



대기 라돈 및 기체상 오염물질의 기류 이동경로별 농도변화: 2010 ~ 2015년 측정

Concentration Variation of Atmospheric Radon and Gaseous Pollutants Related to the Airflow Transport Pathways during 2010 ~ 2015

송정민 · 김기주 · 부준오 · 김원형 · 강창희* · S. Chambers¹⁾

제주대학교 화학 · 코스메틱스학과, ¹⁾호주핵과학기술기구

(2018년 3월 5일 접수, 2018년 3월 20일 수정, 2018년 3월 22일 채택)

Jung-Min Song, Ki-Ju Kim, Jun-Oh Bu, Won-Hyung Kim,
Chang-Hee Kang* and S. Chambers¹⁾

Department of Chemistry and Cosmetics, Jeju National University

¹⁾*Australian Nuclear Science and Technology Organisation*

(Received 5 March 2018, revised 20 March 2018, accepted 22 March 2018)

Abstract

Concentrations of the atmospheric radon and gaseous pollutants were measured at the Gosan site on Jeju Island from 2010 to 2015, in order to observe their time-series variation characteristics and examine the concentration change related to the airflow transport pathways. Based on the realtime monitoring of the atmospheric radon and gaseous pollutants, the daily mean concentrations of radon (^{222}Rn) and gaseous pollutants (SO_2 , CO , O_3 , NO_x) were $2,400 \text{ mBq m}^{-3}$ and 1.3, 377.6, 41.1, 3.9 ppb, respectively. On monthly variations of radon, the mean concentration in October was the highest as $3,033 \text{ mBq m}^{-3}$, almost twice as that in July ($1,452 \text{ mBq m}^{-3}$). The diurnal variation of radon concentration shows bimodal curves at early morning (around 7 a.m.) and near midnight, whereas its lowest concentration was recorded at around 3 p.m. Several gaseous pollutants (SO_2 , CO , NO_x) showed a similar seasonal variation with radon concentration as high in winter and low in summer, whereas the O_3 concentrations had a bit different seasonal trend. According to the cluster back trajectory analysis, the frequencies of airflow pathways moving from continental North China, East China, Japan and the East Sea, the Korean Peninsula, and North Pacific Ocean routes were 36, 37, 10, 13, and 4%, respectively. When the airflow were moved to Jeju Island from continental China, the concentrations of radon and gaseous pollutants were relatively high. On the other hand, when the airflows were moved from North Pacific Ocean and East Sea, their concentrations were much lower than those from continental China.

Key words : Radon, Gaseous pollutant, Gosan site, Cluster back-trajectory, Airflow transport

*Corresponding author.

Tel : +82-(0)64-754-3545, E-mail : changhee@jejunu.ac.kr

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}Rn), 토론(^{220}Rn), 악티논(^{219}Rn) 등이 있고, 이 중 ^{222}Rn 에 의한 피해가 가장 크게 나타나고 있다. 토론은 토륨(^{232}Th)의 붕괴에 의해 생성되며 반감기가 54.5초로 짧다. 악티논 역시 우라늄(^{235}U)의 붕괴에 의해 생성되고 반감기가 3.9초로 매우 짧아서 이들 두 성분의 대기 농도는 아주 낮다. 이와 달리 라돈은 우라늄(^{238}U)의 붕괴 과정에서 생겨난 라듐(^{226}Ra)의 α -붕괴로 생성되며 상대적으로 긴 반감기(3.82일)를 갖는다(Whittlestone and Zahorowski, 1998). 그리고 다른 동위원소들에 비해 가장 널리 분포하는 대표적인 자연방사능 물질로 4번의 α -붕괴와 4번의 β -붕괴를 거쳐 최종적으로 ^{206}Pb 으로 안정화된다(Moon *et al.*, 2009; WMO/GAW, 2004).

라돈에 의한 피폭은 자체보다는 주로 라돈 자핵종인 ^{218}Po , ^{214}Po 의 α -붕괴에 의해 발생하며, 방사선에 장기간 노출 시 폐 조직이 손상되어 폐암을 유발하는 것으로 알려져 있다. 또 라돈 붕괴 과정에서 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 붕괴 과정에서 α -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).

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

2004). 2007년 한국원자력안전기술원에서 국민 방사선 위험도 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).

그러나 국내의 라돈 관리와 감시는 주로 실내나 지하 공간을 대상으로 이루어지고 있고, 아직까지 대기 중의 극미량 라돈을 모니터링하고 감시하기 위한 연구는 거의 이루어지지 못하고 있다. 라돈은 공기보다 9배나 무거워서 지표면에 가까울수록 더 높은 농도를 보이고 용이하게 인체로 흡입되어 위해성을 나타낸다(NIER, 2009; MOE, 2007). 또 대기 중에서는 비교적 낮은 농도로 검출되나 화학적으로 불활성인 기체 물질이라서 넓게 확산되는 이동 특성을 보인다. 이러한 확산성을 기초로 최근에는 라돈을 오염물질 수송 추적자로 활용하기 위한 연구가 이루어지고 있다. ^{222}Rn 의 반감기는 3.82일 정도로 주요 대기오염물질(NO_x , SO_2 , CO , O_3 등)과 비슷한 수명을 나타낸다(Zahorowski *et al.*, 2004). 또 물에 용해되지 않고 습도, 온도, 일사량에도 안정한 불활성 물질이라서 에어로졸이나 가스상 오염물질의 장거리 수송 과정을 파악하는 데 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 라돈 농도는 실내나 지하 공간에 비해 낮기 때문에 아주 고감도의 검출기를 필요로 한다. 호주핵과학기술기구(ANSTO, Australian Nuclear Science and Technology Organisation)에서는 고감도 라돈 검출기를 자체적으로 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 모니터링해 오고 있다. 최근에는 남극의 세종기지와 장보고기지에도 고감도 라돈검출기를 설치하여 측정시스템을 운영하고 있다.

본 연구에서는 국내 배경지역인 제주도 고산측정소에서 2010~2015년에 측정된 대기 라돈 농도를 기초

로 라돈의 시계열 변화 특성을 조사하였다. 그리고 이 결과를 환경부가 동일 지역에서 측정한 기체상 오염물질의 농도변화와 상호 비교하였다. 또 기류 유입경로별로 라돈과 기체상 오염물질의 농도변화를 연계시켜 비교함으로써 라돈을 오염물질 장거리 이동 추적자로 활용하기 위한 가능성을 검토하고자 하였다.

2. 연구 방법

2.1 라돈 및 기체상 오염물질 측정

대기 라돈은 2010년 1월부터 2015년 12월까지 국내 배경지역인 제주도 고산측정소(33.17°N, 126.10°E)에서 측정하였다. 라돈 농도는 호주핵과학기술기구(ANSTO, Australian Nuclear Science and Technology Organisation)에서 자체적으로 설계, 제작한 고감도 라돈검출기(모델 D1500, 1500 L dual flow loop, two filter radon detector)를 사용하여 30분 간격으로 실시간 측정하였다. 공기 흡입구는 지상 10 m 높이로 설치한 직경 50 mm HDPE(high density polyethylene) 파이프를 사용하여 공기를 흡입하였고, 공기 유속은 약 60 L min^{-1} 이 되도록 조절하였다(그림 1). 라돈검출기는 흡입 공기가 필터를 거친 후 셀 내로 유입된 라돈 또는 셀 내부에서 생성된 라돈 자핵종에서 방출된 알파입자를 측정하는 방식이다. 알파입자가 ZnS(Ag)와 반응하여 섬광

을 발생하고 이를 광전증배관으로 검출하여 계수하도록 설계되어 있으며, 검출한계는 약 $25 \sim 30 \text{ mBq m}^{-3}$ 이다(Whittlestone and Zahorowski, 1998). 데이터 검정은 월 1회 주기로 5시간 동안 실시하였으며, 검정용 표준 물질은 ^{226}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 농도를 24시간 동안 측정하여 결정하였다. 이때 바탕값은 검출기의 2차 필터에 포집된 ^{210}Pb (반감기 22.3 년) 등과 같은 라돈 자핵종의 양에 따라 시간이 경과됨에 따라 서서히 상승하는 경향을 보였다.

기체상 오염물질(NO_x , SO_2 , CO , O_3) 농도는 환경부 국립환경과학원이 2010년 1월부터 2015년 12월까지 제주도 고산측정소에서 측정한 데이터를 이용하였다. 대기 농도는 미국 Thermo Environmental Instruments Inc.에서 제작한 NO_x analyzer, SO_2 analyzer, CO analyzer, O_3 analyzer 각각을 사용하여 측정하였다. NO_x 는 화학발광법(chemiluminescence), SO_2 는 자외선 형광분광법(UV fluorescence)으로 측정하였고, CO 는 비분산 적외선분광법(ND-IR), O_3 은 자외선광도법(UV photometric method)으로 측정하였다. 이러한 방법으로 국립환경과학원에서 측정한 데이터를 정보공개시스템(<https://www.nier.go.kr/NIER/index.jsp>, <https://www.open.go.kr/>)에서 제공 받아 이용하였다(NIER, 2016).

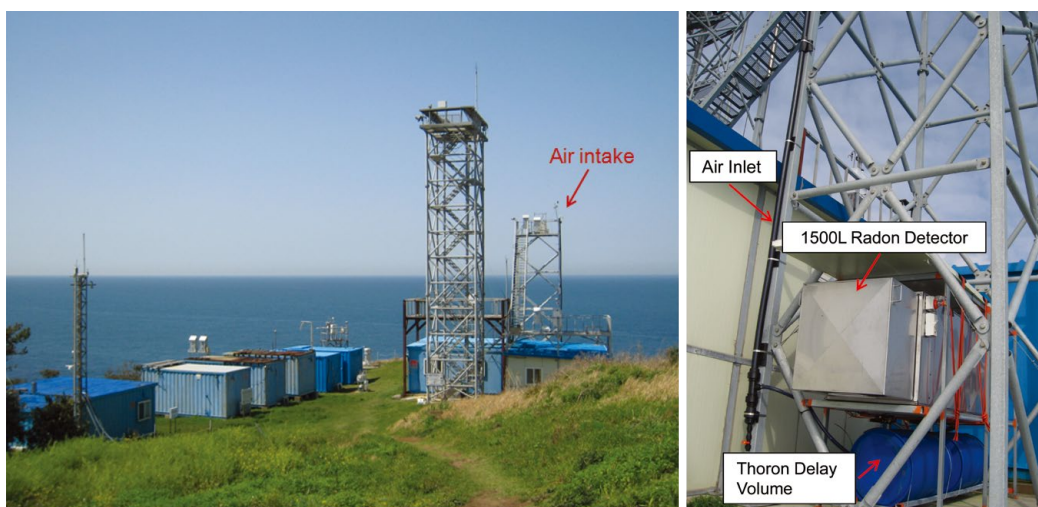


Fig. 1. Overview of the Gosan station and installation of the radon detector (ANSTO, Model D1500).

2.2 역궤적 분석

대기 라돈 및 대기오염물질의 유입 및 이동경로 추적을 위한 역궤적 분석은 출발점 고도를 72 m로 설정하였고, 출발 시간은 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). 그리고 역궤적 분석은 제주도 고산지역 (33°17'N, 126°10'E)을 도착지점으로 120 시간의 역궤적 경로를 모사하였고, 역궤적 분석 결과를 기초로 궤적군집분석을 실시하여 기류의 유입경로를 군집화하였다. 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).

3. 결과 및 고찰

3.1 고산지역 라돈 농도

제주도 고산지역에서 2010~2015년에 걸쳐 6년 동안 라돈 농도를 실시간으로 측정하였고, 연도별 평균농도를 표 1에 나타내었다. 제주도 고산지역의 전체 라돈 평균농도는 $2,394 \pm 1,236 \text{ mBq m}^{-3}$ (0.066 pCi/L)로 매우 낮게 나타났다. 이 농도는 2013년 11월~2014년 3월에 측정한 우리나라 실내 평균농도 106.4 Bq m^{-3} (2.9 pCi/L)에 비해 대략 44.4배 낮은 수준이다. 또 동일기간 제주지역의 실내 라돈 농도 88.4 Bq m^{-3} (2.4 pCi/L)에 비해서도 36.9배 낮은 수준을 보이고 있다 (Lee *et al.*, 2016).

Table 1. Statistic summary (yearly means, standard deviation, and distribution) of hourly radon concentrations (mBq m^{-3}) measured at Gosan site between 2010 and 2015.

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	4,291	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
Mean	2,394	1,236	3,999	3,119	1,546	914

al., 2016). 고산지역의 연도별 대기 라돈 농도는 2015년 > 2011년 > 2010년 > 2012년 > 2013년 > 2014년 순으로 2015년에 $2,555 \text{ mBq m}^{-3}$ 로 가장 높고, 상대적으로 낮은 농도를 나타낸 2014년 ($2,178 \text{ mBq m}^{-3}$)에 비해 1.3배 정도의 차이를 나타내었다.

국내의 경우 라돈 데이터는 대부분 실내와 지하 공간을 중심으로 측정되고 있고, 대기 농도 측정 결과는 거의 발표되어 있지 않다. 따라서 이를 Kim *et al.* (2007)이 1999년 12월부터 2002년 1월에 능동형 Electrostatic Radon Monitor를 사용하여 서울 성동구에서 측정한 결과와 비교하였다. 이 시기의 서울지역 라돈 농도는 $7,620 \pm 4,110 \text{ mBq m}^{-3}$ 로 고산지역에 비해 3.1배 높은 수준을 보이고 있다. 또한 외국 청정지역과의 농도를 비교한 결과에서는 고산지역의 라돈 농도가 하와이 Mauna Loa에 비해 24.3배 정도 크게 높은 수준을 보였다. 그러나 홍콩 Hok Tsui보다는 약 2.3배 낮은 농도를 보였다 (Chambers *et al.*, 2009; Zaborowski *et al.*, 2005). 고산지역이 하와이 Mauna Loa에 비해 훨씬 더 높은 농도를 나타내는 것은 하와이 Mauna Loa 관측소의 위치가 고도 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 남부 수도인 Bucharest 지역에 비해 고산지역의 라돈 농도는 각각 3.8, 3.9, 18.1배 더 낮은 배경지역의 특성을 나타내고 있는 것으로 조사되었다 (Pitari *et al.*, 2014; Zoran *et al.*, 2013; Chan *et al.*, 2010).

3.2 라돈 농도 시계열 특성

3.2.1 월별 및 계절별 농도 변화

2010~2015년에 측정한 라돈 농도를 월별로 비교한 결과를 그림 2에 나타내었다. 그림에서 농도는 시간별 농도를 월별로 평균한 값으로 고농도와 저농도 시의 추세 변화를 확인하기 위하여 중앙값과 90, 75, 25, 10 분위수 농도를 동시에 비교한 결과이다. 측정기간의 월별 라돈 농도는 Oct > Nov > Jan > Dec > Feb > Sep

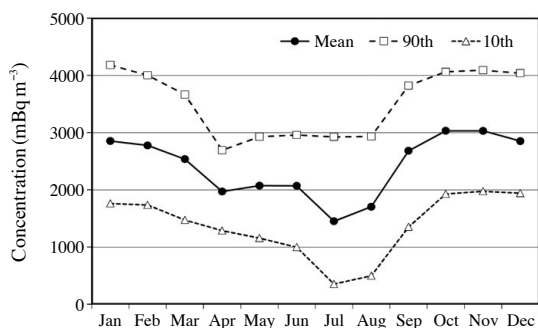


Fig. 2. Composite monthly mean and distributions of daily-mean radon at Gosan site between 2010 and 2015.

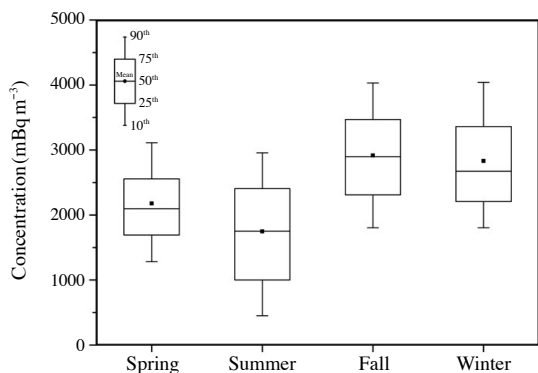


Fig. 3. Box and whisker plot of the radon concentrations by season.

> Mar > May > Jun > Apr > Aug > Jul의 순으로 10월에 3,033 mBq m⁻³로 가장 높고, 7월에 1,452 mBq m⁻³로 가장 낮았다. 이러한 경향은 2001~2007년에 고산 측정소에서 다른 ANSTO 라돈검출기(모델 D750)를 사용하여 측정한 결과와 비슷한 변화 패턴을 보였다(Kang *et al.*, 2012). 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 2,915 mBq m⁻³로 가장 높았고, 다음으로 겨울 2,832 mBq m⁻³, 봄 2,179 mBq m⁻³, 여름 1,748 mBq m⁻³ 순으로 높았다(그림 3). 이처럼 계절별 라돈 농도가 차이를 보이는 것은

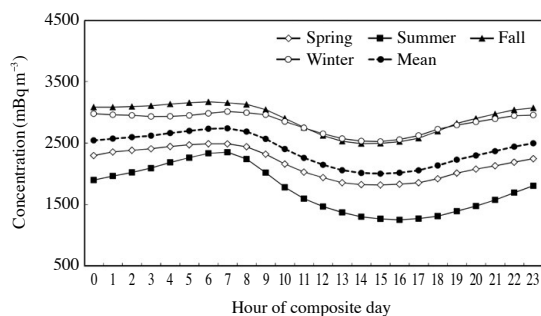


Fig. 4. Diurnal variations of hourly mean radon concentrations by season.

북서계열 풍향이 주류를 이루는 가을과 겨울철에 대기 질이 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 라돈 농도는 이러한 혼합고의 높이에 반비례하여 겨울과 가을이 더 높은 농도를 보이고 봄과 여름철에는 낮은 농도를 유지하는 것으로 추정된다.

3.2.2 일간 농도 변화

연구 기간의 라돈 농도 일간 변화 및 계절별 일간 변화를 비교하였고, 그 결과를 그림 4에 나타내었다. 그림의 결과와 같이 라돈은 오전 7시에 2,741 mBq m⁻³로 하루 중 가장 높은 농도를 보였고, 오후 3시경에 2,006 mBq m⁻³로 가장 낮은 농도를 나타내었다. 라돈 농도의 일간 변화패턴을 비교해 보면, 아침 시간부터 서서히 농도가 낮아지기 시작하여 오후 3시경까지 감소하였고 다시 저녁 시간에 농도가 상승하여 밤에 점차로 농도가 높아지는 추세를 보였다. 이러한 변화패턴은 이탈리아 L'Aquila 지역에서 측정한 시간별 라돈 농도의 변화와도 유사한 경향을 보이고 있다(Pitari *et al.*, 2014). 라돈은 주로 암석, 토양에서 방출되는 자연방사성 물질로

Table 2. Concentrations of daily-mean radon and gaseous pollutants at Gosan site during 2010~2015.

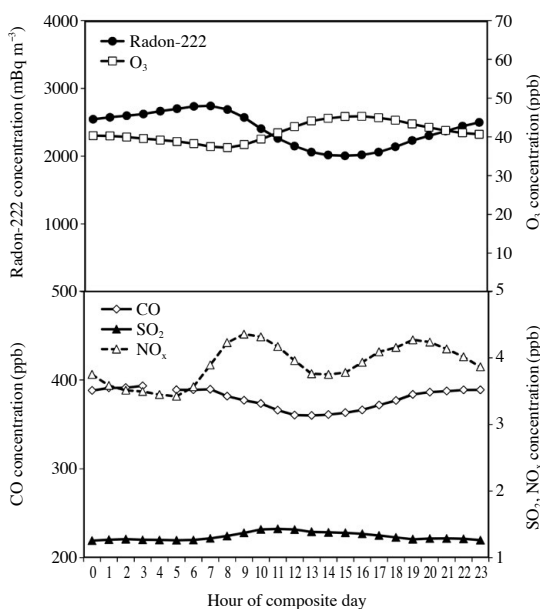
Species	Unit	Mean	S.D.	90th	75th	25th	10th
Radon	mBq m ⁻³	2,400.4	1,011.3	3,709.1	3,009.6	1,756.1	1,154.0
SO ₂	ppb	1.3	1.7	3.2	1.7	0.3	0.2
CO	ppb	377.6	330.9	859.1	439.6	187.0	122.7
O ₃	ppb	41.1	15.4	60.6	50.8	31.3	20.8
NO _x	ppb	3.9	1.9	6.2	4.8	2.6	1.9

방사선을 방출하면서 붕괴되기 때문에 물리적으로는 다소 불안정한 특성을 보인다. 그러나 화학적으로는 대기 중에서의 다른 물질과의 반응성이 낮아서 아주 안정한 물질이다. 따라서 라돈의 일간 변화는 대기 혼합고의 변동에 기인하는 것으로 추측된다. 또 혼합고 높이는 날씨가 맑을 때에는 낮은 오전이나 오후의 낮 동안에 가장 높아 대기 경계층까지 이르게 되고 이 높이가 이내의 대기오염물은 난류에 의해 균일하게 연직분포를 이루게 된다. 따라서 이때의 혼합고는 해당 혼합고 높이와 같아지게 된다. 그러나 밤이나 이른 아침에는 지표 가까이에서 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 농집되어 높은 농도를 보이는 것으로 추정된다. 이처럼 일간 라돈 농도는 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. 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).

3.3 라돈과 기체상 오염물질 농도 변화

²²²Rn 반감기는 3.82일 정도로 주요 반응기체(NO_x,

**Fig. 5. Diurnal variation of the hourly mean concentrations of radon and gaseous pollutants at Gosan site during 2010~2015.**

SO₂, CO, O₃ 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 가스상 오염물질의 장거리 수송 특성을 파악하기 위한 지시물질로 활용이 가능하다.

2010년부터 2015년까지 6년간 국립환경과학원에서 측정된 기체상 오염물질 SO₂, CO, O₃, NO_x 성분들의 1 시간 간격 농도(NIER, 2016)를 00 UTC 기준으로 정리하였고, 그 결과를 표 2에 수록하였다. 제주도 고산지역의 라돈, SO₂, CO, O₃, NO_x 성분들의 평균농도는 각각 2,400.4 mBq m⁻³, 1.3 ppb, 377.6 ppb, 41.1 ppb, 3.9 ppb이었다. 또한 라돈 및 기체상 오염물질의 일간 농

도변화를 그림 5에 비교하였다. 그림의 결과와 같이 라돈은 오전 시간대에 높은 농도를 보였고, 오후 시간대에 낮은 농도를 나타내었다. 그러나 O_3 은 오후 시간대에 농도가 가장 높고, 오전 시간대에 상대적으로 낮아서 라돈과는 서로 상반된 추세를 나타내었다. 이러한 일간 변화패턴은 이탈리아 L'Aquila 지역에서 측정된 시간별 라돈과 O_3 변화 추세와도 유사한 경향을 보이고 있다(Pitari *et al.*, 2014). 반면에 CO , SO_2 , NO_x 성분들은 대체적으로 오전 시간대에 높게 나타났으며, 라돈 변화와 유사한 패턴을 보이고 있는 것으로 조사되었다.

또한 6년간 라돈과 기체상 오염물질의 농도변화를 월별로 비교하였고, 그 결과를 그림 6에 나타내었다. 그림과 같이 측정기간의 월평균 라돈 농도는 가을에 농

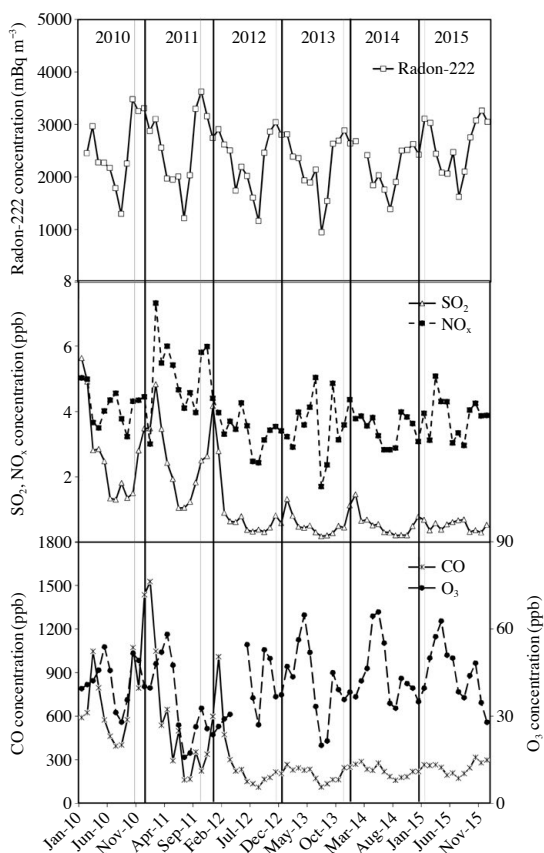


Fig. 6. Monthly variation of the daily mean concentrations of radon and gaseous pollutants during the study periods.

도가 서서히 증가하기 시작하여 겨울과 봄철에는 높았다가 여름철에는 낮아지는 추세를 반복적으로 보여주고 있다. 그리고 CO , SO_2 , NO_x 성분들 역시 부분적으로 다소 차이는 있지만 전체적으로는 라돈과 유사한 계절 변화 패턴을 보이는 것으로 조사되었다. 그러나 O_3 은 이와 반대로 봄과 여름철에 증가하고 가을과 겨울철에는 낮아지는 추세를 보이고 있다. 이처럼 라돈과 O_3 의 농도가 서로 역으로 변화하는 추세는 앞의 일간 변화에서도 확인할 수 있었으며, 월평균 농도변화 역시 일 변화와 유사하게 역으로 변화하는 패턴을 보이고 있다.

3.4 기류 유입경로별 농도 변화

라돈은 화학적으로 불활성이라서 대기 중에서 반응성이 없고, 물에 녹지 않기 때문에 빗물에 의한 세정효과도 낮다. 그리고 토양과 암반에서 천연우라늄의 붕괴에 의해 자연적으로 발생하기 때문에 해양 대기에서 보다 지표면 대기에서 3배 이상 높은 농도를 보인다. 또 기체상으로 존재하여 대기 중에서 기류를 타고 멀리 이동하는 확산 특성을 나타낸다. 따라서 지표면에서 발생하여 대기로 방출된 오염물질과 유사한 경로로 이동하고 이러한 특징을 이용하면 라돈을 대기오염물질 수송 추적자로 활용할 수 있고 최근에 이러한 연구들이 많이 이루어지고 있다(Zoran *et al.*, 2013; Zaborowski *et al.*, 2004). 특히 라돈의 대기 중 수명이 NO_x , SO_2 , CO , O_3 등과 비슷하고 에어로졸의 대기 체류시간과도 유사하기 때문에 이를 추적자로 활용하기 위한 검토가 필요해 보인다.

본 연구에서는 역궤적 분석을 통하여 라돈의 장거리 이동 경로를 추적하였다. 2010년 1월부터 2015년 12월까지 라돈 측정기간의 기류 이동을 역궤적 분석법으로 조사하였다. 미국 NOAA HYSPLIT 4.0 모델과 NCEP의 GDAS 기상 데이터를 이용하여 120시간으로 모사한 역궤적 군집분석 결과를 그림 7에 나타내었다. 역궤적 군집분석 결과를 기초로 제주도 고산지역으로 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 조사하였다. 이렇게 구분한 Cluster 1, Cluster 2, Cluster 3, Cluster 4, Cluster 5의 빈도는 각각 36% (738회), 37% (744회),

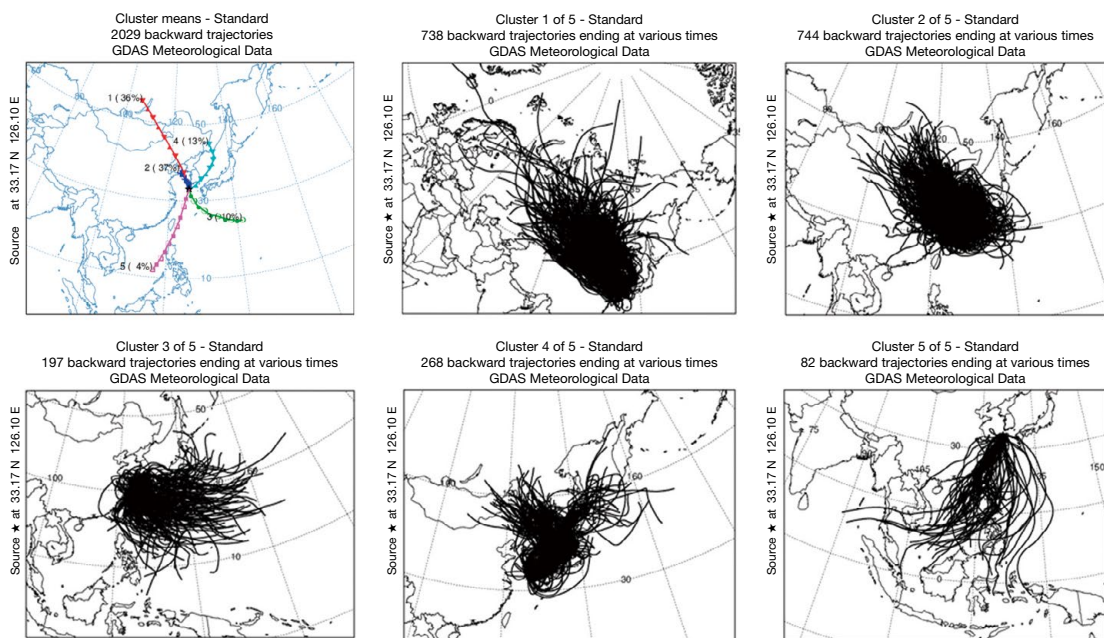


Fig. 7. Cluster back trajectories of airflow transport pathways corresponding to radon monitoring days at Gosan site during the study periods.

Table 3. Concentrations of radon and gaseous pollutants corresponding to cluster back trajectory analyses.

Pathway	Radon (mBq m ⁻³)	SO ₂ (ppb)	CO (ppb)	O ₃ (ppb)	NO _x (ppb)
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

10% (197회), 13% (268회), 4% (82회)이었다. 이처럼 2010~2015년의 측정기간(총 2,029일) 동안 대체적으로 기류가 중국대륙에서 제주지역으로 이동한 빈도가 가장 높았고, 다음으로는 한반도에서 이동한 기류의 빈도가 높은 경향을 보였다.

역궤적 군집분석에 기초하여 5개 군집별 라돈 및 대기오염물질 농도(SO₂, CO, O₃, NO_x)를 비교하였고, 그 결과를 표 3에 나타내었다. 표의 결과와 같이 라돈, SO₂, CO 성분들은 중국북부(Cluster 1)에서 기류가 유입될 때 농도가 각각 2,659.3 mBq m⁻³, 1.6 ppb, 462.0 ppb로 상대적으로 높은 결과를 나타내었다. 또한 O₃과 NO_x 성분은 중국 동부(Cluster 2)에서 기류가 유입될 때 농도가 각각 45.6 ppb, 4.3 ppb로 비교적 높은 것

로 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 대부분 낮은 농도를 나타내었다. 이러한 결과로 보아 제주지역의 대기질은 중국에서 이동하는 오염물질의 영향을 많이 받고 있음을 확인할 수 있었다.

4. 결 론

국내 배경지역인 제주도 고산지역에서 대기 라돈 및

기체상 오염물질을 모니터링한 결과로부터 이들의 시계열 변화특성을 조사하고 기류 유입경로별 농도변화를 비교하였다.

연구기간의 라돈 평균농도는 $2,394 \text{ mBq m}^{-3}$ 로 제주 지역이 실내 평균농도에 비해 44배 정도 낮은 수준을 보였다. 라돈의 시계열 변화는 계절별로 겨울과 가을에 높은 농도를 보이고 상대적으로 여름철에 가장 낮은 농도를 나타내었다. 월별로는 10월에 상대적으로 높고 7월에 가장 낮았으며 대략 2.3배의 차이를 보였다. 일간 변화는 야간에 높고 주간에 낮았으며 오전 7시경에 최대, 오후 3시경에 최소 농도를 보여 혼합고 농도에 따라 차이를 보였다.

기체상 오염물질의 SO_2 , CO , NO_x 의 월평균 농도는 각각 1.3, 377.6, 3.9 ppb이었고, 시계열 변화는 부분적인 차이는 있지만 대체적으로 라돈과 유사한 경향의 월변화 패턴을 나타내었다. 그러나 O_3 은 라돈과 반대 경향의 월변화 추세를 보였고, 특히 일간변화에서는 오후 시간에 농도가 높고 오전에 낮아 라돈과는 서로 상반된 변화를 나타내었다.

역궤적 군집분석법으로 라돈과 기체상 오염물질의 유입경로별 농도변화를 비교해 본 결과 기류가 중국대륙에서 제주로 이동했을 때 농도가 가장 높고, 다음으로 한반도에서 제주로 유입되었을 때 높은 농도를 나타내었다. 반면에 기류가 북태평양으로부터 유입되었을 때에 대부분 낮은 농도를 나타내어 제주지역 대기질이 중국의 오염 영향을 많이 받고 있음을 확인할 수 있었다. 또 이러한 역궤적 분석결과를 통해 라돈 모니터링 결과를 적절히 활용하여 오염물질 장거리 수송 추적자로 활용할 수 있을 것으로 추정된다.

감사의 글

이 연구는 기상청 기후변화 감시·예측 및 국가정책 지원 강화사업(KMIPA 2015-2050)의 지원으로 수행되었습니다. 국립환경과학원의 기체상 오염물질 실시간 측정자료 제공에 감사드립니다.

References

Almeida, R.M., Lauria, D.C., Ferreira, A.C., Sracek, O. (2004)

- Groundwater radon, radium and uranium concentrations in Região dos Lagos, Rio de Janeiro State, Brazil, *Journal of Environmental Radioactivity*, 73(3), 323-334.
- Chambers, S., Zaborowski, W., Matsumoto, K., Uematsu, M. (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.
- Chambers, S.D., Kang, C.H., Williams, A.G., Crawford, J., Griffiths, A.D., Kim, K.H., Kim, W.H. (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, doi: 10.4209/aaqr.2015.08.0522.
- Chan, S.W., Lee, C.W., Tsui, K.C. (2010) Atmospheric radon in Hong Kong, *Journal of Environmental Radioactivity*, 101(6), 494-503.
- Choi, I.C., Shin, S.H., Jo, W.K. (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)
- Draxler, R.R., Rolph, G.D. (2013) HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website, (http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT_traj.php).
- Duckworth, F.A., Sandberg, J.S. (1954) The effect on cities upon horizontal and vertical temperature gradients, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 35, 198-207.
- Kang, C.H., Kim, W.H., Hu, C.G., Kang, D.H. (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)
- Kim, E.H., Kim, P.S., Kim, C.Y., Lee, K.S., Kwon, K.D. (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.
- Kim, Y.S., Lee, C.M., Kim, K.Y., Jeon, H.J., Kim, J.C., Iida, T. (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)
- Lee, K., Seo, S., Yoo, J., Oh, S., Kwon, M., Lee, W. (2016) Factors influencing indoor radon concentration in detached house, *Journal of Odor Indoor Environment*, 15(2), 93-99. (in Korean with English abstract)
- Miles, J. (1988) Development of maps of radon-prone areas using radon measurements in houses, *Journal of Hazardous Materials*, 61, 53-58.
- Ministry of Environment (MOE) (2007) Comprehensive Countermeasures for Indoor Radon Control (2007-2012); Safe Maintenance of Indoor Environment from Radon (accessed on Aug., 2007).
- Ministry of Science & Technology (MST) (2007) Assessment of Radiation Risk for the Korean Population, KINS/GR-355, 185 pp. (accessed on Feb., 2007).
- Moon, K.H., Kim, J.S., Ahn, J.K., Kim, H.C., Lee, H.M. (2009) Long-term variation of radon in granitic residual soil at Mt. Guemjeong in Busan, Korea, *The Journal of the Petrological Society of Korea*, 18(4), 279-291.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2009) Investigation for Nationwide Actual Indoor Radon: Research Report of Public Facilities (accessed on Feb., 2009).
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2016) Annual Report of Air Quality in Korea, 2015. NIER-GP2016-122.
- National Research Council (NRC) (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.
- Pitari, G., Coppari, E., De Luca, N., Di Carlo, P. (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), 2353-2359.
- Song, J.M., Bu, J.O., Kim, W.H., Kang, C.H., Ko, H.J., Chambers, S. (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. (in Korean with English abstract)
- U.S. Environmental Protection Agency (US EPA) (2003) EPA Assessment of Risks from Radon in Homes, EPA 402-R-03-003.
- Whittlestone, S., Zahorowski, W. (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.
- World Meteorological Organization/Global Atmospheric Watch (WMO/GAW) (2001) Global Atmosphere Watch Measurements Guide (No. 143), WMO TD No. 1073.
- World Meteorological Organization/Global Atmospheric Watch (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.
- Zahorowski, W., Chambers, S.D., Henderson-Sellers, A. (2004) Ground based radon-222 observations and their application to atmospheric studies, *Journal of Environmental Radioactivity*, 76(1-2), 3-33.
- Zahorowski, W., Chambers, S., Wang, T., Kang, C.H., Uno, I., Poon, S., Oh, S.N., Werczynski, S., Kim, J., Henderson-Sellers, A. (2005) Radon-222 in boundary layer and free tropospheric continental outflow events at three ACE-Asia sites, *Tellus*, 57(2), 124-140.
- Zoran, M.A., Dida, M.R., Zoran, A.T., Zoran, L.F., Dida, A. (2013) Outdoor ²²²Radon concentrations monitoring in relation with particulate matter levels and possible health effects, *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry*, 296(3), 1179-1192.