반 습윤양생 된 콘크리트보다 동결융해 및 마모저항성에서 우수한 성능을 발휘하였음을 확인하였다. 이들의 근본적인 원인은 탄산화 반응으로 형성된 CaCO₃가 콘크리트 미세구조를 밀실하게 충전 했기 때문이다.

철근과 콘크리트는 구조체로서 매우 상호보완적인 재료들이다. 따라서 이 둘의 조합은 필수적이므로 우리는 탄산화로 인한 철근의 부식을 우려하지 않을 수는 없다. 하지만, 구조적인 관점에서 CO₂의 침투깊이 (탄산화 깊이)를 피복두께 이전까지 주입하고 이를 안정적으로 설계할 수 있는 기틀이 마련된다면, CCUS 콘크리트의 구조물 적용도 가능할 것이다. 무엇보다 콘크리트 탄산화 현상에 대한 추가적 연구를 통해 기존의 부정적인 인식에 대한 개선이 필요하다.

[표 1] CO₂ 고정화율에 대한 환경요인의 영향 (Liu et al. 2021)

시료	CO ₂ 농도 [%]	압력 [bar]	온도 [°C]	CO ₂ 고정화율 [%]
시멘트 페이스트	0.04	-	20	3.70
	1			12.75
	3			15.65
	10			18.60
	20			22.80
콘크리트	-	1	25	9.95
		2		12.21
		3		13.12
		4		13.89
		5		14.60
시멘트 페이스트	25	-	20	1.98
			60	12.84
			100	15.26
			140	11.52
			200	7.14
			300	4.80

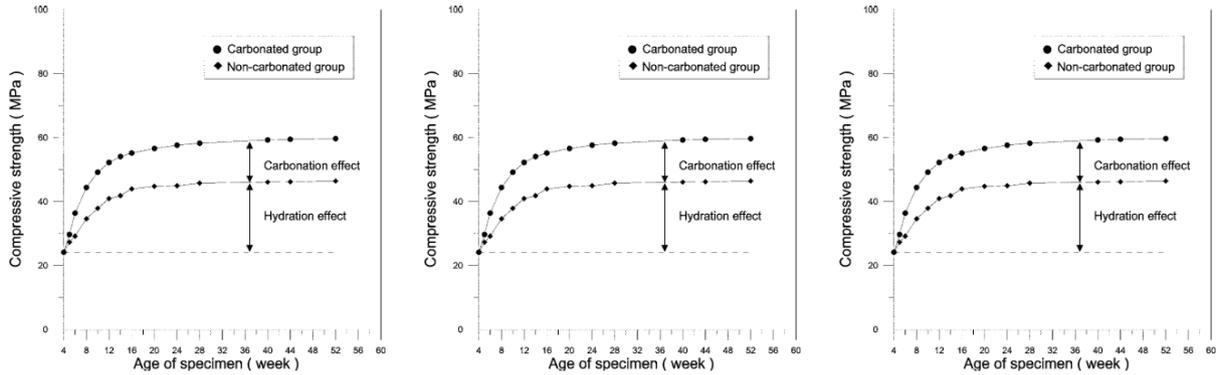


그림 5. 콘크리트의 양생조건 (습윤양생 VS CO₂ 양생)에 따른 공극율, 압축강도 그리고 탄성계수 (Chang and Chen, (2005))

2.5 관련 산업 동향

미국의 Carbon Built社は 콘크리트 배합 설계와 양생 공정에 대하여 안을 제시하였다 (<그림 6>). 콘크리트의 조성 측면에서는 Ca(OH)₂를 활용하여 기존 시멘트의 사용을 줄이고, 저비용 및 저탄소 보조 시멘트의 사용을 증가시키는 것이다. 상기의 Ca 상들은 탄산화 반응이 가장 빠른 물질로서, CO₂ 양생을 통한 CO₂ 고정화를 적극 유도할 수 있다. 또한 콘크리트 2차제품 생산 시, CO₂의 정제 및 고온 또는 고압을 필요로 하지 않는 공정을 이용하여 콘크리트 조성물을 CO₂로 양생시킨다. 이 과정에서 CO₂ 배가스부터 상업용 가스, 또는 공기로부터의 직접 포획된 까지 유연한 기술범위를 가지고 있다. 이러한 공정은 콘크리트 블록과 같은 2차 제품에 집중되어 있고, CO₂ 양생 챔버 및 각종 모듈과 관련 컨설팅의 업무도 수행하고 있다. Carbon Built社は CO₂를 활용한 콘크리트 2차제품의 양생과 콘크리트 배합설계를 통해 최소 70%, 잠재적으로 100% 이상 배출량을 줄일 수 있다고 보고하고 있으며, 콘크리트 블록과 같은 2차 제품은 이미 상용화 단계에 돌입하였다.

캐나다의 CarbonCure社は 아래의 세 가지 CCUS 콘크리트 기술을 통해 2030년까지 연간 500 Mt의 CO₂를 소비한다는 목표를 가지고 있다. CarbonCure社は precast (PC) 콘크리트 제품 사업과 더불어, 현장타설 콘크리트 용으로 레미콘 혼합 시, 액상 및 고체상의 CO₂를 콘크리트 혼합물에 분사함으로써 탄산화를 유도하는 기술을 확보하고 있다 (그림 7). 또

한 콘크리트 생산 중 생성되는 회수수에 CO₂를 주입하여 나노 스케일의 CaCO₃를 생성하고 이를 시멘트 대체재로 활용함으로써, 시멘트 생산량을 줄이는 기술이 있다. 세 번째는 재생 골재의 탄산화 기술로써, 폐콘크리트를 탄산화시켜 콘크리트 용 골재로 탈바꿈하는 것이다. CarbonCur社は 현재까지 가장 상용화에 앞서있는 회사이며, 2022년 8월 우리나라 프리캐스트 제조업체 (주)GPC와 기술이전 협의를 체결하고, 현재 CCUS 콘크리트 precast 제품을 생산을 준비하고 있다.

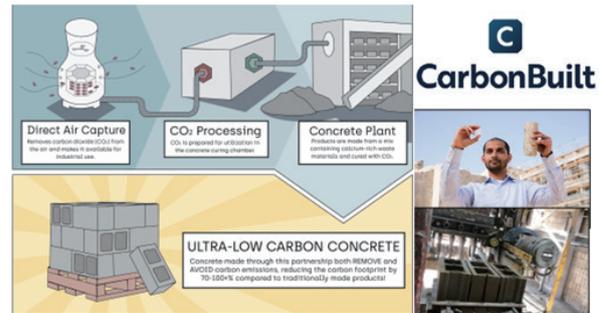


그림 6. CarbonBuilt社の 기술 개요고 탄성계수 (Chang and Chen, (2005))



그림 7. CarbonCure社の 기술 개요

3. 맺음말

CCUS 콘크리트 기술을 통한 CO₂ 저감은 직접적 혹은 간접적인 경로를 통해 이루어 질 수 있다 (<그림 8>). 먼저 직접적인 소비에서는 CCUS 콘크리트는 CO₂ 배가스를 콘크리트 제품을 제조 시 CO₂로 양생하거나, 레미콘 트럭에 CO₂를 직접 주입하여 현장타설 용 콘크리트로 제조하는 방법 그리고 탄산화 반응에 유효한 산업부산물을 탄산염 형태로 변환하여 콘크리트 용 소재로 사용하는 세 가지 방법이 있다. 상기의 방법에서 형성된 탄산염 광물들은 콘크리트 강도 발현에 긍정적인 영향을 주기 때문에 시멘트 사용을 저감할 수 있다. 이는 소요 강도를 만족하기 위한 단위 시멘트량을 줄일 수 있으며, 이를 통해 시멘트 생산 공정에서 발생하는 CO₂의 배출량 또한 간접적으로 저감할 수 있을 것이다.

현재 국내·외로 CCUS 관련 원천기술이 활발히 연구되고 있다. 하지만, CCUS 콘크리트의 탄소발자국과 같은 LCA 등의 연구도 수반되어야 한다. 앞서 언급한 바와 같이, 이미 CarbonCure社의 국내 시장 진출이 진행되었다. 따라서 국내

기술력과 선진국 기술력간의 기술격차 해소에 이은 기술권 선점에 발맞춘 R&D 사업시도가 필요하며, 무엇보다 콘크리트 탄산화에 대한 인식개선이 선행되어야 한다고 판단된다.

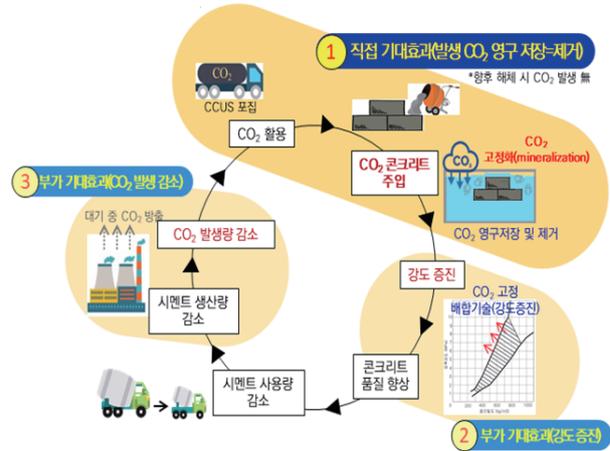


그림 8. CCUS 콘크리트의 CO₂ 저감 컨셉 (한국건설기술연구원, 2022)

참고문헌

1. 관계부처 합동, (2021), 2030 국가 온실가스 감축목표(NDC) 상향안
2. European Cement Association, (2020), Cementing the European Green Deal. The European Cement Association, Brussels.
3. Czarniecki, L. and Woyciechowski, P., 2015, Modelling of Concrete Carbonation; is it a Process Unlimited in Time and Restricted in Space?, Bulletin of the Polish Academy of Sciences Technical Sciences, Vol. 63, No. 1, 2015, pp. 43~ 54.
4. Liu, Z., and Meng, W. 2021, Fundamental understanding of carbonation curing and durability of carbonation-cured cement-based composites: A review. Journal of CO₂ Utilization, 44, 101428.
5. KRAFT CURING, GO GREEN-FUTURE-PROOFING, Accessed 2023.04.19. <https://www.kraftcuring.com/go-green-future-proofing/>
6. 김규용, 최경철, 남정수, 최형길, 2015, 탄산화 중심의 콘크리트 구조물 내구성 설계, 콘크리트학회지 27(5), pp.21-24.
7. Liu, B., Qin, J., Shi, J., Jiang, J., Wu, X., He, Z. (2021), New perspectives on utilization of CO₂ sequestration technologies in cement-based materials, Construction and Building Materials, 272, 121660.
8. Cheng-Feng, C., Jing-Wen, C. (2005), Strength and elastic modulus of carbonated concrete, ACI materials journal, 102(5), 315.
9. Wang, L, Chen, J.L, Provis, D.C.W, Tsang, C.S, Poon, 2020, Accelerated carbonation of reactive MgO and Portland cement blends under flowing CO₂ gas, Cement and Concrete Composites, 106 103489.
10. D. Zhang, Y. Shao, 2018 Surface scaling of CO₂-cured concrete exposed to freeze-thaw cycles, Journal of CO₂ Utilization, 27, 137 - 144.
11. D. Sharma, S. Goyal, 2020, Effect of accelerated carbonation curing on near surface properties of concrete, Journal of Environmental Civil Engineering, 1 - 22.
12. 한국건설기술연구원 2022, 친환경 Carbon Eating Concret (CEC) 제조 및 활용 기술 개발

담당 편집위원 : 김성겸(국립금오공과대학교)