

논문

제주도 고산지역 대기 라돈과 미세먼지 농도의 변동 특성: 2016~2020년 측정

Concentration Variability of Atmospheric Radon and Particulate Matter at Gosan Site in Jeju Island during 2016–2020

송정민, 양효선, 김원형, 강창희*, S. Chambers¹⁾

제주대학교 화학·코스메틱스학과, ¹⁾호주핵과학기술기구 (ANSTO)

Jung-Min Song, Hyo-Sun Yang, Won-Hyung Kim,
Chang-Hee Kang*, S. Chambers¹⁾

Department of Chemistry and Cosmetics, Jeju National University, Jeju, Republic of Korea

¹⁾Australian Nuclear Science and Technology Organisation, Locked Bag 2001,

Kirrawee DC, NSW 2232, Australia

접수일 2021년 11월 11일
수정일 2021년 11월 22일
채택일 2021년 11월 23일

Received 11 November 2021

Revised 22 November 2021

Accepted 23 November 2021

*Corresponding author

Tel : +82-(0)64-754-3540

E-mail : changhee@jejunu.ac.kr

Abstract In this study, based on the results of real-time monitoring of ^{222}Rn at the Gosan site in Jeju Island, Korea from 2016 to 2020, its background concentration and time series fluctuation characteristics were investigated. In addition, by comparing the variations of ambient radon and fine particle concentrations according to the inflow path of airflow, the possibility of using radon tracer to understand the long-range transport of air pollutants was estimated. The daily-mean concentration of atmospheric radon was $2,507 \text{ mBq m}^{-3}$. On monthly variations, the mean concentration of radon in November was $3,229 \text{ mBq m}^{-3}$, the highest as almost twice as that in July ($1,650 \text{ mBq m}^{-3}$). The cyclic seasonality showed to be the maximum in winter and the minimum at summer with 1.5 times difference, that was consistent with the reduction in continental fetch going to summer. On the diurnal variations, the radon concentration has increased during the nighttime with the maximum ($2,871 \text{ mBq m}^{-3}$) around 6 a.m., and then gradually decreased throughout the daytime with the minimum ($2,051 \text{ mBq m}^{-3}$) around 3 p.m. During the winter season, radon's daily variations showed relatively small fluctuations due to little change in atmospheric mixing depth. By contrast, a large amplitude was observed in summer due to a relatively large variability in mixing depth. On the cluster back-trajectories of air masses, the radon concentrations from China continent were as about twice as high mostly than those from the North Pacific Ocean. Interestingly, the high PM_{10} concentration was found as the high radon concentrations.

Key words: Radon-222, Particulate matter, Gosan site, Cluster back-trajectory, Continental fetch

1. 서론

라돈(^{222}Rn)은 대표적인 천연방사성 핵종으로 인공 방사성 물질과 달리 암석, 토양, 지하수 등 자연에 널리 분포한다(Choi *et al.*, 2009; Vinson *et al.*, 2008). 불활성 기체라서 화학적으로 반응성이 낮고 대류에 의해 대기 중에 넓게 확산되는 특성이 있다(Moon *et al.*, 2009). 우라늄(^{238}U)의 붕괴사슬 과정에서 발생하며,

직접적으로는 라듐(^{226}Ra)의 α -붕괴에 의해 생성된다. 그리고 3.82일의 반감기와 α -붕괴(4회), β -붕괴(4회)를 거쳐 납(^{206}Pb)으로 안정화된다. 주요 동위원소로는 ^{232}Th 의 붕괴 과정에서 발생한 ^{220}Rn (thoron)과 ^{235}U 의 붕괴에서 유래된 ^{219}Rn (actinon)이 있다. 그러나 이들 두 동위원소의 반감기는 각각 55초, 4초로 매우 짧아서 대기 중 라돈은 대부분 ^{222}Rn 으로 존재하며 방사성 붕괴를 일으켜 대기에서 제거(Crawford *et al.*,

2015)된다. 세계기상기구(WMO) 지구대기감시(GAW) 프로그램에서는 이러한 라돈과 함께 크립톤(^{85}Kr), 납(^{210}Pb), 벨릴륨(^7Be)을 주요 방사성 물질(WMO/GAW, 2004; WMO/GAW, 2001)로 지정하여 지속적으로 관측하도록 권장하고 있다.

자연계에 널리 분포하는 라돈은 방사성 물질로 관리가 필요하다(Almeida *et al.*, 2004). 라돈의 모핵종인 우라늄은 주요 지각물질 성분이기 때문에 라돈은 대부분 지하나 실내 공간에서 높은 농도를 보이고 대기 중에서는 미량 농도로 존재한다. 또 공기보다 무거워서 지표면에서 농도가 더 높고 쉽게 인체에 흡입되어 위해성을 나타낸다. 대체적으로 인체 노출 방사선의 약 85%가 자연방사능이고, 이 중 50% 이상이 라돈에 기인하는 것으로 나타나고 있다(Kim *et al.*, 2019; UNSCEAR, 1988).

라돈의 붕괴 과정에서 생성되는 자핵종들 역시 방사선을 방출한다. 라돈이 체내에 흡수되면 짧은 반감기를 나타내는 자핵종들이 생성되어 폐 내부에 침착되고, 지속적으로 방사능을 방출하여 폐암을 유발한다. 특히 라돈 붕괴 과정에서 생성되는 ^{214}Po 과 ^{218}Po 자핵종은 폐에 장시간 잔류하며 방사선을 방출하여 폐암을 유발한다(Choi *et al.*, 2009). 또 라돈 자핵종은 정전기를 띤 상태로 쉽게 미세먼지나 담배연기에 흡착되기 때문에 에어로졸 형태로 폐에 침착되어 방사선 방출에 의해 조직 손상과 암을 유발한다(Miles, 1988). 국제암연구소는 라돈을 인체 발암성이 확인된 1급 발암물질로 분류하고 있다. 또 미국 환경청은 라돈을 담배 흡연 다음으로 높은 폐암 원인물질로 지정하고 있고, 미국 과학한림원(National Academy of Sciences, NAS)은 라돈의 영향으로 연간 15,000~25,000명이 폐암으로 사망하고 있다고 보고(US EPA, 2003; NRC, 2000)하고 있다.

우리나라에서는 한국환경정책평가연구원이 BEIR 모형에 의해 폐암 사망에 대한 라돈 영향을 추정하였다. 그 결과 겨울철 폐암 사망률에 대한 라돈의 기여율이 34.4%에 이르는 것으로 추정되었다(KEI, 2014). 특히, 2018년 라돈 침대 사태로 국내에서도 라돈에 대

한 관심이 크게 고조되면서 실내 라돈 저감을 위해 다각적으로 노력하고 있다(Kim and Cho, 2020). 최근에는 코로나-19로 인해 실내에 머무르는 시간이 더욱 증가하면서 실내환경과 라돈을 포함한 실내 오염물질에 관심이 높아지고 있다.

국내에서 라돈의 관리, 감시는 실내 또는 지하 공간이 주요 대상이고, 대기 중의 라돈을 모니터링하기 위한 연구는 거의 이루어지지 않고 있다. 대기 라돈 모니터링은 방사성 물질의 관리를 위해서는 물론 기단 이동을 추적, 관찰하기 위한 목적으로 이루어지고 있다. 라돈은 대기 중에서 주요 오염물질과 비슷한 수명을 나타내고 기류를 따라 이들과 유사한 이동경로를 나타낸다. 이는 물에 녹지 않고 습도, 온도, 일사량에도 안정하며, 화학적으로도 불활성이라서 미세먼지나 가스상 오염물질들과 유사한 대기 수명과 장거리 이동 특성을 보이기 때문이다. 따라서 라돈은 대기 오염물질의 이동 특성을 파악하기 위한 추적자로 활용할 수 있다. 특히 청정지역에서 라돈 배경농도를 측정할 경우, 대륙이나 해양에서 이동하는 기단에 대한 유용한 정보를 얻을 수 있다(Zhang *et al.*, 2021; Zahorowski *et al.*, 2004).

우리나라는 아시아대륙에서 편서풍의 풍하 방향에 위치하고 있어서 대륙, 특히 중국에서 유입되는 대기 오염물질 영향을 많이 받고 있다. 따라서 이러한 오염물질의 장거리 이동과 경로를 파악할 필요가 있고, 라돈을 추적자로 이용하여 이러한 정보를 수집하기 위한 연구가 필요하다. 특히, 제주지역은 연중 75% 정도가 아시아대륙에서 이동하는 기류의 영향을 받고 있다(Crawford *et al.*, 2015). 또한 국내에서도 자체오염원의 영향이 거의 없는 대표 배경지역이다. 따라서 제주도 고산측정소에서 라돈 장기 모니터링을 통해 라돈을 장거리 이동 오염물질 수송 추적자로 활용할 수 있는 방안을 모색하는 것은 의미 있는 연구이다.

호주핵과학기술기구(Australian Nuclear Science and Technology Organisation, ANSTO)는 오래전부터 WMO의 GAW 관측소를 중심으로 세계 주요 30여 지점에 고감도 라돈 검출기를 설치, 운용(Chambers

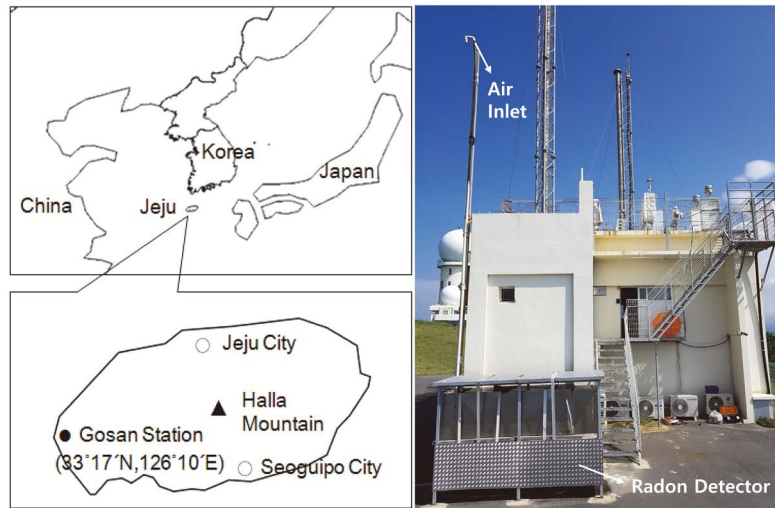


Fig. 1. Installation of the radon detector (ANSTO, D1500, Australia) at Gosan station in Jeju Island.

et al., 2014; Zahorowski et al., 2004)하고 있으며, 라돈 농도를 실시간 모니터링하고 있다. 국내에서 대기 중의 라돈을 모니터링하기 위한 연구는 2001년에 실시한 'ACE-Asia' 프로그램 (Huebert et al., 2003)의 일환으로 제주도 고산측정소에서 측정을 시작하였다. 그리고 이후 ANSTO와 공동연구를 통해 지금까지 21년간 지속적으로 대기 배경농도를 모니터링해오고 있다 (Kim et al., 2014; Ko et al., 2013; Kang et al., 2012).

본 연구에서는 2016년부터 2020년까지 제주도 고산측정소에서 라돈을 실시간으로 모니터링한 결과를 기초로 대기 라돈 배경농도와 시계열 변동 특성을 조사하였다. 그리고 기류의 유입경로에 따라 대기 라돈과 미세먼지 농도의 변동성을 상호 비교함으로써 대기오염물질의 장거리 수송 현상을 이해하기 위한 라돈 추적자 활용 가능성을 검토하고자 하였다.

2. 연구 방법

2.1 대기 라돈 모니터링

대기 라돈 모니터링은 제주도 서쪽 끝 지점의 수월봉 (33°17'N, 126°10'E, 제주도 제주시 한경면 고산리)

에 위치한 '기상청 고산기후변화감시통합운영실'에서 수행하였다. 대기 라돈 측정을 위한 시료 흡입구는 50 mm 직경의 HDPE 파이프를 지상에서 10 m 높이로 설치하였고, 공기 유량은 대략 100 L/min 되도록 조절하였다(그림 1).

대기 극미량 라돈은 사전에 다른 동위원소와 자핵종을 적절히 배제시킨 후 ^{222}Rn 만을 선택적으로 검출하여 농도를 측정한다. 일반적으로 다른 자핵종들은 필터를 사용하여 제거하며, 토론 (^{220}Rn) 동위원소는 thoron delay chamber를 사용하여 제거하고 악티논 (^{219}Rn)은 무시된다. 그리고 최종적으로 ^{222}Rn 은 decay chamber 내부를 순환시키면서 생성된 ^{218}Po 자핵종 (반감기 3.05분)을 특수 2차 필터에 포집하여 여기서 방출된 α -선을 scintillation detector로 측정한다 (WMO/GAW, 2001; Whittlestone and Zahorowski, 1998).

본 연구에서 대기 라돈 농도는 호주핵과학기술기구 (ANSTO)에서 연구용으로 자체 제작 (Whittlestone and Zahorowski, 1998)한 고감도 라돈 검출기 (모델 D1500, 1500 L dual flow loop, two filter radon detector)를 이용하여 2016년 1월부터 2020년 12월까지 실시간 (30분 간격)으로 측정하였다. 이 검출기는 동력 펌프를 통해 외부 공기를 유입하고 셀 내부에서 1차

필터를 통과한 라돈과 라돈 자핵종으로부터 방출된 알파입자를 측정하는 방식이다. 이렇게 발생한 알파 입자는 ZnS(Ag)와의 충돌에 의해 섬광을 일으키고, 이를 광전증배관(PMT)으로 검출하여 섬광횟수를 계수하도록 제작되었다. 본 연구에 사용한 라돈 검출기는 감도(Sensitivity)가 $0.28 \sim 0.29 \text{ counts} \cdot \text{sec}^{-1} / \text{Bq m}^{-3}$ 이며, 저검출한계(Low limit of detection)는 $25 \sim 30 \text{ mBq m}^{-3}$ 이다. 측정 결과는 30분 간격 실시간으로 라돈 검출시스템에 내장된 데이터로거(Campbell Scientific, 모델 CR800)와 컴퓨터에 저장하였다.

검출기의 검정은 월 1회 주기로 실시하였으며, 매달 1일 오전 9시부터 5시간 단위로 수행하였다. 기기 검정용 표준물질은 ^{226}Ra ($18.5 \pm 4\%$ kBq, Pylon Electronic Inc., 모델 RN-2000A, Canada)를 이용하였다. 또한 검출기의 바탕(background) 값은 3개월 주기로 공기유입을 차단한 상태에서 24시간 동안 기기의 바탕농도를 측정하여 결정하였다. 이때 바탕 값은 검출기의 2차 특수필터에 포착된 ^{210}Pb (반감기 22.3년) 등의 라돈 자핵종의 영향으로 연구 기간 동안 시간이 경과할수록 서서히 높아지는 결과를 나타내었다.

2.2 역궤적 분석

역궤적 분석을 통해 대기 라돈의 이동경로를 추적하였다. 역궤적 분석은 미국해양대기국(NOAA/ARL) 제공 프로그램인 HYSPLIT 4.0 (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) 모델을 이용하였다. 역궤적 출발점은 고도 72 m, 출발시간은 해당일 00 UTC (KST 09:00)로 설정하였고, 제주도 고산지역을 도착지점($33^{\circ}17'\text{N}$, $126^{\circ}10'\text{E}$)으로 설정하여 120시간의 역궤적 경로를 모사하였다. 또한 기류 유입경로별로 라돈 농도를 비교하기 위하여 역궤적 분석(Draxler and Rolph, 2013) 결과를 기초로 역궤적 군집분석을 실시하였다. 역궤적 분석 시 자료는 미국 NCEP (National Center for Environmental Prediction), 중규모 기상모델(MRF)인 GDAS (global data assimilation system) 기상 데이터를 이용하였다(http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT_traj.php).

3. 결과 및 고찰

3.1 고산지역 대기 라돈 농도

기단의 발원 환경에 따라 대기 중에서의 농도는 큰 차이를 보인다. 일반적으로 지각으로부터 발생되기 때문에 해양 플렉스 대기에 비해 대륙 상공 대기에서 더 높은 농도를 보이고, 최대 100배까지(WMO/GAW, 2001) 큰 차이를 보이기도 한다. 이처럼 대기 중 라돈 농도는 실내에 비해 훨씬 낮은 수준이기 때문에 극미량 측정이 가능한 고감도 검출 시스템을 이용해야 측정할 수 있다. 2016년부터 2020년까지 제주도 고산지역에서 ANSTO의 고감도 라돈 검출기를 이용하여 측정한 라돈의 일평균 농도는 그림 2와 같다. 연구 기간의 라돈 평균농도는 $2,507 \pm 1,296 \text{ mBq m}^{-3}$ (0.068 pCi/L)으로 2010~2015년에 측정한 $2,394 \pm 1,236$

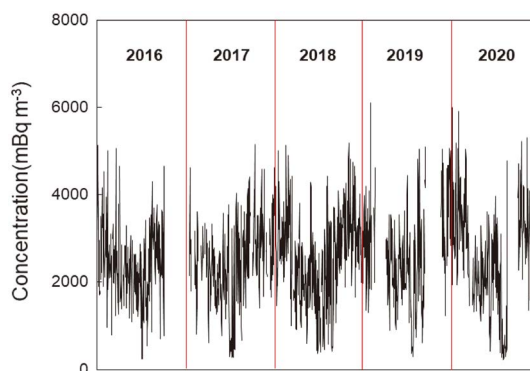


Fig. 2. Variation of the daily-mean radon concentrations between January 2016 and December 2020.

Table 1. Yearly-mean and distributions of the radon concentrations based on hourly data between January 2016 and December 2020.

Year	Concentration (mBq m^{-3})			
	Mean $\pm$ SD	10 th percentile	Median	90 th percentile
2016	$2,364 \pm 1,128$	1,081	2,217	3,857
2017	$2,405 \pm 1,203$	979	2,297	3,970
2018	$2,539 \pm 1,326$	880	2,410	4,278
2019	$2,580 \pm 1,402$	941	2,416	4,400
2020	$2,625 \pm 1,368$	902	2,478	4,510

mBq m⁻³ (Song *et al.*, 2018)와 비슷한 수준을 보였다. 그러나 측정장소가 배경지역이고 지상 10 m 높이에서 측정한 결과이기 때문에 실내 라돈 농도와는 큰 차이를 보였다. 2013~2014년에 측정한 우리나라의 실내 라돈 농도는 전국 평균이 106.4 Bq m⁻³ (2.9 pCi/L) (Lee *et al.*, 2016)로 고산지역보다 42배 더 높았다. 또 이 시기의 제주지역 실내 농도는 평균 88.4 Bq m⁻³ (2.4 pCi/L)로 약 35배의 차이를 보이고 있다.

국내 라돈 측정은 주로 실내와 지하 공간을 중심으로 이루어지고 있어서 고산과 비교할 수 있는 대기 라돈 데이터는 거의 없는 실정이다. 단지 Kim *et al.* (2007)이 1999년 12월~2002년 1월에 능동형 ERM (Electrostatic Radon Monitor)을 이용하여 서울 시내에서 측정한 결과만이 발표되어 있다. 이 시기 서울의 라돈 농도는 7,620 mBq m⁻³로 고산측정소 결과에 비해 3배 정도 더 높은 수준을 나타내고 있다.

외국 청정지역의 경우를 보면, ANSTO 연구팀이 2004~2010년에 하와이 Mauna Loa에서 측정한 농도가 102 mBq m⁻³로 고산보다 대략 24배 더 낮은 수준을 보이고 있다 (Chambers *et al.*, 2013). 그러나 Mauna Loa의 경우 측정소 고도가 3,397 m로 아주 높고 대륙의 영향이 거의 없는 환경이다. 그리고 태평양 중앙에 위치하여 상시 해양기류의 영향을 받고 있기 때문에 이를 고산과 단순 비교하는 것은 무리가 있다. 반면에 일본의 배경지역인 Sado Island에서 2002~2004년에 측정한 결과 (Chambers *et al.*, 2009)는 2,555 mBq m⁻³로 고산지역과 아주 유사한 수준을 보이는 것으로 확인되었다. 또한 이와 동일한 기간에 홍콩의 Hok Tsui에서 측정한 결과 (Zahorowski *et al.*, 2005)는 5,580 mBq m⁻³로 고산지역에 비해 2배 정도 더 높았고, 이 지역은 중국대륙에서 이동하는 기류 (continental fetch)의 영향을 더 직접적으로 받고 있는 것으로 추정된다.

반면에 도시지역의 대기 라돈 농도는 고산지역의 결과에 비해 훨씬 높은 농도를 나타내고 있다. 홍콩의 King's Park 기상관측소에서 Chan *et al.* (2010)이 2007년 11월~2008년 10월에 측정한 결과는 9.3 Bq m⁻³이

고, 이탈리아의 L'Aquila에서는 9.7 Bq m⁻³로 훨씬 더 높은 농도를 보이고 있다 (Pitari *et al.*, 2014). 더욱이 2011년에 루마니아 남부수도인 Bucharest 지역에서 Zoran *et al.* (2014)이 측정한 라돈 농도는 40.26 Bq m⁻³까지 상승하여 고산지역에 비해 16배나 더 높은 경향을 보이고 있다. 이러한 결과들을 종합해 보면, 고산지역의 대기 라돈은 국내에서는 가장 낮은 수준을 나타내는 것으로 추정되며, 비교적 배경지역의 특성을 잘 유지하고 있는 것으로 평가된다.

3.2 대기 라돈 시계열 변동 특성

3.2.1 월별, 계절별 농도 변화

2016년부터 2020년까지 측정한 라돈 농도를 월별로 비교하였고, 그 결과를 그림 3에 나타내었다. 그림에서 평균농도는 5년 연구 기간의 시간별 농도를 월별로 평균한 값이다. 그리고 고농도와 저농도 시의 시계열 변화를 비교하기 위하여 데이터를 중앙값 및 90, 75, 25, 10분위수로 구분하여 비교한 결과이다. 그림과 같이 연구 기간의 월별 농도는 Nov > Oct > Jan > Dec > Feb > Mar > Sep > Jun > Apr > Aug > May > Jul의 순으로, 11월에 3,229 mBq m⁻³로 가장 높고, 7월에는 1,650 mBq m⁻³로 훨씬 낮은 변동 특성을 보였다. 또 월별로 고농도와 저농도 시의 시계열 변화를 90분위수와 10분위수로 나누어 농도 변화 특성을 비교하

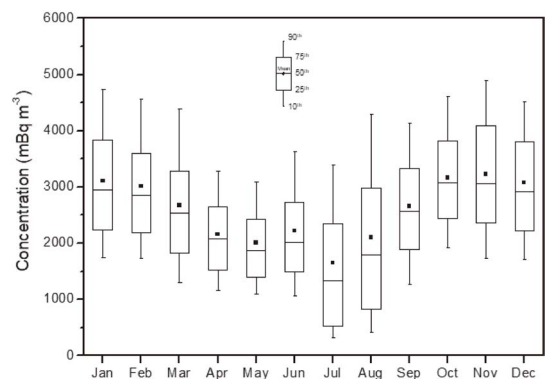


Fig. 3. Monthly variation of the radon concentrations compared by box and whisker plot at Gosan site.

었다. 그 결과 90분위수의 라돈 고농도는 4월과 5월에 평균농도 추세에 비해 다소 낮고, 8월에는 오히려 높은 경향을 나타내어 이 원인에 대한 검토가 더 필요해 보인다. 반면에 10분위수 라돈 농도는 전체적으로 평균값과 유사한 변화 패턴을 보이고 있다.

연구 기간의 계절별 농도를 그림 4에 나타내었다. 계절별 평균농도는 겨울철에 $3,070 \text{ mBq m}^{-3}$ 로 가장 높고, 그 다음으로 가을 $3,003 \text{ mBq m}^{-3}$, 봄 $2,219 \text{ mBq m}^{-3}$, 여름 $1,990 \text{ mBq m}^{-3}$ 순이었다. 이러한 경향은 2010~2015년에 고산측정소에서 측정한 결과와도 잘 일치 (Song *et al.*, 2018)하는 결과이며, 공기가 대륙 또는 해양에서 유입되는 계절풍의 특성을 잘 반영하고 있는 것으로 보인다. 라돈은 압력과 온도 차에 의해 확산과 대류를 통해 지각물질로부터 대기 중으로 방출되어 부유된다. 따라서 북서계열 바람이 주풍향인 가을과 겨울철에 유입 영향을 많이 받아 농도가 높아지는 경향을 보인다. 반면에 남동 계절풍의 영향으로 해양에서 제주지역으로 공기가 이동하는 여름철에는 라돈 농도가 낮았고, 겨울과 여름에 1.5배 이상의 차이를 나타내었다.

혼합고 높이 (mixing depth)는 대기 오염물질의 누적과 확산, 그리고 희석에 중요한 역할을 하며, 대기경계층 (PBL)은 대기물질의 연직 분포에 영향 (Duckworth and Sandberg, 1954)을 미친다. 혼합고 높이는 일반적으로 기온이 낮은 가을과 겨울철에 낮고, 상대

적으로 기온이 높은 봄과 여름철에는 높은 경향은 보인다 (Kim *et al.*, 1985). 따라서 대기 중의 라돈 농도는 계절별로 이러한 혼합고 높이에 영향을 받게 된다. 즉, 겨울과 가을철에는 농도가 높으나 반대로 봄과 여름에는 농도가 더 낮아지는 경향을 나타낼 것으로 추정된다. 라돈 농도가 가을, 겨울에 높고 상대적으로 봄, 여름에 낮은 경향을 보이는 것은 이러한 대기경계층의 이동도 영향을 미치는 것으로 판단된다.

3.2.2 일간 농도 변화

연구 기간의 라돈 농도 일간 변화를 그림 5에 비교하였다. 그림의 결과와 같이 일간 라돈 농도는 이른 아침부터 서서히 낮아져서 오후에 최소농도를 보이다가 저녁부터 다시 상승하기 시작하여 밤중에는 점차로 높아지는 패턴을 보이고 있다. 오전 6시경에 라돈 농도가 $2,871 \text{ mBq m}^{-3}$ 로 일간 가장 높았고, 오후 3시경에는 $2,051 \text{ mBq m}^{-3}$ 로 가장 낮은 결과를 나타내었다. 이러한 일간 변화는 Pitari *et al.* (2014)이 이탈리아의 L'Aquila에서 측정한 결과에서도 유사한 패턴을 보이는 것으로 확인되었다.

이러한 일간 농도 변화는 주야 온도 차이가 대기 혼합고에 영향을 미쳤기 때문인 것으로 판단된다. 일반적으로 낮에는 대기 혼합고가 대기경계층까지 높아져 오염물질이 균일한 연직 분포를 나타내지만, 밤에는

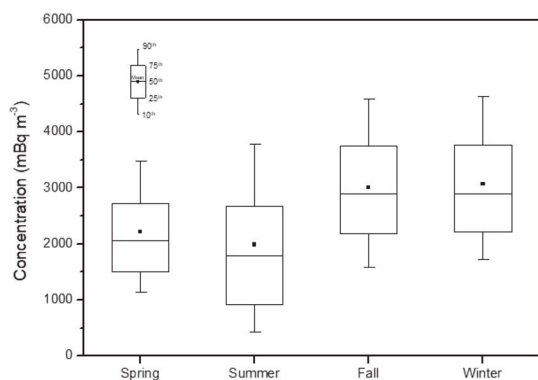


Fig. 4. Seasonal comparison of the radon concentrations by box and whisker plot at Gosan site.

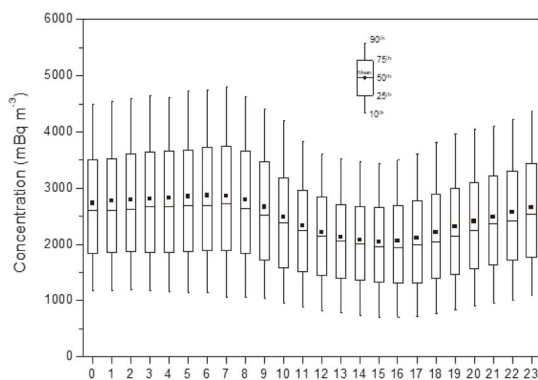


Fig. 5. Diurnal variation of the radon concentrations compared by box and whisker plot at Gosan site for the study period.

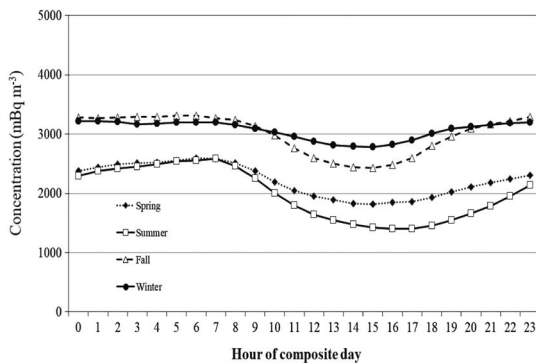


Fig. 6. Seasonal breakdown of the diurnal radon cycles at Gosan site expressed as hourly-mean values for the 5-year composite.

지표면에 복사역전층이 형성되어 혼합고가 역전층보다 낮아지고 연직 혼합이 어려운 경향을 보이는 것으로 알려져 있다(Kim *et al.*, 1985). 본 연구에서 주간에는 라돈 농도가 낮지만, 야간에는 농도가 상대적으로 높은 것도 이러한 이유 때문으로 보인다. 즉, 낮에는 혼합고가 확장되어 라돈이 넓고 균일한 연직 분포를 나타내지만, 밤에는 혼합고가 낮아서 라돈이 지표면 가까이에서 농집되고 전체적으로 연직 혼합이 일어나지 않았기 때문으로 추정된다.

또한 계절별로 라돈 농도 변화를 비교하였다(그림 6). 그림의 결과와 같이 계절별로는 라돈 농도의 일간 최대와 최소 차이가 여름에 가장 크고, 상대적으로 겨울에 훨씬 작은 편차를 보이고 있다(Chambers *et al.*, 2016). 이러한 원인 역시 대기 혼합고의 차이에 기인한다. 여름철에는 주야간 온도 차가 큰 편차를 보이지만 겨울철에는 그 편차가 훨씬 작은 결과를 보인다. 따라서 여름철에 주야간 온도 편차가 커서 주간에는 혼합고가 크게 확장되기 때문에 라돈 농도가 더 큰 편차를 보인다. 반면에 겨울철에는 주야간 온도 편차가 작아서 혼합고 차가 작게 나타나고 농도 편차도 상대적으로 작은 경향을 나타낸 것으로 보인다.

3.3 기류 이동경로별 농도 비교

라돈은 화학적으로 매우 안정한 불활성 기체라서

대기 중에서 반응성이 낮고 물에 대한 용해도가 낮아서 빗물에 의한 세정효과도 낮다. 공기보다도 무거워서(약 9배) 고도가 높을수록 더 낮은 농도를 나타낸다. 그리고 대류와 확산에 의해 대기 중에 부유되어 기류를 타고 멀리 이동한다. 또 지각 구성물질인 우라늄으로부터 유래된 자핵종이기 때문에 대륙에서 유입된 기류일 때 토양 영향(terrestrial fetch)으로 더 높은 농도를 보이고, 해양에서 이동한 기류(oceanic fetch)에서는 상대적으로 낮은 농도를 나타낸다(Zahorowski *et al.*, 2004). 특히 라돈은 주요 반응성 대기오염물질과 수명이 비슷하고 대기 체류 시간이 미세먼지와 비슷한 것으로 보고되고 있다(Zoran *et al.*, 2013). 따라서 라돈과 이들 오염물질이 이동경로와 농도가 유사한 변화패턴을 나타낼 것으로 추정된다.

본 연구에서는 2016년 1월부터 2020년 12월까지 라돈 측정 시의 기류 이동을 역궤적 분석을 실시하여 추적하였다. 역궤적 분석은 미국 NOAA의 HYSPLIT4 모델 프로그램과 NCEP의 GDAS 기상 자료를 이용하여 120시간으로 모사하였다. 이러한 역궤적 군집분석 결과를 그림 7에 나타내었다. 역궤적 군집분석 결과에서는 제주도 고산지역으로 유입된 기류의 이동경로를 모두 5개의 군집으로 구분하였다. 그리고 제주도를 중심으로 주변지역을 군집별로 Cluster 1(중국동부), Cluster 2(한반도), Cluster 3(중국북부), Cluster 4(북태평양), Cluster 5(동해)로 분류하여 기류의 이동경로를 조사하였다. 이렇게 구분한 Cluster 1, Cluster 2, Cluster 3, Cluster 4, Cluster 5의 빈도는 각각 22.6%(330회), 34.2%(499회), 20.1%(293회), 14.1%(206회), 9.0%(132회)였다. 이처럼 2016~2020년 연구 기간 총 1,460일 측정일 대부분 중국대륙에서 이동한 기류 유입 빈도가 가장 많았고, 다음으로는 한반도로부터 이동한 유입 횟수가 많았다.

이렇게 5개 군집으로 분류한 역궤적 군집분석에 기초하여 각 군집별 라돈 평균농도를 표 2에 수록하였다. 표의 결과와 같이 라돈은 Cluster 1>Cluster 3>Cluster 5>Cluster 2>Cluster 4 순으로 높은 농도를 보이고 있다. 그리고 기류가 중국에서 제주도로 유입

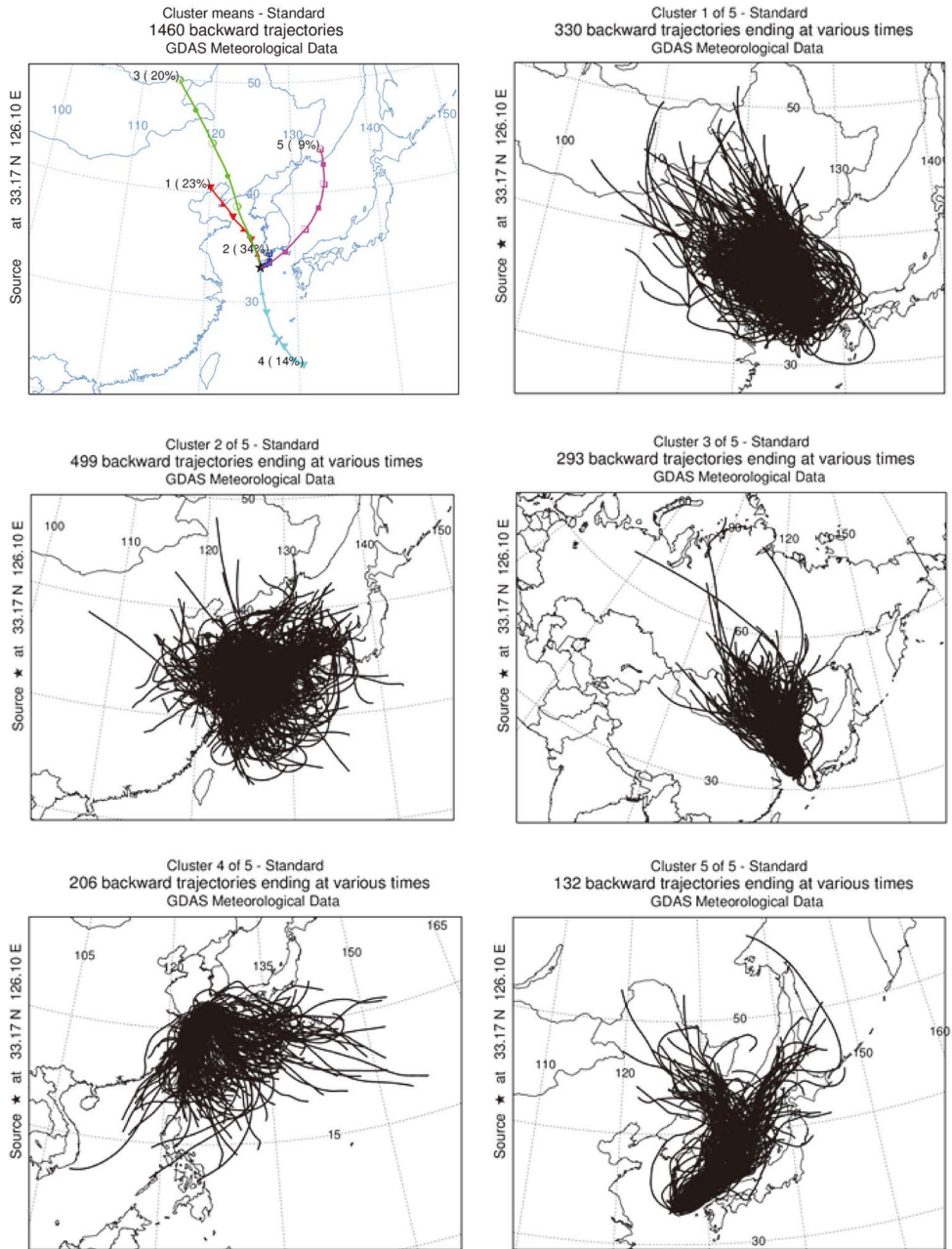


Fig. 7. Cluster back-trajectory of the air masses corresponding to radon monitoring data for the study at Gosan site during 2016~2020.

되었을 때 라돈 농도가 상대적으로 더 높은 경향을 보였다. 반면에 북태평양으로부터 해양기류가 유입 (oceanic fetch)되었을 때에는 대륙에서 공기가 유입

(continental fetch)되었을 때보다 훨씬 더 낮은 농도를 나타내었다.

Table 2. Statistics of the radon concentration data corresponding to cluster back-trajectory.

Pathway	Concentration (mBq m ⁻³)			
	Mean	Median	10 th	90 th
Cluster 1 (n = 330)	2,925	2,895	1,864	4,138
Cluster 2 (n = 499)	2,466	2,426	1,355	3,667
Cluster 3 (n = 293)	2,901	2,806	1,861	4,058
Cluster 4 (n = 206)	1,385	1,217	377	2,716
Cluster 5 (n = 132)	2,564	2,485	1,777	3,453

3. 4 대기 라돈과 PM₁₀ 농도 변화

대기 중에서 라돈은 방사성 붕괴 과정에서 수명이 짧은 ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi, ²¹⁴Po와 수명이 긴 ²¹⁰Pb, ²¹⁰Bi, ²¹⁰Po를 생성 (Bonotto and Padron-Armada, 2008)한다. 그리고 이들 입자들은 대기 에어로졸에 흡착되어 에어로졸 입자와 동일한 성장과 이송 과정을 거치고, 동일한 과정으로 대기에서 제거된다. 연구에 의하면 대기로 이동된 라돈 자핵종들은 특히 수명이 짧은 물 질들이 에어로졸 입자에도 잘 흡수되는 것으로 알려져 있으며, 그 양은 수농도 $N \geq 10^3/\text{cm}^3$ 정도로 보고 되어 있다. 그러나 그 정도는 위치, 시간, 지면 높이, 기 후에 크게 영향을 받으며, ²¹⁰Pb과 다른 라돈 자핵종의 농도 비를 비교하면 에어로졸의 대기 체재 시간을 추정할 수도 있다 (Zoran *et al.*, 2014). 그리고 이러한 결과를 이용하여 라돈을 기단 이동을 확인하는 데 필요한 추적자로 활용할 수도 있다.

라돈과 미세먼지 (PM₁₀)의 관련성을 확인하기 위하여 라돈과 PM₁₀ 농도를 상호 비교하였다. 라돈을 기준으로 그 농도가 높았을 때의 상위 25%, 중간 50%, 그리고 하위 25%로 구분하였고 이들 각각의 평균농도를 비교하였다. 또 이러한 라돈 측정 일시와 동일한 시기의 PM₁₀ 질량농도 평균값을 상호 비교하였고, 그 결과를 표 3에 나타내었다. 이때 PM₁₀ 질량농도는 기상청이 고산측정소에서 β -ray 흡수법으로 측정한 PM₁₀ 자동측정망 데이터를 이용하였다.

표 3의 결과와 같이 라돈 상위 25%-고농도 (n = 365) 시의 평균농도는 3,832 mBq m⁻³이었고, 이와 동일한 시기의 PM₁₀ 미세먼지 질량농도는 평균 29.7

Table 3. PM₁₀ concentrations corresponding to high, medium, and low radon levels.

Concentration level	Radon (mBq m ⁻³)	PM ₁₀ (μg m ⁻³)
High (25%, n = 365)	3,832	29.7
Medium (50%, n = 730)	2,494	27.7
Low (25%, n = 365)	1,235	25.1

μg m⁻³를 나타내었다. 그리고 라돈 중위 50%-중간농도 (n = 730) 시 평균농도는 2,494 mBq m⁻³이고, 이와 동일한 시기의 PM₁₀ 질량농도 평균은 27.7 μg m⁻³이었다. 반면에 라돈 하위 25%-저농도 (n = 365) 평균값은 1,235 mBq m⁻³이었고, 이와 일치하는 PM₁₀ 질량농도는 평균 25.1 μg m⁻³를 나타내었다. 이처럼 라돈 농도를 크기별로 상위, 중위, 하위로 구분하여 이를 동일한 시기의 PM₁₀ 질량농도와 상호 비교한 결과에서 대체로 라돈 농도가 높을수록 PM₁₀ 농도도 같이 상승하는 동일한 추세 변화를 나타내었다.

4. 결 론

제주도 고산지역에서 2016~2020년에 대기 라돈 배경농도를 실시간으로 모니터링한 결과로부터 시계열 변동 특성을 조사하였다. 연구 기간의 대기 라돈 농도는 2,507 mBq m⁻³로 제주지역 실내 라돈보다 35배 정도 낮은 수준을 나타내었다. 월별 평균농도는 11월에 가장 높고, 7월에 가장 낮았으며 이 기간에 대략 2배의 차이를 보였다. 계절별로는 겨울과 가을철에 상대적으로 더 높고 여름철에 낮았으며 대략 1.5배 정도의 편차를 보였다. 일간 농도는 오전 6시경에 2,871 mBq m⁻³로 가장 높고, 오후 3시경에 2,051 mBq m⁻³로 낮았으며, 대기 혼합고 높이에 따라 큰 차이를 보였다.

라돈의 유입경로 확인을 위해 역궤적 군집분석을 실시한 결과 기류가 중국에서 제주도로 유입되었을 때 라돈 농도가 상대적으로 더 높았다. 반면에 북태평양으로부터 해양기류가 유입되었을 때에는 훨씬 더 낮아 제주지역은 대륙에서 이동하는 기류의 영향을 많이 받고 있음을 확인할 수 있었다. 또 라돈과 PM₁₀

농도 변화를 상호 비교해 본 결과 대체로 라돈 농도가 높은 시기에 PM_{10} 농도도 상승하는 경향을 나타내었다. 이러한 결과를 기초로 라돈은 대륙에서 발생해서 제주로 유입하는 오염물질의 이동 경로 확인을 위한 추적자로 활용이 가능할 것으로 보인다.

감사의 글

이 논문은 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임 (2019R1F1A1060405).

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. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2003.10.006>
- Bonotto, D.M., Padron-Armada, P.C. (2008) Radon and progeny (^{214}Pb and ^{214}Bi) in urban water-supply systems of Sao Paulo State, Brazil, *Applied Geochemistry*, 23(10), 2829-2844. <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2008.04.017>
- Chambers, S., Zahorowski, 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. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2008.09.075>
- Chambers, D.S., Zahorowski, W., Williams, A.G., Crawford, J., Griffiths, A.D. (2013) Identifying tropospheric baseline air masses at Mauna Loa Observatory between 2004 and 2010 using Radon-222 and back trajectories, *Journal of Geophysical Research*, 118, 1-13. <https://doi.org/10.1029/2012JD018212>
- Chambers, S.D., Hong, S.B., Williams, A.G., Crawford, J., Griffiths, A.D., Park, S.J. (2014) Characterising terrestrial influences on Antarctic air masses using Radon-222 measurements at King George Island, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(18), 1-36. <https://doi.org/10.5194/acp-14-9903-2014>
- 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. <https://doi.org/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. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2010.02.007>
- 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).
- Crawford, J., Chambers, S., Kang, C.H., Griffiths, A., Kim, W.H. (2015) Analysis of a decade of Asian outflow of PM_{10} and TSP to Gosan, Korea; also incorporating Radon-222, *Atmospheric Pollution Research*, 6(3), 529-539. <https://doi.org/10.5094/APR.2015.059>
- 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. <https://doi.org/10.1175/1520-0477-35.5.198>
- 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
- Environmental Protection Agency (US EPA) (2003) EPA Assessment of Risks from Radon in Homes, EPA 402-R-03-003.
- Huebert, B.J., Bates, T., Russell, P.B., Shi, G., Kim, Y.J., Kawamura, K., Carmichael, G., Nakajima, T. (2003) An overview of ACE-Asia: Strategies for quantifying the relationships between Asian aerosols and their climatic impacts, *Journal of Geophysical Research*, 108, 8633. <https://doi.org/10.1029/2003JD003550>
- 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 and Technology*, 25(1), 7-13, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5806/AST.2012.25.1.007>
- 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, (in Korean with English abstract).
- Kim, M.J., An, S.S., Cho, M.C., Park, S.I., Kim, J.M., Bae, S.J., Cho,

- Y.G., Seo, G.Y. (2019) Distribution characteristics on indoor radon concentration of multiple-use facilities in Gwangju area, *Journal of Odor and Indoor Environment*, 18(2), 177-184, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.15250/joie.2019.18.2.177>
- Kim, M.J., Cho, S.Y. (2020) Evaluation of indoor radon concentration reduction efficiency by air conditioning system, *Journal of Odor and Indoor Environment*, 19(4), 414-421, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.15250/joie.2020.19.4.414>
- 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). <https://doi.org/10.5668/JEHS.2007.33.4.283>
- Kim, W.H., Ko, H.J., Hu, C.G., Lee, H., Lee, C., Chambers, S., Williams, A.G., Kang, C.H. (2014) Background Level of Atmospheric Radon-222 Concentrations at Gosan Station, Jeju Island, Korea in 2011, *Bulletin of the Korean Chemical Society*, 35(4), 1149-1153. <https://doi.org/10.5012/bkcs.2014.35.4.1149>
- Ko, H.J., Sin, S.H., Hu, C.G., Kim, W.H., Kang, C.H., Kang, D.H., Chambers, S. (2013) Time-series Variation of Atmospheric Radon Concentrations at Gosan Site, Jeju Island, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 29(1), 86-96, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2013.29.1.86>
- Korea Environment Institute (KEI) (2014) Estimation of the risk reduction and health benefit of regulating radon level in indoor air quality (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). <https://doi.org/10.15250/joie.2016.15.2.93>
- Miles, J. (1988) Development of maps of radon-prone areas using radon measurements in houses, *Journal of Hazardous Materials*, 61, 53-58. [https://doi.org/10.1016/S0304-3894\(98\)00107-1](https://doi.org/10.1016/S0304-3894(98)00107-1)
- 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, (in Korean with English abstract).
- 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., Carlo, P.D. (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., Kim, K.J., Bu, J.O., Kim, W.H., Kang, C.H., Chambers, S. (2018) Concentration Variation of Atmospheric Radon and Gaseous Pollutants Related to the Airflow Transport Pathways during 2010-2015, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(2), 321-330, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.2.321>
- United Nation Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) (1988) Scientific committee on the effects of atomic radiation, source effects and risks of ionizing radiation. Report to the General Assembly with Annexes. United Nations, New York.
- Vinson, D., Campbell, T.R., Vengosh, A. (2008) Radon transfer from groundwater used in showers to indoor air, *Applied Geochemistry*, 23(9), 2676-2685. <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2008.05.021>
- Whittlestone, S., Zaborowski, 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), 16743-16751. <https://doi.org/10.1029/98jd00687>
- World Meteorological Organization/Global Atmosphere Watch (WMO/GAW) (2001) Global Atmosphere Watch Measurements Guide (No. 143), WMO TD No. 1073.
- World Meteorological Organization/Global Atmosphere 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.
- Zaborowski, 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. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2004.03.033>
- Zaborowski, 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. <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2005.00133>

- Zhang, B., Liu, H., Crawford, J.H., Chen, G., Fairlie, T.D., Chambers, S., Kang, C.-H., Williams, A.G., Zhang, K., Considine, D.B., Sulprizio, M.P., Yantosca, R.M. (2021) Simulation of radon-222 with the GEOS-Chem global model: Emissions, seasonality, and convective transport, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21, 1861-1887. <https://doi.org/10.5194/acp-21-1861-2021>
- Zoran, M.A., Dida, M.R., Zoran, A.T., Zoran, L.F., Dida, A. (2013) Outdoor ²²²Rn concentrations monitoring in relation with particulate matter levels and possible health effects, *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry*, 296(3), 1179-1192. <https://doi.org/10.1007/s10967-012-2259-2>
- Zoran, M., Dida, M.R., Savastru, R., Savastru, D., Dida, A., Ionescu, O. (2014) Ground level ozone (O₃) associated with radon (²²²Rn) and particulate matter (PM) concentra-

tions in Bucharest metropolitan area and adverse health effects, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 300, 729-746. <https://doi.org/10.1007/s10967-014-3041-1>

Authors Information

송정민 (제주대학교 화학·코스메틱스학과 학술연구교수)

양효선 (제주대학교 화학·코스메틱스학과 연구원)

김원형 (제주대학교 화학·코스메틱스학과 교수)

강창희 (제주대학교 화학·코스메틱스학과 교수)

S. Chambers (Australian Nuclear Science and Technology Organisation, Research Scientist)