



한국대기환경학회 미세먼지위원회 대학(원)생 미세먼지 연구논문 공모전 수상작

배경지역(백령도와 제주도) 미세먼지 오염특성 및 장거리 이동 Characteristics of PM_{2.5} Pollution and Long-range Atmospheric Transport in Background Areas (Baengnyeong and Jeju Islands)

이호영, 김남규, 조민재, 이상진, 최진수¹⁾, 강경식¹⁾, 최성득*

울산과학기술원 도시환경공학과, ¹⁾국립환경과학원 기후대기연구부 대기환경연구과

접수일 2022년 4월 6일
수정일 2022년 5월 13일
채택일 2022년 6월 2일

Received 6 April 2022
Revised 13 May 2022
Accepted 2 June 2022

*Corresponding author
Tel : +82-(0)52-217-2811
E-mail : sdchoi@unist.ac.kr

Ho-Young Lee, Nam-Kyu Kim, Min-Jae Jo, Sang-Jin Lee, Jin-Soo Choi¹⁾,
Kyeong-Sik Kang¹⁾, Sung-Deuk Choi*

Department of Urban and Environmental Engineering, Ulsan National Institute of
Science and Technology (UNIST), Ulsan, Republic of Korea

¹⁾Department of Air Quality Research, Climate and Air Quality Research Division,
National Institute of Environmental Research (NIER), Incheon, Republic of Korea

Abstract This study evaluated the characteristics of PM_{2.5} pollution and long-range atmospheric transport (LRAT) at the Baengnyeong and Jeju Air Quality Research Centers in South Korea during 2018~2020. The mean concentration of PM_{2.5} was constant in Baengnyeong but decreased in Jeju owing to COVID-19. The significant seasonal variations of OC, EC, and NO₃⁻ in Baengnyeong and Jeju with the highest concentrations in winter may be due to the influence of high PM_{2.5} episodes. Meanwhile, the concentrations of SO₄²⁻ and NH₄⁺ were constant throughout the year in Baengnyeong, resulting from regional inflow from surrounding areas. The influence of anthropogenic sources and secondary formation of PM_{2.5} increased in summer and decreased in autumn at both sites, which was also observed at other background sites. The dominance of NO₃⁻, K⁺, and Cl⁻ in Baengnyeong was due to the influence of combustion sources and LRAT. The source of SO₄²⁻, NH₄⁺, V, and Ni in Jeju was identified as industrial activities with the highest contribution in summer. The secondary formation of PM_{2.5} with external inflow effects was dominant in Baengnyeong and Jeju. The main emission source area of PM_{2.5} for both Baengnyeong and Jeju was East China (Hebei, Shandong, Jiangsu, and Anhui), but the chemical composition and sources of PM_{2.5} were different between Baengnyeong and Jeju. The result of this study can be a basis for future monitoring and modeling studies on the influence of LRAT in background areas.

Key words: PM_{2.5}, PM_{2.5} components, Background area, LRAT

1. 서 론

중국이나 몽골에서 불어오는 황사와 미세먼지 (PM_{2.5})의 장거리 이동으로 인해, 국내에서 미세먼지 고농도 사례가 빈번하게 발생하고 있다. 이에 따라 국외 유입에 의한 미세먼지 장거리 이동 영향을 파악하기 위한 모니터링과 모델링 연구가 수행되고 있다 (Kim *et al.*, 2021; Lee *et al.*, 2017; Kim *et al.*, 2014; Jeong *et al.*, 2011). 2010년~2017년 국내(백령, 서울,

중부, 호남, 영남, 제주) 연평균 미세먼지 농도 (24.7 μg/m³)에 대한 국외 유입의 영향은 40~65% 수준이었고 (Bae *et al.*, 2020), 2017년 국외 유입 영향은 약 50% 수준이었다 (LTP, 2019). 또한, 인위적 오염원에서 배출되는 SO_x, NO_x, VOCs와 같은 기체상 전구물질도 국내에 유입되어 대기 중 화학반응을 통해 이차 에어로졸을 생성한다 (LTP, 2019; Park *et al.*, 2018; Heo *et al.*, 2016). 국립환경과학원은 국내 배경농도를 파악하고 오염물질의 국외 유입을 파악하기 위해, 1994년 파

도리 측정소를 시작으로 국가배경농도 측정망을 설치·운영하고 있다. 2019년에 기존 7개소(제주 고산리, 인천 덕적도, 인천 백령도, 인천 석모리, 경남 저구리, 경북 태하리, 충남 파도리)의 배경농도측정소가 개편된 후, 2020년에 측정소가 신설되어 총 11개소(전남 가거도, 충남 격렬비열도, 제주 고산리, 전북 말도, 인천 백령도, 전남 안마도, 인천 연평도, 충남 외연도, 인천 울도, 경북 태하리, 전남 흥도)에서 고해상도의 배경지역 오염물질 측정을 수행하고 있다(NIER, 2021). 선행 연구에서는 과거 배경농도측정소 자료를 활용하여 도서지역 대기오염도와 기상조건을 분석하였다(Hwang *et al.*, 2020).

2019년 12월 코로나 19가 발생하면서 전 세계적으로 사회, 경제, 환경 등 다양한 분야에 큰 영향을 미쳤으며, 이와 관련한 대기오염 연구가 활발히 수행되었다(Collivignarelli *et al.*, 2020; Nakada and Urban, 2020; Vuong *et al.*, 2020). 예를 들어, 코로나 19로 봉쇄 정책이 시행됨에 따라 대구에서 기준성대기오염물질(Criteria Air Pollutants: CAPs)인 PM_{2.5}, NO₂, CO, SO₂의 농도가 각각 31%, 36%, 43%, 21% 감소하였으며(Vuong *et al.*, 2020), 이탈리아에서는 교통 관련 오염물질 농도가 봉쇄 정책에 따라 급격하게 감소(PM₁₀: 47%, PM_{2.5}: 47%, CO: 46%, NO_x: 73%)하였다(Collivignarelli *et al.*, 2020). 또한, 장기적인 대기오염 경향과 비교하였을 때, 브라질 상파울로에서 NO, NO₂, CO 농도가 5년 평균 대비 봉쇄 기간에 각각 77%, 54%, 65% 급감하였다(Nakada and Urban, 2020). 따라서 최근 대기오염 추세를 평가하기 위해서는 코로나 19에 의한 국내 배출과 국외 유입의 변화를 파악해야 한다.

PM_{2.5}는 이온, 탄소, 금속성분으로 구성되어 있으며, 배출원과 배출량, 지리적 조건, 주요 기상인자 등의 영향에 따라 다양한 조성비와 분포특성을 보인다(Yu *et al.*, 2018). 주요 권역별 미세먼지의 화학조성을 파악하기 위해 국립환경과학원은 대기환경연구소를 설치·운영하고 있으며, (준)실시간으로 PM_{2.5} 성분(이온, 탄소, 금속)을 측정하고 있다. 선행 연구에서는

2013년~2016년 전국 대기환경연구소 측정자료를 활용하여 미세먼지 고농도 사례의 특성을 규명하고 장거리 이동을 파악하였으며(Ghim *et al.*, 2019), 2013년~2015년 전국 대기환경연구소별 미세먼지의 화학적 특성 차이를 파악하고 기상인자와 장거리 이동 영향을 파악하였다(Yu *et al.*, 2018). 또한, 대표 배경지역인 백령도와 제주도에서는 미세먼지의 장거리 이동 영향을 파악하기 위한 연구가 활발히 수행되고 있다(Lee *et al.*, 2019b). 특히, 백령도와 제주도 대기환경연구소에서 산출된 자료를 활용하여 2013~2016년 제주 PM_{2.5}의 화학조성 변화와 장거리 이동 영향을 파악하였고(Kim *et al.*, 2020), 백령도 측정자료와 역궤적 분석을 통해 장거리 이동 영향을 평가하였다(Park *et al.*, 2018; Oh *et al.*, 2017). 그러나 최근 코로나 19에 따른 배경지역 대기오염 추세와 국외 유입의 변화를 파악하고, 배경지역으로서 백령도와 제주도의 미세먼지 오염특성을 비교한 연구는 부족하다.

본 연구에서는 백령도와 제주도에 위치한 대기환경연구소의 2018년~2020년 측정자료를 이용하여 최근 배경지역의 미세먼지 오염특성과 장거리 이동을 파악하였다. 백령도와 제주도 대기환경연구소의 PM_{2.5}와 성분(이온, 탄소, 금속) 농도의 추세를 비교하였으며, 배경농도측정소 3개소(고산리, 백령도, 태하리)와 교외대기측정소 4개소(덕적도, 석모리, 저구리, 파도리)의 미세먼지 오염특성을 파악하였다. 상관분석과 주성분 분석(Principal Component Analysis: PCA)으로 오염원을 파악하고 하이브리드 수용모델을 이용하여 오염원 위치를 추정하였다. 이를 통해, 배경지역 미세먼지의 주요 오염원을 파악하고, 국내 배출과 국외 장거리 이동 영향을 평가하였다.

2. 재료 및 방법

2.1 측정지점 및 활용 자료

본 연구에서는 백령도(37.57°N, 124.30°E)와 제주도(33.35°N, 126.39°E) 대기환경연구소에서 측정한

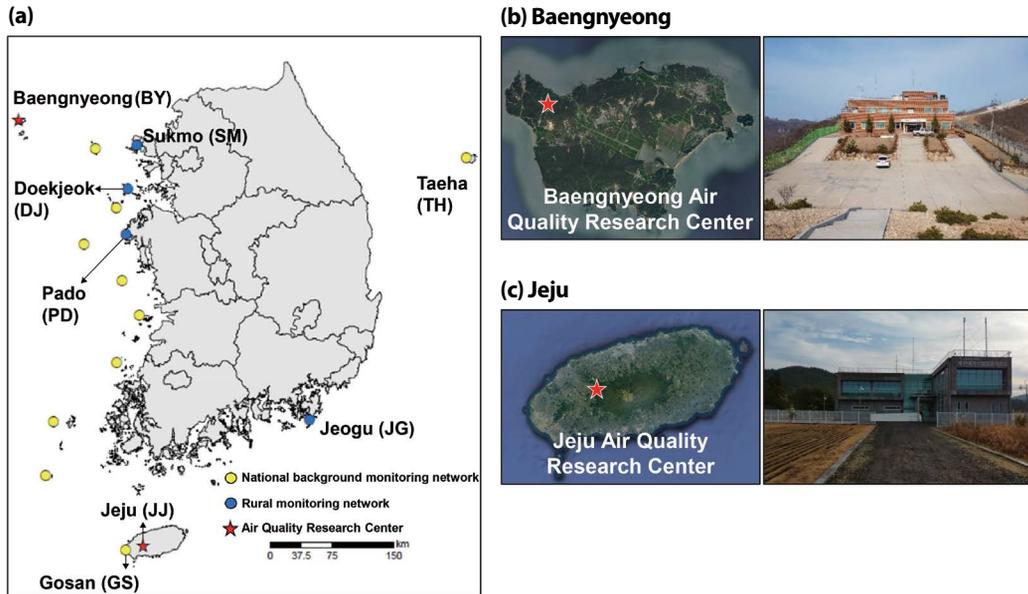


Fig. 1. (a) Locations of the Air Quality Research Centers and national background and rural monitoring stations, and the specific locations and photos of the (b) Baengnyeong and (c) Jeju Air Quality Research Centers.

시간별 측정자료를 활용하였다(그림 1). 백령도는 인천에서 약 180 km 떨어진 서해 최북단에 위치하여 국내에서 발생한 대기오염의 영향이 적을 뿐만 아니라 중국과 한반도 사이에 위치하여 중국으로부터 이동하는 대기오염물질의 영향을 우선적으로 관측할 수 있다(Park *et al.*, 2018). 제주도는 한반도 남단에서 약 100 km 떨어져 있으며 자체 배출의 영향이 매우 적으므로, 동북아시아 규모의 대기오염물질 장거리 이동을 평가하기 유리한 조건을 갖고 있다. 대기환경연구소 측정자료로는 $PM_{2.5}$ 질량농도와 $PM_{2.5}$ 에 함유된 이온(SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^-), 탄소(OC, EC), 금속(Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, As, Se, Pb) 성분, 기상자료(풍향, 풍속, 기온, 상대습도)를 이용하였다. 미세먼지 연속측정기(Beta Attenuation Monitor, MetOne Instrument Inc., BAM-1020, USA)를 이용하여 $PM_{2.5}$ 질량농도를(준)실시간(시간별 42분 채취) 측정하고, 대기이온측정기(Ambient Ion Monitor, URG Corporation, URG-9000D, USA)를 이용하여 이온을(준)실시간(시간별 55분 채취) 측정하

였다. 온라인 X선 형광분석기(Online-XRF spectrometer, Cooper Environmental Services, Xact 620, USA)를 이용하여 금속을 실시간으로 측정하고, 탄소 분석기(OC/EC analyzer, Sunset Laboratory Inc., Model-4, USA)를 이용하여 OC/EC를(준)실시간(시간별 45분 채취) 측정하였다. 자세한 분석방법은 국립환경과학원 대기오염측정망 설치·운영지침에 제시되어 있다(NIER, 2021).

연구기간으로는 코로나 19 발생 전후 대기오염 추세를 파악하기 위해, 2018년부터 2020년까지 3년을 선정하였다. 제주도와 백령도 대기환경연구소 측정자료와 함께 배경농도측정소 3개소(고산리, 백령도, 태하리)와 교외대기측정소 4개소(덕적도, 석모리, 저구리, 파도리)의 미세먼지(PM_{10} , $PM_{2.5}$) 측정자료를 활용하였다(표 1). 신설된 배경농도측정소 8개소(가거도, 격렬비열도, 말도, 안마도, 연평도, 외연도, 울도, 홍도)는 2020년부터 측정자료를 제공하고 있어 본 연구에서 제외하였으며, 2019년 개편되기 전 기준의 배경농도측정소 7개소(고산리, 백령도, 태하리, 덕적도,

Table 1. Summary of the datasets used in this study.

Period	Stations	Compounds	Measurement	
2018.01.01 ~2020.12.31	Air Quality Research Centers	Baengnyeong and Jeju	PM _{2.5} Ions: SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺ , Na ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺ , Cl ⁻ Carbons: OC, EC Metals: Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, As, Se, Pb	Beta attenuation monitor Ambient Ion Monitor OC/EC analyzer Online-XRF spectrometer
	National background monitoring stations	Baengnyeong, Gosan, and Taeha		
	Rural monitoring stations	Sukmo, Doekjeok Pado, and Jeogu	PM ₁₀ , PM _{2.5}	Beta attenuation monitor

석모리, 저구리, 파도리)의 측정자료를 이용하였다(그림 1).

2.2 오염원 및 오염지역 추정 기법

미세먼지의 오염원을 파악하기 위해, 상관분석과 주성분 분석 통계기법을 활용하였다. 배경농도 측정소 간 상관분석을 통해 백령도와 제주도 대기환경연구소를 포함한 배경지역 미세먼지의 상관성을 확인하였으며, 대기환경연구소 PM_{2.5} 성분의 회귀분석을 통해 특정 오염원의 영향을 추정하였다. 백령도와 제주도 대기환경연구소에서 측정된 월평균 개별 PM_{2.5} 성분자료(이온, 탄소, 금속)를 농도합으로 표준화하여 주성분 분석을 수행하였다. 각 주성분의 변수 개수를 최소화하기 위해 직교회전 방법을 이용하였으며, 고유값이 1보다 큰 주성분을 선정하여 점수그림(score plot)과 적재그림(loading plot)으로 나타내었다.

PM_{2.5}와 구성성분의 오염원을 추정하기 위해, 기상자료와 성분자료를 이용한 조건부이변량확률함수(Conditional Bivariate Probability Function: CBPF)와 역궤적과 성분자료를 이용한 농도가중역궤적(Concentration Weighted Trajectory: CWT) 분석을 수행하였다. R (4.0.2 version, R core team, Austria) openair 패키지(2.8.6. version)로 CBPF 분석을 수행하여 지역적 오염원과 외부 유입의 영향을 파악하였다(Carlsaw, 2019). CBPF는 2차원(농도와 풍향) 확률 모델인 CPF에 풍속 변수를 추가하여 3차원으로 확장한 개념으로, 풍향과 풍속을 고려하여 오염원의 위치를 추정

할 수 있다. 식 1을 이용하여 CBPF를 계산하였다. $m_{\Delta\theta, \Delta u}$ 는 임계값 x 보다 높은 농도(C)를 갖는 풍향 구간($\Delta\theta$)과 풍속 간격(Δu)별 자료의 개수이며, $n_{\Delta\theta, \Delta u}$ 는 해당 풍향-풍속 간격의 총 자료 개수이다. PM_{2.5}와 성분농도의 고농도 오염원을 추정하기 위해, 선행 연구의 CBPF 농도 범위를 참고하여 각 성분농도의 상위 25%를 임계값으로 선택하였다(Kim *et al.*, 2018b; Uria-Tellaetxe and Carslaw, 2014; Kim and Hopke, 2004). 대표적인 하이브리드 수용모델인 CWT와 영향인자기여함수(Potential Source Contribution Function: PSCF)는 장거리 이동의 영향을 파악하는 데 많이 활용되는데(Kim *et al.*, 2018a; Li *et al.*, 2018), 본 연구에서는 배출원의 영향 정도(강함, 보통, 약함)를 평가할 수 있는 CWT 모델을 적용하였다(Nguyen *et al.*, 2022). CWT 모델은 모델링 지역 내 오염 정도를 농도경사로 표현하는 방식이며, HYSPLIT 역궤적(https://ready.arl.noaa.gov/HYSP_LIT.php), PM_{2.5} 질량농도, 개별 성분농도를 입력자료로 활용하였다. TrajStat 프로그램(Trajectory Statistics, Version 1.2)을 이용하여 식 2와 같이 CWT를 계산하였으며, M은 전체 역궤적 개수, τ_{ijt} 은 개별 역궤적(I)이 $1.0^\circ \times 1.0^\circ$ 크기의 격자(i, j)를 통과할 때의 궤적점 개수, C_j 는 오염물질 농도이다. 72시간 동안의 역궤적 자료를 시간별로 수집하여 장거리 이동 효과를 파악하였으며, 일반적으로 혼합 고보다 낮고 선행 연구에서 주로 활용하는 지면 고도 500 m를 수용지점의 높이로 선정하였다(Li *et al.*, 2017; Stojić and Stanišić Stojić, 2017).

$$CBPF_{\Delta\theta, \Delta u} = \frac{m_{\Delta\theta, \Delta u} |_{C \geq x}}{n_{\Delta\theta, \Delta u}} \quad (1)$$

$$CWT_{ij} = \frac{\sum_{l=1}^M C_j \tau_{ijl}}{\sum_{l=1}^M \tau_{ijl}} \quad (2)$$

3. 결과 및 고찰

3.1 배경지역(백령도와 제주도) 시계열 분석

백령도 대기환경연구소의 3년간(2018년~2020년) PM_{2.5} 연평균 농도는 각각 17.5 µg/m³, 20.3 µg/m³, 18.5 µg/m³이었으며 3년 평균 농도(18.8 µg/m³)와 유사하였다. 일평균 PM_{2.5} 자료를 이용하여 Mann-Whitney Rank Sum test를 수행하였으며, 연도별 PM_{2.5} 농도는 통계적으로 차이가 없었다($p > 0.05$). 제주도 대기환경연구소의 PM_{2.5} 연평균 농도는 2018년에 11.1 µg/m³, 2019년에 11.5 µg/m³, 2020년에 8.8 µg/m³이고 3년 평균 농도는 10.5 µg/m³이었으며, 2020년에는 2018년과 2019년보다 통계적으로 낮았다(Mann-Whitney Rank Sum test, $p < 0.05$). PM_{2.5} 일평균 농도 기준(35 µg/m³) 초과일은 백령도에서 2018년에 27일, 2019년에 45일, 2020년에 27일이었다. 2019년 백령도의 PM_{2.5} 기준 초과일은 1~3월(25일, 45%)에 집중되어, 겨울철과 봄철 장거리 이동 영향으로 파악된다(Lee *et al.*, 2019a). 제주도 대기환경연구소 PM_{2.5} 3년 평균 농도는 백령도에 비해 44% 낮았으며, 제주도는 한반도 남단에서 약 100 km 떨어진 지리적 조건으로 동북아시아 규모의 대기오염물질의 장거리 이동을 평가하기에 매우 적합하다(Lim *et al.*, 2012). 제주도에서는 PM_{2.5} 일평균 기준을 2018년에 6일, 2019년에 8일, 2020년에 1일을 초과하였다. 코로나 19의 영향으로 산업활동이 감소하여(Zhao *et al.*, 2021), 2020년 제주도에서 PM_{2.5} 농도가 감소한 것으로 해석할 수 있다.

PM_{2.5} 질량농도는 겨울(12월~2월), 봄(3월~5월), 여름(6월~8월), 가을(9월~11월)에 백령도에서 24.1 µg/m³, 22.2 µg/m³, 14.0 µg/m³, 14.8 µg/m³이고 제주도에서 11.5 µg/m³, 12.5 µg/m³, 9.6 µg/m³, 8.3 µg/m³이

로, 겨울과 봄에 높고 여름과 가을에 낮은 전형적인 동고하저 경향이였다(NIER, 2020)(표 2). 백령도에서 NO₃⁻, OC, EC 농도는 질량농도 경향과 유사하게 겨울(5.9 µg/m³, 2.7 µg/m³, 0.6 µg/m³)에 높고 여름(1.2 µg/m³, 1.2 µg/m³, 0.4 µg/m³)에 낮았으며, SO₄²⁻와 NH₄⁺ 농도는 여름(4.5 µg/m³, 2.1 µg/m³)과 가을(3.2 µg/m³, 1.8 µg/m³)에도 연평균(4.1 µg/m³, 2.6 µg/m³)과 유사하였다(표 2). 백령도는 중국 북동부, 서울, 북한과 가까운 거리에 위치하여 인근 지역의 지속적인 영향을 받으며, 선행 연구에서도 여름 2차 무기입자의 외부 유입과 가을 산동지역의 영향으로 SO₄²⁻와 NH₄⁺ 농도가 높았다(Oh *et al.*, 2017). 제주도에서는 SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺, OC, EC가 모두 전형적인 계절 변화를 보였으며, 2020년 연평균 SO₄²⁻, OC, EC 농도(2.4 µg/m³, 1.2 µg/m³, 0.3 µg/m³)는 2018년(3.4 µg/m³, 1.7 µg/m³, 0.4 µg/m³)과 2019년(4.0 µg/m³, 1.6 µg/m³, 0.4 µg/m³)에 비해 통계적으로 낮았다(Mann-Whitney Rank Sum test, $p < 0.05$)(표 2). SO₄²⁻, OC, EC는 산업활동 감소의 영향으로 2020년에 농도가 낮아진 것으로 추정된다(Pan *et al.*, 2016).

백령도와 제주도 PM_{2.5} 성분 총 농도의 월평균 시계열과 계절별 비율을 그림 2에 나타내었다. 백령도와 제주도의 PM_{2.5} 성분 총 농도(13.9 µg/m³, 9.3 µg/m³)는 3년 평균 PM_{2.5} 질량농도(18.8 µg/m³, 10.5 µg/m³)의 74%와 89%를 차지하였다. 백령도 PM_{2.5} 성분 총 농도는 2019년 3월에 48.8 µg/m³으로 매우 높았으며, 해당 기간에 전국적인 미세먼지 고농도 사례(2019년 2월 27일~3월 7일)가 관측되었다(Lee *et al.*, 2019a). 2019년 3월의 SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺ 농도는 각각 9.3 µg/m³, 18.9 µg/m³, 9.4 µg/m³으로 매우 높았으며, NO₃⁻ 농도는 3년 평균(3.8 µg/m³) 대비 5배 높았다. 선행 연구에 의하면, 미세먼지 고농도 사례 시 NO₃⁻ 농도와 비율이 높았으며, 중국으로부터 장거리 이동 효과로 나타났다(Kim *et al.*, 2020; Ghim *et al.*, 2019). 특히, 백령도는 중국과 한반도 사이에 위치한 지리적 조건과 잦은 편서풍에 의해 장거리 이동 영향을 많이 받으며(Park *et al.*, 2018), 서해상의 중국발 미

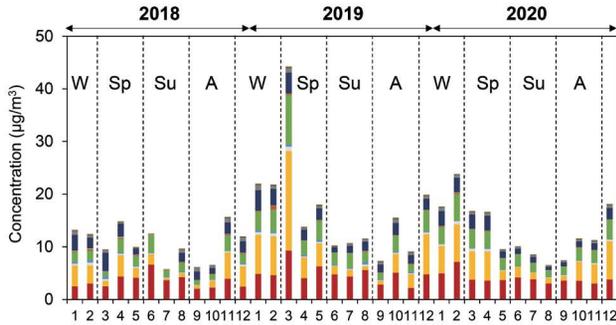
Table 2. Yearly and seasonal mean concentrations of PM_{2.5} and its major components at the Baengnyeong and Jeju Air Quality Research Centers. (PM_{2.5}, ions, and carbons: µg/m³, metals: ng/m³)

Baengnyeong	PM _{2.5}	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	OC	EC	Metals
2018~2020	18.8	4.1	3.8	2.6	2.1	0.5	198
Winter	24.1	4.2	5.9	3.2	2.7	0.6	231
Spring	22.2	4.6	5.2	3.3	2.5	0.4	219
Summer	14.0	4.5	1.2	2.1	1.2	0.4	124
Autumn	14.8	3.2	2.5	1.8	1.5	0.5	206
2018	17.5	3.4	2.4	1.8	2.1	0.5	163
2018 Winter	23.4	2.8	3.7	1.8	2.5	0.6	205
2018 Spring	20.9	3.7	2.3	1.7	2.4	0.3	192
2018 Summer	14.0	4.8	1.1	2.1	1.7	0.6	105
2018 Autumn	13.6	2.7	2.3	1.6	1.6	0.6	139
2019	20.3	4.8	4.8	3.2	2.3	0.5	218
2019 Winter	24.9	4.0	6.2	3.2	3.1	0.7	264
2019 Spring	26.7	6.6	9.1	5.2	2.7	0.5	256
2019 Summer	13.2	4.9	1.2	2.3	1.4	0.3	127
2019 Autumn	14.4	3.4	2.3	1.8	1.8	0.5	235
2020	18.5	4.1	4.2	2.9	1.8	0.4	150
2020 Winter	24.0	5.6	6.7	4.1	2.6	0.6	181
2020 Spring	19.2	3.7	4.2	2.9	2.3	0.4	164
2020 Summer	14.8	3.7	1.4	1.8	0.9	0.3	110
2020 Autumn	16.3	3.4	2.7	2.1	1.0	0.3	148
Jeju	PM _{2.5}	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	OC	EC	Metals
2018~2020	10.5	3.3	1.8	1.7	1.5	0.4	116
Winter	11.5	3.9	2.6	2.1	1.8	0.4	115
Spring	12.5	3.7	2.7	2.2	1.7	0.4	153
Summer	9.6	3.2	0.6	1.4	1.3	0.3	69
Autumn	8.3	1.9	0.8	1.0	1.2	0.3	116
2018	11.1	3.4	1.4	1.7	1.7	0.4	112
2018 Winter	14.4	4.4	3.0	2.4	2.0	0.5	129
2018 Spring	12.2	4.0	1.9	2.2	1.7	0.5	163
2018 Summer	10.2	3.7	0.4	1.6	1.8	0.5	48
2018 Autumn	10.2	1.9	0.7	1.1	1.6	0.3	108
2019	11.5	4.0	2.5	2.1	1.6	0.4	107
2019 Winter	11.6	3.9	2.5	1.9	2.0	0.5	130
2019 Spring	14.7	4.3	3.8	2.6	1.8	0.5	155
2019 Summer	10.8	4.2	1.1	2.0	1.4	0.3	49
2019 Autumn	7.9	2.4	0.8	1.0	1.1	0.3	110
2020	8.8	2.4	1.6	1.4	1.2	0.3	78
2020 Winter	10.6	4.0	2.5	2.1	1.6	0.4	70
2020 Spring	10.4	2.7	2.5	1.9	1.5	0.3	103
2020 Summer	7.9	1.6	0.4	0.6	0.8	0.1	58
2020 Autumn	6.9	1.4	0.8	0.9	1.0	0.2	84

세먼지가 백령도와 한반도로 유입되는 것이 보고되었다 (Oh *et al.*, 2017). NO_x는 겨울철 화석연료 연소에서 다량 배출되고 (Nguyen and Kim, 2006) 기온이 낮은 조건에서 NH₃와 반응하여 질산염 (NH₄NO₃)을 활

발히 생성하므로 (Guo *et al.*, 2018), NO₃⁻는 일반적으로 겨울과 봄에 높고 여름에 낮은 계절변화를 보인다 (Son *et al.*, 2012). 백령도에서 NO₃⁻는 PM_{2.5} 주요 성분 중 겨울 (5.9 µg/m³, 33%)과 봄 (5.2 µg/m³, 31%)에

(a) Baengnyeong



(b) Jeju

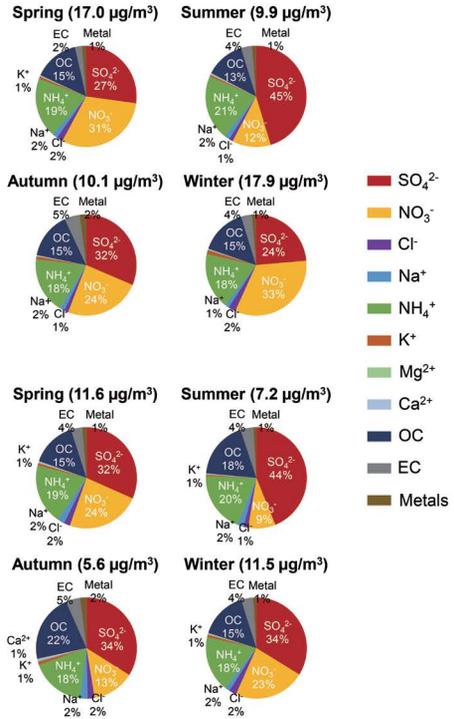
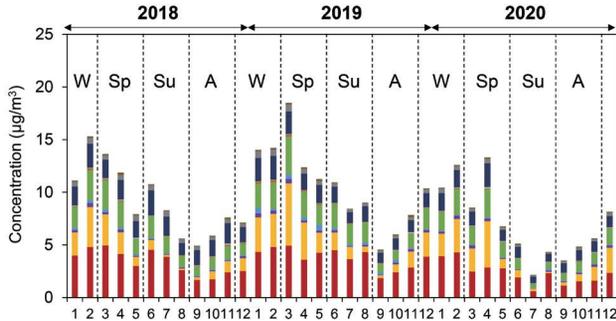


Fig. 2. Monthly trends and seasonal distributions of PM_{2.5} components in (a) Baengnyeong and (b) Jeju during 2018~2020.

가장 높은 비율을 보였으며, 이 결과는 화석연료 연소와 질산염 생성반응의 영향으로 해석된다. NO₃⁻ 농도는 여름에 1.2 µg/m³으로 매우 낮아 뚜렷한 계절변화를 보였으며, 이는 여름철 화석연료 연소의 적은 배출량과 NO₃⁻의 열적 불안정성 때문이다 (Park *et al.*, 2018; Wang *et al.*, 2016). SO₄²⁻는 큰 계절변화 없이 연간 유사한 농도수준 (4.1 µg/m³)을 보였으며, PM_{2.5} 성분 중 SO₄²⁻ 농도는 봄과 여름에 각각 4.6 µg/m³ (27%)와 4.5 µg/m³ (45%)으로 높았다. 이는 OH 라디칼과 SO₂가 반응하여 SO₄²⁻가 생성되는 화학반응이 기온이 높을 때 활발한 것으로 설명할 수 있다 (Pilinis and Farber, 1991). 2018년 SO₄²⁻ 농도는 사계절 중 여름에 4.8 µg/m³으로 가장 높았다 (표 2). 이 결과는 여름철 비교적 높은 농도의 SO₂ (2018년 연평균: 2.0 ppb, 여름 평균: 2.2 ppb)와 활발한 광화학반응의 영향으로 추정된다 (Li *et al.*, 2017). 2020년의 경우, SO₄²⁻ 농도는

겨울(5.6 µg/m³)에 가장 높았으며 겨울철 화석연료 사용량 증가의 영향을 받은 것으로 추정된다. NH₄⁺ 농도는 겨울(3.2 µg/m³)과 봄(3.3 µg/m³)에 높았으나, PM_{2.5} 성분비는 계절별로 (겨울: 21%, 봄: 19%, 여름: 18%, 가을: 18%) 유사하였다. SO₄²⁻ 및 NO₃⁻와 2차 무기 에어로졸 (Secondary Inorganic Aerosol: SIA)을 생성하는 NH₄⁺는 SO₄²⁻와 NO₃⁻의 추세를 동시에 반영하여 계절 특성이 분명하지 않았다. OC와 EC의 경우에는 계절에 따른 비율의 차이는 없었으나, 평균 농도는 겨울(2.7 µg/m³, 0.6 µg/m³)에 높고 여름(1.2 µg/m³, 0.4 µg/m³)에 낮은 계절변화를 보였다. 일반적으로 OC와 EC는 난방 등 화석연료 사용량 증가와 장거리 이동의 영향으로 전형적인 동고하저 경향을 보인다 (Park *et al.*, 2005). 제주도의 PM_{2.5} 성분 총 농도 (9.3 µg/m³)는 백령도(13.9 µg/m³)에 비해 낮고, 겨울을 제외하고 봄, 여름, 가을에 백령도와 유사한 성분비를 보

였다(그림 2). 겨울철 SO_4^{2-} 는 제주도 ($3.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 34%)에서 백령도 ($4.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 24%)에 비해 농도는 낮았으나 비율은 높았다. 제주도 주요 이온의 3년 평균 농도는 뚜렷한 계절변화를 보였으며, SO_4^{2-} 는 여름철에 다소 높은 농도 수준($3.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$)으로 $\text{PM}_{2.5}$ 성분 중에서 가장 높은 비율(44%)을 차지하였다. NO_3^- 는 제주도에서 봄($2.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 24%)과 겨울($2.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 23%)에 높은 농도 수준을 보여, 백령도와 유사하게 화석연료 연소와 질산염 생성반응의 영향을 받은 것으로 보인다. 백령도에서 SO_4^{2-} 와 NH_4^+ 농도는 계절별로 큰 변화 없이 유사하여 중국과 수도권 오염원의 연중 일정한 영향을 받는 것으로 보인다. 인천시 옹진군의 2019년 $\text{PM}_{2.5}$, SO_x , NO_x 배출량의 80% 이상을 에너지산업연소(지역난방시설)가 차지하여, 지역난방에 의한 자체 배출원의 영향도 예상된다. 반면, 제주도에서는 겨울의 SO_4^{2-} 와 NH_4^+ 농도($3.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $2.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$)가 여름($3.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $1.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$)에 비해 각각 1.2배와 1.5배 높았으므로, 지역적 오염원의 영향보다는 장거리 이동 영향이 지배적인 것으로 해석된다.

3.2 배경농도측정소 미세먼지 시계열 분석

배경지역 미세먼지 특성을 파악하기 위해, 배경농도측정소 3개소와 교외대기측정소 4개소의 PM_{10} 과 $\text{PM}_{2.5}$ 일평균 자료를 분석하였다(그림 3). PM_{10} 의 연

평균 농도는 2020년에 가장 낮았으며, 특히 남해와 동해에 위치한 고산리(2018년: $39 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 2020년: $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 저구리(2018년: $42 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 2020년: $24 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 태하리(2018년: $39 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 2020년: $21 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 측정소에서 급격하게 감소하였다. 서해안에 위치한 백령도, 석모리, 덕적도, 파도리 측정소의 경우에는 2019년에 전국적인 고농도 현상으로 높은 PM_{10} 농도($40 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $43 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $38 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $43 \mu\text{g}/\text{m}^3$)를 보였으며(Lee *et al.*, 2019a), 2020년에도 다소 높은 농도($33 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $36 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $31 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $39 \mu\text{g}/\text{m}^3$)를 보여 지역적 차이를 보였다. $\text{PM}_{2.5}$ 는 PM_{10} 과 달리 대부분의 지점에서 유사한 농도수준을 보였으나, 동해에 위치한 태하리 측정소의 2020년 $\text{PM}_{2.5}$ 농도($12 \mu\text{g}/\text{m}^3$)는 2019년($20 \mu\text{g}/\text{m}^3$)에 비해 급감하였다. 태하리 측정소는 다른 측정소에 비해 내륙과 거리가 멀어 지역 오염원과 장거리 이동의 영향이 모두 적은 것으로 판단된다. 코로나 19로 인해 산업활동이 위축되어 국내 배경지역의 미세먼지 농도도 감소한 것으로 추정된다(Zhao *et al.*, 2021).

연평균 농도추세는 지역적 차이를 보였으나, PM_{10} 과 $\text{PM}_{2.5}$ 모두 측정지점 간 Spearman 상관분석 결과에서는 모든 지점에서 통계적으로 유의한 상관성을 보였다($p < 0.01$). 특히, 서해안에 위치한 측정소(백령도, 석모리, 덕적도, 고산리)의 PM_{10} 농도는 높은 상관계수($R = 0.51 \sim 0.78$)를 보였으며, 백령도 측정소와 다

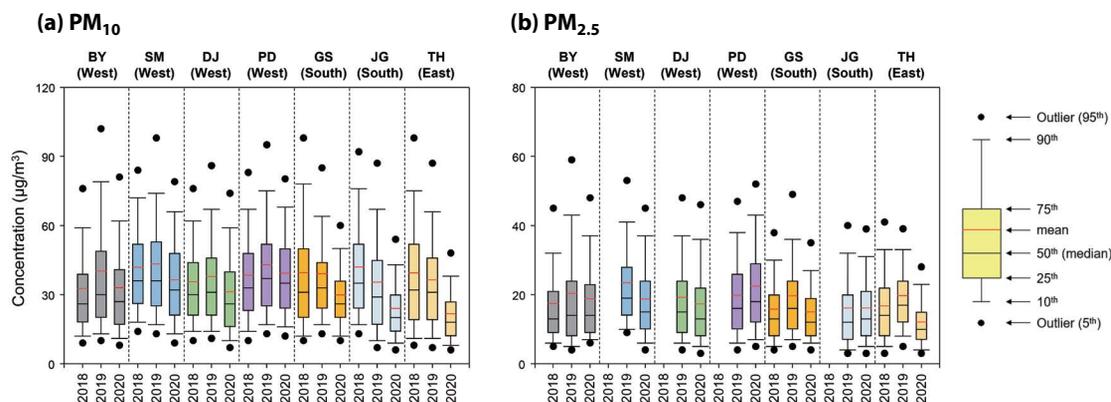


Fig. 3. Box plots of (a) PM_{10} and (b) $\text{PM}_{2.5}$ concentrations at background and rural monitoring stations during 2018~2020. BY: Baengnyeong, SM: Sukmo, DJ: Doekjeok, PD: Pado, GS: Gosan, JG: Jeogu, and TH: Taeha.

른 측정소(고산리: $R=0.30$, 저구리: $R=0.28$, 태하리: $R=0.32$)는 낮은 상관계수를 보였다. 제주도에 위치한 고산리 측정소는 저구리($R=0.51$)와 태하리($R=0.53$) 측정소와 비교적 높은 상관계수를 보여, 지리적 위치가 유사한 측정소 간 높은 상관성을 보였다. $PM_{2.5}$ 의 상관분석 결과에서도 모든 지점에서 통계적으로 유의한 상관성을 보였으나, PM_{10} 에 비해 낮은 상관계수를 보였다. 이 결과는 측정소별로 전구물질 농도 추세와 기상조건에 따라 $PM_{2.5}$ 의 2차 생성 영향이 다르기 때문으로 해석할 수 있다. $PM_{2.5}$ 상관분석에서도 지리적으로 가까운 측정소 간 상관계수가 높게 나타났다. 즉, 배경농도측정소는 배경지역으로서 지역 오염원 영향이 작고 유사한 계절변화를 보여 모든 지점에서 유의한 상관관계를 보였으며, 측정소 위치가 가까울수록 상관성이 증가하였다. 따라서 백령도와 제주도 $PM_{2.5}$ 자료를 해석하면 서해와 남해 배경지역의 미세먼지 오염원과 장거리 이동 영향을 전반적으로 평가할 수 있다.

3.3 배경지역(백령도와 제주도) 오염원 추정

미세먼지 오염원의 계절과 지역별 차이를 파악하기 위해, 2018년~2020년 PM_{10} 과 $PM_{2.5}$ 의 일평균 자료를 이용하여 산점도를 작성하고 단순선형회귀식을 나타내었다(그림 4a, b). PM_{10} 과 $PM_{2.5}$ 의 상관성이 높으면 PM_{10} 과 $PM_{2.5}$ 의 오염원이 유사하다고 해석할 수 있다(Gao *et al.*, 2015). 백령도와 제주도 모두 겨울에 높은 선형회귀 상관계수를 보였기 때문에 겨울철 1차 배출의 영향이 컸다(그림 4). $PM_{2.5}$ 는 주로 인위적 배출

원에서 1차 배출되거나 2차 생성되므로 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 비율이 높으면 인위적 배출원과 2차 생성의 영향이 크다는 것을 의미한다(Zhao *et al.*, 2019). 백령도와 제주도에서 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 비율은 여름에 가장 높고 다음으로 겨울에 높았다(표 3). 즉, 인위적 배출원과 2차 생성의 영향이 여름에 뚜렷하게 나타났으며 겨울에도 해당 영향이 증가하였다. $PM_{2.5}/PM_{10}$ 비율은 백령도와 제주도 모두 가을에 가장 낮았으며, 이는 황사와 같은 자연적 기원의 영향이 증가한 것으로 해석할 수 있다(Choi *et al.*, 2012). 또한, $PM_{2.5}$ 와 PM_{10} 의 단순 선형회귀 결과에 의하면, 봄철 백령도에서 낮은 회귀식 기울기를 보이는 사례가 있었으며, 가을에는 백령도와 제주도 모두 회귀식 기울기가 낮았다. 2018년~2020년 황사 발생일은 봄(백령: 9일, 45%, 제주: 3일, 23%)과 가을(백령: 9일, 45%, 제주: 9일, 69%)에 집중되어 있어, 해당 기간 황사의 영향이 뚜렷하였다. 2020년 제주도 $PM_{2.5}$ 농도($8.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$)는 3년 동안 가장 낮았으며, $PM_{2.5}/PM_{10}$ 비율(0.47)도 3년 평균(0.55)에 비해 낮았다. 즉, 2020년 제주도 $PM_{2.5}$ 농도는 산업활동과 2차 생성 감소의 영향을 받은 것으로 보인다(Pan *et al.*, 2016). OC와 EC의 상관성을 파악하여 탄소성분의 1차 배출과 2차 생성 여부를 파악할 수 있다. 백령도와 제주도에서 OC와 EC 상관성이 겨울에 가장 높았으므로 화석연료 연소 효과가 증가한 것으로 해석된다(그림 4c, d). 또한, 여름에는 광화학반응으로 이차유기탄소(secondary organic carbon)가 많이 생성되어 OC와 EC 상관성이 가장 낮았다.

화석연료 연소기원 물질인 SO_4^{2-} 와 Pb의 상관성은

Table 3. $PM_{2.5}/PM_{10}$ ratios and correlation coefficients (R) of $PM_{2.5}$ components at the Baengnyeong and Jeju Air Quality Research Centers.

Parameter	Site	Annual	Spring	Summer	Autumn	Winter
$PM_{2.5}/PM_{10}$ ratio	Baengnyeong	0.49	0.49	0.56	0.40	0.53
	Jeju	0.55	0.54	0.64	0.45	0.56
Correlation coefficient (R) between SO_4^{2-} and Pb	Baengnyeong	0.39	0.50	0.20	0.33	0.59
	Jeju	0.70	0.79	0.49	0.61	0.80
Correlation coefficient (R) between Ni and V	Baengnyeong	0.88	0.89	0.87	0.81	0.71
	Jeju	0.80	0.84	0.95	0.86	0.52

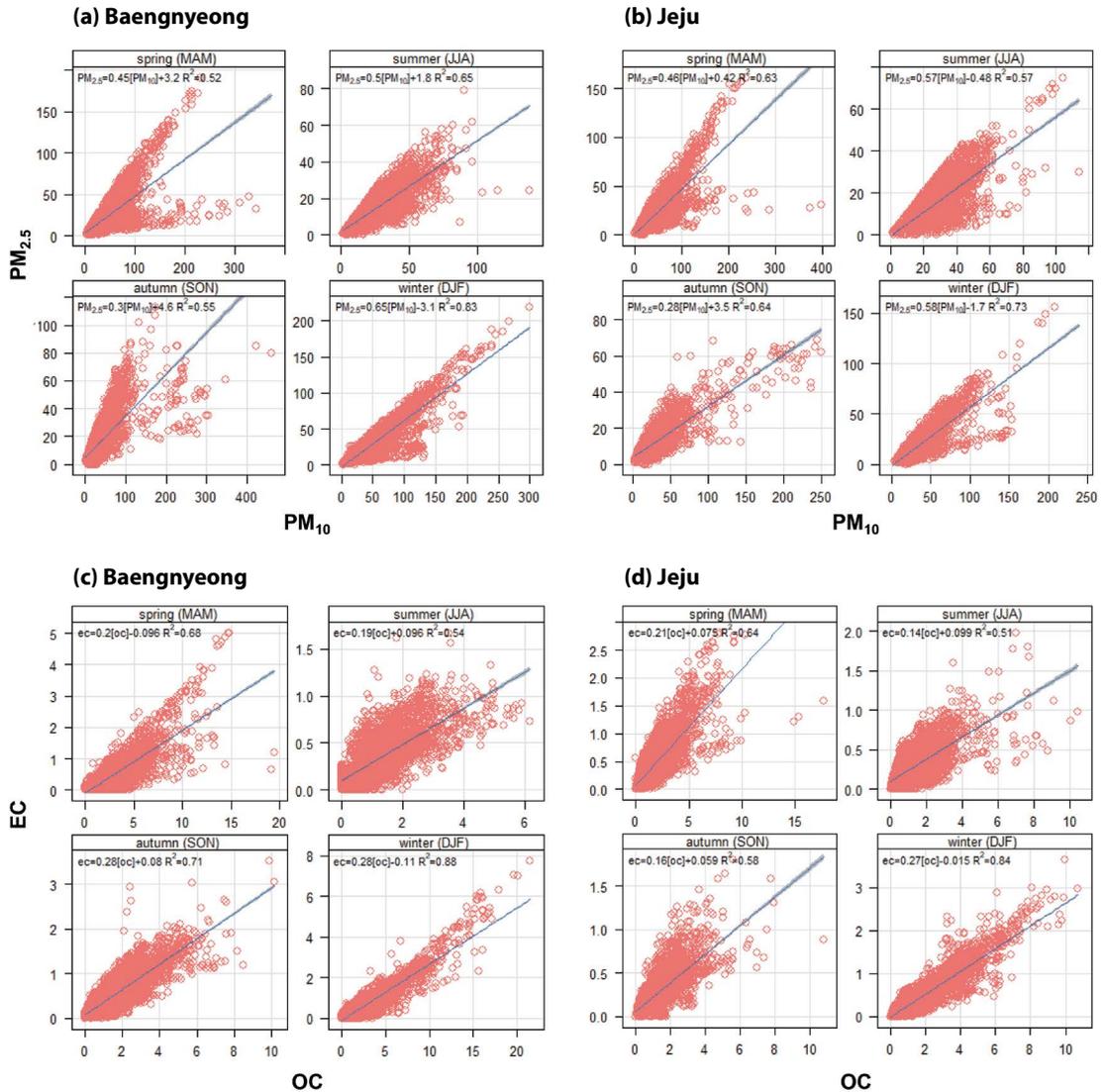


Fig. 4. Correlation between PM_{10} and $PM_{2.5}$ at (a) Baengnyeong and (b) Jeju and between OC and EC at (c) Baengnyeong, and (d) Jeju.

백령도와 제주도에서 봄 (0.50, 0.79)과 겨울 (0.59, 0.80)에 높았으며, 백령도 (0.39)보다 제주도 (0.70)에서 높은 상관성을 보였다(표 3). 제주도에서는 겨울과 봄에 화석연료 연소의 장거리 이동 영향이 증가했으며, 백령도에서는 내부 혹은 인접 지역의 배출원 영향으로 상관성이 낮아진 것으로 해석된다(Jung *et al.*, 2018). 중유연소로 많이 배출되어 석유화학산업과 선

박배출 등의 지시자로 활용되는 V와 Ni의 상관성을 파악하였다(Corbin *et al.*, 2018) (표 3). 백령도에서 V와 Ni의 상관계수는 봄(0.89)에 가장 높았으며, 여름(0.87), 가을(0.81), 겨울(0.71) 순이었다. 제주도에서의 상관계수는 여름(0.95), 가을(0.86), 봄(0.84), 겨울(0.52) 순이었다. 봄에는 백령도에서 장거리 이동 영향이 증가했고 여름에 제주도에서는 기상조건에 따라

중국 남부 등의 오염원 영향이 증가한 것으로 해석된다. V와 Ni는 백령도와 제주도에서 모두 2020년에 가장 낮은 농도수준을 보였으며, 상관계수도 2018년(백령: 0.97, 제주: 0.93)과 2019년(백령: 0.89, 제주: 0.71)보다 2020년(백령: 0.81, 제주: 0.52)에 낮았다. 즉, V과 Ni 관련된 석유화학산업과 선박배출의 영향이 코로나 19 이후 감소한 것으로 추정된다.

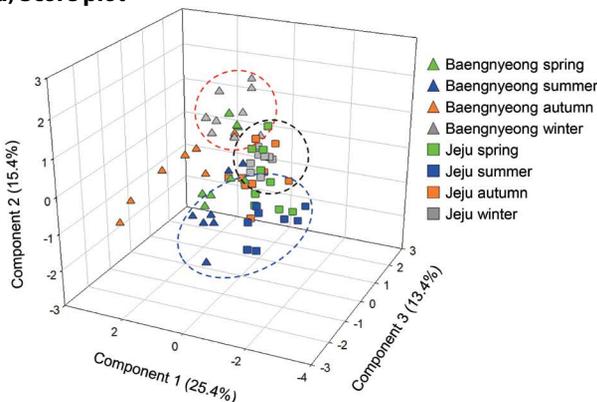
백령도와 제주도 미세먼지의 오염원을 파악하고 비교하기 위해, 월평균 $PM_{2.5}$ 성분자료를 이용하여 주성분 분석(PCA)을 수행하였다. 주성분(PC) 1~3은 각각 전체 변수의 25.4%, 15.4%, 13.4%를 설명하였다(그림 5). 점수그림에서 백령도와 제주도 월평균 자료는 PC1에 의해 가장 잘 구분이 되었다. PC1의 주요 변수는 Pb, As, Zn, Se, Cu, Mn으로 각 변수는 0.5보다 큰 적재값을 가진다. PC1의 주요 변수는 금속산업에서 다량 배출되며(Dai *et al.*, 2015), 일부 금속은 지각성분이다. 점수그림의 백령도 가을 자료는 적재그림에서 Pb, As, Zn, Se, Cu, Mn과 큰 상관성을 보여, 산업배출 미세먼지의 장거리 이동 영향을 받은 것으로 추정된다. 점수그림에서 백령도와 제주도 자료는 PC2와 PC3에 의해 지역보다는 계절적으로 구분되었으며 겨울과 여름에 큰 차이를 보였다. 백령도 겨울 자료는 NO_3^- , K^+ , Cl^- 와 밀접한 연관성을 보여 K^+ 와 Cl^- 의 주요 오염원인

1차 연소 배출과 장거리 이동의 영향을 받은 것으로 보인다. 또한, 낮은 기온 조건에서 질산암모늄(NH_4NO_3) 생성이 증가한 것으로 해석된다. 백령도와 제주도 여름 자료에서는 SO_4^{2-} , NH_4^+ , V, Ni의 영향이 뚜렷하게 나타나 산업활동의 영향이 우세하였으며, 높은 기온 조건에서 황산암모늄($(NH_4)_2SO_4$) 생성이 활발한 것으로 판단된다. OC와 EC는 제주도 봄과 겨울 자료와 밀접한 연관성을 보였다. 이와 같이 백령도와 제주도 미세먼지 성분조성의 계절별 차이가 점수그림에 나타났으며, 점수그림과 적재그림을 함께 해석하여 계절별 장거리 이동을 설명할 수 있었다.

3.4 하이브리드 수용모델 결과

CBPF는 지역 오염원 효과를 추정하는 데 효과적인 방법이다. 그러나 배경지역에서 높은 CBPF 값이 강한 풍속과 함께 나타날 경우에는 외부 유입 효과로 해석할 수 있다. 백령도 CBPF 결과에서 고농도 PM_{10} 은 강한 서풍의 영향을 받았고 고농도 $PM_{2.5}$ 는 강한 서풍과 남서풍의 영향을 받았으며, 편서풍에 의한 외부 유입과 남서쪽에 위치한 중국 산둥지역으로부터 영향을 받은 것으로 추정된다(그림 6). 또한, PM_{10} 에 비해 $PM_{2.5}$ 는 풍속이 약할 때 동쪽과 남쪽으로부터 지역 배출 영향을 받았다. 산업활동과 연소 관련 물질(OC,

(a) Score plot



(b) Loading plot

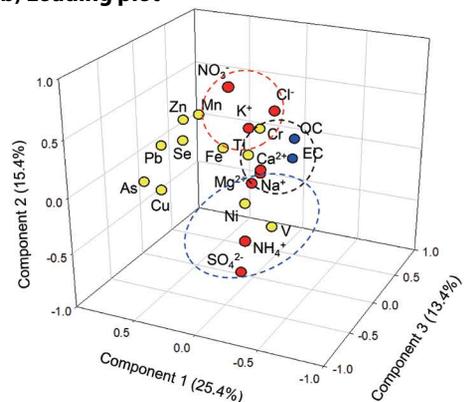
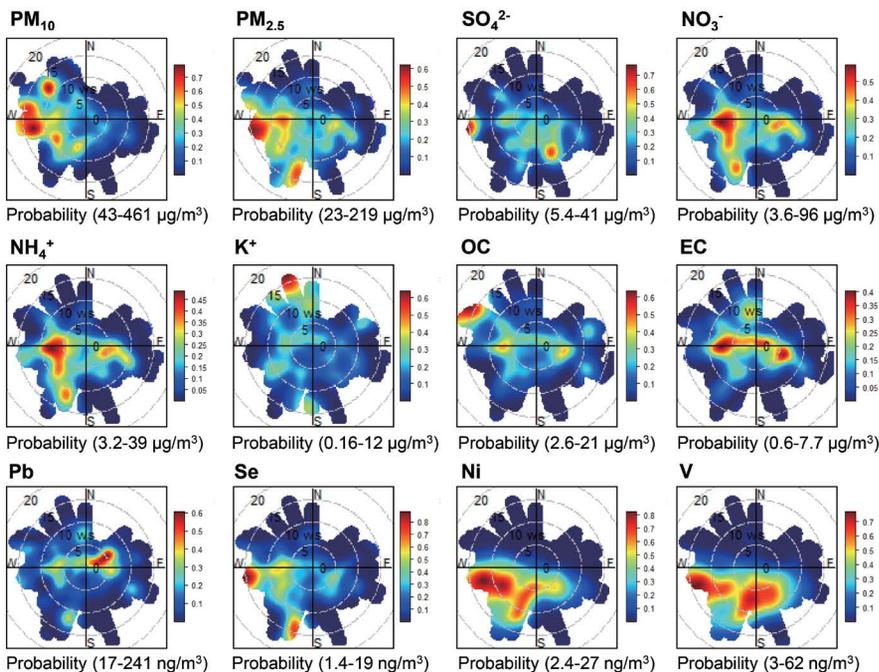


Fig. 5. PCA results for the monthly mean $PM_{2.5}$ component data at the Baengnyeong and Jeju Air Quality Research Centers: (a) score plot and (b) loading plot.

(a) Baengnyeong



(a) Jeju

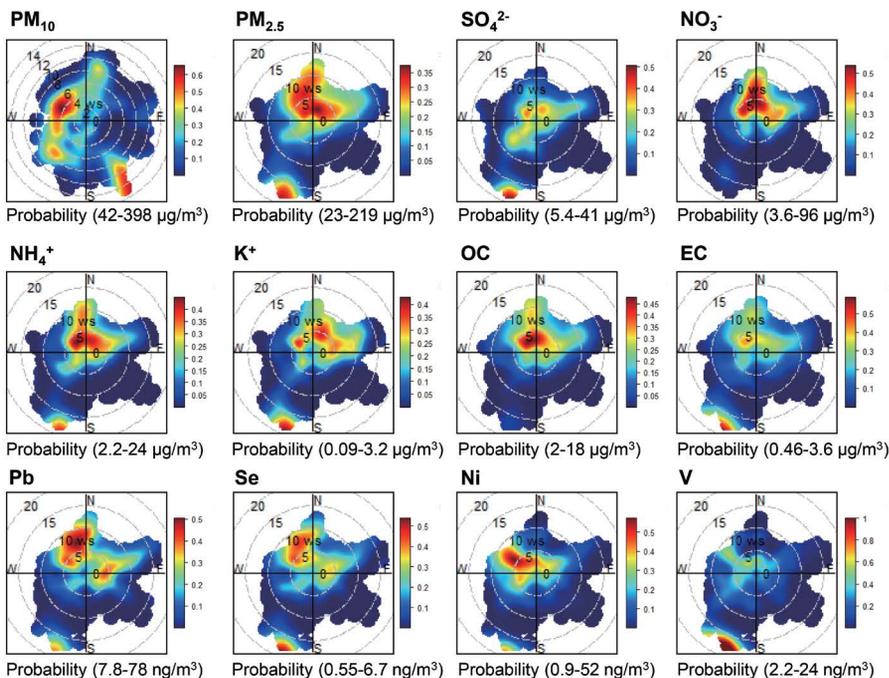


Fig. 6. CBPF plots of PM₁₀, PM_{2.5}, and its components at the (a) Baengnyeong and (b) Jeju Air Quality Research Centers showing obvious sources effects. The colorbar represents the probabilities of PM_{2.5} and its components.

EC, SO_4^{2-})은 편서풍에 의한 외부 유입의 영향을 많이 받았다. NO_3^- 와 NH_4^+ 의 CBPF 결과, 백령도에서는 서풍으로 외부 유입된 질산암모늄(NH_4NO_3)과 대기 정체에 의한 2차 생성의 영향(남서풍)을 받은 것으로 추정된다. 또한, SIA 성분(SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+)은 모두 약한 풍속의 남동풍 또는 동풍 영향을 받았으므로, 백령도의 자체 배출원이 $\text{PM}_{2.5}$ 고농도에 영향을 준 것으로 해석할 수 있다. 즉, 백령도에서는 남서쪽에 위치한 중국 산둥지역으로부터 유입된 전구물질의 2차 생성 영향을 고려할 수 있으며, 백령도 북서쪽에 위치한 대기환경연구소에서는 동쪽 항구의 선박 배출과 군사 부문 배출 등 지역적 오염원 영향도 추정된다. Se, Ni, V의 경우에는 서풍의 영향으로 중국 산둥지역 산업 활동의 영향이 뚜렷하였고, 남풍과 남동풍의 영향으로 지역적 배출의 영향도 받은 것으로 추정된다. K^+ 는 생물성 연소의 주요 지시자로서 풍속이 매우 높은 북풍의 영향을 받았으며, 중국 북부 지역 등 비교적 원거리 지역의 생물성 연소 및 지역 난방의 영향으로 판단된다(Hays *et al.*, 2005). 제주도의 PM_{10} 과 $\text{PM}_{2.5}$ 는 북풍과 남풍이 불 때 고농도로 관측되었다. 제주도에서 $\text{PM}_{2.5}$ 는 2018~2020년 일평균 자료 중 상위 25% 값이 $14 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 매우 낮은 수준이었으며, 지역 자체 오염원의 영향도 CBPF 결과에서 확인되었다(Kim *et al.*, 2018a). 고농도 $\text{PM}_{2.5}$ 는 북풍에 의해 산업활동(Se, Ni) 및 2차 생성(NO_3^- , NH_4^+ , OC)의 영향을 받은 것으로 판단된다. 또한, 강한 남풍이 불어올 때는 $\text{PM}_{2.5}$ 와 산업활동 관련 성분(SO_4^{2-} , K^+ , EC, Se, Ni, V)의 농도가 증가하였으며, 제주도보다 남쪽에 위치한 중국 상하이와 저장지역으로부터 외부 유입 영향을 받은 것으로 보인다.

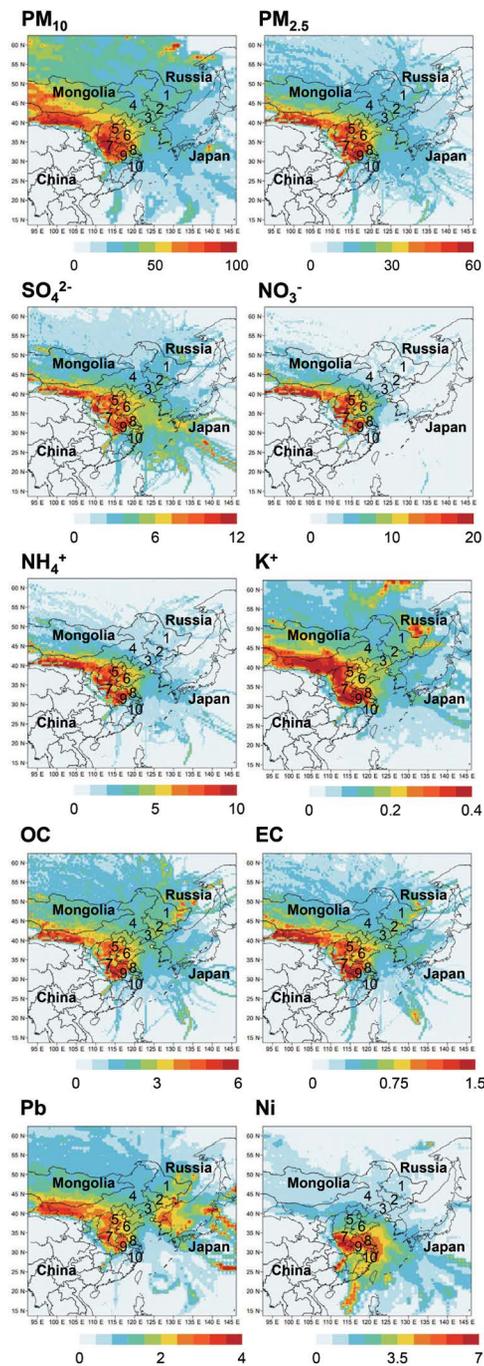
장거리 이동의 영향을 파악하기 위해, CWT를 이용하여 PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$, $\text{PM}_{2.5}$ 주요 성분의 잠재적 오염지역을 추정하였다(그림 7). $\text{PM}_{2.5}$ 는 백령도와 제주도에서 유사한 잠재적 오염지역의 영향을 보였으며, 산업과 주거지역이 밀집되어 있는 허베이, 산둥, 장수, 안후이지역이 주요 오염지역으로 나타났다. 선행 연구에서는 허베이, 산둥, 장수지역을 제주도 $\text{PM}_{2.5}$ 고

농도 오염지역으로 보고하였으며(Kim *et al.*, 2020), 백령도 $\text{PM}_{2.5}$ 는 산둥반도와 랴오둥반도의 영향을 받는 것으로 분석되었다(Oh *et al.*, 2017). PM_{10} 은 $\text{PM}_{2.5}$ 와 유사한 오염지역을 보였으나, 몽골과 내몽골로부터의 장거리 이동의 영향이 더 크게 나타났고, 제주도의 경우에는 중국 남부지역의 영향도 나타났다. 2차 이온(SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+)은 $\text{PM}_{2.5}$ 와 유사한 오염지역(허베이, 산둥, 장수, 안후이지역)을 보였다. 특히, 백령도에서는 NO_3^- 와 NH_4^+ 가 매우 유사한 오염지역을 보여 겨울철 질산암모늄(NH_4NO_3)의 외부유입 영향을 나타냈다. OC와 EC는 이온과 유사한 오염지역을 보였으나, 몽골로부터 장거리 이동의 영향이 더 크고 헤이룽장성과 러시아의 영향도 나타났다. 특히, 생물성 연소의 지시자인 K^+ 는 OC와 EC에 비해 중국 북부와 러시아로부터 뚜렷한 장거리 이동의 영향을 받았다(Kim *et al.*, 2019). Pb는 제주도에서 SO_4^{2-} 와 유사한 오염지역을 보여 석탄연소의 영향을 받은 것으로 추정되며(Dai *et al.*, 2015), 백령도에서는 여름에 북한과 국내 오염원의 영향을 받은 것으로 판단된다. 중유연소로 배출되는 Ni는 백령도와 제주도 모두 상하이를 포함한 저장지역과 허난지역의 영향을 받았으며, 중국 남부의 선박 배출 영향도 나타났다. 또한, 제주도에서는 국내에서 배출된 Ni의 영향도 받은 것으로 확인되었다.

4. 결 론

2018년~2020년 $\text{PM}_{2.5}$ 농도는 백령도에서는 매년 통계적으로 유사한 수준이었으나, 제주도에서는 2020년에 감소하여 코로나 19에 따른 산업 활동과 2차 생성이 감소한 것으로 추정된다. $\text{PM}_{2.5}$ 성분의 농도추세와 계절변화를 파악한 결과, NO_3^- , OC, EC는 백령도와 제주도에서 장거리 이동 영향을 나타냈으며, SO_4^{2-} 와 NH_4^+ 은 백령도에서 인접한 지역으로부터의 외부 유입 영향을 나타냈다. PM_{10} 과 $\text{PM}_{2.5}$ 농도는 모든 배경농도측정소에서 유사한 농도추세와 상관성을 보였

(a) Baengnyeong



(b) Jeju

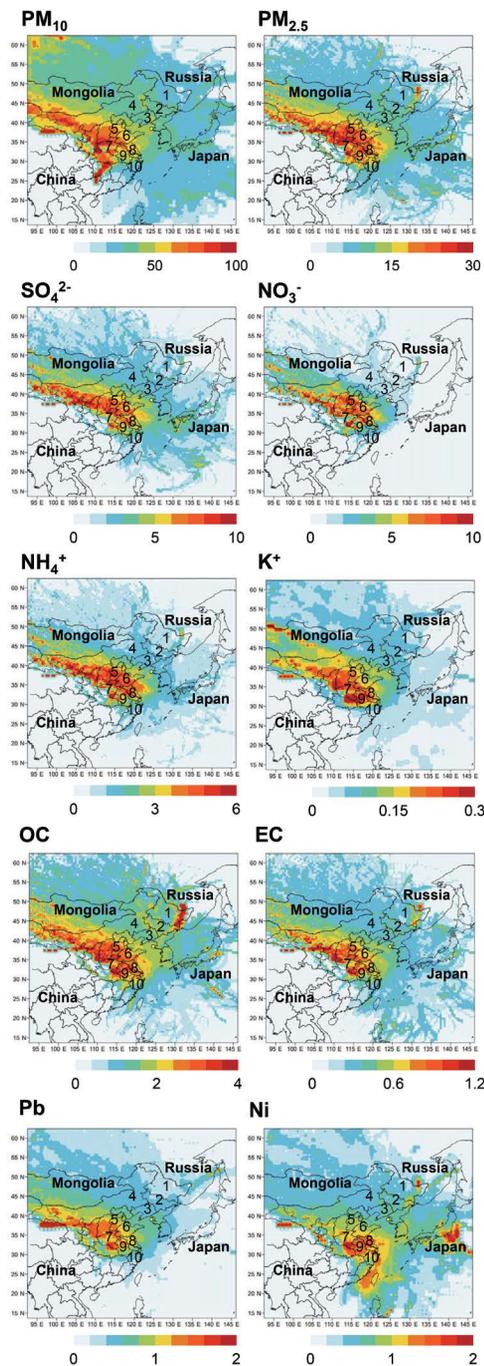


Fig. 7. CWT plots of PM₁₀, PM_{2.5}, and PM_{2.5} components in (a) Baengnyeong and (b) Jeju during 2018~2020. Ten Chinese provinces are presented: (1) Heilongjiang, (2) Jilin, (3) Liaoning, (4) Inner Mongolia, (5) Hebei, (6) Shandong, (7) Jiangsu, (8) Zhejiang, (9) Anhui, and (10) Henan. The red area represents major potential source areas affecting each component. The unit of CWT value is $\mu\text{g}/\text{m}^3$ and ng/m^3 for PM_{2.5}, ions, and carbons and metals, respectively.

으므로 백령도와 제주도 대기환경연구소 자료를 활용하여 서해와 남해를 포함한 배경지역 미세먼지 오염 특성과 장거리 이동 영향을 평가할 수 있다. $PM_{2.5}$ 의 주요 오염원인 인위적 배출원과 2차 생성의 영향은 백령도와 제주도에서 공통적으로 나타났으나, 측정소 별로 세부 오염원 영향은 차이를 보였다. 백령도에서는 겨울철 연소 배출과 NO_3^- 의 장거리 이동 영향이 컸고, 가을철에는 자연적 기원의 영향도 나타나 국외 유입에 의한 미세먼지 장거리 이동의 영향이 뚜렷하였다. 반면, 제주도에서는 여름철 선박배출 영향과 무기 이온(SO_4^{2-} , NH_4^+)의 영향이 증가하여 산업활동의 영향이 두드러졌다. 백령도에서는 서풍과 남서풍이 불 때 연소 배출과 2차 생성 영향이 증가하였고, 제주도에서는 북풍과 남풍에 의해 산업활동과 2차 생성 영향이 증가하였다. 중국 허베이, 산둥, 장수, 안후이 지역이 $PM_{2.5}$ 의 주요 오염지역으로 나타났고, $PM_{2.5}$ 와 PM_{10} 성분자료 모두 백령도와 제주도에서 매우 유사한 오염지역의 영향을 받았으므로, 중국으로부터 장거리 이동은 국내 배경지역에 일정한 영향을 주는 것으로 해석된다. 본 연구를 통해, 최근 배경지역 대기 오염 특성을 평가하고 백령도와 제주도의 오염원과 장거리 오염지역을 비교하였으며, 이러한 국내 배경지역 대기오염 연구 결과는 추후 국내 배경지역 측정망 운영·구축과 월경성 오염물질 연구를 위한 기초자료로 활용될 수 있을 것이다.

감사의 글

본 연구는 국립환경과학원(NIER-2021-04-02-174)과 한국연구재단(2020R1A2B5B01002669)의 지원으로 수행되었습니다.

References

- Bae, M.A., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S.T. (2020) A multiscale tiered approach to quantify contributions: A case study of $PM_{2.5}$ in South Korea during 2010-2017, *Atmosphere*, 11(2), 141. <https://doi.org/10.3390/atmos11020141>
- Carslaw, D. (2019) The openair manual open-source tools for analysing air pollution data, Manual for Version, 1(4), 1-270.
- Choi, S.-D., Ghim, Y.S., Lee, J.Y., Kim, J.Y., Kim, Y.P. (2012) Factors affecting the level and pattern of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) at Gosan, Korea during a dust period, *Journal of Hazardous Materials*, 227-228, 79-87. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2012.05.012>
- Collivignarelli, M.C., Abba, A., Bertanza, G., Pedrazzani, R., Ricciardi, P., Carnevale Miino, M. (2020) Lockdown for CoViD-2019 in Milan: What are the effects on air quality, *Science of The Total Environment*, 732, 139280. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.139280>
- Corbin, J.C., Mensah, A.A., Pieber, S.M., Orasche, J., Michalke, B., Zanatta, M., Czech, H., Massabo, D., Buatier de Mongeot, F., Mennucci, C., El Haddad, I., Kumar, N.K., Stengel, B., Huang, Y., Zimmermann, R., Prevot, A.S.H., Gysel, M. (2018) Trace metals in soot and $PM_{2.5}$ from heavy-fuel-oil combustion in a marine engine, *Environmental Science and Technology*, 52(11), 6714-6722. <https://doi.org/10.1021/acs.est.8b01764>
- Dai, Q.L., Bi, X.H., Wu, J.H., Zhang, Y.F., Wang, J., Xu, H., Yao, L., Jiao, L., Feng, Y.C. (2015) Characterization and source identification of heavy metals in ambient PM_{10} and $PM_{2.5}$ in an integrated iron and steel industry zone compared with a background site, *Aerosol and Air Quality Research*, 15(3), 875-887. <https://doi.org/10.4209/aaqr.2014.09.0226>
- Gao, J., Tian, H., Cheng, K., Lu, L., Zheng, M., Wang, S., Hao, J., Wang, K., Hua, S., Zhu, C., Wang, Y. (2015) The variation of chemical characteristics of $PM_{2.5}$ and PM_{10} and formation causes during two haze pollution events in urban Beijing, China, *Atmospheric Environment*, 107, 1-8. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.02.022>
- Ghim, Y.S., Choi, Y.J., Park, J.S., Kim, S.T., Bae, C.H., Seo, J.H., 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>
- Guo, H., Otjes, R., Schlag, P., Kiendler-Scharr, A., Nenes, A., Weber, R.J. (2018) Effectiveness of ammonia reduction on control of fine particle nitrate, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(16), 12241-12256. <https://doi.org/>

- 10.5194/acp-18-12241-2018
- Hays, M.D., Fine, P.M., Geron, C.D., Kleeman, M.J., Gullett, B.K. (2005) Open burning of agricultural biomass: Physical and chemical properties of particle-phase emissions, *Atmospheric Environment*, 39(36), 6747-6764. <https://doi.org/j.atmosenv.2005.07.072>
- Heo, J.H., Adams, P.J., Gao, H.O. (2016) Public health costs of primary PM_{2.5} and inorganic PM_{2.5} precursor emissions in the United States, *Environmental Science and Technology*, 50(11), 6061-6070. <https://doi.org/10.1021/acs.est.5b06125>
- Hwang, K.C., An, J.G., Lee, S.H., Choi, W.S., Yim, U.H. (2020) A study on the ozone formation potential of volatile organic compounds in Busan using SIFT-MS, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(5), 645-668. <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.5.645>
- Jeong, U.K., Kim, J., Lee, H.L., Jung, J.S., Kim, Y.J., Song, C.H., Koo, J.-H. (2011) Estimation of the contributions of long range transported aerosol in East Asia to carbonaceous aerosol and PM concentrations in Seoul, Korea using highly time resolved measurements: a PSCF model approach, *Journal of Environmental Monitoring*, 13(7), 1905-1918. <https://doi.org/10.1039/c0em00659a>
- Jung, J.S., Lee, D.H., Jeong, H.J., Lee, S.I., Oh, S.H. (2018) Chemical characterization of the long-range transport of firework/firecracker emissions over the Korean Peninsula: A novel indicator of Asian continental outflows, *Atmospheric Environment*, 178, 223-230. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.02.013>
- Kim, C.-H., Meng, F., Kajino, M., Lim, J.H., Tang, W., Lee, J.-J., Kiriya, Y., Woo, J.-H., Sato, K., Kitada, T., Minoura, H., Kim, J.Y., Lee, K.-B., Roh, S.N., Jo, H.-Y., Jo, Y.-J. (2021) Comparative numerical study of PM_{2.5} in exit-and-entrance areas associated with transboundary transport over China, Japan, and Korea, *Atmosphere*, 12(4), 469. <https://doi.org/10.3390/atmos12040469>
- Kim, E.G., Hopke, P.K. (2004) Comparison between conditional probability function and nonparametric regression for fine particle source directions, *Atmosphere Environment*, 38, 4667-4673. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2004.05.035>
- Kim, H.-S., Chung, Y.-S., Choi, H.-J. (2014) On air pollutant variations in the cases of long-range transport of dust particles observed in central Korea in the leeside of China in 2010, *Air Quality, Atmosphere and Health*, 7(3), 309-323. <https://doi.org/10.1007/s11869-014-0238-y>
- Kim, I.S., Lee, J.Y., Wee, D.H., Kim, Y.P. (2019) Estimation of the contribution of biomass fuel burning activities in North Korea to the air quality in Seoul, South Korea: Application of the 3D-PSCF method, *Atmospheric Research*, 230, 104628. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2019.104628>
- Kim, J.-A., Lim, S.H., Shang, X., Lee, M.H., Kang, K.-S., Ghim, Y.S. (2020) Characteristics of PM_{2.5} chemical composition and high-concentration episodes observed in Jeju from 2013 to 2016, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(3), 388-403, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.3.388>
- Kim, S.-M., Kim, K.-S., Hyun, S.-S., Kim, J.-H., Kim, M.-C., Kim, B.-J., Lee, K.-H. (2018a) Chemical composition and source apportionment of PM_{2.5} in Jeju city in 2017, *Journal of the Korean Society for Environmental Analysis*, 21, 61-70, (in Korean with English abstract).
- Kim, S.H., Kim, T.-Y., Yi, S.-M., Heo, J.B. (2018b) Source apportionment of PM_{2.5} using positive matrix factorization (PMF) at a rural site in Korea, *Journal of Environmental Management*, 214, 325-334. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2018.03.027>
- Lee, D.G., Choi, J.-Y., Myoung, J.S., Kim, O.G., Park, J.H., Shin, H.-J., Ban, S.-J., Park, H.-J., Nam, K.-P. (2019a) Analysis of a severe PM_{2.5} episode in the Seoul metropolitan area in South Korea from 27 February to 7 March 2019: Focused on estimation of domestic and foreign contribution, *Atmosphere*, 10(12), 756. <https://doi.org/10.3390/atmos10120756>
- Lee, H.M., Park, R.J., Henze, D.K., Lee, S.G., Shim, C.S., Shin, H.J., Moon, K.J., Woo, J.H. (2017) PM_{2.5} source attribution for Seoul in May from 2009 to 2013 using GEOS-Chem and its adjoint model, *Environmental Pollution*, 221, 377-384. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2016.11.088>
- Lee, S.Y., Kim, J., Choi, M.J., Hong, J.M., Lim, H.K., Eck, T.F., Holben, B.N., Ahn, J.-Y., Kim, J.S., Koo, J.-H. (2019b) Analysis of long-range transboundary transport (LRTT) effect on Korean aerosol pollution during the KORUS-AQ campaign, *Atmospheric Environment*, 204, 53-67. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.02.020>
- Li, L., Yan, D., Xu, S., Huang, M., Wang, X., Xie, S. (2017) Characteristics and source distribution of air pollution in winter in Qingdao, eastern China, *Environmental Pollution*, 224, 44-53. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2016.12.037>
- Li, P., Sato, K., Hasegawa, H., Huo, M., Minoura, H., Inomata, Y., Take, N., Yuba, A., Futami, M., Takahashi, T., Kotake, Y.

- (2018) Chemical characteristics and source apportionment of PM_{2.5} and long-range transport from Northeast Asia continent to Niigata in Eastern Japan, *Aerosol and Air Quality Research*, 18(4), 938-956. <https://doi.org/10.4209/aaqr.2017.05.0181>
- 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(4), 2007-2024. <https://doi.org/10.5194/acp-12-2007-2012>
- LTP (2019) Summary report of the 4th stage (2013-2017) LTP project, Joint Research Project for Long-range Transboundary Air Pollutants in Northeast Asia.
- Nakada, L.Y.K., Urban, R.C. (2020) COVID-19 pandemic: Impacts on the air quality during the partial lockdown in Sao Paulo state, Brazil, *Science of The Total Environment*, 730, 139087. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.139087>
- Nguyen, H.T., Kim, K.-H. (2006) Comparison of spatiotemporal distribution patterns of NO₂ between four different types of air quality monitoring stations, *Chemosphere*, 65, 201-212. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2006.02.061>
- Nguyen, T.N.T., Vuong, Q.T., Lee, S.-J., Xiao, H., Choi, S.-D. (2022) Identification of source areas of polycyclic aromatic hydrocarbons in Ulsan, South Korea, using hybrid receptor models and the conditional bivariate probability function, *Environmental Science Processes and Impacts*, 24, 140-151. <https://doi.org/10.1039/d1em00320h>
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2020) Annual Report of Air Quality in Korea 2020.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2021) Air pollution monitoring network installation and operation guidelines.
- Oh, S.-H., Lee, T.H., Park, T.H., Ahn, J.-Y., Park, J.-S., Choi, J.-S., Park, G.T., Bae, M.-S. (2017) Spatial distribution of PM_{1.0} major compounds from long range transport at the Baegryungdo super site: Relationship between PSCF and cluster analysis, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(4), 411-423, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2017.33.4.411>
- Pan, Y., Wang, Y., Zhang, J., Liu, Z., Wang, L., Tian, S., Tang, G., Gao, W., Ji, D., Song, T., Wang, Y. (2016) Redefining the importance of nitrate during haze pollution to help optimize an emission control strategy, *Atmospheric Environment*, 141, 197-202. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.06.035>
- Park, S.S., Harrison, D., Pancras, J.P., Ondov, J.M. (2005) Highly time-resolved organic and elemental carbon measurements at the Baltimore Supersite in 2002, *Journal of Geophysical Research*, 110, D07S06. <https://doi.org/10.1029/2004JD004610>
- Park, T.H., Ban, J.H., Kang, S.W., Ghim, Y.S., Shin, H.-J., Park, J.S., Park, S.M., Moon, K.J., Lim, Y.-J., Lee, M.-D., Lee, S.-B., Kim, J.S., Kim, S.T., Bae, C.H., Lee, Y.H., Lee, T.H. (2018) Chemical characteristics of PM₁ using aerosol mass spectrometer at Baengnyeong island and Seoul metropolitan area, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(3), 430-446, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.3.430>
- Pilinis, C., Farber, R.J. (1991) Evaluation of the effects of emission reductions on secondary particulate matter in the south coast air basin of California, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 41(5), 702-709. <https://doi.org/10.1080/10473289.1991.10466870>
- Son, J.Y., Lee, J.T., Kim, K.H., Jung, K., Bell, M.L. (2012) Characterization of fine particulate matter and associations between particulate chemical constituents and mortality in Seoul, Korea, *Environmental Health Perspectives*, 120(6), 872-878. <https://doi.org/10.1289/ehp.1104316>
- Stojić, A., Stanišić Stojić, S. (2017) The innovative concept of three-dimensional hybrid receptor modeling, *Atmospheric Environment*, 164, 216-223. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.06.009>
- Uria-Tellaetxe, I., Carslaw, D.C. (2014) Conditional bivariate probability function for source identification, *Environmental Modelling and Software*, 59, 1-9. <https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2014.05.002>
- Vuong, Q.T., Thang, P.Q., Park, M.-K., Choi, S.-D. (2020) Effects of the COVID-19 lockdown on criteria air pollutants in the city of Daegu, the epicenter of South Korea's outbreak, *Environmental Science and Pollution Research*, 27(36), 45983-45991. <https://doi.org/10.1007/s11356-020-11360-4>
- Wang, D.F., Zhou, B., Fu, Q., Zhao, Q., Zhang, Q., Chen, J., Yang, X., Duan, Y., Li, J. (2016) Intense secondary aerosol formation due to strong atmospheric photochemical reactions in summers: observations at a rural site in eastern Yangtze river delta of China, *Science of The Total Environment*, 571, 1454-1466. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.06.212>
- Yu, G.H., Park, S.S., Ghim, Y.S., Shin, H.J., Lim, C.S., 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>
- Zhao, D., Chen, H., Yu, E., Luo, T. (2019) PM_{2.5}/PM₁₀ ratios in eight economic regions and their relationship with meteorology in China, *Advances in Meteorology*, 2019, 1-15. <https://doi.org/10.1155/2019/5295726>
- Zhao, Y., Wang, L., Huang, T., Tao, S., Liu, J., Gao, H., Luo, J., Huang, Y., Liu, X., Chen, K., Wang, L., Ma, J. (2021) Unsupervised PM_{2.5} anomalies in China induced by the COVID-19 epidemic, *Science of The Total Environment*, 795, 148807. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.148807>

Authors Information

- 이호영 (울산과학기술원 도시환경공학과 석박사통합과정)
(hylee@unist.ac.kr)
- 김남규 (울산과학기술원 도시환경공학과 석사과정)
(knk1209@unist.ac.kr)
- 조민재 (울산과학기술원 도시환경공학과 석사과정)
(mjcho9465@unist.ac.kr)
- 이상진 (울산과학기술원 도시환경공학과 박사과정)
(lsjin1347@unist.ac.kr)
- 최진수 (국립환경과학원 대기환경연구과 환경연구사)
(reconjs@korea.kr)
- 강경식 (국립환경과학원 대기환경연구과 환경연구사)
(kskang0677@korea.kr)
- 최성득 (울산과학기술원 도시환경공학과 교수)
(sdchoi@unist.ac.kr)