



저작자표시-비영리-변경금지 2.0 대한민국

이용자는 아래의 조건을 따르는 경우에 한하여 자유롭게

- 이 저작물을 복제, 배포, 전송, 전시, 공연 및 방송할 수 있습니다.

다음과 같은 조건을 따라야 합니다:



저작자표시. 귀하는 원저작자를 표시하여야 합니다.



비영리. 귀하는 이 저작물을 영리 목적으로 이용할 수 없습니다.



변경금지. 귀하는 이 저작물을 개작, 변형 또는 가공할 수 없습니다.

- 귀하는, 이 저작물의 재이용이나 배포의 경우, 이 저작물에 적용된 이용허락조건을 명확하게 나타내어야 합니다.
- 저작권자로부터 별도의 허가를 받으면 이러한 조건들은 적용되지 않습니다.

저작권법에 따른 이용자의 권리는 위의 내용에 의하여 영향을 받지 않습니다.

이것은 [이용허락규약\(Legal Code\)](#)을 이해하기 쉽게 요약한 것입니다.

[Disclaimer](#)



博士學位論文

제주지역 대기 라돈과 오염물질의 시계열  
변화 및 기류 유입경로별 농도 비교

濟州大學校 大學院

化 學 科

金 淇 柱

2018年 8月

# 제주지역 대기 라돈과 오염물질의 시계열 변화 및 기류 유입경로별 농도 비교

指導教授 姜 昌 禧

金 淇 柱

이 論文을 理學 博士學位 論文으로 提出함

2018年 6月

金淇柱의 理學 博士學位 論文을 認准함

審査委員長

金 原 亨



委 員

洪 尚 範



委 員

下 鍾 轍



委 員

李 南 昊



委 員

姜 昌 禧



濟州大學校 大學院

2018年 6月



**Time-series Variation of Atmospheric Radon and  
Pollutants and Their Concentrations in Relation to  
Airflow Transport Pathways at Jeju Island**

**Ki-Ju Kim**

**(Supervised by Professor Chang-Hee Kang)**

**A thesis submitted in partial fulfillment of the requirement  
for the degree of Doctor of Philosophy**

**2018. 6.**

**This thesis has been examined and approved.**

*Won Hyung Kim*  
*Sang Bum Hong*  
*Jong Chul Byun*  
*Nam Ho Lee*  
*Chang Hee Kang*

.....  
Date

DEPARTMENT OF CHEMISTRY  
GRADUATE SCHOOL  
JEJU NATIONAL UNIVERSITY



# 목 차

List of Table	iii
List of Figures	vi
ABSTRACT	ix
I. 서 론	1
II. 연구방법	4
1. 측정소 설비 및 측정기기	4
1.1 측정소 설비	4
1.2 측정기기	5
2. 라돈 모니터링	9
3. 대기오염물질 농도 측정	10
3.1 기체상 오염물질 측정	10
3.2 PM <sub>10</sub> , PM <sub>2.5</sub> 채취 및 분석	10
4. 역궤적 분석	17
III. 결과 및 고찰	18
1. 대기 라돈 시계열 특성	18
1.1 라돈 발생 및 특성	18
1.2 제주지역 대기 라돈 농도	30
1.3 월별 및 계절별 농도 변화	34
1.4 일간 농도 변화	37
2. 기체상 오염물질 농도	40
2.1 기체상 오염물질 발생	40
2.2 기체상 오염물질 농도 및 시계열 변화	42
2.3 라돈과 기체상 오염물질의 상관성	52

3. 대기 미세먼지 농도 .....	55
3.1 PM <sub>10</sub> 및 PM <sub>2.5</sub> 미세먼지 .....	55
3.2. PM <sub>10</sub> 미세먼지 조성 .....	57
3.3. PM <sub>2.5</sub> 초미세먼지 조성 .....	73
3.4. 라돈과 미세먼지 성분의 상관성 .....	87
4. 기류 유입경로별 농도 비교 .....	90
4.1 기류 유입경로별 라돈과 기체상 오염물질 농도 비교 .....	90
4.2 기류 유입경로별 라돈과 미세먼지 농도 비교 .....	93
5. 풍향별 농도 비교 .....	98
5.1 풍향별 라돈과 기체상 오염물질 농도 비교 .....	98
5.2 풍향별 PM <sub>10</sub> , PM <sub>2.5</sub> 성분 농도 비교 .....	101
IV. 요약 및 결론 .....	116
V. 참고 문헌 .....	118

## List of Tables

Table 1. Instrumental detection limit (IDL) and coefficient of variation(CV) for IC analysis (n=7). .....	13
Table 2. Instrumental conditions and detection limit (IDL) for ICP-OES analysis. ....	15
Table 3. Instrumental conditions and detection limit (IDL) for ICP-MS analysis. ....	16
Table 4. Types of ambient radon detection system. ....	25
Table 5. $^{222}\text{Rn}$ concentration measured in the groundwater from each geology. ....	29
Table 6. Statistic summary (yearly mean, standard deviation, and distribution) of hourly radon concentrations ( $\text{mBq m}^{-3}$ ) measured during 2010-2017. ....	32
Table 7. Comparison of radon concentrations between Gosan and other sites. ....	33
Table 8. Variations of monthly mean concentrations of radon during 2010-2017. ....	35
Table 9. Variations of Seasonal mean concentrations of radon during 2010-2017. ....	35
Table 10. Variations of hourly radon concentrations. ....	38
Table 11. Concentrations of daily mean radon ( $\text{mBq m}^{-3}$ ) and gaseous pollutants (ppb) during 2010-2015. ....	43
Table 12. Hourly mean concentrations of radon and gaseous pollutants during 2010-2015. ....	48
Table 13. Monthly concentrations of radon and gaseous pollutants during 2010-2015. ....	50

Table 14. Seasonal concentrations of radon and gaseous pollutants during 2010–2015. ....	50
Table 15. Concentrations of CO, SO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub> , and NO <sub>x</sub> corresponding to high (25%), medium (50%), and low (25%) radon levels. ....	53
Table 16. Ionic concentrations of PM <sub>10</sub> aerosols. ....	61
Table 17. Monthly ionic concentrations in PM <sub>10</sub> aerosols during 2010–2015. .....	62
Table 18. Seasonal ionic concentrations in PM <sub>10</sub> aerosols during 2010–2015. ....	63
Table 19. Elemental concentrations in PM <sub>10</sub> aerosols. ....	67
Table 20. Monthly elemental concentrations in PM <sub>10</sub> aerosols during 2010–2015. .....	69
Table 21. Seasonal elemental concentrations in PM <sub>10</sub> aerosols during 2010–2015. .....	71
Table 22. Ionic concentrations in PM <sub>2.5</sub> aerosols. ....	75
Table 23. Monthly ionic concentrations in PM <sub>2.5</sub> aerosols during 2010–2015. ....	76
Table 24. Seasonal ionic concentrations in PM <sub>2.5</sub> aerosols during 2010–2015. ...	77
Table 25. Elemental concentrations of PM <sub>2.5</sub> aerosols. ....	81
Table 26. Monthly elemental concentrations in PM <sub>2.5</sub> aerosols during 2010–2015. .....	83
Table 27. Seasonal elemental concentrations in PM <sub>2.5</sub> aerosols during 2010–2015. .....	85
Table 28. Concentrations of major ionic components in PM <sub>10</sub> aerosols corresponding to high (25%), medium (50%), and low (25%) radon levels. ....	88
Table 29. Concentrations of major ionic components in PM <sub>2.5</sub> aerosols corresponding to high (25%), medium (50%), and low (25%) radon levels. ....	88
Table 30. Concentrations of radon (mBq m <sup>-3</sup> ) and gaseous pollutants (ppb) according to the cluster back trajectory analyses. ....	91
Table 31. Concentration comparison related to clustered back trajectory analysis of ionic components in PM <sub>10</sub> and PM <sub>2.5</sub> aerosols. ....	95

Table 32. Concentration comparison related to clustered back trajectory analysis of elemental components in PM <sub>10</sub> aerosol. ....	96
Table 33. Concentration comparison related to clustered back trajectory analysis of elemental components in PM <sub>2.5</sub> aerosol. ....	97
Table 34. Concentrations of radon (mBq m <sup>-3</sup> ) and gaseous pollutants (ppb) corresponding to the wind directions. ....	99
Table 35. Ionic concentrations (μg m <sup>-3</sup> ) of PM <sub>10</sub> and PM <sub>2.5</sub> corresponding to the wind directions. ....	102
Table 36. Elemental concentrations(μg m <sup>-3</sup> ) of PM <sub>10</sub> and PM <sub>2.5</sub> corresponding to the wind directions. ....	107

## List of Figures

Figure 1. Gosan station located at the western edge of Jeju Island, Korea. ....	5
Figure 2. Radon detector system (ANSTO, D1500) installed at Gosan station. .....	9
Figure 3. PM <sub>10</sub> /PM <sub>2.5</sub> sequential air sampler (APM Eng., PMS-102, 103, 104). .....	11
Figure 4. The decay chain of uranium-238 and ambient radon progenies. ....	19
Figure 5. Sources of radiation exposure (NCRP, 1987 ; USEPA, 2007). ....	20
Figure 6. Schematic diagram of the radon detector setup. ....	26
Figure 7. ANSTO's radon measurement network in the WMO/GAW stations. .....	27
Figure 8. Variation of daily radon concentrations during 2010-2017. ....	31
Figure 9. Comparison of radon concentrations for the study period. ....	32
Figure 10. Comparison of monthly radon concentrations. ....	36
Figure 11. Comparison of seasonal radon concentrations. ....	36
Figure 12. Comparison of hourly radon concentrations at Gosan site. ....	39
Figure 13. Variations of hourly mean radon concentrations by season. ....	39
Figure 14. Daily variation of radon concentrations at Gosan site during 2010-2015. ....	44
Figure 15. Daily variation of O <sub>3</sub> concentrations during 2010-2015. ....	44
Figure 16. Daily variation of CO concentrations during 2010-2015. ....	45
Figure 17. Daily variation of NO <sub>2</sub> concentrations during 2010-2015. ....	45
Figure 18. Daily variation of SO <sub>2</sub> concentrations during 2010-2015. ....	46
Figure 19. Monthly variations of radon and gaseous pollutant concentrations during 2010-2015. ....	47

Figure 20. Diurnal variation of hourly mean concentrations of radon and gaseous pollutants during 2010–2015. ....	49
Figure 21. Monthly variations of radon and gaseous pollutant concentrations during 2010–2015. ....	51
Figure 22. Comparison of CO, SO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub> , and NO <sub>x</sub> concentrations corresponding to high, medium, and low radon levels. ....	54
Figure 23. Comparisons of ionic concentrations in PM <sub>10</sub> aerosols. ....	61
Figure 24. Monthly comparisons of ionic concentrations in PM <sub>10</sub> aerosols during 2010–2015. ....	62
Figure 25. Seasonal comparisons of ionic concentrations in PM <sub>10</sub> aerosols during 2010–2015. ....	63
Figure 26. Elemental concentration comparison in PM <sub>10</sub> aerosols. ....	68
Figure 27. Monthly comparisons of elemental concentrations in PM <sub>10</sub> aerosols during 2010–2015. ....	70
Figure 28. Seasonal comparisons of elemental concentrations in PM <sub>10</sub> aerosols during 2010–2015.. ....	72
Figure 29. Ionic concentration comparison in PM <sub>2.5</sub> aerosols. ....	75
Figure 30. Monthly comparisons of ionic concentrations in PM <sub>2.5</sub> aerosols during 2010–2015. ....	76
Figure 31. Seasonal comparisons of ionic concentrations in PM <sub>2.5</sub> aerosols during 2010–2015. ....	77
Figure 32. Elemental concentration comparison in PM <sub>2.5</sub> aerosols. ....	82
Figure 33. Monthly comparisons of elemental concentrations in PM <sub>2.5</sub> aerosols during 2010–2015. ....	84
Figure 34. Seasonal comparisons of elemental concentrations in PM <sub>2.5</sub> aerosols during 2010–2015. ....	86
Figure 35. Ionic concentration comparison in PM <sub>10</sub> and PM <sub>2.5</sub> aerosols corresponding to high, medium, and low radon levels. ....	89

Figure 36. Cluster back-trajectories of air masses corresponding to radon monitoring data during 2010–2015. ....	92
Figure 37. Four sectors according to the wind directions; Sector 1 (225° ~ 351°), Sector 2 (351° ~ 40°), Sector 3 (40° ~ 135°), Sector 4 (135° ~ 225°). ....	99
Figure 38. Scattergrams of radon and gaseous pollutants corresponding to the wind directions. ....	100
Figure 39. Scattergrams of PM <sub>10</sub> ion concentrations corresponding to the wind directions. ....	104
Figure 40. Scattergrams of PM <sub>2.5</sub> ion concentrations corresponding to the wind directions. ....	106
Figure 41. Scattergrams of PM <sub>10</sub> elemental concentrations corresponding to the wind directions. ....	111
Figure 42. Scattergrams of PM <sub>2.5</sub> elemental concentrations corresponding to the wind directions. ....	115

## Abstract

The concentrations of atmospheric radon-222 and gaseous pollutants were measured at the Gosan site in Jeju Island for 2010~2017, in order to observe their time-series variation characteristics and examine the concentration changes related to the airflow transport pathways. The mean concentration of radon for the period was  $2,392 \text{ mBq m}^{-3}$ , and the annual mean concentrations were in the range of  $2,178 \sim 2,555 \text{ mBq m}^{-3}$ . In seasonal comparison, the order of the seasonal mean concentrations was as fall ( $2,892 \text{ mBq m}^{-3}$ ) > winter ( $2,839 \text{ mBq m}^{-3}$ ) > spring ( $2,192 \text{ mBq m}^{-3}$ ) > summer ( $1,831 \text{ mBq m}^{-3}$ ). The monthly mean concentrations were in the order of Nov > Oct > Jan > Dec > Feb > Sep > Mar > Jun > May > Apr > Aug > Jul, resulting that the highest concentration ( $3,012 \text{ mBq m}^{-3}$ ) on November was over twice as the lowest ( $1,458 \text{ mBq m}^{-3}$ ) on July. The diurnal variation of radon showed the highest concentration ( $2,741 \text{ mBq m}^{-3}$ ) was at around 7 a.m. and the lowest ( $1,989 \text{ mBq m}^{-3}$ ) at around 3 p.m., revealing the higher concentration increase during nighttime.

Based on the realtime monitoring of gaseous pollutants during 2010-2015, the hourly mean concentrations of  $\text{SO}_2$ , CO,  $\text{O}_3$ , and  $\text{NO}_x$  were 1.3, 377.6, 41.1, and 3.9 ppb, respectively. On monthly variations of the gaseous pollutants, the mean concentrations of  $\text{SO}_2$ , CO, and  $\text{NO}_x$  were the highest in January and the lowest in July. Some gaseous pollutants ( $\text{SO}_2$ , CO,  $\text{NO}_x$ ) showed a similar seasonal variation with radon concentration as high in winter and low in summer, whereas the  $\text{O}_3$  concentrations had a bit different seasonal trend.

According to the clustered back trajectory analyses, the frequencies of airflow pathways moving from continental North China, East China, Japan and the East Sea, Korean Peninsula, and North Pacific Ocean routes were 36, 37, 10, 13, and 4%, respectively. When the airflow were transported to Jeju

Island from continental China, the concentrations of radon and gaseous pollutants were relatively high. On the other hand, when the airflows were transported from North Pacific Ocean and East Sea, their concentrations were much lower than those from continental China. In comparison by wind direction, the concentrations of radon, SO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, CO, and major ions in PM<sub>10</sub> and PM<sub>2</sub> were relatively high when the wind blows from the northwest direction (225°-351°, China continent), showing a similar pattern of radon with other air pollutants.

# 1. 서 론

라돈은 자연계에서 가장 널리 분포하는 천연방사성 물질로 암석이나 토양에서 방출된다. 그리고 반응성이 낮아서 화학적으로는 안정하나 방사선을 방출하면서 붕괴되기 때문에 물리적으로는 불안정한 특성을 보인다. 라돈의 주요 동위원소로는 라돈( $^{222}\text{Rn}$ ), 토론( $^{220}\text{Rn}$ ), 악티논( $^{219}\text{Rn}$ ) 등이 있고, 이 중  $^{222}\text{Rn}$ 에 의한 피해가 가장 크게 나타나고 있다. 토론은 토륨( $^{232}\text{Th}$ )의 붕괴에 의해 생성되며 반감기가 55.5초로 짧다. 악티논 역시 우라늄( $^{235}\text{U}$ )의 붕괴에 의해 생성되고 반감기가 3.96초로 매우 짧아서 이들 두 성분의 대기 농도는 아주 낮다. 이와 달리 라돈은 우라늄( $^{238}\text{U}$ )의 붕괴 과정에서 생겨난 라듐( $^{226}\text{Ra}$ )의  $\alpha$ -붕괴로 생성되며 상대적으로 긴 반감기(3.82일)를 갖는다(Whittlestone and Zahorowski, 1998). 그리고 다른 동위원소들에 비해 가장 널리 분포하는 대표적인 자연방사능 물질로 4번의  $\alpha$ -붕괴와 4번의  $\beta$ -붕괴를 거쳐 최종적으로  $^{206}\text{Pb}$ 으로 안정화된다(Moon *et al.*, 2009; WMO/GAW, 2004).

라돈에 의한 피폭은 자체보다는 주로 라돈 자핵종인  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Po}$ 의  $\alpha$ -붕괴에 의해 발생하며, 방사선에 장기간 노출 시 폐 조직이 손상되어 폐암을 유발하는 것으로 알려져 있다. 또 라돈 붕괴과정에서 생성되는 라돈 자핵종은 고체물질로 정전기 전하를 띤 입자이다. 따라서 공기에 존재하는 먼지, 담배연기, 수증기 등에 흡착되면 에어로졸 형태로 폐에 침착된다. 이들 중 일부는 폐에서 제거되거나 기침으로 배출되지만 대부분은 붕괴과정에서  $\alpha$ -ray를 방출하여 장기적으로 폐암을 유발한다(Choi *et al.*, 2009; Miles, 1988). 또한 미국 환경청(EPA)과 NAS(National Academy of Sciences)에 의하면 라돈이 담배 흡연에 이어 두 번째로 폐암 발생률을 높이고, 라돈에 대한 노출로 연간 15,000~25,000명의 폐암 사망자가 발생한다고 보고되고 있다(US EPA 2003; NRC, 2000).

세계기상기구/지구대기감시소(WMO/GAW, World Meteorological Organization /Global Atmospheric Watch)에서는 라돈을 주요 관측요소에 포함시켜 지속적으로 관리하도록 권장하고 있다. 관측을 요하는 주요 방사능 물질로는  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^7\text{Be}$  등이 있다(WMO/GAW, 2001). 이 중  $^{222}\text{Rn}$ 은 자연계에 널리 분포하는 주요 자연방사능 물질로 인체 노출 방사선량의 50% 이상을 차지한다

(Almeida *et al*, 2004). 2007년 한국원자력안전기술원에서 국민 방사선 위해도 평가를 조사한 결과, 자연방사선원에 의한 우리 국민 총 피폭 유효선량은 2.99 mSv/y이며, 이 중 라돈 흡입에 의한 내부피폭이 1.35 mSv/y로 전체의 45% 정도를 차지하는 것으로 조사되었다(MST, 2007).

선진국에서는 1980년대부터 정부 주도로 라돈지도 작성과 실내외 라돈 조치 기준을 설정하여 체계적으로 라돈 관리대책을 시행해오고 있다. 대표적으로 미국은 환경보호국과 주정부에 의해 1980년부터 실내라돈 조사를 실시하였고, 실내 라돈 조치기준을 4 pCi/L, 수질 대체기준을 4,000 pCi/L로 설정하였다.

우리나라의 경우, 1988년 한국원자력안전기술연구원, 1992년부터 1995년까지 국립보건원에서 실내라돈 조사를 수행하였다. 또 2000년대에 한국원자력안전기술연구원이 실내공간 조사를 실시하였다(제현국, 2010; US EPA, 2003). 라돈 관리는 「실내공기질관리법」에 따라 「실내 라돈관리종합대책(2007~2012년)」을 수립하였으며, 라돈으로부터 안전한 실내환경 조성을 위하여 라돈 측정기반 구축, 라돈 노출현황 파악, 고농도 노출경로 관리 등을 추진하였다. 2008~2009년에는 전국의 초등학교와 읍/면/동사무소 1,000여 곳을 대상으로 실내 라돈 농도를 조사하였으며, 2009~2010년에는 다중이용시설, 2010년부터는 주택을 대상으로 조사하고 2015년부터 실내공기질 관리 기본 계획에 따라 지속적인 라돈 실태조사를 통해 ‘라돈 지도’를 작성하여 체계적 관리기반을 마련하고 있다.

라돈 관리에 대한 기본 법령은 원안위의 「생활주변방사선 안전관리법」과 환경부의 「실내공기질관리법」으로 실내 라돈저감 가이드라인에 따라 라돈을 17개 종류의 실내 오염물질 중의 하나로 간주하여 다중이용시설에 대한 공기질 유지를 위한 권고기준을 미국의 가옥 기준에 따라 4 pCi/L (148 Bq m<sup>-3</sup>)으로 정하고 있다. 또한 2016년부터 신축 공동주택에 대해 7개 측정항목 (formaldehyde, benzene, toluene, ethyl benzene, xylene, styrene, radon) 중의 하나로 라돈의 측정 의무를 부과하였으며 200 Bq m<sup>-3</sup>을 권고 기준으로 정하여 관리하고 있다.

최근 생활주변방사선에 대한 관심이 증가하고 있으나 국내의 라돈 관리와 감시는 주로 실내나 지하 공간을 대상으로 이루어지고 있고, 아직까지 대기 중의 라돈을 모니터링하고 감시하기 위한 연구는 미미한 실정이다. 라돈은 자연환경에 존재하는 기체 천연방사선핵종으로 대기 중에 확산되어 분포한다. 최근 발생빈도가 높은

미세먼지 등 대기오염물질과 같이 유동하는 특성을 갖고 있어서 대기오염물질 증가에 따른 대기라돈 모니터링이 중요한 의미를 갖는다. 라돈은 공기보다 9배나 무거워서 지표면에 가까울수록 농도가 더 높고 용이하게 인체로 흡입되어 위해성을 나타낸다(NIER, 2009; Ministry of Environment, 2007).

또 대기 중에서는 비교적 낮은 농도로 검출되나 화학적으로 불활성인 기체 물질이라서 넓게 확산되는 이동 특성을 보인다. 이러한 확산성 때문에 최근에는 라돈을 오염물질 수송 추적자로 활용하기 위한 연구가 이루어지고 있다.

$^{222}\text{Rn}$ 의 반감기는 3.82일 정도로 주요 대기오염물질( $\text{NO}_x$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{O}_3$  등)과 비슷한 수명을 나타낸다(Zahorowski *et al.*, 2004). 또 물에 용해되지 않고 습도, 온도, 일사량에도 안정한 불활성 물질이라서 에어로졸이나 기체상 오염물질의 장거리 수송 과정을 파악하는데 적합한 지표물질(tracer)의 특성을 갖추고 있다. 한반도의 경우 아시아대륙에서 이동하는 각종 장거리 수송 오염물질의 영향을 많이 받고 있는 것으로 나타나고 있다. 따라서 배경지역에서 대기 라돈과 오염물질 동시 모니터링을 통해 라돈을 장거리 수송 오염물질 추적자로 활용하기 위한 연구를 모색할 필요가 있다.

대기 중의 라돈농도는 실내나 지하 공간에 비해 낮기 때문에 아주 고감도의 검출기를 필요로 한다. 호주핵과학기술기구(Australian Nuclear Science and Technology Organization, ANSTO)에서는 고감도 라돈검출기를 자체적으로 설계, 제작하고 있다. 그리고 주요 WMO/GAW 관측소를 중심으로 세계 30여 지점에 측정망을 구축하여 대기 라돈을 지속적으로 모니터링하고 있다(Zahorowski *et al.*, 2004). 국내에서는 제주도 고산지역에 라돈검출기를 설치하여 2001년 초부터 미량의 대기 라돈을 지속적으로 모니터링해오고 있다. 최근에는 남극의 세종기지와 장보고기지에도 고감도 라돈검출기를 설치하여 측정시스템을 운영하고 있다.

본 연구에서는 제주도 서쪽 끝지점에 위치한 고산측정소에서 2010~2017년에 대기 라돈의 국내 배경농도를 측정하였고, 이를 기초로 라돈의 시계열 변화 특성을 조사하였다. 또 이 결과를 동일 지점에서 측정한 환경부의 주요 대기오염물질 시계열 변화와 상호 비교하여 그 특성을 조사하였다.

또한 기류 유입경로에 따라 대기 라돈과 오염물질의 농도가 어떻게 변화하는지를 상호 연계시켜 비교함으로써 라돈을 대기오염물질 장거리 이동 추적자로 활용하기 위한 가능성을 검토하고자 하였다.

## II. 연구방법

### 1. 측정소 설비 및 측정기기

#### 1.1 측정소 설비

본 연구를 위한 대기 라돈 농도는 국내 배경지역인 제주도 고산측정소(33°28'N, 127°17'E, 제주특별자치도 제주시 한경면 고산리 소재 수월봉)에서 측정하였다. 고산측정소는 제주도 서쪽 끝 지점에 위치해 있으며, 점오염원이 많은 제주시와 서귀포시에서 약 20 km 이상 떨어져 있어 국지 오염원이 적은 국내 배경지역이다. 또한 아시아대륙에서 편서풍을 타고 이동하는 대기 오염물질의 영향을 평가하기에 적합한 조건을 갖추고 있다. 고산측정소는 바다와 바로 인접해 있으며 자체오염원이 거의 없는 청정지역이고, 측정설비는 제주 고층 레이더 기상대로부터 서쪽 방향으로 약 300 m 떨어져 있는 해발 72 m의 언덕위에 위치하고 있다. 대기 라돈 농도는 2010년 1월부터 2017년 12월까지 8년간 30분 간격으로 실시간 측정하였다. 2010년 1월부터 2015년 9월까지는 고산측정소에서 측정하였고, 2015년 10월 이후에는 제주 기상청 고산기상대 비양실건물 외부 위치로 이전, 설치하여 2017년 12월까지 측정을 지속하였다.



Figure 1. Gosan station located at the western edge of Jeju Island, Korea.

## 1.2 측정기기

### 1.2.1 Radon Detector System

대기 라돈( $^{222}\text{Rn}$ ) 농도는 호주 핵과학기술기구(ANSTO)에서 자체적으로 설계, 제작한 고감도 라돈검출기(모델 D1500, 1500 L dual flow loop, two filter radon detector)를 사용하였다. 라돈검출기는 흡입 공기가 필터를 거친 후 셀 내로 유입된 라돈 또는 셀 내부에서 생성된 라돈 자핵종에서 방출된 알파입자를 측정하는 방식이다. 알파입자가  $\text{ZnS}(\text{Ag})$ 와 반응하여 섬광을 발생시키고 이를 광전증배관으로 검출하여 계수하도록 설계되어 있으며, 감도(sensitivity)  $0.28\sim 0.29 \text{ counts}\cdot\text{sec}^{-1}/\text{Bq m}^{-3}$ , 검출한계(detection limit)  $25 \text{ mBq m}^{-3}$ 의 고감도 라돈검출기이다(Whittlestone and Zahorowski, 1998).

### 1.2.2 SO<sub>2</sub> Analyzer

아황산가스 농도는 Pulsed fluorescence SO<sub>2</sub> analyzer (Thermo Environment Instruments Inc., model 43C-TL, USA)를 사용하여 측정하였고, 데이터는 Data Acquisition System을 이용하여 지속적으로 수집하였다.

### 1.2.3 NO/NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub> Analyzer

질소산화물 농도는 Chemiluminescent NO-NO<sub>2</sub>-NO<sub>x</sub> analyzer (Thermo Environment Instruments Inc., model 42C-TL, USA)를 사용하였고, 데이터는 Data Acquisition System을 이용하여 지속적으로 수집하였다.

### 1.2.4 O<sub>3</sub> Analyzer

오존 농도는 UV photometric O<sub>3</sub> Analyzer (Thermo Environment Instruments Inc., model 49C, USA)를 사용하였고, 데이터는 Data Acquisition System을 이용하여 수집하였다.

### 1.2.5 CO Analyzer

일산화탄소 농도는 Nondispersive infrared CO Analyzer (Thermo Environment Instruments Inc., model 48C, USA)를 사용하여 측정하였고, 데이터는 Data Acquisition System을 이용하여 수집하였다.

### 1.2.6 Calibration System

SO<sub>2</sub>, NO/NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>, O<sub>3</sub>, CO Analyzer의 표준검정곡선 작성용 표준기체는 Multi-gas Calibration System (Thermo Environment Instruments Inc., model 146, USA)을 사용하여 조제하였다. 이 시스템은 오존발생장치가 부착되어 있어서 일정 농도의 오존을 발생시킬 수 있고, O<sub>3</sub> Analyzer의 검정이 가능한 시스템이다.

### 1.2.7 PM<sub>10</sub> Air Sampler

PM<sub>10</sub> 미세먼지 시료는 고산측정소 현장의 컨테이너 옥상에 PM<sub>10</sub> Sequential Air Sampler (APM Engineering, PMS-103 & PMS-104, Korea)를 설치하여 채취

하였다. Air Sampler의 공기유속은 MFC (Mass Flow Controller)가 부착된 자동 시스템을 사용하여 초기부터 종료 시까지 지속적으로 16.7 L/min을 유지하였다.

#### 1.2.8 PM<sub>2.5</sub> Air Sampler

PM<sub>2.5</sub> 초미세먼지 시료는 PM<sub>2.5</sub> Sequential Air Sampler (APM Engineering, PMS-103, Korea)를 사용하여 채취하였다. Air Sampler의 공기유속은 MFC가 부착된 자동 시스템을 사용하여 초기부터 종료 시까지 지속적으로 16.7 L/min을 유지하였다. 또한 원소성분을 분석용 PM<sub>2.5</sub> 미세먼지 시료는 2010년 1월부터 2014년 8월 사이 기간에는 URG 사의 Cyclone (Model URG-2000-30EH, USA), 3단 Teflon filter pack (URG 1274., 47 mm, USA)과 공기흡입 펌프는 진공펌프(MeDO, VP0625-A1003-A, USA)를 사용하여 채취하였고, 2014년 8월부터 2015년 12월 사이 기간에는 PM<sub>2.5</sub> Sequential Air Sampler (APM Engineering, PMS-103, Korea)를 사용하여 채취하였다.

#### 1.2.9 Ion Chromatograph

미세먼지의 수용성 이온성분은 Ion Chromatograph (Metrohm, Modula IC, Switzerland)를 사용하여 분석하였다. 주요 양이온(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>) 분석에는 Metrohm 818 IC Pump와 819 IC Detector를 사용하였고 Metrohm Metrosep Cation-6-150 분리관, 음이온(Cl<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, F<sup>-</sup>, CH<sub>3</sub>SO<sub>3</sub><sup>-</sup>) 및 유기산(HCOO<sup>-</sup>, CH<sub>3</sub>COO<sup>-</sup>) 분석에는 881 Compact IC Pro와 819 IC Detector, Metrohm Metrosep A-SUPP-16 분리관을 사용하였다.

#### 1.2.10 ICP-OES Spectrophotometer

미세먼지의 원소성분(Al, Fe, Ca, Na, K, Mg, S, Ti, Mn, Ba, Sr, Zn, V, Cr, Pb, Cu, Ni, Co, Mo, Cd)은 ICP-OES (Perkin Elmer, Model OPTIMA 7300DV, USA)를 사용하여 분석하였다. ICP-OES (Inductively Coupled Plasma-Optical Emission Spectrophotometer)는 simultaneous mode, radial/axial plasma 선택형, 40.0 MHz RF power, Segmented-array CCD (Charge-Coupled device) Detector 부착 형이다.

#### 1.2.11 ICP-MS Spectrometer

원소성분 중에서 상대적으로 농도가 낮은 미량성분들(Ti, Mn, Ba, Sr, Zn, V, Cr, Cu, Ni, Co, Mo, Cd 등)은 ICP-MS (Perkin Elmer, Model ELAN DRC-e, USA)를 사용하여 분석하였다. 이 ICP-MS (Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometer)는 40 MHz RF power, DRC (Dynamic Reaction Cell), Quadrupole Mass Spectrometer 부착 형이다.

#### 1.2.12 Microwave Digestion System

미세먼지의 원소성분은 필터를 혼합산용액에 침적시켜 마이크로파 분해 장치로 용출시켰으며, 마이크로파 분해 장치는 이탈리아 MILESTONE사의 Model START D를 사용하였다.

## 2. 라돈 모니터링

제주도 고산측정소의 대기 중의 라돈 농도는 고산측정소에 호주 ANSTO에서 제작한 radon detector를 설치하여 측정하였다. 이 검출기는 감도와 검출한계가 각각  $0.28\sim 0.29 \text{ counts}\cdot\text{sec}^{-1}/\text{Bq m}^{-3}$ ,  $25 \text{ mBq m}^{-3}$ 인 고감도 시스템이다. 시료채취 공기 흡입구는 직경 50 mm HDPE (High density polyethylene) 파이프를 지상 10 m 높이로 설치하여 공기를 흡입하였고, 공기 유속은 약  $60 \text{ L min}^{-1}$ 이 되도록 조절하였다.

라돈은 30분 간격으로 실시간 측정하였고, 2010년 1월부터 2015년 9월까지의 고산측정소에서 2015년 10월 이후에는 제주기상청 고산기상대 비양실건물 외부 위치에서 2017년 12월까지 측정하였다(Figure 2).

측정 데이터 검정은 월 1회 주기로 5시간 동안 실시하였으며, 검정용 표준 물질은  $^{226}\text{Ra}$  ( $18.5\pm 4\%$  kBq, Pylon Electronic Inc., 모델 RN-2000A, Canada)를 사용하였다. 또 검출기의 바탕(background) 값은 대략 3개월 주기로 공기의 유입을 차단한 상태에서 기기 자체의 바탕(blank) 농도를 24시간 동안 측정하여 결정하였다. 이 때 바탕값은 검출기의 2차 필터에 포집된  $^{210}\text{Pb}$  (반감기 22.3년) 등과 같은 라돈 자핵종의 양에 따라 시간이 경과됨에 따라 증가 경향을 보였다.

라돈 농도는 데이터는 라돈검출기에 내장된 Campbell Scientific사의 모델 CR800 data logger를 사용하여 30분 간격으로 저장하였다. 그리고 data logger에 저장한 데이터를 컴퓨터로 전송하여 연속적으로 저장하였다.

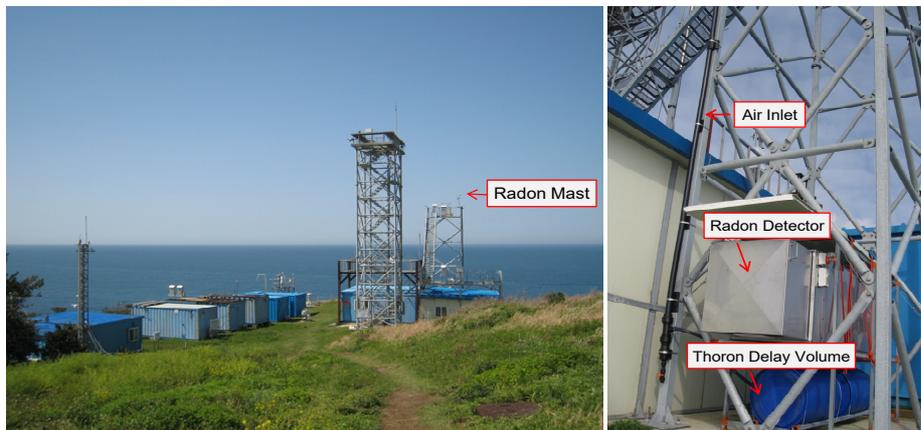


Figure 2. Radon detector system (ANSTO, D1500) installed at Gosan station.

### 3. 대기오염물질 농도 측정

#### 3.1 기체상 오염물질 측정

기체상 오염물질( $\text{NO}_x$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{O}_3$ ) 농도는 환경부 국립환경과학원이 2010년 1월부터 2015년 12월까지 고산측정소 측정한 데이터를 이용하였다. 대기오염물질 농도는 미국 Thermo Environmental Instruments Inc.에서 제작한  $\text{NO}_x$  analyzer,  $\text{SO}_2$  analyzer,  $\text{CO}$  analyzer,  $\text{O}_3$  analyzer를 사용하여 측정하였다.  $\text{NO}_x$ 는 화학발광법(chemiluminescence),  $\text{SO}_2$ 는 자외선 형광분광법(UV fluorescence)으로 측정하였고,  $\text{CO}$ 는 비분산적외선분광법(ND-IR),  $\text{O}_3$ 은 자외선광도법(UV photometric method)으로 측정하였다. 본 연구에서는 이러한 방법으로 측정한 환경부 국립환경과학원 데이터를 정보공개시스템(<https://www.nier.go.kr/NIER/index.jsp>, <https://www.open.go.kr/>)에서 제공 받아 이용하였다(NIER, 2016).

#### 3.2 $\text{PM}_{10}$ , $\text{PM}_{2.5}$ 채취 및 분석

##### 3.2.1 $\text{PM}_{10}$ , $\text{PM}_{2.5}$ 시료 채취

$\text{PM}_{10}$  미세먼지와  $\text{PM}_{2.5}$  초미세먼지 시료는 고산측정소에서 채취하였다.  $\text{PM}_{10}$  시료는  $\text{PM}_{10}$  sequential air sampler와 테프론 필터(Pall Co., Zeflour<sup>TM</sup>, 47 mm, 2.0  $\mu\text{m}$ , USA)를 사용하여 2013년 1월부터 2015년 12월까지 3일 간격, 24시간 단위로 총 이온분석용 시료 616개, 원소분석용 시료 617개를 채취하였다. 시료 채취 공기 유속은 MFC (Mass Flow Controller)가 부착된 자동 시스템을 사용하여 초기부터 종료 시까지 지속적으로 16.7 L/min을 유지하였다. 시료 필터는 현장에서 플라스틱 페트리디쉬(SPL life Science, PS, 60×15 mm)에 넣어 테프론 테일로 밀봉한 상태로 실험실로 옮긴 후 데시케이터에서 건조시킨 후 무게를 측정하였다.

PM<sub>2.5</sub> 시료는 이온 및 원소 분석용으로 분리하여 채취하였다. 수용성 이온성분 분석용은 PM<sub>2.5</sub> sequential air sampler와 테프론 필터(Pall Co., Zeflour™, 47 mm, 2.0 μm, USA)를 사용하여 2010년 1월부터 2015년 12월까지 3일 간격, 24 hr 단위로 총 이온 558개를 채취하였다. 원소 분석용 시료는 미국 URG 사의 Cyclone (Model URG-2000-30EH), APM 사의 PM<sub>2.5</sub> sequential air sampler (APM Engineering, PMS-103, Korea) 두 가지의 sampler를 병행하여 사용하고, 테프론 필터(Pall Co., Zeflour™, 47 mm, 2.0 μm, USA)를 사용하여 2010년 1월 1일부터 2015년 12월까지 6일 간격, 24 hr 단위로 총 164개를 채취하였다.

PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 미세먼지 질량은 테플론 필터를 데시케이터에서 항량이 될 때까지 (72~96 시간) 건조시킨 후 시료 채취 전과 후의 무게 차이를 측정하였다. 그리고 미세먼지 질량농도는 측정한 질량을 총 유량으로 나누어 단위 부피당 질량 (μg m<sup>-3</sup>)으로 환산하였다.



Figure 3. PM<sub>10</sub>/PM<sub>2.5</sub> sequential air sampler (APM Eng., PMS-102, 103, 104).

### 3.2.2 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 수용성 이온성분 분석

무게를 측정된 시료필터는 분석 전까지 페트리디쉬에 넣어 밀봉한 후 분석 전까지 -20℃ 냉동고에 보관하였다. PM<sub>10</sub> 시료는 필터를 이등분하여 절반은 이온성분 분석에 사용하였고, 나머지 절반은 원소 분석에 사용하였다. 반면에 PM<sub>2.5</sub> 시료는 필터 전체를 수용성 이온성분 분석에 사용하였다.

수용성 이온 성분은 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 미세입자 시료를 채취한 테프론 필터에 에탄올 0.2 mL 정도를 가하여 습윤시킨 후, 초순수 30 mL를 가하여 수용성 이온성분을 용출시켰다. 수용성 이온은 초순수를 가한 후 초음파추출기에서 30분, 진탕기에서 1시간 동안 진탕(250 rpm)하여 용출하였다. 용출액은 주사기필터(Whatman, PVDF syringe filter, 0.45 μm)로 불용성 성분을 거른 후 여액을 양이온, 음이온 분석용 시료로 사용하였다.

PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>의 수용성 이온성분은 Ion Chromatography (IC)법으로 분석하였다. 양이온 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>은 IC (Metrohm Modula IC, 818 IC Pump/819 IC detector)를 사용하여 Metrohm metrosep C6-150 분리관, 0.9 mL/min 유속, 25 μL 주입부피, 3.0 ~ 3.6 mM HNO<sub>3</sub> 용리액의 조건으로 분석하였다. 표준검정곡선은 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>의 경우 Accustandard사의 1000 ppm 표준용액을 사용하여 0.1, 0.5, 1.0, 5.0 μg/mL 농도로 희석한 용액을 이용하여 작성하였다.

음이온 (Cl<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, F<sup>-</sup>, CH<sub>3</sub>SO<sub>3</sub><sup>-</sup>) 및 유기산(HCOO<sup>-</sup>, CH<sub>3</sub>COO<sup>-</sup>)은 IC (Metrohm 881 Compact IC Pro)를 사용하여 Methrohm Metrosep A-SUPP-16 분리관, 0.8 mL/min 유속, 100 μL 주입부피, 7.5 mM Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 용리액, 200 mM H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> Suppressor 용액의 조건으로 분석하였다. 주요 음이온(Cl<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)의 표준검정곡선은 1차 표준물질(Aldrich사 99.99% K<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, 99.99% KNO<sub>3</sub>, 99.999% NaCl)로 1000 ppm 표준용액을 조제한 후 이를 0.1, 0.5, 1.0, 5.0 μg/mL 농도로 희석한 용액을 이용하여 작성하였다. 미량음이온 및 유기산 표준검정곡선은 표준용액의 농도는 10, 50, 100, 500 μg/L이며, 유기산 표준용액은 나트륨염을 초순수에 녹여 조제한 것이다.

IC 분석 시 기기검출한계(Instrumental Detection Limit, IDL)는 표준검정곡선 작성에 사용한 최소농도 표준용액을 7회 반복 분석한 후 표준편차를 구하고, 여기에 Student-t (98% 신뢰수준, 3.143) 값을 곱하여 계산하였다. IC 분석

정밀도는 기기검출한계 측정 시 7회 반복한 데이터의 표준편차와 변동계수 (CV, coefficient of variation)를 계산하여 확인하였다. 이렇게 구한 IC 분석의 기기검출한계(IDL)와 변동계수(CV)는 Table 1과 같다.

$$\text{표준편차(standard deviation) } S = \sqrt{\frac{\sum(X_i - \bar{X})^2}{N - 1}}$$

$$\text{변동계수(coefficient of variation) } CV = \frac{S}{\bar{X}} \times 100\%$$

$$IDL = S \times 3.143 \text{ (98\% confidence level, } n=7)$$

Table 1. Instrumental detection limit (IDL) and coefficient of variation(CV) for IC analysis (n=7).

Species	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>
IDL (μg/L)	3.6~6.0	3.5~6.4	5.7~7.3	4.7~16.7	4.4~9.4	3.2~4.8
CV (%)	1.3~2.1	1.0~1.9	1.7~2.4	1.4~4.9	1.4~2.9	1.3~1.5
Species	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	F <sup>-</sup>	HCOO <sup>-</sup>	CH <sub>3</sub> COO <sup>-</sup>	CH <sub>3</sub> SO <sub>3</sub> <sup>-</sup>
IDL (μg/L)	4.9~8.1	1.7~1.5	~2.9	~4.1	~2.8	~2.7
CV (%)	1.5~2.5	0.4~0.4	~2.5	~3.0	~1.8	~1.7

### 3.2.3 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 원소성분 분석

앞에서 반으로 절단한 PM<sub>10</sub> 필터와 PM<sub>2.5</sub> 필터는 마이크로파 산분해법으로 전 처리한 후 원소성분을 분석하였다. 전처리 과정은 US EPA의 ‘Compendium of Methods for the Determination of Inorganic Compounds in Ambient Air (Method IO-3)’ 방법에 따라 마이크로파 분해법으로 원소성분을 용출하였다 (Mainey and William, 1999). 시료필터를 잘게 자른 후 테프론(PFA, polyfluoroalkoxy) 용기에 넣고, 여기에 5.55% HNO<sub>3</sub>/16.75% HCl 혼합산 10 mL를 가한 후 마이크로파를 조사하여 원소성분을 용출시켰다. 마이크로파는 1000 W RF power를 조사하여 온도를 15 분 동안 180℃로 상승시키고 이 온도에서 15 분간 유지시킨 후 서서히 냉각하였다. 마이크로파 분해를 마친 용액은 주사기필터 (Whatman, PVDF syringe filter, 0.45 μm)로 불용성 입자를 거른 후, 3% HNO<sub>3</sub>/8% HCl 혼합산 5 mL와 초순수를 가하여 용량플라스크 25 mL가 되도록 희석하였다.

원소성분은 ICP-OES 또는 ICP-MS를 사용하여 Al, Fe, Ca, Na, K, Mg, S, Ti, Mn, Ba, Sr, Zn, V, Cr, Pb, Cu, Ni, Co, Mo, Cd 성분을 분석하였다. ICP-OES 분석 시 표준검정곡선 작성용 표준용액은 Accustandard사의 ICP용 1000 μg/mL 용액을 10배 묽혀 100 μg/mL 혼합 저장용액을 만든 후 이를 0.01~10.0 μg/mL 범위의 용액으로 희석하여 조제하였다. 이 때 희석용매는 매트릭스 (matrix) 효과를 최소화하기 위해 시료 전처리 과정에서 사용한 혼합산 용액 3% HNO<sub>3</sub>/8% HCl를 사용하였다. ICP-MS 분석 시 표준검정곡선 작성용 표준용액은 Perkin Elmer사의 10 μg/mL Multi-Element Solution 3 (Ag, Al, As, Ba, Be, Bi, Ca, Cd, Co, Cr, Cs, Cu, Fe, Ga, In, K, Li, Mg, Mn, Na, Ni, Pb, Rb, Se, Sr, Tl, U, V, Zn)과 10 μg/mL Multi-Element Solution 5 (B, Ge, Mo, Nb, P, Re, S, Si, Ta, Ti, W, Zr) 용액을 무게법으로 혼합한 후 1~500 μg/L 범위로 희석하여 사용하였다. 이러한 방법으로 20종의 원소성분을 ICP-OES와 ICP-MS로 분석한 기기조건과 기기검출한계는 Table 2, Table 3과 같다.

Table 2. Instrumental conditions and detection limit (IDL) for ICP-OES analysis.

---

Instrument: Perkin Elmer, Model OPTIMA 7300DV

---

Plasma conditions: RF Frequency = 40 MHz,  
RF power = 1.40 kW

Gas Flow rate: Carrier gas = Ar 0.65 L/min,  
Auxiliary gas = 0.2 L/min  
Coolant gas = 15.0 L/min

Sampling conditions: Pump Rate = 1.5 mL/min

Nebulizer: Ultrasonic (CETAC Tech., U-5000AT)

Detector: Segmented-array Charge-Coupled device Detector

---

Element	Wavelength (nm)	Detection Limit (µg/mL)	Element	Wavelength (nm)	Detection Limit (µg/mL)
Al	396.153	~0.0007	Fe	259.939	~0.0015
Ca	396.847	~0.0022	Na	589.592	~0.0030
K	766.490	~0.0035	Mg	285.213	~0.0012

---

Table 3. Instrumental conditions and detection limit (IDL) for ICP-MS analysis.

---

Instrument: Perkin Elmer, Model ELAN DRC-e

---

Plasma conditions: RF Frequency = 40 MHz,  
 RF power = 1.50 kW

Gas Flow rate: Carrier = 0.9~1.05 L/min,  
 Auxiliary = Ar 1.2 L/min,  
 Coolant = 15.0 L/min

DRC parameters: NH<sub>3</sub> reaction gas flow = 0.1~0.6 L/min

Sampling conditions: Sampling depth = 7 mm from work coil,  
 Sampling cone = Nickel, 1.1 mm orifice diameter  
 Skimmer cone = Nickel, 0.9 mm orifice diameter  
 Nebulizer = cross-flow type  
 Sampling uptake rate = 0.4 mL/min

Detector: Photomultiplier tube (PMT)

---

Element	Mass (amu)	Detection Limit (µg/L)	Element	Mass (amu)	Detection Limit (µg/L)
Ti	48	~0.0942	Mn	55	~0.0314
Ba	138	~0.0942	Sr	88	~0.0942
Zn	64	~0.2198	V	51	~0.0942
Cr	52	~0.0628	Pb	208	~0.0628
Cu	63	~0.0628	Ni	58	~0.0942
Co	59	~0.0628	Mo	98	~0.0314
Cd	111	~0.0942			

---

#### 4. 역궤적 분석

일반적으로 대기오염물질은 1.5~4 km 고도를 통해 이동하고, 특히 황사의 경우 대체적으로 500 mb 면의 아래층에서 이동되며, 주로 700 mb 면이나 850 mb 면의 하층 바람에 의해 수송되는 것으로 알려져 있다. 또한 700 mb와 850 mb 기압면에 대한 역궤적(backward trajectory)은 일기도를 이용하여 직접 작성이 가능하고, 대기 경계층 이동을 보다 잘 묘사하는 중층대기의 바람 이동을 살펴 볼 수 있는 장점을 지니고 있다.

본 연구에서는 대기 라돈 및 대기오염물질의 유입 및 이동경로 추적을 위한 역궤적 분석은 출발점 고도를 200 m로 설정하였고, 출발시간은 해당 날짜의 매 00 UTC (KST 09:00)로 설정하였다. 역궤적분석 자료는 미국 NOAA/ARL (National Oceanic and Atmospheric Administration/Air Resources Laboratory)의 HYSPLIT 4.0 (HYbrid Single Particle Lagrangian Intergrated Trajectory) 모델을 이용하였다(Song *et al.*, 2017).

기류 유입경로 추적을 위한 역궤적 분석은 제주도 고산지역(33°17'N, 126°10'E)을 도착지점으로 120시간의 역궤적 경로를 모사하였고, 역궤적 분석 결과를 기초로 궤적군집분석을 실시하여 기류의 유입경로를 군집화 하였다. 이때 사용된 기상 자료는 미국 NCEP (National Center for Environmental Prediction)의 중규모 기상모델(MRF)인 GDAS (global data assimilation system) 데이터를 이용하였다(Draxler and Rolph, 2013).

### Ⅲ. 결과 및 고찰

#### 1. 대기 라돈 시계열 특성

##### 1.1 라돈 발생 및 특성

###### 1.1.1 라돈의 발생

자연방사핵종(natural radiation nuclides)은 우라늄(U), 토륨(Th), 라듐(Ra), 폴로늄(Po) 등 40여종이 존재하며 이들 원자핵이 붕괴로 인해 자연계로 방사선을 방출한다. 방사선은 높은 에너지의 입자( $\alpha$ -ray,  $\beta$ -ray) 또는 전자파( $\gamma$ -ray)로 다양한 경로(음식, 호흡 등)를 통해 인체에 침투하여 생체조직 등에 피해를 발생시킨다(NCRP, 1987).

알파입자( $\alpha$ -ray)는 주로  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{Po}$ 의 방사성 붕괴 시 방출되며, 베타입자( $\beta$ -ray)는  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$  등의 붕괴 시 방출된다. 감마선( $\gamma$ -ray)은  $^{40}\text{K}$  등의 방사성 붕괴 시에 방출된다. 세 방사선 중 외부로부터 인체에 직접적인 침투에 의한 영향은 감마선이 비교적 크지만 인체내부에서 영향은 알파선이 가장 큰 것으로 알려져 있다(US EPA 2007). 생활환경에서 사람이 받는 방사선은 82% 정도는 자연적으로 발생한 자연방사핵종이고 나머지 18%는 인간의 인위적 활동(핵실험, 핵발전, 핵의료물질 등)에 의한 인공방사핵종에 의한 것이다(Egidi P, 1997).

자연 방사능은  $^{238}\text{U}$ 을 시조핵종으로 하는 우라늄계열,  $^{232}\text{Th}$ 을 시조핵종으로 하는 토륨계열,  $^{235}\text{U}$ 을 시조핵종으로 하는 악티늄계열이 있다.  $^{241}\text{Np}$ 을 시조핵종으로 하는 넵티늄계열은 짧은 반감기로 인해 현재는 존재하지 않는 계열이다. 계열을 이루지 않는 방사성 핵종은 우주선에 기원을 두거나 지각의 기원이 되는 방사성 원소들이 있다(R.W. Perkins, 1965 ; C.M. Lenerer, 1978). 자연방사능 붕괴계열 중에는 라듐(Ra) 네 종류( $^{223}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ )와 라돈(Rn) 세 종류( $^{219}\text{Rn}$ ,  $^{220}\text{Rn}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ )가 존재한다. 그중 반감기가 짧고 인체에 무해한 방사성 원

소를 제외하면 3.82일의 반감기를 가진  $^{222}\text{Rn}$ 은 불활성 기체로서 호흡에 의해서 체내로 유입되고 그 딸핵종들은 방사성 중금속( $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Po}$  등)으로 폐암의 원인이 되고 있다. Figure 4는  $^{238}\text{U}$ 을 시조핵종으로 하여 마지막에  $^{206}\text{Pb}$ 으로 변하는 우라늄계열을 나타낸 것이다.

자연 방사선 중 가장 큰 비율을 차지하는 것은 라돈(55%)이다(Figure 5). 라돈은 자연(공기, 토양, 지하수 등)에 널리 분포하고 있는 방사성 기체로  $^{238}\text{U}$  계열의 붕괴과정에서  $^{226}\text{Ra}$ 이 생성되고 다시 알파붕괴 과정에서 라돈( $^{222}\text{Rn}$ )이 생성된다(Almeida R.M et al, 2004).

라돈의 동위원소로는 토륨계열( $^{232}\text{Th}$  시조핵종)에서 생성되는 토론( $^{220}\text{Rn}$ )과 악티늄계열( $^{235}\text{U}$  시조핵종)에서 생성되는 악티논( $^{219}\text{Rn}$ )이 있다. 하지만 이들 동위원소들은 반감기가 각각 55.5, 3.96 초로 라돈( $^{222}\text{Rn}$ )의 3.82 일 반감기에 비해 매우 짧아 지표나 대기 중에는 라돈( $^{222}\text{Rn}$ )이 대부분 존재하여 통상 라돈을 말할 때는  $^{222}\text{Rn}$ 을 뜻한다. 라돈의 딸핵종으로는 반감기가 짧은  $^{218}\text{Po}$  (3.1 분),  $^{214}\text{Pb}$  (27 분),  $^{214}\text{Bi}$  (20 분),  $^{214}\text{Po}$  (0.0001 초) 등이 있고, 중간에  $^{210}\text{Pb}$ 을 거쳐 최종적으로 안정한  $^{206}\text{Pb}$ 로 변해간다(Zock C et al, 1996; Kendall G.M et al, 2002).

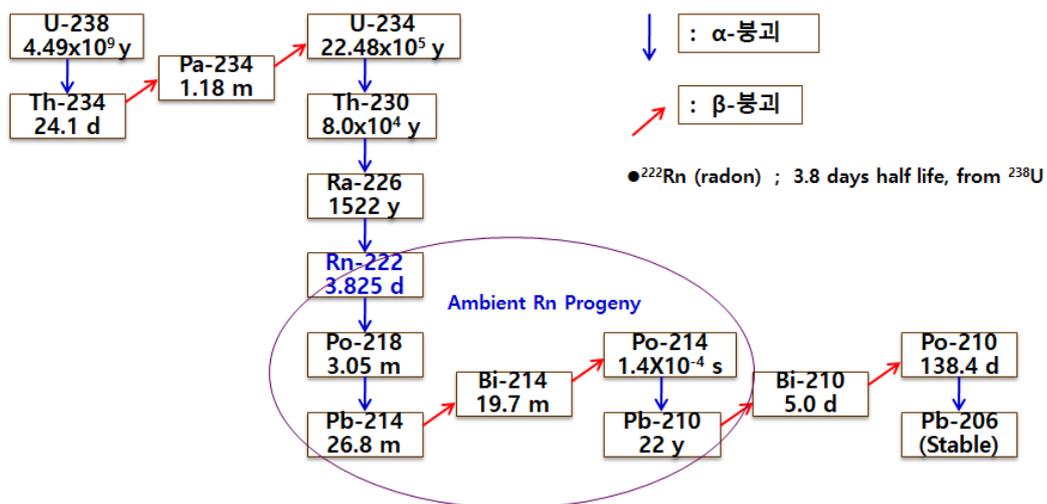


Figure 4. The decay chain of uranium-238 and ambient radon progenies.

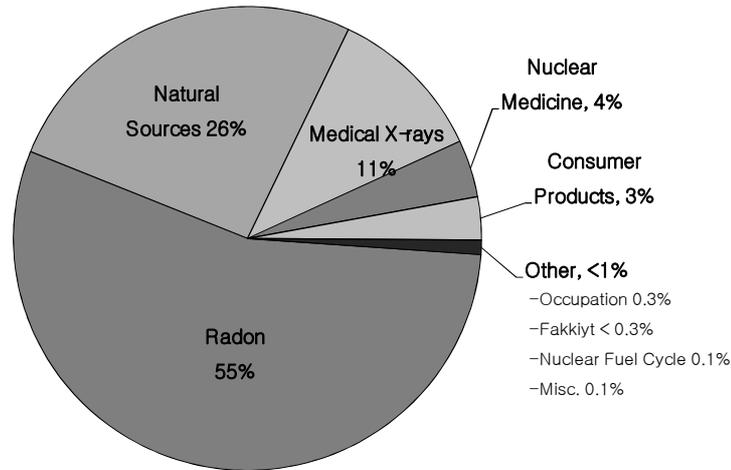


Figure 5. Sources of radiation exposure  
(NCRP, 1987 ; USEPA, 2007).

라돈은 자연에 존재하는 라듐의 붕괴에 의해 생성되는 불활성(혹은 화학적으로 비활동적인) 가스인 방사성 물질이다. 라듐은 암석이나 토양 중의 우라늄과 토륨이 납으로 자연 붕괴되는 과정에서 라듐을 생성하게 되고, 이 라듐에 의해 라돈이 생성되는 것이다. 일반적으로 라돈( $^{222}\text{Rn}$ )이라 하면 우라늄( $^{238}\text{U}$ )의 붕괴로 생성된 라듐( $^{226}\text{Ra}$ )의 붕괴산물이다. 라돈 발생원의 부분(90%정도)은 주택하부의 토양이며, 그 외에는 콘크리트, 석고보드, 석면 슬레이트 등 건축자재 중에 존재하기도 한다. 암석 중의 라돈은 화강암에 가장 높게 존재하며 다음으로는 변성암, 옥천계 변성암, 퇴적암, 화산암, 지하수 등의 순으로 존재한다.

토양에서의 라돈의 이동은 크게 두 가지의 요소로 구분할 수 있다. 첫 번째는 토양 입자의 크기에 따라 점토(<2 m), 미사(2~60 m), 모래(60~2,000 m)의 세 가지로 분류할 수 있으며, 두 번째는 토양 입자사이의 빈 공간으로서 다공성 (porosity)으로 알려져 있는 부분이다. 투과성(permeability)은 공기를 포함한 유동체가 얼마나 쉽게 토양을 통해 흐를 수 있는가를 의미한다. 점토가 투과성이 가장 낮으며, 모래가 가장 투과성이 크다. 라듐은 모든 암반 및 토양에 존재하므로 땅 속에서 라듐은 토양 입자 표면으로부터 토양 공극, 혹은 공기나 물의 빈 공간

으로 라돈을 배출한다. 토양에서 기원하는 라돈가스의 실내 유입은 강우, 적설, 토양의 동결, 실내외 온도차, 부엽토, 기압상승 등과 관계가 있으며, 특히 토양 중 수분 함유량과는 음(-)의 상관관계가 있는 것으로 보고되고 있다.

일부 토양에서 라돈농도는 200에서 2,000 pCi/L이며, 실외 공기 내의 라돈 농도는 1 pCi/L 이하부터 30 pCi/L 이상까지이며 기온역전 기간 동안에는 40 pCi/L까지 상승할 수 있다(Phillips, Eldredge and Klein, 2002). 높은 수준의 라돈 배출은 기반암과 굳지 않은 매립층의 종류와 관련이 있다. 일부 화강암, 우라늄이 풍부한 인회질 암석, 유기 물질이 풍부한 이판암 등은 비교적 다량의 라돈을 발산한다. 건축재료 중에는 라듐이나 우라늄의 농도가 보통 이상으로 높은 경우가 많은 것으로 보고하고 있다. 이런 재료로 표적인 것은 콘크리트, 시멘트 블록, 석고판, 벽돌 등이 있는데 이들이 방사성을 띠게 되는 것은 골재에 그 원인이 있다. 벽돌과 콘크리트의  $^{226}\text{Ra}$ 의 농도는 7~100 Bq/kg (0.2~3 pCi/g)로 토양의 농도와 비슷하다. 화강암, 경석(Pumice), 이판암(Shale)을 골재로 하는 콘크리트는 라돈 발산율이 가장 높은 것으로 보고되었다. 목재도 라듐을 함유하고 있으나 그 농도가 낮아 실내 라돈에 미치는 영향을 무시할 수 있다.

지하수 내의 라돈농도 범위는 약 100 pCi/L부터 거의 3백만 pCi/L에 이른다. 라돈의 용해도는 온도에 반비례하며 온도가 증가할수록 급격히 감소한다. 또한 라돈은 휘발성이 강하기 때문에 물에서 쉽게 방출된다. 지하수에 포함된 라돈은 물에 잘 녹지만 그 녹는 양이 물의 온도, 압력, pH, 물의 흐름속도에 영향을 받는다.

그 중 압력의 영향을 가장 많이 받는데, 지하수가 땅 밑에 있을 때 높은 압력을 받고 있으므로 간혀있던 지하수가 밖으로 빠져나올 때 한꺼번에 많은 양의 라돈을 방출하게 되고 일부는 대기압과 물의 온도조건이 맞으면 물속에 용존 기체 상태로 존재한다. 그러므로 지표수보다는 지하수가 라돈을 많이 함유하고 있고 시간대별 및 계절별 농도도 달라진다. 하지만 지하수는 암반 깊은 곳에서 관정을 통해 지면 밖으로 나오기 때문에 지하수 자체의 온도변화가 별로 없어 계절이나 온도의 차이에 의한 라돈 농도 변화는 크지 않다고 할 수 있다.

### 1.1.2 라돈의 특성 및 위해성

라돈은 안정하여 대기 중에 충분한 시간 동안 머물러 있어 다른 자연방사선원에 비하여 라돈과 라돈자손에 의한 일반인의 자연방사선 피폭 기여도가 높고, 인체에 흡입되어 폐암을 일으키는 원인으로 알려져 있어 인간의 건강을 위협하는 오염물질로 규정되어 있다(김윤신 등, 2002; Jamil *et al.*, 1997). 발암성 방사성 물질인 라돈(radon)은 세계보건기구(WHO)에 의해 흡연 다음으로 폐암을 유발하는 위험물질로 규정되어 있으며, 국제암연구센터(IARC; International Agency for Research on Cancer)에서는 1급 발암물질로 규정했을 만큼 인체에 치명적인 영향을 미치는 위해성 물질이다.

라돈은 자체 보다는 라돈 자핵 종인 Po의  $\alpha$ -붕괴에 의해 발생하는 방사선에 의하여 폐 조직을 손상시켜 폐암을 유발하는 것으로 알려져 있다. 즉 호흡 과정에서 흡입되는 라돈 가스는 폐에 흡착되지 않고 다시 호흡을 통해 배출되어 문제를 일으키지 않는다. 그러나 라돈이 붕괴되어 생성되는 라돈 자핵종은 고체 물질로 정전기적인 전하를 띤 입자이다. 따라서 공기에 존재하는 먼지, 담배연기, 그리고 수증기에 흡착되어 에어로졸 형태로 폐에 쉽게 흡착된다. 이들 중 일부는 폐에서 제거되거나 기침으로 배출되지만 대부분은 붕괴하면서  $\alpha$ -ray를 방출하여 장기적으로 폐암을 유발한다(최임조 등, 2009; Miles, 1988). 세계보건기구(WHO, 2000)는 건물의 라돈 연간평균농도가  $100 \text{ Bq m}^{-3}$  ( $2.7 \text{ pCi/L}$ ) 이상일 때 치유 활동을 취할 것을 권고하고 있다. 또 미국 US EPA에서는 권고치로서  $148 \text{ Bq m}^{-3}$  ( $4 \text{ pCi/L}$ )를 제안하고 있고, 이 농도에서 일생 동안 노출될 경우 폐암으로 사망할 위험 확률은 약 1~2%로 추정하고 있다. 2003년 한 해에만 약 21,000명의 폐암사망자가 라돈 노출과 관련이 있는 것으로 보고되고 있다(최임조 등, 2009; US EPA, 2009).

미국은 환경보호국과 주정부에 의해, 실내 라돈 조사를 1980년부터 수행하였으며, 최근까지 3개의 Zone(Zone1-high risk area, Zone2-medium risk area, Zone3-low risk area)으로 구분된 조사 표본에 대해 주정부와 민간을 중심으로 약 10%에 육박하는 가옥에 대한 조사가 수행되었다(US EPA, 2008). 또한, 가옥 내 라돈 평가를 위한 기초자료 확보 차원에서 1989년부터 1992년 사이에 지질조사소(USGS, United States Geological Survey)의 협조로 라돈포텐셜 평가가 수행

되었다. 또한 환경보호국에 의해 라돈에 관한 시민가이드(A Citizen' Guide to Radon) 및 실내 라돈저감공법 관련 책자를 발간하여 대국민 홍보가 적극적으로 이루어지고 있다.

미국의 실내라돈 조치기준은 4 pCi/L이며, 수질 대체기준은 4,000 pCi/L(주정부 또는 지역의 수처리시스템이 MMM(Multimedia Mitigation) 프로그램을 수행할 경우에 해당)이다. 영국의 경우, 지질조사소(BGS, British Geological Survey)와 방사선방호위원회(NRPB, National Radiological Protection Board)를 중심으로, 1980년부터 현재까지 지속적으로 실내라돈조사가 수행되고 있으며, 총 45만개 이상의 자료가 구축되어 있는 상태이다. 고농도지역은 5 km 격자, 나머지 지역은 10 km 격자별로 라돈분포도(Radon Atlas)를 작성하였다(NRPB, 2000).

실내라돈 조치기준은 5.4 pCi/L ( $200 \text{ Bq m}^{-3}$ )이며, 고농도 지역에 위치한 건물의 경우, 정부가 라돈 측정을 권고하고 있다. 일본의 경우, 국립방사선의학연구소(NIRS; National Institute of Radiological Sciences) 및 일본화학분석센터(JCAC; Japan Chemical Analysis Center)에 의해 1994년~1996년 동안 899개의 실내조사가 수행되었다. 2004년 이후에는 고농도 가옥에 대한 조사에 집중하고 있는데, 각 현별로 연간 2,000개 가옥에 대해 조사를 수행하고 있는 실정이다. 스웨덴의 경우, 실내라돈농도 관리기준(의무사항)을 보면, 기존주택의 경우는 10.8 pCi/L ( $400 \text{ Bq m}^{-3}$ ), 신규주택의 경우는 5.4 pCi/L ( $200 \text{ Bq m}^{-3}$ )로 설정하고 있다.

토양 가스의 라돈농도가 270 pCi/L 이상일 때는 라돈방어 기준(radon protection level)을 1,350 pCi/L 이상일 때는 라돈안전기준(radon safety level)을 적용하고 있으며, 토목 및 건축공사 시 토양가스 라돈조사를 의무화하고 있다. 체코와 독일의 경우, 2000년도 이 후, 양국의 지질조사소 공동연구로 실내 라돈조사가 수행되었으며, 지리정보시스템 기술을 접목하여 토양가스 라돈지도 및 실내 라돈 지도를 작성하였다. 특히, 체코의 경우, 건물의 신축부지에 대해 토양가스 라돈측정 지침과 규제기준을 세분화하여 적용하고 있는 실정이며, 신축부지 토양가스 라돈 조사를 의무화하고 있다(제현국, 2010).

우리나라의 라돈 관리에 대한 기본 법령은 원자력안전위원회의 「생활주변 방사선 안전관리법」과 환경부의 「실내공기질관리법」이다. 「생활주변방사선 안전

관리법」은 원료물질, 공정부산물 및 가공제품 등의 생활주변방사선으로부터 국민의 건강과 환경을 보호하기 위하여 생활주변방사선의 안전관리를 위한 법이다.

「실내공기질관리법」은 1989년에 “지하 공간 환경기준 권고치 설정”으로 라돈의 권고기준을  $148 \text{ Bq m}^{-3}$  ( $4 \text{ pCi/L}$ )로 정하였고, 1996년 “지하 생활 공간 공기질 관리법”에서는 라돈을 오염물질로 규정하였다. 2003년에는 “다중이용시설 등의 실내공기질 관리법”으로 제정되었고(최임조 등, 2009; 환경부, 2003) 2010년도에 법이 개정되면서  $148 \text{ Bq m}^{-3}$  을 권고기준으로 하고 있다. 이는 미국의 Action Level과 동일한 수준이다. 2016년부터 신축 공동주택에 대해 7개 측정항목 (formaldehyde, benzene, toluene, ethyl benzene, xylene, styrene, radon) 중의 하나로 라돈의 측정 의무를 부과하여 관리하고 있다.

### 1.1.3 라돈 측정 시스템

라돈농도 측정용 검출기는 전원 사용 여부에 따라 크게 수동형과 능동형 두 종류로 구분된다. 수동형 측정기는 전원이 필요 없는 방법으로 알파비적검출법 (alpha track detector), 활성탄 흡착법(Activated charcoal adsorption devices), 충전막전리함법(electret ion chamber) 등이 있다. 또 능동형 측정기는 전원을 필요로 하는 방법으로 섬광셀 검출방식(Scintillation cell), 펄스이온화검출방식(Pulsed ionization chambers), 실리콘 검출방식(Silicon detector) 등이 이용되고 있다 (Table 4).

일반적으로 수동형 측정방법은 비교적 사용이 간편하고, 검출기의 가격이 매우 경제적인 장점이 있다. 그러나 장기간 측정해야 하기 때문에 신속한 측정값을 얻기 어려우며, 외부환경(온습도, 마찰진하 등)에 의해 결과의 신뢰성이 저하되는 단점이 있다. 반면에 능동형 측정방법은 측정현장에서 신속한 측정값 및 연속적인 측정 자료를 얻을 수 있는 장점을 지닌다. 그리고 검출기의 가격이 매우 고가이며, 전문가에 의한 검출기의 교정 작업이 필요하다는 단점이 있다(제현국, 2010). 이러한 수동형과 능동형 라돈 검출기들은 대부분 실내나 지하 공간에서 비교적 높은 농도의 라돈을 측정하기 위한 목적으로 개발되었다. 따라서 기존의 상용화된 라돈 검출기들은 대기 중에 존재하는 극미량의 라돈을 모니터링하기에는 부적합한 시스템들이다.

Table 4. Types of ambient radon detection system.

Passive Type	Active Type
Alpha Track Detector	Scintillation Cell
Activated Charcoal Adsorption	Pulsed Ionization Chamber
Electret Ion Chamber	Silicon detector

대기 중의 라돈은 실내나 지하 공간에 비해 농도가 훨씬 낮은 농도를 측정해야 하기 때문에 아주 고감도의 검출기를 필요로 한다. 호주핵과학기술기구(ANSTO)에서는 이러한 고감도 라돈검출기를 자체적 설계, 제작하고 있다. 그리고 WMO (World Meteorological Organization)와 GAW (Global Atmosphere Watch) 관측소를 중심으로 세계적인 라돈 측정망을 구축하여 운영하고 있다(W. Zahoro -wski, 2004; Y. Igarashi, 2004). ANSTO에서 제작한 라돈 검출기는 능동형 섬광셀 검출방식을 이용하고 있고 실시간으로 연속 모니터링이 가능한 시스템이다. Figure 6의 기기구조와 같이 셀 안으로 유입된 공기 중의 라돈은 붕괴과정에서 알파입자를 방출하고, 이 입자와 ZnS(Ag)가 반응하여 발생하는 섬광을 광증배관으로 증폭하여 계수하는 섬광셀 검출방식 원리를 이용하고 있다.

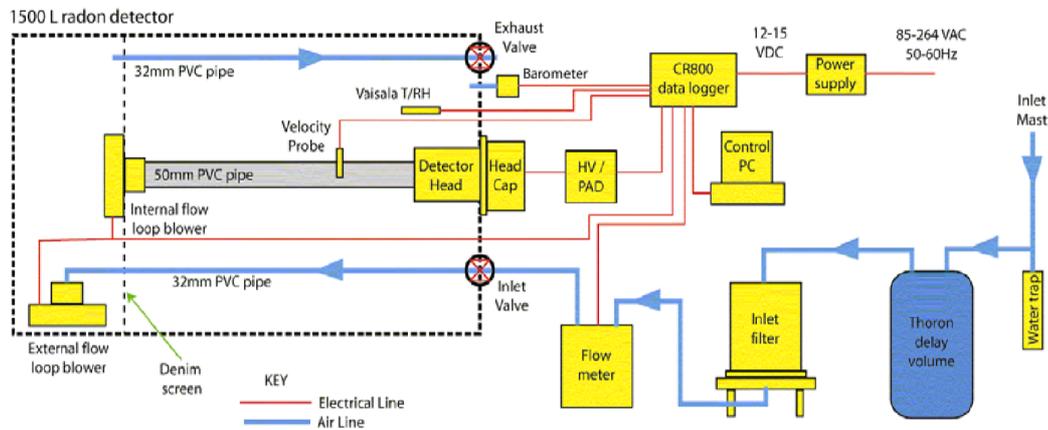


Figure 6. Schematic diagram of the radon detector setup.

호주의 Cape Grim 관측소(40°41'S, 144°41'E, 94 m)는 호주의 남쪽의 타즈매니아 북서쪽에 위치하고 있는 전지구급 관측소로 CSIRO (Commonwealth Scientific and Industrial Research Organization)와 기상청(Bureau of Meteorology)이 공동으로 설립하여 운영하고 있다. Cape Grim 관측소에서는 1976년부터 이산화탄소를 관측해 왔으며 그 외 에어로졸을 비롯한 각종 대기오염물질들을 측정하고 있다. 특히 ANSTO에서는 radon detector를 설치하여 극미량의  $^{222}\text{Rn}$  배경 농도를 실시간으로 측정하고 있다.

호주 ANSTO에서는 세계적으로 가장 고감도인 정밀 라돈검출기를 자체적으로 설계, 제작하여 전세계적인 라돈측정 네트워크를 운영하고 있다. 특히 라돈( $^{222}\text{Rn}$ ) 검출기를 하와이의 Mauna Loa, 호주의 Cape Grim, 남아프리카공화국의 Cape Point, 스코틀랜드의 Angus, 일본의 Sado Island, 미국의 Seattle, 홍콩의 Hok Tsui 등을 비롯해 국제적으로 지명도가 높은 16개 배경관측소(Figure 7)에서 극미량의 라돈을 실시간 모니터링하고 있다(Zahorowski *et al.*, 2004).

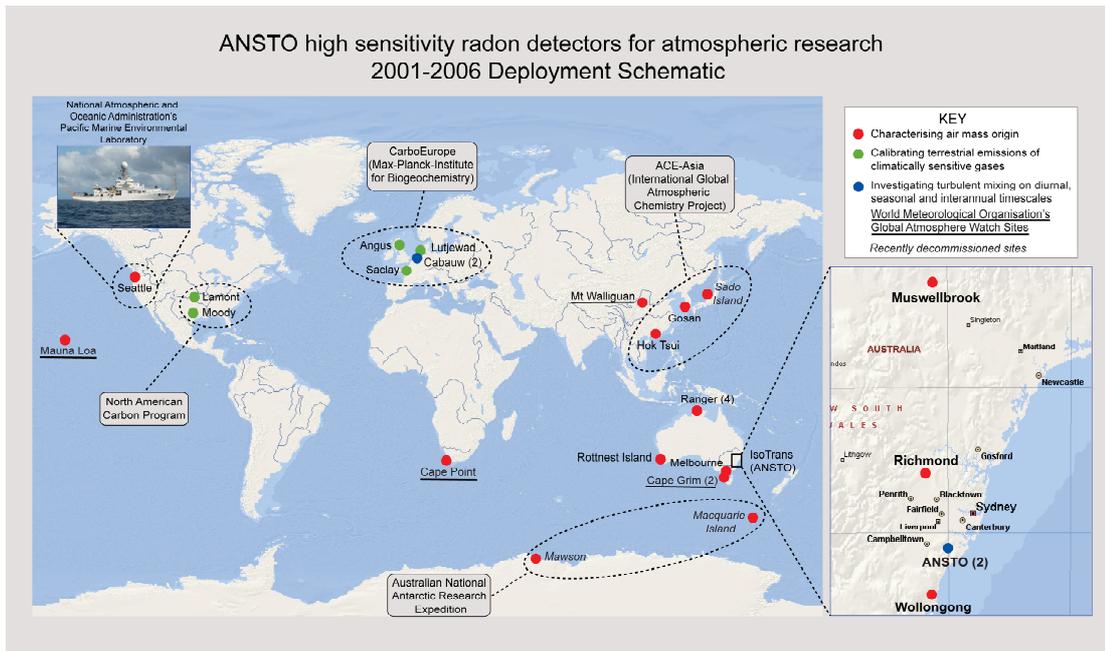


Figure 7. ANSTO's radon measurement network in the WMO/GAW stations.

배경지역의 극미량 라돈( $^{222}\text{Rn}$ ) 농도를 30분 간격으로 실시간 측정하고 있으며, 최근에 인터넷을 이용하여 온라인으로 데이터를 확인할 수 있는 고감도 라돈 검출기 시스템을 자체적으로 개발하여 활용하고 있다. 라돈 검출기는 고산 관측소를 비롯하여 하와이의 Mauna Loa, 일본의 Sado Island, 미국의 Seattle, 스코틀랜드의 Angus, 홍콩의 Hok Tsui 등 국제적으로 지명도가 높은 주요배경 농도 측정소에서 가동 중에 있다. 일본에서는 대부분의 라돈검출기를 자체적으로 설계, 제작하고 있으며, 특히 Nagoya 대학 등에서 Electrostatic Radon Monitor (ERM)를 자체적으로 제작하여 이를 활용하고 있다(Yoshioka, 2000).

국내에서는 2001년에 처음으로 제주도 고산관측소에 ANSTO에서 제작한 라돈검출기를 설치하여 대기 중의 라돈 농도를 모니터링하기 시작하였다. 그리고 2007년부터는 훨씬 더 고감도인 라돈 검출기(모델 D1500)를 사용하여 국내 대기 중의 라돈 배경농도를 실시간으로 측정하고 있으며, 본 연구에서는 이 시스템을 이용하여 라돈을 연속 모니터링 하였다.

#### 1.1.4 제주지역 실내 및 지하수 라돈 농도

지구상에는 오래 전부터 자연방사성 물질이 존재하고 라돈도 그 중의 하나인데 라돈은 토양이나 암반 등에 존재하는 반감기가 45억년이나 되는 우라늄으로부터 방사성 붕괴되어 자연적으로 발생되므로 라돈의 배경농도는 지역의 암반 특성과 상관성을 갖는다. 대부분의 라돈 방출원은 암반, 토양, 건축물, 지하수 등에 존재하는 천연우라늄에서 생겨나서, 확산과 압력 차이 등의 이유로 방출된다.

제주는 현무암 기반의 화산섬으로 다른 지역에 비해 라돈농도가 상대적으로 낮다고 알려져 있다. 이는 암석중의 라돈은 화강암에 가장 높게 존재하며 다음으로는 변성암, 옥천계 변성암, 퇴적암, 화산암 등의 순으로 존재한다. 따라서 화산암반인 제주는 다른 지역에 비해 상대적으로 낮은 배경농도를 갖는다. 국내에서 2009년부터 전국 실내 라돈 조사 결과를 바탕으로 행정구역별 평균을 수치에 따라 등급화하여 표현한 라돈지도에 따르면 2016년 제주지역의 라돈농도는  $63.8 \text{ Bq m}^{-3}$ 로 전국평균  $95.4 \text{ Bq m}^{-3}$ 에 비해 낮고 제주시는  $62.8 \text{ Bq m}^{-3}$  서귀포시는  $78.1 \text{ Bq m}^{-3}$ 로 조사되었다.

또한 국내 지하수내 라돈 함량에 대한 연구 결과 화강암과 변성암, 화산암 지역 지하수내 자연방사성 물질에 대한 일부지역에서의 연구가 수행되어 왔다(Cho et al., 2011; Jeong et al., 2011; 2012; 2013; Ju et al., 2013). 국내 지하수의 라돈 함량은  $4 \text{ pCi/L}$ 부터 최고  $40,010 \text{ pCi/L}$ 의 넓은 범위를 보였고, 평균값과 중간값은 각각  $1,862 \text{ pCi/L}$ 와  $920 \text{ pCi/L}$ 이었다(Choi et al., 2007). 대체적으로 다른 암반에 비해 현무암 내 지하수는  $238 \text{ pCi/L}$ 로 상대적으로 낮은 농도를 보이는 것으로 알려져 있다(Table 5).

Table 5.  $^{222}\text{Rn}$  concentration measured in the groundwater from each geology.

Geology (No. of samples)	$^{222}\text{Rn}$ (pCi/L)		
	Mean	Med.	Max.
Granite (238)	2,595	1,516	25,092
Sedimentary rock (165)	926	520	11,986
Metamorphic rock(133)	1,752	1,010	11,384
Ogcheon metam. rock(69)	2,020	938	40,010
Jeju volcanics (10)	238	205	528
Total (615)	1,862	920	40,010

제주 염지하수의 라돈 방사능 평균농도는  $49.7 \pm 5.4$  pCi/L (n=3)로 지하수의 라돈 농도보다 낮은 것으로 조사되었다(한충훈 등, 2016) 이는 미국 환경청(Environmental Protection Agency, EPA)에서 제시한 음용수(drinking water)에 대한 수중 라돈 권고치 4,000 pCi/L에 비하여 농도가 매우 낮았다. 또한 제주 현무암 지역의 지하수 연구결과(238 pCi/L)에 비해 농도가 낮은 것으로 확인되었다.

제주는 국내에서 처음으로 2001년에 제주도 고산 관측소에 ANSTO에서 제작한 라돈검출기를 설치하여 대기 중의 라돈 농도를 측정하고 있는 국내 유일의 대기라돈 배경농도 Site로 2001년부터 2016년까지 측정한 평균 라돈농도는  $2,637 \text{ mBq m}^{-3}$ 로 낮은 배경농도를 나타내고 있다.

## 1.2 제주지역 대기 라돈 농도

라돈은 지표지질, 지하수, 건축자재, 암석, 토양 등에서 방출되어 주로 실내 공간에 존재한다. 그러나 화학적으로 불활성이고 빗물에도 거의 용해되지 않기 때문에 대기 중으로 넓게 확산되는 특성을 나타낸다. 그리고 기체상으로 존재하기 때문에 대기 중에서 기류를 타고 이동하여 기단의 발원 조건에 따라 큰 농도차를 보인다. 일반적으로 발생기원이 지각이기 때문에 해양에서 이동한 공기에 비해 대륙에서 생성된 공기가 2~3배 더 높은 농도를 보이는 것으로 알려져 있다 (Choi *et al.*, 2009; Bonotto and Padron-Armada, 2008).

대기 중의 라돈은 실내나 지하 공간에 비해 농도가 훨씬 낮기 때문에 아주 고감도의 검출기를 이용하여 측정할 수 있다. ANSTO에서는 이러한 고감도 라돈검출기를 자체적으로 설계, 제작하고 있다. 그리고 WMO/GAW 관측소를 중심으로 세계 30여 지점에 대기 라돈 측정망을 구축하여 운영하고 있다. 이의 일환으로 제주도 고산측정소에서는 2001년 초부터 지속적으로 라돈 농도를 측정하고 있으며, ACE (Aerosol Characterization Experiment)-Asia 프로그램의 일환으로 관측을 시작하였다.

제주도 고산지역에서 2010~2017년에 걸쳐 8년 동안 라돈농도를 실시간으로 측정하였고, 연도별 평균농도를 Table 6에 나타내었다. 제주도 고산지역의 전체 라돈 시간별 평균농도는  $2,392 \pm 1,222 \text{ mBq m}^{-3}$  ( $0.065 \text{ pCi/L}$ )로 매우 낮게 나타났다. 이 농도는 2013년 11월 ~ 2014년 3월에 측정한 우리나라 실내 평균농도  $106.4 \text{ Bq m}^{-3}$  ( $2.9 \text{ pCi/L}$ )에 비해 대략 44.6배 낮은 수준이다. 또 동일기간 제주지역의 실내라돈 농도  $88.4 \text{ Bq m}^{-3}$  ( $2.4 \text{ pCi/L}$ )에 비해 37.0배 낮은 수준을 보이고 있다(Lee *et al.*, 2016). 고산지역의 연도별 대기 라돈농도는 2015년 > 2011년 > 2010년 > 2017년 > 2016년 > 2012년 > 2013년 > 2014년 순으로 2015년에 라돈농도가  $2,555 \text{ mBq m}^{-3}$ 로 가장 높고, 상대적으로 낮은 농도를 나타낸 2014년( $2,178 \text{ mBq m}^{-3}$ )에 비해 1.2배 정도의 차이를 나타내었다.

국내의 경우 라돈 데이터는 대부분 실내와 지하 공간을 중심으로 측정되고 있고, 대기 농도 측정 결과는 거의 발표되어 있지 않다. 따라서 이를 1999년 12월부터 2002년 1월에 능동형 Electrostatic Radon Monitor를 사용하여 서울 성동구

에서 측정된 결과와 비교하였다(Kim *et al.* 2007). 이 시기의 서울지역 라돈 농도는  $7,620 \pm 4,110$  mBq m<sup>-3</sup>로 고산지역에 비해 3.2배 높은 수준을 보이고 있다.

또한 외국 청정지역과의 농도를 비교한 결과에서는 고산지역의 라돈농도가 하와이 Mauna Loa에 비해 23.5배 정도 크게 높은 수준을 보였다. 그러나 홍콩 Hok Tsui보다는 약 2.3배 낮은 농도를 보였다(Chambers *et al.*, 2009; Zahorowski *et al.*, 2005). 고산지역이 하와이 Mauna Loa에 비해 훨씬 더 높은 농도를 나타내는 것은 하와이 Mauna Loa 관측소의 위치가 고도가 3,397 m에 위치하고 있고, 대륙으로부터 멀리 떨어진 청정지역이고 사면이 해양으로 둘러싸여 있기 때문인 것으로 판단된다. 그리고 라돈이 공기보다 무겁기 때문에 Mauna Loa 관측소에 비해 지표면에 가깝게 위치한 고산지역이 상대적으로 높은 농도를 보이는 것으로 사료된다.

하지만 도심지역인 홍콩의 King's Park Meteorological Station, 이탈리아의 L'Aquila, 루마니아 남부수도인 Bucharest 지역에 비해 고산지역의 라돈농도는 각각 3.9, 4.1, 16.8배 더 낮은 배경지역의 특성을 나타내고 있는 것으로 조사되었다(Pitari *et al.*, 2014; Zoran *et al.*, 2013; Chan *et al.*, 2010).

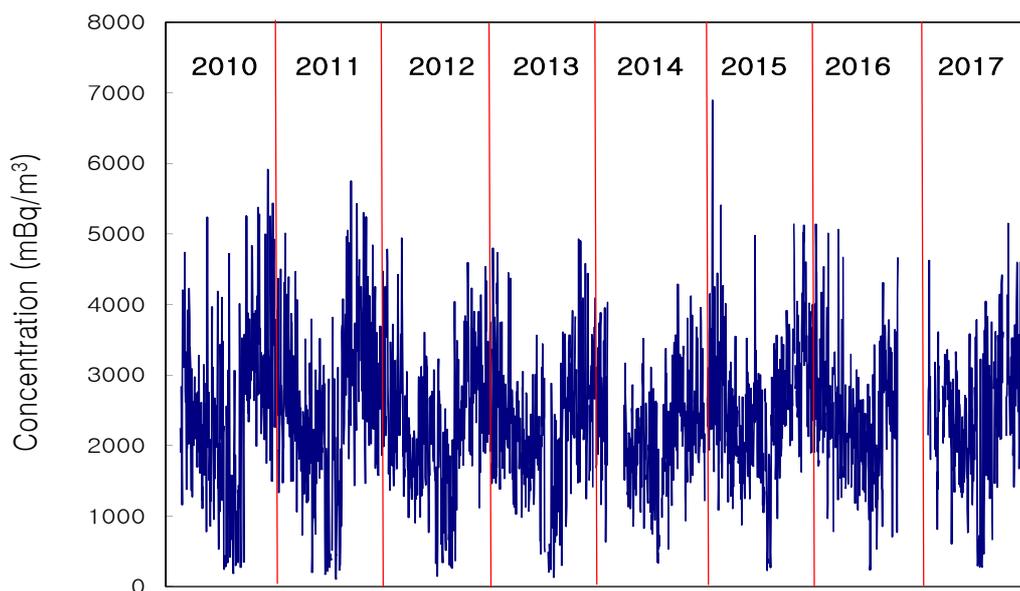


Figure 8. Variation of daily radon concentrations during 2010-2017.

Table 6. Statistic summary (yearly mean, standard deviation, and distribution) of hourly radon concentrations ( $\text{mBq m}^{-3}$ ) measured during 2010–2017.

Year	Mean	S.D	90th	75th	25th	10th
2010	2,510	1,420	4,355	3,356	1,520	632
2011	2,527	1,356	4291	3,334	1,626	737
2012	2,319	1,169	3,852	3,050	1,505	899
2013	2,249	1,148	3,765	2,936	1,471	862
2014	2,178	1,041	3,514	2,769	1,456	996
2015	2,555	1,177	4,111	3,222	1,732	1,199
2016	2,364	1,128	3,857	2,938	1,624	1,081
2017	2,405	1,203	3,970	3,040	1,618	979
Mean	2,392	1,222	3,982	3,089	1,562	937

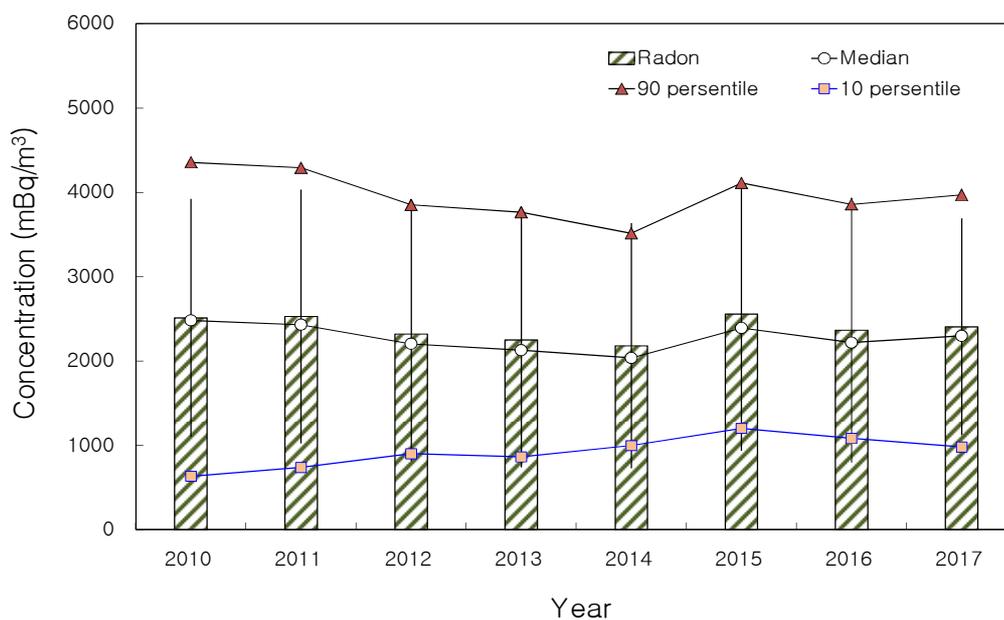


Figure 9. Comparison of radon concentrations for the study period.

Table 7. Comparison of radon concentrations between Gosan and other sites.

Site	Concentration (mBq m <sup>-3</sup> )	Periods
Seoul, Korea <sup>1)</sup>	7,620±4,110	1999. 12 ~ 2002. 1
Sado Island, Japan <sup>2)</sup>	2,555±261	2002 ~ 2004
Hok Tsui, Hong Kong <sup>2)</sup>	5,580±626	2002 ~ 2004
Mauna Loa, Hawaii <sup>3)</sup>	102	2004 ~ 2010
Hong Kong <sup>4)</sup>	9,300	2007. 11 ~ 2008. 10
L'Aquila, Italy <sup>5)</sup>	9,700	2009. 3
Bucharest, Romania <sup>6)</sup>	40,260±7,540	2011. 1 ~ 2011. 12
Gosan, Jeju Island	2,392±1,222	2010. 1 ~ 2017. 12

<sup>1)</sup>김윤신 등, 2007; <sup>2)</sup>Chambers et al., 2009; <sup>3)</sup>Zahorowski, W et al., 2005; <sup>4)</sup>Chan et al., 2010;  
<sup>5)</sup>Pitari et al., 2014; <sup>6)</sup>Zoran et al., 2013.

### 1.3 월별 및 계절별 농도 변화

2010~2017년에 측정된 라돈농도를 월별로 비교한 Figure 10에서 농도는 시간별 농도를 월별로 평균한 값으로 고농도와 저농도 시의 추세 변화를 확인하기 위하여 중앙값과 90 분위수(90<sup>th</sup> percentile), 75 분위수(75<sup>th</sup> percentile), 25 분위수(25<sup>th</sup> percentile), 10 분위수(10<sup>th</sup> percentile) 농도를 동시에 비교한 결과이다.

측정기간의 월별 라돈 농도는 Nov > Oct > Jan > Dec > Feb > Sep > Mar > Jun > May > Apr > Aug > Jul의 순으로 11월에 3,012 mBq m<sup>-3</sup>로 가장 높고, 7월에 1,458 mBq m<sup>-3</sup>로 가장 낮았다. 이러한 경향은 2010~2015년에 고산 측정소에서 ANSTO 라돈검출기(모델 D750)를 사용하여 측정된 결과와 비슷한 변화 패턴을 보였다(Song *et. al.*, 2018). 또한 월별 라돈 농도를 90 분위수와 10 분위수로 구분하여 고농도와 저농도 시의 시계열 변화 특성을 비교하였다. 그 결과 대부분 평균과 유사한 변화 패턴을 나타내나, 90 분위수의 농도는 7월, 10 분위수는 4월에 월평균 추이와 다소 다른 경향을 보였다.

연구 기간의 계절 평균농도는 가을철에 2,892 mBq m<sup>-3</sup>로 가장 높았고, 다음으로 겨울 2,839 mBq m<sup>-3</sup>, 봄 2,192 mBq m<sup>-3</sup>, 여름 1,831 mBq m<sup>-3</sup> 순으로 높았다(Figure 11). 또한 90 분위수와 10 분위수를 꺾은선 그래프로 비교해 본 결과, 90 분위수, 10 분위수 모두 계절별 평균농도와 같은 경향을 나타내었다. 이처럼 계절별 라돈농도가 차이를 보이는 것은 북서계열 풍향이 주류를 이루는 가을과 겨울철에 대기질이 대륙의 영향이 클 것으로 사료된다. 반면에 여름철에는 남동 계절풍의 영향으로 해양으로부터 이동한 공기가 유입되었기 때문에 농도가 낮게 나타난 것으로 추정된다.

또한 대기 혼합고(mixing depth)의 높이는 대기경계층(planetary boundary layer)이 대류상태에 있고 기체상 물질의 농도가 균일한 연직분포를 이루고 있을 때의 혼합층 높이를 의미하며, 대기오염물의 누적, 확산, 희석에 중요한 역할을 한다(Kim *et al.*, 1985; Duckworth and Sandberg, 1954). 계절별 대기 혼합고는 대체적으로 가을과 겨울에는 기온이 낮아서 혼합고 높이가 낮아지는 반면, 봄과 여름에는 대기 혼합고의 높이가 상대적으로 높게 나타난다. 따라서 대기 중의 계절별 라돈농도는 이러한 혼합고의 높이에 반비례하여 겨울과 가을이 더 높은 농도를 보이고 봄과 여름철에는 낮은 농도를 유지하는 것으로 추정된다.

Table 8. Variations of monthly mean concentrations of radon during 2010–2017.

Month	Concentration (mBq m <sup>-3</sup> )			Month	Concentration (mBq m <sup>-3</sup> )		
	Mean	Median	S.D.		Mean	Median	S.D.
Jan	2,866	2,698	1,203	Jul	1,458	1,114	1,262
Feb	2,713	2,580	1,089	Aug	1,912	1,705	1,349
Mar	2,516	2,385	1,032	Sep	2,701	2,611	1,198
Apr	2,031	1,944	781	Oct	2,996	2,852	1,118
May	2,047	1,887	962	Nov	3,012	2,913	1,151
Jun	2,096	1,908	1,083	Dec	2,843	2,669	1,104

Table 9. Variations of Seasonal mean concentrations of radon during 2010–2017.

Statistics	Concentrations (mBq m <sup>-3</sup> )			
	Spring	Summer	Fall	Winter
Mean	2,182	1,831	2,892	2,839
Median	2,047	1,671	2,782	2,671
S.D.	953	1,265	1,167	1,149

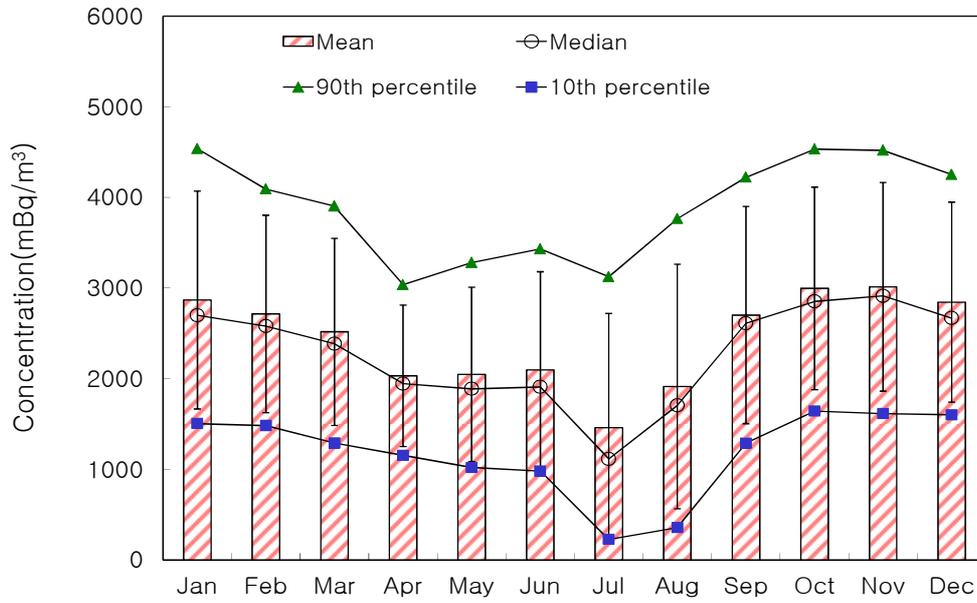


Figure 10. Comparison of monthly radon concentrations.

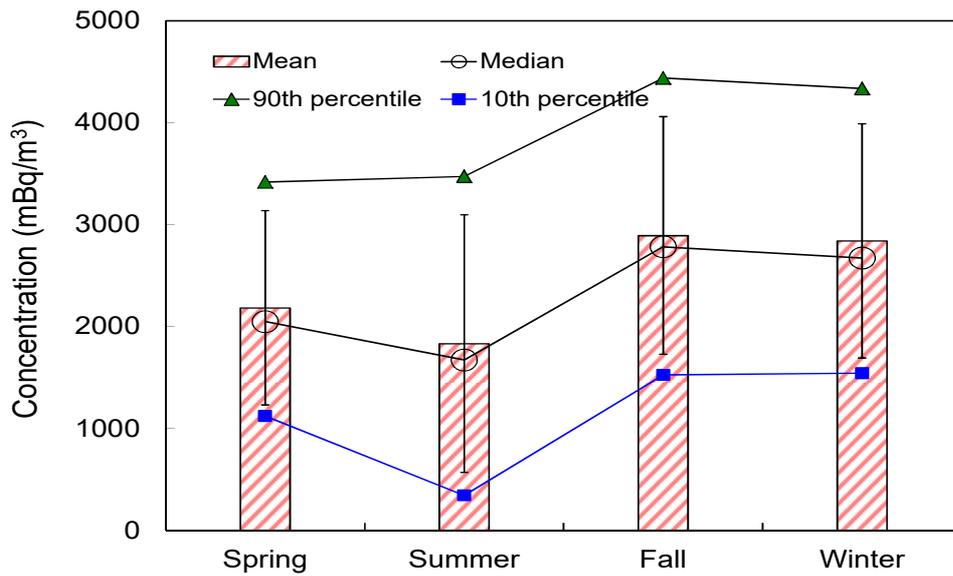


Figure 11. Comparison of seasonal radon concentrations.

## 1.4 일간 농도 변화

연구 기간의 라돈 농도 일간 변화 및 계절별 일간 변화를 비교하였고, 그 결과를 Figure 12에 나타내었다. 그림의 결과와 같이 라돈은 오전 7시에 2,742 mBq m<sup>-3</sup>로 하루 중 가장 높은 농도를 보였고, 오후 3시경에 1,989 mBq m<sup>-3</sup>로 가장 낮은 농도를 나타내었다.

라돈 농도의 일간 변화패턴을 비교해 보면, 아침 시간부터 서서히 농도가 낮아지기 시작하여 오후 3시경까지 감소하였고 다시 저녁시간에 농도가 상승하여 밤에 점차로 농도가 높아지는 추세를 보였다. 이러한 일간 변화패턴은 이탈리아 L'Aquila 지역에서 측정된 시간별 라돈농도의 변화와도 유사한 경향을 보이고 있다(Pitari *et al.*, 2014).

일간 변화는 대기 혼합고의 변동에 기인하는 것으로 추측된다. 혼합고 높이는 날씨가 맑을 때에는 낮은 오전이나 오후의 낮 동안에 가장 높아 대기 경계층까지 이르게 되고 이 높이 이내의 대기오염물은 난류에 의해 균일하게 연직분포를 이루게 된다. 따라서 이때의 혼합고는 해당 혼합고 높이와 같아지게 된다. 그러나 밤이나 이른 아침에는 지표 가까이에 안정된 복사역전층이 형성되며, 이 경우 연직혼합이 일어나지 않게 되어 해당 혼합고 높이는 역전층의 높이보다 낮아지게 된다(Kim *et al.*, 1985).

따라서 주간에는 혼합고가 최대로 확장되어 라돈이 확산되기 때문에 낮은 농도를 보이게 된다. 반면에 야간에는 혼합고 높이가 낮아져서 그만큼 라돈이 응집되어 높은 농도를 보이는 것으로 추정된다. 이처럼 일간 라돈농도는 월, 계절 변화와 마찬가지로 혼합고의 확장 및 축소에 따라 라돈이 확산되거나 압축되면서 농도 변화를 일으키고 있는 것으로 판단된다.

계절별로는 겨울철에 라돈의 최대, 최소 농도가 큰 차이를 보이지 않지만 여름에는 겨울에 비해 훨씬 더 큰 차이를 보이고 있다(Figure 13). 겨울철에는 주야간 온도변화가 큰 차이를 보이지 않고 대기 혼합고의 차이도 상대적으로 작다. 따라서 라돈의 일간 최대, 최소 농도가 큰 차이를 보이지 않게 된다. 그러나 이와 반대로 주야간 온도차가 큰 편차를 보이는 여름철에는 혼합고의 확장 및 축소가 큰 변화를 보인다. 따라서 여름철에는 라돈의 최대, 최소 농도가 겨울에 비해 더 큰 차이를 보이고 있음을 알 수 있다 (Chambers *et al.*, 2016).

Table 10. Variations of hourly radon concentrations.

Time	Concentration (mBq m <sup>-3</sup> )			Time	Concentration (mBq m <sup>-3</sup> )		
	Mean	Median	S.D.		Mean	Median	S.D.
00:00	2,557	2,448	1,239	12:00	2,159	2,081	1,102
01:00	2,587	2,476	1,263	13:00	2,065	1,988	1,059
02:00	2,610	2,512	1,262	14:00	2,011	1,922	1,041
03:00	2,631	2,539	1,264	15:00	1,989	1,876	1,045
04:00	2,670	2,542	1,288	16:00	2,000	1,887	1,063
05:00	2,704	2,580	1,311	17:00	2,033	1,906	1,072
06:00	2,736	2,606	1,324	18:00	2,108	1,968	1,117
07:00	2,742	2,611	1,337	19:00	2,203	2,058	1,143
08:00	2,698	2,579	1,321	20:00	2,280	2,155	1,138
09:00	2,586	2,483	1,277	21:00	2,356	2,252	1,148
10:00	2,422	2,322	1,214	22:00	2,437	2,325	1,172
11:00	2,274	2,184	1,149	23:00	2,502	2,401	1,199

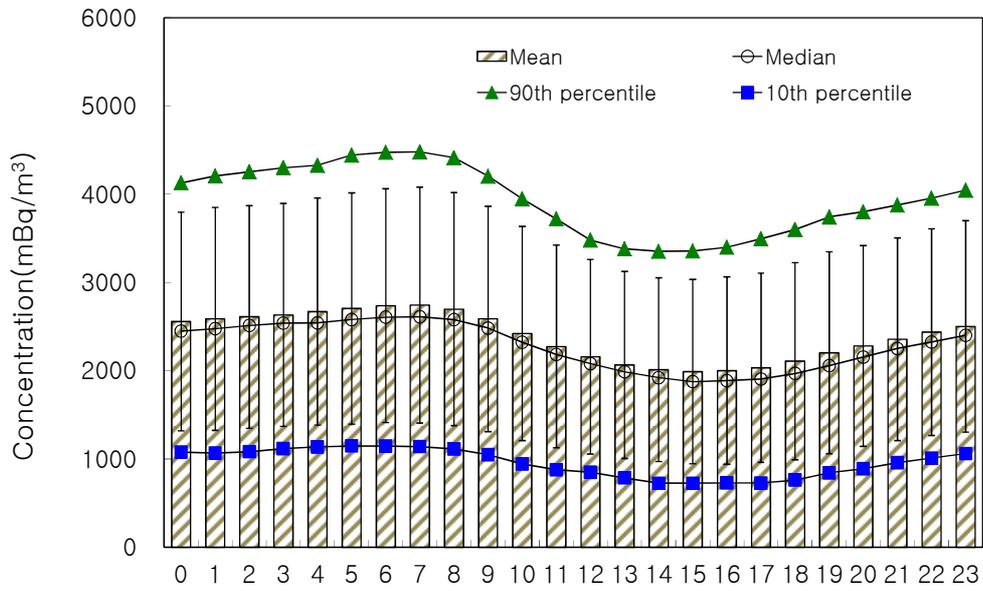


Figure 12. Comparison of hourly radon concentrations at Gosan site.

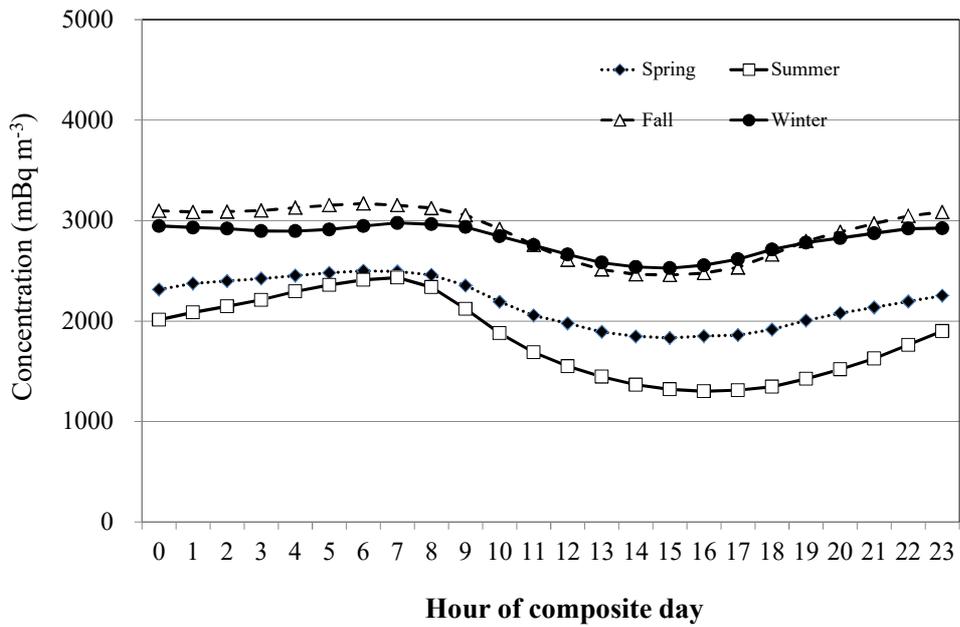


Figure 13. Variations of hourly mean radon concentrations by season.

## 2. 기체상 오염물질 농도

### 2.1 기체상 오염물질 발생

급격한 산업화와 운송 차량의 증가로 대기오염이 심화되면서 대기질 개선에 대한 관심이 고조되고 있다. 최근 우리나라는 청정연료와 저유황연료 공급 확대, 저공해 자동차 보급 등 적극적인 대기오염 저감정책을 펴고 있다. 이러한 결과로 아황산가스(SO<sub>2</sub>), 일산화탄소(CO) 등 일부 대기오염물질의 농도가 서서히 낮아지고 있고, 개도국형 오염상태는 상당 부분 개선되고 있는 추세에 있다. 그러나 아직도 도시지역을 중심으로 광화학스모그 발생, 시정거리 감소, 미세먼지(PM<sub>10</sub>) 농도 상승 등 대기오염 현상이 빈번히 발생하고 있다.

특히 수도권 지역에서는 오존, 질소산화물, 미세먼지 등의 오염은 완만하게 증가하고 있어서 대기오염 형태가 개도국 형에서 선진국 형으로 전환되는 경향을 보이고 있다. OECD 국가의 주요 도시들과 비교했을 때, NO<sub>x</sub>는 1.4~1.7배, 미세먼지는 1.7~3.5배 정도 더 높아 최하위 수준을 나타내고 있고 이에 대한 시급한 개선이 필요한 실정이다 (김신도 등, 2007). 따라서 정부에서는 ‘수도권 대기환경 개선에 관한 특별법’을 제정하여 이를 감시, 개선하는데 많은 비용과 노력을 경주하고 있다.

또한 우리나라에서는 ‘대기환경보전법’ 제2조의 규정에 따라 대기오염의 원인이 되는 기체상 물질 또는 입자상물질을 대기오염물질로 지정하여 관리하고 있다. 현재 일산화탄소, 암모니아, 질소산화물, 황산화물 등 61종을 대기오염물질로 지정하고 있다. 대기오염물질 중에서 사람의 건강·재산이나 동·식물의 생육에 직접 또는 간접으로 위해를 줄 우려가 있는 물질을 특정대기유해물질로 지정하고 있으며, 다이옥신, 벤젠, 사염화탄소, 포름알데하이드 등 35종을 특정대기유해물질로 지정하고 있다(환경백서, 2008). 특히 이중에서도 SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, CO, PM<sub>10</sub>, Pb 등 6종을 주요 대기환경기준 오염물질로 지정하여 특별히 관리하고 있다(대기환경연보, 2010).

우리나라와 인접한 중국은 급속한 산업화와 석탄 위주의 에너지 소비 구조로 매연형 위주의 대기오염 형태를 보이고 있다. 이로 인해 아황산가스 오염도가 높은

수준을 유지하고 있고, 또 최근에 도시화로 자동차 배출 오염물인 질소산화물이 증가하면서 대도시는 매연형 오염과 광화학 오염이 혼합된 복합형 오염형태로 변화하고 있다. 더욱이 대규모 건축 등 인위적 활동으로 인한 먼지오염, 일부 지역의 생태파괴, 북방 지역의 황사 등으로 대기오염도가 급격히 심화되고 있다(H. Akimoto *et al.*, 2006). 중국 도시들은 아직까지 2/3 정도가 국가 2등급 대기질 기준에 도달하지 못하고 있고, 부유 먼지와 아황산가스의 오염이 매우 심각하게 나타나고 있다.

또 산성비 오염 역시 주로 남부지역에서 심각한 것으로 알려지고 있다(David G. Streets *et al.*, 2000). 2002년 기준으로 중국의 총 먼지 발생량은 941만 톤이며, 아황산가스는 도시의 77.6%가 국가 2등급, 22.4%가 국가 2등급 초과 수준을 나타나고 있다(차준석 등, 2006). 이렇게 중국에서 발생한 오염물질들은 대기층 하부의 산성침적물이나 광화학 산화물 등의 형태를 띠고, 평균 체류시간이 1일~1주일 정도로 알려져 있다. 그리고 이러한 오염물질들은 보통 수백~수천 km 까지 장거리 이동하기 때문에 인접 국가들에게는 커다란 관심사이다(한진석 등, 2006; M. Zhang *et al.*, 2004; P. Pochanart *et al.*, 2004).

특히 편서풍 풍하 지역에 위치한 우리나라는 이러한 영향을 가장 직접적으로 받고 있다. 우리나라의 대기환경 개선을 위해서는 국내의 대기오염물질 관리뿐만 아니라 외부로부터 유입되는 장거리 이동 대기오염물질에 대해 면밀히 조사할 필요가 있다(이용희 등, 2007).

동북아시아의 대기오염물질 장거리 이동현상을 규명하고 이에 대한 협력방안을 논의하기 위하여 한·중·일 장거리이동 대기오염물질 공동연구사업(LTP, Long-range Transboundary Air Pollutants in Northeast Asia)이 수행되고 있다. 2004년에 열린 이 회의에서는 중국 대련, 일본 오키, 제주도 고산 등 3국의 합의된 8개 지점과 서해안지역에서 지표 및 상층의 대기오염물질(SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>)을 공동 측정된 결과를 발표하였다. 이에 따르면 1998년 한 해 동안 우리나라에 침적되는 전체 황산화물 465,000 톤 중 약 20%에 해당하는 93,509.7 톤이 중국으로부터 한반도로 이동한 것으로 발표되었다(환경부, 2004).

이러한 기초 연구를 비롯하여 다양한 공동연구가 지속적으로 진행될 경우, 앞으로 동북아시아의 대기질 개선에 기여할 수 있는 결과와 방안이 마련될 수 있을

것으로 보인다. 또 이러한 대기오염물질의 장거리 이동 현상을 모니터링하기 위하여 국내에서도 안면도, 덕적도, 서해안 등의 몇몇 측정소를 활용하고 있고, 항공기를 이용한 서해안 관측을 실시하고 있다(차준석 등, 2006). 또한 제주도 고산지역에서는 1991년 9월의 PEM-West A, 1994년 2월의 PEM-West B, 2001년에 수행된 ACE-Asia, ABC 등의 국제 공동프로젝트를 통해 대기오염물질의 장거리 이동 연구를 수행해오고 있다(Atmospheric Brown Clouds Gosan Campaign, 2007; 강창희 등, 2007; 송미정 등, 2006; 문광주 등, 2006; Kim *et al.*, 2005; Huebert *et al.*, 2003; Tu *et al.*, 2003; Bates *et al.*, 2002). 이처럼 제주도 고산측정소에서 측정된 대기질 데이터는 이러한 월경성 대기오염물질의 영향을 평가하기 위한 기초자료로 유용하게 활용될 수 있다.

## 2.2 기체상 오염물질 농도 및 시계열 변화

2010년부터 2015년까지 6년간 국립환경과학원에서 측정한 기체상 오염물질 SO<sub>2</sub>, CO, O<sub>3</sub>, NO<sub>x</sub> 성분들의 1시간 간격 농도(NIER, 2016)를 00 UTC 기준으로 정리하였고, 그 결과를 Table 11에 나타내었다. 제주도 고산지역의 라돈, SO<sub>2</sub>, CO, O<sub>3</sub>, NO<sub>x</sub> 성분들의 평균농도는 각각 2,404.4 mBq m<sup>-3</sup>, 1.3 ppb, 377.6 ppb, 41.1 ppb, 3.9 ppb이었다. 또한 라돈 및 기체상 오염물질의 월간 시계열 농도변화를 Figure 19에 비교하였다. 일간 라돈 농도에서 오전 시간대에 높은 농도를 보였고, 오후 시간대에 낮은 농도를 나타내었다. 그러나 O<sub>3</sub>은 오후 시간대에 농도가 가장 높고, 오전 시간대에 상대적으로 낮아서 라돈과는 서로 상반된 추세를 나타내었다. 이러한 일간 변화패턴은 이탈리아 L'Aquila 지역에서 측정한 시간별 라돈과 O<sub>3</sub> 변화 추세와도 유사한 경향을 보이고 있다(Pitari *et al.*, 2014). 반면에 CO, SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> 성분들은 대체적으로 오전 시간대에 높게 나타났으며, 라돈 변화와 유사한 패턴을 보이고 있는 것으로 조사되었다(Figure 20).

<sup>222</sup>Rn 반감기는 3.82일 정도로 주요 반응기체(NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub>, CO, O<sub>3</sub> 등)과 비슷한 반감기를 나타내고 대기 에어로졸과도 유사한 수명을 보인다(Zahorowski *et al.*, 2004). 그리고 물에 용해되지 않고 습도, 온도, 일사량에도 안정하여 화학적으로 불활성인 성질을 나타내기 때문에 에어로졸이나 기체상 오염물질의 장거리 수송

특성을 파악하기 위한 지시물질로 활용이 가능하다.

6년의 기체상 오염물질의 농도변화를 월별로 서로 비교하였고, 그 결과를 같은 기간에 측정된 라돈 농도와 함께 Figure 21 에 나타내었다. 그림과 같이 측정기간의 월평균 라돈농도는 가을에 농도가 서서히 증가하기 시작하여 겨울과 봄철에는 높았다가 여름철에는 낮아지는 추세를 반복적으로 보여주고 있다. 그리고 라돈과의 상관계수(r)를 비교해 보면 CO(0.6), SO<sub>2</sub>(0.6), NO<sub>x</sub>(0.5) 성분은 다소 높은 상관계수를 보이고 전체적으로는 라돈과 유사한 계절변화 패턴을 보이는 것으로 조사되었다.

그러나 O<sub>3</sub>(0.1)은 낮은 상관계수와 봄과 여름철에 증가하고 가을과 겨울철에는 낮아지는 추세를 보이고 있다. 이처럼 라돈과 O<sub>3</sub>의 농도가 서로 역으로 변화하는 추세는 앞의 일간 변화에서도 확인할 수 있었으며, 월평균 농도변화 역시 일변화와 유사하게 역으로 변화하는 패턴을 보이고 있다.

Table 11. Concentrations of daily mean radon (mBq m<sup>-3</sup>) and gaseous pollutants (ppb) during 2010-2015.

Species	Mean	S.D.	90 <sup>th</sup>	75 <sup>th</sup>	25 <sup>th</sup>	10 <sup>th</sup>
Radon	2,400.4	1,011.3	3,709.1	3,009.6	1,756.1	1,154.0
SO <sub>2</sub>	1.3	1.7	3.2	1.7	0.3	0.2
CO	377.6	330.9	859.1	439.6	187.0	122.7
O <sub>3</sub>	41.1	15.4	60.6	50.8	31.3	20.8
NO <sub>x</sub>	3.9	1.9	6.2	4.8	2.6	1.9

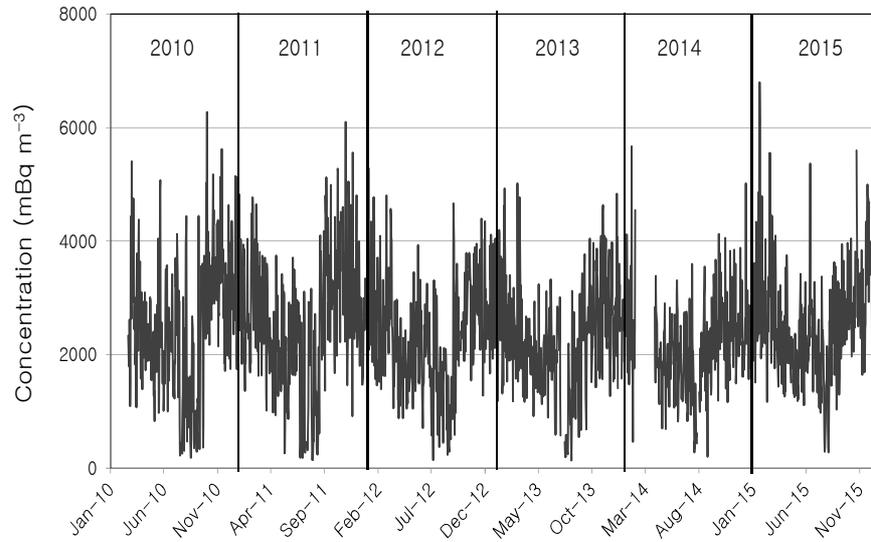


Figure 14. Daily variation of radon concentrations at Gosan site during 2010–2015.

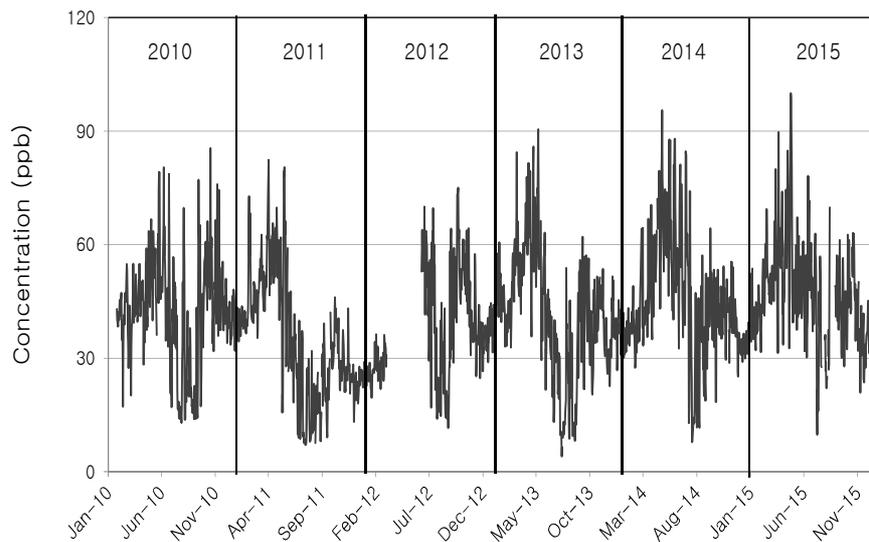


Figure 15. Daily variation of O<sub>3</sub> concentrations during 2010–2015.

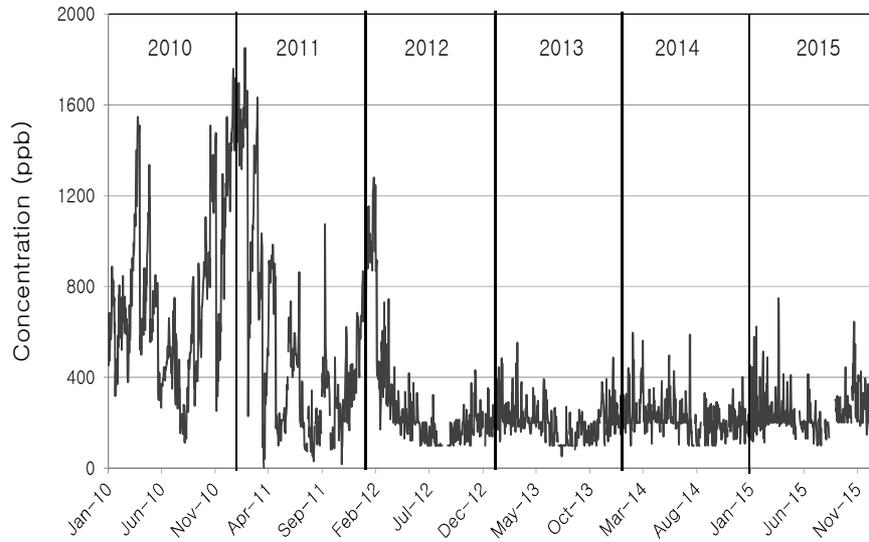


Figure 16. Daily variation of CO concentrations during 2010–2015.

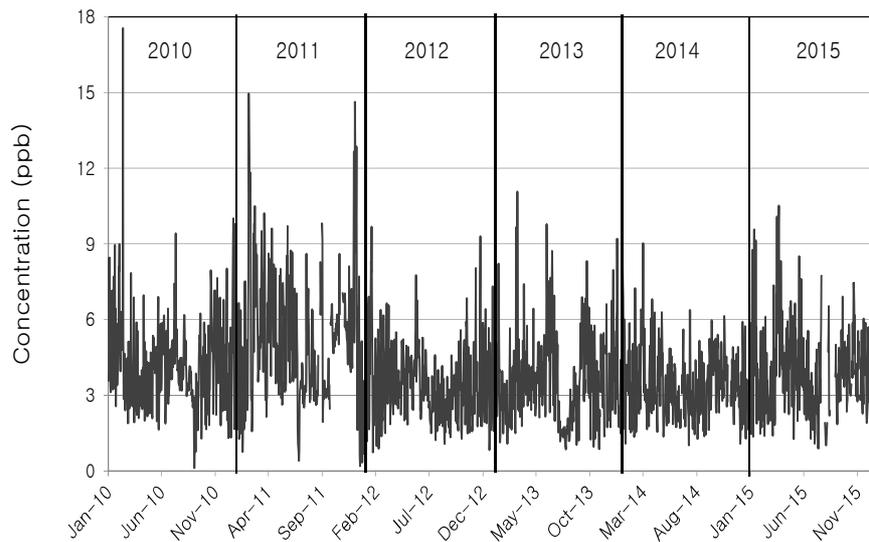


Figure 17. Daily variation of NO<sub>2</sub> concentrations during 2010–2015.

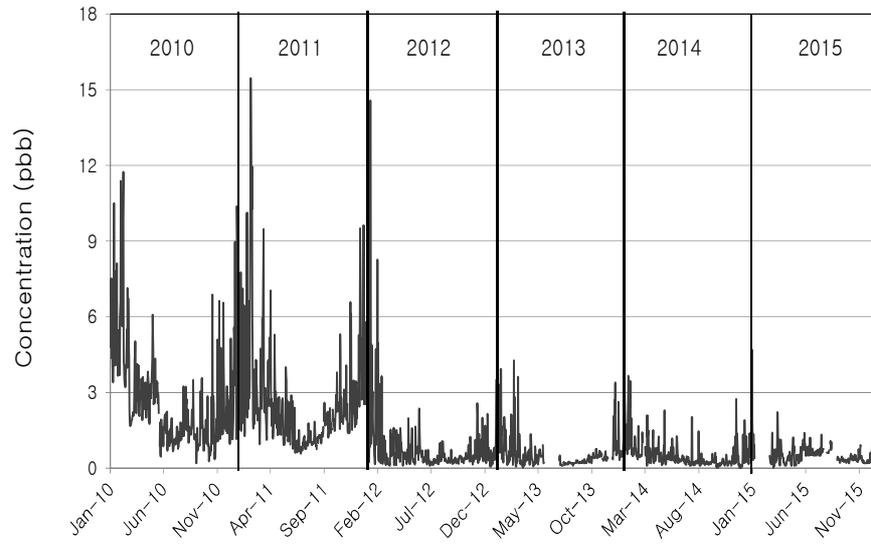


Figure 18. Daily variation of SO<sub>2</sub> concentrations during 2010-2015.

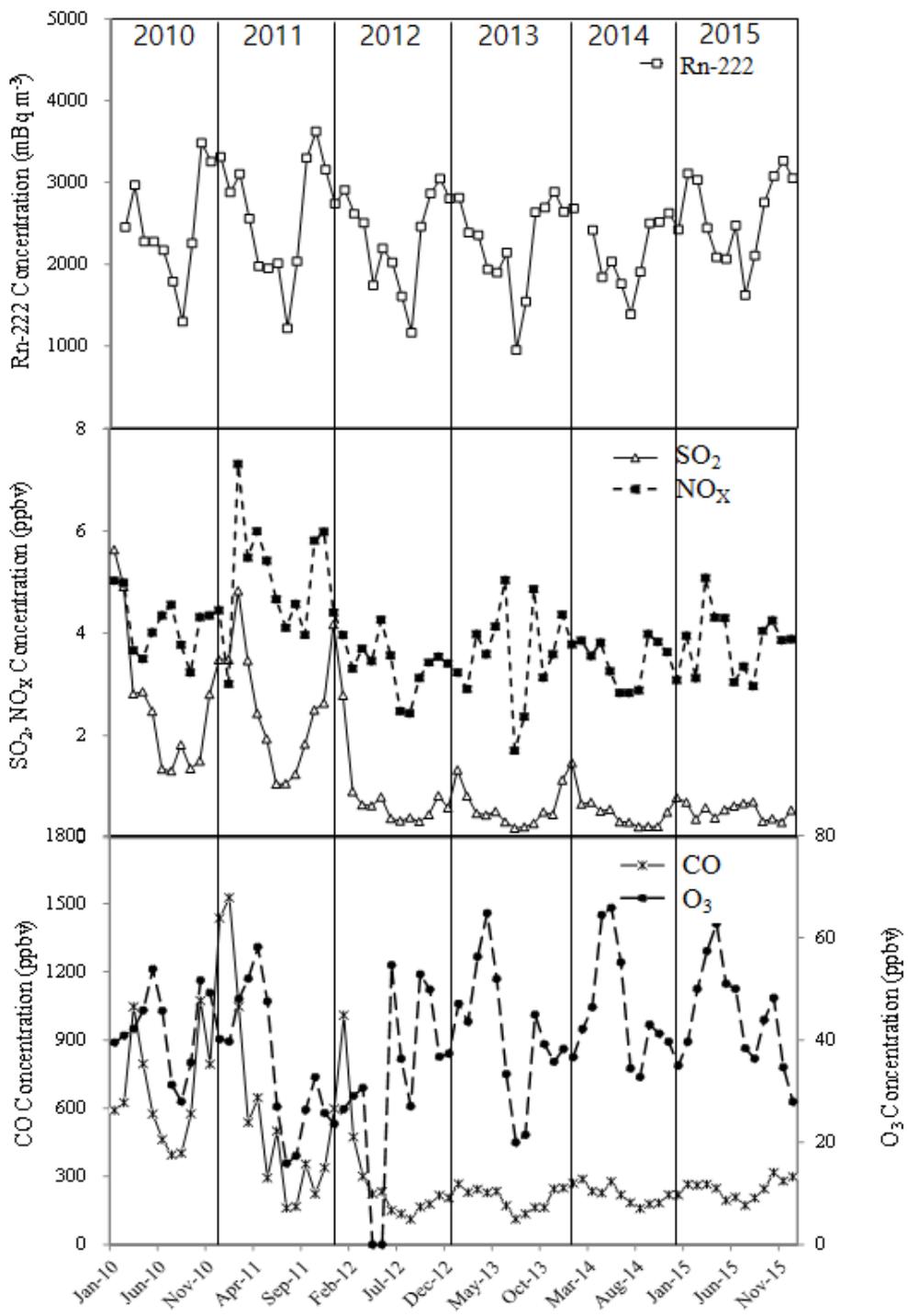


Figure 19. Monthly variations of radon and gaseous pollutant concentrations during 2010–2015.

Table 12. Hourly mean concentrations of radon and gaseous pollutants during 2010–2015.

Time	Concentration (mBq m <sup>-3</sup> , ppb)				
	Radon	CO	SO <sub>2</sub>	O <sub>3</sub>	NO <sub>x</sub>
00:00	2,544.3	388.2	1.3	40.3	3.8
01:00	2,574.1	391.1	1.3	40.2	3.6
02:00	2,598.1	391.4	1.3	40.0	3.5
03:00	2,622.2	393.3	1.3	39.5	3.5
04:00	2,664.3		1.3	39.2	3.4
05:00	2,700.2	389.0	1.3	38.8	3.4
06:00	2,734.5	389.0	1.3	38.2	3.6
07:00	2,741.1	389.6	1.3	37.5	3.9
08:00	2,688.8	381.8	1.3	37.2	4.2
09:00	2,570.5	377.2	1.4	38.0	4.4
10:00	2,405.3	373.5	1.4	39.4	4.3
11:00	2,261.6	366.0	1.4	41.0	4.2
12:00	2,149.7	360.5	1.4	42.6	4.0
13:00	2,060.6	360.2	1.4	44.1	3.8
14:00	2,017.5	361.0	1.4	44.8	3.8
15:00	2,006.5	363.1	1.4	45.2	3.8
16:00	2,019.1	366.4	1.4	45.3	3.9
17:00	2,059.9	371.8	1.3	44.9	4.1
18:00	2,138.2	377.0	1.3	44.3	4.2
19:00	2,231.2	383.8	1.3	43.3	4.3
20:00	2,301.8	386.4	1.3	42.5	4.2
21:00	2,371.2	387.6	1.3	41.6	4.1
22:00	2,443.9	388.8	1.3	41.0	4.0
23:00	2,499.2	388.8	1.3	40.7	3.9

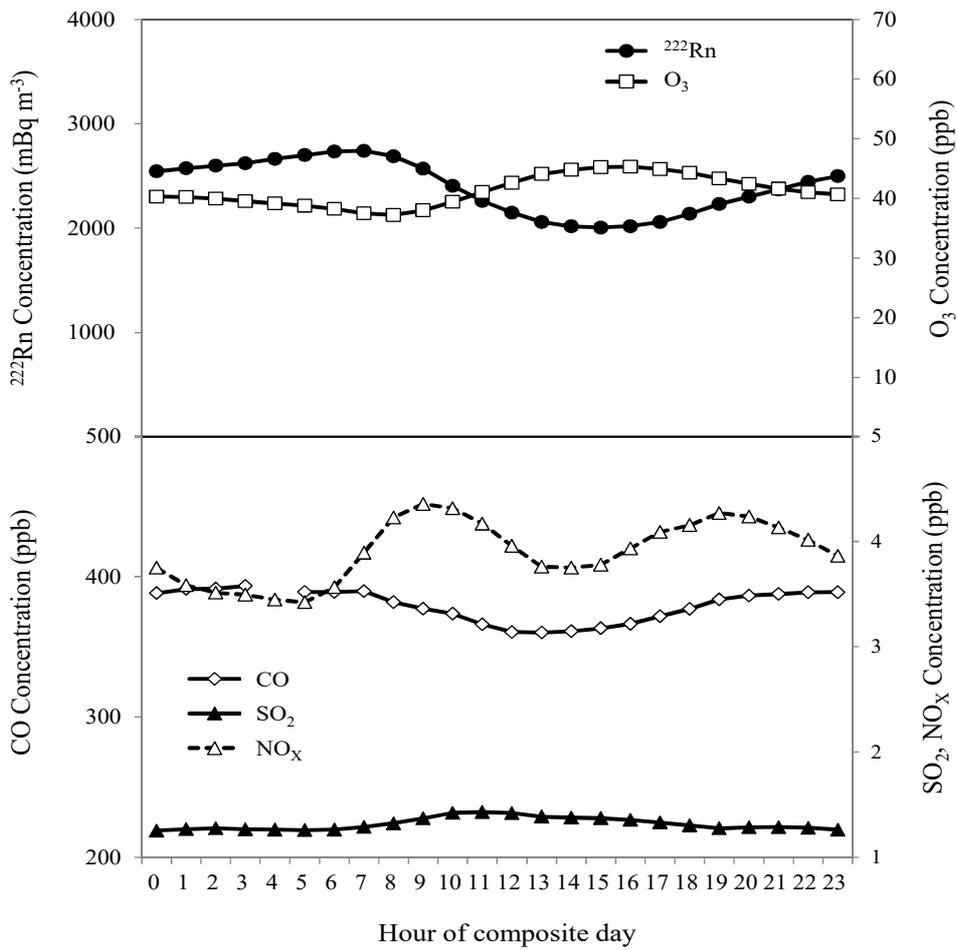


Figure 20. Diurnal variation of hourly mean concentrations of radon and gaseous pollutants during 2010-2015.

Table 13. Monthly concentrations of radon and gaseous pollutants during 2010–2015.

Time	Concentration (mBq m <sup>-3</sup> , ppb)				
	Radon	CO	SO <sub>2</sub>	O <sub>3</sub>	NO <sub>x</sub>
Jan	2,853.6	653.8	2.9	38.4	3.9
Feb	2,777.4	485.0	2.2	42.2	4.3
Mar	2,537.7	433.6	1.5	51.3	4.2
Apr	1,971.4	391.2	1.2	59.0	4.1
May	2,073.9	307.2	1.2	53.8	4.2
Jun	2,070.8	281.6	0.7	43.5	3.9
Jul	1,451.5	192.2	0.7	28.4	3.1
Aug	1,705.1	217.8	0.8	26.9	3.2
Sep	2,683.3	280.9	0.7	41.2	3.8
Oct	3,032.7	362.6	1.0	43.9	4.1
Nov	3,031.4	350.6	1.3	36.8	4.2
Dec	2,852.3	514.1	1.8	33.7	3.9

Table 14. Seasonal concentrations of radon and gaseous pollutants during 2010–2015.

Seasonal	Concentration (mBq m <sup>-3</sup> , ppb)				
	Radon	CO	SO <sub>2</sub>	O <sub>3</sub>	NO <sub>x</sub>
Spring	2,179.3	380.4	1.3	54.7	4.2
Summer	1,748.0	232.6	0.7	33.0	3.4
Fall	2,914.7	331.6	1.0	40.7	4.0
Winter	2,832.1	553.6	2.9	38.0	4.0

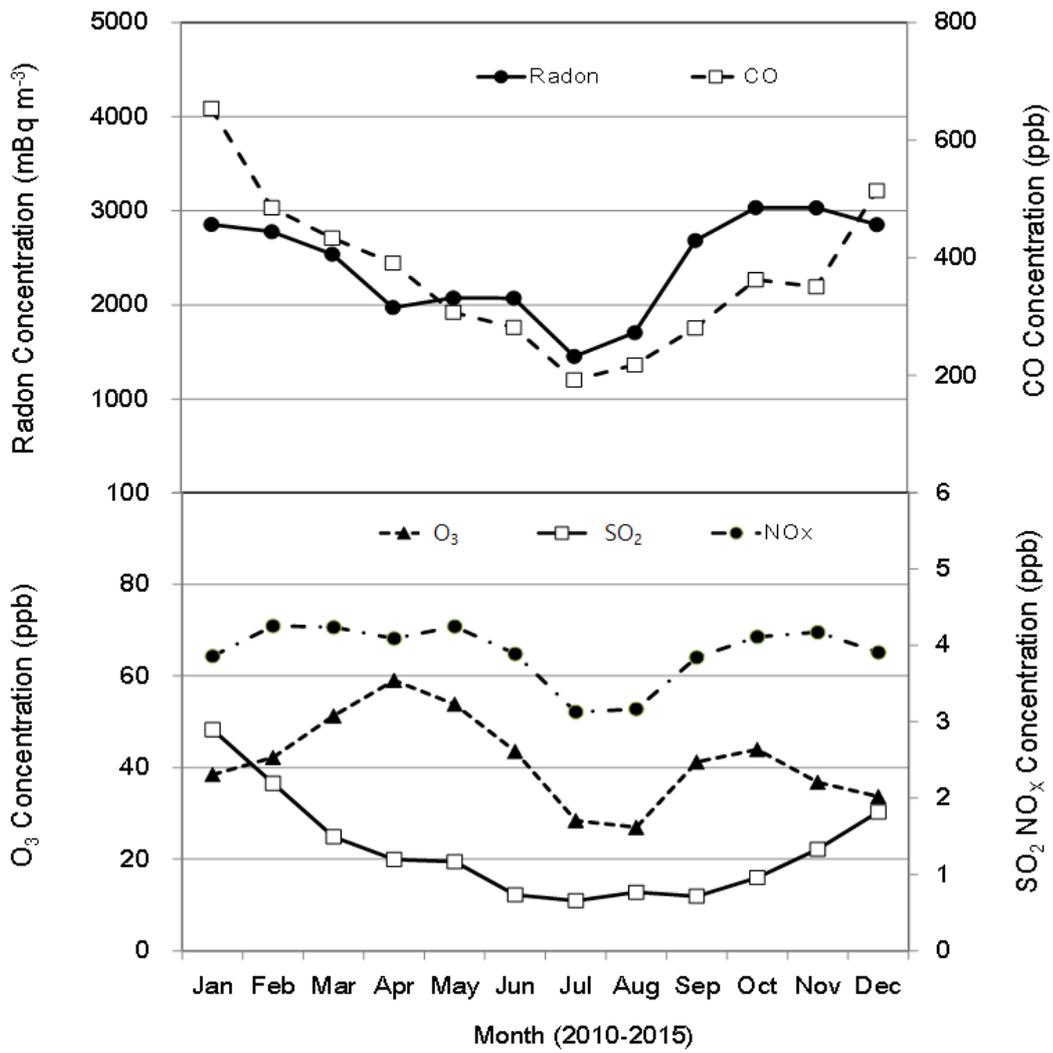


Figure 21. Monthly variations of radon and gaseous pollutant concentrations during 2010-2015.

### 2.3 라돈과 기체상 오염물질의 상관성

대기 라돈과 기체상 오염물질 CO, SO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, NO<sub>x</sub> 성분들의 농도와의 상관성을 확인하기 위하여 라돈을 기준으로 농도가 높은 상위 25%, 중간 50%, 하위 25%로 구분하여 각각의 평균농도를 비교하였다. 그리고 라돈 측정과 일치하는 시기의 CO, SO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, NO<sub>x</sub> 성분들의 농도를 평균하여 상호 비교하였고, 그 결과를 Table 15에 수록하였다.

Table 15에서와 같이 상위 25%의 라돈(n=510) 농도는 3,714.6 mBq m<sup>-3</sup>이었고, 이와 동일한 시기의 CO, SO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, NO<sub>x</sub> 성분들의 농도는 각각 502.1, 1.7, 41.6, 4.8 ppb를 나타내었다. 그리고 중간 50%의 라돈(n=1011) 농도는 2,358.7 mBq m<sup>-3</sup>, 하위 25%(n=510)는 1,164.2 mBq m<sup>-3</sup> 순으로 조사되었다. 이와 일치하는 시기의 중간 50%의 기체상 오염물질 CO, SO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, NO<sub>x</sub>는 각각 375.5, 1.2, 44.2, 4.0 ppb의 농도를 나타내었다. 이들 성분들의 하위 25%의 농도는 각각 254.5, 0.8, 34.8, 2.9 ppb를 나타내었고, O<sub>3</sub>성분을 제외한 다른 성분들은 대기 라돈과 유사한 추세를 나타나는 것으로 조사되었다.

또한 월별 라돈 농도와 연구기간의 일별 라돈 농도와 CO, SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> 성분들과 상관계수(r)를 비교한 결과에서는 0.5~0.6 정도의 상관성을 보였다. 그러나 라돈 농도를 상위, 중간, 하위로 구분하여 이를 기체상 오염물질의 농도와 비교한 결과에서는 O<sub>3</sub> 성분을 제외한 CO, SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> 성분들은 대체적으로 라돈 농도가 높을수록 비례적으로 농도가 함께 증가하는 동일 추세를 보이고 있음을 확인할 수 있었다.

Table 15. Concentrations of CO, SO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, and NO<sub>x</sub> corresponding to high (25%), medium (50%), and low (25%) radon levels.

Level	Conc. (mBq m <sup>-3</sup> )	Conc. (ppb)			
	<sup>222</sup> Rn	CO	SO <sub>2</sub>	O <sub>3</sub>	NO <sub>x</sub>
High (25%) (n=510)	3,714.6	502.1	1.7	41.6	4.8
Medium (50%) (n=1011)	2,358.7	375.5	1.2	44.2	4.0
Low (25%) (n=510)	1,164.2	254.5	0.8	34.8	2.9

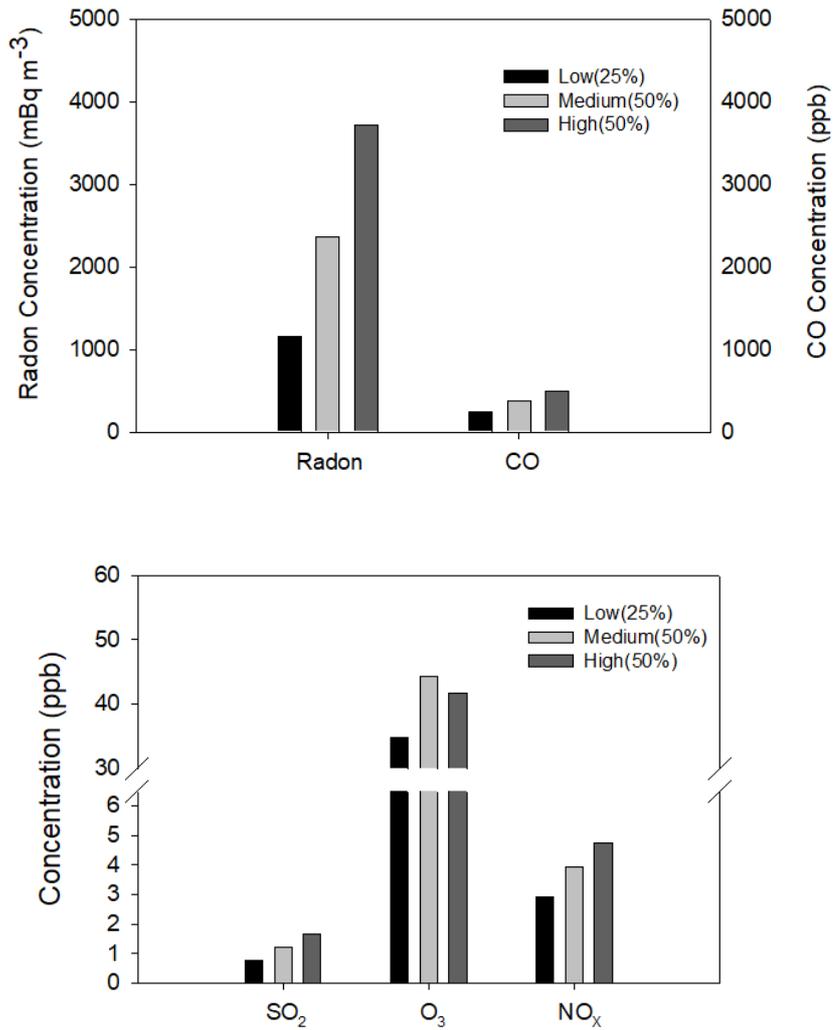


Figure 22. Comparison of CO, SO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, and NO<sub>x</sub> concentrations corresponding to high, medium, and low radon levels.

### 3. 대기 미세먼지 농도

#### 3.1 PM<sub>10</sub> 및 PM<sub>2.5</sub> 미세먼지

세계보건기구(WHO)에서는 기후변화로 인한 대표적인 건강위험 요인으로 오존층 감소와 폭염, 그리고 미세먼지(Particulate Matter, PM) 등에 의한 대기 오염을 주요 원인으로 보고 있다. 특히 고농도 미세먼지는 노출 정도에 따라 뇌졸중, 심장마비, 폐질환, 심근경색, 천식을 포함한 만성 또는 급성 호흡기 질병을 일으키고 사망률을 높이는 것으로 나타나고 있다. WHO에서는 2013년에 미세먼지를 1급 발암물질로 규정하였다(송정민, 2017; WHO, 2014).

일반적으로 미세먼지는 공기역학적 직경(Aerodynamic particle diameter,  $D_p$ )에 따라 크게 TSP (Total Suspended Particulates), PM<sub>10</sub> (Particulate Matters with aerodynamic diameter less than 10  $\mu\text{m}$ ), PM<sub>2.5</sub> (Particulate Matters with aerodynamic diameter less than 2.5  $\mu\text{m}$ )로 구분되고 있다(배현주, 2014). 이러한 입자들은 직경이 따라 주 배출원과 물리, 화학적 특성이 다르고 인체 및 생태 위해성도 달라진다.

PM<sub>10</sub> 미세먼지는 주로 토양, 해염, 기계적 분쇄과정을 통해서 생성된다. 그리고 기도 자극, 폐기능 감소, 천식 악화, 만성기관지염 발생 등의 호흡기계 관련 질환과 부정맥, 경미한 심장마비, 심혈관계 영향을 미치는 것으로 보고되고 있다(Canova et al., 2012; Faustini et al., 2012; Ostro et al., 2009; Colais et al., 2012; Katsouyanni et al., 2009). 반면에 직경이 작은 PM<sub>2.5</sub>는 산업시설 등에서 배출되어 호흡을 통해 폐·허파의 깊은 곳까지 침투하며, 농도증가가 사망률 증가에 영향을 미치는 것으로 알려져 있다.(Song et al., 2016; Yang et al., 2011; Kang, 2009).

PM<sub>2.5</sub>는 공기 중에 장기간 체류하기 때문에 발생원으로부터 수백~수천 km까지 장거리 수송(long-range transport)이 가능하여 국지적인 오염이 주변지역으로 넓게 광역화되는 경향을 보인다(신훈중 등, 1996). 특히 산성 기체상 오염물질의 농도가 높은 도시지역의 경우, 2.5  $\mu\text{m}$  이하의 미세입자에서 2차 물질의 기여도가 높은 것으로 나타나고 있다(이성희 등, 2012). 이처럼 대기 미세먼지는 크기에 따라 물리적 성질, 화학 조성, 발생 기원 등 그 특성이 다르기 때문에 입자크기에 따라

입경별 분포와 조성을 비교할 필요가 있다. 더욱이 대기 미세먼지의 실태 파악이나 소멸기작을 설명하기 위해서는 이에 대한 물리적 특성과 화학조성을 파악할 필요가 있다(Oh *et al*, 2009).

현재 대부분의 국가에서 호흡성 입자(Respirable particle)인 조대입자의 질량 농도를 기초로 입자상 물질의 대기환경기준을 설정하고 있다. 그리고 WHO에서는 조대입자 질량농도 권고기준을 연평균  $20 \mu\text{g m}^{-3}$ , 일평균  $50 \mu\text{g m}^{-3}$ 로 정하고 있고, 유럽연합은 이를 각각  $40 \mu\text{g m}^{-3}$ ,  $50 \mu\text{g m}^{-3}$ 로 정하고 있다. 또 미국은 1997년에 인체영향에 대한 지속적인 연구 결과를 기초로 미세입자 기준을 추가하여 조대입자는 일평균  $35 \mu\text{g m}^{-3}$ 의 기준을 적용하여 관리하고 있다.

우리나라에서도 미세먼지에 대한 관심이 고조되면서 2015년부터 초미세먼지( $\text{PM}_{2.5}$ )에 대한 대기환경기준을 새롭게 설정하였다. 그리고 수도권은 물론 각 지자체에서도 다양한 배출량 저감대책 수립에 노력을 기울이고 있다. 하지만 주변 지역에서 배출되어 편서풍을 타고 장거리 수송되는 각종 오염물질의 영향으로 관리에 어려움을 겪고 있다. 특히 최근에 빈번한 고농도 미세먼지는 중국 오염 영향을 직접적으로 받고 있는 것으로 나타나고 있다.

우리나라는 1995년에  $\text{PM}_{10}$  미세먼지에 대한 환경기준을 설정을 시작으로 2001년과 2007년에 개정을 거쳐 일평균  $100 \mu\text{g m}^{-3}$ 와 연평균  $50 \mu\text{g m}^{-3}$  기준을 강화하여 엄격한 대기질 관리를 시행하고 있다. 2011년에는  $\text{PM}_{2.5}$  초미세먼지의 위해성이 부각되고 있는 세계적 추세에 부응하여 환경정책기본법을 새롭게 개정하였다. 그리고 2015년부터는  $\text{PM}_{2.5}$  초미세먼지의 환경기준을 일평균  $50 \mu\text{g m}^{-3}$ , 연평균  $25 \mu\text{g m}^{-3}$ 로 설정하여 관리해오고 있다.

그러나 국내 초미세먼지( $\text{PM}_{2.5}$ ) 환경기준이 세계보건기구(WHO) 기준이나 미국, 일본에 비해 많이 완화된 수준이라는 지적이 있어왔다. 더욱이 최근에 세계보건기구 산하 국제암연구소(IARC)가 미세먼지를 1군 발암물질로 지정함에 따라 초미세먼지에 대한 국가차원의 적극적인 보호대책을 강구하기 위한 필요성이 대두되었다. 이러한 이유로 최근 2018년 3월 27일에는  $\text{PM}_{2.5}$  환경기준을 일평균  $35 \mu\text{g/m}^3$ , 연평균  $15 \mu\text{g/m}^3$ 로 기준을 조정한 '환경정책기본법 시행령'을 발표하여 초미세먼지 예보기준을 크게 강화시켰다.

또한 환경부에서는 미세먼지의 영향을 확인하기 위하여 2016년 5~6월에 미국

항공우주국(NASA)과 합동으로 ‘한-미 협력 국내 대기질 공동조사(KORUS-AQ)’를 실시하였다. KORUS-AQ는 수도권과 한반도 대기질 측정을 위하여 지상·항공·해상에서 동시에 3차원 입체관측을 실시하였다. 그리고 이 기간 동안에 서울 올림픽 공원에서 측정한 결과를 기초로 고농도 미세먼지(PM<sub>2.5</sub>)의 발생 원인이 국내 52%, 국외 48%인 것으로 추정하였다. 이 중 국외의 경우 중국내륙 34%, 북한 9%, 기타 6% 정도로 영향을 미친 것으로 나타났다(송정민, 2017).

동북아 지역의 대기오염물질 배출량은 급속히 증가하고 있는 추세이며, 특히 우리나라와 인접한 중국의 배출량이 큰 비중을 차지하고 있다. 중국의 대기오염물질 배출량은 황산화물(SO<sub>2</sub>)과 질소산화물(NO<sub>x</sub>) 기준으로 아시아지역의 70~80%를 차지하는 것으로 나타나고 있다. 따라서 북서풍 풍하에 위치한 우리나라는 이러한 장거리 이동 오염물질의 영향을 크게 받고 있다(이종훈 등, 1997; Wang *et al.*, 2013).

중국내륙에서 발생하는 황사 역시 한반도 대기질에 크게 영향을 미치고 있다. 주로 3~4월에 30~50%, 5월에 20~30%로 봄철에 집중되던 황사가 최근에는 가을, 겨울철에도 빈번히 나타나고 있다(신은상 등, 2002; 김용석, 2012). 그리고 2010년 3월 20일에 발생한 황사의 경우 흑산도에서 기상청 계기관측 기록 중 시간당 최고 농도인 2,712  $\mu\text{g m}^{-3}$ , 11월 11일에는 봄이 아닌 계절에 관측된 황사 중 가장 짙은 농도인 시간당 1,664  $\mu\text{g m}^{-3}$ 가 백령도에서 기록되기도 했다.(전영신, 2011).

## 3.2 PM<sub>10</sub> 미세먼지 조성

### 3.2.1 PM<sub>10</sub> 이온성분 농도

최근에 빈번하게 발생하고 있는 고농도 미세먼지 역시 중국의 오염 영향을 많이 받고 있는 것으로 조사되고 있다. 최근에 중국에서 발생한 고농도 초미세먼지 사례를 보면, 2013년 1월에 베이징의 PM<sub>2.5</sub> 농도가 993  $\mu\text{g m}^{-3}$ , 10월에 하얼빈시의 농도가 1,000  $\mu\text{g m}^{-3}$ 에 육박하면서 최고 농도를 기록하였다. 또 중국기상국 발표에 따르면 2013년 초부터 10월까지 중국 전역의 평균 스모그 일수가 4.7일로 52년 만에 최다 빈도를 나타내고 있다. 베이징, 허난성, 장쑤성 지역의 스모그 일수가 10~20일로 2012년 대비 5~10일 증가 하였다(환경부, 2013). 이러한 고농도 미세먼지의 영향으로 국내에도 연무현상이 지속적으로 관측되고 있다.

본 연구를 수행한 제주도 고산 지역의 경우 지난 2011년에 13회에서 2012년에 28회, 2013년에 30회의 연무일수가 관측되었고 점차적으로 증가 추세를 나타내고 있다. 또한 기상청 관측 자료에 의하면 2011~2013년 기간에 1월 18회, 2월 11회, 12월 9회 등 주로 겨울철에 연무현상이 많이 나타난 것으로 나타나고 있다. 이러한 이유는 겨울철 난방에 따른 SO<sub>2</sub> 발생량 증가, 차량에 의한 NO<sub>x</sub> 배출량 증가가 주요 원인인 것으로 추정된다(기상청, 2014; Wang *et al.*, 2014).

제주도 고산지역에서 2010년 1월 1일부터 2015년 12월 31일까지 채취한 총 616개의 시료에 대해 수용성 이온성분을 분석하였고, 여기에서 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>와 nss-Ca<sup>2+</sup>는 비해염(non-sea salt) 농도로, '[nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>] = [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>] - [Na<sup>+</sup>] × 0.251'의 식과 '[nss-Ca<sup>2+</sup>] = [Ca<sup>2+</sup>] - [Na<sup>+</sup>] × 0.04'의 식에 의해 계산하였다(Ho *et al.*, 2003; Savoie *et al.*, 1987).

PM<sub>10</sub> 미세먼지의 이온성분의 결과를 Table 16과 Figure 23에 나타내었다. 이온성분은 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> > NO<sub>3</sub><sup>-</sup> > NH<sub>4</sub><sup>+</sup> > Cl<sup>-</sup> > Na<sup>+</sup> > Mg<sup>2+</sup> > nss-Ca<sup>2+</sup> > K<sup>+</sup> 순으로 농도가 높았다. 이 중 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 성분이 7.5 µg m<sup>-3</sup>로 가장 높은 농도를 보였고, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 전체 농도의 93.5%를 차지하는 것으로 확인되었다. nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>와 함께 이차 오염물질 성분인 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>이 높은 농도를 나타내었다. 이들 중 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>은 4.2 µg m<sup>-3</sup>의 농도를 보였으며, 이는 질소산화물이 오존과 에어로졸 생성의 전구물질이 되는 주요 대기오염물질로 주로 화석연료의 연소과정에서 발생된다. 최근 중국을 포함한 동아시아에서는 급격한 경제 발전에 의해 질소산화물의 배출량이 증가하고 있는 추세에 기인하는 것으로 판단된다(Van derA *et al.*, 2008; Richter *et al.*, 2005).

그리고 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>은 3.1 µg m<sup>-3</sup>의 농도를 보였다. 대기 중 암모니아의 약 90%는 대기 중의 황산(H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>), 질산(HNO<sub>3</sub>), 염산(HCl) 등과 반응하여 암모늄(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) 에어로졸로 전환되며, 약 10%는 OH 라디칼로 전환된다(Warneck, P, 1988). 대기 중의 암모늄은 황산이온, 질산이온등과 반응하여 황산암모늄(NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>), 질산암모늄(NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>), 염화암모늄(NH<sub>4</sub>Cl) 등의 2차 대기오염물질을 생성한다 (Adams, P. J *et al.*, 2001). 그리고 비농업 지역의 경우 인구밀도나 교통량 등에 따라 농도 변화가 있을 수 있으며, 온도와 습도에 의해서도 농도와 관련이 있는 것으로 보고되고 있다(Masiol *et al.*, 2012; 이학성 등, 1999).

그 다음으로  $\text{Cl}^-$ 과  $\text{Na}^+$  성분이 각각  $2.5, 2.1 \mu\text{g m}^{-3}$ 를 보였고, 이들 두 성분의 농도가 높게 나타난 이유는 측정소가 해안가에 근접해 있어서 해염 입자의 영향으로 판단된다. 그리고 토양 기원 성분인  $\text{nss-Ca}^{2+}$ 은  $0.5 \mu\text{g m}^{-3}$ ,  $\text{K}^+$ 는  $0.4 \mu\text{g m}^{-3}$ 으로 다른 성분들에 비해 비교적 낮은 수치를 나타내었다.  $\text{nss-Ca}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$ 은 지질 광물의 주요 구성원소이다. 그러나 수용성  $\text{K}^+$  이온은 전체 분석성분의 10% 정도만이 토양으로부터 유래되고 나머지는 주로 생체소각(biomass burning) 등 인위적 요인에 의해 발생하는 것으로 보고되고 있다(현동립, 2014; 오미석 등, 2009; McMurry *et al.*, 2004).

$\text{PM}_{10}$ 의 주요 수용성 성분의 농도를 월별 변화를 비교하기 위하여 연구기간 동안 측정된 각 성분의 농도를 월별로 평균하였고, 그 결과를 Table 17과 Figure 24에 나타내었다. 이들 성분들 중에서는  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 의 농도는 월별로  $\text{May} > \text{Mar} > \text{Jun} > \text{Apr} > \text{Feb} > \text{Jan} > \text{Jul} > \text{Dec} > \text{Nov} > \text{Sep} > \text{Aug} > \text{Oct}$  순으로 5월에  $11.1 \mu\text{g m}^{-3}$ 로 가장 높았고, 10월에  $7.1 \mu\text{g m}^{-3}$ 로 가장 낮은 농도를 나타내었다.

일반적으로  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 이 겨울철에 농도가 증가하지만, 이처럼 3~5월에 농도가 높은 것은 봄철에 우세한 편서풍의 영향으로 중국의 오염영향을 많이 받은 것으로 추정된다. 또한 봄철에 발생하는 황사의 영향으로  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 의 상당량이  $\text{CaSO}_4$  형태로 전환된 것으로 사료된다. 그리고 봄철을 제외한 6월에  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  농도가 높은 원인은 해양에서 발생한 황화합물의 영향과 전구물질인  $\text{SO}_2$ 의 빠른 이차입자로의 전환과 연관이 큰 것으로 보인다. 일반적으로 기온이 높은 여름철에는 광화학 반응이 활발하여  $\text{SO}_4^{2-}$  입자의 생성이 다른 계절에 비해 빠르게 진행된다. 그리고 승화성이 높은  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  등의 물질이 기체상으로 휘산된 후, 가스 상의  $\text{NH}_3$ 은 결합력이 강한  $\text{SO}_4^{2-}$ 와 결합하여 미세입자에서  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  등과 같은 염을 생성하는 경향을 보인다(Sirois and Fricke, 1992).

인위적 기원 성분인  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$  농도는 3월에 각각  $4.9, 9.5 \mu\text{g m}^{-3}$ 로 가장 높은 농도를 보였고, 8월에 각각  $2.0, 2.1 \mu\text{g m}^{-3}$ 로 가장 낮은 농도를 나타내었다.  $\text{NH}_4^+$ 과  $\text{NO}_3^-$ 이 3월에 높은 농도를 나타내는 현상 역시 편서풍에 의한 월경성 대기오염물질의 장거리 이동과 관련 있어 보인다. 또한  $\text{NH}_4^+$ 은 비료 사용, 동물의 배설물이나 식물의 부패 등에 의한  $\text{NH}_3$  발생량 증가로 봄철과 여름철에 농도가

상승하는 것으로 알려져 있다.  $\text{NH}_4^+$  농도는 3월과 5월 다음으로 6월에 가장 높게 나타났으며, 월별 농도편차는 다른 성분들에 비해 더 작은 결과를 나타내었다. 이 시기에  $\text{NH}_4^+$  농도가 크게 상승하는 것은 기온 상승에 따른 생물학적 활성과 관련이 큰 것으로 추측된다.

nss- $\text{Ca}^{2+}$ 의 월별 농도는  $\text{Mar} > \text{May} > \text{Nov} > \text{Feb} > \text{Apr} > \text{Jan} > \text{Dec} > \text{Oct} > \text{Sep} > \text{Jun} > \text{Aug} > \text{Jul}$  순으로, 3월( $1.2 \mu\text{g m}^{-3}$ )에 가장 높고, 7월( $0.2 \mu\text{g/m}^3$ )에 가장 낮았으며, 약 5.1배 이상의 큰 편차를 보이고 있다. 이처럼 nss- $\text{Ca}^{2+}$  농도가 3, 5월의 봄철에 크게 증가하는 것은 이 시기의 주 풍향이 북서계열이고, 대륙에서 이동하는 토양 입자의 영향에 기인하는 것으로 판단된다. 특히 이 시기에 황사가 집중적으로 발생했기 때문에 이에 의한 영향으로 사료된다. 또 해염 성분인  $\text{Na}^+$ 와  $\text{Cl}^-$ 의 월평균 농도에서는 두 성분 모두 3월( $3.4, 4.1 \mu\text{g m}^{-3}$ )에 가장 높고, 6월( $2.7, 2.4 \mu\text{g m}^{-3}$ )에 가장 낮은 경향을 나타내었다.

주요 수용성 성분들을 계절별로 비교한 결과에서는 주요 이차오염 물질인  $\text{NH}_4^+$ , nss- $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$  성분들이 봄철에 각각  $4.1, 10.5, 6.1 \mu\text{g m}^{-3}$ 로 가장 높은 농도를 보였다(Table 18). 그리고 토양기원 성분인 nss- $\text{Ca}^{2+}$ 은  $0.9 \mu\text{g m}^{-3}$ 로 봄철에 농도가 높았고, 이는 이차오염물질과 유사한 경향을 보였다. 그러나 해염기원인  $\text{Na}^+$ 와  $\text{Cl}^-$  성분은 상대적으로 겨울철에 높은 농도를 보였다. 이는 봄철에 중국 대륙과 내몽골지역에서 이동하는 대기오염물질과 황사의 영향으로 판단된다 (Figure 25).

Table 16. Ionic concentrations of PM<sub>10</sub> aerosols.

Species	Concentrations ( $\mu\text{g m}^{-3}$ )					
	Mean	S.D.	90 <sup>th</sup>	75 <sup>th</sup>	25 <sup>th</sup>	10 <sup>th</sup>
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	3.1	2.9	6.2	4.0	1.3	0.8
Na <sup>+</sup>	2.1	1.8	4.6	2.7	0.8	0.4
K <sup>+</sup>	0.4	0.9	0.7	0.4	0.2	0.1
nss-Ca <sup>2+</sup>	0.5	1.1	0.9	0.5	0.2	0.1
Mg <sup>2+</sup>	0.9	2.6	0.8	0.5	0.2	0.1
nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	7.5	5.9	15.4	10.6	4.0	2.5
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	4.2	5.2	8.8	4.9	1.6	0.9
Cl <sup>-</sup>	2.5	4.4	5.8	3.0	0.7	0.3

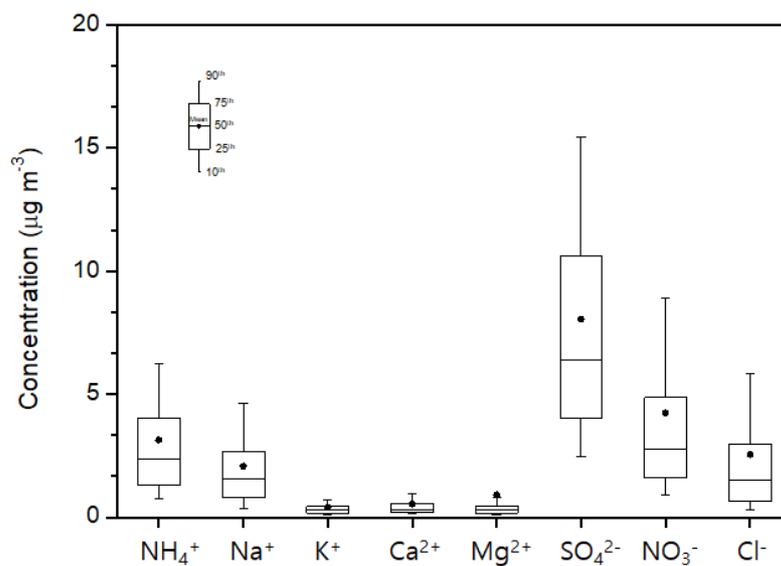


Figure 23. Comparisons of ionic concentrations in PM<sub>10</sub> aerosols.

Table 17. Monthly ionic concentrations in PM<sub>10</sub> aerosols during 2010–2015.

Month	Concentration ( $\mu\text{g m}^{-3}$ )							
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss <sup>-</sup> Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	nss <sup>-</sup> SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>
Jan	3.4	2.4	0.5	0.5	0.3	8.0	5.5	3.1
Feb	3.8	2.2	0.5	0.7	0.3	8.6	6.1	2.8
Mar	4.9	3.4	0.5	1.2	0.4	10.5	9.5	4.1
Apr	3.5	2.8	0.3	0.6	0.3	9.5	5.4	2.8
May	3.9	1.5	0.3	1.0	0.3	11.1	4.6	1.4
Jun	3.8	1.4	0.3	0.3	0.2	10.1	3.3	1.0
Jul	2.1	2.7	0.2	0.2	0.3	7.6	2.2	2.4
Aug	2.0	2.2	0.2	0.3	0.3	6.7	2.1	2.5
Sep	2.3	1.6	0.2	0.3	0.3	6.8	2.6	1.6
Oct	2.3	2.4	0.3	0.4	0.3	6.6	3.5	2.7
Nov	2.2	2.4	0.4	0.9	0.3	6.8	3.5	3.0
Dec	2.6	2.8	0.4	0.5	0.4	7.1	4.2	3.8

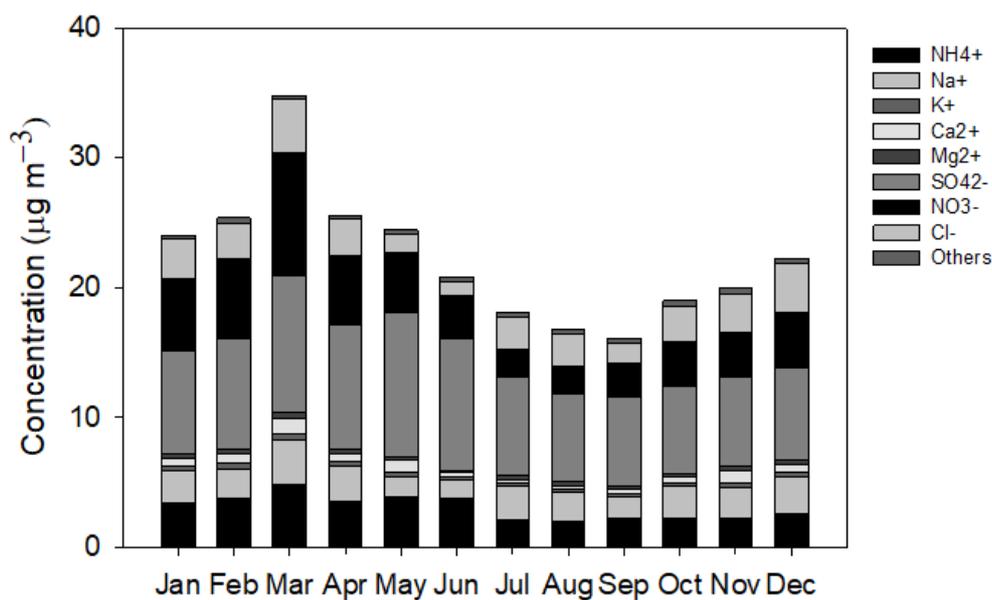


Figure 24. Monthly comparisons of ionic concentrations in PM<sub>10</sub> aerosols during 2010–2015.

Table 18. Seasonal ionic concentrations in PM<sub>10</sub> aerosols during 2010–2015.

Season	Concentration ( $\mu\text{g m}^{-3}$ )							
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss <sup>-</sup> Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	nss <sup>-</sup> SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>
Spring	4.1	2.4	0.4	0.9	0.3	10.5	6.1	2.5
Summer	2.6	2.1	0.2	0.3	0.3	8.1	2.5	2.0
Fall	2.3	2.2	0.3	0.5	0.3	6.7	3.2	2.5
Winter	3.2	2.5	0.5	0.6	0.3	7.8	5.1	3.3

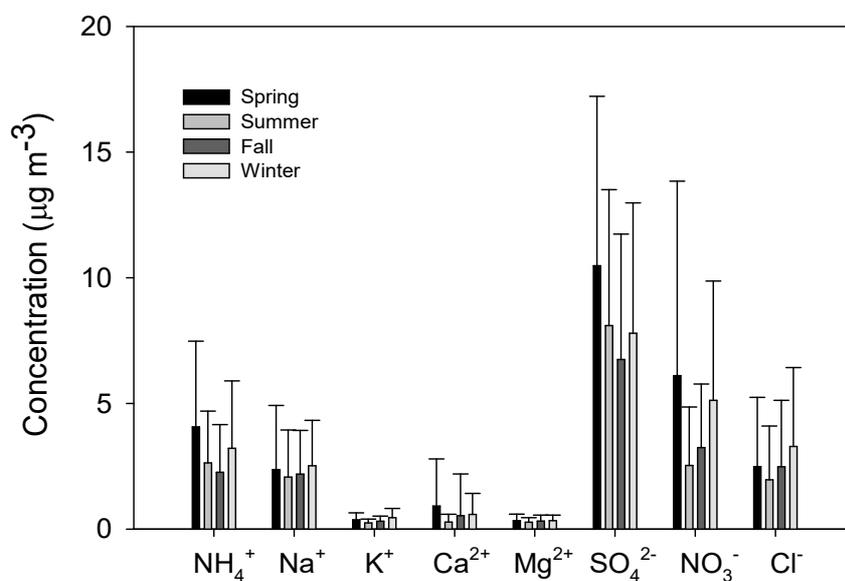


Figure 25. Seasonal comparisons of ionic concentrations in PM<sub>10</sub> aerosols during 2010–2015.

### 3.2.2 PM<sub>10</sub> 원소성분 농도

대기 중 미세먼지는 질량농도, 화학적 조성(원소, 유기물 및 무기물), 입경분포, 형태학적 특성, 발생원 형태 등에 따라 여러 가지 특성을 지니고 있다. 더욱이 이런 많은 특성들은 상호 의존성을 갖고 있으며, 또한 다양한 에어로졸 생성, 동력학적 전환, 수송 및 제거과정으로 인해 시간과 공간적으로 매우 다양하게 나타날 수 있다(Salma *et al.*, 2001). 이렇게 다양하게 형성된 미세먼지 내 중금속은 인체에 흡입되어 건강장애를 일으킬 수 있고, 식물의 기공이나 토양에 흡착되어 식물의 성장에도 많은 장애를 주는 것으로 알려져 있다(Goyer, 1991).

특히, 미세먼지에 함유되어 있는 Pb, Cd, Mn, Zn, Ni, Cr 등의 중금속은 인체에 흡수되어 활성산소를 생성하는 등 여러 가지 기전을 통해 호흡기 및 순환기계 뿐만 아니라 정신적인 질환을 야기할 수 있다는 보고들이 계속해서 발표되고 있다(Kumar and Jugdutt, 2003; Donaldson and MacNee, 2001).

일반적으로 조대입자들은 주로 토양, 해염 등 자연발생적 기원 성분들의 기여율이 높고 미세입자에서는 인위적 기원 성분들의 기여율이 높은 경향을 보인다. 선행 연구를 보면, PM<sub>10</sub> 입자에서 금속원소 성분들은 Al, Ca, Fe, Mn, Mg 등이 주로 토양의 비산에 의해 대기 에어로졸에 유입되거나, 식물의 개화 시에 화분의 비산에 의해 유입되는 것으로 조사되고 있다. 또 Fe은 암석의 풍화 등에 의해 토양으로부터 자연적으로 발생하는 것과 석탄, 중유의 연소, 산화철의 비산 등과 같은 인위적인 오염원으로부터 발생한다(전병일 등, 2005).

미량 중금속의 방출은 여러 경로를 통해서 일어나며, 자연발생으로 바람에 날리는 먼지, 화산의 폭발이나 용암의 분출, 삼림 화재, 해양 염분의 방출이나 식물 등에서 발생되기도 한다. 하지만 자연발생원보다는 발전소나 산업 공장에서의 석탄과 석유의 연소, 철 금속 제련소에서의 원광의 제련, 철 주조, 폐기물 소각, 시멘트 공장에서의 가마 등과 같은 여러 가지 고온 공정들에 의한 인위적인 발생원이 환경문제에 더 큰 영향을 미친다(문지용 등, 2001). Ni, V 등은 연료의 연소과정, Pb 성분은 연료의 연소 및 제련공정을 비롯한 여러 산업과정에서 발생되며(Choi, 2006), Cu, Zn 성분은 도로 주행 시 마찰 또는 마멸 등으로 인하여 발생한다(문지용 등, 2001). 또 Cd, Cr 등은 소각 과정, Na, K, Mg 등은 주로 해염에 의해 발생하는 것으로 알려져 있다(Oravisjärvi *et al.*, 2003; Fang *et al.*, 2005).

본 연구에서는 2010~2015년 기간의 국내 배경지역인 고산측정소에서 채취한 PM<sub>10</sub> 시료 617개 대상으로 20여종의 원소성분을 분석하였고, 그 결과를 Table 19과 Figure 26에 나타내었다. 분석된 각 원소성분의 평균농도는 S > Na > Al > Fe > Ca > Mg > K > Zn > Ti > Pb > Mn > Ni > Cr > V > Cu > Ba > Sr > Co > Mo > Cd 순으로 높게 조사되었다. 이 중 S 성분의 농도가 1472.2 ng m<sup>-3</sup>로 가장 높게 나타났고, 그 다음으로는 토양 기원 성분인 Al, Fe, Ca 농도가 각각 597.5, 469.0, 411.4 ng m<sup>-3</sup>로 조사되었다.

토양과 해양의 동시 기원을 나타내는 Mg은 279.4 ng m<sup>-3</sup>, 토양과 생체소각으로 인해 유입되는 것으로 알려진 K은 256.0 ng m<sup>-3</sup>을 나타내었다. 또 인위적 기원 성분인 Zn는 34.0 ng m<sup>-3</sup>로 주로 연료, 타이어 마모 등 자동차에 의한 오염원으로 알려져 있다. Ti 성분은 19.8 ng m<sup>-3</sup>의 농도를 보였으며, 미량의 지각원소로 알려져 있다(김기주 등, 2014). 또 Cr, V, Ni은 각각 8.8, 6.9, 9.6 ng m<sup>-3</sup>으로 이들 성분들은 주로 오일 연소 및 금속의 부식과 마모에 의해 배출되는 것으로 보고되고 있다. Pb는 16.3 ng m<sup>-3</sup>로 연료 연소, 제련공정, 여러 산업과정에서 발생하며 특히 차량연료의 연소 과정에서 발생하는 것으로 알려져 있다(전혜리 등, 2012; Choi, 2006). 이 외에 미량 중금속 성분 Mn, Ba, Cu, Sr, Mo, Co, Cd 등은 각각 12.8, 4.1, 4.9, 3.8, 1.7, 1.9, 0.5 ng m<sup>-3</sup>로 낮은 수준의 농도를 나타내었다.

또한 주요 원소성분에 대한 월평균 농도를 월별로 비교하였고, 그 결과를 Table 20과 Figure 27에 나타내었다. 이러한 원소성분들의 농도를 보면, 인위적 기원 성분들의 농도는 S가 May > Mar > Jun > Apr > Nov > Feb > Jul > Jan > Oct > Dec > Aug > Sep 순으로, S는 3월(1,905.8 ng m<sup>-3</sup>)에 가장 높은 농도를 보이고, 9월(1046.3 ng m<sup>-3</sup>)에 가장 낮은 농도를 나타내었다. 또 Pb의 월별 농도는 Mar > May > Apr > Jan > Feb > Nov > Dec > Oct > Sep > Jun > Aug > Jul 순으로, 3월(36.1 ng m<sup>-3</sup>)에 가장 높았고, 7월(6.5 ng m<sup>-3</sup>)에 낮은 농도를 보였다. 또한 Zn의 농도는 Jan > Mar > Apr > May > Feb > Nov > Jul > Dec > Jun > Oct > Sep > Aug 순으로 1월에 59.0 ng m<sup>-3</sup>로 가장 높은 농도를 보였다.

이처럼 인위적 기원의 성분들은 대체적으로 4계절 중 봄철인 3월과 겨울철인 1월에 가장 높은 경향을 보였다. 그러나 이러한 인위적 기원의 원소 성분들은

봄철 외의 나머지 기간에는 수용성 성분들과 달리 뚜렷한 계절적 특징을 보이지 않는 것으로 조사되었다. 또, 토양기원인 Al, Fe, Ca, Mn 성분들의 월별 농도를 보면, 이들 성분의 농도가 5월에 각각 1472.6, 1173.3, 872.8, 29.3 ng m<sup>-3</sup>로 농도가 가장 높았고, 7월에 각각 107.4, 104.6, 81.3, 2.6 ng m<sup>-3</sup>로 농도가 가장 낮았다. 그리고 Ti, Ba, Sr의 농도는 3월에 각각 37.2, 6.8, 6.0 ng m<sup>-3</sup>로 가장 높고, 7월과 8월에 가장 낮은 농도 수준을 나타내었다.

주요 원소 성분들을 계절별로 비교한 결과에서는 토양기원 성분인 Al, Fe, Ca, Ti, Mn, Ba, Sr 성분들이 봄철에 각각 1,073.3, 898.0, 716.0, 32.2, 23.8, 6.8, 5.6 ng m<sup>-3</sup>로 높은 농도를 보였고, 여름철에 각각 185.3, 159.8, 127.2, 9.4, 4.6, 1.5, 1.5 ng m<sup>-3</sup>로 낮은 농도를 나타내었다(Table 21). 그리고 주요 인위적 기원 성분인 S, Zn, Pb, Cu, Ni 성분들의 농도가 봄철에 각각 1,864.6, 48.4, 27.8, 9.3, 15.6 ng m<sup>-3</sup>로 높은 농도를 보였고, 이는 토양기원 성분들과 유사한 경향을 보이는 것으로 조사되었다.

그러나 해염기원 성분인 Na은 겨울철에 1,336.6 ng m<sup>-3</sup>로 높은 농도를 보였으며, 토양기원 성분과 인위적 기원성분들과 상반된 결과를 나타내었다(Figure 28). 이처럼 토양 지표 성분들과 인위적 기원성분들이 봄철에 농도가 높게 나타나는 것은 편서풍의 영향으로 중국대륙에서 이동한 황사와 중국대륙에서 발생하는 대기오염 물질이 제주지역 대기에 유입되기 때문인 것으로 추정된다.

Table 19. Elemental concentrations in PM<sub>10</sub> aerosols.

Species	Concentration (ng m <sup>-3</sup> )					
	Mean	S.D.	90 <sup>th</sup>	75 <sup>th</sup>	25 <sup>th</sup>	10 <sup>th</sup>
Al	597.5	2,113.5	961.3	463.1	86.7	42.9
Fe	469.0	1,346.9	871.3	394.3	84.9	42.1
Ca	411.4	1,142.7	716.9	372.2	86.3	42.5
Na	1,202.7	1,287.5	2,726.2	1,490.1	451.5	220.3
K	256.0	554.4	486.8	265.6	66.9	34.0
Mg	279.4	584.6	523.2	276.8	85.2	48.5
S	1,472.2	1,408.3	3,007.5	1,917.4	694.8	292.8
Ti	19.8	43.5	40.4	19.7	4.7	1.9
Mn	12.8	31.4	25.2	12.3	2.6	0.9
Ba	4.1	8.7	8.1	4.0	1.1	0.6
Sr	3.8	9.2	6.7	3.7	1.0	0.5
Zn	34.0	61.1	69.4	35.9	7.9	3.2
V	6.9	13.5	12.9	8.3	2.1	1.0
Cr	8.8	21.6	17.8	6.4	1.3	0.6
Pb	16.3	29.0	35.0	17.1	4.0	1.8
Cu	4.9	16.6	9.3	4.0	1.2	0.6
Ni	9.6	23.2	17.6	7.4	1.9	0.8
Co	1.9	11.5	1.0	0.3	0.1	0.1
Mo	1.7	7.3	1.2	0.5	0.2	0.1
Cd	0.5	0.7	1.2	0.7	0.1	0.0

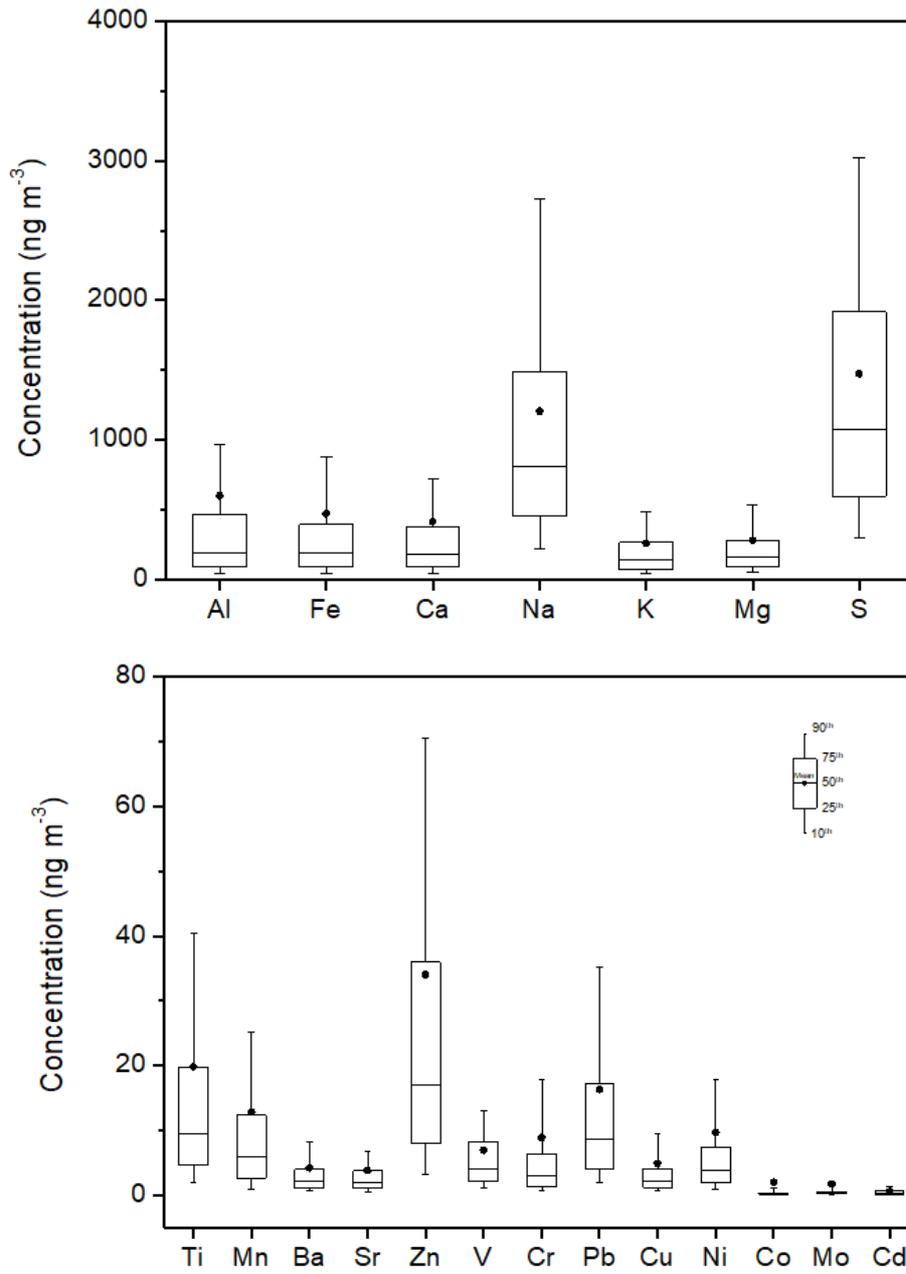


Figure 26. Elemental concentration comparison in PM<sub>10</sub> aerosols.

Table 20. Monthly elemental concentrations in PM<sub>10</sub> aerosols during 2010–2015.

Month	Concentration (ng m <sup>-3</sup> )						
	Al	Fe	Ca	Na	K	Mg	S
Jan	528.3	391.0	466.1	1,373.1	299.2	270.5	1,279.7
Feb	414.8	496.0	492.3	1,164.1	328.8	286.4	1,488.0
Mar	1,009.6	950.8	812.3	1,732.4	458.9	479.9	1,905.8
Apr	535.9	445.8	402.2	1,285.1	242.5	276.1	1,574.7
May	1,472.6	1,173.3	872.8	812.2	490.3	493.0	2,036.7
Jun	314.0	249.9	165.7	597.9	144.6	125.4	1,668.8
Jul	107.4	104.6	81.3	1,166.5	87.7	148.2	1,282.2
Aug	133.4	123.9	128.6	1,164.0	113.0	163.3	1,195.7
Sep	167.7	174.2	152.5	954.7	133.8	143.8	1,046.3
Oct	264.5	257.1	218.3	1,401.0	189.3	222.4	1,255.8
Nov	687.3	518.0	691.5	1,481.5	308.2	393.2	1,491.9
Dec	1,030.6	422.1	288.9	1,431.2	190.4	250.4	1,229.5

Month	Concentration (ng m <sup>-3</sup> )						
	Ti	Mn	Ba	Sr	Zn	V	Cr
Jan	22.9	10.6	4.5	3.4	59.0	4.7	6.8
Feb	15.4	5.8	7.4	4.3	37.3	3.7	8.0
Mar	38.3	24.6	8.5	8.1	54.3	6.8	6.3
Apr	19.7	15.1	5.3	2.9	47.1	6.6	8.9
May	37.2	29.3	6.8	6.0	46.0	8.3	15.0
Jun	12.5	7.0	2.0	1.5	22.8	11.5	8.0
Jul	5.7	2.6	1.4	1.1	33.6	9.2	6.7
Aug	9.4	3.8	1.3	1.9	16.0	7.1	3.7
Sep	9.4	6.4	2.5	2.7	16.1	4.1	3.7
Oct	15.3	9.1	2.8	3.1	20.1	6.0	9.0
Nov	25.4	16.9	4.0	5.4	34.2	5.5	7.1
Dec	17.6	10.7	3.0	3.6	25.9	7.8	17.3

(continued)

Month	Concentration (ng m <sup>-3</sup> )					
	Pb	Cu	Ni	Co	Mo	Cd
Jan	16.7	2.9	5.8	0.3	0.5	0.5
Feb	15.4	2.3	6.9	0.5	0.5	0.3
Mar	36.1	9.7	5.3	7.6	1.3	0.5
Apr	18.0	13.2	9.5	2.3	1.9	0.7
May	29.6	6.4	25.7	6.8	6.5	0.7
Jun	9.5	3.4	14.8	2.3	3.8	0.4
Jul	6.5	2.1	5.2	0.2	0.4	0.5
Aug	7.7	3.6	4.5	0.2	0.3	0.6
Sep	9.7	2.2	4.6	0.2	0.3	0.7
Oct	12.5	3.5	6.1	0.3	0.4	0.6
Nov	15.4	3.7	5.4	0.4	0.4	0.4
Dec	13.2	3.9	11.9	0.4	1.1	0.3

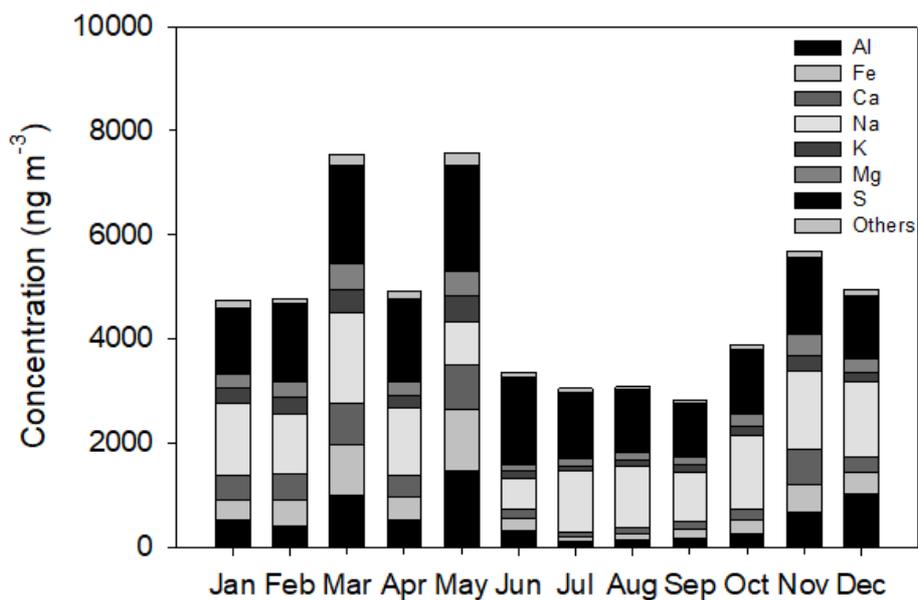


Figure 27. Monthly comparisons of elemental concentrations in PM<sub>10</sub> aerosols during 2010-2015.

Table 21. Seasonal elemental concentrations in PM<sub>10</sub> aerosols during 2010–2015.

Season	Concentration (ng m <sup>-3</sup> )						
	Al	Fe	Ca	Na	K	Mg	S
Spring	1,073.3	898.0	716.0	1188.4	407.8	424.5	1,864.6
Summer	185.3	159.8	127.2	978.6	116.1	146.5	1,376.0
Fall	366.1	313.3	343.9	1300.8	210.0	252.4	1,269.1
Winter	696.8	433.4	402.7	1336.6	264.2	267.0	1,319.1

Season	Concentration (ng m <sup>-3</sup> )						
	Ti	Mn	Ba	Sr	Zn	V	Cr
Spring	32.2	23.8	6.8	5.6	48.4	7.4	10.9
Summer	9.4	4.6	1.5	1.5	23.3	9.1	6.0
Fall	16.7	10.8	3.1	3.7	23.2	5.3	6.9
Winter	18.5	9.3	4.7	3.7	39.5	5.6	11.3

Season	Concentration (ng m <sup>-3</sup> )					
	Pb	Cu	Ni	Co	Mo	Cd
Spring	27.8	9.3	15.6	5.7	3.8	0.6
Summer	7.9	3.1	8.1	0.9	1.5	0.5
Fall	12.6	3.2	5.5	0.3	0.4	0.6
Winter	14.9	3.1	8.6	0.4	0.7	0.4

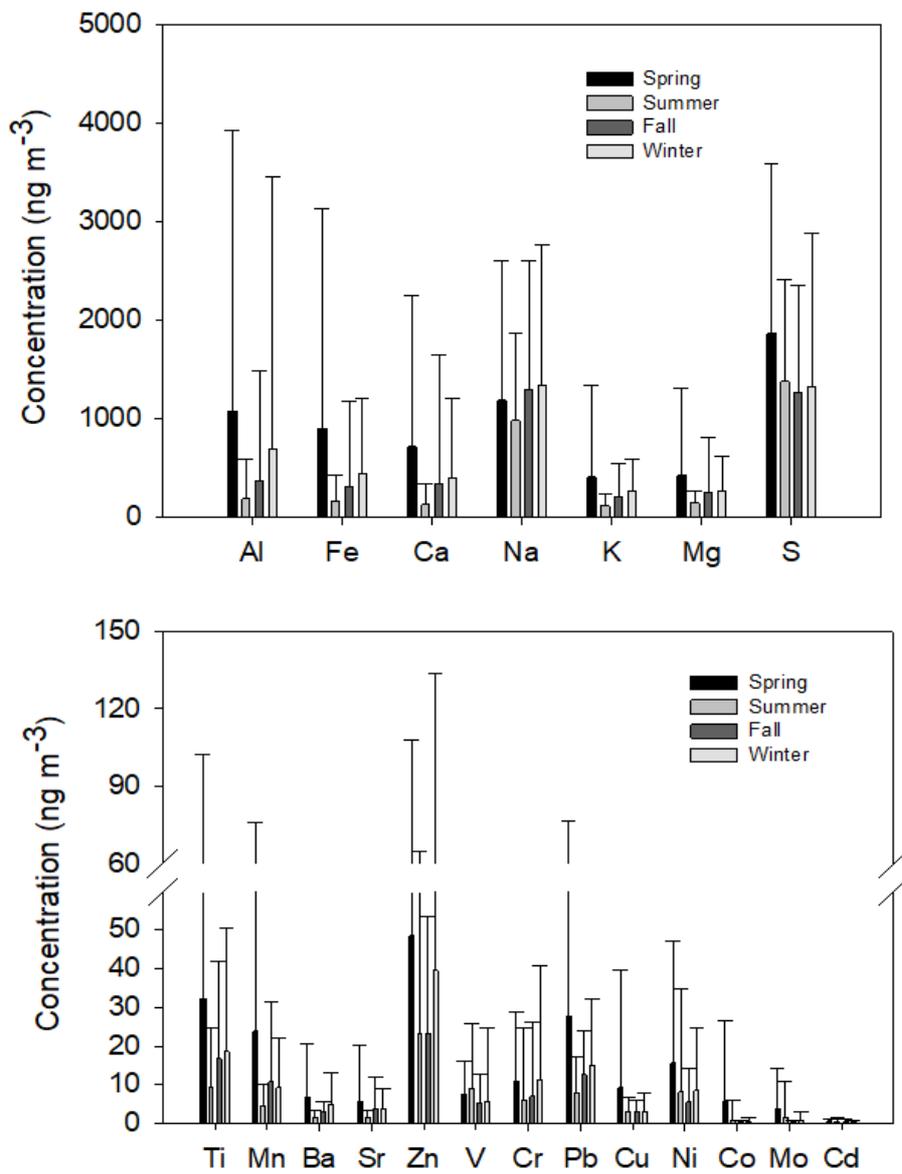


Figure 28. Seasonal comparisons of elemental concentrations in  $\text{PM}_{10}$  aerosols during 2010-2015.

### 3.3. PM<sub>2.5</sub> 초미세먼지 조성

#### 3.3.1 PM<sub>2.5</sub> 이온성분 농도

대기 중의 PM<sub>2.5</sub> 초미세먼지( $D_p < 2.5 \mu\text{m}$ )는 폐기능 저하, 심혈관계 질환유발 등과 같은 인체 유해성, 직·간접적인 빛의 산란, 흡수로 인한 시정 저하 및 기후 변화에의 영향 등 인간 삶의 질에 악영향을 미치는 것으로 알려져 있다(진형아 등, 2012). 이러한 이유로 미국에서는 1997년에 기존의 PM<sub>10</sub> 환경기준 이외에 PM<sub>2.5</sub>의 기준을 신설하여 24시간 평균  $35 \mu\text{g m}^{-3}$ , 연평균  $15 \mu\text{g m}^{-3}$ 을 초과하지 않도록 관리하고 있다. 또한 2013년에는 세계보건기구 산하의 국제암연구소(IARC)에서 초미세먼지(PM<sub>2.5</sub>)를 1군 발암물질(Group 1)로 지정하였다. 우리나라 역시 PM<sub>2.5</sub> 초미세먼지의 위해성이 부각되고 있는 세계적 추세에 따라 2011년에 환경기준을 일평균  $50 \mu\text{g m}^{-3}$ , 연평균  $25 \mu\text{g m}^{-3}$ 로 설정하였고, 2015년부터 본격적으로 시행하고 있다.

PM<sub>2.5</sub> 미세입자는 자동차, 산업체, 소각로 등 인위적 배출원, 그리고 화산활동과 같은 자연적 배출원으로부터 모두 배출된다. 또 발생원에서 직접 배출되는 1차 입자와 대기 중 응집, 응축, 기체상 물질의 화학 반응에 의해 생성된 2차 입자로 구분된다. PM<sub>2.5</sub>의 2차 입자 성분은 많은 부분이 직접적으로 배출된 SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, NH<sub>3</sub> 등의 1차 오염물질이 대기 중에서 반응을 일으켜 생성된 2차 오염물질이다(정진희 등, 2008; Yao *et al.*, 2002).

본 연구에서는 고산지역에서 2010년 1월 1일부터 2015년 12월 31일까지 PM<sub>2.5</sub> 시료 총 이온 558개를 분석하였고, 그 결과를 Table 22와 Figure 29에 상호 비교하였다. 결과에서 보듯이 PM<sub>2.5</sub> 미세입자의 이온성분 농도는  $\text{nss-SO}_4^{2-} > \text{NH}_4^+ > \text{NO}_3^- > \text{Na}^+ > \text{HCO}_3^- > \text{K}^+ > \text{Cl}^- > \text{nss-Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{CH}_3\text{COO}^- > \text{HCOO}^- > \text{CH}_3\text{SO}_3^- > \text{H}^+ > \text{F}^-$  순으로 높게 나타났다. 이들 성분 중 인위적 기원을 나타내는  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$ 은 각각 4.25, 1.84, 0.87  $\mu\text{g m}^{-3}$ 로 높은 농도를 보였다. 특히  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 은 전체 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>중에 90.2%의 비율을 차지하였고, 해염에서 유래된 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>의 양은 아주 미미한 것으로 확인되었다. 또한 PM<sub>10</sub> 미세먼지 보다 PM<sub>2.5</sub> 초미세먼지에서  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 가 차지하는 비율이 훨씬 더 높은 것으로 나타났다.

PM<sub>2.5</sub>의 주요 수용성 이온 성분의 각 농도를 월별로 평균하였고, 그 결과를 Table 23와 Figure 30에 나타내었다. 이들 성분들 중에서는 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>는 May > Jun > Mar > Apr > Aug > Jan > Feb > Jul > Dec > Oct > Nov > Sep 순으로 5월에 9.3 µg m<sup>-3</sup>에 가장 높은 농도를 보였고, 9월에 5.8 µg m<sup>-3</sup>로 가장 낮은 농도를 나타내었다. 그리고 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>과 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>는 3월에 각각 3.8, 4.8 µg m<sup>-3</sup>로 농도가 가장 높았고, 7월에 각각 2.0, 0.2 µg m<sup>-3</sup>로 가장 낮은 농도를 나타내었다. 이들 주요 이차오염물질들은 PM<sub>10</sub>과 유사한 결과를 나타내었고, 이결과 역시 편서풍에 의한 월경성 대기오염물질의 장거리 이동과 관련 있는 것으로 추정된다. NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 농도가 6월에 높은 이유는 기온 상승에 따른 생물학적 활성으로 증가하는 것으로 사료된다.

주요 토양기원 성분인 nss-Ca<sup>2+</sup>은 Mar > May > Nov > Feb > Apr > Oct > Sep > Jan > Dec > Aug > Jun > Jul 순으로 3월(0.2 µg m<sup>-3</sup>)에 가장 높은 농도를 보였으며, PM<sub>10</sub>과 유사한 경향을 나타내었다. 또 해염 성분인 Na<sup>+</sup>와 Cl<sup>-</sup>의 성분의 농도는 3월에 각각 0.5, 0.41 µg m<sup>-3</sup>로 두 성분 모두 농도가 가장 높은 것으로 조사되었다.

주요 수용성 성분들을 계절별로 비교하였고, 그 결과를 Table 24와 Figure 31에 나타내었다. 그림의 결과와 같이 주요 이차오염 물질인 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 성분들이 봄철에 각각 3.4, 8.5, 2.7 µg m<sup>-3</sup>로 가장 높은 농도를 보였다. 그리고 토양기원 성분인 nss-Ca<sup>2+</sup>은 0.1 µg m<sup>-3</sup>로 봄철에 농도가 높았고, 이는 이차오염물질들과 유사한 패턴을 나타내었다. 그러나 해염기원인 Na<sup>+</sup>와 Cl<sup>-</sup> 성분은 겨울철에 각각 0.4, 0.3 µg m<sup>-3</sup>로 다른 계절에 비해 높은 농도를 보였다. 이처럼 PM<sub>2.5</sub>에서는 PM<sub>10</sub>과 달리 토양, 해염 성분들의 농도가 인위적 기원의 성분들에 비해 훨씬 더 낮은 농도를 보이는 것으로 조사되었다.

이러한 결과로부터 PM<sub>2.5</sub> 초미세먼지는 인위적 성분들의 농도가 다른 성분들에 비해 훨씬 높고, 이에 비해 해염, 식물생장 및 토양 기원 성분들의 조성은 비교적 낮은 조성을 나타내고 있음을 확인할 수 있었다.

Table 22. Ionic concentrations in PM<sub>2.5</sub> aerosols.

Species	Concentrations ( $\mu\text{g m}^{-3}$ )					
	Mean	S.D.	90 <sup>th</sup>	75 <sup>th</sup>	25 <sup>th</sup>	10 <sup>th</sup>
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	2.7	2.2	5.5	3.6	1.2	0.7
Na <sup>+</sup>	0.3	0.3	0.7	0.4	0.1	0.1
K <sup>+</sup>	0.2	0.2	0.4	0.3	0.1	0.1
nss-Ca <sup>2+</sup>	0.1	0.2	0.2	0.1	0.0	0.0
Mg <sup>2+</sup>	0.1	0.1	0.1	0.1	0.0	0.0
nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	7.2	5.5	14.2	9.5	3.5	2.0
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	1.7	2.9	4.4	2.0	0.2	0.1
Cl <sup>-</sup>	0.2	0.3	0.4	0.2	0.0	0.0

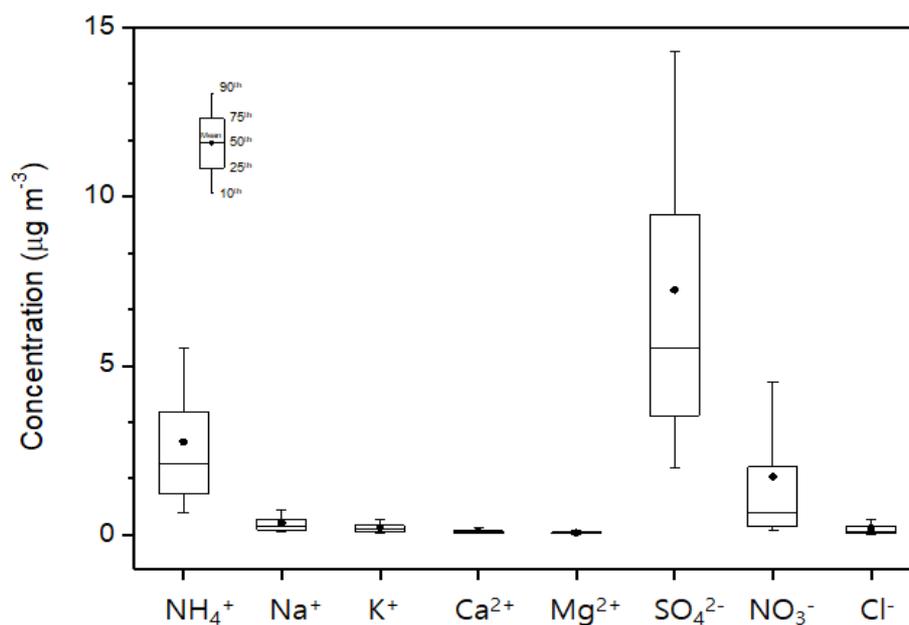


Figure 29. Ionic concentration comparison in PM<sub>2.5</sub> aerosols.

Table 23. Monthly ionic concentrations in PM<sub>2.5</sub> aerosols during 2010–2015.

Month	Concentration ( $\mu\text{g m}^{-3}$ )							
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss <sup>-</sup> Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	nss <sup>-</sup> SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>
Jan	3.0	0.4	0.3	0.1	0.1	7.4	2.5	0.2
Feb	3.2	0.4	0.4	0.1	0.1	7.2	3.3	0.2
Mar	3.8	0.5	0.3	0.2	0.1	8.1	4.8	0.4
Apr	3.1	0.4	0.2	0.1	0.1	7.9	2.5	0.2
May	3.3	0.2	0.2	0.2	0.1	9.3	1.3	0.1
Jun	3.2	0.3	0.2	0.1	0.0	8.8	1.0	0.1
Jul	2.0	0.3	0.1	0.1	0.1	6.2	0.2	0.1
Aug	2.7	0.3	0.1	0.1	0.1	7.8	0.6	0.1
Sep	2.1	0.2	0.1	0.1	0.1	5.8	0.8	0.1
Oct	2.1	0.4	0.2	0.1	0.1	6.1	0.8	0.2
Nov	2.1	0.2	0.2	0.1	0.1	6.0	1.2	0.2
Dec	2.4	0.4	0.3	0.1	0.1	6.2	1.8	0.3

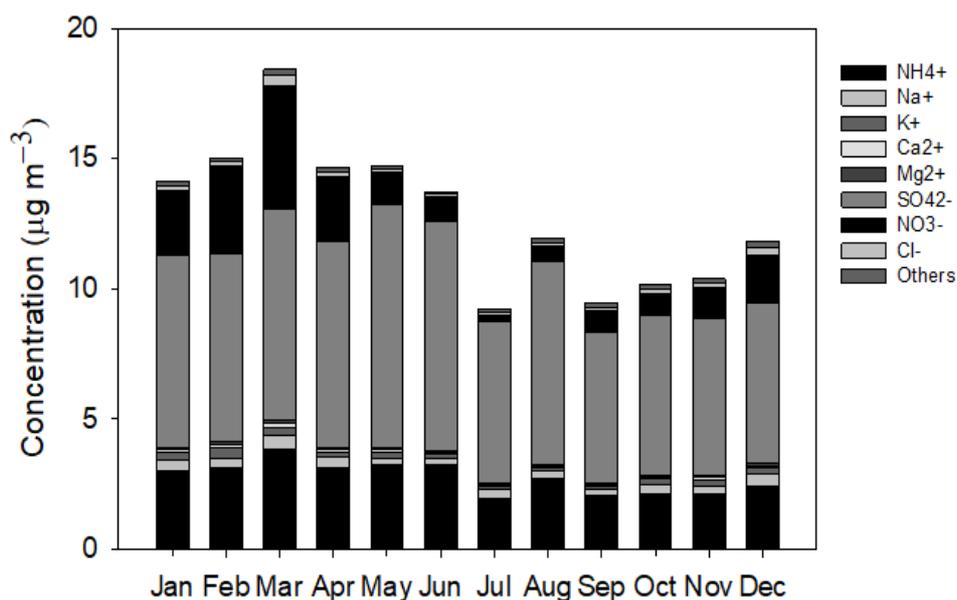


Figure 30. Monthly comparisons of ionic concentrations in PM<sub>2.5</sub> aerosols during 2010–2015.

Table 24. Seasonal ionic concentrations in PM<sub>2.5</sub> aerosols during 2010–2015.

Season	Concentration ( $\mu\text{g m}^{-3}$ )							
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss <sup>-</sup> Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	nss <sup>-</sup> SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>
Spring	3.4	0.4	0.2	0.1	0.1	8.5	2.7	0.2
Summer	2.7	0.3	0.1	0.1	0.0	7.7	0.6	0.1
Fall	2.1	0.3	0.2	0.1	0.1	6.0	0.9	0.2
Winter	2.8	0.4	0.3	0.1	0.1	6.9	2.4	0.3

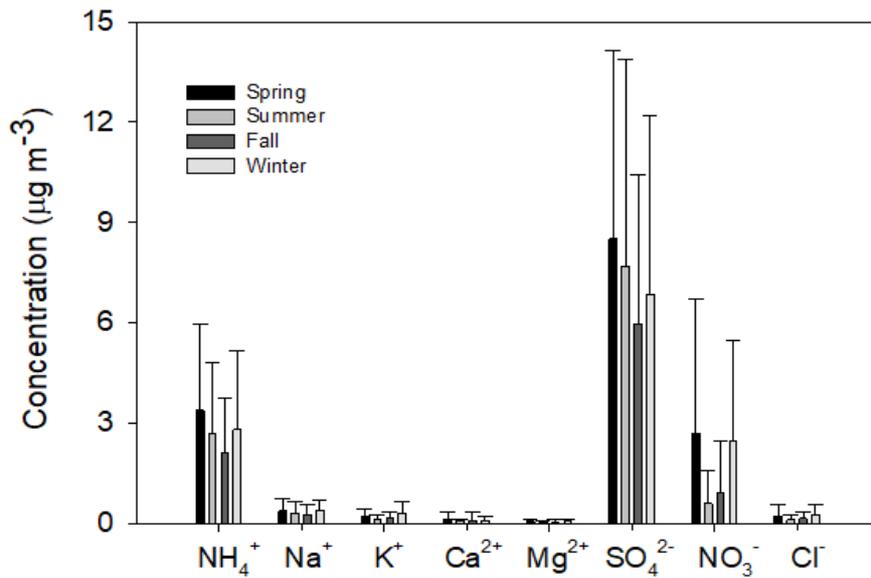


Figure 31. Seasonal comparisons of ionic concentrations in PM<sub>2.5</sub> aerosols during 2010–2015.

### 3.3.2 PM<sub>2.5</sub> 원소성분 농도 및 조성

대기 입자 중의 미량 원소성분은 다양한 화합물의 형태로 존재하며, 특히 대부분의 원소 성분은 휘발되지 않고 입자 중에 포함된다. 이러한 미량 원소성분은 이온 성분이나 유기 성분과 달리 대기화학반응의 영향이 적고 배출 당시의 특성을 간직하고 있어 오염원 추적이 용이하다(한진석 등, 2004; NARSTO, 2003).

중금속 원소의 배출은 다양한 오염원으로부터 발생하는 것으로 나타나고 있다. Pb, Cu, Cd, Zn, V, Mn, Cr 등은 1차 생성 입자와는 달리 대기 중에서 황산가스나 휘발성 유기화합물 등이 응축과정을 거쳐 기체상에서 입자상으로 변환되어 생성된다(류성윤 등, 2005; Allen *et al.*, 2001). Zn의 경우 각종 산업공정에서 이용되고 있고, 차량 타이어 마모 뿐만 아니라 염소 등 다른 화학물질과 결합하여 공기, 물, 토양에 분포한다. 또 화석연료의 연소와 철 금속 산업공정 등의 인위적 오염원에 의해 발생되고, 화산폭발 및 비산먼지 역시 대기 중 Zn의 농도 증가에 영향을 미치는 것으로 알려져 있다(Allen *et al.*, 2001). Ba은 금속의 마모 뿐만 아니라 연료 및 엔진의 산화와 매연 억제제 그리고 BaSO<sub>4</sub>의 화합물의 경우 브레이크 라이닝 필터에도 사용되고 있다(Pey *et al.*, 2010; Khan *et al.*, 2010; Bem *et al.*, 2003; Garg *et al.*, 2000). Cr의 경우에는 도금 및 합금 시멘트 제조, 잉크 산업 등에서 발생하며, Cd은 산소, 염소, 황 등과 반응하여 산화카드뮴, 염화카드뮴, 황화카드뮴 등으로 존재하며, 대기 중에는 주로 미세입자에 산화카드뮴 형태로 포함된다. 그리고 일반 대기 중의 Cd 농도는 0.1~500 ng m<sup>-3</sup> 정도로 매우 낮은 수준으로 검출된다. Cd은 주로 아연합금의 부산물로부터 발생되고, 이 중 약 34%는 전기도금공정, 약 15%는 니켈-카드뮴전지, 약 15%는 PVC 안정화로, 약 8%는 납땀과 합금 등의 형태, 폐기물 처리시설이나 소각시설에서도 발생한다(나덕재 등, 2000; Jaakko, 1991). 호흡으로 인해 폐에 침착된 Cd은 폐에서 흡수가 일어나고 약 30~50% 정도가 혈액에 용해된다. 일단 Cd이 인체에 유입되면 체내의 축적능력이 아주 강하여 극소량이라도 장기간에 걸쳐 노출되면 신장담석증과 같은 신장질환, 폐질환 등 심각한 영향을 받을 수 있다. 이 외에 Cu의 경우에는 자연적으로 바위나 토양, 물, 대기 중에 존재하고, 인위적 배출로는 전기 도금과정, 쓰레기 소각, 다양한 금속 합금 과정에서 발생한다. 오랜 기간 Cu에 노출이 되면 코나 입, 눈에 자극을 가져오며, 두통과 현기증, 구토, 설사

등의 증상을 발생시키기도 한다(김병화 1999).

본 연구에서 PM<sub>2.5</sub> 미세입자의 원소성분은 분석용 시료는 2013년 1월 1일부터 2015년 12월 31일까지 총 원소시료 164개를 채취하였고, 그 결과를 Table 25와 Figure 32에 나타내었다.

연구기간에 이들 PM<sub>2.5</sub> 초미세먼지의 원소성분은 S > Na > K > Al > Fe > Ca > Mg > Zn > Pb > V > Mn > Cr > Ti > Ni > Ba > Cu > Sr > Cd > Mo > Co 순으로 높은 농도를 나타내었다. 이들 원소성분들 중 S 성분의 농도가 855.4 ng m<sup>-3</sup>으로 가장 높았으며, 그 다음으로 해염 기원인 Na이 163.0 ng m<sup>-3</sup>로 높은 농도를 보였다. 다음으로 K, Al, Fe, Ca 성분이 각각 81.9, 81.4, 74.5, 53.6 ng m<sup>-3</sup>의 농도를 토양기원의 성분들이 높은 농도를 나타내었다. 이때 K은 토양의 구성 성분이며 생체소각(Biomass burning) 등과 같은 인위적 발생에 의해서 유입되는 것으로 조사되고 있다(조은경, 2010). 그리고 나머지 미량 중금속 성분들 중 Zn, V, Ti, Pb, Mn, Cr, Ni, Cu, Cd, Ba, Sr 등은 8.3, 3.5, 2.5, 5.7, 3.0, 2.5, 1.8, 0.9, 0.4, 0.9, 0.6 ng m<sup>-3</sup>로 앞의 다량 성분들보다는 훨씬 낮은 농도를 나타내었다.

PM<sub>2.5</sub> 원소성분들을 월평균 농도를 월별로 비교하였고, 그 결과를 Table 26와 Figure 33에 나타내었다. 그림의 결과와 같이 인위적 기원인 S 성분은 5월에 1,352.2 ng m<sup>-3</sup>로 농도가 가장 높았고, 9월에 613.5 ng m<sup>-3</sup>로 가장 낮은 농도를 보였다. 그리고 Zn 월별 농도는 May > Apr > Nov > Jan > Dec > Oct > Jun > Aug > Jul > Mar > Sep > Feb 순으로 5월에 32.7 ng m<sup>-3</sup>로 가장 높았고, 2월(1.1 ng m<sup>-3</sup>)에 가장 낮은 농도를 나타내었다. 또한 Pb는 May > Mar > Jan > Dec > Apr > Oct > Feb > Nov > Aug > Jun > Jul > Sep 순으로 5월에 10.5 ng m<sup>-3</sup>로 가장 높은 농도를 보였다. 이처럼 PM<sub>2.5</sub>에서 주요 인위적 기원의 성분들은 대부분 5월에 높은 경향을 보이는 것으로 조사되었다. 또, 토양기원인 Al, Fe, Mn, Ba, Sr, Ti 성분은 5월 각각 259.3, 216.6, 8.1, 2.4, 1.6, 10.9 ng m<sup>-3</sup>로 높은 농도를 나타내었다.

주요 원소 성분들을 계절별로 비교한 결과에서는 토양기원 성분인 Al, Fe, Ti, Mn, Ba, Sr 성분들이 봄철에 각각 163.4, 128.3, 6.8, 5.2, 1.6, 1.0 ng m<sup>-3</sup>로 높은 농도를 보였고, 여름철에 낮은 농도를 나타내었다(Table 27, Figure 34).

그리고 주요 인위적 기원 성분인 S, Zn, Pb, Cu 성분들의 농도가 봄철에 각각 961.5, 19.1, 9.1, 1.3 ng m<sup>-3</sup>로 높은 농도를 보였고, 이는 토양기원 성분들과 유사한 경향을 보이는 것으로 조사되었다. 위의 결과를 종합해보면, 토양 지표 성분들과 인위적 기원성분들이 주로 봄철에 농도가 높게 나타나는 것은 편서풍의 영향으로 중국대륙에서 발생한 대기오염물질이 장거리 이동하여 제주지역 대기에 유입되기 때문인 것으로 사료된다. 또한 Kim *et al.* (2017) 연구결과에서도 제주지역은 외부지역으로부터 미세먼지 영향을 89.8~ 90.3%의 영향을 받는 것으로 조사되었고, 이는 제주지역이 편서풍의 영향으로 중국대륙으로부터 대기오염물질의 영향을 받고 있는 것으로 추정된다.

Table 25. Elemental concentrations of PM<sub>2.5</sub> aerosols.

Species	Concentration (ng m <sup>-3</sup> )					
	Mean	S.D.	90 <sup>th</sup>	75 <sup>th</sup>	25 <sup>th</sup>	10 <sup>th</sup>
Al	81.4	182.1	176.0	64.7	13.7	4.9
Fe	74.5	135.9	164.6	76.6	15.8	7.8
Ca	53.6	112.8	82.3	52.7	16.2	8.2
Na	163.0	164.9	376.4	202.7	61.8	26.1
K	81.9	109.3	182.8	102.3	17.8	4.3
Mg	35.0	69.9	81.2	38.4	6.3	2.9
S	855.4	917.3	1,840.7	1,080.0	288.3	129.4
Ti	2.5	4.8	5.7	2.5	0.4	0.1
Mn	3.0	5.1	7.9	3.2	0.4	0.1
Ba	0.9	1.5	2.2	1.0	0.2	0.1
Sr	0.6	1.0	1.2	0.7	0.1	0.1
Zn	8.3	17.1	21.4	9.0	0.1	0.1
V	3.5	3.0	7.1	4.2	1.7	0.9
Cr	2.5	13.2	3.1	1.6	0.2	0.0
Pb	5.7	8.1	15.9	6.1	1.1	0.4
Cu	0.9	1.2	2.2	1.0	0.2	0.1
Ni	1.8	5.4	3.2	1.8	0.3	0.1
Co	0.1	0.2	0.2	0.1	0.0	0.0
Mo	0.2	0.2	0.5	0.3	0.1	0.0
Cd	0.4	0.5	1.0	0.6	0.1	0.0

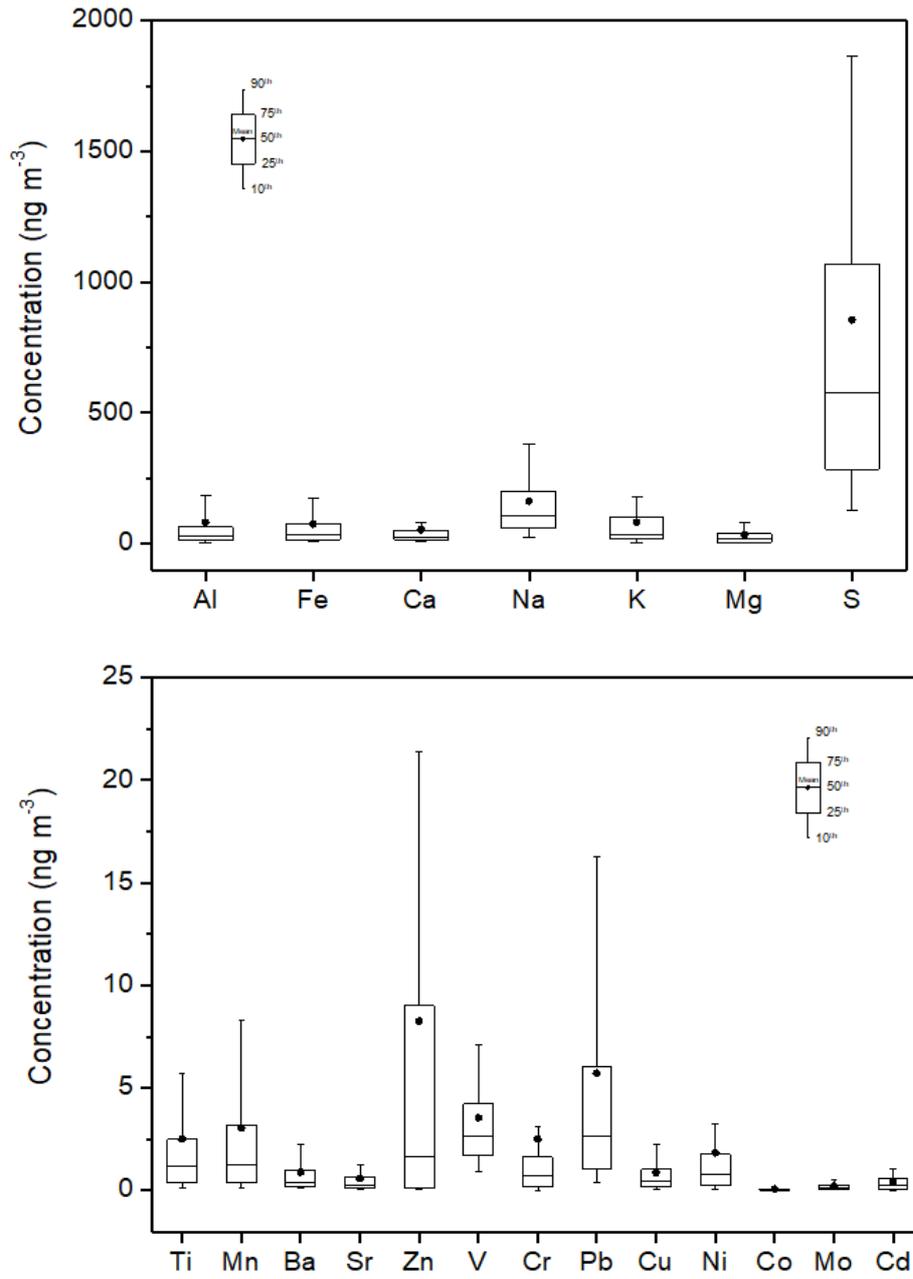


Figure 32. Elemental concentration comparison in  $\text{PM}_{2.5}$  aerosols.

Table 26. Monthly elemental concentrations in PM<sub>2.5</sub> aerosols during 2010–2015.

Month	Concentration (ng m <sup>-3</sup> )						
	Al	Fe	Ca	Na	K	Mg	S
Jan	171.9	123.8	89.9	199.7	105.5	46.9	593.6
Feb	119.8	108.7	157.1	161.8	107.8	45.6	588.4
Mar	128.1	61.1	47.8	106.8	147.5	15.7	801.5
Apr	47.5	60.4	38.0	176.2	52.4	36.3	506.8
May	259.3	216.6	148.6	163.7	185.7	119.5	1,352.2
Jun	60.0	39.5	32.8	107.2	63.6	17.6	786.0
Jul	65.9	36.8	30.1	239.9	35.2	32.7	849.1
Aug	23.8	37.4	19.0	100.7	36.1	20.4	1,030.0
Sep	29.9	26.3	20.0	79.8	27.1	10.1	613.5
Oct	42.8	90.1	42.5	184.1	103.1	34.4	939.8
Nov	79.2	61.0	45.2	238.7	92.2	34.3	849.0
Dec	46.8	76.0	48.2	254.1	101.6	29.1	1,095.7

Month	Concentration (ng m <sup>-3</sup> )						
	Ti	Mn	Ba	Sr	Zn	V	Cr
Jan	4.2	4.6	1.6	0.8	9.0	2.4	0.7
Feb	0.3	0.5	2.0	1.1	1.1	0.9	0.1
Mar	0.5	0.5	0.9	0.5	1.8	2.7	0.4
Apr	4.8	5.7	1.0	0.4	16.3	4.6	1.6
May	10.9	8.1	2.4	1.6	32.7	6.0	1.3
Jun	1.4	1.4	0.6	0.3	6.3	4.3	1.1
Jul	1.2	1.1	0.3	0.4	3.0	5.0	1.8
Aug	1.2	1.8	0.4	0.3	5.9	3.3	1.1
Sep	0.8	1.4	0.4	0.2	1.5	2.5	9.8
Oct	2.4	4.0	0.6	0.5	7.5	4.1	2.2
Nov	2.7	3.6	0.8	0.5	9.3	3.2	4.4
Dec	2.1	3.7	1.0	0.7	7.6	2.8	1.1

(continued)

Month	Concentration (ng m <sup>-3</sup> )					
	Pb	Cu	Ni	Co	Mo	Cd
Jan	9.6	0.9	1.2	0.1	0.2	0.3
Feb	5.2	0.1	0.2	0.1	0.1	0.2
Mar	10.1	0.2	0.3	0.1	0.3	0.5
Apr	5.8	1.4	1.8	0.1	0.3	0.7
May	10.5	2.0	3.2	0.1	0.2	0.5
Jun	3.7	0.5	1.1	0.1	0.2	0.2
Jul	2.2	0.4	1.4	0.0	0.1	0.2
Aug	4.0	0.7	1.2	0.0	0.2	0.5
Sep	2.1	0.8	4.5	0.1	0.3	0.6
Oct	5.3	1.1	1.7	0.1	0.3	0.7
Nov	4.9	1.0	2.6	0.1	0.2	0.3
Dec	9.5	1.1	1.1	0.0	0.2	0.3

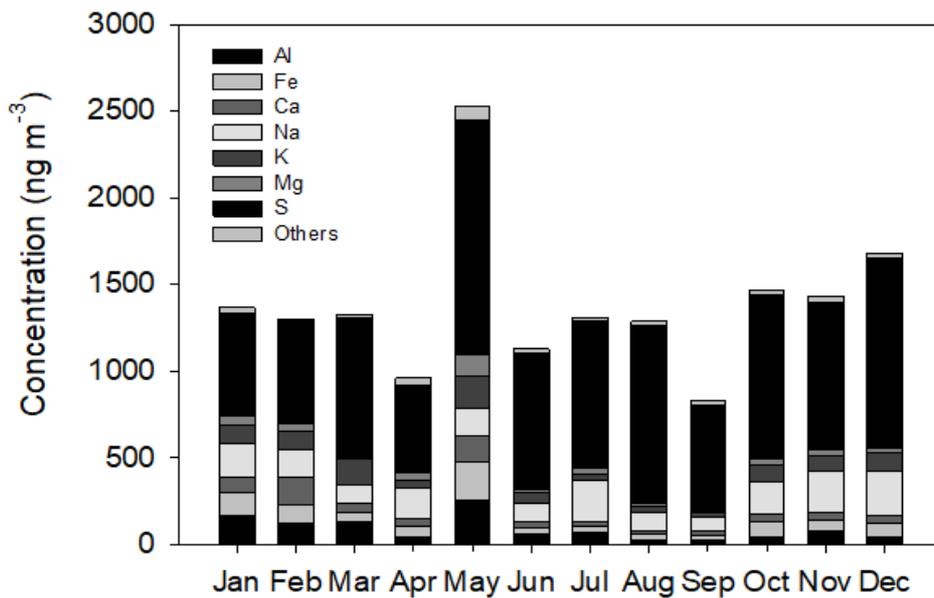


Figure 33. Monthly comparisons of elemental concentrations in PM<sub>2.5</sub> aerosols during 2010–2015.

Table 27. Seasonal elemental concentrations in PM<sub>2.5</sub> aerosols during 2010–2015.

Season	Concentration (ng m <sup>-3</sup> )						
	Al	Fe	Ca	Na	K	Mg	S
Spring	163.4	128.3	88.9	150.0	134.9	66.2	961.5
Summer	47.7	38.0	26.8	138.6	45.8	22.5	895.6
Fall	47.7	60.1	35.3	161.6	73.5	25.8	801.4
Winter	110.0	101.3	89.8	212.0	104.5	39.6	790.2

Season	Concentration (ng m <sup>-3</sup> )						
	Ti	Mn	Ba	Sr	Zn	V	Cr
Spring	6.8	5.2	1.6	1.0	19.1	4.6	1.1
Summer	1.2	1.5	0.4	0.3	5.3	4.1	1.3
Fall	1.9	3.0	0.6	0.4	5.9	3.3	5.5
Winter	2.5	3.4	1.5	0.9	6.5	2.2	0.7

Season	Concentration (ng m <sup>-3</sup> )					
	Pb	Cu	Ni	Co	Mo	Cd
Spring	9.1	1.3	2.0	0.1	0.3	0.6
Summer	3.4	0.6	1.2	0.0	0.2	0.3
Fall	4.1	1.0	2.9	0.1	0.3	0.6
Winter	8.5	0.8	0.9	0.1	0.2	0.2

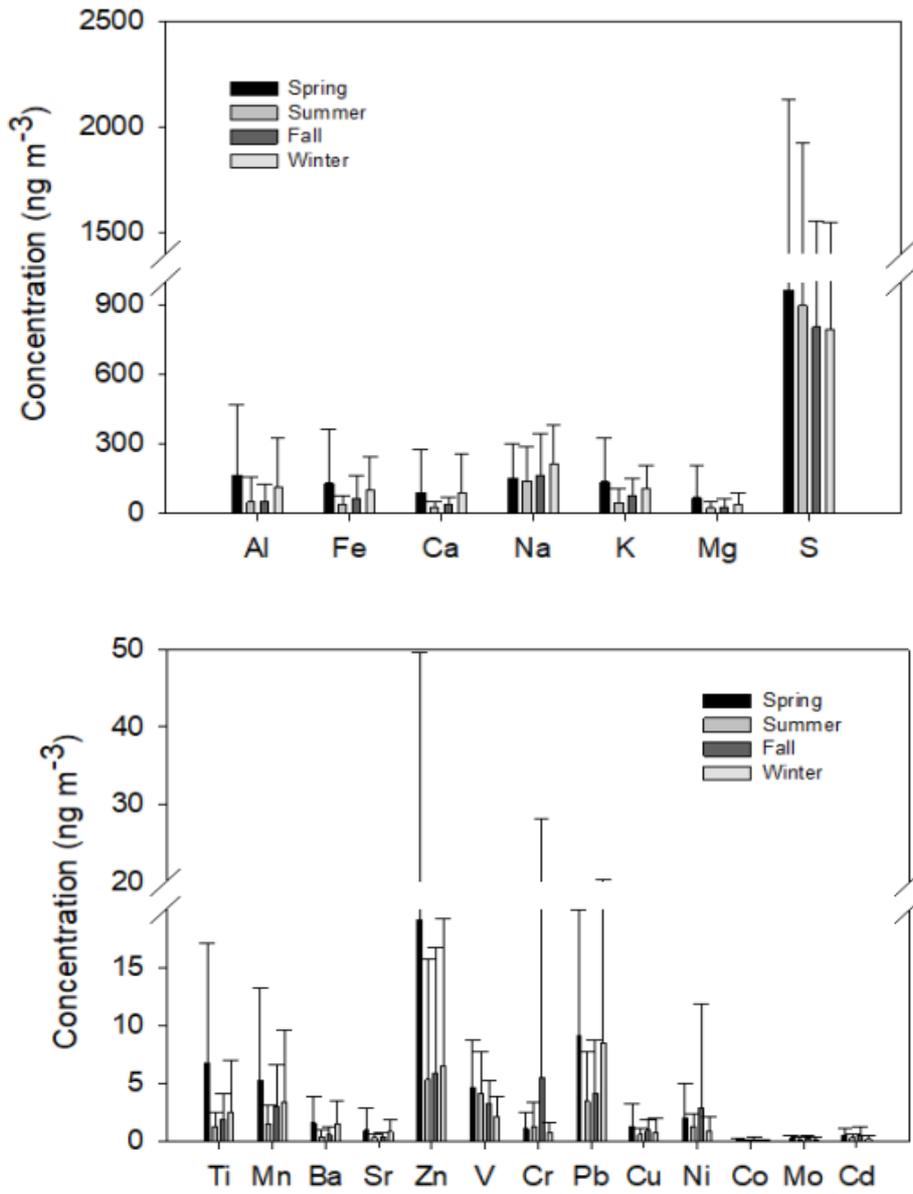


Figure 34. Seasonal comparisons of elemental concentrations in  $\text{PM}_{2.5}$  aerosols during 2010–2015.

### 3.4 라돈과 미세먼지 성분의 상관성

대기 라돈과 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 주요 이온성분들의 농도와 상관성을 확인하기 위하여 라돈을 기준으로 농도가 높은 상위 25%, 중간 50%, 하위 25%로 구분하여 각각의 농도를 평균하여 비교하였다. 그리고 라돈 측정과 일치하는 기간의 PM<sub>10</sub>과 PM<sub>2.5</sub> 주요 이온성분들과 상호 비교하였고, 그 결과를 Table 28과 Table 29에 나타내었다. 이때 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 이온성분들은 양이온 5종(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, nss-Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>)과 음이온 3종(nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>)을 대상으로 비교하였다.

Table 28의 결과와 같이 상위 25%, 중위 50%, 하위 25%의 라돈농도는 각각 3,714.6, 2,358.7, 1,164.2 mBq m<sup>-3</sup>으로 상위 25%의 라돈 평균농도가 높은 것으로 확인되었다. 이와 동일한 기간의 PM<sub>10</sub> 상위 25%의 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, nss-Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>은 각각 3.4, 2.6, 0.4, 0.8, 0.4 µg m<sup>-3</sup>의 농도를 보였고, 음이온 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup> 성분의 농도는 각각 8.7, 5.5, 2.8 µg m<sup>-3</sup>를 나타내었다.

그리고 중위 50%에서 양이온과 음이온 성분들의 농도가 각각 0.3~3.3 µg m<sup>-3</sup>, 2.5~7.9 µg m<sup>-3</sup>의 범위를 보였다. 또한 이들 PM<sub>10</sub> 하위 25%의 양이온 성분들은 0.2~2.2 µg m<sup>-3</sup>의 농도 범위를 보였고, 음이온 성분들의 농도는 2.3~6.4 µg m<sup>-3</sup>로 조사되었다. 연구기간의 일별 라돈 농도와 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>의 주요 이온농도를 회귀분석으로 단순 비교한 상관계수(r)는 0.1~0.3 이하의 상관성으로 그리 높지 않은 것으로 조사되었다. 그러나 Figure 35의 결과와 같이 라돈 농도를 상위, 중간, 하위로 구분하여 이를 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>의 주요 이온농도와 비교한 결과에서는 대체적으로 라돈 농도가 높을수록 비례적으로 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>의 주요 이온농도도 함께 증가하는 동일 패턴을 보이는 것으로 조사되었다.

Table 28. Concentrations of major ionic components in PM<sub>10</sub> aerosols corresponding to high (25%), medium (50%), and low (25%) radon levels.

Level	Conc. (mBq m <sup>-3</sup> )	Conc. (μg m <sup>-3</sup> )							
	<sup>222</sup> Rn	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss- Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	nss- SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>
High (25%) (n=510)	3,714.6	3.4	2.6	0.4	0.8	0.4	8.7	5.5	2.8
Medium (50%) (n=1011)	2,358.7	3.3	2.2	0.4	0.5	0.3	7.9	4.6	2.5
Low (25%) (n=510)	1,164.2	2.2	2.2	0.2	0.3	0.3	6.4	2.3	2.3

Table 29. Concentrations of major ionic components in PM<sub>2.5</sub> aerosols corresponding to high (25%), medium (50%), and low (25%) radon levels.

Level	Conc. (mBq m <sup>-3</sup> )	Conc. (μg m <sup>-3</sup> )							
	<sup>222</sup> Rn	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	nss- Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	nss- SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>
High (25%) (n=510)	3,714.6	3.0	0.4	0.3	0.1	0.1	7.8	2.3	0.3
Medium (50%) (n=1011)	2,358.7	2.8	0.3	0.2	0.1	0.1	7.2	1.8	0.2
Low (25%) (n=510)	1,164.2	2.2	0.3	0.1	0.1	0.1	6.0	0.8	0.1

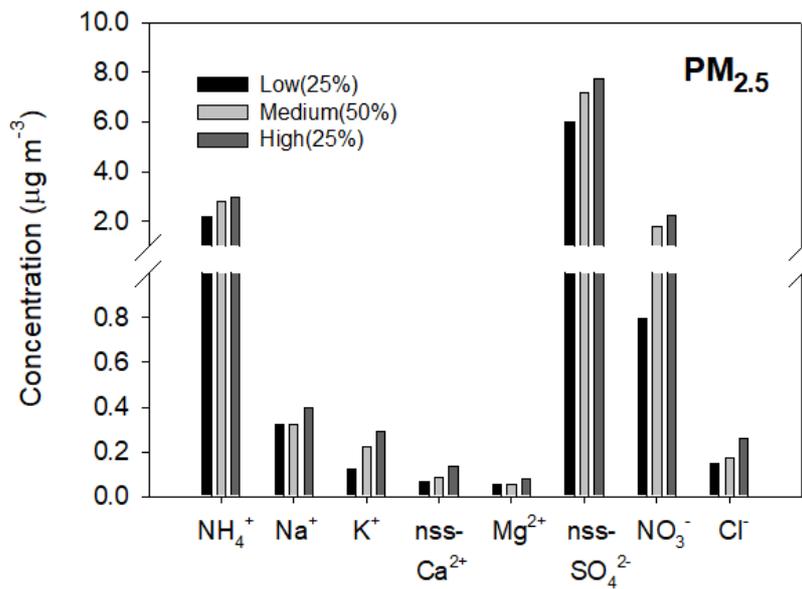
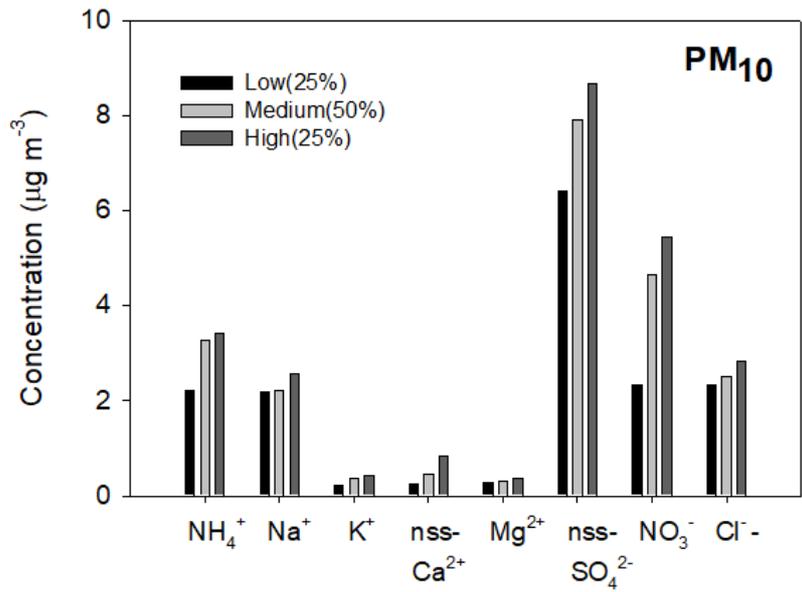


Figure 35. Ionic concentration comparison in PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> aerosols corresponding to high, medium, and low radon levels.

## 4. 기류 유입경로별 농도 비교

### 4.1 기류 유입경로별 라돈과 기체상 오염물질 농도 비교

라돈은 화학적으로 불활성이기 때문에 대기 중에서 반응성이 없고, 빗물에도 거의 용해되지 않는다. 그리고 기체상으로 존재하기 때문에 대기 중에서 기류를 타고 멀리 이동하여 넓게 확산되는 특성을 나타낸다. 또 공기보다 무겁기 때문에 고도가 높아질수록 더 낮은 농도를 나타내며, 기단의 발원 조건에 따라 큰 농도차를 보인다. 또 발생기원이 지각이기 때문에 해양에서 이동한 공기에 비해 대륙에서 생성된 공기에서 2~3배 더 높은 농도를 보이는 것으로 조사되고 있다. 특히 라돈은 대기 중에서  $\text{NO}_x$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{O}_3$  등과 수명이 비슷하고 에어로졸의 대기 체류시간과도 유사한 수명을 보인다. 따라서 이들 대기오염물질의 대기 중에서의 이동경로를 파악하기 위한 추적자로 활용이 가능하다(Zoran *et al.*, 2013; Zahorowski *et al.*, 2004).

본 연구에서는 역궤적 분석을 통하여 라돈의 장거리 이동 경로를 추적하였다. 2010년 1월부터 2015년 12월까지 라돈 측정 시기의 기류 이동 궤적을 역궤적 분석을 실시하여 추적하였다. 미국 NOAA HYSPLIT 4.0 모델과 NCEP의 GDAS 기상 데이터를 이용하여 120시간으로 모사한 역궤적 군집분석 결과를 Table 30과 Figure 36에 나타내었다. 역궤적 군집분석 결과를 기초로 제주도 고산 지역으로 이동한 기류의 유입경로를 크게 5개의 군집으로 분류하였다. 그리고 각 군집별로 제주도 주변지역을 Cluster 1(중국북부), Cluster 2(중국동부), Cluster 3(일본 및 동해), Cluster 4(한반도), Cluster 5(북태평양)으로 분류하여 제주로 유입되는 기류의 이동경로를 분석하였다.

이렇게 구분한 Cluster 1, Cluster 2, Cluster 3, Cluster 4, Cluster 5의 빈도는 각각 36% (738회), 37% (744회), 10% (197회), 13% (268회), 4% (82회)이었다. 이처럼 2010~2015년 연구기간의 총 2552일 측정일수 중에는 대체적으로 중국대륙에서 제주지역으로 이동한 기류 유입이 가장 많았고, 다음으로는 한반도에서 이동한 기류의 유입빈도가 높은 경향을 보였다.

역궤적 군집분석에 기초하여 5개 군집별 일평균 라돈농도는 Cluster 1 >

Cluster 2 > Cluster 4 > Cluster 5 > Cluster 3 순으로 높은 농도를 나타내었고, 중국북부(Cluster 1)에서 기류가 유입될 때 농도가 2,659.3 mBq m<sup>-3</sup>로 기류가 중국대륙에서 제주지역으로 이동할 때 라돈 농도가 가장 높고, 다음으로는 한반도에서 기류가 유입되었을 때 다음으로 높은 경향을 보였다. 반면에 동해 및 북태평양에서 기류가 이동했을 때에는 대륙에서 공기가 유입되었을 때에 비해 훨씬 낮은 농도를 나타내는 것으로 확인되었다.

라돈과 기체상 오염물질(SO<sub>2</sub>, CO, O<sub>3</sub>, NO<sub>x</sub>)과 유입경로별 상관관계를 상호 비교한 결과 라돈, SO<sub>2</sub>, CO 성분들은 중국북부(Cluster 1)에서 기류가 유입될 때 농도가 각각 2,659.3 mBq m<sup>-3</sup>, 1.6 ppb, 462.0 ppb로 상대적으로 높은 결과를 나타내었다. 또한 O<sub>3</sub>과 NO<sub>x</sub> 성분은 중국 동부(Cluster 2)에서 기류가 유입될 때 농도가 각각 45.6 ppb, 4.3 ppb로 비교적 높은 것으로 확인되었다. 이처럼 라돈과 기체상 오염물질들은 주로 기류가 중국대륙에서 제주로 유입되었을 때 상대적으로 더 높은 경향을 보이고 있다. 반면에 기류가 북태평양에서 제주로 이동했을 때에는 대륙에서 기류가 유입되었을 때에 비해 훨씬 낮은 농도를 나타내었다. 이러한 결과로 보아 제주지역의 대기질은 중국에서 이동하는 오염물질의 영향을 많이 받고 있음을 확인할 수 있었다.

Table 30. Concentrations of radon (mBq m<sup>-3</sup>) and gaseous pollutants (ppb) according to the cluster back trajectory analyses.

Pathway	Radon	SO <sub>2</sub>	CO	O <sub>3</sub>	NO <sub>x</sub>
Cluster 1 (n=738)	2,659.3	1.6	462.0	43.0	3.8
Cluster 2 (n=744)	2,546.0	1.2	365.6	45.6	4.3
Cluster 3 (n=197)	1,193.2	0.8	226.7	22.8	3.0
Cluster 4 (n=268)	2,444.6	0.8	317.4	41.1	4.2
Cluster 5 (n=82)	1,475.6	0.6	243.4	31.9	2.7

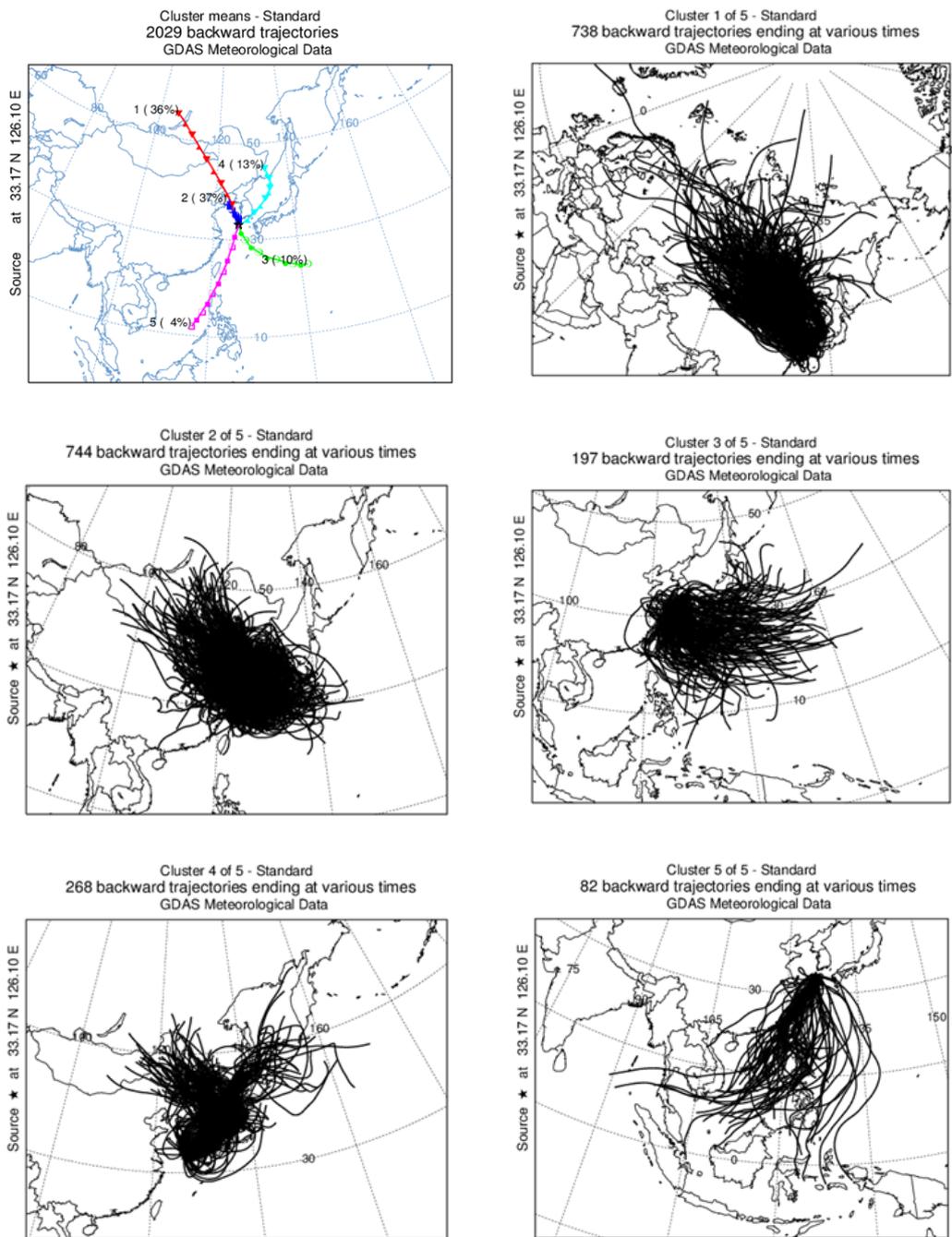


Figure 36. Cluster back-trajectories of air masses corresponding to radon monitoring data during 2010–2015.

## 4.2 기류 유입경로별 라돈과 미세먼지 농도 비교

제주도 고산지역에서 2010년 1월부터 2015년 12월까지 대기 라돈과 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 주요 수용성 이온성분 4종과 원소성분 15종의 상관성을 확인하기 위하여 라돈을 기준으로 장거리 이동경로를 추적하였다. 그리고 라돈 측정과 일치하는 시기의 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 수용성 이온성분의 농도의 평균을 상호 비교하여 Table 31에 나타내었다.

Table 31에서와 같이 기류가 중국북부(Cluster 1)에서 기류가 유입될 때 라돈 농도가 2,659.3 mBq m<sup>-3</sup>로 가장 높았고, 일본 및 동해(Cluster 3)에서 기류가 유입될 때 1,193.2 mBq m<sup>-3</sup>로 농도가 낮은 경향을 나타내었다. 이러한 라돈 농도를 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 수용성 이온성분들과 비교해본 결과, nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>의 농도는 PM<sub>10</sub> 미세먼지는 Cluster 2 (10.2 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 1 (6.4 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 5 (6.2 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 4 (6.0 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 3 (4.8 µg m<sup>-3</sup>) 순이었고, PM<sub>2.5</sub>는 Cluster 2 (9.3 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 5 (8.3 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 1 (6.1 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 4 (5.5 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 3 (4.4 µg m<sup>-3</sup>) 순으로 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 모두 중국동부에서 기류가 유입될 때 농도가 높았다.

NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 성분 또한 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>와 같은 경향으로 보였으며, Cluster 2 (4.2 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 1 (2.7 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 4 (2.3 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 5 (2.2 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 3 (2.0 µg m<sup>-3</sup>) 순이었고, PM<sub>2.5</sub> 초미세먼지 Cluster 2 (3.6 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 5 (2.8 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 1 (2.4 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 4 (2.0 µg m<sup>-3</sup>) > Cluster 3 (1.5 µg m<sup>-3</sup>) 순으로 높은 농도를 나타내었다.

NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 성분도 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>와 유사한 경향을 나타내었으며, PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 두 미세먼지에서는 Cluster 2 > Cluster 1 > Cluster 4 > Cluster 5 > Cluster 3 순으로 PM<sub>10</sub>과 PM<sub>2.5</sub> 미세먼지 모두 비슷한 경향을 나타내었다. 따라서 이들 인위적 기원 성분들은 중국대륙의 공업지대가 위치한 중국동부지역에 기류가 제주로 유입될 때 영향을 많이 받는 것으로 조사되었다.

이러한 결과는 라돈 농도가 중국북부 지역에서 높은 농도를 보인 것과는 다소의 차이를 보였다. 그러나 라돈과 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 성분들 모두 대체적으로 중국대륙에서 기류가 유입되었을 때 농도가 증가하는 경향을 보이고 있다. 토양기원의

nss-Ca<sup>2+</sup> 성분 역시 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 미세먼지에서 기류가 중국북부(Cluster 1)에서 유입될 때 농도가 각각 0.6, 0.1  $\mu\text{g m}^{-3}$ 로 라돈과 유사한 경향을 나타내었다. 라돈과 nss-Ca<sup>2+</sup> 성분이 모두 토양에서 유래된 성분으로 중국북부에 위치한 고비, 내몽골지역의 사막지대에서 발생한 황사의 영향으로 농도가 높은 것으로 추정된다. 이러한 결과들로 보아 제주지역의 대기질은 중국에서 이동하는 오염물질의 영향을 많이 받고 있는 것으로 보인다.

기류 유입경로별로 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 미세먼지의 원소성분을 비교하였고, 그 결과를 Table 32, Table 33에 나타내었다. PM<sub>10</sub> 미세먼지에서 토양기원 성분인 Al은 중국북부 (Cluster 1)에서 기류가 유입될 때 760.0  $\text{ng m}^{-3}$ 로 농도가 높았고, 북태평양 (Cluster 5)에서 유입될 때 농도가 178.4  $\text{ng m}^{-3}$ 으로 낮은 농도를 나타내었다. 또 Fe, Ca, Mn, Ba, Sr 성분들은 중국 동부에서 기류가 제주로 유입될 때 농도가 높은 것으로 조사되었다. 이때 이들 토양 기원성분들이 중국북부와 중국동부의 다소 농도차이는 다소 있었지만 동해(Cluster 3), 한반도(Cluster 4), 북태평양 (Cluster 5)에 비해 약 2.0배 이상의 농도차이를 보였고, 라돈과 유사한 경향을 나타내는 것으로 확인되었다. 또 주요 인위적 기원성분들인 S, Zn, Pb, Ni 성분들 또한 중국대륙으로부터 기류가 유입될 때 농도가 높은 것으로 나타났다. 그러나 해염기원 성분인 Na은 북태평양 (Cluster 4)에서 기류가 유입될 때 농도가 1,655.2  $\text{ng m}^{-3}$ 로 가장 높은 농도를 나타내었고, 해염 기원성분은 라돈 농도와는 다른 경향을 보이는 것으로 조사되었다.

Table 31. Concentration comparison related to clustered back trajectory analysis of ionic components in PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> aerosols.

Pathway	Radon (mBq m <sup>-3</sup> )	PM <sub>10</sub> (μg m <sup>-3</sup> )				PM <sub>2.5</sub> (μg m <sup>-3</sup> )			
		NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	nss <sup>-</sup> Ca <sup>2+</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	nss <sup>-</sup> SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	nss <sup>-</sup> Ca <sup>2+</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	nss <sup>-</sup> SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>
Cluster 1	2,659.3	2.7	0.6	4.6	6.4	2.4	0.1	2.0	6.1
Cluster 2	2,546.0	4.2	0.5	5.1	10.2	3.6	0.1	2.1	9.3
Cluster 3	1,193.2	2.0	0.2	2.1	4.8	1.5	0.1	0.4	4.4
Cluster 4	2,444.6	2.3	0.2	2.8	6.0	2.0	0.1	0.9	5.5
Cluster 5	1,475.6	2.2	0.3	2.7	6.2	2.8	0.1	0.4	8.3

Table 32. Concentration comparison related to clustered back trajectory analysis of elemental components in PM<sub>10</sub> aerosol.

Pathway	Concentration (mBq m <sup>-3</sup> , ng m <sup>-3</sup> )							
	Radon	Al	Fe	Ca	Na	K	Mg	S
Cluster 1	2,659.3	760.0	539.1	500.6	1,340.4	288.1	326.4	1,254.1
Cluster 2	2,546.0	696.7	606.5	501.4	1,099.9	315.0	309.4	1,914.0
Cluster 3	1,193.2	185.6	124.1	102.9	1,022.2	106.6	141.2	1,037.3
Cluster 4	2,444.6	237.4	202.4	164.9	1,063.5	129.8	164.1	1,206.3
Cluster 5	1,475.6	178.4	145.1	193.5	1,655.2	144.8	227.6	1,411.3

Pathway	Concentration (mBq m <sup>-3</sup> , ng m <sup>-3</sup> )								
	Radon	Ti	Mn	Ba	Sr	Zn	Pb	Cu	Ni
Cluster 1	2,659.3	22.2	15.0	4.1	4.2	40.9	17.3	4.2	8.5
Cluster 2	2,546.0	22.4	15.6	5.7	4.6	38.3	20.4	6.8	11.9
Cluster 3	1,193.2	9.4	3.4	1.5	1.4	17.9	12.7	3.2	7.0
Cluster 4	2,444.6	14.2	6.4	2.2	2.3	17.1	7.6	3.2	9.3
Cluster 5	1,475.6	12.2	4.4	1.8	2.0	19.2	7.9	3.4	5.1

Table 33. Concentration comparison related to clustered back trajectory analysis of elemental components in PM<sub>2.5</sub> aerosol.

Pathway	Concentration (mBq m <sup>-3</sup> , ng m <sup>-3</sup> )							
	Radon	Al	Fe	Ca	Na	K	Mg	S
Cluster 1	2,659.3	107.2	85.7	57.3	152.1	70.6	30.9	633.6
Cluster 2	2,546.0	79.2	91.1	67.6	166.8	114.3	43.6	1,060.3
Cluster 3	1,193.2	74.4	24.6	32.5	171.6	24.0	26.3	491.9
Cluster 4	2,444.6	62.0	45.2	29.6	148.6	50.8	26.0	821.5
Cluster 5	1,475.6	26.3	34.7	31.7	247.6	68.2	33.7	997.4

Pathway	Concentration (mBq m <sup>-3</sup> , ng m <sup>-3</sup> )								
	Radon	Ti	Mn	Ba	Sr	Zn	Pb	Cu	Ni
Cluster 1	2,659.3	2.8	3.5	1.0	0.6	7.0	5.5	0.8	1.2
Cluster 2	2,546.0	3.1	3.5	1.1	0.7	12.0	7.8	1.0	1.9
Cluster 3	1,193.2	0.9	0.8	0.4	0.3	6.2	2.0	0.5	0.7
Cluster 4	2,444.6	1.8	2.5	0.5	0.3	4.3	3.4	0.8	3.2
Cluster 5	1,475.6	0.8	0.7	0.5	0.5	2.7	2.8	0.4	1.3

## 5. 풍향별 농도 비교

### 5.1 풍향별 라돈과 기체상 오염물질 농도 비교

대기오염물질은 대기 중에서 기류를 따라 확산과 이동이 가능하기 때문에 장거리 이동 영향이 크게 나타난다. 특히 우리나라는 아시아 대륙의 동쪽 끝 지점에 위치하고 있고, 편서풍 풍하 측에 자리 잡고 있어서 이처럼 장거리 이동된 오염물질의 영향을 크게 받는 것으로 나타나고 있다. 이러한 대기오염물질의 이동 영향을 확인하기 위하여 제주도 고산지역에서 2010년 1월부터 2015년 12월까지 측정된 라돈 및 기체상 오염물질의 농도변화를 풍향에 따라 비교하였다. 풍향에 따라 라돈 및 기체상 오염물질의 영향을 분석하기 위하여 제주지역을 중심으로 주변 구역을 4개 구간으로 구분하였고, 각 구간별 농도를 Table 34와 Figure 38에 나타내었다. 먼저 풍향별 구간은 중국대륙을 포함한 중국(225°~350°) 방향을 Sector 1, 한반도(350°~40°) 방향을 Sector 2, 일본 및 동해(40°~135°) 방향을 Sector 3, 북태평양(135°~225°) 방향을 Sector 4로 구분하였다. 이 때 풍향은 제주도 고층레이다기상대에서 측정된 고층기상자료를 이용하였고, 00 UTC, 850 hPa (고도 1,500 m 내외)의 풍향을 이용하여 나타내었다. 제주 지역의 연간 풍향은 대체적으로 봄철에 북서 계열, 여름에 남동 계열이 우세한 것으로 나타나고 있다. 또 가을에 북동 계열, 겨울에는 북풍 계열로 전체적으로는 북서 계열이 가장 큰 빈도를 나타내고 있다(Carmichael *et al.*, 1997). 그리고 연간 전체적으로 편서풍의 영향으로 북서 계열의 풍향이 가장 많은 빈도를 나타내고 있다(Figure 37).

대기 라돈 및 기체상 오염물질의 농도를 풍향별로 비교해 본 결과, 라돈 농도는 Sector 2 > Sector 1 > Sector 3 > Sector 4 순으로 한반도(350°~40°) 계열의 풍향일 때 2712.3 mBq m<sup>-3</sup>으로 가장 높았고, 북태평양 계열의 풍향 (1841.1 mBq m<sup>-3</sup>)일 때 가장 낮은 농도를 나타내었다. 그리고 O<sub>3</sub>과 NO<sub>x</sub> 성분들 역시 한반도(350°~40°)계열의 풍향일 때 농도가 각각 47.1 ppb, 4.5 ppb로 높은 농도를 나타내었고, 이는 라돈과 유사한 결과를 보이는 것으로 조사되었다. 그러나 SO<sub>2</sub>와 CO 성분은 Sector 1 > Sector 2 > Sector 4 > Sector 3 순으로 중국 (225° ~ 350°) 방향의 풍향일 때 농도가 각각 1.6, 418.8 ppb로 농도가 높았고, 일본 및

동해(40°~135°) 방향의 풍향일 때 낮은 농도를 나타내어 다른 성분들과 상반된 결과를 나타내었다. 위의 결과들을 종합해보면, 대기 라돈과 기체상 오염물질들은 주로 북풍과 북서풍의 계열의 풍향일 때 대부분 높은 농도를 나타내었고, 남풍과 남동풍 방향의 계열일 때 상대적으로 농도가 낮은 것으로 조사되었다.

Table 34. Concentrations of radon ( $\text{mBq m}^{-3}$ ) and gaseous pollutants (ppb) corresponding to the wind directions.

Species	225°~350°	350°~40°	40°~135°	135°~225°
$^{222}\text{Rn}$	2,524.0	2,712.3	2,451.9	1,841.1
$\text{SO}_2$	1.6	1.2	0.8	1.0
$\text{O}_3$	42.6	47.1	41.4	33.1
CO	418.8	385.9	281.2	324.3
$\text{NO}_x$	3.8	4.46	4.45	3.6

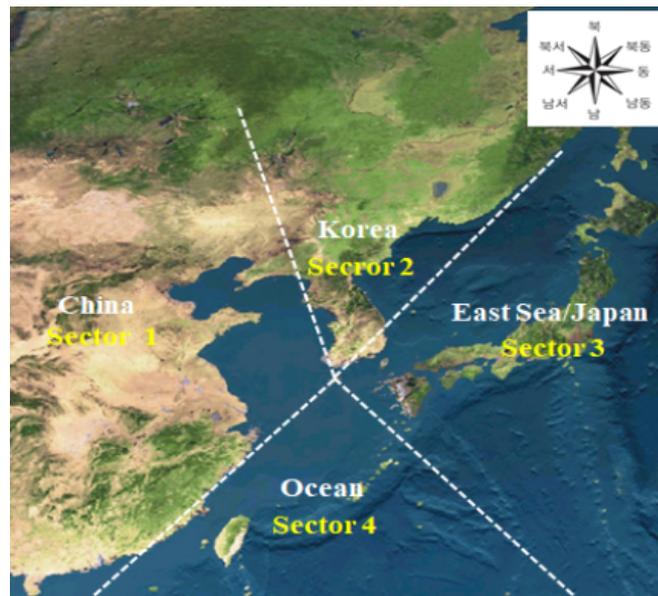
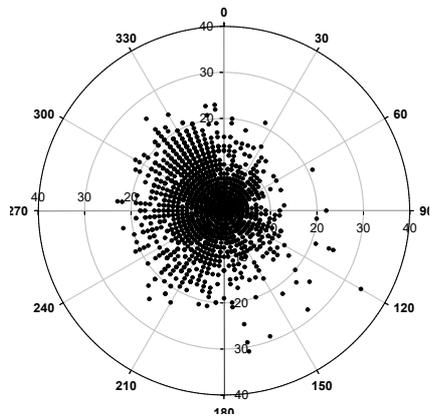
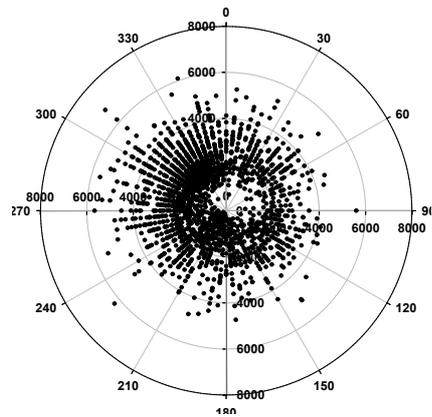


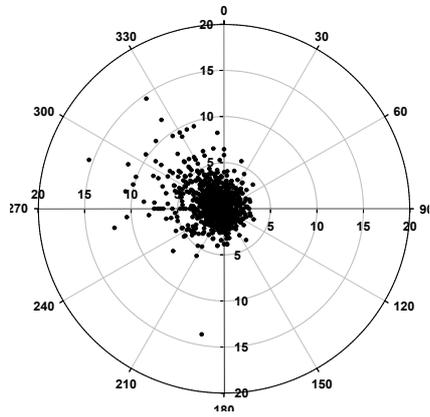
Figure 37. Four sectors according to the wind directions; Sector 1 (225°~350°), Sector 2 (350°~40°), Sector 3 (40°~135°), Sector 4 (135°~225°).



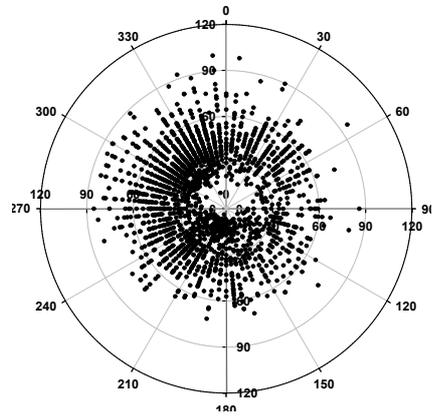
< Wind Speed >



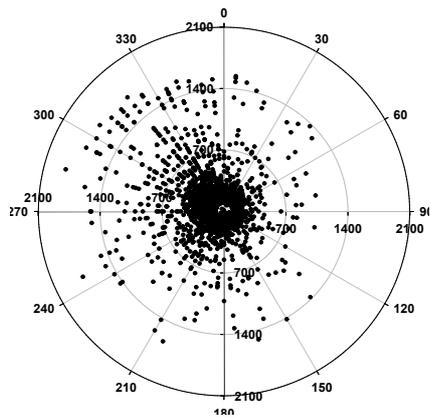
< Radon >



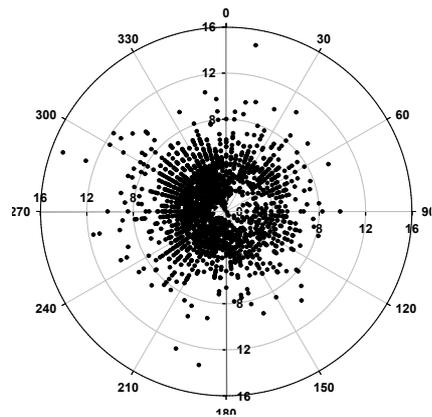
< SO<sub>2</sub> >



< O<sub>3</sub> >



< CO >



< NO<sub>x</sub> >

Figure 38. Scattergrams of radon and gaseous pollutants corresponding to the wind directions.

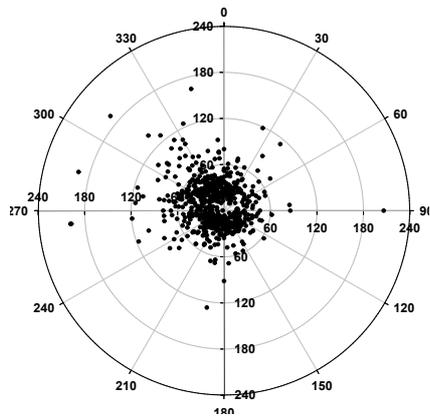
## 5.2 풍향별 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 성분 농도 비교

제주도 고산지역에서 2010년부터 2015년까지 채취한 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 미세먼지 시료의 질량농도, 수용성 성분 및 원소 성분의 농도 변화를 풍향에 따라 분류하여 비교하였다. 그리고 풍향별 수용성 성분의 농도변화를 Table 35, 원소성분의 농도변화를 Table 36에 비교하였다. 먼저 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 시료의 질량농도를 풍향별로 비교해 본 결과, PM<sub>10</sub>과 PM<sub>2.5</sub> 질량농도는 Sector 1 (225°~350°)에서 각각 49.8  $\mu\text{g m}^{-3}$ 와 23.4  $\mu\text{g m}^{-3}$ 로 높은 농도를 나타내었고, 이는 북서계열 풍향의 영향을 많이 받는 것으로 조사되었다. PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> 수용성 이온 성분의 농도를 풍향별로 비교하였고, 그 결과를 Figure 39와 Figure 40에 나타내었다. 그림의 결과와 같이  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{nss-Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{Cl}^-$  등 주요 수용성 이온성분 8종은 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>에서 풍향이 모두 중국방향 계열일 때 농도가 크게 증가하는 경향을 보였다. PM<sub>10</sub>에서 수용성 이온성분인  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{nss-Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{Cl}^-$ 은 중국방향 계열일 때 농도가 각각 3.4, 2.8, 0.4, 0.6, 0.4, 8.4, 5.0, 3.2  $\mu\text{g m}^{-3}$ 로 다른 계열의 풍향에 비해 높은 경향을 보였다. 그리고 PM<sub>2.5</sub> 또한 이들 성분들이 각각 3.1, 0.4, 0.3, 0.1, 0.1, 7.8, 2.1, 0.2  $\mu\text{g m}^{-3}$ 로 중국방향 계열일 때 농도가 높은 것으로 조사되었다. 또 주요 원소성분들의 풍향별 농도를 비교해 본 결과, 토양의 주요 성분인 Al, Fe, Ca, Ti 등이 대부분 225°~350°의 중국방향 계열의 풍향일 때 농도가 크게 증가하는 경향을 보였다. 그리고 인위적 기원의 Pb, Zn, V 등, 그리고 K, Mn 성분들 역시 대체적으로 중국방향 계열일 때 높은 농도를 나타내는 것으로 확인되었다(Figure 41, Figure 42).

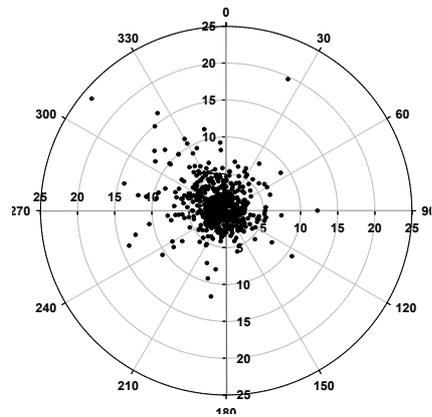
이러한 풍향별 농도변화를 보면 대체적으로 중국방향 계열의 풍향일 때 농도가 높은 경향을 나타내었다. 그리고 중국과 한반도를 포함한 아시아 대륙에서 바람이 불 때 그 농도가 상승하고, 북태평양에서 바람이 불 때 상대적으로 농도가 감소하는 경향을 보여 제주도 고산 지역 대기 에어로졸은 자체적인 오염보다는 타 지역에서 장거리 이동된 오염물질들의 영향이 크고, 이들 성분들이 상당량 대기 중에 유입되고 있는 것으로 추정된다.

Table 35. Ionic concentrations ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ) of  $\text{PM}_{10}$  and  $\text{PM}_{2.5}$  corresponding to the wind directions.

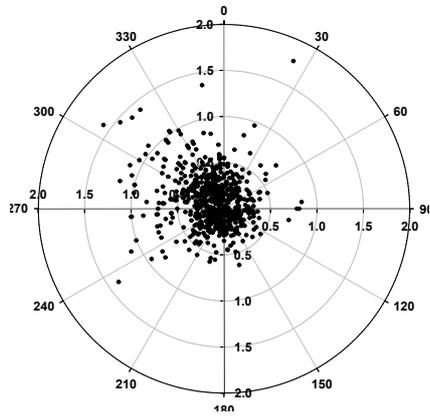
Species	$\text{PM}_{10}$				$\text{PM}_{2.5}$			
	225° ~350°	350° ~40°	40°~ 135°	135°~ 225°	225° ~350°	350° ~40°	40°~ 135°	135°~ 225°
Mass	49.8	39.2	34.6	28.9	23.4	19.7	17.8	15.0
$\text{NH}_4^+$	3.4	3.1	2.9	2.2	3.1	2.5	2.6	2.0
$\text{Na}^+$	2.8	2.1	1.9	2.0	0.4	0.3	0.3	0.3
$\text{K}^+$	0.4	0.3	0.3	0.3	0.3	0.2	0.2	0.1
nss- $\text{Ca}^{2+}$	0.6	0.3	0.3	0.3	0.1	0.1	0.1	0.1
$\text{Mg}^{2+}$	0.4	0.3	0.3	0.2	0.1	0.1	0.0	0.1
nss- $\text{SO}_4^{2-}$	8.4	7.3	7.8	5.9	7.8	6.4	7.1	5.2
$\text{NO}_3^-$	5.0	4.8	3.3	2.8	2.1	1.8	0.8	1.2
$\text{Cl}^-$	3.2	2.2	1.8	2.2	0.2	0.2	0.1	0.2



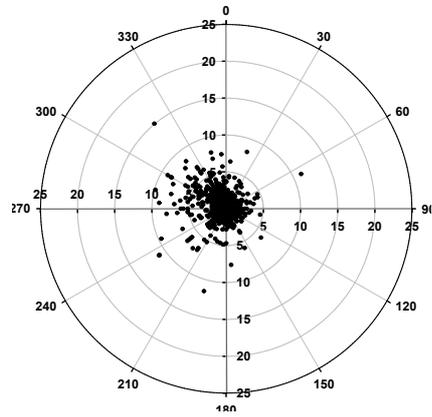
< Mass >



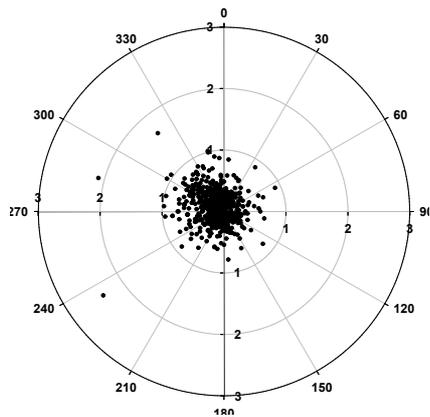
< NH<sub>4</sub><sup>+</sup> >



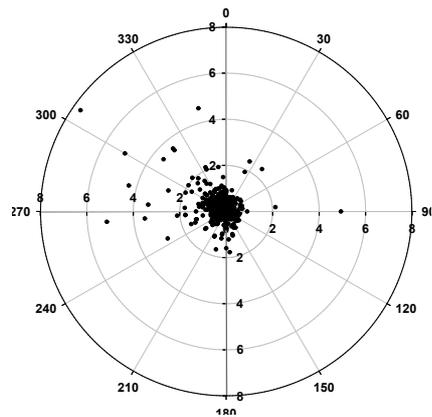
< K<sup>+</sup> >



< Na<sup>+</sup> >

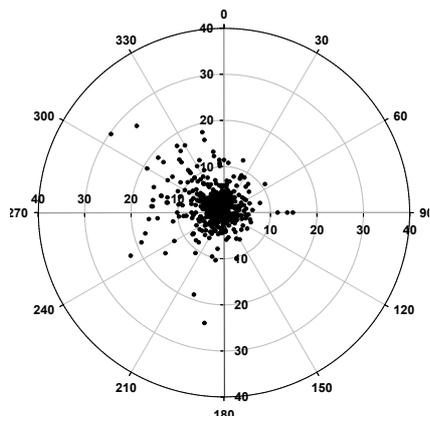


< Mg<sup>2+</sup> >

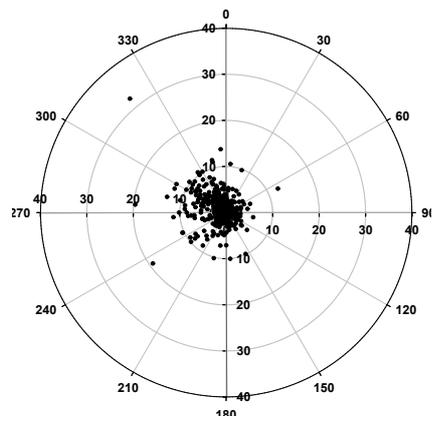


< Ca<sup>2+</sup> >

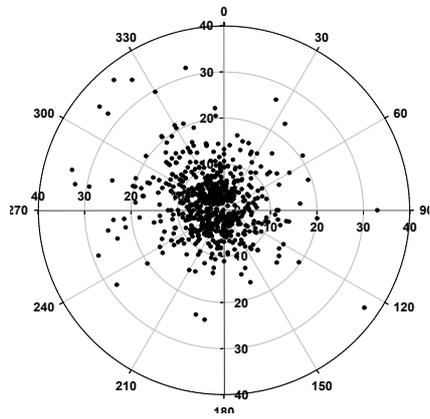
(continued)



< NO<sub>3</sub><sup>-</sup> >

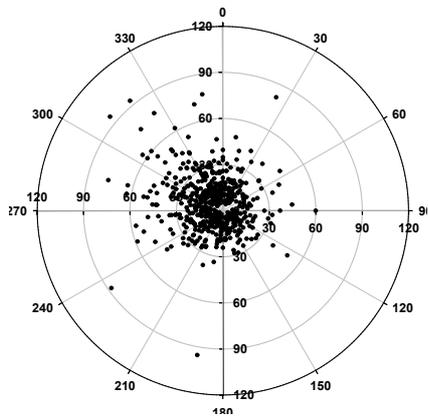


< Cl<sup>-</sup> >

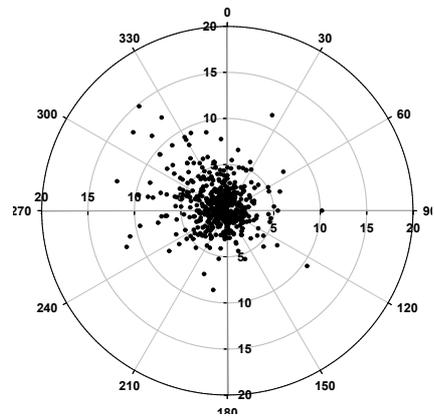


< SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> >

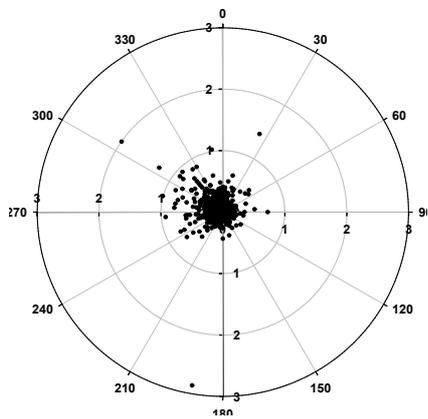
Figure 39. Scattergrams of PM<sub>10</sub> ion concentrations corresponding to the wind directions.



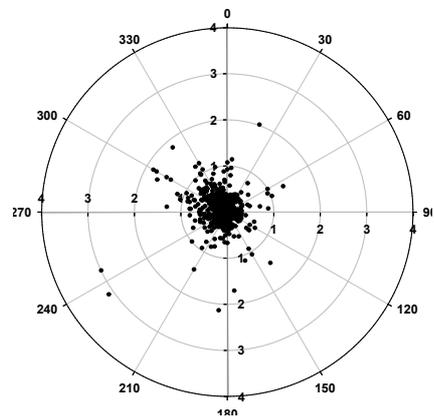
< Mass >



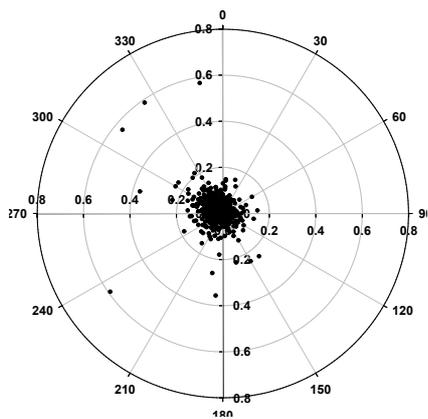
< NH<sub>4</sub><sup>+</sup> >



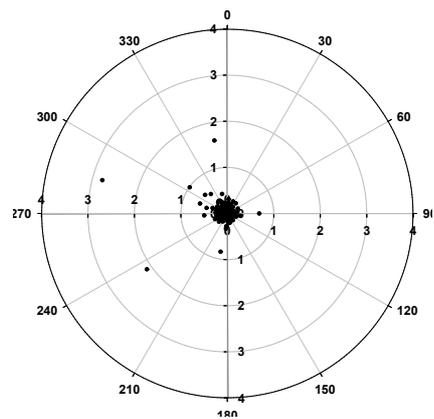
< K<sup>+</sup> >



< Na<sup>+</sup> >

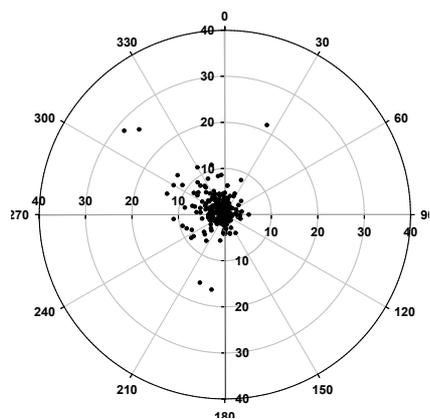


< Mg<sup>2+</sup> >

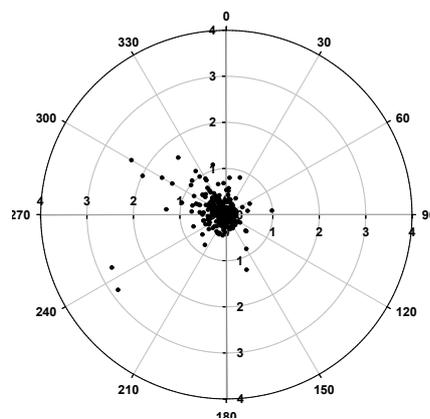


< Ca<sup>2+</sup> >

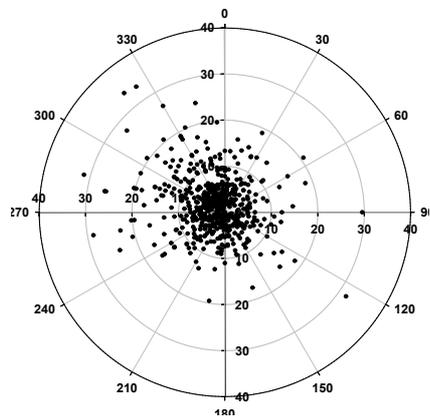
(continued)



< NO<sub>3</sub><sup>-</sup> >



< Cl<sup>-</sup> >

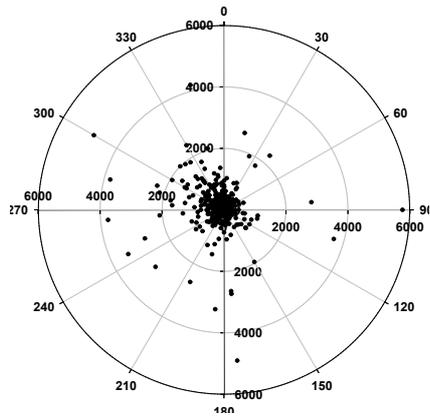


< SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> >

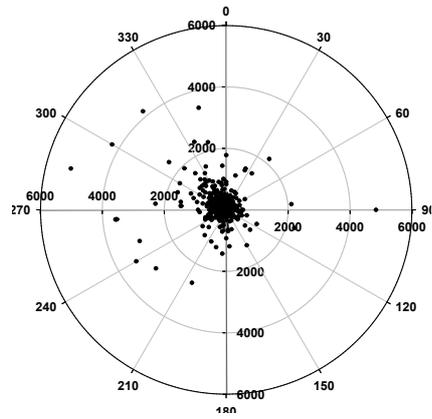
Figure 40. Scattergrams of PM<sub>2.5</sub> ion concentrations corresponding to the wind directions.

Table 36. Elemental concentrations( $\mu\text{g m}^{-3}$ ) of  $\text{PM}_{10}$  and  $\text{PM}_{2.5}$  corresponding to the wind directions.

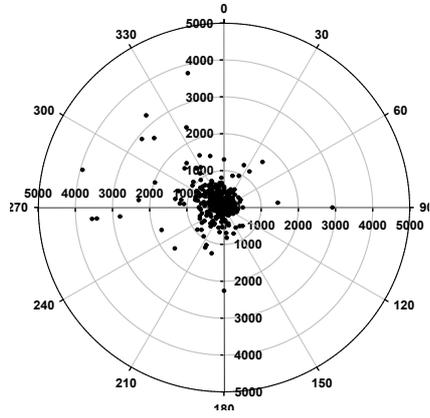
Species	$\text{PM}_{10}$				$\text{PM}_{2.5}$			
	225° ~ 350°	350° ~40°	40° ~ 135°	135° ~ 225°	225° ~ 350°	350° ~40°	40° ~ 135°	135° ~ 225°
Al	888.3	403.7	391.4	358.2	888.3	403.7	391.4	358.2
Fe	611.3	347.4	319.8	236.3	611.3	347.4	319.8	236.3
Ca	552.5	282.4	208.1	231.6	552.5	282.4	208.1	231.6
Na	1,487.2	1,011.1	1,099.9	884.1	1,487.2	1,011.1	1,099.9	884.1
K	336.1	213.7	170.2	151.8	336.1	213.7	170.2	151.8
Mg	366.3	210.6	196.6	168.4	366.3	210.6	196.6	168.4
S	1,667.1	1,311.8	1,582.0	1,046.8	1,667.1	1,311.8	1,582.0	1,046.8
Ti	24.4	15.5	15.4	14.6	24.4	15.5	15.4	14.6
Mn	16.9	11.5	8.2	7.6	16.9	11.5	8.2	7.6
Ba	5.2	3.5	2.6	3.1	5.2	3.5	2.6	3.1
Sr	4.9	2.9	2.5	2.2	4.9	2.9	2.5	2.2
Zn	48.3	33.0	19.8	20.7	48.3	33.0	19.8	20.7
V	7.4	5.4	7.9	5.2	7.4	5.4	7.9	5.2
Cr	9.7	6.5	8.4	8.4	9.7	6.5	8.4	8.4
Pb	21.5	15.1	9.4	12.6	21.5	15.1	9.4	12.6
Cu	4.7	7.9	3.6	4.0	4.7	7.9	3.6	4.0
Ni	9.4	7.7	11.5	9.7	9.4	7.7	11.5	9.7
Co	2.4	1.8	1.4	1.9	2.4	1.8	1.4	1.9
Mo	1.4	1.5	2.4	2.0	1.4	1.5	2.4	2.0
Cd	0.5	0.6	0.7	0.5	0.5	0.6	0.7	0.5



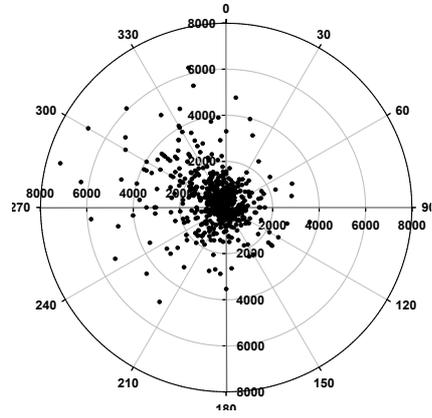
< Al >



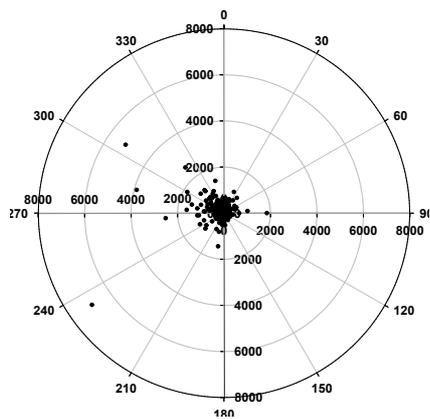
< Fe >



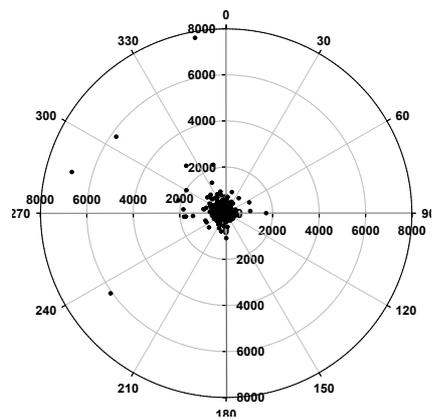
< Ca >



< Na >

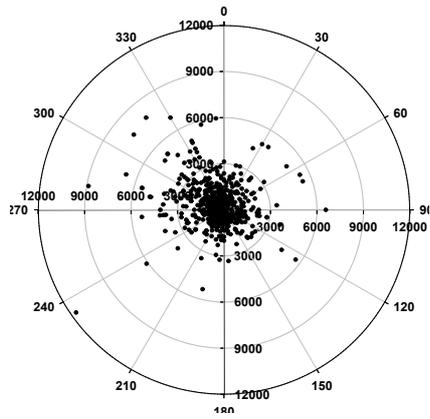


< K >

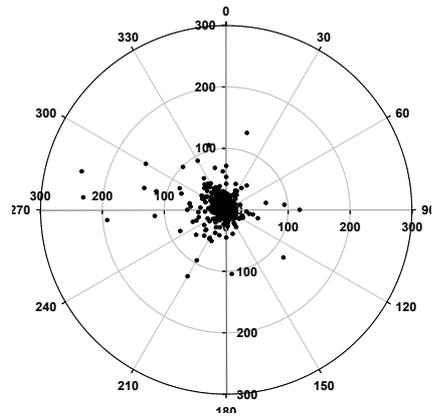


< Mg >

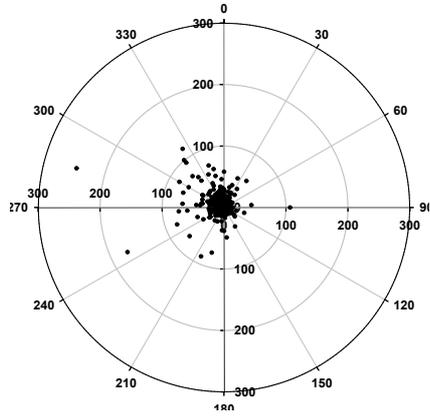
(continued)



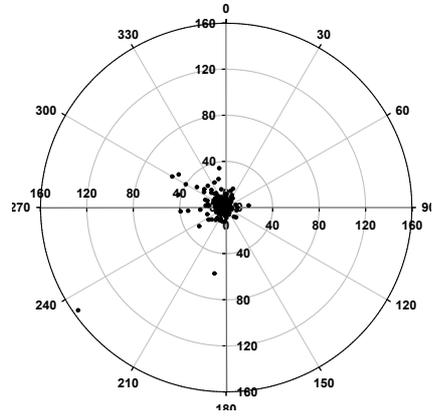
< S >



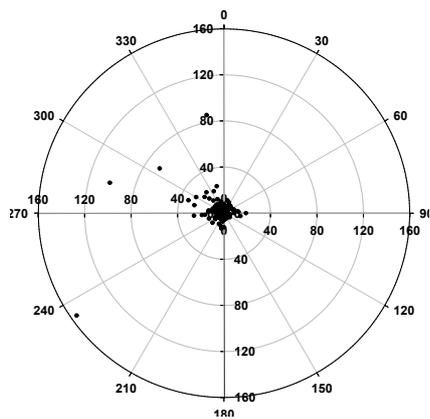
< Ti >



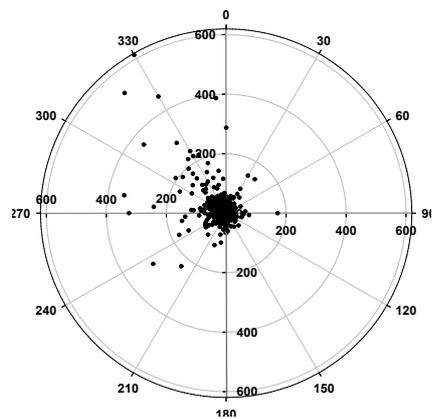
< Mn >



< Ba >

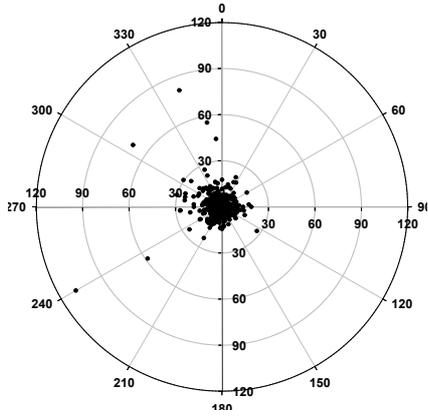


< Sr >

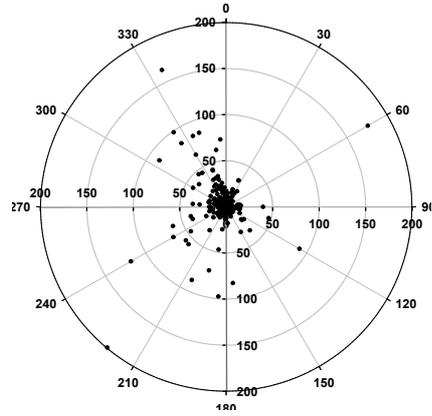


< Zn >

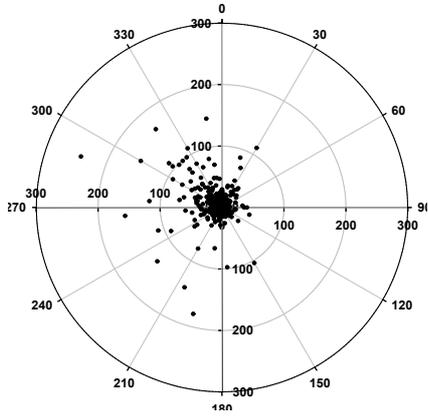
(continued)



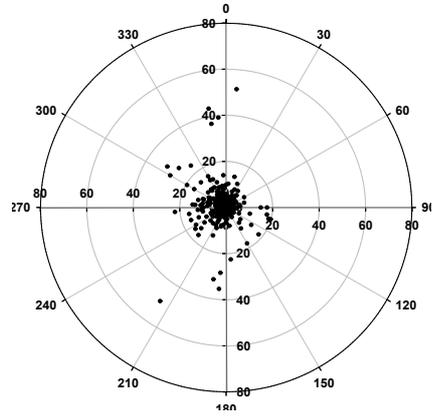
< V >



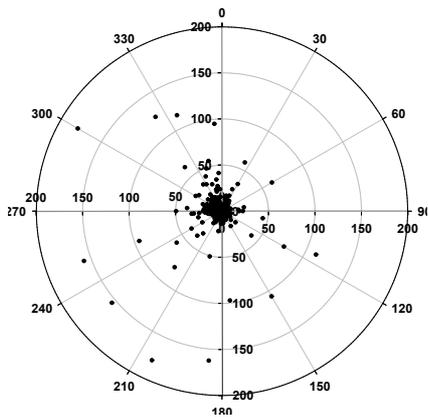
< Cr >



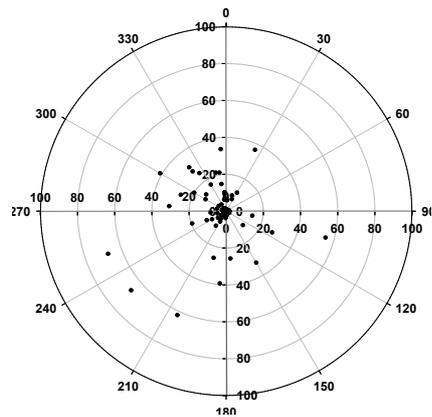
< Pb >



< Cu >

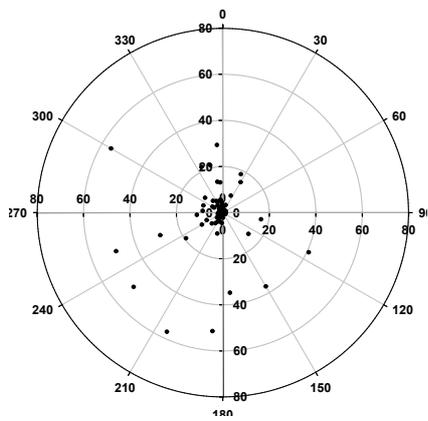


< Ni >

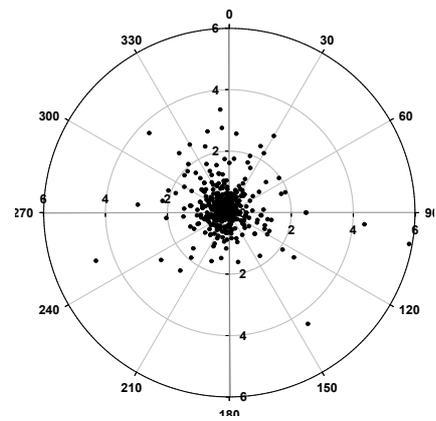


< Co >

(continued)

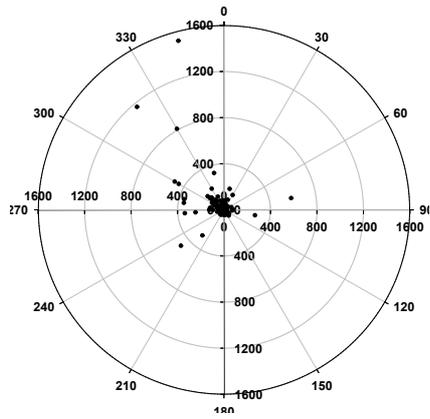


< Mo >

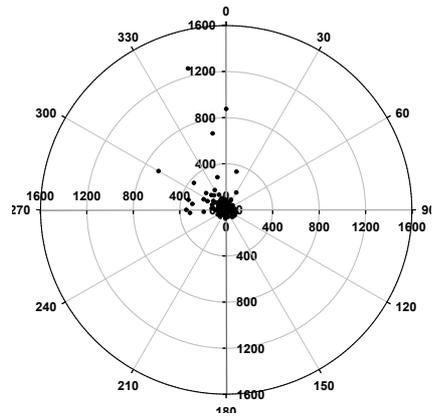


< Cd >

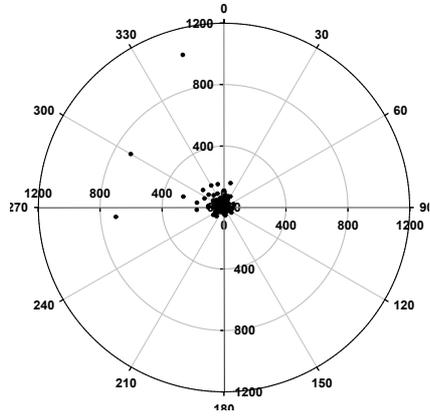
Figure 41. Scattergrams of  $PM_{10}$  elemental concentrations corresponding to the wind directions.



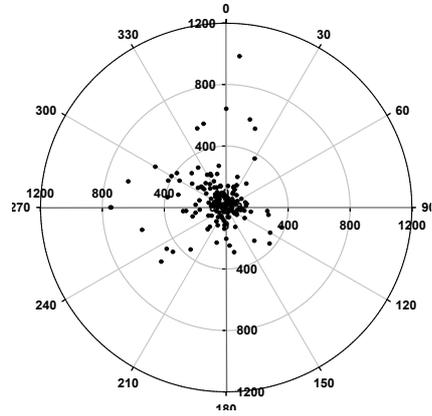
< Al >



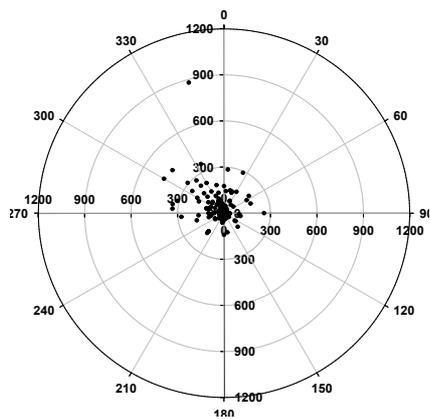
< Fe >



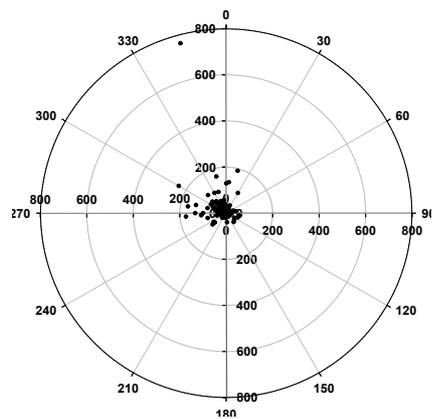
< Ca >



< Na >

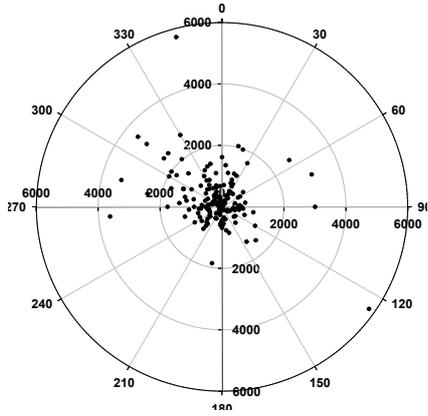


< K >

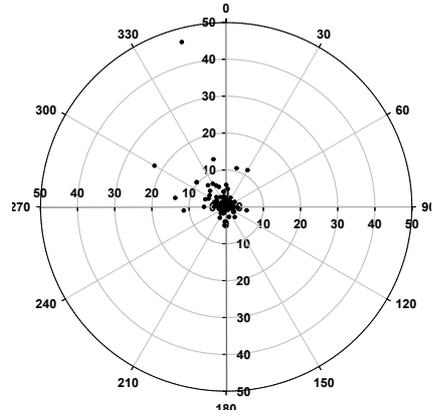


< Mg >

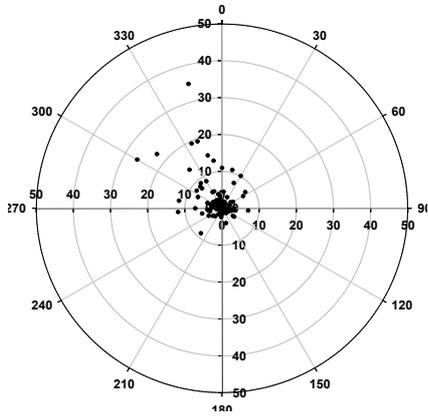
(continued)



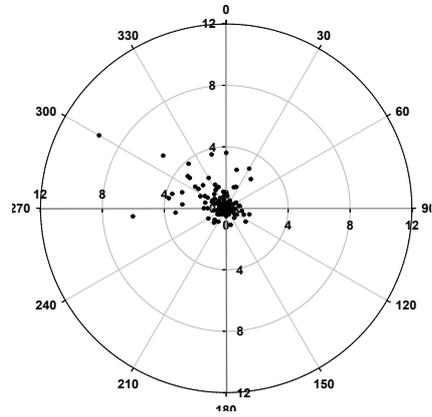
< S >



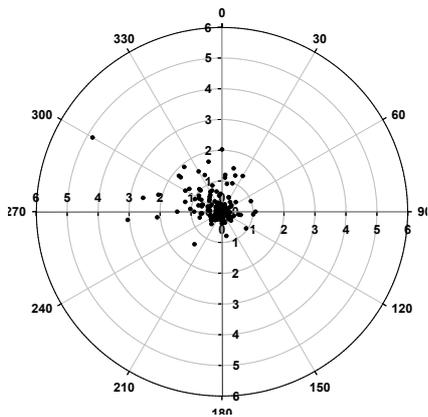
< Ti >



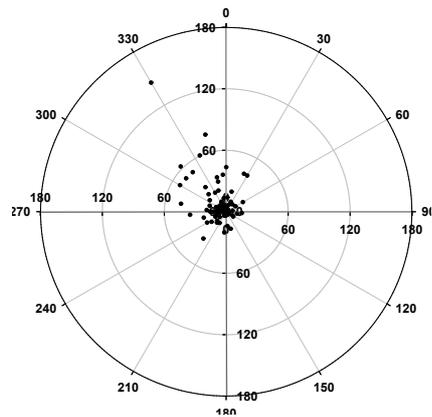
< Mn >



< Ba >

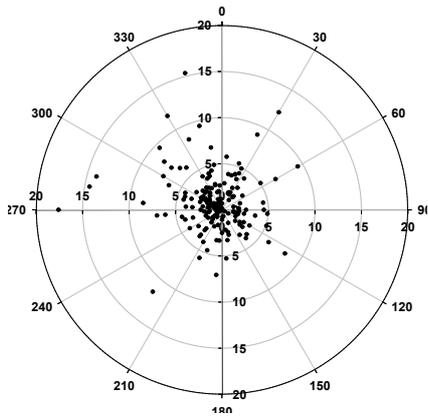


< Sr >

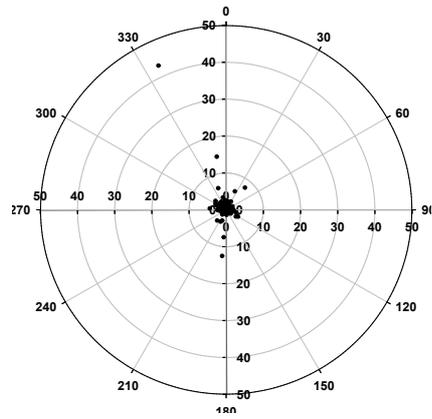


< Zn >

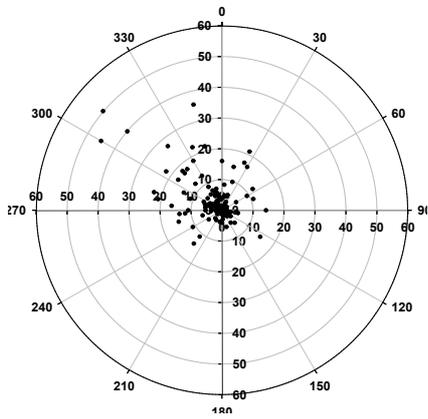
(continued)



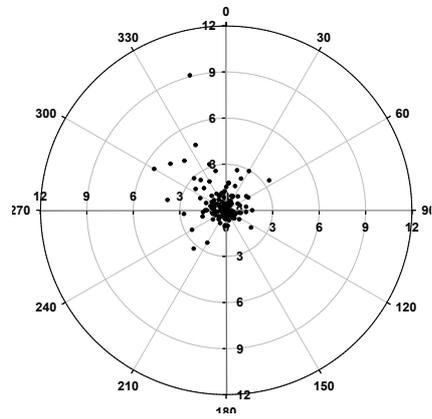
< V >



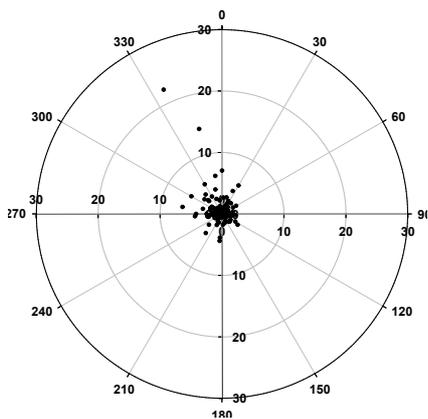
< Cr >



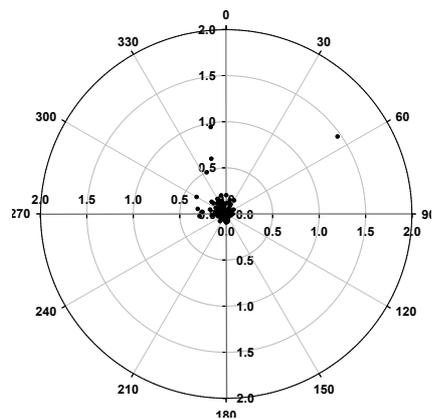
< Pb >



< Cu >

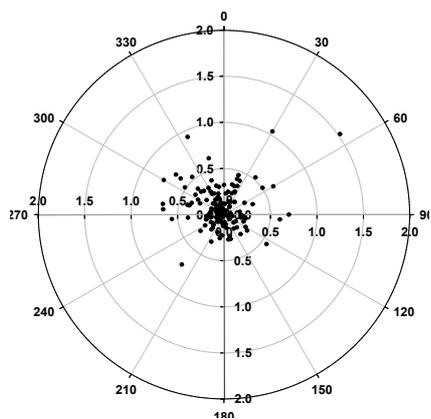


< Ni >

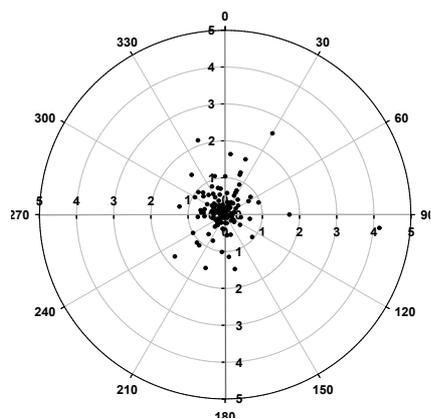


< Co >

(continued)



< Mo >



< Cd >

Figure 42. Scattergrams of PM<sub>2.5</sub> elemental concentrations corresponding to the wind directions.

## IV. 요약 및 결론

국내 배경지역인 제주도 고산지역에서 대기 라돈 배경농도를 실시간 모니터링 하였다. 그리고 그 결과로부터 라돈과 기체상 오염물질의 시계열 변화특성을 조사하고, 기류 유입경로 및 풍향별 농도 변화를 비교하였다.

연구기간의 라돈 평균농도는  $2,392 \pm 1,222 \text{ mBq m}^{-3}$  ( $0.065 \text{ pCi/L}$ )로 제주지역 실내 평균농도  $88.4 \text{ Bq m}^{-3}$  ( $2.4 \text{ pCi/L}$ )에 비해서도 37.0배 낮은 수준을 보였다. 라돈의 시계열 변화는 계절별로 가을( $2,892 \text{ mBq m}^{-3}$ )과 겨울( $2,839 \text{ mBq m}^{-3}$ )에 높은 농도를 보였고, 여름철에 상대적으로 낮은 농도를 나타내었다. 월별로는 11월이  $3,012 \text{ mBq m}^{-3}$ 로 가장 높은 농도를 보였고, 7월에  $1,458 \text{ mBq m}^{-3}$  가장 낮은 농도로 대략 2.3배의 차이를 보였다. 또한 일간 변화를 비교해본 결과에서는 야간에 높고 주간에 낮았으며 오전 7시경에 최대농도( $2,742 \text{ mBq m}^{-3}$ ), 오후 3시경에 최소농도( $1,989 \text{ mBq m}^{-3}$ )를 보여 혼합고 높이에 따라 차이를 보였다.

기체상 오염물질  $\text{SO}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{NO}_x$ 의 월평균 농도는 각각 1.3, 377.6, 41.1, 3.9 ppb 이었고, 월평균 농도는 대체적으로 라돈과 유사한 경향을 나타내었다. 라돈과  $\text{CO}$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$ 의 농도는 상관계수( $r$ )가 각각 0.6, 0.5, 0.6로 비교적 높은 상관성을 보였다. 반면에 라돈과  $\text{O}_3$ 은 상대적으로 낮은 상관성을 나타내었고, 상반된 월변화 추세를 보였으며, 오후에 농도가 높고 오전에 낮아 라돈과는 서로 상반된 일변화 특성을 나타내었다.

$\text{PM}_{10}$ 과  $\text{PM}_{2.5}$ 에서는  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  농도가 각각  $7.5$ ,  $4.3 \text{ } \mu\text{g m}^{-3}$ 로 가장 높고, 다음으로  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ 이 높은 경향을 보였다. 월별로는 이차오염물질인  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$ 이 3월,  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  성분은 5월에 높은 농도를 보였고, 토양기원의  $\text{nss-Ca}^{2+}$  역시 봄철에 높은 농도를 나타내었다. 원소성분은  $\text{PM}_{10}$ ,  $\text{PM}_{2.5}$  모두 토양기원의 Al, Fe, Ca, Ti, Mn, Ba, Sr 성분들과 인위적 기원의 S, Pb, Ni 성분들이 3월과 5월에 높은 농도를 나타내었다.

역래적 균집분석법에 의해 라돈, 기체상 오염물질,  $\text{PM}_{10}/\text{PM}_{2.5}$  성분의 농도를 기류 유입경로별로 비교해 본 결과, 기류가 중국대륙에서 제주로 이동했을 때

농도가 더 높고, 다음으로 한반도에서 유입되었을 때 높은 경향을 보였다. 반면에 기류가 북태평양에서 유입되었을 때는 훨씬 낮은 농도를 나타내어 제주지역 대기질이 중국의 오염 영향을 많이 받고 있음을 확인할 수 있었다.

풍향별로 라돈, 기체상 오염물질,  $PM_{10}/PM_{2.5}$  성분의 농도를 비교한 결과에서는 한반도 방향의 계열( $350^{\circ}\sim 40^{\circ}$ )의 풍향일 때 라돈,  $O_3$ ,  $NO_x$  성분들의 농도가 높았고,  $SO_2$ 와 CO 농도는 중국방향 풍향( $225^{\circ}\sim 350^{\circ}$ )일 때 더 높았다.  $PM_{10}$ ,  $PM_{2.5}$  주요 이온성분( $NH_4^+$ ,  $Na^+$ ,  $K^+$ ,  $nss-Ca^{2+}$ ,  $Mg^{2+}$ ,  $nss-SO_4^{2-}$ ,  $NO_3^-$ ,  $Cl^-$ ) 모두 중국방향 계열의 풍향일 때 농도가 높고, 토양기원의 Al, Fe, Ca, Ti 성분과 인위 기원의 Pb, Zn, V, Ni 성분 역시 대체적으로 동일하게 북서계열 풍향일 때 높은 경향을 나타내었다.

이러한 결과들로부터 라돈과 기체상 오염물질,  $PM_{10}/PM_{2.5}$  성분들은 대체적으로 유사한 시계열 변화특성과 유입경로별, 풍향별 특성을 나타내고 있음을 확인할 수 있었다. 그리고 이러한 라돈과 주요 대기오염물질의 농도 상관성과 기류 유입 경로별 농도변화 특성을 적절히 활용할 경우 라돈을 대기오염물질 장거리 이동 추적자로 이용할 수 있을 것으로 추정된다.

또한 본 연구결과는 최근 위해성 문제로 관리가 요구되고 있는 대기 라돈의 감시 자료로 중요한 의미가 있으며, 국내 대기 라돈 배경농도 수준을 확인하기 위한 기초자료로 활용할 수 있을 것으로 보인다.

## V. 참고문헌

1. 강창희, 고희정, W. Zahorowski, (2007) 제주도 고산지역의 라돈 및 TSP 에어로졸 농도 특성: 2001~2004년 측정, 한국대기환경학회지, 23(5), 612-624.
2. 기상청 (2014) 부울경, 올 들어 세 번째 황사, (2014. 3. 18), 부산지방기상청 예보과.
3. 김기주, 이승훈, 현동림, 고희정, 김원형, 강창희 (2014) 황사와 연무 시  $PM_{10}$  및  $PM_{2.5}$  미세먼지 조성 비교: 2010-2011년 고산지역 측정, 한국분석과학회, 27(1), 1-10.
4. 김병화 (1999) 수원지역 대기질 관리를 위한  $PM_{2.5}$ 와  $PM_{10}$ 의 화학적 특성의 통계분석, 경희대학교 석사학위 논문.
5. 나덕재, 이병규 (2000) 산업도시 대기 중  $PM_{10}$ 의 농도 및 금속원소 성분의 특성 연구, 한국대기환경학회지, 16(1) 23-35.
6. 류성윤, 김영준 (2005) 3-Stage DRUM 샘플러를 이용한 광주 도심지역의 봄철과 여름철  $PM_{2.5}$  원소적 조성비교, 한국대기환경학회지, 21(6), 699-708.
7. 문지용, 김영복, 이지영, 정기호 (2001) 울산대기 중 중금속 분포 특성, Analytical science & technology, 14(5) 442-450.
8. 문광주, 한진석, 공부주, 정일록, Steven S. Cliff, Thomas A. Cahill, Kevin D. Perry (2006) PMF 분석을 이용한 ACE-Asia 측정기간 중 제주 고산지역 입자상 물질의 입경별 발생원 추정, 한국대기환경학회지, 22(5), 590-603.
9. 배현주 (2014) 서울시 미세먼지( $PM_{10}$ )와 초미세먼지( $PM_{2.5}$ )의 단기노출로 인한 사망영향, 한국환경보건학회지 40(5), 346-354.
10. 김신도 등, "대도시 대기질 관리방안 조사연구: 미세먼지 생성과정 규명과 저감 대책 수립", 국립환경과학원 보고서(RAL-0703114) (2007).
11. 김윤신, 이철민, 김현탁, Takao Iida (2002) Alpha Track Detector를 이용한 실내외 라돈 농도조사에 관한 연구, 한국환경위생학회지, 28(5), 71-76.
12. 김윤신, 이철민, 김기연, 전형진, 김종철, Takao Iida (2007) 동북아 오염물질 장거리이동 분석을 위한 서울시 대기 중 라돈농도의 시계열적 특성에 관한

- 연구, 한국환경보건학회지, 33(4), 283-292.
13. 송미정, 이미혜, 문광주, 한진석, 김경렬, 이강웅 (2006) ABC-EAREX2005 미세 에어로솔의 화학적 특성, 한국대기환경학회지, 22(5), 604-613.
  14. 송정민, 부준오, 신수현, 김원형, 강창희 (2017) 제주도 배경지역의 2016년 봄철 황사, 연무의 에어로졸 오염 특성, 한국대기환경학회지, 34(2), 321-330.
  15. 신은상, 최민규, 선우 영, 정용삼(2002), 서울지역의  $PM_{10}$  중 미량 원소의 특성 평가, 한국대기환경학회지, 18(5), 363-372.
  16. 오미석, 이태정, 김동술, 수원지역 분진의 입경별 이온성분 분포특성에 관한 연구(2009), 한국대기환경학회지, 25(1), 46-56.
  17. 이용희, 김상균, 이재범, 최원준, 차준석, 최진수, 박일수 (2007) 서해상 대기오염 물질 고농도 현상에 대한 원인 분석, 환경공동학술대회 초록집, 1561-1563.
  18. 이종훈, 김용표, 문길주, 김희강, 정용승, 이종범 (1997) 우리 나라 청정지역에서 측정된  $PM_{2.5}$  입자의 특성, 한국대기환경학회, 13(6), 439-450.
  19. 이학성, 강충민, 강병욱, 김희강, 서울지역 여름철과 겨울철 산성 오염물질의 농도특성에 대한 연구(1999), 한국대기환경학회지, 15(2), 113-120.
  20. 전병일, 황용식, 이혁우, 양아름, 김현정, 설재환, 강영진, 김택훈, 장현석 (2005) 2004년 부산지역 미세먼지( $PM_{10}$ ,  $PM_{2.5}$ )중의 금속 농도 특성, Jour. Korean Earth Society, 26(6), 573-583.
  21. 전영신, 김지영, 최재천, 신도식 (2009) 황사시 서울과 안면도의 대기 중 에어로졸 수농도 특성, 한국대기환경학회지 15(5), 575-586.
  22. 전해리, 최수현, 임지영, 박희진, 홍은주, 손부순 (2012) 대기중  $PM_{2.5}$  중금속 성분의 화학적 특성, 한국환경보건학회지, 39(3), 233-240.
  23. 제현국 (2010) 국내외 라돈정책 및 라돈산업의 현황, 한국지구시스템공학회지 47(3), 400-405.
  24. 진형아, 이주형, 이경미, 이향경, 김보은, 이동원, 홍유덕 (2012) 국내 배출원별  $PM_{2.5}$  배출량 산정 및 배출 기여도 분석, 한국대기환경학회지, 28(2), 211-221.

25. 최임조, 신승호, 조완근 (2009) 다중 이용 건물 또는 지하 실내 공간의 용도에 따른 라돈 오염도 비교와 지하 공간의 시간대별 라돈 농도 변화, 환경독성보건학회지, 24(3), 203-211.
26. 차준석, 김상균, 박일수, 이동원, 이재범, 최원준, 이용희, 최진수, 이재선, 최철우 (2006) 동북아대기오염 감시체계 구축 및 환경보전협력사업Ⅶ, 국립환경과학원 보고서.
27. 현동립 (2014) 국내 배경지역 대기 미세먼지의 기상현상별 화학조성 비교: 2012-2013년 측정, 제주대학교 대학원, 석사학위 논문.
28. 한진석, 김영미, 안준영, 공부주, 최진수, 이상욱, 이석조 (2005) 장거리이동 대기오염물질 이동량의 공간적 분포와 변화 추이 (1997~2004), 한국대기환경학회지, 22(1), 99-106.
29. 한진석, 홍유덕, 이영재, 김록호, 이종현 (2006) 고농도 오존발생시 오존전구 물질 및 기상인자 연구, 국립환경과학원 보고서.
30. 환경부 대기환경연보 (2007, 2010).
31. 한충훈, 박연현, 박재우 (2017) 액체섬광계수기의 파형분석법을 이용한 염지하수 중 라돈 분석법 연구, 한국연구재단 중점연구사업(NRF-2010-0020077).
32. Adams, P. J., J. H. Seinfeld, D. Koch, L. Mickley, and D. Jacob (2001) General circulation model assessment of direct radiative forcing by the sulphatenitrate -ammonium-water inorganic aerosol system, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 106, 1097-1111.
33. Akimoto, H., H. Mukai, M. Nishikawa, K. Murano, S. Hatakeyama, C. M. Liu, M. Buhr, K. J. Hsu, D. A. Jaffe, L. Zhang, R. Honrath, J. T. Merrill, R. E. Newell (1996) Long rang transport of ozone in the East Asian Pacific rim region, *Journal of Geophysical Research* 101(D1), 1999-2010.
34. Akimoto, H., T. Ohara, J. I Kurokawa, N. Horii (2006) Verification of energy consumption in China during 1996-2003 by using satellite observational data, *Atmospheric Environment* 40(40), 7663 - 7667.
35. Allen, A. G., E. Nemitz, J. P Shi, R. M. Harrison, and J. C.

- Greenwood(2001) Size distributions of trace metals in atmospheric aerosols in the United Kingdom, *Atmospheric Environment* 35(27), 4581-4591.
36. Almeida R. M., D.C. Lauria, A. C. Ferreira, O. Sracek (2004) Groundwater radon, radium and uranium concentrations in Região dos Lagos, Rio de Janeiro State, Brazil, *Journal of Environmental Radioactivity*, 73(3), 323-334.
37. Bates, T. S., D. J. Coffman, D.S. Covert, and P.Q. Patricia (2002) Regional marine boundary layer aerosol size distributions in the Indian, Atlantic, and Pacific Oceans; A comparison of InDoEX measurements with ACE-1, ACE-2 and Aerosols 99, *Journal of Geophysical Research*, 107(D19), 8,026.
38. Bem, H., M. Gallorini, E. Rizzio, and M. Krzeminska (2003) Comparative studies on the concentrations of some elements in the urban air particulate matter in Lodz City of Poland and in Milan, Italy, *Environment International*, 29, 423-428.
39. Chambers, S., W. Zahorowski, K. Matsumoto, and M. Uematsu (2009) Seasonal variability of radon-derived fetch regions for Sado Island, Japan, based on 3 years of observations: 2002-2004, *Atmospheric Environment*, 43(2), 271-279.
40. Chambers, S. D., C. H. Kang, A. G. Williams, J. Crawford, A. D. Griffiths, K. H. Kim, W. H. Kim (2016) Improving the representation of cross-boundary transport of anthropogenic pollution in Southeast Asia using Radon-222, *Aerosol and Air Quality Research*, 16(4): 958-976.
41. Chan, S. W., C. W. Lee, and K. C. Tsui (2010) Atmospheric radon in Hong Kong, *Journal of Environmental Radioactivity*, 101(6), 494-503.
42. Cho, B. W., Choo, C. O., Kim, M. S., Lee, Y. J., Yoon, U., and Lee, B. D., (2011) Uranium and Radon Concentrations in Groundwater near the Icheon Granite, *The Journal of Engineering Geology*, 21(3), p.259-269.
43. Cho1, B. W., Sung I. H., Cho1, S. Y., Park, S. K., (2007) A Preliminary

- Investigation of Radon Concentrations in Groundwater of South Korea, *Journal of KoSSGE*, 129(5), p.98-104.
44. Choi, I. C., S. H. Shin, and W. K. Jo (2009) Evaluation of Radon Levels in Various Public-access Buildings or Underground Facilities, and Their Temporal Variation in Underground Facilities, *Journal of Environmental Toxicology*, 24(3), 203-211. (in Korean with English abstract)
45. Choi, Y. N. (2006) Comparison of metal contents in respirable particulate mass by particle size and season in Seoul and Asan City. [dissertation]. [Asan]: Soon-chunhyang University.
46. C .M. Lenerer and V. S. Shirley, (1978) Table of Isotopes, 7th Ed., Wiley, New York.
47. Donaldson, K., and W. MacNee (2001) Potential mechanisms of adverse pulmonary and cardiovascular effects of particulate air pollution (PM<sub>10</sub>), *International Journal of Hygiene and Environmental Health*, 203, 411-415.
48. Draxler, R. R. and G. D. Rolph (2013) HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website, ([http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT\\_traj.php](http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT_traj.php)).
49. Egidi, P (1997) Introduction to naturally occurring radioactive material, 42nd Annual Meeting of the Health Physics Society, p. 48.
50. Fang, G. C., Y. S. Wu, S. H. Huang and J.Y. Rau (2005) Review of atmospheric metallic elements in Asia during 2000-2004, *Atmospheric Environment*, 39, 3003-3013.
51. Garg, B. D., S. H. Cadle, P. A. Mulawa, P. J. Groblicki, C. Laroo, and G.A. Parr (2000) Brake wear particulate matter emissions. *Environmental Science and Technology*, 34, 4463-4469.
52. Goyer, R. A. (1991) "Toxic Effects of Mealtals" 4nd ed, Pergamon Press Inc., New York U.S.A., 623-631.

53. Huebert, B. J., T. Bates, P.B. Russell, G. Shi, Y. J. Kim, K. Kawamura, G. Carmichael, T. Nakajima (2003) An overview of ACE-Asia: Strategies for quantifying the relationships between Asian aerosols and their climatic impacts, *Journal of Geophysical Research*, 108(D23), 8,633.
54. Jamil, K., K. K. Al-Ahmady, Fazal-ju-Rehman, S. Ali, A. A. Qureshi, H. A. Kahn (1997) Relative performance of different types of passive dosimeters employing solid state nuclear track detectors, *Health Physics*, 73(4), 629-632.
55. Kang, C. H., W. H. Kim, C. G. Hu, and D. H. Kang (2012) Real-time monitoring of radon background level at Gosan site, Jeju Island, *Journal of Analytical Science & Technology*, 25(1), 7-13. (in Korean with English abstract)
56. Kendall G.M., Smith T.J., (2002) Doses to organs and tissues from radon and its decay products, *J Radiol Prot.* 22(4), 389-406.
57. Kim, E. H., P. S. Kim, C. Y. Kim, K. S. Lee, and K. D. Kwon (1985) Determination of the Mixing Height in Seoul by the Radioactivity Measurement of Radon in Air, *Bulletin of Environmental Sciences (Research Institute for Environmental Sciences Hanyang University)*, 6(2), 129-136.
58. Kim, Y. S., C. M. Lee, K. Y. Kim, H. J. Jeon, J. C. Kim, and T. Iida (2007) Time Series Observations of Atmospheric Radon Concentration in Seoul, Korea for an Analysis of Long-Range Transportation of Air Pollutants in the North-East Asia, *Korean Journal of Environmental Health Sciences*, 33(4), 283-292. (in Korean with English abstract)
59. Kumar, D., and Jugdutt B. I. (2003) Apoptosis and oxidants in the heart, *Journal of Laboratory and Clinical Medicine*, 142, 288-297.
60. Masiol, M., S. Squizzato, D. Ceccato, G. Rampazzo, and B. Pavoni (2012) Determining the influence of different atmospheric circulation patterns on PM<sub>10</sub> chemical composition in a source apportionment study, *Atmospheric*

*environment*, 63, 117-124.

61. McMurry, P., M. Shepherd, and J. Vickery (2004) Particulate Matter Science for Policy Makers; a NARSTO Assessment (Chapter 3), *Cambridge University Press*, U .K.
62. Miles, J. (1988) Development of maps of radon-prone areas using radon measurements in houses, *Journal of Hazardous Materials*, 61, 53-58.
63. Ministry of Environment (2007) Comprehensive Countermeasures for Indoor Radon Control (2007~2012); Safe Maintenance of Indoor Environment from Radon. (accessed on Aug., 2007)
64. Moon, K. H., J. S. Kim, J. K. Ahn, H. C. Kim, and H. M. Lee (2009) Long-term Variation of Radon in Granitic Residual Soil at Mt. Guemjeong in Busan, Korea, *Jour. Petrol. Soc. Korea*, 18(4), 279-291.
65. MST (Ministry of Science & Technology) (2007) Assessment of Radiation Risk for the Korean Population, KINS/GR-355, 185 pp. (accessed on Feb., 2007)
66. NARSTO (2003) Particulate Matter Science for Policy Makers. A NARSTO Assessment, EPRI 1007735, <http://www.cgenv.com/Narsto/> (accessed in May 2003).
67. NCRP (National Council on Radiation Protection and Measurements), Ionizing radiation exposure of the population of the United States, NCRP report no. 93, Bethesda, Maryland (1987).
68. NIER (National Institute of Environmental Research) (2009) Investigation for Nationwide Actual Indoor Radon: Research Report of Public Facilities. (accessed on Feb., 2009)
69. NIER (2016) Annual Report of Air Quality in Korea, 2015. NIER-GP2016-122.
70. NRC (National REsearch Council) (2000) Health risk of radon and other internally deposited alpha emitters, report of the Committee on UNSCEAR.

Sources and Effects of Ionizing Radiation. UNSCEAR 2000 Report.

71. Oravisjarvi, K., K. L. Timonen, T. Wiikinkoski, A. R. Ruuskanen, K. Heinanen and J. Ruuskanen, (2003) Source contributions to PM<sub>2.5</sub> particles in the urban air of a town situated close to a steel works, *Atmospheric Environment*, 37(8), 1013-1022.
72. Pitari, G., E. Coppari, N. De Luca, and P. Di Carlo (2014) Observations and box model analysis of radon-222 in the atmospheric surface layer at L'Aquila, Italy: March 2009 case study, *Environmental Earth Sciences*, 71(5).
73. Perkins. R.W. and J.M. Nielsen, (1965) *Health Phys*, 11, 1297.
74. Pey, J., X. Querol, and A. Alastuey (2010) Discriminating the regional and urban contributions in the North-Western Mediterranean: PM levels and composition, *Atmospheric Environment*, 44(13), 1587-1596.
75. Richter, A., J. P. Burrows, H. Nub, C. Granier, and U. Niemeier (2005) Increase in tropospheric nitrogen dioxide levels over China observed from space, *Nature*, 437, 129-132.
76. Salma, I., W. Maenhaut, E. Zemplén-Papp and G. Zaray (2001) Comprehensive characterization of atmospheric aerosols in Budapest, Hungary: physicochemical properties of inorganic species, *Atmospheric Environment*, 35, 4367 - 4378.
77. Sesana, L., E. Caprioli, G.M. Marazzan (2003) Long Period study of outdoor radon concentration in Milan and correlation between its temporal variations and dispersion properties of atmosphere, *Journal of Environmental Radioactivity*, 65(2), 147-160.
78. Song, J. M., J. O. Bu, W. H. Kim, C. H. Kang, H. J. Ko, and S. Chambers (2017) Background Level and Time Series Variation of Atmospheric Radon Concentrations at Gosan Site in Jeju Island, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(2), 174-183.
79. Song, J. M., K. J. Kim, J. O. Bu, W. H. Kim, C. H. Kang and S.

- Chambers (2018) Concentration Variation of Atmospheric Radon and Gaseous Pollutants Relation to Airflow Transport Pathways during 2010–2015, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(2), 321–330.
80. Song, J. M., J. O. Bu, W. H. Kim, H. J. Ko and C. H. Kang (2016) Composition and emission characteristics of fine particulate matters at the 1100 Site of Mt. Halla during 2011–2012, *Analytical Science & Technology* 29(5), 209–218.
81. Sirois. A. and W. Fricke (1992) Regionally representative daily air concentration of acid-related substances in Canada, *Atmospheric Environment*, 26A(4), 593–607.
82. Streets, D. G., N. Y. Tsai, H. Akimoto, K. Oka (2000) Sulfur dioxide emissions in Asia in the Period 1985–1997, *Atmospheric Environment* 34(26), 4,413–4,424.
83. Tu, F.H., D.C. Thornton, A.R. Bandy, M.S Kim, G.R. Carmichael, Y. Tang, L. Thornhill, and G. Sachse (2003) Dynamics and transport of sulfur dioxide over the Yellow Sea during TRACE-P, *Journal of Geophysical Research*, 108(D20), 8,790.
84. Van der A, R. J., H. J. Eskes, K. F. Boersma, T. P. C. van Noije, M. Van Roozendaal, I. De Smedt, D. H. M. U. Peters, and E. W. Meijer (2008) Trends, seasonal variability and dominant NO<sub>x</sub> source derived from a ten year record of NO<sub>2</sub> measured from space, *J. Geophys. Res.*, 113, D04302.
85. U.S. EPA (Environmental Protection Agency) (2003) EPA Assessment of Risks from Radon in Homes, EPA 402-R-03-003.
86. US EPA (2006) Consumer's Guide To Radon Reduction, US EPA 402-K-06-094.
87. US EPA (2007) A Citizen's Guide to Radon, US EPA 402-K-07-009.
88. US EPA (2009) A Citizen's Guide to Radon, US EPA 402-K-09-001.

89. Warneck, P. (1988) Chemistry of the Natural Atmosphere, Academic Press, New York, 426-441.
90. Wang, J., Z. Hu, Y. Chen, Z. Chen, and S. Xu (2013) Contamination characteristics and possible sources of PM10 and PM2.5 in different functional areas of Shanghai, China, *Atmos. Environ.*, 68, 221-229.
91. Whittlestone, S., and W. Zahorowski (1998) Baseline radon detectors for shipboard use: Development and deployment in the First Aerosol Characterization Experiment (ACE 1), *Journal of Geophysical Research*, 103(D13), 16,743-16,751.
92. WMO/GAW (2001) Global Atmosphere Watch Measurements Guide (No. 143), WMO TD No. 1073.
93. WMO/GAW (2004) 1st International Expert Meeting on Sources and Measurements of Natural Radionuclides Applied to Climate and Air Quality Studies (No. 155), WMO TD No. 1201.
94. Yao, X., C. K. Chan, M. Fang, S. Cadle, T. Chan, P. Mulawa, K. He, and B. Ye (2002) The water-soluble ionic composition of PM2.5 in Shanghai and Beijing, China, *Atmos. Environ.*, 36, 4223-4234.
95. Yoshioka, K. (2000) The special feature of diffusion transport the atmospheric boundary layer Using <sup>222</sup>Rn concentration of Oki Island in Japan Sea, *Proceedings of IRPA-10*, 1-10.
96. Zahorowski, W., S.D. Chambers, and A. Henderson-Sellers (2004) Ground based radon-222 observations and their application to atmospheric studies, *Journal of Environmental Radioactivity*, 76(1-2), 3-33.
97. Zahorowski, W., S. Chambers, T. Wang, C. H. Kang, I. Uno, S. Poon, S. N. Oh, S. Werczynski, J. Kim, and A. Henderson-Sellers (2005) Radon-222 in boundary layer and free tropospheric continental outflow events at three ACE-Asia sites, *Tellus*, 57(2), 124-140.
98. Zoran, M. A., M. R. Dida, A.T. Zoran, L. F. Zoran, and A. Dida (2013)

Outdoor  $^{222}\text{Rn}$  concentrations monitoring in relation with particulate matter levels and possible health effects, *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry*, 296(3), 1179-1192.

99. Zock C., Porstendörfer J. and Reineking A. (1996) The Influence of Biological and Aerosol Parameters of Inhaled Short-lived Radon Decay Products on Human Lung Dose, *Radiation Protection Dosimetry*, 63(3), 197-206.

