

가속기 질량분석법에 의한 화석연료 기원 이산화탄소의 농도 분포: 대전지역을 중심으로

박중헌* · 홍 완 · 박지연 · 성기석 · 음철현

한국지질자원연구원 지질특성분석센터
(2007. 11. 2. 접수, 2008. 1. 14. 승인)

Distribution of CO₂ produced from fossil fuel by accelerator mass spectrometry: in Daejeon

Junghun Park*, Wan Hong, Ji Youn Park, Ki Seok Sung and Chul-Hun Eum

Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources, 30 Gajeong-dong,
Yuseong-gu, Daejeon, 305-350, Korea

(Received December 2, 2007; Accepted January 14, 2008)

요 약: 대전시내에서 화석연료로부터 발생된 이산화탄소의 분포를 파악하기 위하여 주요 교차로와 비교배경지역을 대상으로 나뭇잎 시료를 채취하였다. 나뭇잎 시료들은 전처리를 거친 후에 가속기 질량분석기(AMS)를 이용하여 $\Delta^{14}\text{C}$ 를 측정하였다. 측정결과, 대전 시내 나뭇잎 시료의 $\Delta^{14}\text{C}$ 값은 비교배경지역보다 27-102 % 정도 낮은 값을 보였다. 이로부터 대전 시내 대기 중의 이산화탄소 중에서 자동차 배기가스 등으로부터 배출된 화석연료 기원의 이산화탄소 비율을 구하였다. 비교배경지역으로 선정된 계룡산에서의 $\Delta^{14}\text{C}$ 값은 35 ± 8 % 이었고 이 값은 미국에서 측정된 66.3 % 보다는 다소 낮은 값이다.

Abstract: We have collected a batch of leaf samples at several main crossroads in Daejeon and a background site to obtain distribution of CO₂ (greenhouse gas) due to fossil fuel combustion. The leaf samples were treated with AAA method and $\Delta^{14}\text{C}$ values of them were measured using AMS. $\Delta^{14}\text{C}$ values of downtown sites were found to be lower by 27-102 % than that of the background site, and the ratio of CO₂ originated from fossil fuel combustion in the atmosphere of Daejeon could be calculated from the differences of $\Delta^{14}\text{C}$ values. The average $\Delta^{14}\text{C}$ of the background site, around Kyeryong mountain, was measured to be 35 ± 8 %, and this value is lower than 66.3 %, which have been known as the background values in USA.

Key words: AMS, Greenhouse gas, CO₂, ¹⁴C, fossil fuel

★ Corresponding author

Phone : +82-(0)42-868-3391 Fax : +82-(0)42-868-3393

E-mail : junghun@kigam.re.kr

1. 서 론

온실가스에 의해 지구 온난화 현상이 나타난다는 것이 밝혀지면서 이와 관련된 연구들이 활기를 띠고 있다. 이산화탄소와 같은 온실가스의 분포를 모니터링하기 위한 방법으로 최근에 AMS를 이용하여 대기 중의 ^{14}C 농도를 측정하는 연구가 시도되고 있다.¹ AMS를 이용할 경우, 대기 중의 이산화탄소 중에서 화석연료에 의해 만들어진 이산화탄소만을 구분해서 그 양을 측정하는 것이 가능하기 때문이다. 이러한 연구는 대기 중에 증가된 이산화탄소의 발생 원인을 알아내기도 하고 그 발생 원인이 되는 화력발전소나 산업단지,² 대도시³⁻⁵ 주변의 화석연료로부터 발생된 이산화탄소의 분포나 이동경향을 알아내기도 한다.

가속기 질량분석 장치(AMS)는 시료의 원자를 이온화시켜 가속시키고, 에너지와 운동량 그리고 전하상태를 분석하여 최종 얻고자 하는 원자핵의 동위원소, 예를 들면 방사성탄소(^{14}C)의 수를 정확하게 측정하는 분광기술이다.⁶ 이 기술은 동위원소 분석에 있어서 현재 최고 수준의 분해능을 가지고 있으며 측정할 수 있는 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 비율의 분해능은 10^{-15} 까지이다.⁷ 이 때문에 이 장치를 이용한 연구들이 다양한 방면에서 이루어지고 있으며 대기 중의 이산화탄소에서 화석연료에 의해 생성된 이산화탄소만의 비율을 측정하여 그 지역적인 분포를 구하는 연구들이 진행되고 있다.⁸

대기 중에 있는 이산화탄소들은 ^{12}C , ^{13}C , ^{14}C 와 같은 3가지의 동위원소들로 이루어져 있으며 그 비율은 $1.2 \times 10^{12} : 1.3 \times 10^{10} : 1$ 정도이다. 그리고 대기와 상호작용하는 식물과 식물을 먹고사는 동물의 몸을 구성하는 탄소의 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 비율도 1.2×10^{-12} 이다. 그러나 식물이나 동물이 죽고 땅속에 묻혀서 대기와 상호작용을 하지 않게 되면 불안정 동위원소인 ^{14}C 는 5730년의⁹ 반감기를 가지고 시간에 따라 감소하고 5만년이 이상이 지나가면 ^{14}C 가 거의 측정되지 않는다. 이러한 원리를 이용하여 탄소연대측정을 하기도 한다.

대기 중 탄소의 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 비율인 1.2×10^{-12} 은 5만년 이상을 두고 오랜 세월 동안 크게 변하지 않았다.¹⁰ 그러나 세 가지의 인위적인 이유로 그 비율이 급격하게 변화하게 된다. 그중 두 가지 인위적인 이유는 ^{14}C 농도를 증가시키고 다른 한 가지 인위적인 이유는 ^{14}C 농도를 감소시킨다.

^{14}C 농도를 증가시키는 두 가지 인위적인 이유를 살펴보면 첫 번째 이유는 1945년에 행해진 최초의 핵실험 이후에 1964년까지의 대규모 핵실험이다. 이 때문에 다량의 ^{14}C 가 생성되어 대기 중의 ^{14}C 농도는 급격히 증가하며 정상적인 값의 거의 두 배가 된다.¹¹ 그 이후로는 핵실험금지조약이 체결되면서 ^{14}C 농도가 감소한다. 두 번째 이유는 핵발전소에서 나오는 ^{14}C 로 인한 것이다. 이 때문에 1964년 이후 빠르게 감소하던 ^{14}C 의 농도는 그 감소 속도가 둔화되고 있다.¹²

마지막으로 ^{14}C 의 농도를 감소시키는 다른 한 가지 이유는 생성 후 최소한 수십 번의 반감기가 지나간 화석연료는 ^{14}C 가 전혀 측정되지 않는데 이러한 화석연료를 산업혁명이래로 대량으로 연소시키면서 ^{14}C 가 없는 이산화탄소가 대량으로 배출되는 것이다. 이로 인해 대기 중 ^{14}C 의 농도가 낮아진다. 이러한 현상은 산업혁명이래로 전 세계적으로 나타나고 있으며 이러한 현상을 Suess effect¹³라고 한다. 이와 같은 현상은 국부적으로도 나타나는데 예를 들자면 대도시나 산업단지 주위에서만 국부적으로 ^{14}C 의 농도가 낮아지기도 하며 이러한 현상을 regional Suess effect^{14,15}라고 하기도 한다. 또 이와 같이 ^{14}C 의 농도가 낮아진 정도를 주변 청정지역(비교배경지역)의 ^{14}C 농도와 비교하여 그 차이를 알아낸 후 대기 중의 이산화탄소 중 화석연료로부터 만들어진 이산화탄소의 비율을 알아내기도 한다.

이러한 연구는 대기시료를 직접 채취하여 하기도 하지만 나뭇잎 시료나 나이트 시료를 이용해서 하기도 한다. 나무는 광합성을 통해서 대기 중의 CO_2 를 흡수하여 탄소를 축적하고 산소를 배출하는 활동을 한다. 그리고 축적된 탄소 등을 이용하여 나뭇가지와 잎사귀를 만들므로 대기 중의 CO_2 와 같은 탄소 동위원소 비율을 가지게 된다. 따라서 대기시료를 대신해서 나뭇잎이나 나이트 시료를 사용해서 대기의 이산화탄소 중 화석연료로부터 만들어진 이산화탄소의 비율을 알아낼 수 있다.

본 연구에서는 대전 시내 주요 교차로에서 나뭇잎 시료를 채취하여 탄소의 동위원소 비를 측정하고, 그 결과로부터 regional Suess effect의 유무를 확인하였다. 또 이로부터 화석연료의 연소에 의해 생성된 이산화탄소의 양을 추정하였다. 이러한 양을 구하기 위한 비교배경지역으로는 계룡산을 선정하였다. 계룡산은 산업단지가 거의 없고 인구밀도도 낮으며 대전 서쪽에 있으므로 우리나라의 주된 공기 흐름인 서풍의 대전에서 불 때의 출발점이므로 비교배경지역으로 적당하다.

본 연구에서는 대전 시내 주요 교차로에서 나뭇잎 시료를 채취하여 탄소의 동위원소 비를 측정하고, 그 결과로부터 regional Suess effect의 유무를 확인하였다. 또 이로부터 화석연료의 연소에 의해 생성된 이산화탄소의 양을 추정하였다. 이러한 양을 구하기 위한 비교배경지역으로는 계룡산을 선정하였다. 계룡산은 산업단지가 거의 없고 인구밀도도 낮으며 대전 서쪽에 있으므로 우리나라의 주된 공기 흐름인 서풍의 대전에서 불 때의 출발점이므로 비교배경지역으로 적당하다.

2. 실험

2006년 8월 24, 25일 대전시내 주요 교차로 8군데에서 나뭇잎 시료들을 채취하였다. 채취지역은 Fig. 1에 표시되어 있다. 아울러 비교배경지역으로 선정된 계룡산의 2군데에서 나뭇잎 시료들을 채취하였다.

이와 같이 채취된 10개의 시료들은 초음파 세척기로 증류수를 이용하여 세척한 후 AAA (Acid, Alkali, Acid) 처리를 하였다. AAA 처리과정은 세단계로 되어있으며 첫 번째로 시료에 0.5 M HCl을 넣고 80도 정도로 30분 동안 가열하고 증류수로 세척하여 중성을 만들었다. 두 번째로 시료에 0.1 M NaOH를 넣고 다시 80도로 30분간 가열하고 증류수로 세척하여 중성을 만들었다. 마지막으로 시료에 0.5 M HCl을 넣고 80도로 15분 가열하고 증류수로 세척하여 중성을 만든 후 건조시켜서 AAA처리를 마쳤다. 시료들의 이와 같은 처리가 끝난 후 Elemental Analyzer (EA)를 이용하여 연소를 시켜서 CO₂를 만들었고 이 CO₂를 환원장치를 이용해서 철 촉매 하에서 환원반응을 시켜서 흑연을 얻었다¹⁷. 이렇게 얻어진 흑연은 촉매로 사용된 철가루와 함께 표적 틀에 넣고 압력을 가하여 표적을 완성하였다. 만들어진 표적은 서울대학교 기초과학 공동기기에 설치된 AMS 전용 가속기¹⁸를 이용하여 ¹⁴C/¹²C의 비율인 Δ¹⁴C와 ¹³C/¹²C의 비율인 δ¹³C가 측정되었다.

3. 결과 및 토의

Δ¹⁴C, δ¹³C의 측정결과는 Table 1과 Fig. 2에 나타내었다. 대기 중 CO₂에서 화석연료의 연소에 의해 생성된 CO₂의 함량은 아래의 식으로 구하였고,¹⁹ 그 결과를 Table 1에 수록하였다.

$$f = \text{CO}_2(\text{화석연료, \%}) = \frac{C_f}{C_s} = \frac{\Delta^{14}C_a - \Delta^{14}C_s}{\Delta^{14}C_a + 1000}$$

a : 비교배경지역 대기,

s : 측정대상지역 대기

Table 1. Measurement results of Δ¹⁴C(‰), δ¹³C(‰), f(%) at main cross roads in Daejeon city

시료명	Δ ¹⁴ C(‰)	δ ¹³ C(‰)	f (%)
대전역 사거리	-12±12	-32.4	4.6±1.4
오정사거리	-33±6	-32.9	6.6±0.9
한밭대교 사거리	-19±12	-26.3	5.3±1.4
용문사거리	-67±11	-26.9	9.9±1.3
둔산사거리	-20±13	-34.2	5.3±1.4
궁동사거리	8±10	-30.0	2.7±1.2
유성사거리	-10±12	-28.5	4.3±1.3
가수원사거리	-32±10	-30.3	6.5±1.2
계룡산 1	26±11	-31.2	
계룡산 2	48±13	-32.9	
계룡산 평균	35±8	-32.1	

Sampling places

- 10 : Daejeon station sageori
- 12 : Ojeong sageori
- 15 : Hanbat bridge sageori
- 21 : Yongmun sageori
- 24 : Dunsan sageori
- 26 : Gung-dong sageori
- 27 : Yuseong sageori
- 34 : Gasuwon sageori

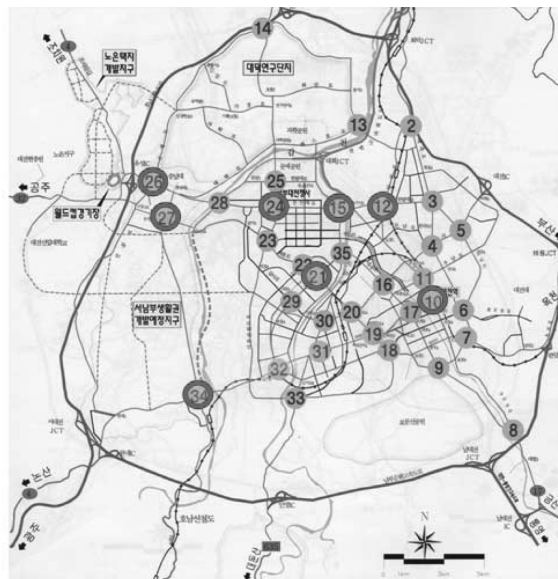


Fig. 1. Map presenting main cross road which leaf samples were collected at.¹⁶

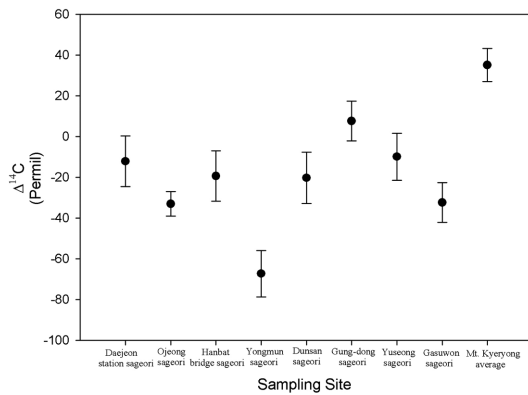


Fig. 2. $\Delta^{14}\text{C}$ of leaves samples which were collected at main cross roads in Daejeon city using AMS.

C_f : 측정대상지역 대기의 CO_2 중 화석연료에 의해 생긴 CO_2 의 양

C_s : 측정대상지역 대기의 CO_2 의 양

우선 $\Delta^{14}\text{C}$ 값들을 보면 대전 시내 주요 교차로의 $\Delta^{14}\text{C}$ 값이 비교배경지역인 계룡산의 $\Delta^{14}\text{C}$ 값보다 작으므로 regional Suess effect가 나타나고 있음을 알 수 있다. 교차로별 비교를 해보면 용문 4거리의 $\Delta^{14}\text{C}$ 값을 제외하고는 다른 지역의 $\Delta^{14}\text{C}$ 값들은 오차 범위 안에서 비슷하다고 할 수 있겠다.

비교배경지역으로 선정한 계룡산의 $\Delta^{14}\text{C}$ 값의 평균은 $35 \pm 8 \%$ 인데 이 값은 2005년에 미국에서 측정된 66.3%에 비하면 다소 낮은 값이다.⁸ 아마도 서해안 지역의 대규모 공업단지라든가 화력발전소 혹은 중국의 공업단지에서 오는 오염된 공기로 인한 효과가 아닌가 생각된다. 그렇지만 $\Delta^{14}\text{C}$ 값이 비교적 낮게 측정되었어도 대전 주변의 $\Delta^{14}\text{C}$ 값에 영향을 주는 여러 요인들을 background로 생각하고 대전시내만의 regional Suess effect를 알아보기에는 계룡산의 $\Delta^{14}\text{C}$ 값을 이용하는 것이 적절하다고 생각한다.

용문 4거리는 교통량이¹⁶ 다른 지역에 비해서 많지는 않지만 Fig. 1에서 알 수 있는 바와 같이 광범위한 인구밀집지역의 중심부에 위치하고 있음을 알 수 있다. 따라서 $\Delta^{14}\text{C}$ 값을 낮추는 쪽으로 영향을 주는 주변 환경에 위치하고 있다. 즉 용문 4거리의 교통량은 조금 작을 지라도 주변의 도로 밀도가 높으므로 주변의 교통량까지 고려하면 전체적인 교통량은 좀 더 많을 수 있다. 게다가 대전 북쪽의 신도시 부근과 달리 출퇴근 시간에는 차가 막히는 지역이므로 자동차의 주차 시간이 길어질 수 있다. 이러한

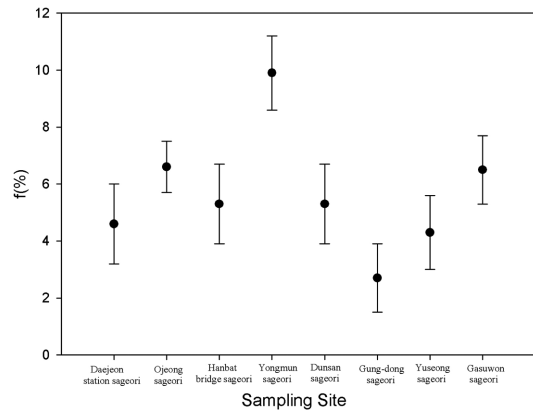


Fig. 3. The content graph of CO_2 produced from fossil fuel in Daejeon city in CO_2 of atmosphere.

여러 가지 요인들이 $\Delta^{14}\text{C}$ 값을 낮추는 쪽으로 영향을 주는 것으로 생각된다. 즉 $\Delta^{14}\text{C}$ 값은 교통량 뿐 아니라 주변의 자동차 주차시간, 바람, 공장지대의 유무 등과 같은 여러 가지 요인들이 많은 영향을 주는 것을 알 수 있다.

Fig. 3은 대기 중 CO_2 에서 화석연료에 의해 만들어진 CO_2 의 함량을 보여주는 그래프이다. 이 그래프로부터 화석연료에 의해 만들어진 CO_2 의 함량은 2-10% 정도의 값을 가지고 있음을 알 수 있다. 이 정도의 값은 정의된 식이 조금 다르지만 천안의 6-13%와 비슷하거나 조금 작다⁶. 대전 시내 교차로별 경향은 $\Delta^{14}\text{C}$ 와 같다.

4. 결 론

대전 시내 주요 교차로의 $\Delta^{14}\text{C}$ 값은 비교배경지역인 계룡산의 $\Delta^{14}\text{C}$ 값보다 27-102% 정도 낮았고, regional Suess effect가 나타나고 있음을 알 수 있었다. 이로부터 대기 중의 CO_2 중 대전 시내에서 방출된 화석연료 기원의 CO_2 의 함량은 2-10% 정도임을 알 수 있었다.

계룡산에서 측정된 대전 주변의 background $\Delta^{14}\text{C}$ 값도 미국에서 2005년도에 측정된 값보다 31% 정도 낮게 측정되고 있음을 알 수 있었다.⁸ 어떤 요인이 이와 같은 효과를 가져왔는지 알기 위하여 첫 번째로 주변의 공업단지라든가 화력발전소들을 파악하고 그 주변 $\Delta^{14}\text{C}$ 값의 분포를 조사할 필요성이 있고 두 번째로는 서해안 지역의 $\Delta^{14}\text{C}$ 값을 측정하여 중국에서 넘어오는 오염된 대기로 인한 영향인지 알아보아야 할 것이다.

감사의 글

본 연구는 한국지질자원연구원 기본사업인 ‘지질물질 특성분석 시스템 구축 및 표준화(08-3412-11)’ 과제의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

- Ingeborg Levin, Vago Hesshaimer, *Radiocarbon*, **42(1)**, 69-80(2000).
- G. Quarta, G.A. Rizzo, M. D'Elia and L. Calcagnile, *Nucl. Instr. Meth., B* **259**, 421-425(2007).
- T. Kuc, K. Rozanski, M. Zimnoch, J. M. Necki and A. Korus, *Applied Energy*, **75**, 193-203(2003).
- Andrzej Rakowski, Toshio Nakamura and Anna Pazdur, *Nucl. Instr. Meth. B*, **223-224**, 507-510(2004).
- Ingeborg Levin, K.O. Münnich and Wolfgang Weiss, *Radiocarbon*, **22**, 379-391(1980).
- 문창범, 박중현, 김인철, 김종찬, 이창학, 천명기, 강진, *새물리*, **40**, 332-338(2000).
- Claudio Tuniz, John R Bird, David Fink, Gregory and F. Herzog, "Accelerator Mass Spectrometry", 3, CRC Press, USA (1998).
- Diana, Y. Hsueh, Nir Y. Krakauer, James, T. Randerson, Xiaomei Xu, Susan, E. Trumbore and John, R. Southon, *Geophysical research letters*, **34**, L02816(2007).
- H. Godwin, *Nature*, **195**, 984(1962).
- W. F. Libby, *Phys. Rev.*, **69**, 671-672(1946).
- J. H. Park, J. C. Kim, M. K. Cheoun, I. C. Kim, M. Youn, Y. H. Liu, E. S. Kim, *Radiocarbon*, **44(2)**, 559-566(2002).
- P. L. Leung, M. J. Stokes, S. H. Qiu, L. Z. Cai, *Radiocarbon*, **37(2)**, 505-508(1995).
- Hans E. Suess, *Science*, **122**, 415-417(1955).
- ROMUALD AWSIUK and MIECZYSLAW F PAZDUR, *Radiocarbon*, **28**, 655-660(1986).
- TADEUSZ KUC and MIROSLAW ZIMNOCH, *Radiocarbon*, **40**, 417-423(1998).
- 육동일, "교통 조사 및 분석 보고서", 18, 한국, 2006.
- J. S. Vogel, J. R. Southon and D. E. Nelson, *Nucl. Instr. Meth. B*, **29**, 50-56(1987).
- J. C. Kim, C. H. Lee, I. C. Kim, J. H. Park, J. Kang, M. K. Cheoun, Y. D. Kim and C. B. Moon, *Nucl. Instr. and Meth. B*, **172**, 13-17(2000).
- 박중현 박사논문, "치악산과 계룡산의 ^{14}C level들과 경북공지역의 Suess effect", 71, 서울대, 한국 (2003).