

논문

2013~2016년 제주 PM_{2.5} 화학조성 변화 및 고농도 발생 특성 Characteristics of PM_{2.5} Chemical Composition and High-concentration Episodes Observed in Jeju from 2013 to 2016

김주애, 임세희, Xiaona Shang, 이미혜*, 강경식¹⁾, 김영성²⁾

고려대학교 지구환경과학과, ¹⁾국립환경과학원 기후대기연구부 대기환경연구과

²⁾한국외국어대학교 환경학과

접수일 2020년 4월 15일

수정일 2020년 6월 1일

채택일 2020년 6월 15일

Received 15 April 2020

Revised 1 June 2020

Accepted 15 June 2020

*Corresponding author

Tel : +82-(0)2-3290-3178

E-mail : meehye@korea.ac.kr

Joo-Ae Kim, Saehee Lim, Xiaona Shang, Meehye Lee*,
Kyeong-Sik Kang¹⁾, Young Sung Ghim²⁾

Department of Earth and Environmental Sciences, Korea University, Seoul, Republic of Korea

¹⁾Air Quality Research Division, National Institute of Environmental Research, Incheon, Republic of Korea

²⁾Department of Environmental Science, Hankuk University of Foreign Studies, Yongin, Republic of Korea

Abstract From 2013 to 2016, the characteristic variations of PM_{2.5} chemical composition and high concentration episodes were investigated at the Jeju Air Quality Research Center. The average concentration of PM_{2.5} was $18.6 \pm 16.1 \mu\text{g m}^{-3}$ for the entire period and the annual average concentration showed about 30% decrease from 2013 to 2016. Accordingly, the concentrations of secondary inorganic ions including NH_4^+ , SO_4^{2-} , and NO_3^- decreased as well, whereas OC concentrations did not show significant annual changes. The high PM_{2.5} event, which exceeded 24-hr Korean PM_{2.5} standard of $35 \mu\text{g m}^{-3}$ ("bad"), was frequently observed in cold months between December and March and also in May. In particular, the NO_3^- concentration was noticeably elevated when 24-hr average PM_{2.5} concentration was observed to be higher than $75 \mu\text{g m}^{-3}$ ("very bad"), and the air masses during the very bad condition originated mostly originated in the eastern regions of China such as Shandong and Shanghai, which was confirmed by concentration weighted trajectory (CWT) analysis. For the PM_{2.5} bad case ($36 \sim 75 \mu\text{g m}^{-3}$), the concentrations of SO_4^{2-} , NO_3^- , and OC were enhanced in association with air masses transported from the Korea peninsula and Shanghai region, Shandong and Bohai Bay areas, and Liaoning regions, respectively. NH_4^+ had the best correlation with PM_{2.5}, and showed that it is well neutralized with SO_4^{2-} and NO_3^- .

Key words: PM_{2.5} mass, Jeju Aewol, NO_3^- , SO_4^{2-} , OC, CWT

1. 서 론

대기중 입자상 물질은 이온성분, 탄소성분, 원소성분 등으로 이루어진 혼합물로서 시정을 악화시키고, 인체에 침투하여 건강에 악영향을 끼칠 뿐 아니라 대기 복사평형에 관여하여 기후변화에도 영향을 미치는 중요한 역할을 한다 (Yu *et al.*, 2018; Zhang *et al.*, 2015; Heal *et al.*, 2012). 이러한 입자상 물질의 농도

및 화학 조성은 배출원, 공기궤의 이동 경로, 기상 조건 등에 의해 영향을 받는다. 황산염, 질산염 및 암모늄염과 같은 2차 성분들은 인위적 또는 자연적으로 배출된 NH_3 , SO_2 , NO_x , VOCs 등의 기체상 전구물질로부터 다양한 물리 화학적 반응을 통해 생성되는데 동북아시아 지역에서는 계절에 따라 PM_{2.5}에 기여도가 다르며 평균적으로 약 20~45%를 차지한다 (Liu *et al.*, 2018; Zhao *et al.*, 2013; Lin *et al.*, 2002). PM_{2.5}는

크기가 작아 공기 중 체류 시간이 길어 근접한 지역에서는 장거리 이동되는 월경성 대기오염물질로도 중요하며 호흡기를 통하여 폐포 깊숙이 침투 가능하여 호흡기 질환 등을 유발하는 것으로 보고되었다 (WHO, 2018). 우리나라에서도 대기오염으로 인한 조기 사망자가 2060년에는 중국, 인도 다음으로 높을 것으로 예측되어 (OECD, 2016) 미세먼지에 대한 국가적 관심이 크게 증가하였다.

이에 우리나라에서는 2015년부터는 PM_{2.5}를 대기환경 기준에 포함하여 대기오염측정망을 통해 모니터링을 시작하였고 측정자료를 공개하고 있다. 더불어 PM_{2.5} 농도 개선에 대한 국민적 요구의 증가에 부응하여 2018년 3월에는 대기환경 기준을 선진국 수준으로 강화하여 연평균 25 $\mu\text{g}\text{m}^{-3}$ 에서 15 $\mu\text{g}\text{m}^{-3}$ 으로 일평균 50 $\mu\text{g}\text{m}^{-3}$ 에서 35 $\mu\text{g}\text{m}^{-3}$ 으로 낮추었다. 하지만 이러한 노력에도 불구하고 겨울철 고농도 발생 빈도와 농도는 지속적으로 증가하는 추세를 보이므로 지역별로 고농도 발생 특성과 원인 파악을 위한 연구가 집중적으로 수행되고 있다 (예: 미세먼지 범부처 프로젝트).

동북아시아 지역의 대기 중 에어로졸은 산업 활동

과 도시화로 인한 자동차의 증가 및 농업 활동과 황사 등의 다양한 특성을 가진 배출원의 영향으로 조성이 매우 복잡하다 (Ko *et al.*, 2015; Park and Jo, 2013). 또한 21세기 들어 급격한 경제 성장으로 인해 전구기체와 에어로졸의 배출이 빠르게 증가하였다 (Monks *et al.*, 2009). 더불어 이 지역은 종관기상이 매우 역동적으로 변하며 대기질을 결정하는 데 매우 중요한 역할을 한다 (Peterson *et al.*, 2019). 따라서 중국의 풍하 지역에 위치한 우리나라는 장거리 이동 오염물질과 국내 배출 오염원에 의한 영향을 구분하기 어려운 조건이므로 미세먼지 관리에 어려움을 겪고 있으며 (Ko *et al.*, 2014), 최근 겨울철의 고농도 PM_{2.5} 발생은 심각한 문제로 대두되었다. 중국에서는 2013년 심각한 연무 발생을 계기로 미세먼지를 줄이기 위해 석탄연료를 전기나 천연 가스로 대체하는 강력한 정책을 시행하였으며 이후 북경 및 난징 등에서 황산화물을 비롯한 PM_{2.5} 농도가 감소하였다 (Ding *et al.*, 2019; Zhang *et al.*, 2019; Lang *et al.*, 2017). 이러한 지역적 (regional) 영향 등 외부 유입과 국내 배출로 인한 영향을 구분하는 것은 미세먼지 저감정책 수립에 매우 중요한데 서울과 같은 대도시에서는 자체 배출이 커



Fig. 1. The location of Jeju Air Quality Research Center (JAQRC) operated by the National Institute of Environmental Research (33.35°N, 126.39°E).

서 외부 유입의 영향을 구분하기가 어렵다.

미세먼지 범부처 프로젝트의 주요 목적 중 하나인 고농도 사례 규명을 위해 전국 권역별 집중측정소인 수도권(서울), 중부권(대전), 호남권(광주) 및 영남권(울산)과 배경지역인 백령도와 제주도 집중측정소에서 2013~2016년 동안 실시간으로 관측된 자료를 분석하였다. 그 결과 전국규모의 고농도 사례에 대한 전반적 특징이 Ghim *et al.* (2019)에서, 집중측정소별 화학적 특성의 차이를 유발하는 인자가 Yu *et al.* (2019)에서 논의 되었다. 이때 제주는 타 측정소, 특히 수도권 측정소와 동시에 발생한 고농도 사례가 적고 농도도 낮아 분석에 포함되지 않았다.

제주는 아시아 대륙에서 장거리 이동되는 대기오염물질의 영향을 평가하기에 유리한 지리적 조건을 갖고 있어 이미 동북아 지역을 대표하는 관측소로 이용되어 왔으며 동북아시아의 월경성 오염물질의 거동을 이해하기 위한 국제협력 및 국내 연구들이 고산 관측소(Gosan Climate Observatory)를 중심으로 수행되어왔다(e.g., Kim *et al.*, 2019; Lim *et al.*, 2012; Lee *et al.*, 2011; Lim *et al.*, 2010).

국립환경과학원에서는 이러한 아시아대륙에서 이동되는 대기오염물질을 감시하기 위한 목적으로 제주 애월 중산간 지역(33.35°N, 126.39°E, 그림 1)에 대기환경연구소를 설치하여 PM_{2.5}와 주요 화학 조성을 1시간 간격으로 연속 측정하고 있다. 본 연구에서는 2013년부터 2016년까지 4년 동안 제주도 대기환경연구소에서 측정된 PM_{2.5} 질량농도 및 주요 화학조성(수용성이온, 유기탄소, 무기탄소)의 농도 분포를 상세하게 분석하여 계절별 특성과 고농도 발생 특성을 파악하고자 하였다.

2. 연구 방법

제주 애월 대기환경연구소에서 2013년 1월부터 2016년 12월까지 4년 동안 측정된 PM_{2.5}, PM₁₀의 질량 및 주요 이온성분(NO₃⁻, SO₄²⁻, NH₄⁺, Cl⁻, Na⁺,

Ca²⁺, Mg²⁺, K⁺)과 탄소성분(OC, EC) 자료를 분석하였다. PM_{2.5}와 PM₁₀의 질량 농도는 BAM-1020 continuous particle monitor, 이온 농도는 URG-9000D Ambient Ion Monitor, 탄소농도는 Model-4 semi-continuous OC-EC Field Analyzer (Sunset)로 측정되었다. 온도, 습도, 풍향, 풍속 등 기상자료는 AWS 자료를 사용하였다. 분석에는 모두 한 시간 평균값을 사용하였다.

공기의 궤적은 NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration)에서 제공하는 HYSPLIT 4를 이용하여 계산되었으며 국립환경과학원 애월 집중관측소(33.35°N, 126.39°E)를 기준으로 72시간의 역궤적 경로를 매 시간마다 모사하였다. 고도는 애월 측정소 고도와 비슷한 600 m로 설정하였으며 역궤적은 NWS/NCEP (National Weather Service/National Center for Environmental Prediction)에서 제공하는 GDAS (global data assimilation system)의 1°×1° 해상도 기상자료를 이용하여 산출하였다. 4년간의 PM_{2.5} 및 주요 성분에 대한 농도가중궤적(concentrated weighted trajectory, CWT) 분석(Hsu *et al.*, 2003)을 R의 openair package를 이용하여 수행하였다.

3. PM_{2.5} 화학 조성 변화

3.1 2013~2016년 동안 PM_{2.5} 농도 및 조성 변화

2013년부터 2016년까지 측정된 PM_{2.5}의 평균 농도는 $18.6 \pm 16.1 \mu\text{g m}^{-3}$ 이었으며 중간값(50th 퍼센타일)과 상위 10%에 해당하는 농도는 각각 $13.0 \mu\text{g m}^{-3}$ 과 $41 \mu\text{g m}^{-3}$ 이었다. 연평균 농도는 2013년, 2014년, 2015년, 2016년이 각각 $19.3 \mu\text{g m}^{-3}$, $19.7 \mu\text{g m}^{-3}$, $16.0 \mu\text{g m}^{-3}$, $13.9 \mu\text{g m}^{-3}$ 으로 2013년과 2014년이 비슷한 수준이었으며 2016년에 가장 낮았다. 2014년에는 고농도 사례도 많았지만 농도가 낮은 8월과 9월에 결측일이 많아 저농도가 적게 반영되었다. 연도별 PM_{2.5} 농도 및 주요 성분 농도를 추가자료(표 S1)에 나타냈다. 4년 동안

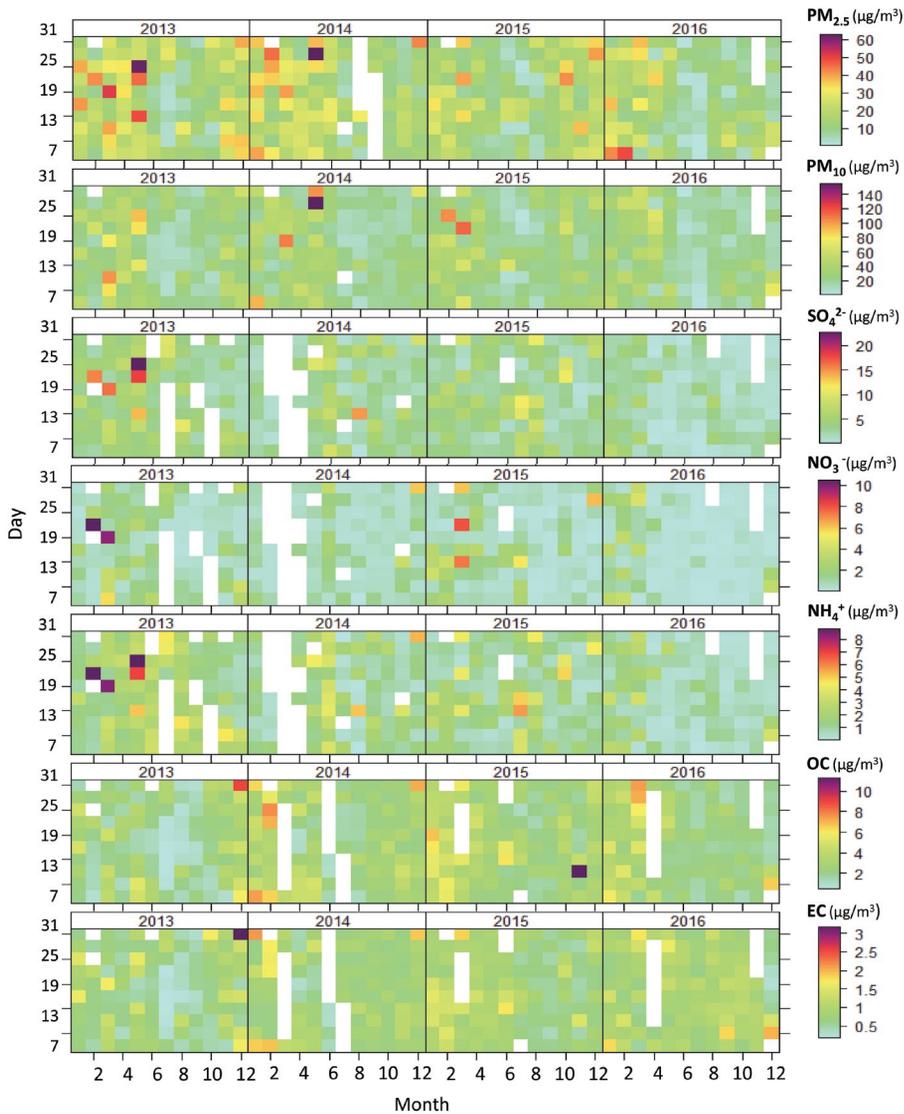


Fig. 2. Variations of PM_{2.5}, PM₁₀, SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺, OC, and EC at Jeju Air Quality Research Center during 2013~2016: yearly and monthly distributions of 4 days averaged values. The white color is missing data.

측정된 이온 및 탄소성분은 PM_{2.5} 질량의 약 60%를 차지하였다. 여기서 OC는 탄소만의 농도를 포함하며 OM (organic matter)로 환산하지 않았다. 따라서 SO₄²⁻ (3.49 µg m⁻³)가 20%로 가장 큰 비중을 차지하고 OC (2.86 µg m⁻³)가 17%를 차지하지만 OM은 OC의 약 1.5~2.0가 되므로 (Chan *et al.*, 2010) 실질적으로는

30% 이상으로 황산염을 증가하게 된다. NH₄⁺와 NO₃⁻의 평균 농도와 PM_{2.5} 중 비율은 각각 1.50 µg m⁻³와 1.03 µg m⁻³ 그리고 9%와 6%였으며 EC는 NO₃⁻와 유사한 수준으로 평균 농도와 질량비가 0.84 µg m⁻³와 5%이었다. 2013~2016년 동안 PM_{2.5} 중 질산염의 비중은 황산염에 비해 반 이하로 낮았으며 OM이 황산염

보다 큰 비중을 차지했다. 그 외 성분은 Na^+ 가 $0.21 \mu\text{g m}^{-3}$, Cl^- 가 $0.14 \mu\text{g m}^{-3}$, K^+ 는 $0.12 \mu\text{g m}^{-3}$, Ca^{2+} 가 $0.07 \mu\text{g m}^{-3}$, Mg^{2+} 가 $0.02 \mu\text{g m}^{-3}$ 으로 총 합이 $\text{PM}_{2.5}$ 질량의 4% 이하를 차지했다.

$\text{PM}_{2.5}$ 농도 및 주요 성분(SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , OC, EC) 농도 분포를 연도별 월별로 나타냈다(그림 2). 전반적으로 $\text{PM}_{2.5}$ 농도는 11월부터 5월까지 높고 6~9월 사이에는 낮으며 2013~2014년에 농도가 더 높았고 2015년과 2016년에는 감소하는 추세를 보였다. PM_{10} 농도 역시 겨울에 높고 여름에는 낮지만 향사가 빈번한 3~5월에 가장 높았다. SO_4^{2-} 는 2013년 고농도 $\text{PM}_{2.5}$ 와 함께 2, 3, 5월에 농도가 높았는데 이를 제외하면 7~8월에 농도가 높았다. NO_3^- 농도는 1~3월 사이에 높았다. NH_4^+ 농도는 $\text{PM}_{2.5}$ 고농도가 빈번했던 2013년 2, 3, 5월에 높았으며 전반적으로 SO_4^{2-} 와 함께 8월에 NO_3^- 와 함께 1~3월에 높은 농도를 보였다. SO_4^{2-} 와 NO_3^- 의 고농도가 서로 다른 계절에 나타나기 때문에 NH_4^+ 은 계절 특성이 분명하지 않았으며 일반적으로 고농도 사례 시 $\text{PM}_{2.5}$ 와 비례하여 농도가 높아졌다. SO_4^{2-} 와 NO_3^- , NH_4^+ 는 $\text{PM}_{2.5}$ 와 함께 2016년에 농도가 가장 낮았다. OC와 EC도 겨울에 높고 여름에 낮았는데 이는 고농도 사례가 빈번했던 2013년과 2014년에 더 분명하다.

연도별로 $\text{PM}_{2.5}$ 농도, 이온 및 탄소 성분들의 농도 비를 비교하였다(그림 3). $\text{PM}_{2.5}$ 농도는 2015년부터 감소해 2016년에 농도가 가장 낮아 2013년 대비 연평균이 $5.4 \mu\text{g m}^{-3}$, 28%가 감소했다. 더불어 주요 조성인 NH_4^+ , SO_4^{2-} , NO_3^- 의 농도도 모두 감소하였다(그림 3a). SO_4^{2-} 가 차지하는 비중은 점차 감소했지만 NO_3^- 의 감소는 뚜렷하지 않았으며 OC의 비중이 점차 증가해 2016년에는 측정된 모든 조성의 약 50%를 차지했다. 제주에서 SO_4^{2-} 의 감소는 동북아시아 지역에서 관찰되는 황산화물의 감소와도 일치하는 결과이다. 중국에서는 2013년 심한 연무현상이 빈번히 발생한 이후 SO_2 를 줄이기 위해 석탄 사용을 규제하였고 그 결과 북경을 포함한 중국 동북부에서는 2016년의 SO_2 농도가 2012년에 비하여 약 16%가 감소하였

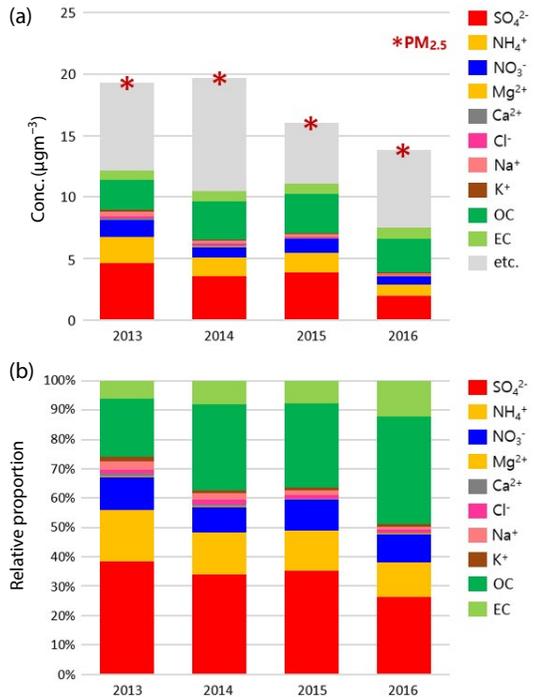


Fig. 3. Annual variations of $\text{PM}_{2.5}$, ions and carbon (a) concentrations and (b) relative ratios of each species (include only measured values).

으며 $\text{PM}_{2.5}$ 중 SO_4^{2-} 농도 역시 10%가 감소하였다 (Ding *et al.*, 2019; Lang *et al.*, 2017). 2017년에 중국 동부지역의 $\text{PM}_{2.5}$ 농도는 2013년에 비해 33%가 감소하였다고 보고되었다(Zhang *et al.*, 2019).

제주에서는 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 감소와 더불어 질산염의 증가보다는 OC 비의 증가가 크게 관측되었다(그림 3b), SO_4^{2-} 농도의 감소는 석탄 연소 감소의 결과로 판단되지만 이때 OC 농도는 증가했으므로 이는 화석연료 연소 외 OC의 배출원의 중요성이 커짐을 시사한다. OC의 농도는 겨울철에 명확하게 높았으므로 생체연소(biomass combustion)와 같은 비화석 연료의 연소 배출에 의한 것으로 판단된다.

모든 측정 결과의 월별 평균 농도의 변화는 계절 특성을 잘 나타낸다. $\text{PM}_{2.5}$ 농도는 1월에 가장 높고 3월, 5월 순으로 높았다(그림 4). 5월에서 6월 사이에 농도가 급격히 감소하였고 7월에 평균 농도가 가장

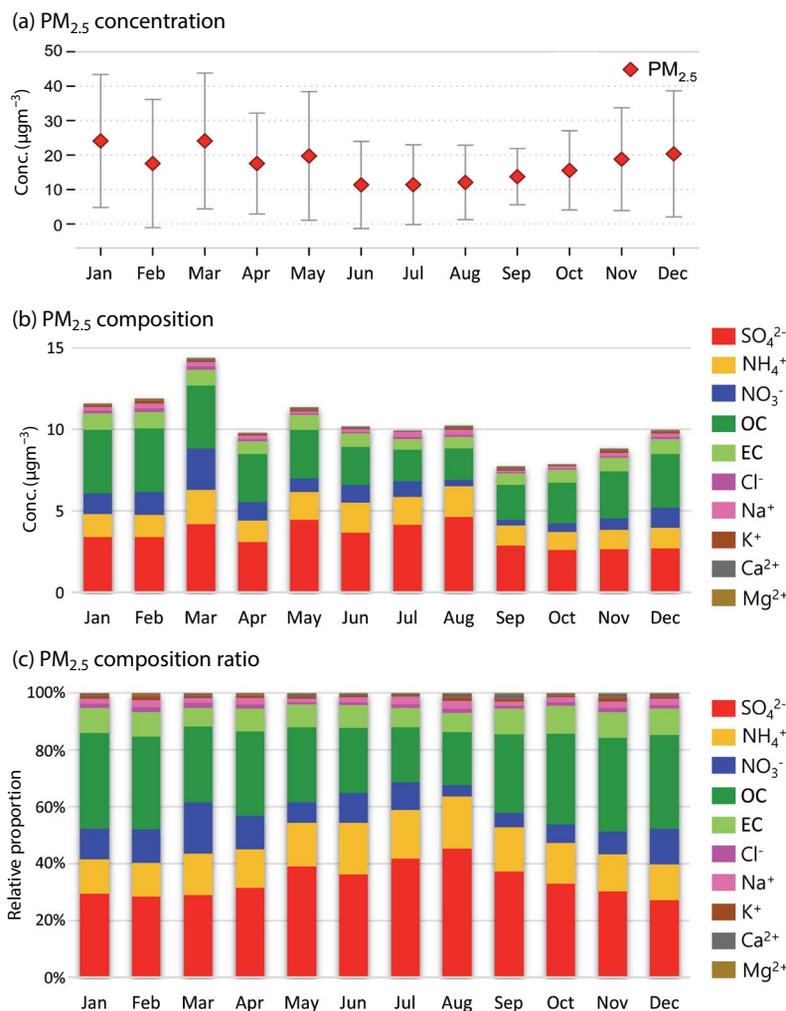


Fig. 4. Monthly variations of PM_{2.5}, water-soluble ions, and carbonaceous species during 2013~2016 (a) concentration and (b) relative ratios of each species (include only measured values).

낮았다. 무기염의 농도는 3월에 가장 높았는데 그중 질산염의 평균 농도와 상대비가 가장 높았다. 주요 조성의 성분비는 월별 차이가 뚜렷했는데 SO₄²⁻의 농도 및 성분비는 8월에 가장 높았으며 7, 8월에는 전체 성분 중 40% 이상을 차지했다. 이와 대조적으로 NO₃⁻는 3월에 가장 높았으며 8월과 9월에 가장 낮았고 겨울로 가며 점차 증가하였다. OC 농도와 성분비는 1~2월에 가장 높고 7~8월에 낮았다. NH₄⁺ 농도는 이온 및 탄소성분 합이 가장 컸던 3월에 가장 높았고 5~8월에 다른 달에 비해 높은 분포를 보였다. 질

량비는 1~2월에 낮고 6~8월 사이에 증가하였다. 사전 연구결과에서도 보고되었던 계절 특성은 미세먼지의 농도뿐 아니라 조성에도 크게 나타났다. 따라서 제주에서 관측된 기상 특성(그림 5)과 종관기상 특성을 기반으로 12~3월을 겨울, 4~5월을 봄, 6~9월을 여름, 10~11월을 가을로 구분하였다. 이러한 계절 구분은 Lim *et al.* (2018)에서 제시된 바 있으며, 2019년 시작된 고농도 계절관리제의 구분과도 일치한다. 9월에는 북태평양 고기압의 영향 하에서 제주뿐 아니라 동북아시아 지역 대기오염 물질의 농도가 낮아(e.g.,

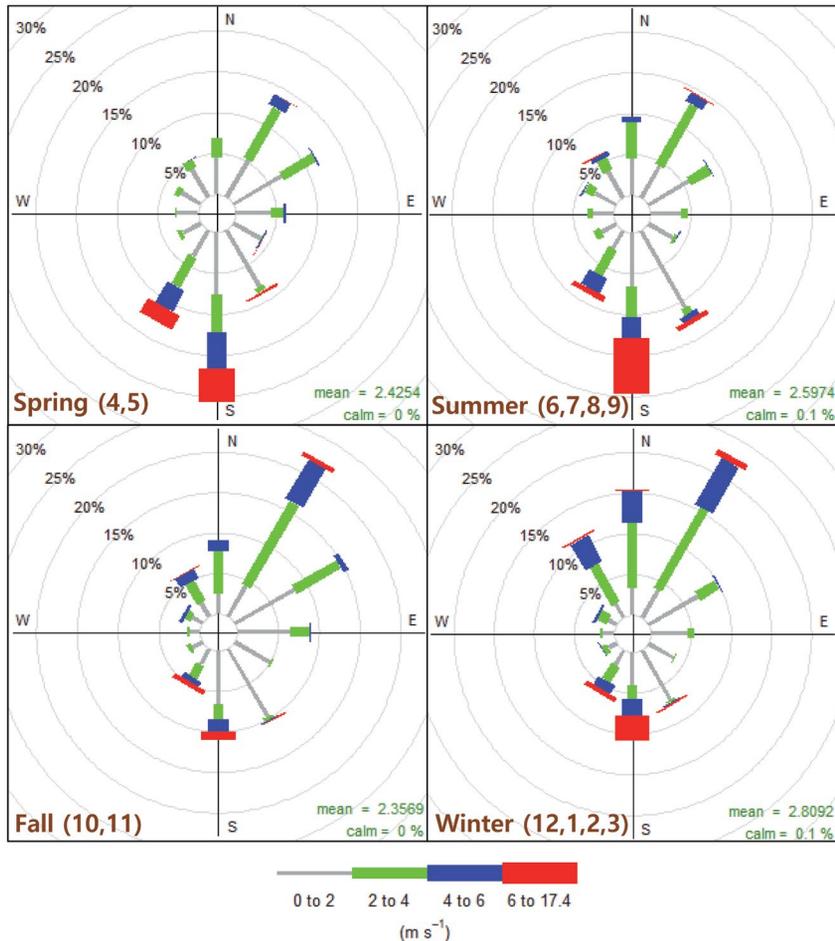


Fig. 5. Seasonal wind rose of Aewol during 2013~2016.

Han *et al.*, 2015) 여름에 포함시켰다. 계절별 $PM_{2.5}$ 조성의 평균 농도와 최고 농도를 표 1에 나타냈다.

2018년 개정된 대기환경기준을 적용하면 ‘나쁨’에 해당하는 일평균 $36 \mu\text{g m}^{-3}$ 이상은 2013년에 38일, 2014년에 38일, 2015년에 22일, 2016년에 15일로 총 113일 발생했다. ‘매우 나쁨’ 기준인 일평균 $76 \mu\text{g m}^{-3}$ 이상은 총 1일(2013년 3월 19일) 발생했다. 제주의 고농도 사례를 일평균 $36 \mu\text{g m}^{-3}$ 이상으로 새 기준을 적용하면 12~3월 겨울에 가장 빈번하며 2013~2014년에는 5월에도 발생 빈도가 높았다. 특히 겨울과 봄에는 고농도 $PM_{2.5}$ 가 황사를 동반하는 사례가 많았고

2014년 1월과 5월 황사 사례 시 고농도는 전체 고농도 빈도의 절반가량 되었다.

3.2 고농도 특성

현재 우리나라의 미세먼지 예보는 ‘매우나쁨’ ($76 \mu\text{g m}^{-3}$ 이상), ‘나쁨’ ($36\sim75 \mu\text{g m}^{-3}$), ‘보통’ ($16\sim35 \mu\text{g m}^{-3}$), ‘좋음’ ($0\sim15 \mu\text{g m}^{-3}$)의 4 등급으로 나누어진다. 4년 전체 기간 동안 측정된 1시간 $PM_{2.5}$ 농도가 이 기준에 따라 구분하면 51%가 ‘좋음’, 37.3%가 ‘보통’, 11.3%가 ‘나쁨’, 1.3%가 ‘매우나쁨’에 해당한다. 이 $PM_{2.5}$ 농도를 기준으로 측정 자료를 4개의 그룹으로

Table 1. Seasonal mean and maximum concentration of PM_{2.5}, water-soluble ions, carbonaceous species, and meteorological condition, 2013~2016 ($\mu\text{g m}^{-3}$).

	Spring (Apr~May)		Summer (Jun~Sep)		Fall (Oct~Nov)		Winter (Dec~Mar)	
	Mean	Max	Mean	Max	Mean	Max	Mean	Max
PM _{2.5}	21.4	109	13.5	100	16.6	137	22.4	183
PM ₁₀	38.7	326	19.7	171	26.1	311	36.0	480
SO ₄ ²⁻	3.82	30.6	3.85	42.3	2.64	22.1	3.41	33.2
NO ₃ ⁻	0.96	14.8	0.68	18.6	0.60	16.6	1.57	36.6
NH ₄ ⁺	1.52	13.2	1.64	14.6	1.15	10.5	1.51	20.2
Cl ⁻	0.11	1.32	0.09	2.78	0.10	2.22	0.18	3.12
K ⁺	0.09	1.87	0.08	1.73	0.09	1.73	0.14	7.13
Mg ²⁺	0.01	0.31	0.01	0.35	0.01	0.23	0.01	0.40
Ca ²⁺	0.04	2.16	0.05	1.96	0.03	3.14	0.05	1.83
Na ⁺	0.14	1.06	0.18	1.91	0.13	1.66	0.23	1.48
EC	0.86	5.13	0.72	4.19	0.79	5.18	0.97	7.49
OC	2.96	17.7	2.06	18.8	2.70	43.0	3.71	21.2
Temp (°C)	14.5	29.2	22.3	35.0	12.9	29.6	5.50	23.8
RH (%)	66.2		80.4		77.7		73.0	
WS (m/s)	2.60	14.5	2.43	16.8	2.36	17.4	2.81	12.4
#high PM _{2.5} ^a	20		10		11		72	
#yellow dust ^b	6		-		3		14	

^aNumber of days with the 'bad' grade of PM_{2.5} (1 day average exceeded 35 $\mu\text{g m}^{-3}$)^bNumber of days of yellow dust events among the days of 'bad' of PM_{2.5}

구분하여 측정된 조성을 전체로 각 조성의 상대적인 비를 비교하였다(그림 6). 이와 같은 농도 구분에서 황산염의 차이는 크지 않았지만 질산염의 비중은 고농도로 갈수록 분명하게 증가하였다. 질산염은 0~15 $\mu\text{g m}^{-3}$ 에서는 약 5%였지만 76 $\mu\text{g m}^{-3}$ 이상에서는 약 20%로 3배 이상 증가하였다. 암모늄의 비중은 15 $\mu\text{g m}^{-3}$ 이하의 저농도보다 36 $\mu\text{g m}^{-3}$ 이상 농도에서 소폭 증가(약 1.4배)하였다. OC와 EC는 좋음 수준일 때 가장 높은 질량비를 보였다. 이때 Na⁺와 Cl⁻ 등 해염 성분 역시 가장 높은 질량비를 보였는데 이는 PM_{2.5} 좋음 수준의 농도는 주로 여름에 관찰되기 때문이다. 따라서 이때 상대습도(RH)와 풍속이 가장 높았다. 이를 제외한 구간에서는 농도가 높아지며 풍속이 낮아졌다(그림 6). 2013년과 2014년 서울에서는 고농도로 갈수록 질산염의 농도가 증가해 20배 정도의 차이를 보였고 풍속이 감소하는 경향이 뚜렷했으며 PM_{2.5}/PM₁₀ 비가 증가하였다(Lee *et al.*, 2019). 서

울에서의 PM_{2.5} 고농도는 겨울에 주로 발생하며 대기 정체와 관련됨이 분명했다. 제주에서도 PM_{2.5} 고농도에서 질산염의 농도와 질량비가 증가하는 양상은 서울과 유사했으나 증가 폭은 서울에 비해 매우 낮았다. 게다가 제주에서는 '보통'에서 '매우나쁨'으로 가며 오히려 풍속이 증가했다. 그리고 '보통', '나쁨', '매우나쁨'일 때 PM_{2.5}/PM₁₀ 비가 변화가 거의 없어 전반적으로 외부로부터 유입의 영향이 커짐을 지시하는 것으로 판단된다. 제주에서는 고농도 PM_{2.5}가 황사 사례 시 발생한 것도 원인이 된다.

4. 농도가중궤적 분석(CWT, Concentration Weighted Trajectory)

2013~2016년 전체 기간 동안, 매시간 간격으로 72 시간 동안의 공기궤적을 HYSPLIT 모델을 이용하여

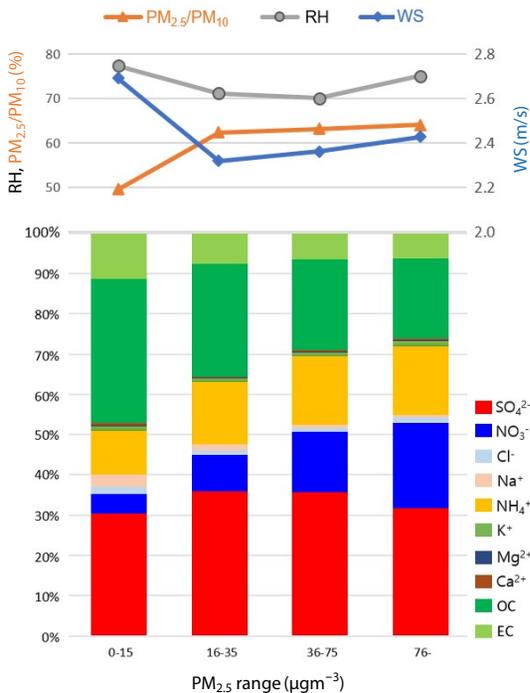


Fig. 6. Relative concentration ratios of ionic and carbonaceous species of $PM_{2.5}$ and average wind speed (WS), relative humidity (RH), $PM_{2.5}/PM_{10}$ ratio for each $PM_{2.5}$ category during 2013~2016.

추적하여 $PM_{2.5}$ 농도를 가중시키는 농도가중계적 (CWT) 분석을 수행하였다. CWT 모델은 역계적을 수용지점의 오염물질 농도와 결합하여 오염원 위치별 수용지점에 대한 영향 정도를 농도경사로 표현할 수 있다 (Hsu *et al.*, 2003). 이를 통해 고농도 발생에 영향이 큰 배출원을 추정할 수 있다.

CWT 분석 결과 공기가 중국 동부지역을 거쳐 유입될 때 제주의 $PM_{2.5}$ 농도가 가장 높았다(그림 7(a)). 이를 앞에서 논의하였던 예보 등급에 따른 $PM_{2.5}$ 4개의 농도 구간으로 구분하여 CWT 분석을 다시 수행하였다(그림 7(b)~(e)). 1시간 평균 $76 \mu\text{g m}^{-3}$ 이상의 '매우나쁨' 수준의 고농도는 산둥반도에서 상해까지 중국의 황해연안에서 기원함이 명확히 보인다. '나쁨' 수준의 $PM_{2.5}$ $36\sim75 \mu\text{g m}^{-3}$ 은 중국 랴오닝-발해만-북경-산둥반도-상해 지역 및 북한의 황해연안과 우리나라 전역 특히 남서해안에서 기원

하는 것으로 나타났다. 즉 황해를 둘러싼 주변 대륙의 영향이 모두 포함되고 공기궤적이 가장 짧아 공기가 정체되었음을 지시한다. '보통' 수준인 $16\sim35 \mu\text{g m}^{-3}$ 의 $PM_{2.5}$ 는 몽골까지 남서쪽과 일본까지 영향 지역이 확장되었다. ' 좋음'인 경우에는 중국 동북지역에서 $PM_{2.5}$ 농도가 $10 \mu\text{g m}^{-3}$ 정도로 높았고 남쪽에서는 $2 \mu\text{g m}^{-3}$ 이하로 낮았다. 이는 겨울철 대륙에서 기원한 배경대기 (continental background)와 여름철 해양에서 기원한 배경대기 (marine background)의 영향에서 좋음 수준의 미세먼지 농도가 가능함을 입증한다(전체 50% 해당).

제주에서는 고농도 발생 시 중국의 산둥반도와 상해 사이 지역에서 기원한 외부유입의 영향이 명확하며 베이징-천진-허베이 지역의 영향은 백령도나 수도권 보다는 비교적 적은 것으로 보인다. 우리나라에서는 남해안의 영향을 가장 크게 받으며 제주 자체의 국지적 배출에 의한 영향은 적은 것으로 판단된다. 특히 2013년에 비해 2016년에 $PM_{2.5}$ 농도는 상당한 감소를 보였는데 고산에서 측정된 바람장은 지상 풍속이 낮고 공기가 정체되었음을 보여주었다. 이는 동북아시아 지역의 연평균 지위고도(그림 8)가 다른 해에 비해 엘니뇨가 발생한 2016년에 더 높고 기압경도가 작음을 통해서도 잘 보여준다.

5. 제주의 고농도 발생 특성과 서울과의 비교

CWT 분석 결과는 '매우나쁨' 수준의 $PM_{2.5}$ 는 중국으로부터의 유입을 명확히 보여주지만 '나쁨' 수준의 $PM_{2.5}$ 는 여러 지역의 영향이 혼재되므로 주요 성분 에 대해 CWT 분석을 수행하였다(그림 9). 그 결과 고농도 SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , OC의 기여 지역이 매우 달랐다. SO_4^{2-} 는 제주의 남쪽과 동쪽을 통한 느린 기류에서, NO_3^- 는 중국 동쪽지역에서, NH_4^+ 는 황산염과 질산염 분포를 포함하는 넓은 지역에서 고농도가 높았다. 이러한 분포는 계절의 영향이 반영되어 SO_4^{2-} 는 봄과 여름, NO_3^- 는 겨울의 영향을 지시한다. 특히 NO_3^- 는 $PM_{2.5}$ 가 '매우나쁨'일 때의 배출 지

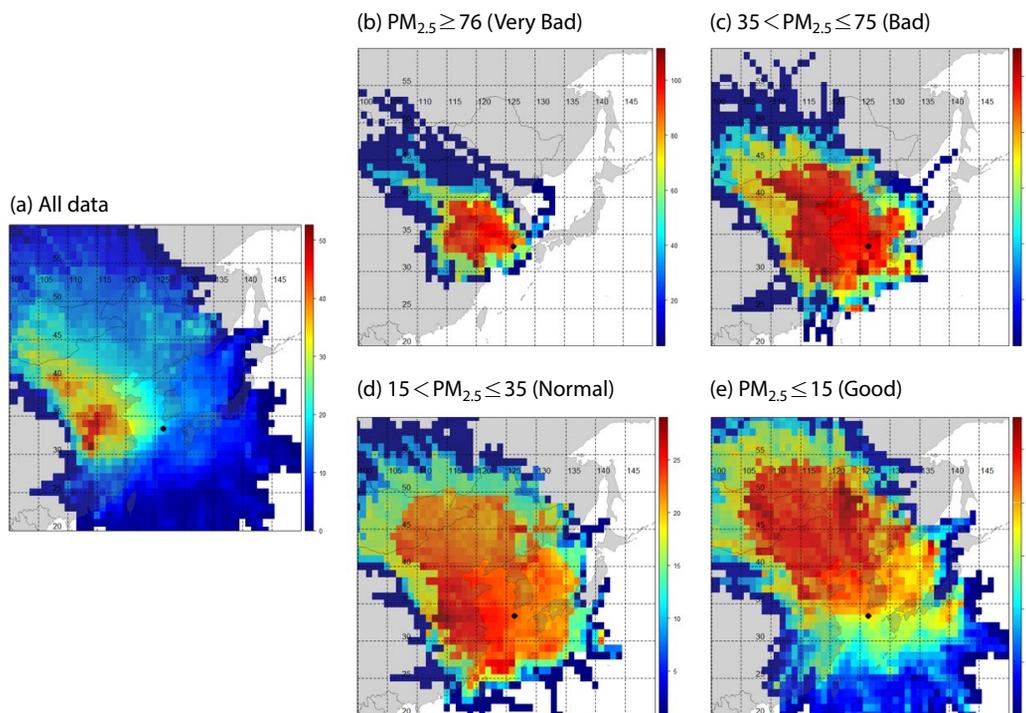


Fig. 7. Concentration Weighted Trajectory (CWT) for each PM_{2.5} category at the Jeju (72 h backward trajectory of 600 m height).

역에서 가장 높은 농도를 보였다(그림 6). 이는 PM_{2.5} 농도가 증가하며 NO₃⁻ 농도의 질량비가 증가한 3.1의 결과와도 일치한다. NH₄⁺는 암모니아의 배출원보다는 SO₄²⁻와 NO₃⁻의 배출지역을 포함하고 있어 제주에서 고농도 무기염은 배출 지역에서 생성되어 이동되었음을 암시한다. 고농도 OC는 중국 길림과 심양 그리고 북한 및 우리나라 서해안을 거쳐 들어오는 것으로 보였다. 수도권의 태화산에서도 OC가 증가할 때 이 궤적에 의한 것으로 분석되었다(Ham *et al.*, 2016).

제주의 고농도 사례 특성은 SO₄²⁻와 NO₃⁻ 관계에서 잘 보인다(그림 10(a)). PM_{2.5}가 35 μg m⁻³를 초과할 때 SO₄²⁻ 농도는 NO₃⁻와 비례하여 높아지거나 NO₃⁻의 증가 없이 상승하였다. 전자는 겨울철 사례인데 수도권에서도 질산염의 농도가 높은 겨울 고농도 사례 시 황산염이 증가하였다(Ghim *et al.*, 2019). 후자는 온도, 습도와 OH가 높은 여름 사례로 SO₄²⁻의 생성 특성을 잘 나타낸다. OC 농도는 전반적으로

질산염 농도가 높은 겨울에 높았는데 SO₄²⁻와 NO₃⁻가 높지 않은 영역에서 최고 농도가 나타났다.

암모늄은 PM_{2.5}와의 상관성이 R²=0.68로 화학 성분 중 가장 좋았다. 특히 [NH₄⁺]/(2[SO₄²⁻]+[NO₃⁻])의 몰농도 비는 3~4월에 0.88로 가장 낮았지만 전체 자료에 대해서는 R=0.95로 PM_{2.5}가 중화가 잘 되었음을 지시한다(그림 10(b)). 이는 위에서 제시한 결과와 일치하는 것으로, 인위적 배출원이 제한적인 제주에서는 국지적인 배출에 의해 무기염이 생성되어 PM_{2.5} 고농도 발생에 기여할 확률은 매우 낮음을 시사한다.

제주에서 PM_{2.5}는 주요 조성이 모두 함께 상승할 때 농도가 가장 높아지며, 공기 정체 시 나타나는 PM_{2.5}의 상승은 기여하는 화학종이 계절에 따라 달라 '나뽀' 수준으로 나타났다. 반면 서울은 겨울철 공기 정체 시 주로 고농도가 지속되는 사례가 발생한다. 이는 제주의 고농도는 서울과 달리 자체적인 배

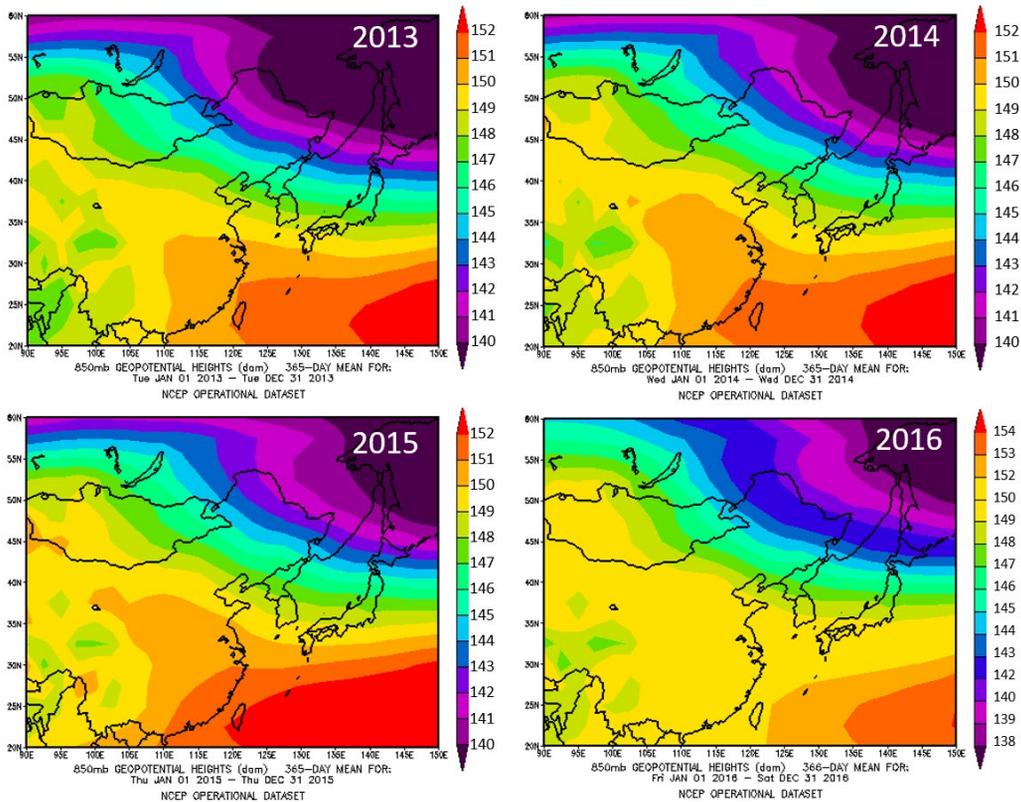


Fig. 8. Annual geopotential height (850 mb) of northeastern Asia (<https://psl.noaa.gov/data/histdata/>).

출원의 영향이 외부 유입에 비해 극히 적음을 지시한다.

2013~2016년 기간에 대해, 2018년 3월 이전의 ‘나뽀’ 기준 일평균 $70 \mu\text{g m}^{-3}$ 를 2일 이상 초과했던 전국적인 $\text{PM}_{2.5}$ 의 고농도 사례 5개를 선정하여 전반적 특징을 분석하였다 (Ghim *et al.*, 2019). 2013년 1월 11~24일, 2013년 7월 25~29일, 2014년 2월 20일~3월 4일, 2014년 4월 9~18일, 2015년 10월 16~24일이 이에 해당한다. 이 중 제주는 단 1일만이 일평균 $70 \mu\text{g m}^{-3}$ 이상 기준을 만족해 분석에 포함되지 못했다. 하지만 이 5개 사례 기간 동안 제주에서도 $\text{PM}_{2.5}$ 농도가 상대적으로 높아 사례별 평균 농도와 최고 농도를 서울과 비교하였다. 각 기간 동안의 서울과 제주에서 $\text{PM}_{2.5}$ 및 주요조성의 농도를 Table S2에 비교하였다. 서울에서는 고농도가 발생했으므로 제주의 평

균 농도와 최고 농도는 모두 서울에 비해 낮았다. 하지만 이 둘 사이 상관성은 서울 ($R^2=0.92$)과 제주 ($R^2=0.71$)에서 모두 좋았으며 평균 농도에 대한 최고 농도의 변화율은 서울에 비해 제주가 2배 이상 컸다(그림 11). 4계절에 걸쳐 발생한 사례임에도 서울에서 평균 농도와 최고 농도 사이의 상관성이 매우 좋으며 평균 농도의 변화 폭이 큰 것은 대부분 정체 조건에서 고농도가 발생했고 사례 특성이 평균 농도로 잘 나타남을 의미한다. 반면 제주는 평균 농도와 최고 농도 사이의 상관성이 서울에 비해 낮으며 최고 농도 변화가 커서 서울의 사례기간 수준에 다다랐다. 이러한 결과는, 위에서 보인 제주에서 $\text{PM}_{2.5}$ 가 계절에 따라 발생원과 기원이 다른(그림 9) 특성과 함께 고농도 발생이 정체에 의해 결정되는 서울에 비해 외부 유입에 의한 영향이 지배적임을 뒷받침하는 단서

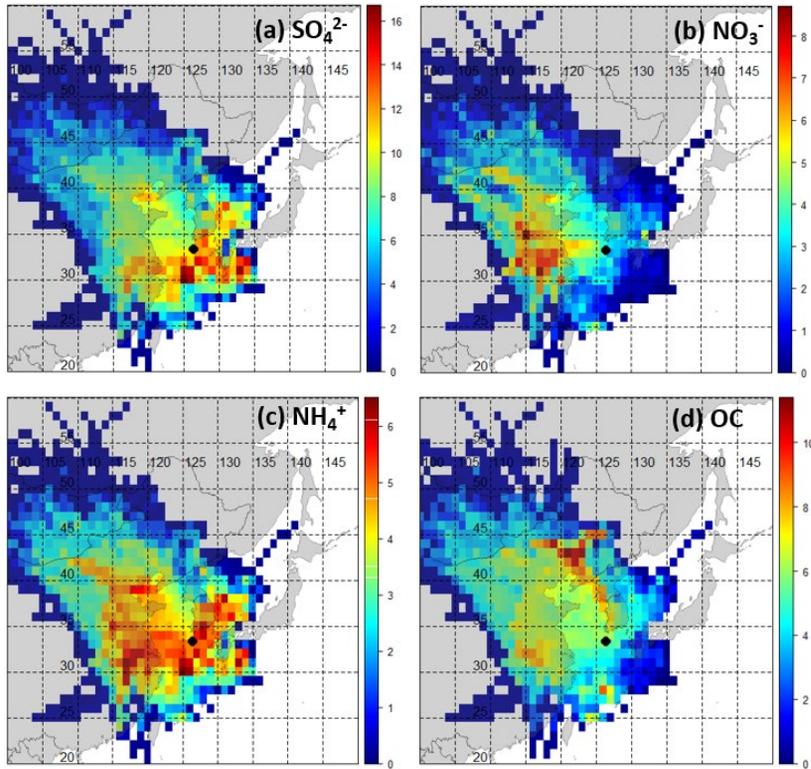


Fig. 9. Concentration Weighted Trajectory (CWT) of SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , and OC for $\text{PM}_{2.5}$ range $36\sim75\ \mu\text{g m}^{-3}$ ("bad") (72 h backward trajectory of 600 m height).

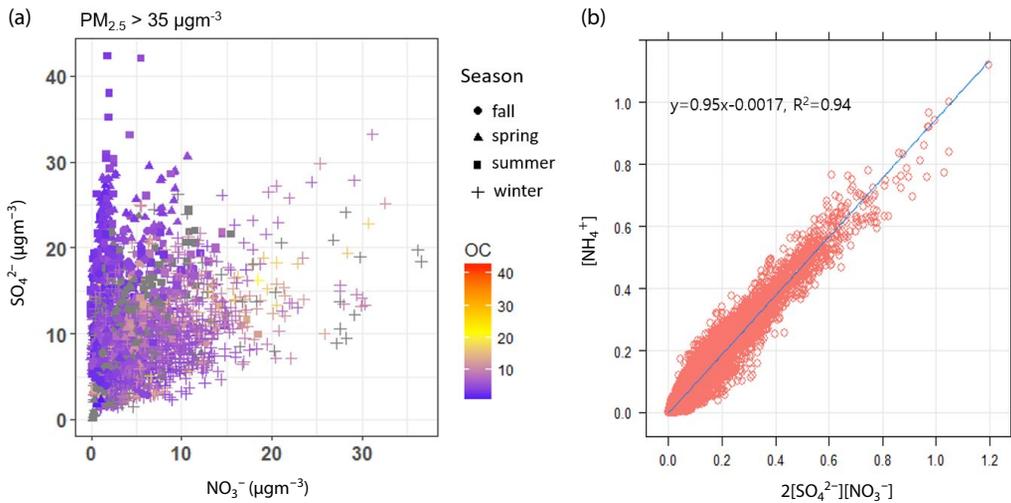


Fig. 10. (a) Relationship between SO_4^{2-} and NO_3^- concentration when $\text{PM}_{2.5}$ exceed $35\ \mu\text{g m}^{-3}$, the colored by OC concentration. (b) Correlation between $[\text{NH}_4^+]$ and $2[\text{SO}_4^{2-}]/[\text{NO}_3^-]$ molar ratio.

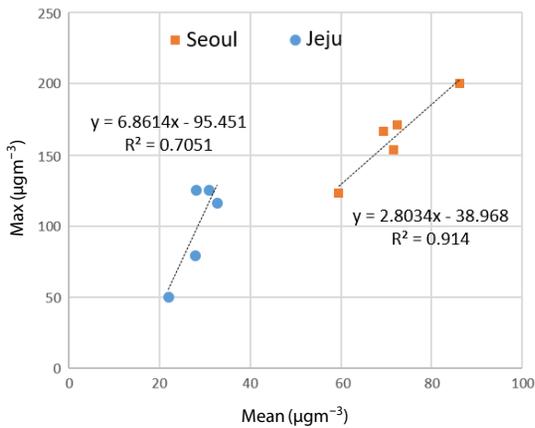


Fig. 11. Relationship between mean and maximum concentrations comparison with Seoul and Jeju of high $PM_{2.5}$ episodes during 2013~2016 (Ghim *et al.*, 2019).

이다. 제주는 $PM_{2.5}$ 배경농도가 낮은 반면 기상에 따른 변화 폭이 크므로 고농도 발생을 1일 기간의 평균 농도로 판단하면 기준에 미치지 못하더라도 1시간 농도는 서울 수준으로 높을 수 있음을 시사한다. 이러한 결과는 향후 지역 특성을 고려해 대기환경 정책을 수립해야 함을 잘 보여준다.

6. 결 론

2013~2016년 국립환경과학원의 제주 대기환경연구소에서 측정된 $PM_{2.5}$ 농도 및 수용성 이온 성분과 탄소 성분의 연도별, 계절별 변동 특성과 고농도 사례 특성을 분석하였다. 주요 조성으로 황산염의 기여도가 질산염에 비해 2배 이상 높았으며 OC의 기여도가 황산염보다 약간 낮았으나 OM으로 고려한다면 황산염보다 높다. $PM_{2.5}$ 질량 및 NH_4^+ , SO_4^{2-} , NO_3^- 농도는 2013년에 비해 2016년에 약 30% 가량 낮았지만 OC 농도는 유사한 수준으로 유지되었다.

1시간 평균 $PM_{2.5}$ 농도를 환경기준에 따라 좋음, 보통, 나쁨, 매우나쁨의 4단계로 분류해 조성을 비교한 결과 고농도로 갈수록 질산염의 증가가 분명했으며, 평균 풍속이 증가하는 경향이 나타나 정체의 영향이

서울에 비해 중요하지 않은 것으로 나타났다. 또한 $PM_{2.5}$ 농도 및 SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , OC 등 주요 성분의 농도 가중계적 분석 결과는 ‘매우나쁨’ 수준의 $PM_{2.5}$ 가 중국의 화북과 화동 지역에서 기원하였고 ‘나쁨’ 수준은 황해를 둘러싼 중국의 화동, 화북, 동북 지역과 북한 그리고 우리나라의 영향을 모두 받는 것으로 나타났다. ‘보통’ 수준에서는 대만을 포함한 중국 남부와 일본의 영향이 보였으며 ‘좋음’ 수준은 시베리아와 태평양에서 기원하는 공기에서 나타났다. 조성별로도 기원이 달랐는데 SO_4^{2-} 는 제주의 동쪽과 남쪽, NO_3^- 는 중국 화동지역, OC는 중국 동북지역이 주요 배출원으로 구분되었다. 이 결과는 제주에서 $PM_{2.5}$ 고농도는 계절에 따라 배출원과 기원 다른 공기계의 유입으로 발생함을 나타낸다. 더불어 $PM_{2.5}$ 는 황산염과 질산염이 암모늄에 의해 잘 중화된 상태로 존재하므로 국지적 배출에 의한 생성은 매우 제한적임을 제시했다. 따라서 제주에서 산출되는 자료는 우리나라 고농도 미세먼지 발생에 대하여 외부 유입의 기여도를 평가하는데 안정적인 기준으로 활용할 수 있을 것으로 판단된다.

감사의 글

이 논문은 정부(과학기술정보통신부, 환경부, 보건복지부) 재원으로 한국연구재단-미세먼지 국가전략 프로젝트사업의 지원을 받아 수행함 (2017M3D8A1092015).

References

- Chan, T., Huang, L., Leaitch, W., Sharma, S., Brook, J., Slowik, J., Abbatt, J., Brickell, P., Liggio, J., Li, S.M. (2010) Observations of OM/OC and specific attenuation coefficients (SAC) in ambient fine PM at a rural site in central Ontario, Canada, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 2393-2411. <https://doi.org/10.5194/acp-10-2393-2010>

- Ding, A.J., Huang, X., Nie, W., Chi, X.G., Xu, Z., Zheng, L.F., Xu, Z.N., Xie, Y.N., Qi, X.M., Shen, Y.C., Sun, P., Wang, J.P., Wang, L., Sun, J.N., Yang, X.Q., Qin, W., Zhang, X.Z., Cheng, W., Liu, W.J., Pan, L.B., Fu, C.B. (2019) Significant reduction of PM_{2.5} in eastern China due to regional-scale emission control: evidence from SORPES in 2011-2018, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19, 11791-11801. <https://doi.org/10.5194/acp-19-11791-2019>
- Ghim, Y.S., Choi, Y., Park, J., Kim, S., Bae, C.H., Seo, J., Shin, H.J., Lim, Y.J., Lyu, Y.S., Lee, Y.J. (2019) Overall Characteristics of Nationwide High PM_{2.5} Episodes during 2013~2016, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 35(5), 609-624 (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2019.35.5.609>
- Ham, J., Lee, M., Kim, H.S., Park, H., Cho, G., Park, J. (2016) Variation of OC and EC in PM_{2.5} at Mt. Taehwa, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 32(1), 21-31 (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2016.32.1.021>
- Han, J., Shin, B., Lee, M., Hwang, G., Kim, J., Shim, J., Lee, G., Shim, C. (2015) Variations of surface ozone at leodo Ocean Research Station in the East China Sea and the influence of Asian outflows, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 12611-12621. <https://doi.org/10.5194/acp-15-12611-2015>
- Heal, M.R., Kumar, P., Harrison, R.M. (2012) Particles, air quality, policy and health, *Chemical Society Review*, 41(19), 6606-6630. <https://doi.org/10.1039/c2cs35076a>
- Hsu, Y., Holsen, T.M., Hopke, P.K. (2003) Comparison of hybrid receptor models to locate PCB sources in Chicago, *Atmospheric Environment*, 37, 545-562. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(02\)00886-5](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(02)00886-5)
- Kim, S.-M., Kim, M.-C., Kim, K.-S., Lee, K.-H. (2019) Characteristics of the Concentration Variations and Air Mass Routes during the High-concentration Events of Particulate Matter in the Jeju Area in 2016, *Journal of the Korean Society for Environmental Analysis*, 22(2), 61-69 (in Korean with English abstract).
- Ko, H.-J., Lee, Y.-S., Kim, W.-H., Song, J.-M., Kang, C.-H. (2014) Chemical Composition Characteristics of Fine Particulate Matter at Atmospheric Boundary Layer of Background Area in Fall, 2012, *Journal of Korean Chemical Society*, 58(3), 267-276 (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5012/jkcs.2014.58.3.267>
- Ko, H.-J., Lim, E., Song, J.-M., Kim, W.-H., Kang, C.-H., Lee, H., Lee, C. (2015) Composition Variation of Atmospheric Fine Particulate Matters in Accordance with Air Mass Transport Pathways at Background Site of Korea in 2013, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 31(1), 15-27. <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2015.31.1.015>
- Lang, J.L., Zhang, Y.Y., Zhou, Y., Cheng, S.Y., Chen, D.S., Guo, X.U., Chen, S., Li, X.X., Xing, X.F., Wang, H.Y. (2017) Trends of PM_{2.5} and Chemical Composition in Beijing, 2000-2015, *Aerosol and Air Quality Research*, 17, 412-425. <https://doi.org/10.4209/aaqr.2016.07.0307>
- Lee, S.-B., Jung, D.-S., Cho, E.-K., Kim, H.-A., Hwang, E.-Y., Kang, C.-H. (2011) Composition and pollution characteristics of PM₁₀ and PM_{2.5} particles at Gosan site of Jeju Island in 2008, *Analytical Science and Technology*, 24(4), 310-318, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5806/AST.2011.24.4.310>
- Lee, T.-J., Park, M.-B., Kim, D.-S. (2019) Time Series Assessment of PM_{2.5} Source Contributions and Classification of Haze Patterns in Seoul, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 35(1), 97-124, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2019.35.1.097>
- Lim, S.H., Lee, M., Kang, K.-S. (2010) Seasonal Variations, of OC and EC in PM₁₀, PM_{2.5} and PM_{1.0} at Gosan Superstation on Jeju Island, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 26(5), 567-580 (in Korean with English abstract).
- Lim, S., Lee, M., Lee, G., Kim, S., Yoon, S., Kang, K. (2012) Ionic and carbonaceous compositions of PM₁₀, PM_{2.5} and PM_{1.0} at Gosan ABC Superstation and their ratios as source signature, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12, 2007-2024. <https://doi.org/10.5194/acp-12-2007-2012>
- Lim, S., Lee, M., Kim, S. (2018) Sulfate alters aerosol absorption properties in East Asian outflow, *Scientific Reports*, 8, 5172. <https://doi.org/10.1038/s41598-018-23021-1>
- Liu, Z.R., Gao, W.K., Yu, Y.C., Hu, B., Xin, J.Y., Sun, Y., Wang, L.L., Wang, G.H., Bi, X.H., Zhang, G.H., Xu, H.H., Cong, Z.Y., He, J., Xu, J.S., Wang, Y.S. (2018) Characteristics of PM_{2.5} mass concentrations and chemical species in urban and background areas of China: emerging results from the CARE-China network, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18, 8849-8871. <https://doi.org/10.5194/acp-18-8849-2018>
- Monks, P.S., Granier, C., Fuzzi, S., Stohl, A., Williams, M.L., Akimoto, H., Amann, M., Baklanov, A., Baltensperger, U., Bey, I., Blake, N., Blake, R.S., Carslaw, K., Cooper, O.R., Dentener, F., Fowler, D., Fragkou, E., Frost, G.J., Generoso, S., Ginoux, P., Grewe, V., Guenther, A., Hansson, H.C., Henne, S., Hjorth, J., Hofzumahaus, A., Huntrieser, H., Isaksen, I.S.A., Jenkin, M.E., Kaiser, J., Kanakidou, M.,

- Klimont, Z., Kulmala, M., Laj, P., Lawrence, M.G., Lee, J.D., Liousse, C., Maione, M., McFiggans, G., Metzger, A., Mieville, A., Moussiopoulos, N., Orlando, J.J., O'Dowd, C.D., Palmer, P.I., Parrish, D.D., Petzold, A., Platt, U., Poschl, U., Prevot, A.S.H., Reeves, C.E., Reimann, S., Rudich, Y., Sellegri, K., Steinbrecher, R., Simpson, D., ten Brink, H., Theloke, J., van der Werf, G.R., Vautard, R., Vestreng, V., Vlachokostas, C., von Glasow, R. (2009) Atmospheric composition change - global and regional air quality, *Atmospheric Environment*, 43(33), 5268-5350. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2009.08.021>
- Organization for Economic Cooperation and Development (OECD) (2016) The economic consequences of outdoor air pollution, OECD ilibrary, https://www.oecd-ilibrary.org/environment/the-economic-consequences-of-outdoor-air-pollution_9789264257474-en
- Park, H., Jo, Y.M. (2013) Regulation standard of fine particles and control techniques of emission sources, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 29(4), 486-503 (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2013.29.4.486>
- Peterson, D.A., Hyer, E.J., Han, S.-O., Crawford, J.H., Park, R.J., Holz, R., Kuehn, R.E., Eloranta, E., Knote, C., Jordan, C.E., Lefer, B.L. (2019) Meteorology influencing springtime air quality, pollution transport, and visibility in Korea. *Elementa: Science of the Anthropocene*, 7, 57. <https://doi.org/10.1525/elementa.395>
- World Health Organization (WHO) (2018) The top 10 causes of death. <https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/the-top-10-causes-of-death>
- Yu, G.H., Park, S.S., Jung, S.A., Jo, M.R., Lim, Y.J., Shin, H.J., Lee, S.B., Ghim, Y.S. (2018) Investigation on Characteristics of High PM_{2.5} Pollution Occurred during October 2015 in Gwangju, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(4), 567-587 (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.4.567>
- Yu, G.-H., Park, S.-S., Ghim, Y.S., Shin, H.J., Ban, S.J., Yu, J.A., Kang, H.J., Seo, Y.K., Kang, K.S., Jo, M.R., Jung, S.A., Lee, M.H., Hwang, T.K., Kang, B.C., Kim, H.S. (2018) Difference in Chemical Composition of PM_{2.5} and Investigation of its Causing Factors between 2013 and 2015 in Air Pollution Intensive Monitoring Stations, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(1), 16-37 (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.1.016>
- Zhang, R., Wang, G., Guo, S., Zamora, M.L., Ying, Q., Lin, Y., Wang, W., Hu, M., Yang, Y. (2015) Formation of urban fine particulate matter, *Chemical Review*, 115(10), 3803-3855. <https://doi.org/10.1021/acs.chemrev.5b00067>
- Zhang, Q., Zheng, Y., Tong, D., Shao, M., Wang, S., Zhang, Y., Xu, X., Wang, J., He, H., Liu, W., Ding, Y., Lei, Y., Li, J., Wang, Z., Zhang, X., Wang, Y., Cheng, J., Liu, Y., Shi, Q., Yan, L., Geng, G., Hong, C., Li, M., Liu, F., Zheng, B., Cao, J., Ding, A., Gao, J., Fu, Q., Huo, J., Liu, B., Liu, Z., Yang, F., He, K., Hao, J. (2019) Drivers of improved PM_{2.5} air quality in China from 2013 to 2017, *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America (PNAS)*, 116(49), 24463-24469.
- Zhao, P.S., Dong, F., He, D., Zhao, X.J., Zhang, X.L., Zhang, W.Z., Yao, Q., Liu, H.Y. (2013) Characteristics of concentrations and chemical compositions for PM_{2.5} in the region of Beijing, Tianjin, and Hebei, China, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 4631-4644. <https://doi.org/10.5194/acp-13-4631-2013>

Authors Information

- 김주애 (고려대학교 지구환경과학과 연구교수)
 임세희 (고려대학교 지구환경과학과 연구교수)
 Xiaona Shang (고려대학교 지구환경과학과 연구교수)
 이미혜 (고려대학교 지구환경과학과 교수)
 강경식 (국립환경과학원 제주 대기환경연구소 연구사)
 김영성 (한국외국어대학교 환경학과 교수)

SUPPLEMENTARY MATERIALS

Table S1. Summary of yearly average PM_{2.5} and inorganic ions and organic compounds.

	2013	2014	2015	2016
PM _{2.5} (μgm ⁻³)	19.3 ± 18.5	19.7 ± 17.0	16.0 ± 14.9	13.9 ± 13.1
PM ₁₀ (μgm ⁻³)	30.2 ± 29.8	30.0 ± 29.9	29.5 ± 28.5	24.7 ± 22.2
NO ₃ ⁻ (μgm ⁻³)	1.35 ± 2.56	0.88 ± 1.57	1.16 ± 2.57	0.72 ± 1.87
SO ₄ ²⁻ (μgm ⁻³)	4.65 ± 4.41	3.57 ± 3.84	3.92 ± 3.89	2.00 ± 2.38
NH ₄ ⁺ (μgm ⁻³)	2.15 ± 1.99	1.51 ± 1.75	1.53 ± 1.93	0.89 ± 1.31
Cl ⁻ (μgm ⁻³)	0.17 ± 1.97	0.16 ± 0.21	0.13 ± 0.18	0.08 ± 0.12
Na ⁺ (μgm ⁻³)	0.34 ± 0.23	0.24 ± 0.19	0.18 ± 0.15	0.07 ± 0.07
K ⁺ (μgm ⁻³)	0.19 ± 0.21	0.11 ± 0.17	0.11 ± 0.15	0.06 ± 0.07
Mg ²⁺ (μgm ⁻³)	0.03 ± 0.03	0.03 ± 0.04	0.02 ± 0.02	0.01 ± 0.01
Ca ²⁺ (μgm ⁻³)	0.11 ± 0.15	0.08 ± 0.16	0.04 ± 0.06	0.02 ± 0.02
OC (μgCm ⁻³)	2.40 ± 2.00	3.07 ± 2.10	3.18 ± 2.47	2.77 ± 1.79
EC (μgCm ⁻³)	0.75 ± 0.64	0.84 ± 0.62	0.85 ± 0.55	0.92 ± 0.53

Table S2. Comparison of Jeju (J) and Seoul (S) 1 hour average PM_{2.5} mass and concentrations of major components during 5 PM_{2.5} episodes. (unit : μgm⁻³)

	PM _{2.5}		SO ₄ ²⁻		NO ₃ ⁻		NH ₄ ⁺		OC		EC	
	S	J	S	J	S	J	S	J	S	J	S	J
	Mean (Max)				Mean (Ratio)							
1. Winter 2014 (2014/02/20 ~03/04)	86.3 (200)	32.7 (116)	18.7 (0.22)	-	16.8 (0.19)	-	12.3 (0.14)	-	8.2 (0.09)	6.1 (0.19)	2.9 (0.03)	1.6 (0.05)
2. Winter 2013 (2013/01/11 ~01/24)	72.5 (171)	28.1 (125)	12.5 (0.17)	4.7 (0.17)	15.6 (0.22)	1.0 (0.04)	7.7 (0.11)	1.7 (0.06)	6.6 (0.09)	3.5 (0.12)	3.1 (0.04)	1.1 (0.04)
3. Fall 2015 (2015/10/16 ~10/24)	59.6 (123)	31.0 (125)	13.0 (0.22)	8.0 (0.26)	10.9 (0.18)	1.4 (0.05)	9.0 (0.15)	3.6 (0.12)	7.3 (0.12)	3.7 (0.12)	2.7 (0.05)	1.1 (0.04)
4. Spring 2014 (2014/04/09 ~04/18)	69.4 (166)	22.0 (50)	16.7 (0.24)	-	15.6 (0.22)	-	10.2 (0.15)	-	4.7 (0.07)	1.8 (0.08)	2.5 (0.04)	0.6 (0.03)
5. Summer 2013 (2013/07/25 ~07/29)	71.7 (153)	27.9 (79)	19.8 (0.28)	9.0 (0.32)	2.3 (0.03)	2.3 (0.08)	9.5 (0.13)	4.1 (0.12)	3.3 (0.05)	3.3 (0.12)	1.6 (0.02)	1.1 (0.04)