

충청남도 태안 교외대기 PM₁₀, PM_{2.5}의 중금속 농도 특성과 기원 추적연구

오상민¹⁾ · 윤숙희¹⁾ · 박재선²⁾ · 허유정¹⁾ · 이수형¹⁾ · 유은진¹⁾* · 김민섭¹⁾*

¹⁾환경측정분석센터, 환경기반연구부, 국립환경과학원

²⁾측정분석과, 환경관리국, 한강유역환경청

(투고 2023년 7월 30일, 수정 2023년 9월 20일, 게재확정 2023년 9월 23일)

A study of origins and characteristics of metallic elements in PM₁₀ and PM_{2.5} at a suburban site in Taean, Chungcheongnam-do

Sangmin Oh¹⁾, Suk-Hee Yoon¹⁾, Jaeseon Park²⁾, Yu-Jung Heo¹⁾,
Soohyung Lee¹⁾, Eun-Jin Yoo¹⁾*, Min-Seob Kim¹⁾*

¹⁾*Environmental Measurement&Analysis Center, Environmental Infrastructure Research Department,
National Institute of Environmental Research*

²⁾*Monitoring & Analysis Division, Han River Basin Environmental Office, Ministry of Environment*

(Received July 30 2023; Revised September 20 2023; Accepted September 23 2023)

Abstract

Chungcheongnam-do has various emission sources, including large-scale facilities such as power plants, steel and petrochemical industry complexes, which can lead to the severe PM pollution. Here, we measured concentrations of PM₁₀, PM_{2.5}, and its metallic elements at a suburban site in Taean, Chungcheongnam-do from September 2017 to June 2022. During the measurement period, the average concentrations of PM₁₀ and PM_{2.5} were 58.6 μg/m³ (9.6~379.0 μg/m³) and 35.0 μg/m³ (6.1~132.2 μg/m³), respectively. The concentration of PM₁₀ and PM_{2.5} showed typical seasonal variation, with higher concentration in winter and lower concentration in summer. When high concentrations of PM_{2.5} occurred, particularly in winter, the fraction of Zn and Pb components considerably increased, indicating a significant contribution of Zn and Pb to high-PM_{2.5} concentration. In addition, Zn and Pb exhibited the highest correlation coefficient among all other metallic elements of PM_{2.5}. A backward trajectory cluster analysis and CPF model were performed to examine the origin of PM_{2.5}. The high concentration of PM_{2.5} was primarily influenced by emissions from industrial complexes located in the northeast and northwest areas.

Keywords: PM_{2.5}, PM₁₀, Metallic elements, Chungcheongnam-do, Origin

* Corresponding author.

Min-Seob Kim Tel : +82-32-560-8384, Fax : +82-32-560-7905, E-mail : candyfrog@korea.kr

Eun-Jin Yoo Tel : +82-32-560-8301, Fax : +82-32-560-7905, E-mail ejyoo@korea.kr

1. 서론

대기 중 떠다니거나 흩날려 내려오는 입자상 물질을 흔히 먼지라 한다. 먼지는 탄소·이온·금속 성분 등으로 구성되어 발생원인에 따라 물리적 성질 및 화학적 조성이 다른 특성을 보이는데, 발생원에서 대기 중 직접 배출되는 1차 입자(primary particle)와 대기 중 입자상 물질의 물리·화학적 반응을 통해 생성되는 2차 입자(secondary particle)로 나뉜다. 입자 크기에 따라 공기역학적 직경 10 μm 이하의 입자상 물질을 미세먼지(PM_{10}), 직경 2.5 μm 이하의 물질을 초미세먼지($\text{PM}_{2.5}$)로 분류한다.

수많은 연구들에 따르면, 입자상 물질은 인간의 건강을 비롯해 대기질 및 기후 변화 등에 악영향을 미치기 때문에 중요한 대기오염 물질로 꼽힌다 (Booth et al. 2012; Bhattarai et al. 2020; Myhre et al. 2022). 세계보건기구(WHO)는 미세먼지(PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$)에 대한 대기질 가이드라인을 1987년부터 제시했다. 2013년에는 세계보건기구 산하의 국제 암연구소 (IARC, International Agency for Research on Cancer)에서 미세먼지를 사람에게 암을 유발시킬 수 있는 1군 발암물질로 지정한 바 있다. 특히 직경이 작은 $\text{PM}_{2.5}$ 의 경우 건강상 위해성이 PM_{10} 보다 더 크다는 연구결과들이 제시되었으며 (Feng et al. 2012; Kim et al. 2019; Jo et al. 2021), 먼지 입자의 크기가 감소할수록 표면적이 증가하기 때문에 인위적인 오염원에서 발생하는 독성 금속성분들(Cd, Cr, Ni, Pb 및 Zn 등)의 흡착이 용이해져, 미세먼지의 입자가 작으면 작을수록 더 유해한 중금속을 함유한다고 보고하고 있다 (Song et al. 2018; Kim et al. 2020; Choi et al. 2021).

대기 중 미세먼지의 중금속 농도는 지역 환경에 따라 다양하게 나타난다. Kang 등 (2018)은 국내 주요 산업단지에서 대기 중 중금속을 채취하여 분석한 결과, 제철산업에서는 Fe 성분이, 비철금속산업에서는 Zn과 Pb 성분이, 그리고 자동차와 관련된 금속산업에서는 Cr과 Ni 성분의 농도가 높게 나타났다고 보고했다. Cho 등 (2009)은 국내 대형제철소 주변의 노출지역과 대조지역을 설정하여 미세먼지 및 중금속 성분을 평가한 결과, 노출군의 농도가 대조군에 비해 월등히 높게

조사되었으나, 이는 제철소에서 발생하는 것뿐만 아니라 주변의 대형화물차량 이동, 박무·안개와 같은 기상 현상, 그리고 인근 고속도로를 끼고 있는 지형적인 영향을 복합적으로 받았다고 보고했다. 또한, Jeon 등 (2012)은 국내 대도시(인천), 중소도시(충남, 전북), 청정도시(제주) 지역의 대기 중 중금속 성분을 비교한 결과, 교통밀집 지역인 대도시에서 중금속 농도가 가장 높게 나타났다고 보고했다. 특히, 대도시에서 포집된 $\text{PM}_{2.5}$ 내 Fe, Al은 토양 입자 등 자연적인 오염원의 영향으로 추정하였으며, Zn, Pb는 차량이 많은 지역적인 특성이 반영된 결과라고 보고했다. 반면, 인체에 위해도가 큰 것으로 알려진 Cr과 Ni은 상대적으로 낮은 농도를 나타냈다. 이와 같이 중금속 농도 분포 특성은 배출 오염원의 영향을 유추할 수 있는 과학적인 근거를 제공하고 있어 대기환경 개선을 위해 중요한 자료로 이용될 수 있다.

에어코리아 자료에 따르면 전국 17개 시도 중 충청남도의 연평균 미세먼지 농도는 상위권으로 나타나고 있다 (KECO, 2023). 충청남도에는 대규모 석탄화력발전소를 포함하여, 제철소, 석유화학산업단지 등의 대형 점오염원이 밀집되어 있어 전국에서 대기 오염물질 배출량이 가장 많은 지역으로 알려져 있다 (Lee and Park 2019; Ju et al. 2020). 특히, 2019년 조사된 굴뚝 원격감시체계(tele-monitoring system, TMS)에서 지역 전국 배출량 중 충남(21.2%)이 가장 높게 나타나, 전국적으로 배출되고 있는 대기오염물질 중 상당량을 차지하는 것으로 보고되었다 (MIS, 2021). 대형 점오염원으로부터 배출되는 대기오염물질은 주변 지역의 대기질에 영향을 미치는 것으로 알려져 있으나 (Kim et al. 2017; Lee and Park 2019; Son et al. 2020; Ju et al. 2020; Lee et al. 2021), 이들의 영향을 정확하게 파악하기 위해서는 배출량 뿐만 아니라 배출지역 및 인근지역에서의 미세먼지 농도, 화학성분과 기원 추적연구 등이 복합적으로 이루어져야 한다.

본 연구에서는, 충청남도 서쪽 끝에 위치한 교외대기(태안군 파도리) 측정소에서 2017년부터 2022년까지 계절별로 PM_{10} 과 $\text{PM}_{2.5}$ 를 동시에 채취하여 질량 농도와 포함된 중금속 성분을 분석하였다. 그리고 이들 분석자료를 바탕으로 계절별 성분 분포 특성을 평가하고

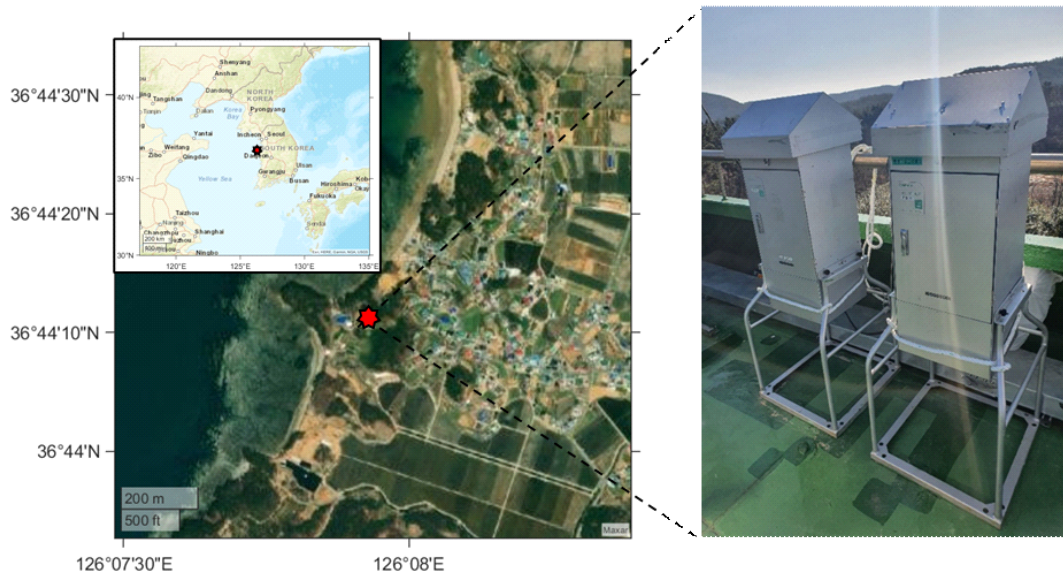


Figure 1. Geographical location of the sampling site in Padori, Taeon (Chungcheongnam-do).

그 기원을 분석하여 충청남도 지역의 미세먼지에 미치는 영향을 규명하고자 한다.

2. 실험장치

2.1 PM₁₀, PM_{2.5} 측정

대기 중 PM₁₀과 PM_{2.5}에 대한 시료채취는 한국환경공단 충청지역본부 교외대기 측정소인 파도리 측정소 (36°73'63.81"N, 126°13'21.68"E)에서 진행하였다. 충청남도 태안군 소재의 파도리 측정소는 우리나라 중서부에 위치하고 있다. 충청남도 서부에는 전국 61개 석탄 화력발전소 중 30개의 화력발전소가 집중되어 있으며, 특히 우리나라 3대 석유화학 단지인 대산석유화학단지가 대규모로 조성되어 있다. 이외에도 산업단지 등 대기오염물질 배출시설들이 산재하고 있어 국외기원과 국내기원 대기오염물질의 장기간 모니터링에 적합한 지역으로 판단된다 (Park et al. 2017).

시료채취는 EPA IO-2 method에 따라 2017년 9월부터 2022년 6월까지 계절별로 PM₁₀ 및 PM_{2.5} 임팩터를 장착한 대용량 먼지 채취기 (High-volume air sampler, Sibata, Japan, 1000 L/min)와 550 °C의 고온으로 10시간 이상 유기물을 제거한 여지(Quartz Microfiber

filter, 2.2 μm, 25.4 cm x 20.3 cm)를 사용하여 오전 10시부터 익일 오전 10시까지 24시간 간격으로 포집하였다. PM₁₀ 및 PM_{2.5}의 각 계절별 시료개수는 봄 54개, 여름 24개, 가을 36개, 그리고 겨울 28개로 총 142개 확보되었다. 추가적으로 시료 채취 시마다 수집한 현장 공시료(Field Blank)와, 실험실 공시료(Lab Blank)를 분석하여 각 시료에 대해 보정하였다. 공시료의 검출농도는 Ni, Cd, As, Cu, Pb, Mn은 0.01 ~ 1.80 ng/mL 수준으로 나타났고, Cr, Zn, Fe은 1.80 ~ 11.56 ng/mL 수준으로 나타났고, Mg, Al은 193.85 ~ 241.31 ng/mL 수준으로 나타났다.

2.2 PM₁₀, PM_{2.5} 분석

시료 포집 전, 후 여지는 항온항습조건의 전자식 데시케이터 (Desiccator) 내에서 48시간 이상 보관하여 필터 무게의 변화가 없는 상태인 항량에 도달시킨 후 칭량을 실시하였다. PM₁₀ 및 PM_{2.5} 포집 전과 포집 후의 무게는 측정한계가 0.1 mg인 전자저울 (Satorius, Germany)을 이용하여 칭량하였고, 측정값은 3번 정량한 값의 평균 (오차범위 ±0.2 mg)을 이용하였다. 유량을 대기오염공정시험기준에 따라 온도와 기압, 흡입 유량을 이용하여 보정한 후 산출하였다.

칭량이 완료된 여지시료는 반지름 2.35 cm의 원형으로 분취하여 테플론 베셀에 넣고 흑연블록 분해 장치에서 혼합산 (HNO₃:HClO₄=4:1) 5 mL와 HF 1 mL를 가하여 175 °C로 24시간 분해하였다. 남은 산은 완전히 휘발시킨 후, HNO₃ 2 mL와 HF 0.5 mL를 가하여 동일한 온도에서 24시간 분해하였다. 다시 남은 산은 완전히 휘발시켜 건조하였고, 최종 분해된 시료에 1% HNO₃ 5 mL를 가하여 희석시킨 후 유도결합 플라즈마 질량분석기 (ICP-MS, Agilent 7850)로 중금속 11종 (Cr, Ni, Cd, As, Cu, Pb, Zn, Mn, Fe, Mg, Al)에 대해 성분 분석을 수행하였다.

본 연구에서 중금속 성분 정량 평가를 위해 대기 입자 상물질과 유사한 매트릭스를 가지고 있는 인증표준물질 (CRM)로 High Purity Standards사의 QC-TMFM-C 필터를 이용하여 시료 전처리 및 분석 방법과 동일한 방법으로 회수율 실험을 실시한 결과, 회수율은 81.6%~97.2%로 나타났다. 방법검출한계(MDL, method detection limit) 값을 얻기 위하여 분석 시 최저 농도를 7번 분석하여 98% 신뢰수준에서 이용하였고, 각 성분의 검출한계는 0.06(Cr), 0.09(Ni), 0.12(Cd), 0.20(As), 0.06(Cu), 0.08(Pb), 0.16(Zn), 0.04(Mn), 0.18(Fe), 0.34(Mg), 0.43(Al) µg/L로 나타났다. 측정 성분의 분석값이 산출된 MDL 값 보다 낮게 나온 경우, 해당 성분은 MDL 값으로 채택하였다. 또한, 산분해 및 중금속 성분 분석 과정에서 시료 20개당 1개는 이중시료로 재현성을 측정하고 상대 오차가 5% 이내로 측정되는 자료만 사용하였다.

2.3 오염원 추적 모델

파도리 교외대기의 PM₁₀과 PM_{2.5} 기원 파악을 위해 PM₁₀, PM_{2.5}의 질량농도, 풍향 및 풍속 자료 (AWS)를 이용하여 CPF (Conditional Probability Functions) 분석을 수행하였다. CPF 모델 분석 시에는 보다 정확한 결과를 위해 PM₁₀과 PM_{2.5}의 질량농도는 1시간 평균 기준의 에어코리아 자료를 이용하였으며 (KECO, 2023), 풍향 및 풍속 자료는 1시간 평균 기준의 기상청 기상자료개방포털(<https://data.kma.go.kr/>)의 자료를 이용하였다.

CPF 모델은 풍향과 풍속을 고려하여 고농도 오염원

의 위치를 추정할 수 있는 통계적 확률로 다음과 같이 계산된다.

$$CPF_{\Delta\theta} = \frac{m_{\Delta\theta}}{n_{\Delta\theta}} \quad (1)$$

여기서, $m_{\Delta\theta}$ 는 오염원의 분율 기여도 값이 한계값 (threshold criterion) 이상일 때, 특정영역(wind sector)에서의 풍향의 발생 횟수를 의미하고, $n_{\Delta\theta}$ 는 동일영역에서의 풍향의 발생 횟수를 의미한다. 풍속이 매우 낮을 때 (< 0.5 m/s)는 불어오는 바람의 방향에 대한 불확실도가 높기 때문에 분석에서 제외한다 (Ham et al. 2017; Jo et al. 2017; Park et al. 2022). 또한 발생원의 풍향 의존성을 명확하게 구분하기 위하여 한계값을 설정할 수 있는데 (Jeong et al. 2015), 본 연구에서는 기여도의 75th Percentile을 사용하였다.

공기계의 기원 및 이동 경로를 계산하기 위하여 대기확산모델인 미국 해양대기청(NOAA, National Oceanic and Atmospheric Administration)의 HYSPLIT4 (Hybrid Single Particle Lagrangian Trajectory) 모델을 이용하였다. 모델에 필요한 기상 데이터로써 수평 해상도가 1°인 GDAS 1 (Global Data Assimilation System)을 선택하고, 파도리 교외 대기 측정소(36.736 °N, 126.132 °E)에 도달한 72시간 역궤적을 6시간 간격으로 계산하였다. 수용지점의 공기계의 높이는 100 m로 설정하였다 (Park et al. 2020; Li et al. 2020; Ma et al. 2022).

3. 실험결과

3.1 PM₁₀, PM_{2.5}의 질량농도

2017년 9월부터 2022년 6월까지 측정된 태안 PM₁₀과 PM_{2.5}의 계절별 평균 질량농도를 표 1과 그림 2에 나타내었다. 전체 측정기간 동안 PM₁₀ 평균 농도는 58.6±51.5 µg/m³, PM_{2.5} 평균 농도는 35.0±26.1 µg/m³로 나타났다. 일평균 농도 범위는 PM₁₀은 9.6~379.0 µg/m³, PM_{2.5}는 6.1~132.2 µg/m³로 우리나라의 일평균 기준농도인 100 µg/m³(PM₁₀), 35 µg/m³(PM_{2.5})를 초과하는 일수가 전체 시료 수의 각 13%, 37%를 차지하였으며, 대부분 봄철과 겨울철에

집중되어 있었다.

계절별 평균 농도는 PM₁₀에서 봄 83.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 겨울 63.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 가을 35.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 여름 32.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 순이며, PM_{2.5}의 경우 봄 45.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 겨울 43.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 가을 22.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 여름 19.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 순으로 나타나 연구지역에서는 PM₁₀과 PM_{2.5} 모두 봄철에 가장 높고 여름철에 가장 낮았다. 일반적으로 봄철에는 황사 등의 외부 유입 영향이 많아 미세먼지의 농도가 높게 나타난다 (Cha et al. 2019; Shim et al. 2022). 반면, 여름철에는 혼합도가 높아 대기의 확산 능력이 강할 뿐만 아니라 강우량과 강우빈도가 집중됨으로써 오염된 공기를 세정시키는 효과가 있어 미세먼지의 농도가 낮아지는 것으로 알려져 있다 (Wu et al. 2017; Han et al. 2021; Dhaka et al. 2022; Kim et al. 2023). 본 연구에서도 황사가 발생한 봄철에 월등히 높은 계절 평균 농도를 보이고 있으며, 여름철에 미세먼지 농도가 가장 낮아 선행 연구 결과들의 계절적 농도 경향과 잘 일치하는 것으로 나타났다.

그림 3과 같이 PM₁₀과 PM_{2.5}의 동일한 날짜에 포집된 샘플의 질량 농도에 대해 상관 분석을 수행했다. 그림 3을 통해 알 수 있듯이 PM₁₀은 PM_{2.5} 및 PM_{2.5-10}과 상당한 양의 상관 관계가 있다. PM₁₀과 PM_{2.5} 사이

의 상관계수는 0.82로 PM_{2.5-10}과 PM_{2.5}의 상관계수 (0.48)보다 크게 나타났다. 이는 본 연구지역의 PM_{2.5}가 PM₁₀에 더 많이 기여하고 있으며, PM₁₀의 변화는 주로 미세 입자인 PM_{2.5}의 증감에 영향을 받는다는 것을 시사한다 (Janssen et al. 2013; Zhou et al. 2016; Huang et al. 2020). 따라서 본 연구지역에서의 대기질 개선을 위해서는 PM_{2.5}에 대한 관리가 필요할 것으로 판단된다.

3.2 중금속 성분 농도분포 특성

대기 중 중금속 성분은 분진이나 미세먼지 등에 결합되거나 2·3차 결합으로 대기 중에 체류하며 머무르게 된다 (Choi et al. 2004; Oh et al. 2019; Jung et al. 2023). 이러한 중금속 농도 분포는 지역별 특성과 환경적 요인에 의해 다양하게 나타난다 (Sung et al. 2015; Zhang et al. 2015; Baek et al. 2019; Wang et al. 2021; Zhao et al. 2021; Lee et al. 2022). PM₁₀과 PM_{2.5}에 포함된 중금속 성분의 계절 평균 농도와 연평균 농도를 표 1에 제시하였다. 전체 측정기간 동안 11종의 중금속 성분은 평균적으로 PM₁₀의 10.8%, PM_{2.5}의 2.3%를 차지하고 있는 것으로 나타났으나, Si, K, Na, Ca 등 지각·토양 구성성분

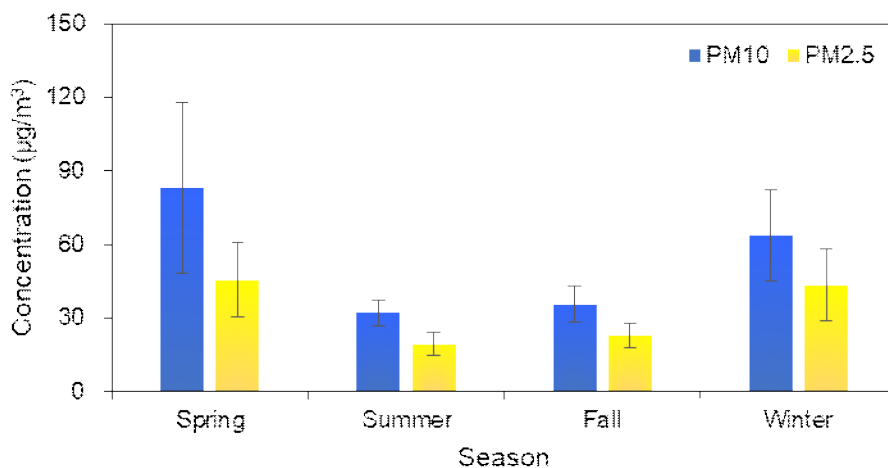


Figure 2. Seasonal variations for the PM₁₀ and PM_{2.5} mass concentrations during September 2017–June 2022.

및 해양 성분 중 일부 항목을 분석하지 않아 실제로는 중금속 성분이 더 많이 함유되어 있을 것으로 판단된다.

PM₁₀에 포함된 중금속 성분의 농도는 Al (3979.0 ng/m³), Fe (3237.5 ng/m³), Mg (1120.0 ng/m³), Zn (161.5 ng/m³), Mn (106.0 ng/m³), Pb (62.8 ng/m³), As (21.1 ng/m³), Cu (19.3 ng/m³), Ni (12.7 ng/m³), Cr (11.6 ng/m³), Cd (2.7 ng/m³) 순으로 나타났다. 11종의 중금속 성분 중 지각원소인 Al (45.0%), Fe (37.3%), Mg (13.0%) 은 전체 중금속의 95.3%를 차지하는 주요한 성분으로 분석되었다 (Jeon et al. 2015; Kwon et al. 2020; Choudhary et al. 2023). 계절별 평균 농도에서는 지각 및 토양의 구성 성분으로 알려진 Al, Fe, Mn 성분이 황사가 빈번한 봄철에 가장 높게 나타났다 (Liu et al. 2006; Lee et al. 2013; Nishita-Hara et al. 2019). 반면, 인위적 기원인 Zn, Pb, Cu는 겨울철에 가장 높은 농도 값을 보였으며, 특히 Zn, Pb는 주로 철강과 관련한 산업 공정에서 배출되거나 (Yatkin et al. 2008; Lin et al. 2020; Wu et al. 2021), 이동 오염원에서 배출되는 중금속으로 알려져 있다 (Cao et al. 2009; Samek et al. 2021).

본 연구지역의 PM_{2.5}에 포함된 중금속 성분(2.3%)은 광주 (2.2%)¹⁾ (Lee et al. 2019), 부산 (3.1%)²⁾ (Park et al. 2014), 전주 (1.5%)³⁾ (Jo et al. 2018), 춘천 (1.4%)⁴⁾ (Byun et al. 2018) 등 타지역들과 비교하였을 때 도심 지역들과 비슷한 수준으로 나타났다. PM_{2.5} 내 중금속의 농도는 Fe (231.4 ng/m³), Al (71.5 ng/m³), Mg (52.0 ng/m³), Zn (44.4 ng/m³), Cu (18.5 ng/m³), Pb (16.5 ng/m³), As (14.1 ng/m³), Mn (12.6 ng/m³), Ni (4.5 ng/m³), Cr (3.3 ng/m³), Cd (1.1 ng/m³) 순으로 나타났다. PM_{2.5}에는 Fe (49.7%), Al (14.3%), Mg (11.0%) 성분이 전체 중금속의 75.0%를 차지하고 있었고, Zn (9.7%), Cu (4.1%), Pb (3.6%) 성분이 17.4%로 PM₁₀에 비해 높은 비율을 차지하고 있었다. 특히 겨울철에 Zn, Pb, Cu는

타 계절 및 연평균 대비 월등히 높은 농도를 보여 자연적인 발생보다는 공장 및 배기와 관련된 인위적인 오염의 영향이 우세한 것으로 판단된다 (K. Juda-Rezler et al. 2020; Samek et al. 2020).

3.3 PM_{2.5} 고농도 특성

PM_{2.5} 농도 구간별 특성을 알아보기 위해 전체기간 동안 PM_{2.5}의 질량농도를 PM_{2.5} ≤ 20 μg/m³, 20 μg/m³ < PM_{2.5} ≤ 40 μg/m³, 40 μg/m³ < PM_{2.5} ≤ 80 μg/m³, PM_{2.5} > 80 μg/m³의 4구간으로 분류하여 살펴보았다 (그림 4, 황사일 제외). 각 구간별 시료 개수는 22, 30, 13, 5개로 대부분의 시료는 20 μg/m³ < PM_{2.5} ≤ 40 μg/m³ 범위에 있는 것으로 확인되었다. 일반적으로 PM_{2.5/10}는 대기 중 2차적으로 생성되는 미세먼지의 비율을 간접적으로 제시하는 지표로 사용되는데 (Won et al. 2010; Xu et al. 2017), 각 구간별 PM_{2.5/10} 비율을 살펴보면 저농도에서 고농도 구간으로 갈수록 PM_{2.5}의 비율이 증가하고 있다. 특히, 20 μg/m³ < PM_{2.5} ≤ 40 μg/m³의 구간에서부터 PM_{2.5/10}의 비율은 0.66 이상으로 나타나고 있어 본 연구지역에서 PM_{2.5}의 질량농도가 20 μg/m³을 초과하는 경우 대기 중에서 생성되는 2차 미세먼지의 기여율이 비교적 높은 것으로 판단된다.

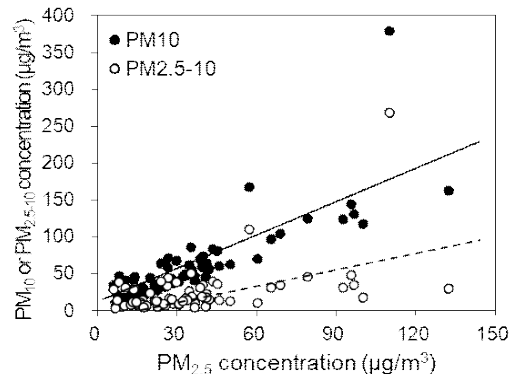


Figure 3. Relation between PM₁₀, PM_{2.5-10} and PM_{2.5} concentrations. The solid line means regression line of PM₁₀ and PM_{2.5-10}, and the dashed line means regression line of PM₁₀ and PM_{2.5}.

(Regression equations: PM₁₀=2.0+1.6×PM_{2.5}; PM_{2.5-10}=2.0+0.6×PM_{2.5}).

1) Pb, Cr, Cu, Mn, Ni, As, Fe, Al, Ca, Mg, Zn, K, Ti, V
 2) Pb, Cr, Cu, Mn, Ni, As, Fe, Al, Zn, Cd
 3) Pb, Mn, Ni, As, Fe, Al, Zn, Ti, V, Se
 4) Pb, Cr, Cu, Mn, Ni, As, Fe, Al, Zn, Mg

Table 1. Seasonal and annual average of atmospheric elements concentrations in PM₁₀ and PM_{2.5}. The values in bracket indicate standard deviations (1 σ).

PM ₁₀						
Season	Spring	Summer	Fall	Winter	Annual	
Cr	ng/m ³ 15.1(22.8)	5.5(4.5)	10.8(11.6)	10.9(11.3)	11.6(15.9)	
Ni	ng/m ³ 18.8(17.5)	13.2(7.1)	6.6(6.0)	8.7(8.2)	12.7(12.8)	
Cd	ng/m ³ 3.9(6.1)	0.8(0.7)	1.6(1.0)	3.5(2.6)	2.7(4.1)	
As	ng/m ³ 20.1(15.6)	10.6(16.9)	25.8(38.1)	25.7(12.6)	21.1(23.0)	
Cu	ng/m ³ 20.8(15.0)	7.6(7.3)	20.1(11.9)	27.8(27.2)	19.3(17.2)	
Pb	ng/m ³ 70.3(46.6)	23.8(22.2)	59.0(46.3)	94.5(61.2)	62.8(50.1)	
Zn	ng/m ³ 189.9(151.4)	85.7(68.9)	136.3(131.0)	218.8(209.0)	161.5(151.3)	
Mn	ng/m ³ 178.4(375.3)	25.0(22.4)	56.1(35.8)	95.7(71.2)	106.0(235.4)	
Al	ng/m ³ 8162.6(22536.9)	493.1(619.7)	854.8(1226.5)	2199.7(2503.5)	3979.0(13991.7)	
Mg	ng/m ³ 1735.4(3494.0)	201.2(350.3)	624.0(942.8)	1313.6(1410.8)	1120.0(2301.8)	
Fe	ng/m ³ 5912.4(13472.8)	725.7(676.0)	1311.1(916.6)	2452.2(1737.5)	3237.5(8406.9)	
PM _{2.5}						
Season	Spring	Summer	Fall	Winter	Annual	
Cr	ng/m ³ 2.5(3.2)	2.5(1.7)	4.9(7.9)	3.1(4.0)	3.3(4.8)	
Ni	ng/m ³ 4.2(8.1)	6.5(5.6)	4.0(4.8)	3.3(4.0)	4.5(6.1)	
Cd	ng/m ³ 0.9(1.0)	0.8(0.9)	1.4(0.9)	1.4(2.0)	1.1(1.2)	
As	ng/m ³ 14.4(19.8)	11.8(20.4)	18.0(21.0)	9.0(13.1)	14.1(18.7)	
Cu	ng/m ³ 16.9(8.8)	16.6(10.6)	19.7(8.5)	23.6(16.5)	18.5(11.0)	
Pb	ng/m ³ 13.0(20.1)	7.6(10.4)	20.2(26.5)	26.2(36.7)	16.5(24.6)	
Zn	ng/m ³ 36.6(69.0)	27.1(30.3)	52.5(67.6)	62.7(107.5)	44.4(71.8)	
Mn	ng/m ³ 12.4(23.6)	4.8(8.8)	16.2(22.2)	14.1(26.1)	12.6(21.5)	
Al	ng/m ³ 107.8(418.2)	10.0(0.4)	71.2(258.6)	23.7(51.7)	71.5(284.7)	
Mg	ng/m ³ 27.7(8.9)	33.9(1.2)	110.0(250.0)	31.4(1.0)	52.0(128.0)	
Fe	ng/m ³ 289.5(564.5)	111.5(171.0)	238.2(317.1)	192.0(378.5)	231.4(414.0)	

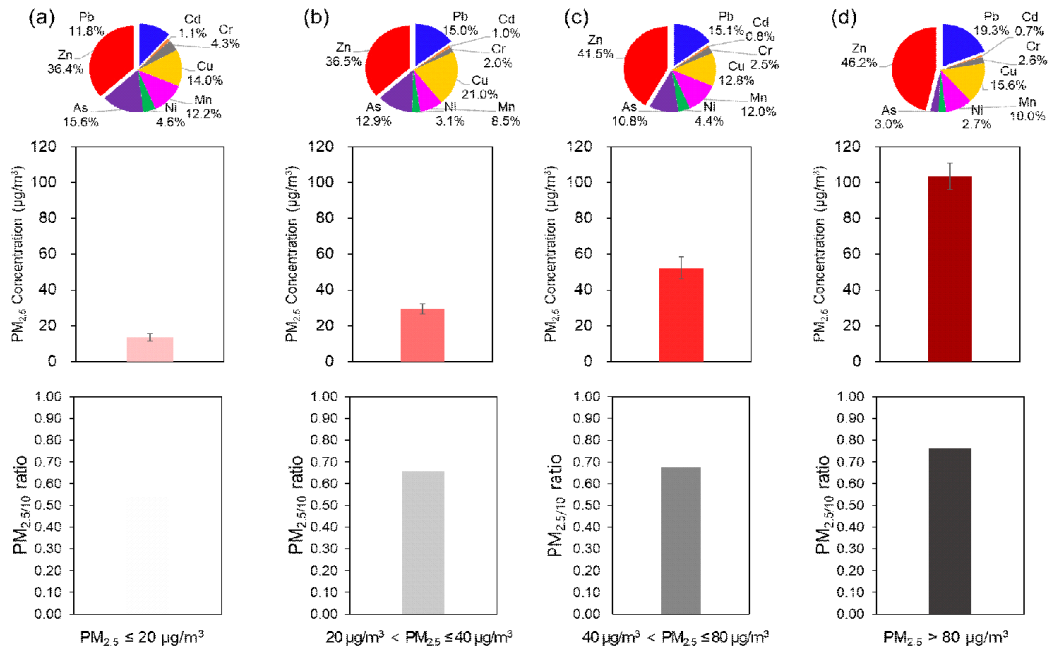


Figure 4. Comparison of composition of metals in PM_{2.5}, PM_{2.5} mass concentrations and PM_{2.5}/10 ratio between (a) PM_{2.5} ≤ 20 µg/m³, (b) 20 µg/m³ < PM_{2.5} ≤ 40 µg/m³, (c) 40 µg/m³ < PM_{2.5} ≤ 80 µg/m³, and (d) PM_{2.5} > 80 µg/m³.

PM_{2.5} 질량농도 구간별 중금속 성분의 비율을 분석하였다 (그림 4). Al, Mg, 그리고 Fe 성분을 제외한 나머지 8종의 Trace metal 성분만을 비교하였다. 저농도에서 고농도 구간으로 갈수록 Zn과 Pb 성분의 증가가 뚜렷하게 나타났다. 모든 구간에서 가장 주요한 성분으

로 나타나는 Zn 성분은 36.4%(그림 4(a))에서 46.2%(그림 4(d))로 크게 증가하였으며, Pb 성분도 11.8%(그림 4(a))에서 19.3%(그림 4(d))로 증가하였다. 반면, As 성분은 15.6%(그림 4(a))에서 3.0%(그림 4(d))로 크게 감소하였다. 표 2에 나타난 PM_{2.5} 내 중금속 성분

Table 2. Correlation analysis (Spearman's rank) among metallic elements concentrations in PM_{2.5} (***: ρ < 0.001, **: ρ < 0.01, *: ρ < 0.05).

PM _{2.5}	Cr	Ni	Cd	As	Cu	Pb	Zn	Mn	Al	Mg	Fe
Cr	1.00										
Ni	0.61***	1.00									
Cd	0.38***	0.39***	1.00								
As	-0.05	-0.01	0.34**	1.00							
Cu	0.08	0.03	0.50***	0.17	1.00						
Pb	0.55***	0.66***	0.64***	0.03	0.20*	1.00					
Zn	0.68***	0.32**	0.66***	0.04	0.27*	0.91***	1.00				
Mn	0.69***	0.75***	0.57***	-0.01	0.12	0.89***	0.91***	1.00			
Al	0.19	0.27*	0.07	-0.01	-0.12	0.31**	0.32**	0.45***	1.00		
Mg	0.45***	0.19	0.14	0.01	-0.06	0.35**	0.33**	0.36**	0.40***	1.00	
Fe	0.46***	0.59***	0.41***	-0.03	0.07	0.69***	0.71***	0.87***	0.58***	0.19	1.00

의 상관관계를 살펴보면, Zn 성분과 Pb 성분이 0.91***로 매우 높은 상관도를 보이고 있으며, PM₁₀에서도 높은 상관도를 보였다 (0.85***). 이는 본 연구기간동안 파도리 지역에 Zn과 Pb 성분이 PM_{2.5} 농도 증가에 기여한 영향이 큰 것으로 판단되며, PM_{2.5} 내 Zn과 Pb 성분이 같은 오염원으로부터 기원하였을 가능성이 높음을 시사한다.

3.4 기원 추적

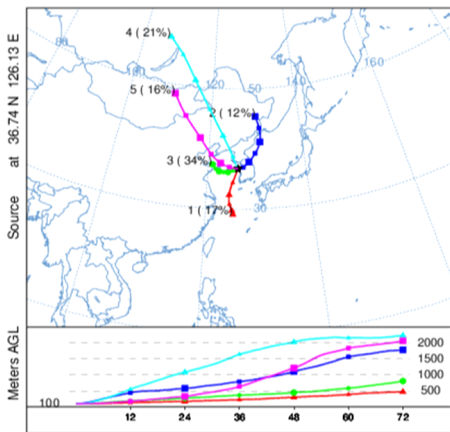


Figure 5. Backward trajectories and cluster analysis in Padori, Taean monitoring sites.

2017년 9월부터 2022년 6월까지의 공기 기원을 추적하기 위해 72시간 100 m 역궤적 군집분석을 수행하였다 (그림 5, 표 3). 전체 역궤적에 대한 군집분석 결과, 본 연구지역으로 이동한 기류의 유입경로는 총 5개

군집으로 분류할 수 있었다.

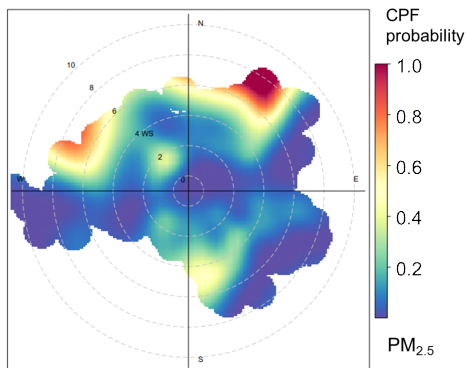
Cluster 1은 17%로 남쪽 해안에서 발원하여 해안지역을 천천히 머무르다가 연구지역으로 유입되는 기류로, 강수가 발생하지 않았으나 상대습도가 매우 높은 특징을 보였다. Cluster 2는 12%로 중국의 동북지역에서 발원하여 서해안을 통과해 국내 동쪽 지역을 거쳐 연구지역으로 기류가 유입되었다. Cluster 3은 34%로 가장 많은 궤적을 가지고 중국 산둥성 동쪽지역 근처에서 발원하여 낮은 고도에서 천천히 연구지역으로 유입되는 경로를 보였다. 군집 중 PM_{2.5}의 농도(46.6±33.7 μg/m³)와 PM_{2.5/10} 비율(0.74)이 가장 높게 나타나, 본 연구지역의 고농도 PM_{2.5} 발생은 중국에서 발원하거나 중국-국내를 거처온 공기에 의한 영향이 큰 것으로 분석되었다. Cluster 4는 21%로 러시아에서 발원하여 매우 빠르게 연구지역으로 유입되는 장거리 이동의 궤적을 보였다. 그리고 Cluster 5는 16%로 몽골에서 발원하여 고비사막을 통과해 연구지역으로 도착하는 공기궤로 PM_{2.5/10} 비율이 0.57로 매우 낮게 나타났다. 특히, PM₁₀ 내의 중금속 함량이 24.0%로 매우 높게 나타났으며, 주요한 성분은 주로 토양 기원 원소인 Al (11.4%), Fe (6.8%), 그리고 Mg (3.8%)으로 나타나 황사와 관련이 있는 것으로 판단된다 (Kim et al. 2014; Song et al. 2016; Byun et al. 2018). 실제 측정기간 동안 발생한 황사일이 포함되어 있는 군집으로, 본 연구지역에 자연기원의 장거리 이동 오염원이 영향을 주는 것으로 보여진다.

국지적인 영향을 파악하기 위해 같은 기간 동안

Table 3. Statistics for PM₁₀, PM_{2.5} concentrations, and other parameters for each type of air masses arriving in Padori monitoring sites.

	Cluster 1	Cluster 2	Cluster 3	Cluster 4	Cluster 5
Fraction (%)	17	12	34	21	16
PM ₁₀ (μg/m ³)	32.9(13.8)	36.1(14.8)	62.3(43.0)	52.3(28.4)	85.1(78.8)
Metals/PM ₁₀ (%)	11.0	8.2	10.8	11.5	24.0
PM _{2.5} (μg/m ³)	21.8±11.3	24.8±10.2	46.6±33.7	26.0±13.8	43.0±26.3
Metals/PM _{2.5} (%)	9.6	2.0	1.4	7.2	2.1
PM _{2.5/10} ratio	0.66±0.14	0.70±0.11	0.73±0.13	0.55±0.21	0.58±0.14
Temperature (°C)	17.8±7.1	17.2±6.9	12.0±7.4	9.3±7.3	10.7±6.2
Relative humidity (%)	90.6±6.1	77.1±12.8	78.3±11.4	68.9±12.0	75.2±11.0
Wind speed (m/s)	3.1±1.6	3.1±1.3	3.2±1.5	3.0±1.1	2.8±1.0

PM_{2.5}의 1시간 평균 기준 풍향, 풍속에 따른 CPF 모델링을 수행하고 바람 장미도를 작성하였다 (그림 6, 7). 모델 결과, PM_{2.5} > 35 µg/m³ 일 때, 오염물질이 유입된 가능성이 가장 높은 지역은 본 연구지역의 북동쪽과 북서쪽으로 분석되었다. 특히, 풍속 6~8 m/s 범위의 비교적 빠른 속도에서 북동(NE) 또는 북서(NW)풍의 영향으로 PM_{2.5}의 고농도 현상의 가능성을 확인하였다 (그림 6). 본 연구지역의 북동쪽으로는 서산시가 가까이 인접해 있으며, ~ 50 km 이격된 거리에는 당진시가 위치해 있다. 서산시와 당진시는 석탄화력발전소 제철소 등이 밀집되어 있는 지역으로 이러한 결과는 대규모 배출시설에 의한 대기오염물질이 본 연구지역으로 유입되어 왔을 가능성이 높은 것으로 판단된다. Lee and Park (2019)은 충청남도에 위치한 대형배출 시설이 주변 지역의 PM_{2.5}에 미치는 영향을 연구한 결과, 대형배출시설에서 배출된 대기오염물질이 주변 지역에 상당한 영향을 미치는 것을 확인하였다. 특히, 현대제철 당진제철소가 위치한 곳의 대기오염측정소에서 PM₁₀, PM_{2.5}, CO, O₃ 및 SO₂의 월평균 및 시간최고농도가 가장 높았으며 충청남도 지역에서 거의 최고 수준으로 나타났다. 뿐만 아니라, Son 등 (2020)에서는 충청남도 지점별 PM_{2.5}의 국지적 및 국외 영향 기여도를 분석한 결과, 여러 차례의 고농도 사례에서 현대제철 당진제철소 인근지점과 풍하지역인 산업단지에서 국지적 영향이 가장 높게 나타났고, 이는 사업장에서 발생한 다양한 오염물질이 주변지역에 영향을 미친 것으로 보고했다.



CPF at the 75th percentile (=35 µg/m³)

Figure 6. Results of conditional probability function (CPF) in Padori, Taean.

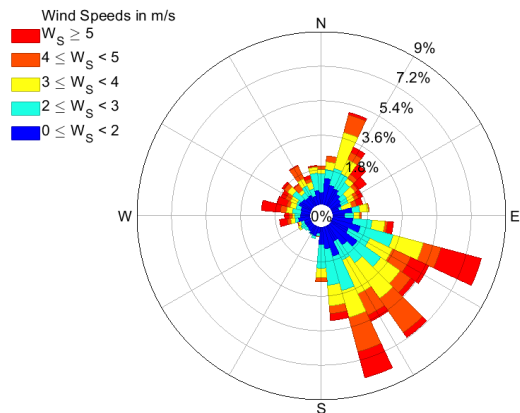


Figure 7. The results of wind rose plot for the entire study period in Padori, Taean.

또한, 한반도의 지리적 특성과 풍향에 따른 오염물질의 이동성을 고려할 때, 북서쪽에 위치한 중국으로부터의 장거리 수송 영향을 배제할 수 없다 (Park et al. 2017; Lee et al. 2018; Han et al. 2022). 충청남도는 한반도 서쪽 끝에 위치하여 중국이나 타 지역으로부터 유입되는 장거리 이동오염물질에 직접적인 피해를 받고 있는 지역으로(Oh, 2007; Yu et al. 2015; Park, 2019; Lee et al. 2021), 그림 6의 CPF 모델 결과에서도 북서쪽에 의한 고농도 PM_{2.5} 발생은 국외로부터의 오염 영향을 포함하는 것으로 추정된다.

4. 결론

본 연구에서는 2017년 9월부터 2022년 6월까지 충청남도 태안군 소재의 파도리 측정소에서 PM₁₀과 PM_{2.5}를 포집하여 질량농도 및 중금속 성분의 특성을 분석하였다. 전체기간 동안 PM₁₀과 PM_{2.5}의 질량농도는 각각 58.6±51.5 µg/m³, 35.0±26.1 µg/m³로, 우리나라의 연평균 기준농도를 약간 초과하거나 비슷한 수준인 것으로 나타났다. 계절별로는 PM₁₀과 PM_{2.5} 모두 봄, 겨울, 가을, 여름철 순으로 높은 농도를 보였다. PM₁₀과 PM_{2.5}의 상관분석 결과, 본 연구지역의 PM₁₀은 PM_{2.5}의 증감에 영향을 많이 받는 것으로 나타났다.

고농도 PM_{2.5} 특성을 분석하기 위해 PM_{2.5} 농도를 4 구간으로 분류하여 살펴본 결과, 저농도에서 고농도 구간으로 갈수록 PM_{2.5/10} 비율과, Zn, Pb 성분의 증가가

뚜렷하게 나타나, Zn과 Pb 성분은 본 연구지역의 PM_{2.5} 농도 증가에 기여한 것으로 판단된다. 특히, 0.91의 매우 높은 상관도를 보인 Zn과 Pb 성분은 같은 오염원으로부터 기원한 것으로 추정된다.

Hysplit 역궤적 군집분석과 CPF 모델을 이용한 기원 추적 결과, 전체 측정기간동안 본 연구지역의 PM_{2.5}는 국내 및 국외의 영향을 모두 받는 것으로 나타났다. 특히, 고농도 PM_{2.5}는 주로 북동쪽과 북서쪽에서 기인된 배출원에 의한 것으로 분석되었다. 앞서 언급한 바와 같이, 본 연구지역의 북동쪽에는 대규모 석탄화력발전소를 포함하여, 제철소, 석유화학산업단지 등의 대기 오염물질 배출시설이 밀집되어 있다. 다양한 업종의 배출시설에서는 NH₃, NO_x, SO₂, VOCs 등 2차 미세먼지 생성에 관여하는 전구체를 배출하기 때문에, 대형 점오염원 인근의 오염물질 농도 분포 및 특성에 관한 측정자료와 연구는 필수적이다. 나아가, 대형 점오염원으로부터 PM_{2.5}에 대한 영향을 정성·정량적으로 파악하여 이를 바탕으로 충청남도 미세먼지 저감 정책에도 활용되어야 할 것이다.

감사의 글

이 연구는 국립환경과학원 연구사업 R&D 예산으로 수행되었습니다. (NIER, 2022-01-01-072)

References

- Baek, K.-M., Se, Y.-K., Chung, D.-H., and Baek, S.-O. (2019). Atmospheric Occurrence and Concentrations of PAHs and Heavy Metals in Pohang, *Journal of the Korean Society for Environmental Analysis*, 35(5), 533-554. <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2019.35.5.533>
- Bhattacharai, G., Lee, J. B., Kim, M.-H., Ham, S., So, H.-S., Oh, S., Sim, H.-J., Lee, J.-C., Song, M., and Kook, S.-H. (2020). Maternal exposure to fine particulate matter during pregnancy induces progressive senescence of hematopoietic stem cells under preferential impairment of the bone marrow microenvironment and aids development of myeloproliferative disease, *Leukemia*, 34, 1481-1484. <https://doi.org/10.3390/ijerph14040440>.
- Booth, B. B., Dunstone, N. J., Halloran, P. R., Andrews, T., and Bellouin, N. (2012). Aerosols implicated as a prime driver of twentieth-century North Atlantic climate variability, *Nature*, 484, 228-232. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2016.02.003>.
- Byun, J.-Y., Cho, S.-H., Kim, H.-W., and Han, Y.-J. (2018). Long-term Characteristics of PM_{2.5} and Its Metallic Components in Chuncheon, Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(3), 406-417. <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.3.406>
- Cao, J., Shen, Z., Chow, J.-C., Qi, G., and Watson, J.-G. (2009). Seasonal variations and sources of mass and chemical composition for PM₁₀ aerosol in Hangzhou, China, *Particuology*, 7(3), 161-168. <https://doi.org/10.1016/j.partic.2009.01.009>
- Cha, Y., Lee, S., and Lee, J. (2019). Measurement of black carbon concentration and comparison with PM₁₀ and PM_{2.5} concentrations monitored in Chungcheong Province, Korea. *Aerosol and Air Quality Research*, 19(3), 541-547.
- Cho, B., and Song, M. (2017). Distributions and origins of PM₁₀ in Jeollabuk-do from 2010 to 2015, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(3), 251-264. <https://doi.org/10.4209/aaqr.2018.08.0325>
- Cho, T.-J., Jeong, M.-H., Jeon, J.-M., and Son, B.-S. (2009). A study on the concentration of fine particles and heavy metals in iron works, *Journal of Environmental Science International*, 18(4), 401-409. <https://doi.org/10.5322/JES.2009.18.4.401>
- Choi, B.-J., and Kim, K.-H. (2003). The metallic composition of airborne particles in seven locations of Seoul city, Korea, *ANALYTICAL SCIENCE and TECHNOLOGY*, 16(2), 143-151.
- Choi, S.-H., Choi, S.-W., Kim, D.-Y., Cha, Y.-W., Park, S.-W., Lee, S.-I., and Yoo, E.-C. (2021). Evaluation of Health Risk from Concentrations of Heavy Metal in PM-10 and PM-2.5 particles at Sasang Industrial Complex of Busan, Korea, *Journal of Environmental Analysis, Health and Toxicology*, 24(3), 133-148. <https://doi.org/10.36278/jeaht.24.3.133>
- Choudhary, N., Rai, A., Kuniyal, J. C., Srivastava, P., Lata, R., Dutta, M., Ghosh, A., Dey, S., Sarkar, S., Gupta, S., Chaudhary, S., Thakur, I., Bawari, A., Naja, M., Vijayan., Chatterjee, A., Mandal, T.-K., Sharma, S.-K., and Kotnala, R.-K. (2023). Chemical Characterization and Source Apportionment

- of PM₁₀ Using Receptor Models over the Himalayan Region of India, *Atmosphere*, 14(5), 880.
<https://doi.org/10.3390/atmos14050880>
- Dhaka, S.-K., Longiany, G., Panwar, V., Kumar, V., Malik, S., Rao, A.-S., Singh, N., Dimri, A.-P., Matsumi, Y., Najayama, T., and Hayashida, S. (2022). Trends and Variability of PM_{2.5} at Different Time Scales over Delhi: Long-term Analysis 2007-2021, *Aerosol and Air Quality Research*, 22, 220191.
<https://doi.org/10.4209/aaqr.220191>
- Feng, J., and Yang, W. (2012). Effects of Particulate Air Pollution on Cardiovascular Health: A Population Health Risk Assessment, *PLoS ONE*, 7(3), e33385.
<https://doi.org/10.1371/journal.pone.0033385>
- Ham, J., Lee, H.-J., Cha, J.-W., and Ryoo, S.-B. (2017). Potential source of PM₁₀, PM_{2.5}, and OC and EC in Seoul during spring 2016, *Atmosphere*, 27(1), 41-54.
<https://doi.org/10.14191/Atmos.2017.27.1.041>
- Han, S.-B., Song, S.-K., and Moon, S.-H. (2022). Concentration Characteristics of PM_{2.5} and the Contributions of Physical and Chemical Processes to its Production during 2019 PM_{2.5} Episodes in Seoul, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 38(2), 220-236.
<https://doi.org/10.5572/KOSAE.2022.38.2.220>
- Han, X., Li, S., Li, Z., Pang, X., Bao, Y., Shi, J., and Ning, P. (2021). Concentrations, source characteristics, and health risk assessment of toxic heavy metals in PM_{2.5} in a plateau city (Kunming) in Southwest China, *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 18(21), 11004.
<https://doi.org/10.3390/ijerph182111004>
- Huang, Y., Wang, L., Zhang, S., Zhang, M., Wang, J., Cheng, X., Li, T., H, M., and Ni, S. (2020). Source apportionment and health risk assessment of air pollution particles in eastern district of Chengdu, *Environmental Geochemistry and Health*, 42, 2251-2263.
<https://doi.org/10.1007/s10653-019-00495-0>
- Hwang, K.-W., Kim, J., and Kwon, Y.-J. (2021). A Study on the Factors Affecting the Air Environment in Chungnam Province-Focusing on Cheonan, Dangjin, and Seosan, *Journal of the Korea Academia-Industrial cooperation Society*, 22(5), 118-127.
<https://doi.org/10.5762/KAIS.2021.22.5.118>
- Janssen, N.-A.-H., Fischer, P., Marra, M., Ameling, C., and Cassee, F.-R. (2013). Short-term effects of PM_{2.5}, PM₁₀ and PM_{2.5-10} on daily mortality in the Netherlands, *Science of the Total Environment*, 463, 20-26.
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2013.05.062>
- Jeon, B.-I. (2015). Characteristics of the Springtime Weekday/Weekend on Mass and Metallic Elements Concentrations of PM₁₀ and PM_{2.5} in Busan, *Journal of Environmental Science International*, 24(6), 777-784.
<https://doi.org/10.5322/JESI.2015.24.6.777>
- Jeon, H.-L., Choi, S.-H., Im, J.-Y., Park, H.-J., Hong, E.-J., and Son, B.-S. (2012). Chemical characteristics of heavy metals of PM_{2.5} in atmosphere, *Journal of Environmental Health Sciences*, 38(3), 233-240.
<https://doi.org/10.5668/JEHS.2012.38.3.233>
- Jeong, Y., and Hwang, I. (2015). Source apportionment of PM_{2.5} in Gyeongsan

- using the PMF model, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 31(6), 508-519.
<https://doi.org/10.5572/KOSAE.2015.31.6.508>
- Jo, G., Kim, D., and Song, M. (2018). PM2.5 Concentrations and Chemical Compositions in Jeonju from 2017 to 2018, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(6), 876-888.
<https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.6.876>
- Jo, K., Ryu, S., Han, M., Choi, S., Shin, M., and Park, J. (2021). Cross-sectional Associations between Particulate Matter (PM2.5) and Depression (PHQ-9) in the Elderly, *Journal of Health Informatics and Statistics*, 46(2), 163-170.
<https://doi.org/10.21032/jhis.2021.46.2.163>
- Ju, S., Yu, G.-H., Park, S., Lee, J., Lee, S., Jee, J., Lee, K., and Lee, M. (2020). Pollution characteristics of PM2.5 measured during fall at a Seosan site in Chungcheong Province, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(3), 329-345.
<https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.3.329>
- Juda-Rezler, K., Reizer, M., Maciejewska, K., Błaszczak, B., & Klejnowski, K. (2020). Characterization of atmospheric PM2.5 sources at a Central European urban background site. *Science of the Total Environment*, 713, 136729.
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.136729>
- Jung, J.-Y., Lee, H.-W., Park, S.-H., Lee, J.-I., and Yoon, D.-K. (2023). Health Risk Assessment by Exposure to Heavy Metals in PM2.5 in Ulsan Industrial Complex Area, *Journal of Environmental Health Sciences*, 49(2), 108-117.
<https://doi.org/10.5668/JEHS.2023.49.2.108>
- Kang, B.-W., Kim, M.-J., Baek, K.-M., Seo, Y.-K., Lee, H., Kim, J.-H., Han, J.-S., and Baek, S.-O. (2018). A study on the concentration distribution of airborne heavy metals in major industrial complexes in Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(2), 269-280.
<https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.2.269>
- Kim, C., Kim, J., Hwang, K., Kim, P., Shin, S., Park, J.-S., Park, S., Lee, G., Lee, J., and Kim, J. (2023). Characteristics Analysis of PM2.5 in Industrial Complex Near Area According to Domestic and Foreign Influences in Case of High Concentration PM2.5 Episode Occurrence, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 39(1), 62-76.
<https://doi.org/10.5572/KOSAE.2023.39.1.62>
- Kim, H.-J., Lee, S.-H., Jung, J.-H., Lee, D.-J., Kim, H.-K., Kim, J.-H., and Yoon, Y.-H. (2020). A Study on the Differences of Fine Dust According to the Pedestrian Characteristics in the Mountain Park, *Korean journal of environment and ecology*, 30(1), 40.
- Kim, K.-J., Lee, S.-H., Hyeon, D.-R., Ko, H.-J., Kim, W.-H., and Kang, C.-H. (2014). Composition comparison of PM10 and PM2.5 fine particulate matter for Asian dust and haze events of 2010-2011 at Gosan site in Jeju Island, *ANALYTICAL SCIENCE and TECHNOLOGY*, 27(1), 1-10.
<https://doi.org/10.5806/AST.2014.27.1.1>
- Kim, S.-M., Kim, M.-C., Kim, K.-S., and Lee, K.-H. (2019). Characteristics of the Concentration Variations and Air Mass Routes during the High-concentration Events of Particulate

- Matter in the Jeju Area in 2016, *Journal of the Korean Society for Environmental Analysis*, 22(2), 61-69.
- Kim, S.-T., Kim, O.-K., Kim, B.-U., and Kim, H.-C. (2017). Impact of Emissions from Major Point Sources in Chungcheongnam-do on Surface Fine Particulate Matter Concentration in the Surrounding Area, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(2), 159-173.
<https://doi.org/10.5572/KOSAE.2017.33.2.159>
- Korea Environment Corporation (KECO). (2023). Confirmation data by measuring station, <https://www.airkorea.or.kr> (accessed 25.06.2023).
- Korea Meteorological Administration (KMA). <http://data.kma.go.kr> (accessed 25.06.2023).
- Kwon, S.-J., Cha, S.-J., Lee, J.-K., and Park, J. (2020). Evaluation of accumulated particulate matter on roadside tree leaves and its metal content, *Journal of Applied Biological Chemistry*, 63(2), 161-168.
<https://doi.org/10.3839/jabc.2020.022>
- Lee, B.-J., and Park, S.-S. (2019). Temporal and spatial variabilities of concentrations of criteria air pollutants during early summer in 2018 in South Chungchong Province, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 35(2), 265-281.
- Lee, B.-J., and Park, S.-S. (2019). Temporal and spatial variabilities of concentrations of criteria air pollutants during early summer in 2018 in South Chungcheong Province, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 35(2), 265-281.
<https://doi.org/10.5572/KOSAE.2019.35.2.265>
- Lee, D.-E., Kim, W.-H., Ko, H.-J., Oh, Y.-S., and Kang, C.-H. (2013). Chemical Composition Characteristics of Size-fractionated Particles during Heavy Asian Dust Event in Spring, 2010, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 29(3), 325-337.
<https://doi.org/10.5572/KOSAE.2013.29.3.325>
- Lee, H.-J., Jeong, Y., Kim, S.-T., and Lee, W.-S. (2018). Atmospheric Circulation Patterns Associated with Particulate Matter over South Korea and Their Future Projection, *Journal of Climate Change Research*, 9(4), 423-433.
<https://doi.org/10.15531/KSCCR.2018.9.4.423>
- Lee, H.-W., Lee, S.-H., Jeon, J.-I., Lee, J.-I., and Lee, C.-M. (2022). A Study on the Characteristics of Ion, Carbon, and Elemental Components in PM_{2.5} at Industrial Complexes in Ansan and Siheung, *Journal of Environmental Health Sciences*, 48(2), 66-74.
<https://doi.org/10.5668/JEHS.2022.48.2.66>
- Lee, S.-H., Lee, K.-S., Yoon, S.-H., Yang, Y.-C., Park, J.-Y., Bae, S.-J., and Lee, D.-H. (2019). Characteristics of PM_{2.5} in Gwangju Evaluated by Factor Analysis, *Journal of Environmental Science International*, 28(4), 413-422.
<https://doi.org/10.5322/JESI.2019.28.4.413>
- Lee, S., Hong, H.-S., Kim, C., Hwang, E., Yoon, S., Lee, S., Noh, S., and Kim, J. (2021). Characteristic analysis of urban air pollution of northwest cities in ChungNam, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 37(4), 561-577.
<https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.4.561>
- Li, L., Girguis, M., Lurmann, F., Pavlovic, N., McClure, C., Franklin, M., Wu, J., Oman,

- L., Breton, C., Gilliland, F., and Habre, R. (2020). Ensemble-based deep learning for estimating PM_{2.5} over California with multisource big data including wildfire smoke, *Environment international*, 145, 106143.
<https://doi.org/10.1016/j.envint.2020.106143>
- Lin, Y.-C., Hsu, S.-C., Lin, S.-H., and Huang, Y.-T. (2020). Metallic elements emitted from industrial sources in Taiwan: Implications for source identification using airborne PM, *Atmospheric Pollution Research*, 11(4), 766-775.
<https://doi.org/10.1016/j.apr.2020.01.005>
- Liu, C.-M., Young, C.-Y., and Lee, Y.-C. (2006). Influence of Asian dust storms on air quality in Taiwan, *Science of the Total Environment*, 368(2-3), 884-897.
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2006.03.039>
- Ma, Y., Zhao, H., and Liu, Q. (2022). Characteristics of PM_{2.5} and PM₁₀ pollution in the urban agglomeration of Central Liaoning, *Urban Climate*, 43, 101170.
<https://doi.org/10.1016/j.uclim.2022.101170>
- Ministry of the Interior and Safety (MIS). (2021). Cleansys. URL:
<http://apis.data.go.kr/B552584/cleansys>
- Myhre, G., Shindell, D., and Breon, F.-M. (2022). Anthropogenic and natural radiative forcing, in IPCC, *Climate Change 2013: The Physical Science Basis*, Working Group I Contribution to the IPCC Fifth Assessment Report,
<https://www.ipcc.ch/report/ar5/wg1/anthropogenic-and-natural-radiative-forcing/>, accessed on 1 April 2022.
- Nishita-Hara, C., Hirabayashi, M., Hara, K., Yamazaki, A., and Hayashi, M. (2019). Dithiothreitol-measured oxidative potential of size-segregated particulate matter in Fukuoka, Japan: Effects of Asian dust events, *GeoHealth*, 3(6), 160-173.
<https://doi.org/10.1029/2019GH000189>
- Oh, S.-W. (2007). Concentrations of Atmospheric Fine Particles Measured during 2005 in Chungnam, Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 23(1), 132-140.
<https://doi.org/10.1029/2019GH000189>
- Oh, Y.-J., Han, Y.-D., Kim, Y.-J., Jung, S.-H., Jung, W.-H., Im, J.-Y., Park, M.-G., and Son, B.-S. (2019). Heavy metals exposure and health risk assessment of PM₁₀ particles in indoor air in industrial area, *Journal of Odor and Indoor Environment*, 18(1), 18-27.
<https://doi.org/10.15250/joie.2019.18.1.18>
- Park, G.-H., Kwak, J., Jeong, J.-W., and Yoo, E.-C. (2014). The research on the estimation of source apportionment of PM_{2.5} in Busan, *The Annual Report of Busan Metropolitan city Institute of Health and Environment*, 24(1), 174-184.
- 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., and Bae, M.-S. (2022). Source assessment of PM-2.5 in the residential areas of Gwangyang Bay using source apportionment model (II), *Journal of Environment Analysis, Health and Toxicology*, 25(1), 18-32.
<https://doi.org/10.36278/jeaht.25.1.18>
- Park, H., Kim, M.-S., Park, J., Kim, M.-J., Kim, J.-Y., Shin, H., Choi, J.-W. (2017). Tracing the source of PM_{2.5} using chemical composition and stable isotope analysis,

- Journal of the Korean Society for Environmental Analysis, 20(4), 266-278.
- Park, J., Ryoo, J., Jee, J., and Song, M. (2020). Origins and distributions of atmospheric ammonia in Jeonju during 2019~2020, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 36(2), 262-274.
<https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.2.262>
- Park, S. (2019). Change in mass size distributions of ambient aerosol particles during Asian Dust storm event in late fall at an urban site of Gwangju, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 35(4), 502-515.
<https://doi.org/10.5572/KOSAE.2019.35.4.502>
- Park, S., and Shin, H. (2017). Analysis of the Factors Influencing PM_{2.5} in Korea: Focusing on Seasonal Factors, Journal of Environmental Policy and Administration, 25(1), 227-248.
<https://doi.org/10.15301/jepa.2017.25.1.227>
- Samek, L., Styszko, K., Stegowski, Z., Zimnoch, M., Skiba, A., Turek-Fijak, A., Gorczyca, Z., Furman, P., Kasper-Giebl, A., and Rozanski, K. (2021). Comparison of PM₁₀ sources at traffic and urban background sites based on elemental, chemical and isotopic composition: Case study from Krakow, Southern Poland, Atmosphere, 12(10), 1364.
<https://doi.org/10.3390/atmos12101364>
- Samek, L., Turek-Fijak, A., Skiba, A., Furman, P., Styszko, K., Furman, L., & Stegowski, Z. (2020). Complex characterization of fine fraction and source contribution to PM_{2.5} mass at an urban area in Central Europe, Atmosphere, 11(10), 1085.
<https://doi.org/10.3390/atmos12101364>
- Shim, K., Kim, M.-H., Lee, H.-J., Nishizawa, T., Shimizu, A., Kobayashi, H., Kim, C.-H., and Kim, S.-W. (2022). Exacerbation of PM_{2.5} concentration due to unpredictable weak Asian dust storm: A case study of an extraordinarily long-lasting spring haze episode in Seoul, Korea, Atmospheric Environment, 287, 119261.
<https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2022.119261>
- Son, S.-C., Park, S., Bae, M., and Kim, S. (2020). A study on characteristics of high Pm_{2.5} pollution observed around large-scale stationary sources in Chungcheongnam-do Province, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 36(5), 669-687.
<https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.5.669>
- Song, G.-J., Moon, Y.-H., Joo, J.-H., Lee, A.-Y., and Lee, J.-B. (2018). Distribution of Hazardous Heavy Metal in TSP, PM₁₀ and PM_{2.5} Emitted from Coal-fired Power Plants, Journal of the Korean Society for Environmental Analysis, 21(3), 172-180.
- Song, J.-M., Bu, J.-O., Yang, S.-H., Lee, J.-Y., Kim, W.-H., and Kang, C.-H. (2016). Influences of Asian Dust, Haze, and Mist Events on Chemical Compositions of Fine Particulate Matters at Gosan Site, Jeju Island in 2014, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 32(1), 67-81.
<https://doi.org/10.5572/KOSAE.2016.32.1.067>
- Sung, M.-Y., Park, J.-S., Kim, H.-J., Jeon, H.-E., Hong, Y.-D., and 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.

- United Nations Economic Commission for Europe (UNECE). (1995). Heavy metal emission-Long range transboundary air pollution.
- Won, S.-R., Choi, Y.-J., Kim, A., Choi, S.-H., and Ghim, Y.-S. (2010). Ion concentrations of particulate matter in Yongin in spring and fall, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 26(3), 265-275. <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2010.26.3.265>
- Wu, P.-C., and Huang, K.-F. (2021). Tracing local sources and long-range transport of PM10 in central Taiwan by using chemical characteristics and Pb isotope ratios, *Scientific Reports*, 11(1), 7593. <https://doi.org/10.1038/s41598-021-87051-y>
- Wu, R., Zhou, X., Wang, L., Wang, Z., Zhou, Y., Zhang, J., and Wang, W. (2017). PM2.5 characteristics in Qingdao and across coastal cities in China, *Atmosphere*, 8(4), 77. <https://doi.org/10.3390/atmos8040077>
- Xu, G., Jiao, L., Zhang, B., Zhao, S., Yuan, M., Gu, Y., ... & Tang, X. (2017). Spatial and temporal variability of the PM2.5/PM10 ratio in Wuhan, Central China, *Aerosol and Air Quality Research*, 17(3), 741-751. <https://doi.org/10.3389/fenvs.2021.692440>
- Yatkin, S., and Bayram, A. (2008). Source apportionment of PM10 and PM2.5 using positive matrix factorization and chemical mass balance in Izmir, Turkey, *Science of the Total Environment*, 390(1), 109-123. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2007.08.059>
- Yu, G.-H., Cho, S.-Y., Bae, M.-S., Lee, K.-H., and Park, S.-S. (2015). Investigation of PM 2.5 pollution episodes in Gwangju, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 31(3), 269-286. <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2015.31.3.269>
- Zhang, F., Wang, Z.-W., Cheng, H.-R., Lv, X.-P., Gong, W., Wang, X.-M., and Zhang, G. (2015). Seasonal variations and chemical characteristics of PM2.5 in Wuhan, central China, *Science of the Total Environment*, 518, 97-105. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2015.02.054>
- Zhao, S., Tian, H., Luo, L., Liu, H., Wu, B., Liu, S., Bai, X., Liu, W., Liu, X., Wu, Y., Lin, S., Guo, Z., Lv, Y., and Xue, Y. (2021). Temporal variation characteristics and source apportionment of metal elements in PM2.5 in urban Beijing during 2018-2019, *Environmental Pollution*, 268, 115856. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2020.115856>
- Zhou, X., Cao, Z., Ma, Y., Wang, L., Wu, R., and Wang, W. (2016). Concentrations, correlations and chemical species of PM2.5/PM10 based on published data in China: potential implications for the revised particulate standard, *Chemosphere*, 144, 518-526. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2015.09.003>