

논문

전라북도 초미세먼지 고농도 발생 특성 연구: 익산시를 중심으로

A Study on the Characteristics of PM_{2.5} and Estimation of Source Identification in Jeollabuk-do: Focused on Iksan City

남두천*, 유재연, 류재웅, 김현호, 박지영, 강현진, 김효윤, 강경식¹⁾,
문다희¹⁾, 최정화, 김호주

전북보건환경연구원 환경연구부, ¹⁾국립환경과학원 기후대기연구부 대기환경연구과

Tu-Cheon Nam*, Jae-Youn Ryoo, Jae-Woong Ryou, Hyun-Ho Kim,
Ji-Yeong Park, Hyeon-Jin Kang, Hyo-Yun Kim, Kyeong-Sik Kang¹⁾,
Da-Hui Mun¹⁾, Jeong-hwa Choi, Ho-Ju Kim

Environmental Research Department, Jeonbuk Institute of Health and Environment Research,
Jeollabuk-do, Republic of Korea

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

접수일 2023년 7월 28일
수정일 2023년 8월 24일
채택일 2023년 8월 25일

Received 28 July 2023
Revised 24 August 2023
Accepted 25 August 2023

*Corresponding author
Tel : +82-(0)63-290-5322
E-mail : tuccheon0@korea.kr

Abstract The purpose of this study is to estimate the factors affecting high concentrations of PM_{2.5} in Jeollabuk-do using PM_{2.5} weight and composition data collected in Iksan from July 2021 to June 2022. The air masses to Jeollabuk-do were classified into 7 clusters using the HYSPLIT model, and the clusters affected by high concentrations were C1 (atmospheric stagnation), C4 (eastern China), and C7 (northeastern China). In C1, the starting point of the air current is near the Korean Peninsula, and high concentrations occur due to the accumulation of pollutants caused by slow wind speeds. C4 is an air current introduced from the Shandong Peninsula in China, and the high concentration effect persists except during the summer. C7 is an air current originating from the vicinity of Manchuria, and the high-concentration effect is concentrated in winter. Nitrate and ammonia, among the components constituting PM_{2.5}, contribute significantly to high PM_{2.5} concentrations. By utilizing the EPA-PMF method to estimate pollution sources within high concentration clusters, the contribution of secondary sulfate, secondary nitrate, and mobile sources was found to be more than 70% in all clusters. These results suggest that management of primary gaseous pollutants, including ammonia, is important to control high concentrations of PM_{2.5} in Jeollabuk-do considering the regional characteristics.

Key words: PM_{2.5}, Jeollabuk-do, HYSPLIT, CWT, EPA-PMF

1. 서론

미세먼지는 공기역학적 직경에 따라 크기가 10 μm 이하인 PM₁₀과 2.5 μm 이하인 PM_{2.5}로 구분할 수 있다. PM_{2.5}는 PM₁₀보다 크기가 더 작아 공기에 머무르는 시간이 보다 길어 인체노출 가능성이 한층 더 크다. 또한 세포 안으로 쉽게 들어갈 수 있어 호흡기, 심혈관 및 면역계 질환 등 여러 유해한 영향을 미칠 수 있

어 대기 중 농도가 10 μg/m³ 증가하면 사망 위험도가 1.4~2.7% 증가하는 것으로 알려져 있다(Choi *et al.*, 2020). 또한 대기오염은 2019년 전 세계 주요 사망 요인 중 4번째로 높은 위험인자이며, 대기오염에서 기인하는 비전염성 질환으로 인한 사망자 수가 약 700만 명에 이르는 것으로 추정하고 있다(HEI, 2020).

세계보건기구(World Health Organization, WHO)는 인체에 영향을 미치는 미세먼지에 의한 피해를 최

소화할 수 있는 가이드라인을 제시하고 있다. 2021년에 발표된 새로운 가이드라인에서 WHO는 대기 중 PM_{2.5} 권장 농도를 연평균 10 µg/m³에서 5 µg/m³, 24시간 평균 25 µg/m³에서 15 µg/m³로 강화하였다(WHO, 2021).

환경부는 PM_{2.5}가 국민건강에 미치는 위해를 예방하고 대기질을 적정하게 관리·보전하기 위해 PM_{2.5}에 대한 일평균 환경기준을 35 µg/m³, 연평균 기준을 15 µg/m³로 강화(2018년)하였으며, 미세먼지 저감 및 관리에 관한 특별법(약칭 미세먼지법)을 제정·시행(2019년)하는 등 대기질 개선을 위한 노력이 지속되고 있다. 그러나 CO 및 SO₂의 농도에 비해 초미세먼지 농도의 저감 경향은 크지 않아 체감 오염도는 오히려 증가하고 있다(Hwang *et al.*, 2021).

대기 중 오염물질 농도는 국내·외 여건, 지형 및 기상 조건 등이 복합 작용하여 나타나게 된다. PM_{2.5}는 오염원에서 직접 생성되는 1차 입자와 대기 중에서 기체상으로 존재하는 전구물질들의 화학반응을 통해 생성되는 2차 입자가 있어 생성경로가 다양하여 발생 원인을 정확히 파악하기 어렵다. 국립환경과학원 대기질 통합예보센터는 고농도 사례 분석을 통해 PM_{2.5} 발생 패턴을 개념화하여 국외 유입, 대기 정체, 국지순환, 복합형으로 분류하였다. 이 중 “국외 유입”은 동북아시아 내륙에서 고농도가 유입되어 짧은 시간 동안 급격한 농도 상승이 발생하는 특징을 보이며, “대기 정체”는 고기압의 영향이 지속되는 정체 조건에서 지역 오염원의 영향이 크며, “복합형”은 국외 유입과 대기 정체가 중첩되어 나타나 높은 농도로 장시간 동안 넓은 범위에 영향을 미치게 된다(NIER, 2019).

2019년 국가 대기오염물질 배출량(NAEIRC, 2022)에 따르면 전라북도 PM_{2.5} 발생량은 3.6 kton으로 전국 발생량의 4.1%에 불과하나 같은 해 전북의 대기 중 PM_{2.5} 농도는 26.0 µg/m³로 충북에 이어 경기, 충남과 함께 두 번째로 높은 농도를 보였다. Ryoo *et al.* (2019)의 연구에 따르면 배출량에 비해 전북의 PM_{2.5} 농도가 높은 이유에 대해 전북의 대기 정체지역이 71.4%로 충북(90.1%), 경기(85.5%)에 이어 세 번째로 많아 국내

발생 또는 국외에서 유입된 미세먼지의 축적으로 고농도 발생 우려가 큰 것으로 나타났다.

본 연구는 대기관리권역 중 중부권에 속한 익산시의 PM_{2.5} 중량 및 성분 농도자료와 함께 역궤적 분석을 통해 고농도 발생 유입 기류를 분류하고, 주요 영향 오염원의 종류와 기여도 및 위치를 추정하고자 하였다. 이를 통해 전라북도 대기 중 PM_{2.5} 고농도를 유발하는 복잡한 오염원 영향을 정량적으로 파악하여 초미세먼지로 인한 건강 위해성 평가 및 저감방안과 농업 활동이 활발한 지역 특성에 맞는 대기질 개선 대책 수립에 필요한 기초자료로 활용하고자 한다.

2. 연구내용 및 방법

2.1 연구 대상

전라북도의 PM_{2.5} 특성을 알아보기로 2021년 7월에서 2022년 6월을 대상으로 팔봉동 등 익산시 7개 도시 대기측정소의 PM_{2.5} 농도를 이용하였다. 각 측정소의 매시간 농도자료를 평균하여 익산시의 시간 평균 농도로 활용하였다. 이와 함께 수송모델 입력자료로 사용하기 위한 PM_{2.5} 중량 및 27개 성분(SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, OC, EC, Si, S, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, As, Se, Br, Ba, Pb) 농도는 익산시 모현동에 위치한 국립환경과학원 전북권대기환경연구소의 측정자료를 이용하였다. 모든 측정값은 매 시간 간격으로 측정되며, 교정 등으로 인한 이상치를 제외한 확정자료를 이용하였다.

2.2 역궤적 분석

전라북도로 유입되는 PM_{2.5} 이동경로를 파악하기 위해 공기고 역궤적분석(Backward Trajectory Analysis)을 실시하였다. 이를 위해 미국해양대기청(NOAA, National oceanic and atmospheric administration)에서 개발된 HYSPLIT (Hybrid Single-Particle Lagrangian Intergrated Trajectory) 모델을 사용하였다. HYSPLIT은 대기의 이류와 확산을 계산하여 어떤 경

로를 통해 공기괴가 이동했는지 추적하는 모델이다. HYSPLIT을 수행하기 위해서는 수평·수직 풍속 성분, 온도, 고도 등의 기상자료가 필요하며, 본 연구에서는 NCEP (National Centers for Environmental Prediction) GDAS (Global Data Assimilation System)에서 제공하는 $1^\circ \times 1^\circ$ 의 수평 해상도의 전 지구 기상자료인 GDAS1 (<ftp://ftp.arl.noaa.gov/pub/archives/gdas1>)을 이용하였다.

2.3 오염원 위치 추정

수용지점에 영향을 미치는 오염원의 위치를 추정하기 위해 CWT (Concentration weighted trajectory)를 이용하였다. 오염원 위치 추정은 수용지점으로 유입되는 공기괴의 이동경로상에 오염원이 존재한다면 해당 오염원에서 배출되는 오염물질이 공기의 흐름에 따라 수용지점으로 유입되어 농도에 영향을 미칠 것이라는 점에서 착안되었다. CWT는 수용지점에 대한 격자별 영향을 격자 체류시간에 따른 가중평균농도로 평가하는 방법이다. CWT는 수용점의 농도를 직접 이용하여 평가하기 때문에 보다 높은 농도를 갖는 역궤적에 대한 과소평가 가능성이 있는 PSCF (potential source contribution function)의 한계를 보완 (Do and Jung, 2015)하는 것으로 알려져 있으며 아래 식과 같이 정의된다.

$$C_{ij} = \frac{1}{\sum_{k=1}^M \tau_{ijk}} \sum_{k=1}^M C_k \tau_{ijk} \quad (1)$$

여기서, i, j 는 격자 인덱스, k 는 궤적 인덱스, M 은 총 궤적수, τ_{ijk} 는 k 궤적의 ij 격자 체류시간, C_k 는 k 궤적의 수용지점 농도, C_{ij} 는 ij 격자의 가중평균농도이다.

2.4 대기수용모델

$PM_{2.5}$ 농도에 영향을 주는 주요 오염원의 종류와 기여도를 파악하기 위해 수용모델을 이용하였다. 대기 중 $PM_{2.5}$ 농도를 결정하는 요인은 대기오염물질 배출량, 기상 여건 및 대기 중 물질 사이의 반응에 의한 2차 생성 등이 있다. 이 중 관리가 가능한 일차적 요인은

배출량을 제어하는 것이며, 이를 통해 대기 중 $PM_{2.5}$ 농도를 낮추는 오염원별 관리 정도와 저감 우선순위를 결정하기 위해서는 오염원별 기여도가 필요하다 (Hwang, 2022). 수용모델 (receptor model)은 수용지점의 $PM_{2.5}$ 성분을 측정하고 성분 간 관계를 분석하여 수용지점에 영향을 미치는 오염원을 추정하고 기여도를 분석하는 방법 (Hwang and Kim, 2013)이다. PMF는 가장 대표적인 수용모델로 오염원 분류표 (F 행렬)와 기여도 (G 행렬)의 값들이 음수를 가질 수 없도록 제한하고 오염원 분류표가 없더라도 사용할 수 있는 장점을 바탕으로 널리 쓰이고 있다. PMF는 질량 보존의 법칙 (mass conservation)과 질량수지 (mass balance)를 바탕으로 아래 관계식을 이용한다 (US EPA, 2014).

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \quad (2)$$

여기서 x_{ij} 는 i 번째 시료의 j 번째 성분의 농도, g_{ik} 는 i 번째 시료에 대한 오염원 k 에 대한 기여도, f_{kj} 는 오염원 k 에서 배출되는 j 성분의 농도이고 e_{ij} 는 각 시료 또는 성분의 잔차이다.

3. 연구 결과 및 고찰

3.1 역궤적 분석 결과

역궤적 분석의 수용지점은 익산시 모현동을 기준으로 하고 분석 기간은 2021년 7월에서 2022년 6월을 대상으로 하였다. 역궤적 추적 시간은 72시간으로 하였으며 1시간 간격으로 역궤적을 계산하여 총 8,555개의 역궤적 경로를 도출하였다. 그리고 역궤적들이 수용지점에 도달하는 패턴의 유사성을 근거로 군집분석을 수행하였다.

역궤적 군집분석은 각 거리 (Angular distance)를 이용한 방법과 유클리드 거리 (Euclidean distance)를 이용한 방법으로 구분할 수 있다. 각 거리 방법은 궤적의 평균 각도를 근거로 궤적들의 차이를 계산하여 방향에 따라 분류한다. 반면 유클리드 거리 군집분석은 방

Table 1. Occurrences and average PM_{2.5} concentrations ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) by clusters.

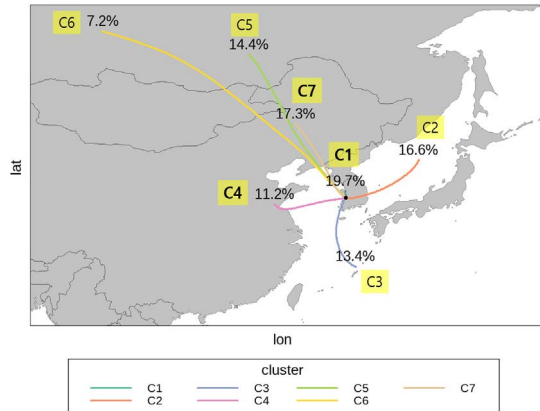
Cluster	N	Ratio (N/Total)	PM _{2.5} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
C1	1,689	19.7%	25.5
C2	1,422	16.6%	10.5
C3	1,150	13.4%	13.1
C4	961	11.2%	28.6
C5	1,231	14.4%	15.1
C6	619	7.2%	11.8
C7	1,483	17.3%	27.8
Total	8,555	100.0%	19.6

향이 같아도 이동 속도 차이가 큰 경우 다른 궤적으로 분류한다(Park *et al.*, 2017). 대기 정체가 형성되면 대기 중 오염물질의 확산이 어려워지고 축적되어 대기 중 PM_{2.5} 고농도 발생으로 이어진다. 본 연구에서는 이러한 대기 정체의 영향을 알아보기로 이동 속도에 의한 차이로 궤적을 구분하는 유클리드 거리를 이용하여 역궤적을 분류하였다. 이후 궤적 간의 유사성으로 분류된 군집분석자료와 익산시 도시대기측정소의 평균 PM_{2.5} 농도를 결합하여 분석하였다. 각 군집의 발생 빈도와 평균 PM_{2.5} 농도를 표 1에 나타냈으며, 도출된 역궤적 군집 분류 결과를 그림 1에 도시하였다.

HYSPLIT으로 계산한 72시간 역궤적들의 군집을 분류한 결과 총 7개의 군집으로 구분되었고 대기 정체(C1), 동해 유입(C2), 남해 유입(C3), 중국 동부 유입(C4), 시베리아 유입(C5, C6), 중국 북동부 유입(C7)으로 나타났다. 이 중 PM_{2.5} 고농도 영향 군집은 C1(대기 정체), C4(중국 동부 유입), C7(중국 북동부 유입)이었다.

C1(대기 정체)은 기류의 시작점이 한반도 인근으로 이동 속도가 느린 군집으로 전체 군집 중 발생 빈도(1,689회)가 가장 많았고 평균 PM_{2.5} 농도는 25.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 였다. 전라북도는 지형 여건으로 인해 대기 정체가 가능성이 타도에 비해 크며 이로 인한 2차 PM_{2.5} 생성 가능성이 높다(Ryoo *et al.*, 2019)는 연구 결과와 일치하였다.

C4(중국 동부)는 발생 빈도(961회)는 상대적으로 적지만 중국 산둥반도 인근에서 편서풍에 의해 유입

**Fig. 1.** Cluster analysis results of backward trajectories in Jeollabuk-do.

되는 대기오염물질 영향으로 PM_{2.5} 평균 농도 28.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 나타나 전체 군집 중 가장 높은 농도를 보였다.

C7(중국 북동부)은 북서풍에 의해 만주 지역에서 유입되는 기류로 C1(대기 정체)에 이어 높은 빈도(1,483회)로 관찰되었으며, 유사한 경로인 C5와 C6에 비해 이동속도가 느려 중국에서의 체류시간이 긴 영향으로 PM_{2.5} 평균 농도는 27.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 였다.

동해와 남해로부터 각각 유입되는 C2와 C3는 특별한 오염원의 영향이 없고, 시베리아 부근에서 유입되는 C5와 C6는 빠른 이동 속도로 C7에 비해 대기오염물질의 유입량이 많지 않아 PM_{2.5} 농도가 낮은 것으로 판단된다.

3.2 군집별 PM_{2.5} 고농도 특성

군집에 따른 PM_{2.5} 고농도 발생 경향을 알아보기로 2021년 7월부터 2022년 6월까지 익산시 도시대기측정소의 PM_{2.5} 시간평균 농도가 고농도 기준(36 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) 이상 발생한 횟수를 군집별로 알아보았다.

표 2를 보면 전체 고농도 발생은 1,205회였으며 C7(중국 북동부 유입, 390회), C1(대기 정체, 389회), C4(중국 동부 유입, 303회)에서 대부분 발생하였다. 고농도 영향 군집인 C1, C4, C7의 고농도 발생 횟수는 1,082회로 저농도 군집(123회)에 비해 약 10배 정도 높은 빈도를 보여 이 군집들이 전라북도 PM_{2.5} 고농도

Table 2. Total and high-concentration ($36 \mu\text{g}/\text{m}^3$) trajectory counts, and high-concentration occurrence ratios by clusters.

Cluster	Number of trajectories	Number of trajectories with high $\text{PM}_{2.5}$ concentrations	High concentration ratio
C1	1,689	389	23.0%
C2	1,422	16	1.1%
C3	1,150	35	3.0%
C4	961	303	31.5%
C5	1,231	60	4.9%
C6	619	12	1.9%
C7	1,483	390	26.3%
Total	8,555	1,205	14.1%

에 큰 영향을 미치고 있음을 알 수 있다. 유입 빈도를 고려한 고농도 발생 비율은 C4 (31.5%)가 가장 높았으며 C7 (26.3%), C1 (23.0%) 순으로 나타났다.

그림 2에 나타난 월별 고농도 발생 횟수를 보면 고농도가 집중적으로 관측된 시기는 2021년 11월~2022년 4월 기간이었으며 대부분 C1 (대기 정체), C4 (중국 동부), C7 (중국 북동부) 군집에서 관측되었다.

C7 (중국 북동부)는 2022년 1월 (112회)과 2월 (95회)에 고농도 빈도가 집중되었다. 해당 시기에 북서계 절풍의 영향이 크고 C7 기류가 통과하는 지역에서 난방을 위한 연료 연소로 인한 영향이 큰 것으로 보인다. 반면 C4 (중국 동부 유입)의 유입 빈도는 961회로 상대적으로 적지만 고농도 발생 비율이 31.5%로 높아 편서풍이 약해지는 여름철을 제외한 대부분의 시기에 고농도 영향을 미칠 가능성이 높은 것으로 판단된다.

국내 미세먼지 고농도 관측 시기는 대부분 겨울철 (12~2월)을 중심으로 분포 (Jee et al., 2022)되어 있다. 이 시기는 겨울철 대륙성 고기압에 의한 북서풍과 봄철 편서풍 계열이 주풍향으로 국외 기여율이 높은 계절이다. 그러나 C1 (대기 정체)의 경우 겨울철 고농도 시기가 아닌 '21년 7월 (16회)과 '22년 6월 (18회)에도 고농도 기준을 초과한 경우 또한 관측되었다. 이는 장거리 이동에 의한 대기오염물질의 국외 유입이 없더라도 대기오염물질의 확산이 어려운 대기 정체가 발생하면 대기 중 $\text{PM}_{2.5}$ 의 농도 상승으로 이어질 수 있

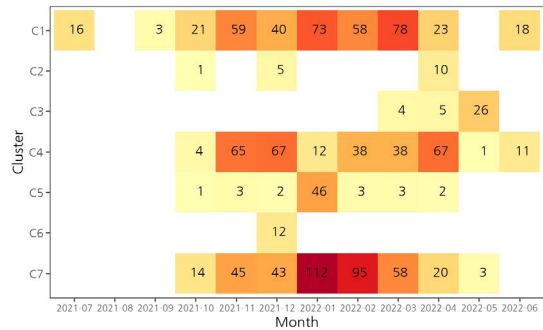


Fig. 2. High-concentration ($36 \mu\text{g}/\text{m}^3$) trajectory counts by clusters and month.

어 대기 정체로 인한 고농도가 언제든지 발생할 가능성을 보여주고 있다.

대기 정체와 장거리 이동에 의한 국외 유입과의 관계를 알아보고자 군집별 일평균 농도 분포를 그림 3에 나타냈다. C1 (대기 정체)에서 $\text{PM}_{2.5}$ 주의보 발생 기준인 $75 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이상 수준의 고농도는 '21년 11월 20일과 '22년 2월 10일에 발생하였다. C1에서 주의보 수준의 고농도가 발생하기 직전 시점을 보면 '21년 11월에는 C4 (중국 동부)에서, '22년 2월에는 C4와 C7 (중국 북동부 유입)에서 고농도 유입이 선행되었다. 대기 정체는 바람의 세기가 약하여 대기 중 오염물질의 확산이 어려운 조건이 형성되므로, 고농도 $\text{PM}_{2.5}$ 유입과 대기 정체가 연이어 발생하면 지역에서 발생한 오염물질이 함께 축적되어 보다 큰 강도의 고농도가 장기간 지속되는 것을 알 수 있다.

3.3 $\text{PM}_{2.5}$ 오염원 위치 추정 결과

CWT (Concentration Weighted Trajectory) 모델을 이용하여 전라북도의 $\text{PM}_{2.5}$ 고농도 발생에 영향을 미치는 오염원 위치를 추정하였다. CWT 분석 시 임의의 격자를 지나는 궤적수가 적은 경우 오염원 추정에 오류를 일으킬 가능성이 커 총 궤적수가 100회 미만인 격자는 분석에서 제외하였다. 또한 수용지점으로 유입되는 고농도 $\text{PM}_{2.5}$ 궤적을 보다 명확히 보기 위해 전체 궤적 ($n=8,555$) 중 고농도 기준 ($36 \mu\text{g}/\text{m}^3$)과 유사한 농도인 85백분위수 ($34.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$)를 초과하는

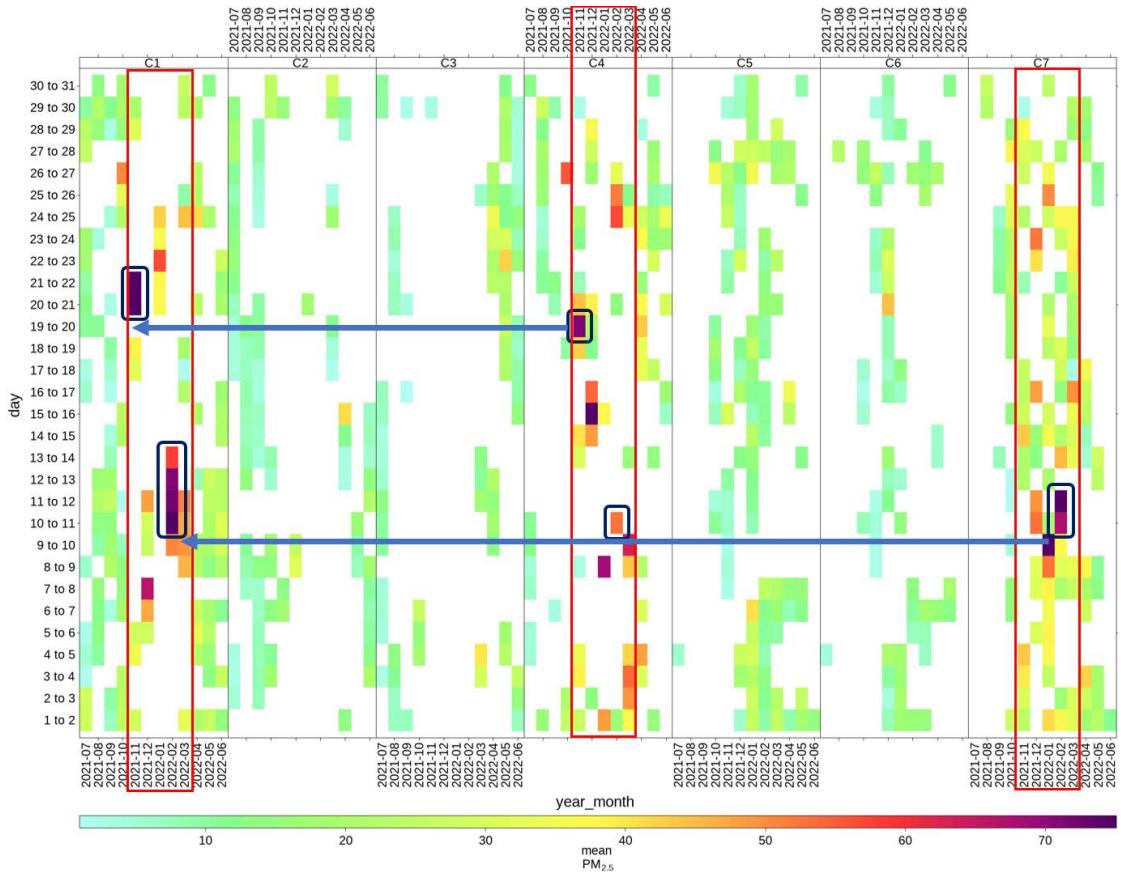


Fig. 3. Relationship between atmospheric stagnation and high concentrations ($75 \mu\text{g}/\text{m}^3$) of particulate matter from long-distance sources. The blue-bordered rectangles indicate periods of high-concentration occurrences when foreign inflow and atmospheric stagnation were sequentially linked. Following the high-concentration trajectory inflow from the C4 or C7 clusters, prolonged high concentrations were observed in the C1 cluster.

궤적($n=1,277$)만을 이용하였다.

그림 4의 계절별 오염원 위치 추정 결과를 살펴보면 여름철을 제외한 대부분 시기에 C4(중국 동부)에서 고농도 영향이 지속되며, 겨울철에는 C1(대기 정체), C4(중국 동부), C7(중국 북동부)의 영향이 혼재하고 있다. 반면 저농도 시기인 여름철에는 국외 고농도 유입은 나타나지 않고 C1(대기 정체)로 인한 영향만을 확인할 수 있다.

군집별 특성을 보다 자세히 살펴보기 위해 표 3에 각 군집의 월평균 농도를 나타냈으며 그림 5~7에 주요 영향 군집의 계절에 따른 오염원 위치와 강도 변화

를 확인하고자 CWT 결과를 도시하였다.

표 3에서 $\text{PM}_{2.5}$ 월평균 농도가 고농도($36 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 이상인 기간을 살펴보면 C1(대기 정체)은 2021년 11월부터 2022년 3월까지 $37.4\sim 64.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 범위였다. C1은 '22년 2월에 전 기간의 각 군집 월평균 농도 중 가장 높은 농도를 보였으며, '21년 7월과 '22년 6월에 각각 $15.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 와 $22.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 같은 시기의 타 군집에 비해 높은 농도를 나타냈다. 그림 5를 보면 C1은 72시간 역궤적의 길이가 짧아 공기괴의 이동 속도가 느린 것을 알 수 있다. 앞 절에서 서술한 바와 같이 C1은 겨울철에는 편서풍 및 북서 계절풍 영향으로 장거리 이

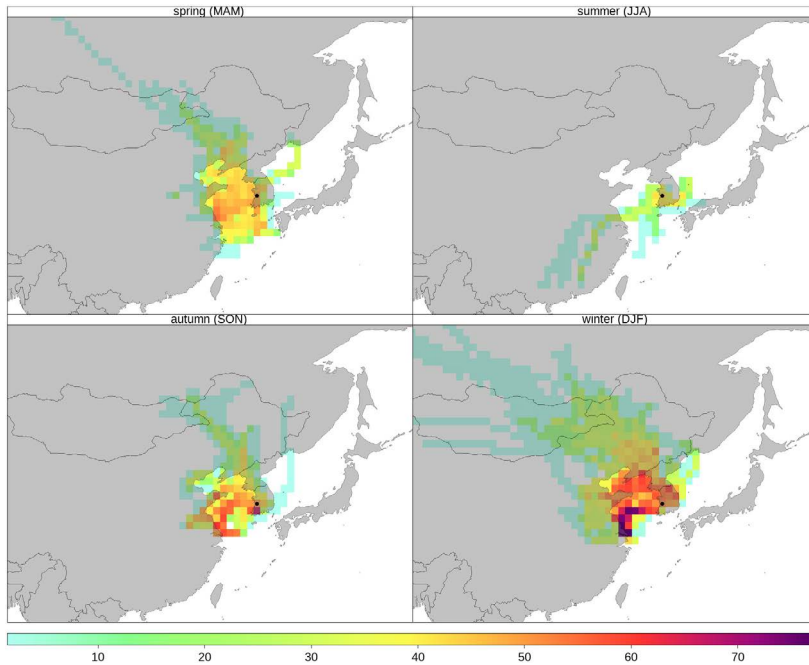


Fig. 4. Seasonal estimation of source locations for all clusters.

Table 3. Monthly average PM_{2.5} concentrations (µg/m³) by clusters.

Cluster	Jul 2021	Aug 2021	Sep 2021	Oct 2021	Nov 2021	Dec 2021
C1	15.1	14.8	13.5	21.4	37.6	39.5
C2	10.5	8.8	7.0	15.0	16.7	29.2
C3	6.7	8.2	5.6	16.4	3.6	-
C4	7.8	14.1	10.4	23.4	34.2	39.0
C5	5.6	-	-	10.9	10.7	11.0
C6	3.8	22.8	-	9.0	5.2	12.5
C7	-*	25.0	9.4	19.7	28.2	37.1
Cluster	Jan 2022	Feb 2022	Mar 2022	Apr 2022	May 2022	Jun 2022
C1	42.3	64.9	37.4	25.1	19.8	22.2
C2	17.1	-	9.9	14.3	10.6	11.2
C3	-	-	14.6	20.8	23.0	8.1
C4	53.5	50.2	44.8	36.0	17.3	23.1
C5	20.5	12.5	19.1	19.1	17.4	15.1
C6	15.7	14.7	12.2	15.4	14.6	-
C7	41.9	35.7	27.3	22.2	17.9	11.1

*unobserved

동에 의한 고농도 대기오염물질 유입 후 정체로 이어져 높은 강도의 고농도가 장기간 이어진 영향으로 겨울철 농도가 높은 것으로 해석된다. 또한 국외 유입이

적은 여름철이더라도 정체 조건이 형성되면 지역발생 오염물질 축적되어 C1의 농도가 높아짐을 알 수 있다.

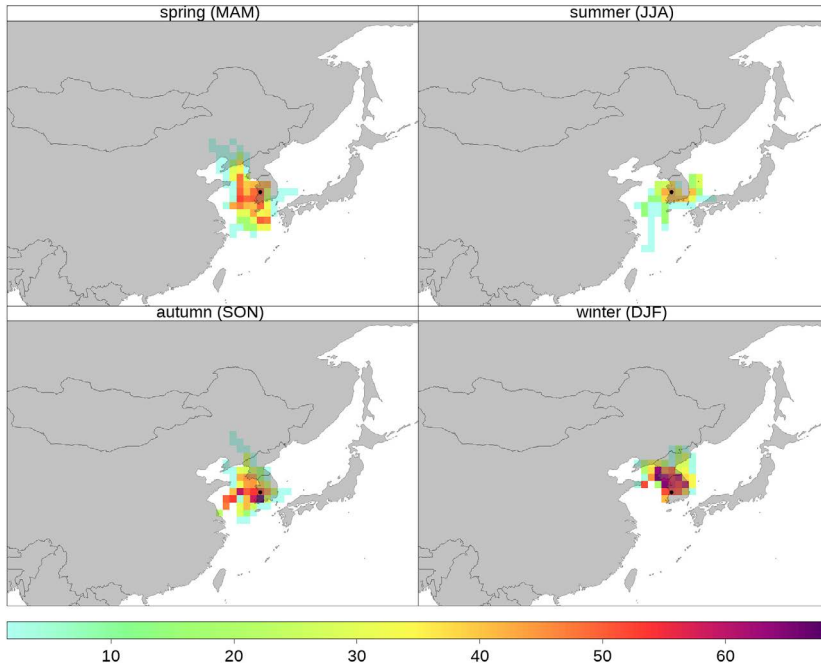


Fig. 5. Seasonal estimation of source location for C1 (atmospheric stagnation).

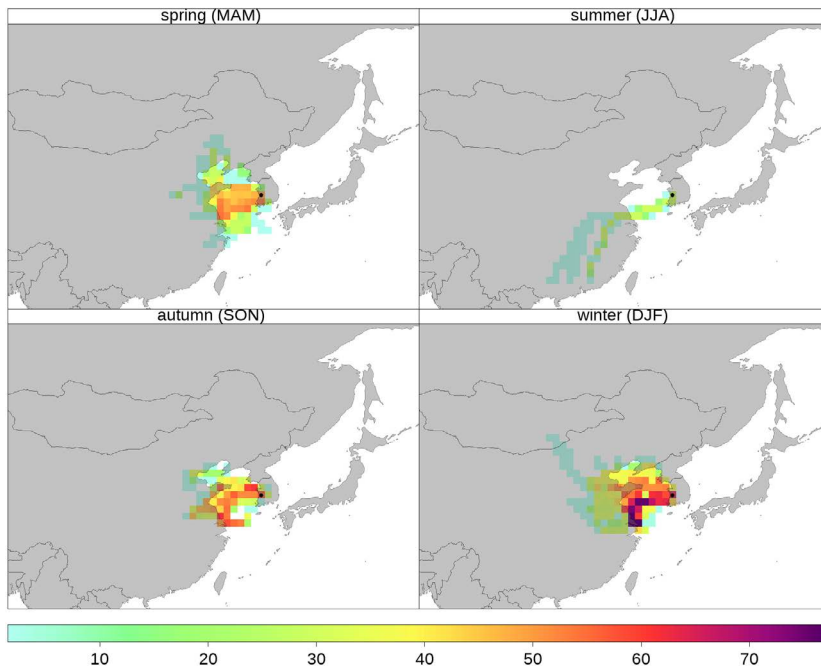


Fig. 6. Seasonal estimation of source location for C4 (eastern China).

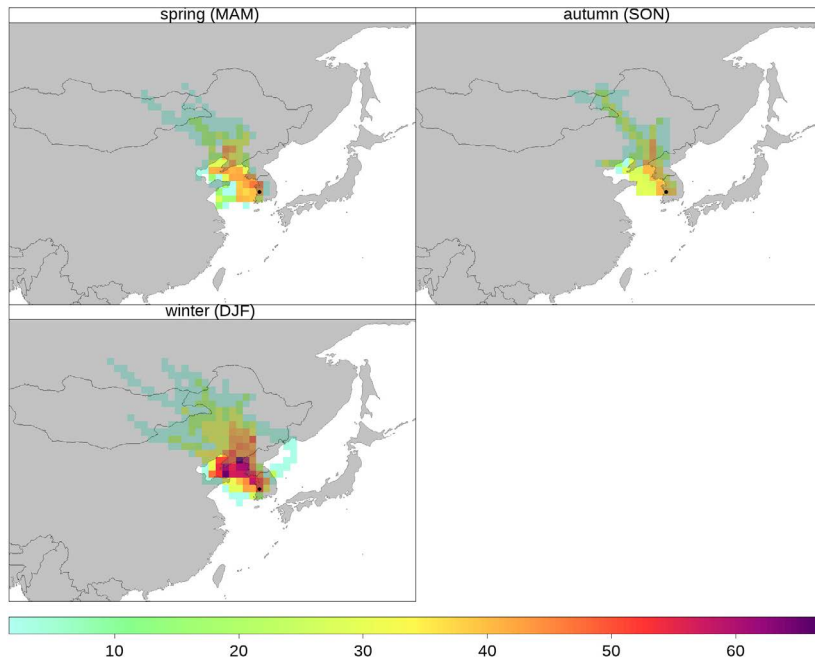


Fig. 7. Seasonal estimation of source location for C7 (northeastern China).

C4(중국 동부)의 고농도 기간은 2021년 12월~2022년 4월로 농도 범위는 $36.0\sim 53.5\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 였다. 중국 동부는 다른 지역에 비해 도시화 및 산업화가 크게 진행된 상해, 북경 등이 위치한 곳으로 대기오염물질 배출량이 많아 고농도 영향을 미치는 것으로 나타났다. 그림 6에 나타낸 C4의 계절별 CWT 결과를 살펴보면 봄과 가을에도 고농도 영향이 크지만, 겨울철에 더욱 높은 강도의 $\text{PM}_{2.5}$ 가 유입되며, 오염원 추정 지역도 중국 동부 해안에서 내륙 방향으로 확장되는 것을 알 수 있다.

C7(중국 북동부)의 고농도는 2021년 12월~2022년 2월 기간에 $35.73\sim 41.9\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 고농도 기간이 겨울철에 집중되었다. 이러한 계절적 특성은 그림 7에서도 확인할 수 있다. C7(중국 북동부)은 여름철에 고농도 유입 궤적이 존재하지 않았고 겨울철 시기에 고농도 영향이 컸는데, 이는 C7 궤적이 지나는 지역이 길림성, 요녕성, 하북성 등이 위치한 곳으로 북서계절풍과 함께 해당 지역의 겨울철 난방에서 기인하는 대기오염물질 발생량 증가 영향이 원인으로 보인다.

3.4 $\text{PM}_{2.5}$ 성분 분석결과

$\text{PM}_{2.5}$ 는 오염원에서 입자 형태로 직접 배출되는 1차 초미세먼지와 오염원에서 가스 상태로 배출된 후 이 물질들이 대기에서 화학반응을 통해 생성되는 2차 초미세먼지로 나눌 수 있다. 오염원에 따라 배출되는 오염물질의 종류와 농도가 다르며 2차 생성의 비중이 전체 $\text{PM}_{2.5}$ 발생량의 상당 부분을 차지할 만큼 높기 때문에 $\text{PM}_{2.5}$ 성분 농도는 다양한 오염원의 영향을 파악할 수 있는 중요한 자료(Ryoo *et al.*, 2019; Sung *et al.*, 2015)이다. 예를 들어 유기탄소(OC, organic carbon)는 연소에 의해 직접 배출되는 1차 오염물질인 동시에 화학반응에 의해 생성되는 2차 오염물질이기도 하다. 반면 원소 탄소(EC, elemental carbon)는 연소에 의해 직접 배출되는 1차 오염물질로 탄소 성분의 기원을 해석하는 중요한 인자이다(Kim *et al.*, 2014).

본 연구에 사용된 $\text{PM}_{2.5}$ 성분 농도는 2021년 7월부터 2022년 6월까지 국립환경과학원 전북권대기환경연구소에서 측정된 자료를 이용하였다. 분석에 활용한 $\text{PM}_{2.5}$ 성분은 총 27종으로 이온 8종(Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} ,

Table 4. Average concentration ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) of chemical species in $\text{PM}_{2.5}$ by cluster.

Cluster	NO_3^-	SO_4^{2-}	NH_4^+	Ion etc*	OM**	EC	Metals
C1	9.8	4.0	4.9	1.4	9.0	1.0	2.0
C2	2.1	1.8	1.4	0.6	4.7	0.5	0.9
C3	3.7	3.7	2.6	0.9	2.6	0.3	1.5
C4	12.5	4.6	5.6	1.3	7.1	0.9	2.3
C5	4.5	2.4	2.6	1.4	5.6	0.7	1.3
C6	3.1	2.1	1.9	1.3	4.3	0.5	1.2
C7	8.9	3.7	4.4	1.6	8.8	1.1	2.0

*Ion etc = $\text{Cl}^- + \text{Na}^+ + \text{K}^+ + \text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+}$, **OM = OC \times 1.7

Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+}), 탄소 2종 (OC, EC), 무기원소 17종 (Si, S, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, As, Se, Br, Ba, Pb)이다. 이들 $\text{PM}_{2.5}$ 성분 농도를 역계적 분류 결과와 결합하여 군집에 따른 특성을 알아보고자 하였다.

각 성분들의 군집별 평균농도를 표 4에 나타냈다. 이온 성분 중 농도가 낮은 5개 화학종 (Cl^- , Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+})은 농도를 합하여 기타 이온으로 표시하였다. 유기탄소 (OC, organic carbon)는 분석 과정에서 탄소와 결합되어 있던 산소, 수소 등을 제외한 탄소만을 측정하므로 $\text{PM}_{2.5}$ 를 구성하는 유기물의 농도로 전환하기 위해 환산계수 1.7을 곱하여 유기물질 (OM, organic matter) 농도로 전환하였다 (SIHE, 2020). 중량 농도에서 $\text{PM}_{2.5}$ 성분 농도의 총합 (reconstructed $\text{PM}_{2.5}$ mass)을 제외한 양을 미지 성분 (unknown)으로 할 때, 중량 농도에 대한 미지 성분의 비율은 유기탄소 (OC) 농도를 그대로 사용한 경우 (C1 18.5%, C4 16.7%, C7 21.8%)보다 유기물질 (OM) 농도로 전환 (C1 7.88%, C4 8.98%, C7 11.2%)하였을 때 감소하였다.

전반적으로 농도가 높은 화학종은 NO_3^- , OM, NH_4^+ , SO_4^{2-} 이었으며 대부분의 화학종에서 $\text{PM}_{2.5}$ 중량 농도가 높은 C1, C4, C7 군집의 평균농도가 높았다.

질산염 (NO_3^-) 농도는 C4 (중국 동부)가 $12.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 가장 높았고 C1 (정체) $9.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$, C7 (중국 북동부) $8.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 순이었다. 황산염 (SO_4^{2-})은 C4 ($4.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$), C1 ($4.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$), C7과 C3 ($3.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 암모늄 (NH_4^+)은 C4 ($5.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$), C1 ($4.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$), C7 ($4.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 유기물질 (OM)은 C1 ($9.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$), C7 ($8.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$),

C4 ($7.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 순으로 농도가 높았다.

$\text{PM}_{2.5}$ 중량 농도 수준에 따라 $\text{PM}_{2.5}$ 를 구성하는 화학종들의 비율 변화를 살펴보았다. 이론적으로 $\text{PM}_{2.5}$ 를 구성하는 화학종 농도의 총합은 $\text{PM}_{2.5}$ 중량 농도와 동일해야 하지만 모든 화학종의 농도를 측정하는 것은 불가능하다. 그러므로 $\text{PM}_{2.5}$ 성분 농도의 총합 (reconstructed $\text{PM}_{2.5}$ mass)은 중량 농도보다 작으며 중량 농도와 성분 농도의 총합과의 차이는 미지 성분 (unknown)으로 두었다 (Yang et al., 2020).

중량 농도 수준은 3단계로 나누었으며 각각 좋음 ($15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이하), 보통 ($16\sim 35 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 나쁨 ($35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 초과)으로 구분하여 고농도 군집들의 성분 비율을 그림 8에 나타내었다.

$\text{PM}_{2.5}$ 중량 농도 수준에 관계 없이 가장 높은 비율을 차지하는 성분은 이온이었다. 이온의 구성비는 “좋음” 수준에서는 42.0~51.4%, “보통”에서는 52.0~57.7%, “나쁨”에서는 56.5~66.3%를 보여 $\text{PM}_{2.5}$ 농도가 상승할수록 이온의 비중이 높았다. 이는 $\text{PM}_{2.5}$ 고농도 발생 시 가스상으로 존재하던 전구물질들이 복잡한 화학반응에 의해 입자상으로 변환하여 생성된 2차 초미세먼지의 비중이 커지는 것이 원인으로 보인다.

$\text{PM}_{2.5}$ 성분 중 가장 많은 구성비를 차지하는 이온 성분들의 $\text{PM}_{2.5}$ 중량 농도에 따른 비율 변화를 그림 9에 나타냈다. 농도가 낮은 $\text{PM}_{2.5}$ “좋음” 수준에서는 황산염 (Sulfate, SO_4^{2-})이 질산염 (Nitrate, NO_3^-)과 비교하여 비슷하거나 (C1, C7) 더 높은 (C4) 비율을 보였다. 그러나 중량 농도가 높아질수록 질산염의 비율이 증가하여 “나쁨” 구간에서는 50.0~55.8%를 차지하였고

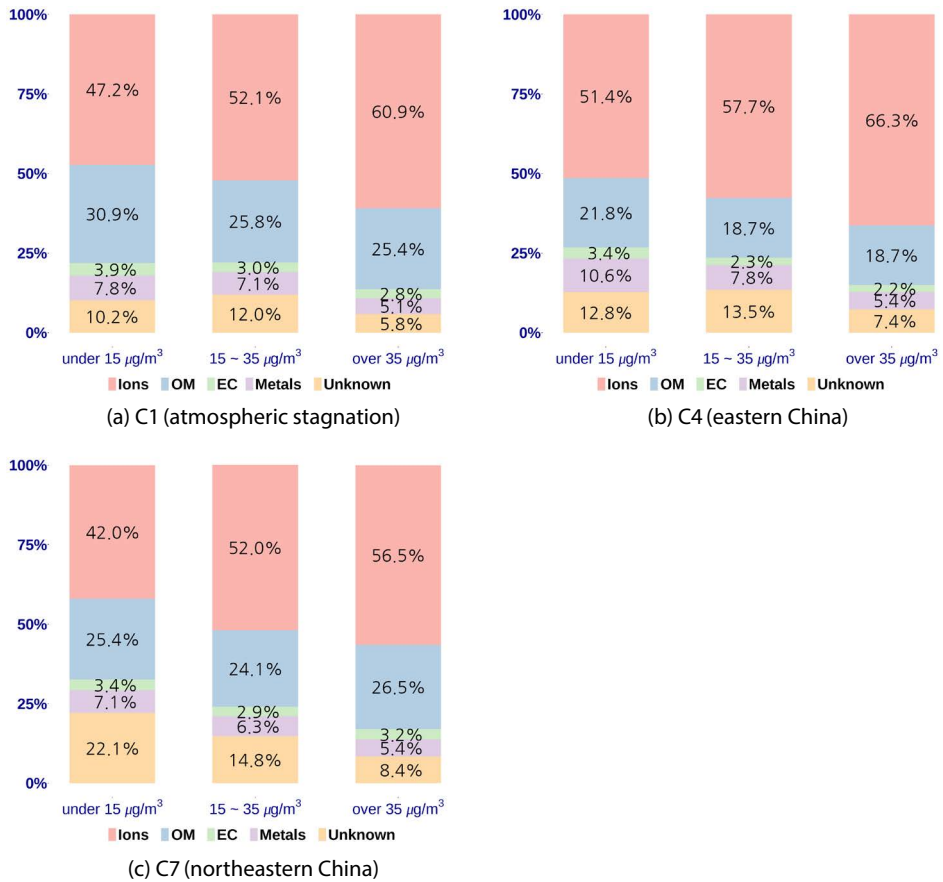


Fig. 8. Contributions of chemical species by PM_{2.5} weight concentration levels.

황산염은 15.9~17.8%로 감소하였다.

황산염과 질산염은 계절에 따라 농도가 달라진다. 황산염은 광화학반응과 습도에 의한 영향으로 여름철에 농도가 높고 겨울철 농도는 낮다. 반면 질산염은 황산염과의 용해도 차이로 암모니아와의 반응이 활발하여 겨울철 농도가 높다(Han *et al.*, 2021; SIHE, 2020). 국내 PM_{2.5} 농도는 계절풍의 영향과 중국에서의 오염물질 유입으로 겨울에 가장 높은 농도를 보이고 여름철에 낮은 경향을 보인다. 이러한 계절적 요인에 따른 PM_{2.5} 중량 농도와 황산염 및 질산염의 농도변화가 중량 농도 수준에 따른 황산염과 질산염의 성분 비율에 반영된 것으로 판단된다.

한편 암모늄 (Ammonium, NH₄⁺)은 23.0~25.3%로

중량 농도와 관계 없이 일정한 수준으로 나타났다. 2019년 국가 대기오염물질 배출량(NAEIRC, 2022)에 따르면 암모니아(NH₃)의 79.8%가 비료 사용, 가축분뇨 등의 농업 활동에서 발생하며, 대기 중에서 황산(H₂SO₄) 등과 반응하여 암모늄이 생성된다. Park *et al.* (2020)는 전주지역의 암모니아 농도는 농축산업이 활발한 익산, 김제, 정읍 등에 의한 영향이 크고, 장거리 이동보다 대기 정체에 의한 영향을 받는 것으로 추정하였다. 암모늄은 질산염, 황산염 등의 음이온과 결합하여 PM_{2.5} 2차 생성에 관여하는 성분이므로 PM_{2.5} 농도 저감을 위해서는 지역 내에서 발생하는 암모니아 발생량을 줄이는 노력 또한 동반되어야 할 것으로 판단된다.

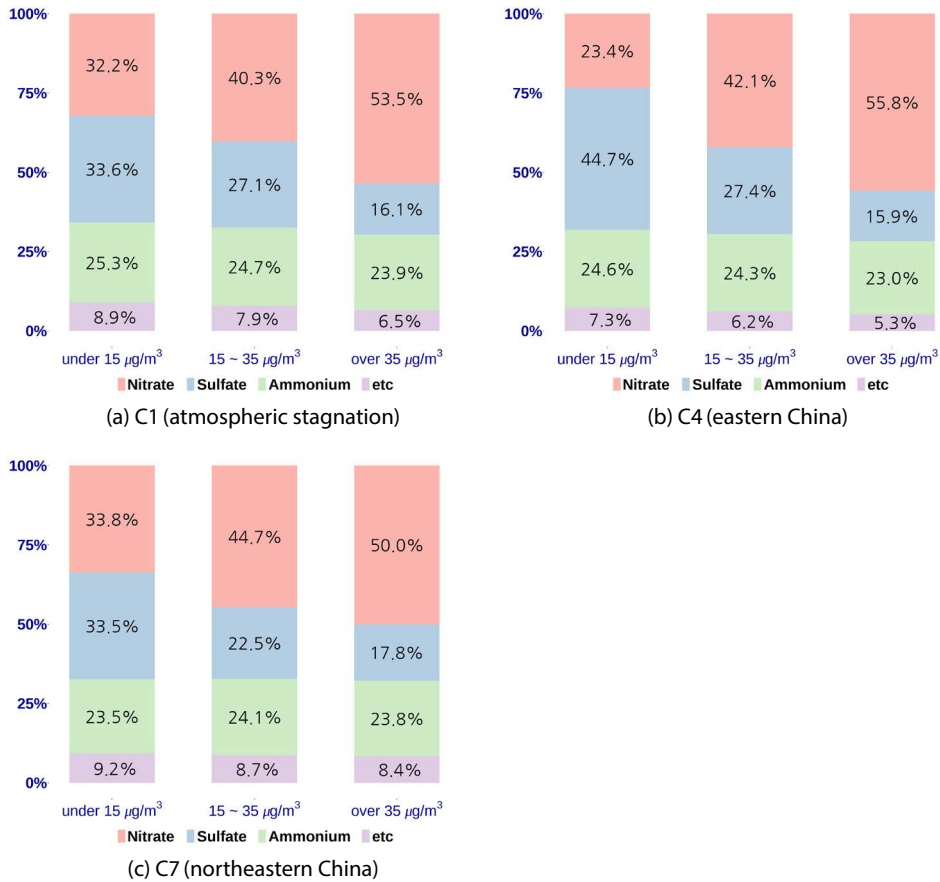


Fig. 9. Contributions of ionic species by PM_{2.5} weight concentration levels.

3.5 수용모델 분석 결과

수용모델 (receptor model)은 수용지점의 PM_{2.5} 성분을 측정하여 대기질에 영향을 미치는 오염원을 확인하고 각 오염원의 기여도를 추정하는 방법 (Hwang and Kim, 2013)으로, 본 연구에서는 대표적인 수용모델인 EPA-PMF를 이용하여 전라북도 PM_{2.5} 농도에 영향을 미치는 오염원을 추정하였다.

모델에 사용한 입력자료는 성분 분석에 사용한 전북권대기환경연구소의 측정자료 (n=8,760개)를 국립환경과학원의 수용모델 표준화에 관한 보고서 (NIER, 2021)를 참고하여 자료 선택, 불확도 및 Extra uncertainty 등의 전처리 및 모델 설정 과정을 거쳤다.

먼저 PM_{2.5} 중량 농도가 결측치이거나 0 값인 시료

와 각각 탄소 성분 2항목, 이온 성분 7항목, 무기원소 성분 9항목 미만으로 측정값이 있는 시료를 제외하였다. 그리고 이온평형 (Ion balance)이 1 ± 0.5 를 초과하는 시료와 PM_{2.5} 중량 농도와 각 성분 농도의 총합인 reconstructed PM_{2.5} mass와의 차이가 $\pm 50\%$ 를 넘는 시료를 제외하였다 (n=4606). 또한 이온 성분과 무기원소 성분 중 중복되는 항목은 측정기기와 항목의 특성을 고려하여 S, Ca²⁺, K는 제외하고 SO₄²⁻, Ca, K⁺를 선택하였다.

오차 추정을 위한 불확도는 PM_{2.5} 중량 농도의 경우 중량 농도의 4배, 각 성분의 결측치는 성분 중앙값의 4배, 성분 농도가 0이거나 MDL 미만인 경우 MDL의 5/6으로 계산하였으며, 농도가 MDL 이상이면 다음 식

을 적용하여 계산하였다.

$$\sqrt{(0.1 \times Conc)^2 + (0.5 \times MDL_s)^2} \quad (3)$$

또한 S/N 비의 값이 0.2 이하인 항목은 분석에서 제외하였으며 0.2~2 미만인 항목과 PM_{2.5} 중량 농도는 weak로 분류하여 불확도를 높였고 Extra uncertainty는 20%로 설정하였다.

전처리한 자료를 이용하여 고농도 영향 군집인 C1 (대기 정체), C4 (중국 동부), C7 (중국 북동부)에 대하여 각각 수용모델링을 수행하였다. 합리적인 모델링 결과를 도출하기 위하여 오염원 수를 변경하면서 진행하였고 EPA-PMF 5.0에서 제공하는 오류 추정 (error estimate) 방법인 Bootstrap과 Displacement를 통해 회전 모호성 (rotational ambiguity)과 랜덤 오차 (random error)를 검토하였다. 또한 회전도구로 Fpeak를 이용 (Kim *et al.*, 2018)하였으며 Fpeak를 -1에서 1까지 변화시켜 반복하여 검토하였고 최적의 Fpeak 값은 -0.1일 때로 하였다.

이렇게 분류된 각 군집의 오염원 분류 결과를 추적자 물질 (Marker species)와 함께 표 5에 정리하였으며 군집별 오염원 분류표 (source profile)를 그림 10~12에 나타냈고 각 오염원에 대한 평균 기여도는 그림 13에 도시하였다.

수용모델링을 통해 전라북도에 영향을 미치는 오염원은 2차 황산염 (Secondary Sulfate), 2차 질산염 (Secondary Nitrate), 이동오염원 (Mobile), 산업관련 (Ind-

ustry), 노화 해염입자 (Aged sea salt), 토양 (Soil), Cl-rich, 석탄 연소 (Coal Combustion), 기름 연소 (Oil Combustion) 등의 9개이다. 이 중 기름 연소 (Oil Combustion)는 독립된 오염원으로 나누어지지 않고 2차 황산염 또는 2차 질산염과 함께 분류되었으며, 석탄 연소와 Cl-rich는 각각 C1 (대기 정체), C4 (중국 동부)에서 분류되지 않았다.

전라북도에 영향을 미치는 첫 번째 오염원인 2차 황산염 (Secondary Sulfate)은 SO₄²⁻와 NH₄⁺가 주로 기여하는 오염원으로, 대기중 SO₂가 산화한 후 NH₃와 결합하여 (NH₄)₂SO₄, (NH₄)₃H(SO₄)₂와 같은 2차 생성 미세먼지가 형성되며, 대체로 기온이 높은 여름철에 대기 중 SO₂의 광화학반응을 통해 형성 (Hwang, 2022)되는 것으로 알려져 있다. 군집별 기여율은 C7 (31.4%)과 C1 (30.6%)이 비슷하였지만 C4 (15.3%)는 두 군집에 비해 낮은 기여율로 나타났다.

두 번째 오염원인 2차 질산염 (Secondary Nitrate)은 NO₃⁻, NH₄⁺ 등이 주로 기여하는 것으로 대기 중 NO_x가 산화하여 NH₃와 결합한 NH₄NO₃ 형태로 존재 (Hwang, 2022)하게 된다. 질산염은 황산염과 함께 2차 생성 미세먼지에 영향을 주는 오염원으로 낮은 온도에서 잘 형성되어 겨울철에 높고 국내 및 국외 질소산화물이 산화하여 형성된다 (Park *et al.*, 2022). 질산염의 기여율은 C4 (36.9%), C1 (25.8%), C7 (17.2%)로 C4 (중국 동부)에서 가장 높게 나타나 2차 황산염과는 다른 양상을 보였다.

Table 5. Source classification results and marker species.

Source	Marker species	C1 (atmospheric stagnation)	C4 (eastern China)	C7 (northeastern China)
Secondary sulfate	SO ₄ ²⁻ , NH ₄ ⁺	⊙ (with Oil comb.)*	⊙ (with Oil comb.)	⊙
Secondary nitrate	NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺	⊙ (with Cl-rich)	⊙	⊙ (with Oil comb.)
Mobile	OC, EC, Cu	⊙	⊙	⊙
Industry	Cr, Mn, Fe,	⊙	⊙	⊙
Aged sea salt	Na ⁺	⊙	⊙	⊙
Soil	Si, Ca, Ti	⊙	⊙	⊙
Cl-rich	Cl ⁻	×	⊙	⊙
Coal combustion	As, Pb	⊙	×	⊙

⊙: classified, ×: unclassified, *Marker species of Oil Combustion: V, Ni

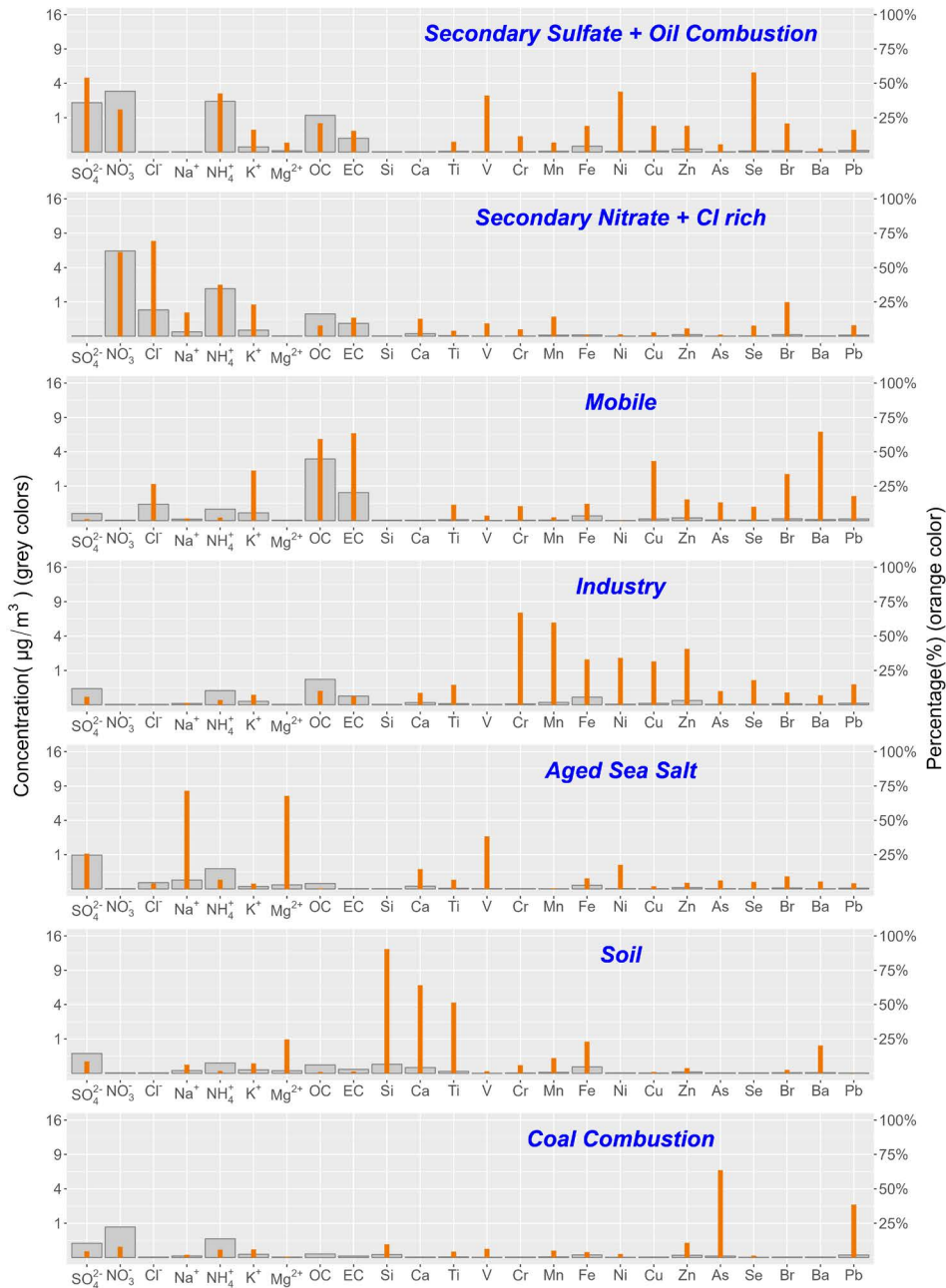


Fig. 10. Source profile using C1 (atmospheric stagnation) data.

세 번째 영향 오염원은 이동오염원(Mobile)으로 OC, EC와 Cu가 높은 비율로 구성되어 있다. PM_{2.5} 성분을 측정된 전북권대기환경연구소 주변에는 직선거

리로 400m 정도 떨어진 왕복 4차선의 23번 국도가 있으며, 익산 산단과 인근 대학 및 대학병원으로 통행하는 차량에 의한 배출가스 영향으로 보인다. 또한 모든

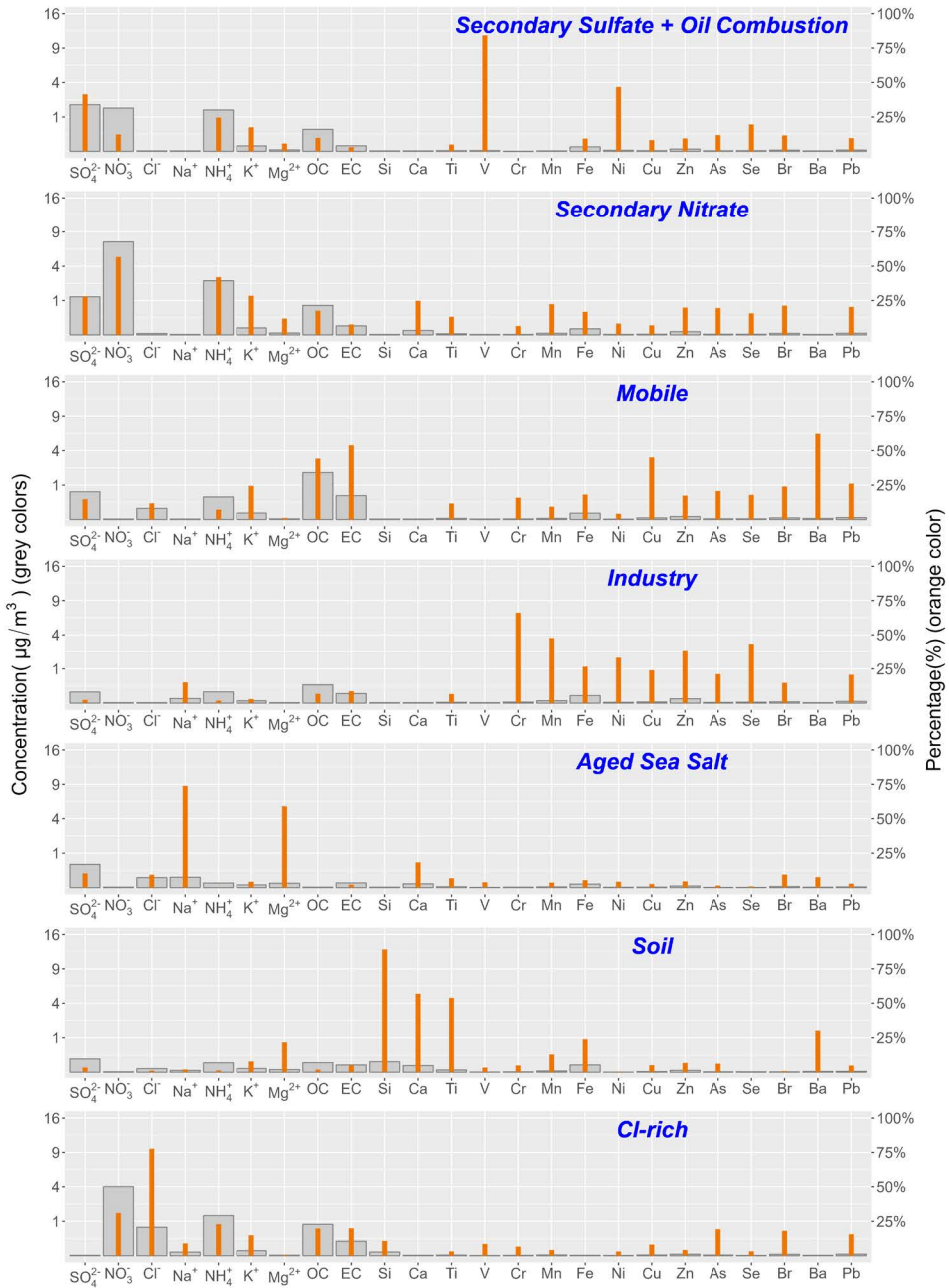


Fig. 11. Source profile using C4 (eastern China) data.

군집에서 EC의 비율이 OC보다 높게 나타나 디젤 자동차의 영향(Heo et al., 2018)이 보다 큰 것으로 판단된다. 이동오염원의 평균 기여율은 C7 (23.2%), C1

(20.7%), C4 (17.8%)로 세 군집에서 비슷한 수준으로 나타났다.

네 번째는 산업관련 (Industry) 오염원으로 미량오

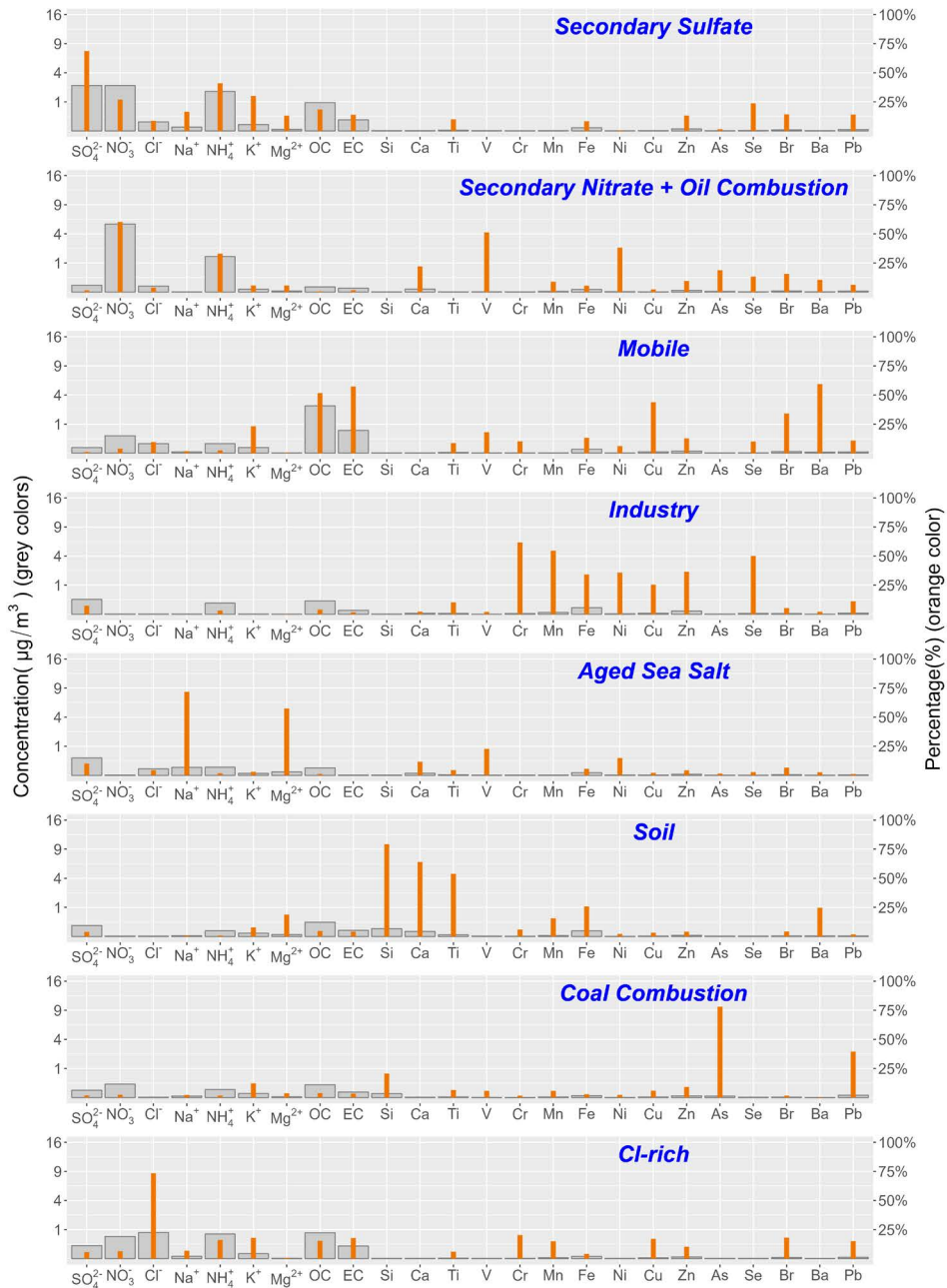


Fig. 12. Source profile using C7 (northeastern China) data.

염물질인 Cr, Mn, Fe 등이 높은 비율(NIER, 2021)을 보였다. 세 군집의 기여율은 C4(7.4%), C1(6.4%), C7(3.8%)로 기계, 철강 업종 등이 있는 군산 산단을 거쳐

유입된 C4에서 가장 높은 기여를 보였다.

다섯 번째 오염원은 노화 해염입자(Aged sea salt)로 해염입자(NaCl)가 육지로 이동하면서 Cl⁻가 H⁺와

결합하여 HCl로 산화되며 소모되어 Na⁺만이 높은 기여 (Song *et al.*, 2001)를 보이는 오염원으로 각 군집에서의 기여율은 C1 (6.2%), C7 (5.9%), C4 (3.7%)로 나타났다.

여섯 번째 오염원은 토양에서 유래하는 성분인 Si, Ca, Ti의 비율이 높은 (Han *et al.*, 2021; NIER, 2021) 토양(Soil) 오염원으로 황사 발생, 공사현장 및 도로에서의 재비산과 관련이 있으며 C7 (5.9%), C1 (5.7%), C4(3.7%)의 기여율을 보였다.

일곱 번째 오염원은 Cl-rich로 명명하였다. Cl⁻과 관련이 높은 오염원은 해염입자(Sea salt), 생물성 연소(Biomass Burning) 및 소각(incineration) 등이 있으나 각각 Na⁺, K⁺, OC, SO₄²⁻ 등 관련 성분들의 기여율이 높지 않아 특정 오염원으로 지정할 수 없어 Cl-rich로 명명하였으며 정확한 분류를 위해 추후 연구가 필요하다. Cl-rich의 기여율은 C4(15.7%), C7(10.4%)였으며, C1에서는 2차 황산염과 함께 분류되었다.

여덟 번째 오염원은 석탄화력발전소에서 기원하는 것으로 알려진 As와 Pb의 비율이 높아(NIER, 2021) 석탄 연소(Coal Combustion) 오염원으로 분류하였다. 석탄 연소의 기여율은 C1과 C7에서 각각 4.6%와 3.6%로 나타났으며 C4에서는 분류되지 않았다.

마지막으로 독립된 오염원으로 분류되지 않았으나 B-C유 등의 연소 과정에서 배출되는 것으로 알려진 V와 Ni의 비율이 높은 특징(Hwang, 2022)을 보여 기름 연소(Oil combustion)로 명명하였다. 추후 전체 자료를 이용하여 수용모델링을 할 경우 명확한 독립오염원으로 분류될 것으로 생각된다.

그림 13에 나타난 고농도 영향 군집들의 각 오염원에 대한 평균 기여도를 보면, 군집별 2차 황산염, 2차 질산염과 이동오염원의 기여율 합계는 C1 (대기 정체) 77.1%, C7 (중국 북동부) 71.8%, C4 (중국 동부) 70.0%로 대기 중 가스상 물질이 입자상으로 전환되어 생성된 2차 생성 미세먼지와 이동오염원의 비중이 높은 것을 알 수 있다. 특히 대기 정체로 분류된 C1에서 차지하는 비율이 가장 높아 확산이 어려운 정체 조건에서 2차 생성이 활발하게 일어난 결과인 것으로 보인다.

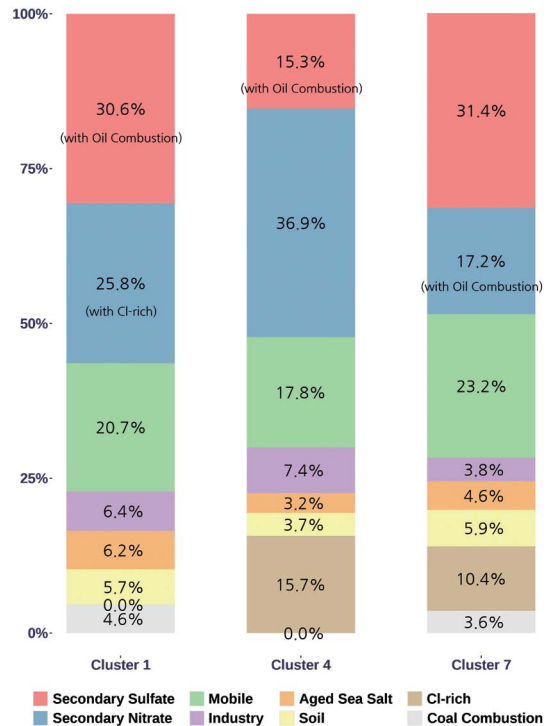


Fig. 13. Average source contributions by C1 (atmospheric stagnation), C4 (eastern China) and C7 (northeastern China).

군집별로 가장 큰 기여도를 나타내는 오염원은 C1 (대기 정체)과 C7 (중국 북동부)는 2차 황산염이었으나 C4 (중국 동부)는 2차 질산염으로 나타났다. 중국의 대기오염물질 배출량은 2011년 에너지 구조조정을 추진하여 총 에너지 소비량은 증가하나 석탄 비중은 감소하고 천연가스 및 친환경 에너지 사용은 증가하고 있다(NIER, 2022). 특히 황 함유량이 적은 연료로의 전환 및 탈황시설 등으로 허베이, 장쑤 등이 위치한 동부지역의 SO₂ 배출량이 큰 폭으로 감소하였다. 반면 상대적으로 연료 종류에 의한 영향이 덜한 NO_x는 SO₂에 비해 배출량 감소 폭이 적어(Woo *et al.*, 2018) C4 (중국 동부) 군집에서 2차 질산염의 기여도가 높은 것으로 판단된다.

석탄연소(Coal Combustion)는 분석 대상 군집에서 높은 기여율을 보이지는 않았지만 C1 (4.6%)와 C7 (3.6%)에서 영향 오염원으로 분류되었으나 C4 (중국

동부)에서는 오염원으로 나타나지 않았다. 이는 전라북도의 북쪽에 위치한 충남 당진의 석탄 유래 $PM_{2.5}$ 배출량이 9,513.5 kton/year로 전라북도 서해안에 위치한 군산(47.1 kton/year)보다 20배 정도 높으며 (NAEIRC, 2022), 중국 북방 농촌지역의 경우 중국 정부의 보조금 정책에도 불구하고 청정석탄 가격이 높아 전통 난방방식 병행(KIEP CSE, 2020)에 의한 영향이 함께 반영된 것으로 보인다. 그림 14의 오염원별 CWT 결과 또한 2차 질산염은 중국 동부에서, 2차 황산염은 중국 북동부에서 주로 기원하고 있음을 보여주고 있다.

각 오염원에 대한 시계열 기여도를 그림 15에 나타냈다. 2차 황산염은 기온이 높은 여름철에, 2차 질산염은 겨울철에 기여율이 높은 것이 일반적이다. 그러나

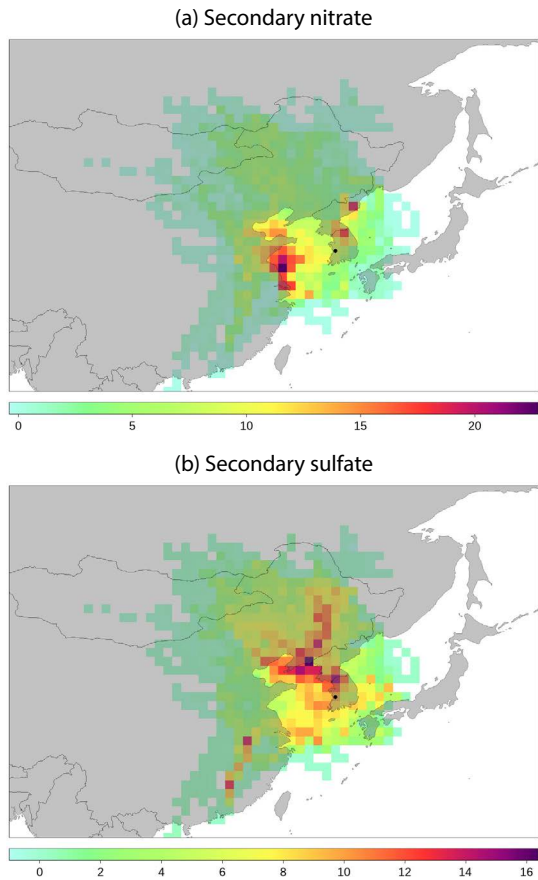


Fig. 14. CWT plot for secondary nitrate and secondary sulfate sources.

본 연구에서는 하절기에 빈도가 많은 C2(동해) 및 C3(남해)이 농도가 낮은 군집으로 분류되어 분석 대상에서 제외되었다. 반면 동절기에 주요 영향을 미치는 C4(중국 동부)와 C7(중국 북동부)은 수용모델 분석에 포함되어 2차 황산염 기여도가 겨울철에 높게 나타나 일반적인 2차 황산염의 기여율 경향과 다르게 나타났다. 반면 2차 질산염은 '22년 1월~'22년 4월에 높은 기여도를 나타내고 있어 일반적인 특징을 보이고 있다.

4. 결 론

본 연구는 2021년 7월에서 2022년 6월까지의 기간 동안 익산시를 중심으로 전라북도의 $PM_{2.5}$ 고농도 발생 특성과 오염원 종류 및 위치를 규명하고자 하였다. 전라북도로 유입되는 $PM_{2.5}$ 의 이동경로 파악을 위해 HYSPLIT 모델을 이용하여 72시간 역궤적 분석 후 궤적 간의 유사성으로 군집을 분류하였다. 이후 익산시 도시대기측정소의 $PM_{2.5}$ 중량 농도를 결합하여 군집별 $PM_{2.5}$ 농도 특성을 살펴보고, CWT 분석 방법으로 고농도 영향을 미치는 오염원의 위치를 살펴보았다. 또한 $PM_{2.5}$ 구성 성분들의 농도와 중량 농도에 따른 비율 변화를 살펴봤으며 수용모델을 통해 오염원의 종류와 기여도를 분석하였다.

1. 군집분석 결과 전라북도로 유입되는 기류는 총 7개로 분류되었다. 이 중 고농도 영향을 미치는 군집은 C1(대기 정체), C4(중국 동부), C7(중국 북동부)으로 나타났다. 그 외 C2(동해), C3(남해), C5와 C6(시베리아) 등은 특별한 오염원이 없거나 이동속도가 빨라 $PM_{2.5}$ 농도는 낮았다.
2. 고농도 영향 군집인 C1(대기 정체)은 이동 속도가 느린 군집으로 가장 잦은 빈도(19.7%)로 발생하였으며 $PM_{2.5}$ 평균 농도는 $25.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 였다. C1은 장거리 이동에 의한 유입이 없는 하절기에도 고농도 기준($36 \mu\text{g}/\text{m}^3$)을 초과하는 사례가 있었다. 또한 국외에서 고농도 유입 이후 정체 조건이 형성되면 높은 강도로 장기간 고농도가 유지되는 특성을 보였다.

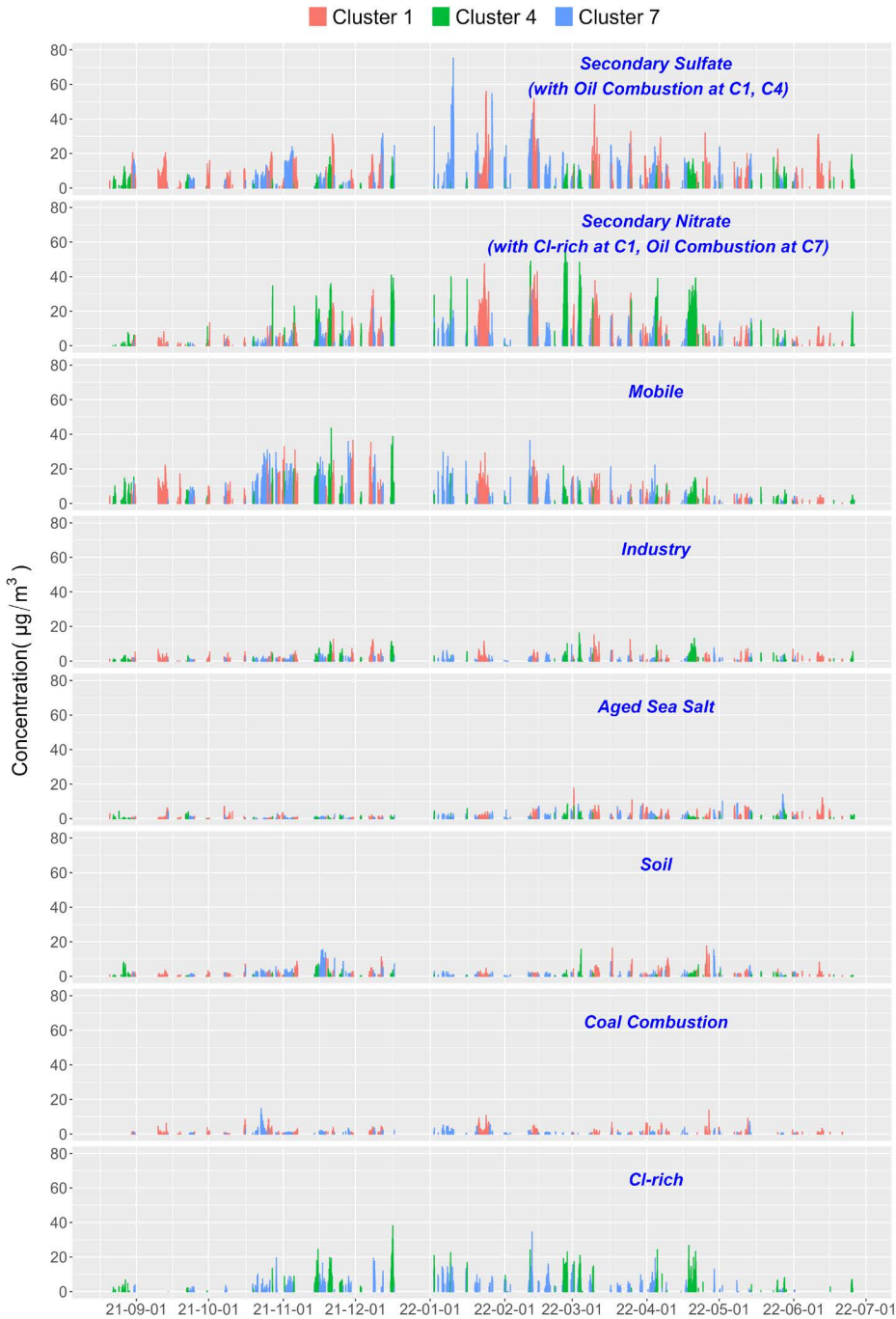


Fig. 15. Temporal variation of source contributions by C1 (atmospheric stagnation), C4 (eastern China) and C7 (northeastern China).

C4 (중국 동부)는 중국 산둥반도 인근에서 편서풍에 의해 유입되는 기류로 유입 횟수는 상대적으로 적

었으나 PM_{2.5} 평균 농도는 28.6 µg/m³로 가장 높은 농도로 나타났다. C7 (중국 북동부)는 만주 부근을

통과하여 유입되는 기류로 겨울철에 농도가 높은 특징이 있으며 $PM_{2.5}$ 평균 농도는 $27.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 였다.

3. $PM_{2.5}$ 고농도에 영향을 미치는 오염원 위치를 추정 한 결과 C1 (대기 정체)은 72시간 역궤적의 시작점이 한반도 인근으로 유속이 느려 외부 유입과 지역 발생 오염물질의 축적으로 상시 고농도가 발생할 수 있음을 알 수 있었다. C4 (중국 동부)는 편서풍이 약해지는 하절기를 제외한 모든 시기에 고농도 영향이 지속되며 특히 겨울철에는 영향력이 확대되어 오염원 추정 지역이 중국 동부 해안에서 내륙으로 확장되었다. C7 (중국 북동부)은 군집 특성상 하절기 영향은 관찰되지 않았으나 이동경로상에 위치한 지역의 난방과 계절풍의 영향이 함께 작용하여 겨울철에 고농도 유입이 집중되었다.
4. $PM_{2.5}$ 를 구성하는 성분들의 농도는 NO_3^- ($8.9\sim 12.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$), OM ($7.1\sim 9.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$), NH_4^+ ($4.4\sim 5.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$), SO_4^{2-} ($3.7\sim 4.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 순으로 높아 주로 2차 생성에 관여하는 화학종의 성분 농도가 높았다. 특히 $PM_{2.5}$ 중량 농도가 높아질수록 NO_3^- 의 기여율이 50% 이상으로 상승하여 $PM_{2.5}$ 2차 생성을 주도하는 물질임을 알 수 있었다. 또한 NH_4^+ 의 비율은 중량 농도에 무관하게 일정하게 나타나 NH_4^+ 로 전환되는 암모니아 저감에도 관심을 기울여야 할 것으로 판단된다.
5. EPA-PMF를 이용한 오염원의 종류와 기여도를 추정 한 결과 분류된 오염원은 2차 황산염 (Secondary Sulfate), 2차 질산염 (Secondary Nitrate), 이동오염원 (Mobile), 산업관련 (Industry), 노화 해염입자 (Aged sea salt), 토양 (Soil), Cl-rich, 석탄 연소 (Coal Combustion)였으며 기름 연소 (Oil Combustion)도 다른 오염원과 함께 나타났다. 분석 대상 군집에서 모두 2차 황산염, 2차 질산염과 이동오염원의 기여율이 70.0~77.1%로 나타나 2차 생성 미세먼지와 이동오염원의 영향이 컸다.
6. C1 (대기 정체)과 C7 (중국 북동부)은 2차 황산염이 각각 31.4%와 30.6%로 가장 높은 기여율을 보였으며, 중국 북동부에서 북한, 충남을 거쳐 유입되어 영

향을 미치는 것으로 추정되는 석탄 연소 오염원이 함께 나타나 두 군집의 특성이 유사하였다. 반면 C4 (중국 동부)는 2차 질산염의 기여율이 36.9%로 가장 높아 중국 동부에서 NO_x 의 배출량이 SO_2 보다 많은 것이 영향을 미치는 것으로 추정된다.

본 연구를 통해 전라북도는 지역 여건상 대기 정체가 형성될 가능성이 크며 이로 인한 $PM_{2.5}$ 2차 생성으로 인해 고농도 발생 가능성이 큰 것을 확인하였다. 특히 장거리 이동에 의한 고농도 유입 후 정체가 형성되면 오염물질의 축적으로 장기간 고농도가 유지되므로 국외 유입 대기오염물질을 줄이기 위한 국가 간 협력과 함께 지역에서 발생하는 대기오염물질의 저감 노력도 동반되어야 할 것이다.

현재 전라북도 지역에서 실시간으로 미세먼지 성분을 측정할 수 있는 곳은 익산시에 위치한 국립환경과학원 전북권대기환경연구소가 유일하다. 측정지점에 따라 $PM_{2.5}$ 에 농도에 영향을 미치는 오염원의 종류와 기여도 등이 달라질 수 있는 점을 고려할 때 향후 실시간 성분 측정이 가능한 지점이 신설 운영된다면 보다 심도 있는 연구가 가능할 것으로 판단된다.

대기질에 영향을 미치는 각 지자체의 여건이 서로 달라 국가 단위의 정책과 더불어 지역 특성과 상황을 반영한 개선방안 수립이 요구된다. 전라북도는 타 지자체에 비해 농업 활동의 비중이 커 이와 관련된 1차 오염물질 발생량 관리를 통한 2차 생성 저감 대책이 필요하며, 대기오염에 의해 크게 영향을 받는 노령인구 비율이 증가하고 있어 인체 위해성 파악을 위한 심도 있는 과학적 규명이 필요하다. 본 연구에서 수행한 $PM_{2.5}$ 농도와 관계된 기상 여건, 성분 분석 및 오염원 추정 결과 등은 초미세먼지로 인한 피해를 줄이고 전라북도 지역의 대기질 개선방안 및 관리체계 수립에 대한 기초자료로 활용할 수 있을 것으로 사료된다.

감사의 글

본 논문은 환경부의 재원으로 국립환경과학원의 지

원(NIER-2022-01-03-014)을 받았으며 또한 국립환경과학원 대기환경연구과의 측정자료 제공(NIER-2021-03-001)으로 수행되어 이에 감사드립니다.

References

- Choi, J.-K., Choi, I.-S., Cho, K.-K., Lee, S.-H. (2020) Harmfulness of Particulate Matter in Disease Progression, *Journal of Life Science*, 30(2), 191-201, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5352/JLS.2020.30.2.191>
- Do, W.-G., Jung, W.-S. (2015) Estimation of PM₁₀ source locations in Busan using PSCF model, *Journal of Environmental Science International*, 24(6), 793-806, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5322/JESI.2015.24.6.793>
- Han, S.-W., Lee, C.-S., Kim, K.-C., Lee, S.-B., Han, J.-S. (2021) A Study on the Estimation of the Contribution of Each Fine Particle Emission Source of the Daejeon using the Positive Matrix Factorization (PMF) Model, *Journal of the Korean Society of Urban Environment*, 21(4), 289-298, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.33768/ksue.2021.21.4.289>
- Health Effects Institute (HEI) (2020) State of Global Air 2020; A Special Report on Global exposure to air pollution and its health impacts, 3-4.
- Heo, J.-W., Kim, C.-H., Min, Y.-K., Kim, H.-J., Sung, Y.-G., Kim, J.-S., Lee, K.-B., Heo, J.-B. (2018) Source Apportionment of PM₁₀ at Pyeongtaek Area Using Positive Matrix Factorization (PMF) Model, 34(6), 849-864, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.6.849>
- Hwang, I.-J., Kim, D.-S. (2013) Research Trends of Receptor Models in Korea and Foreign Countries and Improvement Directions for Air Quality Management, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 29(4), 459-476, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2013.29.4.459>
- Hwang, I.-J., Lee, T.-J., Kim, T.-O., Bae, G.-N. (2021) Characteristics of Air Pollutant Emissions and Distribution for Particulate Matter Concentration of Air Pollution Networks in Gyeongsangbuk-do, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 37(3), 536-551, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.3.536>
- Hwang, I.-J. (2022) Estimation of Source Apportionment for PM_{2.5} Data of Air Pollution Monitoring Site in Pohang Using the EPA-PMF Model, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 38(3), 354-374, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2022.38.3.354>
- Jee, J.-B., Cho, C.-R., Kim, Y.-J., Park, S.-S. (2022) Analysis of Meteorological Characteristics by Fine Dust Classification on the Korean Peninsula, 2015-2021, *Atmosphere. Korean Meteorological Society*, 32(2), 119-133, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.14191/Atmos.2022.32.2.119>
- Kim, M.-K., Cha, Y.-W., Lee, S.-L., Yoo, E.-C. (2014) Study on the Secondary Formation Contribution of PM in Busan, *The Annual Report of Busan Metropolitan City Institute of Health & Environment*, 24(1), 146-160, (in Korean with English abstract).
- Kim, S.-M., Kim, K.-S., Hyun, S.-S., Kim, J.-H., Kim, M.-C., Kim, B.-J., Lee, K.-H. (2018) Chemical Composition and Source Apportionment of PM_{2.5} in Jeju City in 2017, *Journal of the Korean Society for Environmental Analysis*, 21(2), 61-70, (in Korean with English abstract).
- Korea Institute for International Economic Policy China Specialist Fourm (KIEP CSF) (2020) China's use of coal-fired heating and the challenges of using cleaner coal heating. https://csf.kiep.go.kr/issueInfoView.es?article_id=38167&mid=a20200000000&board_id=4 (accessed on Feb. 7, 2023).
- National Air Emission Inventory and Research Center (NAEIRC) (2022) National air pollutants emission 2019.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2019) A Study on developing conceptual models to improve forecast accuracy for high-concentration particulate matter (PM_{2.5}) events (II), 28-29. NIER-RP2019-176.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2021) Establishment of guidelines for the PMF modeling and applications, 10-15. NIER-SP2020-273.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2022) 2022 China's Fine Dust and Climate Change Status and Countermeasures, 14-16.
- Park, H.-Y., Park, H.-S., Lee, B.-R., Choi, H.-J., Kim, H.-R., Lim, H.-J., Park, C.-O., Kim, I.-S., Park, G.-H., Jeon, D.-Y., Bae, M.-S. (2022) Source Assessment of PM-2.5 in the Residential Areas of Gwangyang Bay using Source Apportionment Model (II), 25(1), (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.36278/jeaht.25.1.18>
- Park, J.-S., Choi, Y.-J., Ghim, Y.-S. (2017) Columnar Aerosol Properties at Yongin According to Transport Paths of Back Trajectories, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(2), 97-107, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2017.33>

2.097

- Park, J.-S., Ryoo, J.-Y., Jee, J.-B., Song, M.-J. (2020) Origins and Distributions of Atmospheric Ammonia in Jeonju during 2019-2020, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(2), 262-274, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.2.262>
- Ryoo, J.-Y., Kwon, T.-H., Kang, I.-S., Lee, K.-S., Jo, C.-W., Kim, J.-S., Kim, H.-H., Jang, W., Park, J.-J., Yoo, T.-S. (2019) A Study for Characteristics of Fine Particulate Matter and Atmospheric Stagnation Considering Elevation and Backward Trajectory, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 35(6), 701-712, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2019.35.6.701>
- Seoul Research Institute of Public Health and Environment (SIHE) (2020) Chemical Characteristics of fine dust (PM_{2.5}) at Seoul in 2019. 27-40.
- Song, X.H., Polissar, A.V., Hopke, P.K. (2001) Source of fine particle composition in the northeastern US, *Atmospheric Environment*, 35(31), 5277-5286. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(01\)00338-7](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(01)00338-7)
- Sung, M.-Y., Park, J.-S., Kim, H.-J., Jeon, H.-E., Hong, Y.-D., Hong, J.-H. (2015) The Characteristics of Element Components in PM_{2.5} in Seoul and Daejeon, *Journal of the Korean Society for Environmental Analysis*, 18(1), 49-58, (in Korean with English abstract). UCI: G704-001936.2015.18.1.001.
- United States Environmental Protection Agency (US EPA) (2014) EPA Positive Matrix Factorization (EPA-PMF) 5.0 Fundamentals and User Guide, 1-3, EPA/600/R-14/108, Washington, DC.
- Woo, J.-H., Bu, C.-H., Kim, J.-S., Ghim, Y.-S., Kim, Y.-H. (2018) Analysis of Regional and Inter-annual Changes of Air Pollutants Emissions in China, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(1), 87-100, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.1.087>
- World Health Organization (WHO) (2021) WHO global air quality guidelines. Particulate matter (PM_{2.5} and PM₁₀), ozone, nitrogen dioxide, sulfur dioxide and carbon monoxide, 78-89. <https://apps.who.int/iris/bitstream/handle/10665/345334/9789240034433-eng.pdf> (accessed on Jul. 19, 2023).
- Yang, Y.-C., Lee, S.-H., Park, B.-H., Jo, G.-U., Yoon, S.-H., Park, J.-Y., Jang, D., Chong, J.-H., Bae, S.-J., Jeong, S.-K. (2020) Estimation of Heavy Metal Contamination by PM₁₀ Inflow Pathways while Asian Dust in Gwangju, *Journal of Environmental Science International*, 29(1), 55-68. <https://doi.org/10.5322/JESI.2020.29.1.55>

Authors Information

남두천 (전라북도보건환경연구원 환경연구부 환경연구사)
(tucheon0@korea.kr)

유재연 (전라북도보건환경연구원 환경연구부 환경연구관)
(giantu@korea.kr)

류재웅 (전라북도보건환경연구원 환경연구부 환경연구사)
(ryoujw@korea.kr)

김현호 (전라북도보건환경연구원 환경연구부 환경연구사)
(ppode2001@korea.kr)

박지영 (전라북도보건환경연구원 환경연구부 환경연구사)
(jtwilight7@korea.kr)

강현진 (전라북도보건환경연구원 환경연구부 환경연구사)
(guswlj07@korea.kr)

김효윤 (전라북도보건환경연구원 환경연구부 환경연구사)
(soom154@korea.kr)

강경식 (국립환경과학원 기후대기연구부 대기환경연구과 환경연구사)
(kskang0677@korea.kr)

문다희 (국립환경과학원 기후대기연구부 대기환경연구과 전문연구원)
(stellina@korea.kr)

최정화 (전라북도보건환경연구원 환경연구부부장)
(chlwjdgkh45@korea.kr)

김호주 (전라북도보건환경연구원 원장)
(azure3356@korea.kr)