

# 이어도 종합해양과학기지 주변 해역의 대기질 평가 및 장거리 이동 오염원 추적 기술 개발



해양수산부  
국립해양조사원  
Korea Hydrographic and Oceanographic Agency  
Ministry of Oceans and Fisheries  
Republic of Korea

# 제 출 문

해양수산부 국립해양조사원장 귀하

귀 원에서 연구위탁한 「이어도 종합해양과학기지 주변 해역의 대기질  
평가 및 장거리 이동 오염원 추적 기술 개발」의 최종보고서를  
과업지시서에 따라 제출합니다.

2015. 12. 14.

인하대학교 해양과학과 홍성민

주 의 사 항

1. 본 보고서는 해양수산부 국립해양조사원의 수탁을 받아 인하대학교와 극지연구소에서 수행한 연구보고서입니다
2. 본 내용을 대외적으로 게재, 인용할 때에는 반드시 해양수산부 국립해양조사원의 사전 허락을 받기 바라며, 무단 복제를 금합니다.



**이어도 종합해양과학기지 주변 해역의  
대기질 평가 및 장거리 이동 오염원 추적 기술 개발**

---

발행일 . 2015년 12월 14일

발행처 . 해양수산부 국립해양조사원  
부산시 영도구 해양로 315번지(606-806)  
TEL.051-400-4351  
FAX.051-400-4191

---

---

## 참 여 진

### 참여연구진

---

연구책임자	인하대학교	홍 성 민
연 구 원	극지연구소	허 순 도
연 구 원	극지연구소	한 영 철
연구보조원	극지연구소	전 성 준
연구보조원	인하대학교	한 창 희
연구보조원	인하대학교	이 상 희
보 조 원	인하대학교	신 대 철

---



### 해양수산부

---

국립해양조사원	해양과학조사 연구실장	이 은 일
	예측연구담당 감 독 관	권 석 재 김 영 택

---

# 요 약 문

## I. 제목

이어도 종합해양과학기지 주변 해역의 대기질 평가 및 장거리 이동 오염원 추적 기술 개발

## II. 연구의 목적

이 연구는 이어도 종합해양과학기지를 활용한 제주도 남부 해역의 대기질 평가 및 장거리 이동 오염원 추적 기술을 개발하고, 장거리를 이동하는 대기 오염물질의 이동 경로 추적을 통해 제주도 남부 대기질의 장기 변동성 예측을 위한 모니터링 자료를 제공하며, 위협 요소를 평가 하는데 그 목적이 있다.

## III. 연구내용

### 가. 이어도 종합 해양과학기지 주변의 대기질 모니터링

- 이어도 종합해양과학기지서 우리나라의 여름철 및 가을철에 해당하는 기간(2015년 6월 18일 - 2015년 11월 15일) 동안 공극 크기가 2  $\mu\text{m}$ 인 필터를 이용하여 입자 크기  $\text{PM}_{10}$  이하에 해당하는 시료를 연속적으로 채집
- 이어도 지역의 대기질 평가 및 비교 분석을 위해 자체 제작한 소형 다이아프램 에어로졸 채취 키트를 이용하여 인천, 제주도, 태안 지역에서 연속적인 에어로졸 시료 채집 및 기타 한반도 각지의 참고 지역의 대기 시료 채집 수행
- 채집한 에어로졸 시료의 납 안정동위원소 조성과 미량금속 원소 농도 분석. 납 안정동위원소 비와 미량금속 원소 농도는 각각 열 이온화 질량분석기(Thermo Scientific TRITON, Thermal Ionization Mass Spectrometry, TIMS), 고분해능 유도결합 플라즈마 질량분석기(Thermo Finnigan MAT Element2, Inductively

Coupled Plasma-Sector Field Mass Spectrometer, ICP-SFMS)를 이용하여 분석

- 과거 우리나라 및 주변국의 대기질 모니터링 자료 수집 및 분석을 통하여 이어도  
기지 주변 대기질을 평가

#### 나. 납 안정동위원소 기법을 활용하여 장거리 이동으로 유입되는 대기 오염물질의 기원지 추적 기술 개발

- 이어도 기지 주변 에어로졸의 납 안정동위원소 특성 분석
- 우리나라 타 지역 에어로졸의 납 안정동위원소 특성 분석
- 국내외 선행연구 조사 및 기원별 납 안정동위원소 특성 비교
- 에어로졸 채취 기간 중의 대기 이동 특성과 납 안정동위원소 변화의 상관성 분석
- 특정 지역과 기원별 납 안정동위원소 특성을 이용한 조사 지역의 대기오염 물질  
기원지 추적
- 역방향 궤적 추적방법(HYSPLIT 모델)을 이용한 납 안정동위원소 특징성과 대기  
이동과의 연관성 분석

#### 다. 동북아시아 국가들의 이어도 주변 해역 대기질에 미치는 영향 평가

- 동북아시아 3개국(한국, 중국, 일본)의 납 안정동위원소 특성 비교
- 계절변화를 포함하여 대기이동과 납 안정동위원소 분포를 연관시켜 자료 분석

### IV. 사업결과

#### 가. 이어도 지역의 주요 미량금속원소 농도

이어도 지역에서 대기 중 PM<sub>10</sub>의 에어로졸 입자를 채취하여 주요 미량금속원소의 농도를 분석하였다. 또한, 기타 한반도 참고지역과 선행연구가 진행된 동북아 지역의 주요 미량금속원소 농도 분석 값을 비교하였다. 이를 통해 이어도 지역의 대기 질 평가를 수행하고 대기오염물질 유입 경로를 파악하였다.

이어도 및 기타 한반도 참고지역의 납(Pb) 농도는 선행연구 결과에 비하여 낮은

값을 얻었다. 납 농도는 지역에 따라 평균  $1.6\text{--}36\text{ ng m}^{-3}$  범위의 값을 보이며, 이는 기존에 연구된 동북아 지역의 납 농도 값 보다 적게는 평균  $7\text{ ng m}^{-3}$  에서 많게는 수백  $\text{ng m}^{-3}$  이상 낮은 값이 관측되었다. 이어도 지역의 구리(Cu) 농도는 굉장히 낮은 값(평균  $0.8\text{ ng m}^{-3}$ )을 나타내었다. 이 값은 도시지역에서 관측된 구리 농도 값에 비하여 50배 이상 낮은 값이다. 이어도 지역에서의 비소(As)와 안티모니(Sb)의 대기 중 농도 또한 주변국과 비교하였을 때 상당히 낮은 값(각각 평균  $0.7\text{ ng m}^{-3}$ , 평균  $0.57\text{ ng m}^{-3}$ )을 보였다. 비소와 안티모니는 인위적인 석탄 연소 등에 의해 배출되어지는 원소로 주로 중국지역에서 높은 값(많게는 각각 평균  $50\text{ ng m}^{-3}$ , 평균  $70\text{ ng m}^{-3}$ )을 보인다. 미량금속 원소 중 몰리브덴(Mo)과 탈륨(Tl)의 농도는 이어도에서 분석한 값이 중국과 일본에 비해 각각 수십 배, 수 배 이상 낮은 값을 보였다. 바륨(Ba)의 경우 이어도 지역에서 평균  $1.2\text{ ng m}^{-3}$  의 농도 값을 나타내었다. 결과적으로 이어도의 대기 중 에어로졸 분석된 주요 미량원소의 농도는 한반도 및 선행 연구된 동북아 지역의 분석 결과 보다 굉장히 낮은 값을 보였으며, 이를 통해 이어도는 우리나라에서 가장 청정한 지역 중의 하나라는 것을 알 수 있었다.



#### 나. 이어도의 납 안정동위원소 조성 비교를 통한 기원지 추적기술 개발

이어도 에어로졸 시료의 납 안정동위원소 조성 분석을 통해 우리나라 및 주변국 에어로졸에서 측정된 납 안정동위원소 조성과 비교하여 잠재적 오염원의 기원지 추적기술을 개발하였다. 이어도 지역에서 측정된 납 안정동위원소 비는  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 가  $1.145\text{--}1.173$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 가  $2.425\text{--}2.461$ 의 범위 값을 보였다. 중국 에어로졸 시료의 납 안정동위원소 비( $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ )는 석탄 및 시멘트의 납 안정동위원소 비  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  ( $1.145\text{--}1.168$ )와 유사한 범위를 보인다. 일본 에어로졸 시료의 경우  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 는  $1.145\text{--}1.161$  범위를 가지며 이는 이어도 지역에서 측정된 납 안정동위원소 비와 유사한 범위 값을 보였다. 그 결과 이어도의 에어로졸에서 분석한 납 안정동위원소의 조성비를 이용하여 중국과 일본을 비롯한 동북아시아 주변국들에서 유입되는 오염물질을 기원별로 구분하는 것이 쉽지 않았기 때문에 납 안정동위원소의 특성과 더불어 대기 이동 역학적 추적 모델을 병합하여 이어도에 영향을 주는 오염물질의 기원지를 추적하였다.

#### 다. 납 안정동위원소 조성과 역궤적 추적(HYSPLIT) 모델 결과 비교

에어로졸 시료의 납 안정동위원소 조성비만 비교하여 특정 시기에 영향을 준 기원지를 구분하기에 어려움이 있기 때문에 보다 정확한 장거리 이동 오염원을 추정하기 위해 대기 이동을 역궤적으로 추적할 수 있는 HYSPLIT 모델을 이용하였다. 대기 이동 역궤적 추적 자료와 납 안정동위원소 조성을 같이 비교해 본 결과 중국, 일본, 한국 및 남아시아의 오염원 기원지들 중에서 1개 지역 혹은 2개 이상의 지역에서 영향을 받았음을 구분할 수 있었다. 즉, 조사 기간 동안 시료채취 기간 별로 이어도의 대기질에 영향을 주었던 기원지는 중국 27회, 일본 26회, 한국 11회, 그리고 남아시아 6회로 밝혀졌다. 특히 권역별로 세분하면 중국의 북동부와 중동부가 22회로 가장 많았고, 다음이 일본 남서부 13회로 나타났다. 이어도 대기의 납 농도 증감 패턴과 비교하면 중국의 북동부와 중동부 및 우리나라에서 대기 유입이 우세할 때 납 농도가 증가하는 것으로 나타났다.

#### V. 결론 및 제언

이어도는 시기적으로는 여름철에(6, 7, 8월) 미량금속의 농도가 낮게 나타나다가 가을철에(10월) 최대 농도를 보이고 다시 감소하는 추세를 보였다. 기타 참고지역인 인천과 태안의 경우 10월에 전체적인 농도가 감소하는 것으로 볼 때 짧은 시간 동안에도 대기의 이동경로에 따라 지역적으로 미량금속의 농도 변화 패턴이 큰 차이를 보이는 것으로 나타났다. 또한, 이어도의 대기 중 미량금속 농도는 한국, 중국, 일본보다 수 배에서 최대 10,000배 정도 낮은 농도 수준으로 나타나는 것을 확인하였다. 하지만 중국으로부터의 오염물질 유입이 가장 많이 발생하는 봄철에는 그 농도가 많이 증가될 것으로 사료되며 이에 대한 추가적인 연구가 필요할 것으로 생각된다.

이어도 주변해역으로 유입되는 에어로졸은 대기의 유입형태에 따라 한국, 중국, 일본, 대만 등지에서 발원한 오염물질들을 포함하고 있다. 이어도 주변의 장거리 이동 오염원 추적을 위해 납 안정동위원소 조성( $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ )을 이용하여 중국과 일본을 포함하는 주변국들의 에어로졸 분석 결과와의 비교, 그리고 대기 모델의 하나인 HYSPLIT를 이용한 대기 이동 역궤적 추적 분석 방법은 이어도 주변해역의 장거리 이동 오염원 추적에 매우 효과적인 것으로 나타났다. 실례로, 여름



철에 채취된 에어로졸 시료들의 경우 납 안정동위원소 조성이 비슷하게 나타나지만 납 농도가 낮은 시료의 경우 대만과 일본 남서 지역(Southern Western Japan)에서 유입되는 것으로 나타났으며, 납 농도가 높은 경우 주로 중국의 중동부(Central Eastern China)에서 유입되는 것으로 확인되었다. 이처럼 납 안정동위원소 조성과의 역학적 추적 분석 방법을 결합하면 장거리 이동 오염원 추적을 효과적으로 수행할 수 있다.

본 연구 결과 여름과 가을철에 이어도의 납 농도 증가에 영향을 주는 기원지는 중국의 북부 및 중동부 지역 > 한반도 > 일본 > 동남아시아 순으로 나타났다. 또한, 연구지역중 상대적으로 가까운 지역에 위치해있는 이어도와 제주도의 경우에도 같은 기간 동안 서로 다른 역학적 추적 분석 패턴이 나타나며, 이는 대기 이동의 경로에 따라 지역별로 큰 차이가 발생한다는 것을 의미한다.

추후 납 안정동위원소와 역학적 추적 분석을 결합한 방법을 이용하여 연 주기(특히 겨울과 봄철) 동안의 연구를 진행한다면 이어도 주변 해역의 보다 명확한 대기질 평가 및 장거리 이동 오염원 추적이 가능할 것으로 사료된다.

마지막으로 이어도의 대기질은 우리나라의 어느 지역보다 청정하며, 참고지역인 제주, 인천, 태안 등의 지역보다 훨씬 다양한 기원지로부터 대기 오염물질이 유입되고 있다는 점을 감안하면, 이어도 해양과학기지는 동북아시아의 대기질을 진단하고 오염물질의 운반 경로를 추적하여 주변국의 상대적 영향을 평가하기 위한 연구에 최적합지라고 판단된다.

# <목차>

I. 서 론 .....	12
II 시료채취 및 분석 .....	16
가. 시료 채취 .....	16
가-1. 이어도 종합해양과학기지 .....	16
가-2. 인천, 태안, 제주도 : 연속적 시료 채취 .....	17
가-3. 기타 한반도 참고 지역 .....	20
나. 필터 세척 .....	20
나-1. 이어도용 필터 세척 .....	20
나-2. 이어도용 필터홀더 세척 .....	21
나-3. 참고지역용 필터 세척 .....	22
나-4. 참고지역용 필터홀더 세척 .....	22
다. 분석 .....	23
다-1. 에어로졸 시료 추출 및 부분 표본 .....	23
다-2. 열 이온화 질량분석기(TIMMS) 분석 .....	24
다-3. 고분해능 유도결합 플라즈마 질량분석기(ICP-SFMS) 분석 .....	27
III. 연구 결과 .....	29
가. 이어도 .....	29
가-1. 이어도의 납 안정동위원소 비와 납 농도 .....	29
가-2. 이어도의 미량금속 원소 농도 .....	29
나. 연속적 시료 채취 지점 .....	32
나-1. 연속적 시료 채취 지점의 납 안정동위원소 비와 납 농도 .....	32
나-2. 연속적 시료 채취 지점의 미량금속 원소 농도 .....	32
다. 기타 한반도 지역 .....	37

다-1. 기타 한반도 참고 지역의 납 안정동위원소 비와 납 농도 .....	37
다-2. 기타 한반도 참고 지역의 미량금속 원소 농도 .....	37
<b>IV. 토의 .....</b>	<b>42</b>
가. 이어도의 주요 미량금속 원소 농도 변화 .....	42
가-1. 이어도의 시간에 따른 주요 미량금속 원소 농도 변화 .....	42
가-2. 시간에 따른 연속 시료 채취 지점 및 참고 지역의 미량금속 농도 변화 .....	44
가-3. 이어도와 한반도 및 주변 국가들의 주요 미량원소 농도 비교 .....	49
나. 이어도의 납 안정동위원소 조성 및 납의 농도 .....	56
나-1. 이어도의 시간에 따른 납 안정동위원소 조성 및 납의 농도 변화 .....	56
나-2. 시간에 따른 연속 시료 채취 지점과 한반도 참고 지역의 납 안정동위원소 조성 .....	56
나-3. $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 와 $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 를 이용한 이어도 지역의 장거리 이동 오염원 추적 .....	61
다. 납 안정동위원소 조성 및 역궤적 추적 분석을 결합한 오염원 추적 기술 .....	68
다-1. 역궤적 추적 분석 .....	68
다-2. 납 안정동위원소와 역궤적 추적 모델을 결합한 오염원 추적 기술 .....	68
다-3. 이어도 주변 해역의 잠재적 오염원 .....	72
<b>V. 결론 및 제언 .....</b>	<b>75</b>
<b>참고문헌 .....</b>	<b>77</b>
<b>Appendix I. 에어로졸 시료 채취 지점 .....</b>	<b>80</b>
<b>Appendix II. 역궤적 추적 결과 .....</b>	<b>81</b>

## 〈표 목차〉

표 1. 시약종류 및 세부사항 .....	25
표 2. Si-gel Activator 제조 .....	28
표 3. 납 안정동위원소 분석 Blank .....	28
표 4. ICP를 이용한 미량금속원소의 Blank비교 .....	28
표 5. 이어도의 납 안정동위원소 비 및 납 농도 .....	30
표 6. 이어도의 미량금속 원소 농도 .....	31
표 7. 연속 시료 채취 지점의 납 안정동위원소 비 및 납 농도 .....	34
표 8. 인천 지역의 미량금속 원소 농도 .....	35
표 9. 제주도 지역의 미량금속 원소 농도 .....	35
표 10. 태안 지역의 미량금속 원소 농도 .....	36
표 11. 기타 한반도 지역의 시료 정보와 납 안정동위원소 비 및 납 농도 .....	39
표 12. 기타 한반도 지역의 미량금속 원소 농도 .....	40
표 13. 국내외 참고 지역과 본 연구지역의 에어로졸 시료 중 주요 미량금속 원소 농도 .....	41
표 14. 이어도의 미량금속 원소 농도간의 상관관계( $R^2$ ) .....	48
표 15. 제주도 미량금속 원소 농도간의 상관관계( $R^2$ ) .....	47
표 16. 인천의 미량금속원소 농도간의 상관관계( $R^2$ ) .....	47
표 17. 태안의 미량금속원소 농도간의 상관관계( $R^2$ ) .....	47
표 18. 참고지역 중 산업 지역의 미량금속원소 농도간의 상관관계( $R^2$ ) .....	48
표 19. 참고지역 중 도시 지역의 미량금속원소 농도간의 상관관계( $R^2$ ) .....	48
표 20. 참고지역 중 비도시 지역의 미량금속원소 농도간의 상관관계( $R^2$ ) .....	48
표 21. 이어도의 시료 번호 별 역계적 추적을 결합한 오염원 분석 결과 .....	73
표 22. 제주도의 시료 번호 별 역계적 추적을 결합한 오염원 분석 결과 .....	73

## 〈그림 목차〉

그림 1. 이어도 종합해양과학기지에 설치된 Sequential Sampler SEQ47/50 .....	61
그림 2. SEQ47/50의 실제 설치 모습 .....	7
그림 3. 장비의 유실에 대비한 SEQ47/50의 설치 모습 .....	7
그림 4. 인천 및 제주도 지역의 연속적인 시료채취에 사용되는 키트와 Merck사 orifice .....	18
그림 5. Merck사 orifice와 연결된 세척된 필터 .....	8
그림 6. 인하대학교(좌)와 제주대학교(우)에 설치된 시료 채취 키트의 설치 모습 .....	19
그림 7. MA-600 air pump .....	9
그림 8. 태안에 설치된 에어로졸 MA-600 시료채집 키트 .....	10
그림 9. 에어로졸 분석에 사용되는 TISCH사 필터 .....	21
그림 10. 세척이 완료된 이어도용 필터 .....	21
그림 11. 참고지역 시료 채집에 사용되는 Merck사 필터 .....	22
그림 12. 참고지역 시료 채집에 사용되는 Merck사의 필터 및 필터홀더 .....	23
그림 13. Teflon Bomb과 각종 시약을 이용한 추출 실험과정 .....	24
그림 14. 열 이온화 질량분석기(TIMMS) .....	24
그림 15. 고분해능 유도결합 플라즈마 질량분석기(ICP-SFMS) .....	27
그림 16. 시간에 따른 이어도 지역의 Pb, Cu, Zn, Cd, As의 농도 변화 .....	24
그림 17. 시간에 따른 이어도 지역의 Fe, Sb, Ba, Mo, Tl의 농도 변화 .....	34
그림 18. 시간에 따른 이어도 지역과 연속 시료 채취지점의 대기 중 Pb, Cu, Zn, Cd, As의 농도 변화 .....	45
그림 19. 시간에 따른 이어도 지역과 연속 시료 채취지점의 대기 중 Fe, Sb, Ba, Mo, Tl의 농도 변화 .....	46
그림 20. 본 연구 지역과 국내외 참고 지역의 대기 중 Pb, Cu농도 비교 .....	50
그림 21. 본 연구 지역과 국내외 참고 지역의 대기 중 Zn, Cd농도 비교 .....	51
그림 22. 본 연구 지역과 국내외 참고 지역의 대기 중 As, Sb농도 비교 .....	53
그림 23. 본 연구지역과 국내외 참고 지역의 대기 중 Mo, Tl농도 비교 .....	54

그림 24. 본 연구지역과 국내외 참고 지역의 대기 중 Ba, Fe 농도 비교 .....	5
그림 25. 시간에 따른 이어도 지역의 납 안정동위원소 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비와 납 농도 변화 .....	6
그림 26. 시간에 따른 인천 지역의 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 및 납 농도 변화 .....	7
그림 27. 시간에 따른 제주도 지역의 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 및 납 농도 변화 .....	7
그림 28. 시간에 따른 태안 지역의 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 및 납 농도 변화 .....	7
그림 29. 시간에 따른 이어도와 제주도 지역의 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 및 납 농도 변화 .....	8
그림 30. 시간에 따른 인천과 태안 지역의 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 및 납 농도 변화 .....	8
그림 31. 시간에 따른 이어도와 연속 시료 채취 지점의 납 안정동위원소 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비의 변화 .....	59
그림 32. 시간에 따른 이어도와 연속 시료 채취 지점 및 기타 참고지역의 납 안정동위원소 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비 변화 .....	6
그림 33. 시간에 따른 이어도와 연속 시료 채취 지점의 납 안정동위원소 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비 변화 .....	61
그림 34. 우리나라 및 인근 국가에서 측정된 에어로졸 시료와 잠재적 오염원의 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비 .....	8
그림 35. 우리나라 및 인접 국가의 대기 시료와 참고물질에서 나타난 납 안정동위원소 비 .....	64
그림 36. 우리나라와 중국의 인위적 오염원의 납 안정동위원소 비 .....	6
그림 37. 잠재적 오염원과 이어도 및 제주도의 납 안정동위원소 비 .....	6
그림 38. 잠재적 오염원과 인천 및 태안의 납 안정동위원소 비 .....	7
그림 39. 이어도의 납 안정동위원소 비와 특징적 역궤적 추적 결과 .....	8
그림 40. 이어도에서 낮은 납 농도가 나타난 시기의 납 안정동위원소 조성 및 역궤적 추적 결과 .....	70
그림 41. 이어도에서 낮은 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비가 나타난 시기의 납 안정동위원소 조성 및 역궤적 추적 결과 .....	70
그림 42. 이어도에서 높은 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비와 낮은 납 농도가 나타난 시기의 납 안정동위원소 조성 및 역궤적 추적 결과 .....	71
그림 43. 이어도에서 높은 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비와 높은 납 농도가 나타난 시기의 납 안정동위원소 조성 및 역궤적 추적 결과 .....	71
그림 44. 이어도에서 특징적인 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 조성이 나타난 시기의 납 안정동위원소 조성 및 역궤적 추적 결과 .....	72

그림 45. 역계적 추적 방법을 이용하여 정리한 이어도(위 그림)와 제주도(아래 그림)의  
시기별 기류의 기원 ..... 74



## I. 서 론

지표환경에서 순환되는 미량원소의 자연적 기원은 지각먼지(rock and soil dust), 해염(sea-salt spray), 화산활동, 야생 산림화재, 대륙 및 해양생물활동 등을 들 수 있다(Nriagu, 1989). 이러한 미량원소의 자연적 생지화학적 순환은 산업혁명 이후 인간활동에 의해 발생하는 대기오염에 의해 크게 교란되어 왔으며, 20세기 들어서는 다양한 지표환경에서 과잉 축적되는 납(Pb), 카드뮴(Cd), 수은(Hg), 비소(As) 등의 독성으로 생태계뿐만 아니라 인간의 건강을 위협하는 수준으로 악화되었다(Järup, 2003). 예를 들면, 20세기 말에 인간활동에 의해 매년 대기 중 배출된 미량원소의 양은 납과 카드뮴의 경우 각각 119천 톤과 3천 톤에 달하며, 자연적으로 배출되는 양과 비교하면 납은 10배, 카드뮴은 2.3배 많은 양이다(Pacyna and Pacyna, 2001). 이러한 인위적 미량원소의 주 배출원은 화석연료 연소(fossil fuel combustion), 비철금속 생산, 철 생산, 자동차 배출가스, 시멘트 생산, 폐기물 소각 등이 있다(Pacyna and Pacyna, 2001).

지표환경으로 배출된 인위적 기원(anthropogenic origin)의 미량원소는 특히 대기를 통한 장거리 운반 과정을 통해 넓은 지역으로 확산되어 환경적·생태적 위험요소로서 작용하기 때문에 대기 중 배출되는 미량원소의 운반 과정과 거동에 대한 국제적 관심이 증대되고 있다(e.g., Rasmussen, 1998; Bard, 1999; Rosen and Liu, 2008). 유럽을 포함한 선진국에서는 대기를 통한 오염물질 장거리 이동의 심각성을 인식하고 1998년 발효된 ‘중금속에 관한 UN ECE 프로토콜’에 의거한 UN ECE European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP)에 인위적으로 배출되는 미량금속들의 배출 통계(emission inventories)를 제출하면서 미량원소의 대기 배출량을 감소시키는 노력을 기울이고 있다(UN ECE, 1998). 반면에, 20세기 후반 급격한 경제성장과 더불어 산업 활동이 확대되고 있는 아시아 지역은 지난 20여 년간 인위적인 미량원소의 대기 배출량이 꾸준히 증가하는 추세에 있으며, 오늘날 아시아의 미량원소의 인위적 배출량은 전 세계 배출량에서 가장 많은 부분을 차지하고 있다(Fang et al., 2005). 예를 들면, 전 세계 배출량에서 아시아가 차지하는 비율은 납 43%, 카드뮴 49%, 수은 50%, 비소 48%에 달하며, 아시아 국가들 중에는 중국이 최대 배출 국가로서 세계적으로도 대부분의 미량원소에 대해 최대의 배출국가



로서 지목되고 있다(Pacyna and Pacyna, 2001).

최근 연구결과에 따르면 오염물질의 최대 배출국가로 중국이 대두되면서 중국에서 기원한 인위적 미량원소들은 동북아시아의 대기질은 물론 장거리 이동에 의해 미국과 심지어 북극까지 그 영향이 미치는 것으로 밝혀지고 있다(Var et al., 2000; Kim et al., 2003; Ewing et al., 2010; Lee et al., 2015). 이처럼 대기 오염물질들은 국지적 규모뿐만 아니라 지역적 규모와 전 지구적 규모에 이르기까지 방대한 지역에 영향을 주기 때문에 현재의 대기질(air quality) 평가와 육상 및 해양환경에 미치는 영향을 평가하고 향후의 추세를 예측하기 위해서는 무엇보다 대기 오염물질의 기원과 운반 경로를 추적하는 것이 필요하다. 현재까지 대기 오염물질 중 미량원소의 기원과 운반 경로를 추적하는데 널리 활용되는 방법은 동위원소 추적기법으로서, 특히 납 안정동위원소(Pb stable isotopes)는 환경과학 분야에서 가장 많이 활용되고 있다(Komárek et al., 2008).

자연환경에서 존재하는 납은 네 개의 안정동위원소( $^{204}\text{Pb}$ ,  $^{206}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}$ )를 가지고 있으며 각각의 동위원소는 지표면에서 평균적으로 1.4%, 24.1%, 22.1% 그리고 52.4%를 차지하고 있다(Doe, 1970). 이들 동위원소들 중에서  $^{204}\text{Pb}$ 만이 본래 안정동위원소로 존재하고 있는 동위원소이며 나머지 세 개( $^{206}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}$ )는 아래와 같이 각각  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ , 그리고  $^{232}\text{Th}$ 이 복잡한 붕괴사슬을 거쳐 방사선 붕괴에 의해 생성되는 방사능 기원의 안정동위원소(radiogenic stable isotopes)들이다.

모원소 (parent isotope)	납 안정동위원소 (Pb isotope)	반감기(Decay half-time of the parent isotope, years)
-	$^{204}\text{Pb}$	-
$^{238}\text{U}$	$^{206}\text{Pb}$	$4.466 \times 10^9$
$^{235}\text{U}$	$^{207}\text{Pb}$	$0.704 \times 10^9$
$^{232}\text{Th}$	$^{208}\text{Pb}$	$1.401 \times 10^{10}$

납 광물(lead mineral)이나 광체(lead ore bodies)에서 각 동위원소의 함량은 광물과 광체가 형성된 시기와 모원소인 U과 Th의 비에 의해 동위원소 비(isotopic ratio)의 특성이 결정된다. 예를 들면, 오늘날 지각물질의 납 동위원소 비의 분포는 연대가 오래된 납 광석의 경우  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  비가 일반적으로 낮은 값(1.03-1.10)을

보이고, 연대가 젊은 납 광석의  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  비는 상대적으로 높은 값(>1.18)을 갖는다. 이러한 납 동위원소의 특성을 이용하여 Patterson (1956)이 철 운석(iron meteorite)에서 납 동위원소를 분석을 통해 지구의 나이를 측정한 선도적 연구 결과를 발표한 이후 지질과학 분야에서 지질 시료의 연대측정과 생성 기원을 추적하는 연구에 동위원소가 활용되고 있다(e.g. Hofmann, 1997; Allègre et al., 2008). 한편, 납의 동위원소는 고온의 납 제련과 가공 과정을 거처도 동위원소의 분화작용(fractionation)이 발생하지 않기 때문에 본래의 동위원소 비를 유지한다. 따라서 환경과학 분야에서는 국지적 규모부터 전 지구적 규모에 이르기까지 지표환경과 대기환경에서 순환하는 납 오염원의 기원과 운반 경로를 추적하는 추적자로서도 널리 활용되고 있다(e.g., Rosman et al., 1997; shotyk et al., 1998; Bollhöfer and Rosman, 2000, 2001; Lee et al., 2011). 지질과학과 환경과학 분야에서 납 동위원소의 비는  $^{208,207,206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ ,  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  등으로 나타내며, 네 개의 동위원소 중 함량이 상대적으로 많아서 분석의 정확도가 높은  $^{206}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}$ 를 가지고  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 로 가장 많이 표시한다.  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 과  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 의 비가 높아지면 'more radiogenic' 하다고 말하고, 이들 비가 감소하면 'less radiogenic'이라고 표현한다.

1990년대 이후 동북아시아 3개국(한국, 중국, 일본)의 여러 지역에서 납 안정동위원소의 특성을 이용하여 대기 중 납 오염물질의 기원과 장거리 이동 경로를 추적하고자 하는 연구가 진행되어 왔다. 중국의 경우는 주로 2000년대 들어서 대도시 위주로 납 오염물질의 최대 배출원이었던 유연휘발유(lead gasoline)의 사용 금지 이후 납에 의한 대기오염 정도와 다양한 오염원을 규명하고자 하는 연구결과들이 발표되었다(e.g., Mukai et al., 2001; Zheng et al., 2004; Chen et al., 2005; Widory et al., 2010). 이들 연구결과들은 무연휘발유가 도입된 이후 화석연료 연소가 대기 중 납을 방출하는 가장 중요한 오염원으로 지목하고 있으며, 이밖에 지역별로 납광석 제련, 시멘트 생산, 금속 생산 등 다양한 오염원이 있다는 것을 제시하고 있다. 일본에서는 납 안정동위원소 기법을 이용한 납 오염원 추적 연구를 1990년대부터 시작하였다. 이러한 연구를 통해 자국의 납 오염원을 규명하거나(Mukai et al., 1993), 주변국에서 장거리 이동되는 납 오염물질의 경로를 추적하였다(Mukai et al., 1994; Takeda et al., 2000; Bellis et al., 2005). 한편, 우리나라에서는 중국과 일

본에 비해 납 동위원소를 이용한 납 오염원과 운반 경로를 추적한 연구가 많지 않은 실정이다. 최근 들어 납 안정동위원소를 이용하여 일부 산업지역의 납 오염원을 추적하거나(조완근 등, 2011), 제주도에서 며칠 동안 채취한 에어로졸 시료의 동위원소 특성을 가지고 국지적 납 오염원과 장거리 이동한 납 오염물질을 구분하려는 시도가 있었다(Oh et al., 2004). 또한 대전에서 약 1년간 채취한 에어로졸 시료에서 납 동위원소를 분석하여 이 지역의 대기 중 납 오염물질이 주로 중국의 산업지역에서 장거리 이동에 의해 유입되고 있을 가능성을 제시한 연구가 수행되었다(Lee et al., 2013).

세계 최대 오염물질 배출국가인 중국에 인접한 우리나라는 편서풍에 의해 중국의 많은 오염물질이 유입될 가능성이 매우 높기 때문에 우리나라의 기원과 중국 기원의 오염물질을 구분할 수 있는 연구가 수행될 필요가 있다. 그러한 연구를 수행하기 위해서는 오염물질 배출이 상대적으로 많은 거주지역과 산업지역뿐만 아니라 동북아시아의 배경연구가 가능한 청정지역에서도 연구가 진행되어야 한다. 우리나라에서 배경 연구가 가능한 지역 중 가장 적합한 지역은 한국과 중국, 그리고 일본의 오염원에서 멀리 떨어져 있고 계절풍의 영향을 많이 받는 이어도 종합해양과학기지이다. 이어도 기지에서 에어로졸의 납 동위원소를 분석한다면 동북아시아 3개국뿐만 아니라 아시아 남쪽에서 유입되는 과정과 경로를 추적할 수 있다. 또한 연속적인 납 동위원소의 특성 분석과 더불어 HYSPLIT을 이용한 역궤적 추적 결과를 결합한다면 보다 명확한 오염물질 이동 경로 추적이 가능하다.

본 연구에서는 이어도 종합해양과학기지에서 에어로졸 시료를 연속적으로 채취하고 납 동위원소를 분석하여 제주도 남부 해역의 대기질 평가 및 장거리 이동 오염원 추적 기술을 개발하고, 장거리 이동하는 대기 오염물질의 이동 경로 추적을 통해 제주도 남부 대기질의 장기 변동성 예측을 위한 모니터링 자료 제공 및 위협 요소를 평가하고자 한다. 이를 위해 우리나라 타 지역에서도 에어로졸 시료를 채취하고 분석하여 우리나라의 납 동위원소 특성을 파악함으로써 이어도 납 동위원소 분석 결과를 종합적으로 해석하는데 활용하고자 한다.

## II 시료채취 및 분석

### 가. 시료 채취

#### 가-1. 이어도 종합해양과학기지

이어도 종합해양과학기지의 에어로졸 시료채취는 독일 SVEN LECKEL사의 Sequential Sampler SEQ47/50를 이용하였다. 본 장비는 모든 온도와 환경조건의 외부에서 사용 될 수 있도록 고안된 에어로졸 채집 장비이며 직경 47 mm와 50 mm인 필터17개를 장착할 수 있고, 시간당 2.3 m<sup>3</sup>의 Flow rate으로 대기 에어로졸 시료를 채취할 수 있다. 필터 당 시료 채취 기간은 1시간부터 최대 168시간까지 설정할 수 있다. 본 연구에서는 공극 크기가 2 µm인 직경 47 mm 필터를 장착하여 이용하였고, 이어도 종합해양과학기지의 상황을 고려하여 필터 당 96시간 ~ 120시간의 시료 채취 기간을 설정하였다.



그림 1. 이어도 종합해양과학기지에 설치된 Sequential Sampler SEQ47/50



8층 헬리덱 아래 태양열 전지 패널 아래에 설치



그림 2. SEQ47/50의 실제 설치 모습



4개의 와이어로 장비 고정



그림 3. 장비의 유실에 대비한 SEQ47/50의 설치 모습

가-2. 인천, 태안, 제주도 : 연속적 시료 채취

인천과 제주도의 대기 에어로졸 시료 채취는 공기의 흡입과 배출부가 구분되어 있는 소형 다이아프램펌프를 이용하여 공기의 흡입부에 필터를 장착하였다. 필터를

통과하는 공기의 양을 조절하기 위해 Merck사의 orifice를 이용하여 분당 2 L의 공기가 통과하도록 설계하여 이용하였다.



그림 4. 인천 및 제주도 지역의 연속적인 시료채취에 사용되는 키트와 Merck사 orifice



그림 5. Merck사 orifice와 연결된 세척된 필터

인천의 대기 에어로졸 시료는 인하대학교 5호관 옥상에서 채취하였고, 제주도의 대기 에어로졸 시료는 제주대학교 해양과학대학 4호관 옥상에서 채취하였다. 필터부분은 우천시에 필터에 직접적으로 물이 들어가는 것을 방지하기 위하여 플라스틱 샘플병을 이용하여 보호되도록 설계하였다.



그림 6. 인하대학교(좌)와 제주대학교(우)에 설치된 시료 채취 키트의 설치 모습

태안의 대기 에어로졸 시료는 태안군 남면 몽산리에 위치한 인하대학교 해양과학기술연구소 학생실습관에서 채취하였다. 태안지역에 설치된 에어로졸 시료 채취를 위한 키트 제작에는 미국 MillonAir 사의 MA-600 air pump를 이용하였다. 공기 배출구를 공기 흡입구로 바꾸어 이용하였으며 분당 2.6 L의 공기를 흡입할 수 있다. 제작된 에어로졸 시료 채취 용 키트의 모습은 그림 7과 같다.



그림 7. MA-600 air pump



그림 8. 태안에 설치된 에어로졸 MA-600 시료채집 키트

### 가-3. 기타 한반도 참고 지역

참고지역의 시료 채집은 연속 시료 채취 지점을 제외한 국내 18곳에서 이루어졌다 (Appendix 그림 참조). 채집 장비는 태안지역에 설치한 장비와 동일한 소형 다이어프램펌프를 orifice와 연결하여 분당 2.6 L로 공기를 흡입 및 채집하는 자체 제작 키트를 이용하였다. 참고지역은 도시지역으로서 서울(신림동과 이화여대), 경기도 부천과 수원, 경상남도 부산, 강원도 강릉, 충청남도 대전 등 6곳을 포함하고, 산업단지로서 경상북도 구미와 포항, 경상남도 울산, 전라남도 여수 등 4곳을 포함한다. 그리고 비 도시지역으로서 충청남도 태안, 충청북도 광혜원, 강원도 단양, 경상북도 울진과 영주, 전라남도 진도 등 6곳에서 시료를 채취하였다. 마지막으로 원격지로서 경기도 연평도와 경상북도 울릉도 두 곳을 포함하며, 각각의 참고지역에서 1일 ~ 수 일 동안 다수의 에어로졸 시료를 채취하였다.

## 나. 필터 세척

### 나-1. 이어도용 필터 세척

이에도 에어로졸 분석을 위하여  $2.5 \mu\text{m}$  이하의 에어로졸 시료를 채집하는 용도로 사용되는 TISCH사의 PM 2.5 Membrane 필터(공극 크기  $2 \mu\text{m}$ )를 사용하였다. 필



터의 소재는 테플론이며, 지름은 약 46.2 mm 이고, 필터 부분의 가장자리를 따라 고리가 감싸져 있는 형태이다.

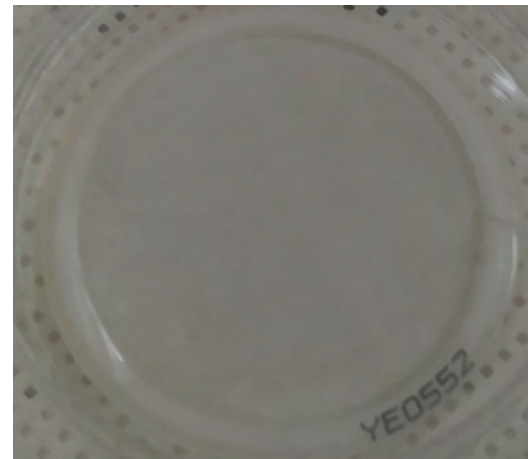
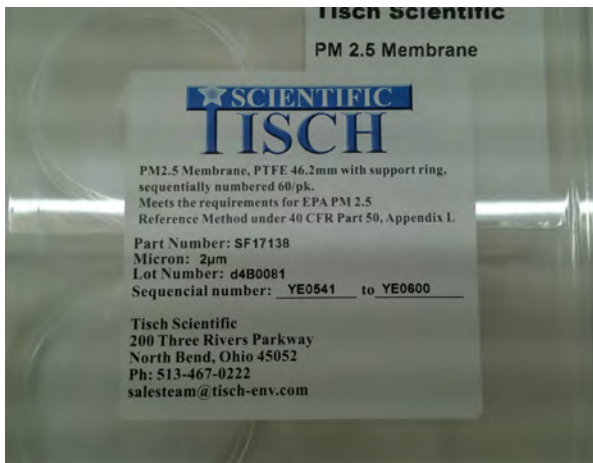


그림 9. 에어로졸 분석에 사용되는 TISCH사 필터    그림 10. 세척이 완료된 이어도용 필터

정확한 시료 채집을 위하여 테플론 재질로 이루어진 비커 안에 reagent 등급 에탄올 70%와 suprapure 등급 염산 30%를 필터와 함께 채운 후, 2시간동안 초음파를 가해주는 필터 세척 과정을 거친다. 초음파 세척기 단계가 끝나면 3차 증류수로 필터를 세척한 후, 3차 증류수와 1몰의 ultrapure 등급 질산과 함께 비커에 담아 전열기 위에 올려 48시간 동안 60℃의 온도에서 가열한다. 48시간이 지난 후 3차 증류수로 한 번 더 세척하는 과정을 거친 뒤, 3차 증류수와 1몰의 ultrapure 등급 질산과 함께 필터를 비커에 담아 24시간 동안 전열기 위에서 가열 및 세척한다. 이 단계가 완료된 다음 class 10(1입방피트 당 입자가 10개 이하)의 청정벤치 안에서 건조 시킨 후 시료 채집에 사용한다.

## 나-2. 이어도용 필터홀더 세척

이어도용 필터 홀더는 reagent 등급 에탄올 50%와 함께 플라스틱 박스에 담아 초음파 세척기에 2시간 동안 세척한다. 초음파 세척이 완료되면 AR 등급의 질산 20%를 홀더와 함께 플라스틱 박스에 담아 하루 동안 세척 한 뒤, suprapure 등급의 질산 20%를 가하여 3일간 세척 한다. 세척이 완료되면 벤치 안에 건조시킨 후 사용하고, 필터 홀더와 필터의 사이에 위치하는 오링과 금속 재질의 받침대는 reagent 등급 에탄올을 넣어 세척한 후 사용한다.

### 나-3. 참고지역용 필터 세척

인하대, 제주, 태안 등 참고지역에 사용되는 에어로졸 필터는 테플론 재질의 Merck사 Membrane 필터를 사용하였다. 공극 크기는  $0.45 \mu\text{m}$  이며, 필터 직경은 37mm 이다.

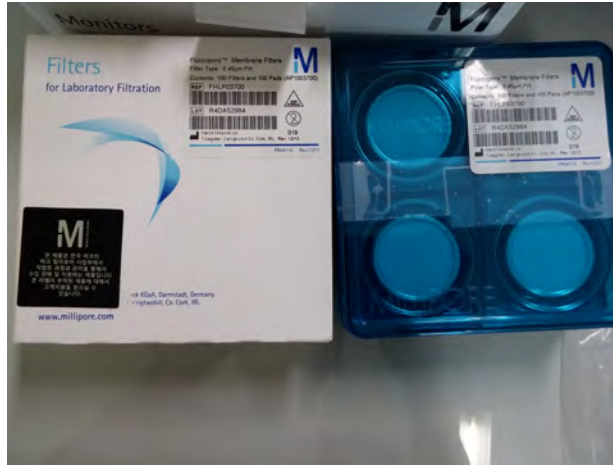


그림 11. 참고지역 시료 채집에 사용되는 Merck사 필터

참고지역용 필터 세척은 테플론 비커에 AR 등급 에탄올 70%와 suprapure 등급염산 30%를 첨가하고 2시간동안 초음파 세척하는 단계를 거친다. 초음파 세척 단계가 끝나면 3차 증류수로 필터를 세척한 후 비커 속에 ultrapure 등급 1몰 질산과 필터를 넣어 전열기 위에서 섭씨  $60^{\circ}\text{C}$ 로 48시간동안 가열한다. 48시간이 지난 후 비커 속 질산을 새로운 ultrapure 등급 질산으로 교체하여 필터와 함께 다시 24시간동안 가열하며, 이 과정이 끝나면 3차 증류수로 필터를 세척한 후 벤치 안에서 건조하여 사용한다.

### 나-4. 참고지역용 필터홀더 세척

참고지역에 사용되는 필터홀더는 Merck사의 제품을 사용하였으며 세척방법은 다음과 같다. reagent 등급 에탄올 50%와 함께 플라스틱 박스에 담아 초음파 세척기에 2시간 동안 세척한 후, AR 등급의 질산 20%를 홀더와 함께 플라스틱 박스에 담아 하루 동안 산세척 한다. 하루가 지난 후 suprapure 등급의 질산 20%를 박스에 담아 다시 3일간 세척하고, 이 단계가 완료되면 벤치 안에서 건조시킨 후 사용한다. 필터홀더의 양쪽을 닫아주는 덮개는 테플론으로 구성된 비커에 AR 등급 에탄올을 소량 넣어 세척한 뒤 시료 채집에 사용하였다.



그림 12. 참고지역 시료 채집에 사용되는 Merck사의 필터 및 필터홀더

## 다. 분석

### 다-1. 에어로졸 시료 추출 및 부분 표본

에어로졸 시료 추출은 이어도와 참고지역 시료 모두 다음의 방법을 사용하였다. 우선 시료 추출 전 Teflon Bomb을 최소 2 ~ 3일, 최대 1주일 이상 정제된 질산(AR 등급 질산을 Savilex사의 정제시스템을 통해 만들어진 질산)을 채워 전열기의 온도를 섭씨 80℃로 맞춘 후 그 위에 올려 세척한다. 실험 하루 전에는 Teflon Bomb에 있는 질산을 3차 증류수로 바꾸어 하루 동안 전열기에서 가열 및 세척 과정을 거친다. 그 후 Bomb 안의 3차 증류수를 모두 제거한 뒤, ultrapure 등급 질산 4.5 ml와 ultrapure 등급 불산 0.5 ml를 채워 그 위에 필터를 채집된 시료가 용액과 맞게 하여 넣는다.

Teflon Bomb을 90℃로 맞춘 전열기에 올려 48시간 동안 가열한다. 48시간이 지나면 Bomb안에 있는 필터를 꺼내고 뚜껑을 열어 증발시키고, 내용물이 모두 증발하여 100  $\mu$ l 정도 크기의 작은 방울이 형성되면, 산세척 된 15 ml LDPE (저밀도폴리에틸렌)병에 담아 1% 질산 10 ml를 채워 보관 및 사용한다. 열 이온화 질량분석기(TIMS)로 분석하는 경우 위 과정으로 만들어진 시료를 바로 분석에 이용하고, 고분해능 유도결합 플라즈마 질량분석기(ICP-SFMS)로 분석하는 경우 이를 다시 100배 희석하여 0.1 ml를 산세척이 된 15 ml LDPE 병에 담는다. 이 때 열 이온화 질량분석기의 방법과는 달리 3차 증류수를 10 ml 담아 보관하고 분석에 사용한다.

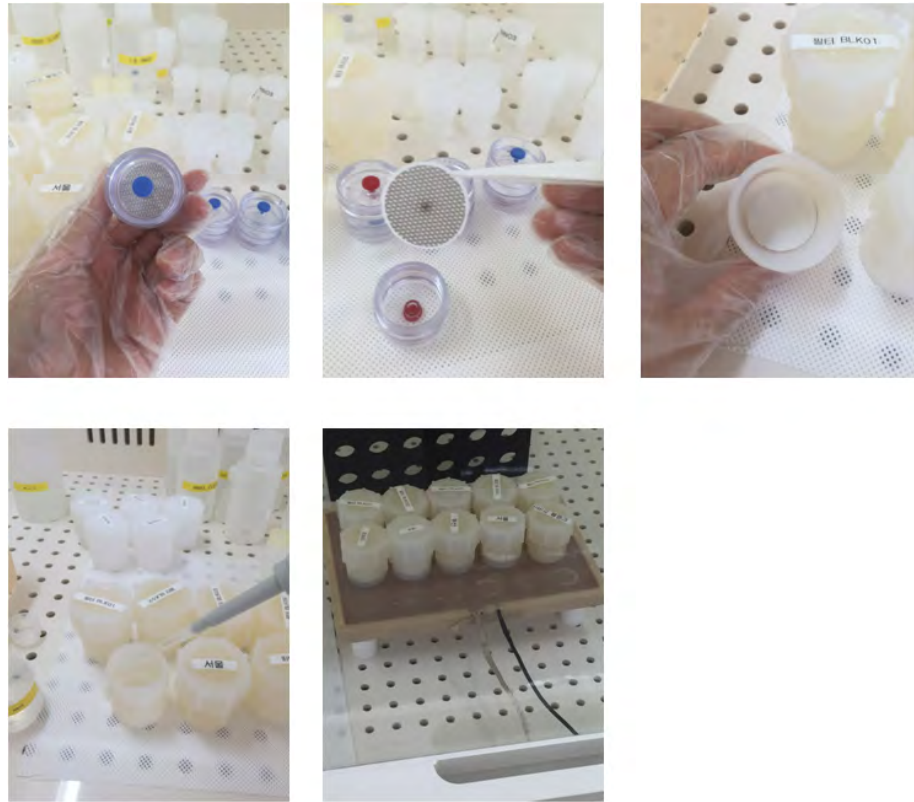


그림 13. Teflon Bomb과 각종 시약을 이용한 추출 실험과정

#### 다-2. 열 이온화 질량분석기(TIMS) 분석

납 안정동위원소를 분석하기 위한 모든 시료 처리 과정은 극지연구소 청정실험실에서 진행하였다. 청정실험실은 dust-free high efficiency particulate air (HEPA) filter를 이용하여 class 100을 유지하도록 하였으며, 청정실험실 내에 class 10의 청정 벤치를 설치하여 외부로부터 오염되는 납을 최소화하였다. 시료를 증발시킬 때 사용하는 전열기는 테플론 코팅하여 오염 및 산 부식을 최소화하였다.



그림 14. 열 이온화 질량분석기(TIMS)

납 안정동위원소 분석 실험에 사용되는 시약은 다음과 같다. 실험 수는 Milli-Q 장치를 통해 생성되는 3차 증류수를 이용하였다. 시료에 첨가하는 시약들은 오염을 최소화하기 위하여 이용할 수 있는 최고 등급의 시약을 이용하였다. 시약의 정보는 표 1과 같다.

표 1. 시약종류 및 세부사항

시약종류	세부사항
물	Milli-Q 장치를 통해 생성되는 3차 증류수
질산	65% Optima 등급, Fisher사
불산	48% Ultrapure 등급, Merck사
인산	85% ortho-Phosphoric acid Suprapure 등급, Merck사
메탄올	분석용 메탄올, Merck사
콜로이드 규산	Ultra high purity colloidal silica PL-7, Fuso Chemical사

납 안정동위원소 분석은 극지연구소에 설치된 열 이온화 질량분석기(Thermo Scientific TRITON, Thermal Ionization Mass Spectrometry, TIMS)를 이용하였다. 적은 양을 이용해서 분석해야하기 때문에 모든 분석은 소량 시료 분석에 적합한 secondary electron multiplier (SEM)를 이용하였다. 전체 실험과정에서 발생하는 납의 오염을 산출하기 위해 각 실험마다 2개 이상의 blank를 측정하였고, 장비 내에서 발생하는 분화작용을 알아보기 위해 2 ~ 3개의 표준시료물질 (NIST SRM 981)을 분석하여 최종 결과값을 보정하였다.

납 동위원소분석을 위한 청정실험 방법은 Han et al. (2015)의 방법을 이용하였고 그 방법은 다음과 같다. 약 10 ml의 시료를 15 ml PFA 테플론 비커에 넣은 후 원액 질산 10  $\mu$ l, 원액 불산 20  $\mu$ l, 4% 인산 4  $\mu$ l, spike 용액 10  $\mu$ l를 넣는다. 혼합된 시료는 전열기에서 약 1  $\mu$ l 정도가 남을 때까지 증발 시키고, 남은 시료는 실리카겔 활성화 화제와 함께 Zone refined Re filament에 로딩 한다. 로딩에 사용되는 실리카겔 활성화 화제는 일본 Fuso사의 PL-7을 이용하여 이온화효율이 가장 좋다고 보고된 방법대로 제조하였고, 조성은 표2와 같다.

표 2. Si-gel Activator 제조

물	인산	메탄올	PL-7(콜로이드 규산)
19 g	0.098 g	0.014 g	0.094 g

분석의 정확도와 분석 장비 내에서의 fractionation은 약 50 ~ 100 pg의 NIST SRM 981 Pb standard를 이용하여 확인하였다. 그 결과 분석 장비의 fractionation은  $0.28 \pm 0.22\%$  per mass unit로 나타났다.

분석을 진행하면서 발생하는 납의 오염(Filament Blank)은 약 0.8 pg Pb로 나타났다으며, 용출실험(Digestion)에서 발생하는 오염은 평균 65 pg Pb로 나타났고, 에어로졸을 채집하는 필터에서 발생하는 오염은 평균 47 pg Pb로 확인되었다. 또한, 납 안정동위원소 분석에 이용된 납의 양은 지역 평균 1,609 pg으로 나타났다. 시료의 전처리와 분석과정에서 오염되는 납의 바탕값은 에어로졸 샘플의 약 1/16이었고, 이 값은 실험결과에 영향을 미치지 않는 것으로 확인되었다.

표 3. 납 안정동위원소 분석 Blank

Sample Name	Pb (pg)	±
Filament Blank	2.7	0.00
	0.1	0.00
	0.2	0.01
	0.4	0.03
	0.3	0.01
average	0.8	0.01
Acid Blank	87	2.6
	43	1.3
	66	2.0
	average	65
Filter Blank	68	2.2
	21	0.6
	51	1.5
	average	47
Aerosol sample		
Incheon 1	2182	19
Taeon 3	1905	170
Jeodo 2	1542	111
Jejudo 3	805	26
average	1609	82

### 다-3. 고분해능 유도결합 플라즈마 질량분석기(ICP-SFMS) 분석

에어로졸 시료의 미량금속 원소와 극미량의 백금족 원소분석을 위해 고분해능 유도결합 플라즈마 질량분석기(Thermo Finnigan MAT Element2, Inductively Coupled Plasma-Sector Field Mass Spectrometer, ICP-SFMS)를 사용하였다. 분석법의 검출 한계와 시료의 소모량을 최소화시키기 위해 ICP-SFMS의 시료도입에 Apex HF 탈용매화장치(Elemental Scientific Inc. APEX HF resistant sample inlet system)를 사용하였다. Apex HF 탈용매화장치는 시료 주입 속도에 따라 기기 감도를 약 3-10 배 증가시키며(Indium(In) 100 pg/g 기준  $\sim 0.9 \times 10^6$  cps) 분석에 방해되는 산화물(oxide)의 생성을 줄일 수 있다( $\text{BaO/Ba} < 0.02\%$ ). 또한 고순도의 PFA Teflon 재질을 사용하여 바탕값이 낮고 잔류효과도 작다는 장점이 있다. 기기 검출한계를 최소화시키기 위해 고순도(ultrapure 등급: 99.999%)의 액체 아르곤과 질소 기체(ultrapure 등급: 99.999%)를 사용하였으며, 분석은 청정실험실에 설치된 청정부스 안에서 시행하였다. 실험 시 Apex HF에 주입되는 질소가스의 양을 조절하여 산화물의 생성을 최소화하면서 ICP-SFMS에서 최고 감도의 안정된 시그널이 나올 수 있도록 다양한 설정 변수들을 매 실험마다 조절하여 기기를 최적의 상태로 유지하였다.



그림 15. 고분해능 유도결합 플라즈마 질량분석기(ICP-SFMS)

에어로졸 시료 분석에 앞서 기기 상태를 체크하기 위해 Inorganic Ventures사에 미량금속과 백금족 원소 표준 시료인 71 A, B, C, D를 희석하여 표준 시료 용액을

만들었다. 0.1 pg g<sup>-1</sup> 값부터 시작하여 500 pg g<sup>-1</sup>까지 희석하였고, 이를 통해 실제 에어로졸 시료 분석에 앞서 calibration 값을 생성하였다. Al와 Fe 같은 10 ng 이하에서 검출이 정확히 되지 않는 원소들을 제외하고 calibration 한 값은 linear하게 나타났다. Ni의 경우 고분해능 유도결합 플라즈마 질량분석기에 사용되는 Cone이 니켈로 구성되어있어 분석 값에 영향을 주므로 데이터에서 제외하였다. calibration curve를 통해 얻은 값을 실제 시료에 적용하였고, 바탕값의 경우 블랭크 표준 시료를 3번 분석하여 납 농도가 가장 낮은 경우를 바탕값으로 적용하여 사용하였다. 표준 시료 분석이 끝난 후 에어로졸 시료 분석에 앞서 인증표준물질인 NIST사의 1643e를 약 580배 희석한 용액을 이용하여 계산을 통해 알고 있는 농도 값과 기기에서 분석을 통해 나온 농도 값이 일치하는지 여부를 확인하였다. 각 원소별로 20% 이내의 오차율이 확인되었고, 이에 기기 상태가 양호하다고 판단되어 실제 시료를 분석을 진행하였다. 실제 시료 분석은 10개 시료 당 1회의 인증표준물질 NIST 1643e 용액을 분석하여 데이터의 신뢰도를 확보하였다. 총 105개의 에어로졸 시료와 11개의 인증표준물질을 분석하였고, 정량한계는 분석 값 중 최저 농도 값으로 산정한 뒤 정량한계의 1/3에 해당하는 0.03 pg g<sup>-1</sup>을 검출한계로 적용하였다.

표 4. ICP를 이용한 미량금속원소의 Blank비교

	(단위 : ng)								
	Mo	Cd	Sb	Ba	Tl	Pb	Cu	Zn	As
Acid Blk	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
Filter Blk (Jeodo)	0.00	0.87	0.15	1.07	0.35	3.11	3.62	11.7	0.13
Filter Blk (Incheon, Taejeon)	0.08	N/A	0.68	4.35	0.34	3.31	3.48	15.9	0.14
Aerosol sample (Averaged)*									
Jeodo	34.3	25.7	147	295	13.4	866	229	2581	165
Incheon	2.35	1.50	4.50	36.9	0.65	45.9	346	209	9.12
Taejeon	12.7	7.47	35.9	336	1.94	277	1368	1179	31.4
Taejeon	11.2	6.76	24.6	169	1.92	235	80.2	751	37.2

\* 시료채취기간 동안에 필터에 포집된 총 시료의 양으로 환산한 값.



### III. 연구 결과

#### 가. 이어도

##### 가-1. 이어도의 납 안정동위원소 비와 납 농도

이어도 지역에서 채집한 에어로졸 시료의 정보와 납 농도, 납 안정동위원소 비를 표 5에 나타내었다. 이어도 지역의 에어로졸 시료는 2015년 6월 18일부터 2015년 11월 15일 까지 채집되었으며, 채집 간격은 96시간 또는 120시간이었다. 분석 결과  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 의 비는 1.145-1.173, 2.425-2.461의 범위 값을 가지는 것으로 나타났으며,  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 의 최솟값은 이어도 24번 시료에서, 최댓값은 이어도 33번 시료에서 나타났다. 반면  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 의 최솟값과 최댓값은 이어도 15번 시료와 26번 시료에서 나타났다. 각  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 의 평균값은  $1.1599 \pm 0.0069$ ,  $2.4435 \pm 0.0092$ 의 값을 가지는 것으로 조사되었다.

이어도의 납 농도는 시기 별로 다양한 값을 보였는데, 조사기간 동안의 평균 농도는  $3.645 \pm 3.095 \text{ ng m}^{-3}$ 이었다. 또한 납 농도의 최솟값은  $0.036 \text{ ng m}^{-3}$ 으로 7월 시료에서 나타났고, 최댓값은  $11.856 \text{ ng m}^{-3}$ 으로 10월 시료에서 관찰되었다.

##### 가-2. 이어도의 미량금속 원소 농도

이어도 지역에서 분석한 에어로졸 시료의 주요 미량금속 원소(Fe, Pb, Cu, Zn, Mn, Cr, Cd, As, Sb, Ba, Mo, Tl) 농도를 표 6에 나타내었다. 본 연구 기간 동안의 미량금속 원소의 농도 범위와 평균값은 Fe가  $0.201-422.9 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $62.87 \pm 87.07 \text{ ng m}^{-3}$ , Pb가  $0.036-11.86 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $3.645 \pm 3.095 \text{ ng m}^{-3}$ , Cu가  $0.020-2.570 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.923 \pm 0.724 \text{ ng m}^{-3}$ , Zn이  $0.289-42.01 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.60 \pm 9.465 \text{ ng m}^{-3}$ , Mn이  $0.021-13.26 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $2.713 \pm 3.043 \text{ ng m}^{-3}$ 이었다. 또한 Cr은  $0.200-1.471 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.573 \pm 0.359 \text{ ng m}^{-3}$ , Cd는  $0.014-0.377 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.105 \pm 0.093 \text{ ng m}^{-3}$ , As는  $0.038-2.278 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.693 \pm 0.554 \text{ ng m}^{-3}$ , Sb는  $0.010-0.913 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.231 \pm 0.196 \text{ ng m}^{-3}$ 의 값을 나타내었고, Ba, Mo, Tl의 경우 각각  $0.070-5.496 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.008-0.411 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.016-0.124 \text{ ng m}^{-3}$ 의 범위 값과  $1.226 \pm 1.343 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.139 \pm 0.097 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.055 \pm 0.058 \text{ ng m}^{-3}$ 의 평균값을 가지는 결과를 얻었다. 금속 원소 중 특히 Fe과 Zn의 경우에 농도의 최댓값과 최솟값의 편차가 매우 크게 관찰되었다.

표 5. 이어도의 납 안정동위원소 비 및 납 농도

Sampling Info.				Pb conc. (ng m <sup>-3</sup> )		Pb isotopic ratio			
Sample Name	Start time	Finish Time	Duratio n	conc.	U	<sup>208</sup> Pb/ <sup>207</sup> Pb	U	<sup>208</sup> Pb/ <sup>207</sup> Pb	U
Leodo 1	2015-06-18 16:15	2015-06-21 15:42	96h	5.926	0.145	1.157	0.001	2.427	0.002
Leodo 2	2015-06-21 15:42	2015-06-25 15:42	96h	DL	DL	1.167	0.001	2.444	0.003
Leodo 3	2015-06-25 15:42	2015-06-29 15:42	96h	0.495	0.024	1.149	0.001	2.431	0.002
Leodo 4	2015-06-29 15:42	2015-07-03 15:42	96h	2.270	0.020	1.169	0.002	2.447	0.004
Leodo 5	2015-07-03 15:42	2015-07-07 15:42	96h	1.809	0.025	1.166	0.001	2.444	0.003
Leodo 6	2015-07-07 15:42	2015-07-11 15:42	96h	0.036	0.006	1.167	0.003	2.432	0.004
Leodo 7	2015-07-11 15:42	2015-07-15 15:42	96h	2.083	0.031	1.166	0.001	2.443	0.002
Leodo 8	2015-07-15 15:42	2015-07-19 15:42	96h	1.817	0.067	1.155	0.002	2.437	0.004
Leodo 9	2015-07-19 15:42	2015-07-23 15:42	96h	0.112	0.009	1.157	0.003	2.431	0.004
Leodo 10	2015-07-23 15:42	2015-07-27 15:42	96h	0.039	0.003	1.160	0.002	2.440	0.005
Leodo 11	2015-07-27 15:42	2015-07-31 15:42	96h	2.158	0.017	1.167	0.002	2.454	0.004
Leodo 12	2015-07-31 15:42	2015-08-04 15:42	96h	0.253	0.001	1.160	0.002	2.438	0.003
Leodo 13	2015-08-05 12:35	2015-08-10 12:35	120h	0.893	0.034	1.162	0.003	2.447	0.004
Leodo 14	2015-08-10 12:35	2015-08-15 12:35	120h	6.323	0.198	1.160	0.007	2.446	0.028
Leodo 15	2015-08-15 12:35	2015-08-20 12:35	120h	1.802	0.050	1.159	0.003	2.425	0.008
Leodo 16	2015-08-20 12:35	2015-08-25 12:35	120h	2.080	0.024	1.161	0.003	2.446	0.009
Leodo 17	2015-08-25 12:35	2015-08-30 12:35	120h	1.967	0.059	1.161	0.002	2.439	0.006
Leodo 18	2015-08-30 12:35	2015-09-04 12:35	120h	5.857	0.199	1.163	0.003	2.451	0.004
Leodo 19	2015-09-04 12:35	2015-09-09 12:35	120h	2.128	0.100	1.165	0.004	2.459	0.017
Leodo 20	2015-09-09 12:35	2015-09-14 12:35	120h	2.135	0.074	1.152	0.008	2.439	0.013
Leodo 21	2015-09-14 12:35	2015-09-19 12:35	120h	1.830	0.024	1.145	0.004	2.445	0.005
Leodo 22	2015-09-19 12:35	2015-09-24 12:35	120h	2.369	0.139	1.147	0.005	2.439	0.007
Leodo 23	2015-09-24 12:35	2015-09-29 12:35	120h	6.303	0.311	-	-	-	-
Leodo 24	2015-09-29 12:35	2015-10-04 12:35	120h	4.557	0.193	1.158	0.002	2.454	0.005
Leodo 25	2015-10-04 12:35	2015-10-09 12:35	120h	5.143	0.121	1.148	0.003	2.449	0.004
Leodo 26	2015-10-09 12:35	2015-10-14 12:00	120h	9.188	0.474	1.163	0.003	2.461	0.007
Leodo 27	2015-10-14 12:20	2015-10-18 12:20	96h	7.714	0.277	1.160	0.002	2.435	0.002
Leodo 28	2015-10-18 12:20	2015-10-22 12:20	96h	11.856	0.620	1.149	0.005	2.442	0.009
Leodo 29	2015-10-22 12:20	2015-10-26 12:20	96h	9.522	0.526	1.157	0.003	2.461	0.004
Leodo 30	2015-10-26 12:20	2015-10-30 12:20	96h	7.281	0.196	1.161	0.002	2.455	0.005
Leodo 31	2015-10-30 12:20	2015-11-03 12:20	96h	6.474	0.394	1.166	0.001	2.442	0.003
Leodo 32	2015-11-03 12:20	2015-11-07 12:20	96h	4.684	0.041	1.160	0.004	2.447	0.007
Leodo 33	2015-11-07 12:20	2015-11-11 12:20	96h	1.204	0.018	1.173	0.002	2.443	0.003
Leodo 34	2015-11-11 12:20	2015-11-15 12:20	96h	1.992	0.043	1.166	0.001	2.436	0.003
Min				0.036		1.145		2.425	
Max				11.856		1.173		2.461	
Mean				3.645 ± 3.095		1.160 ± 0.007		2.443 ± 0.009	

표 6. 이어도의 미량금속 원소 농도

Sample Name	Fe (mg m <sup>-3</sup> )	Pb (mg m <sup>-3</sup> )	Cu (mg m <sup>-3</sup> )	Zn (mg m <sup>-3</sup> )	Mn (mg m <sup>-3</sup> )	Cr (mg m <sup>-3</sup> )	Cd (mg m <sup>-3</sup> )	As (mg m <sup>-3</sup> )	Sb (mg m <sup>-3</sup> )	Ba (mg m <sup>-3</sup> )	Mo (mg m <sup>-3</sup> )	Tl (mg m <sup>-3</sup> )
Ieodo 1	43.20	5.926	0.521	10.50	1.705	1.376	0.047	0.540	0.281	0.844	0.172	0.042
Ieodo 2	0.201	N/A	N/A	0.289	0.021	0.410	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.016
Ieodo 3	4.861	0.495	0.117	0.745	0.226	0.548	N/A	0.140	0.048	0.083	0.051	0.024
Ieodo 4	25.21	2.270	0.408	3.337	0.932	0.671	0.021	0.288	0.097	0.507	0.063	0.040
Ieodo 5	12.58	1.809	0.369	8.087	0.989	0.321	0.014	0.263	0.137	0.377	0.075	0.032
Ieodo 6	2.493	0.036	N/A	0.479	0.087	0.358	N/A	0.044	0.008	0.036	0.032	0.022
Ieodo 7	13.43	2.083	0.646	5.998	0.909	0.596	0.020	0.342	0.159	0.406	0.104	0.025
Ieodo 8	13.92	1.817	0.290	1.379	0.472	0.567	0.035	0.406	0.100	0.234	0.086	0.028
Ieodo 9	3.628	0.112	0.076	1.170	0.164	0.416	N/A	0.052	0.017	0.093	0.051	0.018
Ieodo 10	2.819	0.039	0.020	0.744	0.114	0.415	N/A	0.038	0.010	0.070	0.008	0.016
Ieodo 11	28.44	2.158	0.673	5.250	1.239	0.911	0.054	0.362	0.169	0.755	0.101	0.024
Ieodo 12	4.477	0.253	0.042	1.083	0.125	0.459	N/A	0.048	0.018	0.127	0.012	0.018
Ieodo 13	29.93	0.893	0.481	3.013	0.786	0.164	0.014	0.379	0.080	0.373	0.068	0.024
Ieodo 14	94.32	6.323	1.685	-	3.997	1.471	0.153	0.783	-	2.333	0.381	0.326
Ieodo 15	23.58	1.802	0.543	6.190	1.123	0.227	0.046	0.409	0.123	0.439	0.094	0.032
Ieodo 16	24.56	2.080	0.596	23.09	1.465	0.200	0.049	0.402	0.190	0.564	0.093	0.029
Ieodo 17	31.00	1.967	0.829	42.01	1.700	0.330	0.046	0.618	0.177	0.727	0.102	0.042
Ieodo 18	52.25	5.857	1.765	19.66	3.094	0.524	0.166	0.927	0.411	1.159	0.198	0.058
Ieodo 19	19.46	2.128	0.616	6.395	1.483	0.232	0.069	0.402	0.197	0.456	0.104	0.021
Ieodo 20	45.77	2.135	0.582	7.396	1.933	0.296	0.039	0.488	0.126	0.883	0.072	0.022
Ieodo 21	38.44	1.830	0.526	5.554	1.730	0.298	0.042	0.631	0.176	0.746	0.124	0.023
Ieodo 22	40.64	2.369	0.675	15.47	1.644	0.316	0.052	0.712	0.153	0.832	0.112	0.027
Ieodo 23	54.50	6.303	1.046	11.95	3.053	0.389	0.111	1.187	0.347	1.290	0.215	0.048
Ieodo 24	77.56	4.557	1.288	11.47	4.069	0.421	0.115	0.893	0.240	1.947	0.184	0.073
Ieodo 25	134.3	5.143	1.556	13.87	6.221	0.675	0.146	1.237	0.458	2.340	0.231	0.057
Ieodo 26	292.8	9.188	2.570	23.84	10.32	1.162	0.235	1.270	0.400	4.915	0.168	0.120
Ieodo 27	117.7	7.714	2.157	21.53	6.404	0.875	0.225	1.334	0.634	2.607	0.332	0.091
Ieodo 28	144.4	11.86	2.338	24.38	6.928	1.035	0.377	2.278	0.913	3.307	0.411	0.124
Ieodo 29	127.7	9.522	1.534	16.82	5.664	0.853	0.248	1.996	0.462	2.327	0.223	0.119
Ieodo 30	422.9	7.281	2.256	20.50	13.26	1.322	0.194	1.372	0.347	5.496	0.158	0.116
Ieodo 31	105.9	6.474	1.291	14.32	4.687	0.685	0.225	1.235	0.321	2.065	0.187	0.085
Ieodo 32	78.13	4.684	1.280	11.92	3.256	0.557	0.129	1.099	0.306	1.487	0.123	0.067
Ieodo 33	6.275	1.204	0.211	3.189	0.609	0.114	0.020	0.338	0.096	0.149	0.057	0.031
Ieodo 34	20.07	1.992	0.548	8.115	1.902	0.289	0.050	0.361	0.187	0.478	0.194	0.046
Min	0.201	0.036	0.020	0.289	0.021	0.200	0.014	0.038	0.010	0.070	0.008	0.016
Max	422.9	11.86	2.570	42.01	13.26	1.471	0.377	2.278	0.913	5.496	0.411	0.124
Mean	62.87 ± 87.07	36.45 ± 3.095	0.923 ± 0.724	10.60 ± 9.465	2.713 ± 3.043	0.573 ± 0.339	0.105 ± 0.093	0.693 ± 0.554	0.231 ± 0.196	1.225 ± 1.343	0.139 ± 0.097	0.055 ± 0.058

## 나. 연속적 시료 채취 지점

### 나-1. 연속적 시료 채취 지점의 납 안정동위원소 비와 납 농도

본 연구의 이어도를 제외한 시료 채취 지점 중 연속적으로 에어로졸 시료 채집이 진행된 인천, 제주도, 태안 지역의 납 농도와 납 안정동위원소 비를 정리하여 표 7에 나타내었다. 인천 지역에서 채집된 에어로졸 시료는 2015년 8월 7일 부터 2015년 11월 2일까지  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 에서 1.151-1.164,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 에서 2.429-2.442 범위의 납 안정동위원소 비를 나타내었으며, 총 10개 시료의 평균  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비 값은 각각  $1.154 \pm 0.008$ ,  $2.435 \pm 0.004$ 이었다. 제주도 지역의 경우 2015년 7월 28일 부터 2015년 10월 30일 까지 채집된 시료의 범위는  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 이 1.146-1.167과 2.419-2.448의 값을 나타내었고 그 평균값은  $1.159 \pm 0.007$ 과  $2.435 \pm 0.008$ 이었다. 태안 지역에서는 2015년 9월 4일부터 2015년 10월 27일 동안의 납 안정동위원소  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비 값이 1.149-1.163, 2.428-2.444 범위로 나타났고 그 평균은  $1.158 \pm 0.004$ 와  $2.436 \pm 0.006$ 으로 조사되었다. 연속 시료 채취 지점 중 가장 높은 납 안정동위원소 값이 관측된 지점은  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비와  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비가 1.167값과 2.448 값을 나타낸 제주도 지점이었으나 다른 두 지역과 비교하여 큰 차이를 나타내지는 않았으며, 각각의 납 안정동위원소 비의 평균값은  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비가 1.159로 제주도 지역에서 가장 큰 값을 나타낸 반면  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비의 경우 2.436으로 태안 지역에서 가장 높은 값으로 관측되었다.  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비와  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비의 최솟값은 인천에서 1.133,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 가 제주도에서 2.419이었다.

연속적 시료 채집이 이루어진 세 지역의 납 농도를 살펴보면 인천, 제주도, 태안에서 각각  $10.406 \pm 6.610 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $2.243 \pm 2.359 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $10.654 \pm 8.555 \text{ ng m}^{-3}$ 인 결과를 얻었고, 인천과 태안 지역이 비슷한 농도 범위를 보인 것과 비교하여 제주도 지역은 1/5수준에 해당하는 낮은 농도 값을 가졌다. 본 연구 기간 동안 세 지역에서 가장 높은 납 농도를 기록한 지점은 태안으로  $27.819 \text{ ng m}^{-3}$ 의 농도 값을 기록하였다.

### 나-2. 연속적 시료 채취 지점의 미량금속 원소 농도

연속 시료 채취 지점의 에어로졸 시료의 미량금속 농도를 분석하여 표 8, 9, 10에 차례대로 정리하였다. 시료 채집 기간 동안 인천, 제주도, 태안 지역의 미량 금

속 농도 평균값은 각각 Fe가  $381.2 \pm 139.6 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $85.61 \pm 46.79 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $346.7 \pm 194.4 \text{ ng m}^{-3}$ , Pb가  $10.41 \pm 6.886 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $2.243 \pm 2.359 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $10.65 \pm 8.003 \text{ ng m}^{-3}$ , Cu가  $48.76 \pm 50.29 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $17.21 \pm 32.32 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $3.023 \pm 1.564 \text{ ng m}^{-3}$ , Zn이  $44.15 \pm 21.02 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $10.166 \pm 9.352 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $31.128 \pm 17.538 \text{ ng m}^{-3}$ , Mn이  $11.75 \pm 4.067 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $2.783 \pm 1.624 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $10.67 \pm 5.809 \text{ ng m}^{-3}$ 으로 나타났다. 또한 Cr이  $2.078 \pm 0.799 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.917 \pm 1.395 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $2.131 \pm 1.523 \text{ ng m}^{-3}$ , Cd가  $0.281 \pm 0.228 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.074 \pm 0.113 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.261 \pm 0.147 \text{ ng m}^{-3}$ , As가  $1.190 \pm 0.816 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.449 \pm 0.603 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $1.540 \pm 1.045 \text{ ng m}^{-3}$ , Sb가  $1.323 \pm 0.596 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.221 \pm 0.170 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $1.207 \pm 1.065 \text{ ng m}^{-3}$ , Ba가  $12.36 \pm 4.778 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $1.810 \pm 0.697 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $6.337 \pm 3.366 \text{ ng m}^{-3}$ 의 평균값을 가졌으며, Mo에서  $0.470 \pm 0.260 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.116 \pm 0.140 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.505 \pm 0.294 \text{ ng m}^{-3}$ , 마지막으로 Tl에서  $0.073 \pm 0.039 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.032 \pm 0.012 \text{ ng m}^{-3}$ ,  $0.090 \pm 0.065 \text{ ng m}^{-3}$ 의 평균값을 얻었다.

세 연속 시료 채취 지점 중, 모든 미량금속 항목에서 제주도 지역의 평균 농도가 가장 낮은 값을 나타내었고, 인천과 태안 지역의 미량금속 농도의 경우 Fe, Cu, Zn, Mn, Ba의 항목 농도는 인천에서 더 높은 값을 가지는 것으로 관찰되었으며, 나머지 금속 농도는 인천과 태안의 두 지역이 유사한 값을 가지는 결과를 얻을 수 있었다.

표 7. 연속 시료 채취 지점의 납 안정동위원소 비 및 납 농도

Sample Name	Sampling Info.		Duration	Pb conc. (ng m <sup>-3</sup> ) conc.	U	Pb isotopic ratio			
	Start time	Finish Time				<sup>206</sup> Pb/ <sup>207</sup> Pb	U	<sup>208</sup> Pb/ <sup>207</sup> Pb	U
Incheon 1	2015-08-07 19:00	2015-08-14 16:00	165h	19,990	0.584	1.151	0.001	2.438	0.004
Incheon 2	2015-08-14 16:10	2015-08-24 18:50	242h 40m	17,492	0.528	1.160	0.002	2.436	0.004
Incheon 3	2015-08-24 18:50	2015-08-31 18:40	167h 50m	14,128	0.200	1.152	0.003	2.442	0.007
Incheon 4	2015-08-31 18:40	2015-09-10 09:00	230h 20m	7,098	0.178	1.159	0.001	2.431	0.004
Incheon 5	2015-09-10 09:00	2015-09-17 09:00	168h	8,961	0.239	1.154	0.002	2.438	0.003
Incheon 6	2015-09-17 09:00	2015-09-24 13:00	172h	18,863	0.293	1.156	0.001	2.431	0.003
Incheon 7	2015-09-24 13:00	2015-10-01 13:00	168h	9,776	0.098	1.133	0.002	2.429	0.004
Incheon 8	2015-10-12 20:00	2015-10-19 13:00	161h	1,817	0.046	1.158	0.002	2.433	0.003
Incheon 9	2015-10-19 13:00	2015-10-26 09:30	164h 30m	3,875	0.137	1.153	0.002	2.434	0.004
Incheon 10	2015-10-26 09:30	2015-11-02 09:30	168h	2,069	0.287	1.164	0.001	2.435	0.001
Min				1,817		1.133		2,429	
Max				19,990		1.164		2,442	
Mean				10,406 ± 6,610		1.154 ± 0.008		2,435 ± 0.004	
Jeju-do 1	2015-07-28 17:00	2015-08-04 15:27	166h 33m	1,227	0.004	1.166	0.005	2.448	0.007
Jeju-do 2	2015-08-04 15:27	2015-08-11 14:30	167h	0,721	0.027	1.155	0.007	2.432	0.012
Jeju-do 3	2015-08-11 14:30	2015-08-18 14:10	166h 40m	9,202	0.446	1.167	0.001	2.430	0.002
Jeju-do 4	2015-08-18 14:10	2015-08-25 15:00	168h 50m	1,822	0.017	1.164	0.001	2.441	0.003
Jeju-do 5	2015-08-25 15:00	2015-09-01 16:30	169h 30m	2,453	0.031	1.167	0.002	2.443	0.002
Jeju-do 6	2015-09-01 16:30	2015-09-08 10:45	162h 15m	0,956	0.064	1.163	0.001	2.436	0.002
Jeju-do 7	2015-09-08 10:45	2015-09-15 14:25	171h 40m	0,958	0.032	1.156	0.001	2.429	0.002
Jeju-do 8	2015-09-15 14:25	2015-09-22 10:40	164h 15m	2,095	0.037	1.146	0.001	2.431	0.003
Jeju-do 9	2015-09-22 10:40	2015-09-30 10:40	192h	0,559	0.015	1.154	0.001	2.419	0.002
Jeju-do 10	2015-10-08 14:00	2015-10-15 10:30	164h 30m	1,110	0.065	1.163	0.001	2.437	0.003
Jeju-do 11	2015-10-15 10:30	2015-10-23 13:30	189h	3,574	0.060	1.151	0.001	2.437	0.002
Jeju-do 12	2015-10-23 13:30	2015-10-30 13:30	168h	2,234	0.010	1.158	0.001	2.441	0.002
Min				0,559		1.146		2,419	
Max				9,202		1.167		2,448	
Mean				2,243 ± 2,359		1.159 ± 0.007		2,435 ± 0.008	
Taean 1	2015-09-04 12:00	2015-09-05 13:00	25h	27,819	1.351	1.163	0.001	2.432	0.002
Taean 2	2015-09-05 13:00	2015-09-12 16:30	171h 30m	10,196	0.200	1.158	0.001	2.430	0.002
Taean 3	2015-09-12 16:30	2015-09-19 08:25	160h	9,595	0.603	1.161	0.001	2.428	0.002
Taean 4	2015-09-19 08:25	2015-09-25 12:45	148h	0,143	0.007	1.159	0.001	2.437	0.002
Taean 5	2015-09-25 12:45	2015-10-06 11:30	262h 45m	15,769	0.301	1.149	0.003	2.444	0.009
Taean 6	2015-10-06 11:30	2015-10-13 10:00	166h 30m	12,693	0.515	1.156	0.002	2.438	0.006
Taean 7	2015-10-13 10:00	2015-10-20 18:30	176 30m	4,433	0.064	1.161	0.001	2.440	0.002
Taean 8	2015-10-20 18:30	2015-10-27 11:00	160h 30m	4,581	0.222	1.156	0.002	2.440	0.004
Min				0,143		1.149		2,428	
Max				27,819		1.163		2,444	
Mean				10,654 ± 8,555		1.158 ± 0.004		2,436 ± 0.006	

표 8. 인천 지역의 미량금속 원소 농도

Sample Name	Fe (ng m <sup>-3</sup> )	Pb (ng m <sup>-3</sup> )	Cu (ng m <sup>-3</sup> )	Zn (ng m <sup>-3</sup> )	Mn (ng m <sup>-3</sup> )	Cr (ng m <sup>-3</sup> )	Cd (ng m <sup>-3</sup> )	As (ng m <sup>-3</sup> )	Sb (ng m <sup>-3</sup> )	Ba (ng m <sup>-3</sup> )	Mo (ng m <sup>-3</sup> )	Tl (ng m <sup>-3</sup> )
Incheon 1	579.6	19.99	20.27	79.71	18.17	2.955	0.560	2.231	1.938	15.95	0.796	0.116
Incheon 2	516.7	17.49	25.11	70.30	15.40	2.823	0.412	1.939	1.934	16.85	0.832	0.121
Incheon 3	341.0	14.13	26.06	41.69	11.47	2.019	0.718	0.880	1.547	12.08	0.478	0.051
Incheon 4	274.6	7.098	60.31	35.51	8.585	1.710	0.204	0.529	1.233	11.79	0.393	0.036
Incheon 5	336.6	8.961	138.0	32.27	10.91	2.031	0.152	0.987	1.193	10.94	0.362	0.089
Incheon 6	536.8	18.86	128.6	64.15	16.79	3.338	0.347	1.903	2.160	19.56	0.735	0.131
Incheon 7	467.2	9.776	74.37	43.02	13.00	2.298	0.252	2.300	1.461	15.28	0.592	0.071
Incheon 8	141.8	1.817	5.043	37.92	5.791	0.894	0.046	0.320	0.616	3.677	0.176	0.038
Incheon 9	349.9	3.875	6.476	23.18	9.722	1.671	0.101	0.551	0.698	10.69	0.214	0.051
Incheon 10	268.3	2.069	3.369	13.74	7.631	1.040	0.022	0.259	0.452	6.744	0.127	0.023
Min	141.8	1.817	3.369	13.74	5.791	0.894	0.022	0.259	0.452	3.677	0.127	0.023
Max	579.6	19.99	138.0	79.71	18.17	3.338	0.718	2.300	2.160	19.56	0.832	0.121
Mean	381.2 ± 139.6	10.41 ± 6.886	48.76 ± 50.29	44.15 ± 21.02	11.75 ± 4.087	2.078 ± 0.799	0.281 ± 0.228	1.190 ± 0.816	1.323 ± 0.596	12.36 ± 4.778	0.470 ± 0.260	0.073 ± 0.039

표 9. 제주도 지역의 미량금속 원소 농도

Sample Name	Fe (ng m <sup>-3</sup> )	Pb (ng m <sup>-3</sup> )	Cu (ng m <sup>-3</sup> )	Zn (ng m <sup>-3</sup> )	Mn (ng m <sup>-3</sup> )	Cr (ng m <sup>-3</sup> )	Cd (ng m <sup>-3</sup> )	As (ng m <sup>-3</sup> )	Sb (ng m <sup>-3</sup> )	Ba (ng m <sup>-3</sup> )	Mo (ng m <sup>-3</sup> )	Tl (ng m <sup>-3</sup> )
Jeju-do 1	128.6	1.227	6.007	5.788	3.490	0.665	0.022	0.195	0.212	2.580	0.073	0.026
Jeju-do 2	70.37	0.721	3.629	2.662	1.582	0.383	N/A	0.125	0.102	1.439	0.059	0.027
Jeju-do 3	92.83	9.202	2.787	30.431	5.188	5.276	0.350	2.295	0.675	2.210	0.542	0.063
Jeju-do 4	55.92	1.822	4.808	9.626	1.719	0.341	0.032	0.320	0.312	1.850	0.085	0.034
Jeju-do 5	72.07	2.453	4.251	8.375	2.564	0.424	0.050	0.368	0.225	1.936	0.107	0.039
Jeju-do 6	45.58	0.956	10.37	4.226	1.351	0.457	0.002	0.167	0.150	1.255	0.050	0.023
Jeju-do 7	54.30	0.958	45.11	3.959	1.631	0.350	N/A	0.239	0.117	1.267	0.062	0.020
Jeju-do 8	86.41	2.095	112.8	16.185	3.106	0.609	0.044	0.527	0.321	2.019	0.163	0.028
Jeju-do 9	11.50	0.559	7.861	0.882	0.296	0.181	N/A	0.035	0.029	0.282	0.035	0.020
Jeju-do 10	82.79	1.110	2.364	3.222	2.382	0.473	N/A	0.149	0.070	1.585	0.017	0.025
Jeju-do 11	181.8	3.574	3.580	25.213	4.898	1.141	0.063	0.531	0.263	2.660	0.116	0.040
Jeju-do 12	145.2	2.234	3.028	11.424	5.192	0.701	0.027	0.434	0.179	2.634	0.078	0.033
Min	11.50	0.559	2.364	0.882	0.296	0.181	0.002	0.035	0.029	0.282	0.017	0.020
Max	181.8	9.202	112.8	30.431	5.192	5.276	0.350	2.295	0.675	2.660	0.542	0.063
Mean	86.61 ± 46.79	2.243 ± 2.359	17.21 ± 32.32	10.17 ± 9.352	2.783 ± 1.624	0.917 ± 1.395	0.074 ± 0.113	0.449 ± 0.603	0.221 ± 0.170	1.810 ± 0.697	0.116 ± 0.140	0.032 ± 0.012

표 10. 태안 지역의 미량금속 원소 농도

Sample Name	Fe (ng m <sup>-3</sup> )	Pb (ng m <sup>-3</sup> )	Cu (ng m <sup>-3</sup> )	Zn (ng m <sup>-3</sup> )	Mn (ng m <sup>-3</sup> )	Cr (ng m <sup>-3</sup> )	Cd (ng m <sup>-3</sup> )	As (ng m <sup>-3</sup> )	Sb (ng m <sup>-3</sup> )	Ba (ng m <sup>-3</sup> )	Mo (ng m <sup>-3</sup> )	Tl (ng m <sup>-3</sup> )
Taeon 1	406.4	27.82	3.364	59.458	14.02	5.848	0.388	3.269	3.590	7.156	1.040	0.245
Taeon 2	382.2	10.20	4.478	38.495	14.67	2.124	0.313	1.553	1.232	8.312	0.583	0.073
Taeon 3	364.6	9.595	4.459	31.107	11.60	2.004	0.297	1.094	1.759	7.478	0.637	0.082
Taeon 4	21.58	0.143	0.524	0.851	0.283	0.901	0.016	0.017	0.003	0.273	N/A	0.014
Taeon 5	689.4	15.77	4.872	47.390	18.46	2.298	0.467	2.810	1.374	11.01	0.502	0.112
Taeon 6	514.4	12.69	3.660	35.102	15.22	2.133	0.367	2.105	1.068	9.444	0.534	0.099
Taeon 7	171.1	4.433	1.456	12.057	5.133	0.846	0.130	0.655	0.334	3.033	0.126	0.051
Taeon 8	224.1	4.581	1.368	24.566	5.998	0.897	0.114	0.818	0.297	3.987	0.114	0.046
Min	21.58	0.143	0.524	0.851	0.283	0.846	0.016	0.017	0.003	0.273	0.114	0.014
Max	689.4	27.82	4.872	59.458	18.46	5.848	0.467	3.269	3.590	11.01	1.040	0.245
Mean	3467 ± 1944	1065 ± 8.003	3.023 ± 1.564	31.13 ± 17.54	10.67 ± 5.809	2.131 ± 1.523	0.261 ± 0.147	1.540 ± 1.045	1.207 ± 1.065	6.337 ± 3.366	0.505 ± 0.294	0.090 ± 0.065





## 다. 기타 한반도 지역

### 다-1. 기타 한반도 참고 지역의 납 안정동위원소 비와 납 농도

연속적인 시료 채취 지점을 제외한 기타 한반도의 참고 지역들의 납 안정동위원소 비와 납 농도를 분석하여 표 11에 정리하였다. 서울을 비롯한 기타 한반도 지역에서 납 안정동위원소 비  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 은 1.136-1.169의 범위 값을 나타내었으며, 최솟값은 광혜원 지점에서, 최댓값은 영주 지점에서 얻어진 결과 값이다.  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  비의 평균은  $1.153 \pm 0.009$ 로 이어도나 인천, 제주도, 태안 지역에서 진행된 연속적 채집 시료에서 얻은 평균값들(1.154-1.159)과 유사한 값을 얻었다. 기타 한반도 지역의  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비는 2.419-2.450의 범위 값을 나타내었고, 최솟값과 최댓값은 각각 부산과 영주지역의 데이터이며, 총 평균은  $2.434 \pm 0.008$ 로 앞선 연속적 시료 채집이 이루어진 지점들(2.435-2.444)과 비교하였을 때 가장 낮은 값을 기록하였다.

기타 한반도 지점들은  $14.14 \pm 11.57 \text{ ng m}^{-3}$ 의 납 농도 평균값을 가지는 것으로 나타났다. 납 농도의 범위는  $1.615\text{-}36.22 \text{ ng m}^{-3}$ 이었으며, 울진 지점에서 가장 낮았고, 서울(신림)지점에서 가장 높은 값을 기록하였다. 특히 서울(신림)지점에서 관측된 최댓값은 본 연구가 수행되어지는 기간 동안 측정된 모든 에어로졸 시료의 납 농도 중 가장 높은 값이었으며, 두 번째로 높은 농도( $34.55 \text{ ng m}^{-3}$ )는 울산 지역에서 관측되었다.

### 다-2. 기타 한반도 참고 지역의 미량금속 원소 농도

한반도 참고 지역의 미량금속 원소 농도를 분석하여 결과를 표 12에 정리하였다. 모든 금속 원소의 농도가 각 지점 별로 다양한 값을 나타내었는데, 특히 일부 원소에서는 그 차이가 더 두드러지는 결과를 얻었다. 각 미량금속 이온 별로 농도의 범위와 평균값을 살펴보면, Fe의 경우에는  $119.0\text{-}1460 \text{ ng m}^{-3}$ 의 농도 범위를 나타내었고 그 평균은  $583.2 \pm 449.4 \text{ ng m}^{-3}$ 이었으며, Cu 이온은  $0.631\text{-}45.24 \text{ ng m}^{-3}$ 의 범위와  $13.62 \pm 13.78 \text{ ng m}^{-3}$ 의 평균값을 나타내었다. 지역별로 가장 큰 편차 값을 가지는 원소는 Zn로서, 최소 농도가 구미 지역에서  $10.99 \text{ ng m}^{-3}$ 의 농도로 나타난 것과 비교하여 최대 농도는 울릉도 지역의  $592.0 \text{ ng m}^{-3}$ 로 약 54배 높은 값을 나타내었고 전체 평균은  $138.5 \pm 190.7 \text{ ng m}^{-3}$ 이었다. Mn은  $3.851\text{-}59.16 \text{ ng m}^{-3}$ 의 농도 범위와  $18.13 \pm 13.48 \text{ ng m}^{-3}$ 의 평균 농도 값을 가졌으며, Cr은  $0.413\text{-}9.4690$

ng m<sup>-3</sup>의 범위에서 3.249 ± 2.554 ng m<sup>-3</sup>의 평균값을, Cd는 0.017-1.069 ng m<sup>-3</sup>의 범위에서 0.498 ± 0.048 ng m<sup>-3</sup>의 평균값을, As는 0.465-8.945 ng m<sup>-3</sup>의 범위에서 2.433 ± 2.408 ng m<sup>-3</sup>의 평균값을 나타내었다. 또한 Sb는 0.173-6.965 ng m<sup>-3</sup> 범위와 2.546 ± 2.400 ng m<sup>-3</sup>의 평균값을, Ba는 2.483-76.95 ng m<sup>-3</sup>와 21.84 ± 23.51 ng m<sup>-3</sup>, Mo는 0.066-1.702 ng m<sup>-3</sup>와 0.748 ± 0.683 ng m<sup>-3</sup>, 마지막으로 Tl은 0.034-0.303 ng m<sup>-3</sup>과 0.135 ± 0.080 ng m<sup>-3</sup>의 범위와 평균값을 나타내었다.

미량금속 원소들의 농도가 주로 낮게 관측된 지점은 울릉도, 울진, 구미, 단양 등이었으며 높게 관측된 지점은 부천, 서울, 울산 등의 지점이었다. 그러나 울릉도 지역의 경우 Fe, Cu, Cr, Cd, Ba 등의 원소 농도는 매우 낮은 농도로 관측된 반면 Zn의 농도는 기타 한반도 참고지역 중 최댓값을 기록하였다.

표 13은 우리나라를 포함한 주변국에서 에어로졸 시료를 대상으로 사전에 진행되었던 연구 결과와 본 연구 결과를 비교한 표이다. 대기 중 주요 미량금속 9종 (Pb, Cu, Zn, Cd, As, Sb, Ba, Mo, Tl)의 농도와 시료 정보에 대하여 나타내었다.



표 11. 기타 한반도 지역의 시료 정보와 납 안정동위원소 비 및 납 농도

Sampling Info.				Pb conc. (ng m <sup>-3</sup> )		Pb isotopic ratio			
Sample Name	Start time	Finish Time	Duration	conc.	U	<sup>206</sup> Pb/ <sup>207</sup> Pb	U	<sup>208</sup> Pb/ <sup>207</sup> Pb	U
Seoul (Shinim)	2015-08-12 23:19	2015-08-16 18:20	90h 59m	36.22	0.949	1.155	0.003	2.432	0.009
Seoul (Ewha Univ)	2015-09-25 15:00	2015-10-02 18:55	171h 55m	16.45	0.387	1.138	0.001	2.430	0.002
Ulsan	2015-10-06 19:40	2015-10-09 12:30	64h 50m	34.55	0.868	1.150	0.003	2.432	0.004
Busan	2015-08-15 08:00	2015-08-16 14:00	30h	31.53	1.137	1.146	0.002	2.419	0.005
Suwon	2015-08-27 00:13	2015-09-01 00:10	119h 57m	25.27	0.341	1.157	0.002	2.437	0.003
Daejeon	2015-09-18 16:00	2015-09-25 10:30	142h 30m	23.72	0.996	1.152	0.002	2.438	0.004
Bucheon	2015-09-08 22:10	2015-09-10 23:00	48h 50m	17.57	0.469	1.157	0.001	2.431	0.002
Yeongju	2015-10-08 19:30	2015-10-10 08:30	37h	12.80	0.691	1.169	0.001	2.450	0.003
Yeosu	2015-07-31 13:10	2015-08-21 10:00	242h 15m	3.513	1.670	1.152	0.003	2.428	0.003
Gumi	2015-11-06 12:30	2015-11-07 11:30	23h	12.27	0.106	1.150	0.001	2.422	0.002
Gwanghyewon	2015-09-21 16:00	2015-09-25 10:00	90h	9.716	0.314	1.136	0.001	2.423	0.002
Yeonpyeongdo	2015-10-17 11:15	2015-10-21 11:45	96h 30m	6.340	0.275	1.149	0.002	2.446	0.002
Pohang	2015-09-13 19:44	2015-09-17 22:20	98h 36m	5.484	0.155	1.149	0.002	2.438	0.004
Gangreung	2015-09-04 14:20	2015-09-05 11:20	21h	5.139	0.158	1.147	0.002	2.434	0.003
Danyang	2015-10-09 15:30	2015-10-10 11:30	20h	3.022	0.111	1.162	0.002	2.440	0.002
Jindo	2015-09-30 13:23	2015-10-02 08:00	42h 37m	2.874	0.134	1.167	0.002	2.434	0.002
Ulleungdo	2015-10-27 11:40	2015-11-02 09:11	141h 31m	1.836	0.095	1.147	0.003	2.427	0.006
Ujin	2015-10-23 11:05	2015-11-02 19:50	224h 45m	1.615	0.763	1.161	0.001	2.439	0.006
Min				1.615		1.136		2.419	
Max				36.22		1.169		2.450	
Mean				14.14 ± 11.57		1.153 ± 0.009		2.434 ± 0.008	

표 12. 기타 한반도 지역의 미량금속 원소 농도

Sample Name	Fe (ng m <sup>-3</sup> )	Pb (ng m <sup>-3</sup> )	Cu (ng m <sup>-3</sup> )	Zn (ng m <sup>-3</sup> )	Mn (ng m <sup>-3</sup> )	Cr (ng m <sup>-3</sup> )	Cd (ng m <sup>-3</sup> )	As (ng m <sup>-3</sup> )	Sb (ng m <sup>-3</sup> )	Ba (ng m <sup>-3</sup> )	Mo (ng m <sup>-3</sup> )	Tl (ng m <sup>-3</sup> )
Seoul (Shinrim)	940.2	36.22	22.97	127.2	24.90	5.715	0.922	4.377	4.282	36.70	1.473	0.294
Seoul (Ewha Univ)	1066	16.45	26.12	52.60	24.51	4.249	0.437	4.360	5.156	62.64	1.137	0.126
Ulsan	1374	34.55	23.34	479.8	59.16	6.730	1.069	7.243	4.079	21.27	1.631	0.187
Busan	510.3	31.53	16.30	109.6	18.77	3.474	1.032	8.945	5.566	17.39	1.617	0.209
Suwon	953.1	25.27	38.94	101.2	23.94	6.496	1.058	2.284	5.810	59.05	1.589	0.118
Daieon	936.3	23.71	25.44	97.93	25.24	5.246	0.813	3.268	5.341	39.91	1.640	0.160
Bucheon	1460	17.57	45.24	118.7	35.11	9.490	0.536	2.219	6.965	76.95	1.702	0.133
Yeongju	849.1	12.80	10.35	48.20	22.54	3.352	0.313	1.372	2.294	23.09	0.446	0.159
Yeosu	246.3	3.513	5.368	24.12	10.73	1.818	0.068	0.628	0.687	6.474	0.701	0.055
Gumi	66.38	12.27	6.026	10.99	6.331	0.901	N/A	0.485	1.082	3.658	0.088	0.116
Gwanghyewon	248.1	9.716	9.949	50.84	14.48	2.100	0.440	1.740	1.593	5.516	0.558	0.106
Yeonpyeongdo	381.2	6.340	1.856	556.0	9.688	1.498	0.144	1.448	0.488	6.783	0.142	0.073
Pohang	276.9	5.484	2.589	35.37	8.309	1.917	0.081	1.361	0.502	4.452	0.283	0.056
Gangreung	162.8	5.139	2.099	19.45	13.52	1.313	N/A	1.647	1.025	6.599	0.176	0.303
Danyang	534.9	3.022	2.469	15.57	13.72	1.937	N/A	0.465	0.142	14.16	0.047	0.193
Jindo	129.6	2.874	4.212	37.44	3.851	1.011	N/A	0.538	0.268	2.700	0.098	0.075
Ulleungdo	119.0	1.836	0.631	592.0	4.099	0.413	0.017	0.681	0.376	2.483	0.077	0.037
Ulljin	244.8	1.615	1.285	16.87	7.535	0.814	0.048	0.737	0.173	3.205	0.066	0.034
Min	119.0	1.615	0.631	10.99	3.851	0.413	0.017	0.465	0.142	2.483	0.066	0.034
Max	1460	36.22	45.24	592.0	59.16	9.490	1.069	8.945	6.965	76.95	1.702	0.303
Mean	583.2 ± 449.4	13.88 ± 11.76	13.62 ± 13.72	138.5 ± 190.7	18.13 ± 13.48	3.249 ± 2.554	0.488 ± 0.408	2.433 ± 2.408	2.546 ± 2.400	21.84 ± 23.51	0.748 ± 0.683	0.135 ± 0.080

표 13. 국내외 참고 지역과 본 연구지역의 에어로졸 시료 중 주요 미량금속 원소 농도

Location	City	Character	Period	Size	Pb (ng m <sup>-3</sup> )	Cu (ng m <sup>-3</sup> )	Zn (ng m <sup>-3</sup> )	Cd (ng m <sup>-3</sup> )	As (ng m <sup>-3</sup> )	Sb (ng m <sup>-3</sup> )	Ba (ng m <sup>-3</sup> )	Mo (ng m <sup>-3</sup> )	Tl (ng m <sup>-3</sup> )	
Japan	Sapporo	Urban city	1974-1996 <sup>1</sup>	TSP	43.9	20.9	149		2.93					
	Koyto			TSP	70.8	23.0	196.3		4.65					
	Osaka			TSP	173.6	20.9	327.8							
	Tokyo			TSP	125	30.2	299		3.73					
			1995-2000 <sup>2</sup>		64.4	27.4	233	1.8	2.2	8.8	18.8	2.7		
	Hidaka		1989-1990 <sup>3</sup>		2.1-7.0	0.52-1.8	3.3-9.6	0.040-0.12					0.011-0.041	
	Kofu		1996, Winter		14-78	1.0-2.5	12-22.5		9.30					
	Kanazawa		2003, Summer	TSP	5.75	18.04	1386.17	0.45						
China	Hong Kong <sup>4</sup>	Airborne		TSP	79	88	140							
				Traffic	PM10	98740	35380	340						
					PM2.5	76860	17320	290						
		Industry		2000-2001, Winter	PM10	100520	63530	460		6.44				
				PM2.5	91620	36780	380		5.07					
		Urban		PM10	62750	15330	130		3.62					
		PM2.5	60130	9710	120		2.79							
	Shanghai		2001-2002, Winter	PM10	515	171	1409	10.9	42.1	22.7	2479	6.3		
		2004-2005 <sup>5</sup>	PM2.5	67-149	26-54	300-681	1.6-4.6	28-36	21-33	8-15				
	Xi'an		2007-2008 <sup>6</sup>	PM2.5	306		1607		27					
Taiwan			1990-1995 <sup>7</sup>		90	250	380	10	50	70	50			
	Taichung <sup>8</sup>	Temple		PM2.5-10	120	14	119							
		Inland urban		PM10	150		190							
	Kaoshiung <sup>9</sup>	Inland industrial		PM10	80		320							
		Coastal industrial		PM10	190		540							
	Coastal urban		PM10	340		340								
Korea	Seoul <sup>10</sup>	Urban		PM2.5	96.4	27.8	163							
				PM10	124	50.1	302							
	Daejeon <sup>11</sup>	Industrial		TSP	260	54.9	220							
				PM10	195	32.4	277							
	Daejeon <sup>12</sup>	Industrial	1997-1999, Spring		251	33.2	208	2.78	5.54	13.19	27.5			
			1997-1999, Summer		204	31.6	129	4.19	3.80	6.55	18.7			
			1997-1999, Fall		262	47.8	273	2.68	6.85	6.25	32.4			
			1997-1999, Winter		251	56.6	298	3.39	7.72	7.14	32.2			
	Gwangju <sup>13</sup>	Urban	2007-2008	PM10	61.5		176.0	1.5	5.5	11.1				
	Hanam	Industrial	2007, Spiring	PM10	146.0		484.7	2.0	8.9	14.1				
	Yeosu		2008, Winter	PM10	146.8		544.0	0.5	10.0	34.1				
	Korea	Ieodo <sup>14</sup>	Science station	2015, Summer, Fall	PM2.5-10	3.4	0.8	11	0.09	0.7	0.57	1.2	0.14	0.06
		Ulsan	Rural		TSP	1.6	1.3	17	0.05	0.7	0.17	3.2	0.07	0.03
Ulleungdo		Island		TSP	1.8	0.6	592	0.02	0.7	0.38	2.5	0.08	0.04	
Jejudo		University		TSP	2.2	17	10	0.05	0.4	0.22	1.8	0.12	0.03	
Jindo		Coastal rural		TSP	2.9	4.2	37	N/A	0.5	0.27	2.7	0.10	0.07	
Yeosu		Industrial		TSP	3.5	5.4	24	0.07	0.6	0.69	6.5	0.70	0.05	
Gangreung		Urban		TSP	5.1	2.1	19	N/A	1.6	1.0	6.6	0.18	0.30	
Pohang Univ		Industrial		TSP	5.5	2.6	35	0.08	1.4	0.50	4.5	0.28	0.06	
Yeonpyeongdo		Island		TSP	6.3	1.9	556	0.14	1.4	0.49	6.8	0.14	0.07	
Gwanghyewon		Rural		TSP	10	10	51	0.44	1.7	1.6	5.5	0.56	0.11	
Incheon		Urban		TSP	10	49	44	0.28	1.2	1.3	12	0.47	0.07	
Danyang		Rural		TSP	11	4.6	33	N/A	0.5	0.14	14	0.05	0.19	
Taeon		Coastal rural		TSP	11	3.0	31	0.26	1.5	1.2	6.3	0.44	0.09	
Gumi		Industrial		TSP	12	6.0	11	N/A	0.5	1.1	3.7	0.09	0.12	
Yeongju		Rural		TSP	13	10	48	0.31	1.4	2.3	23	0.45	0.16	
Ewha Univ		Urban		TSP	16	26	53	0.44	4.4	5.2	63	1.14	0.13	
Bucheon		Urban		TSP	18	45	119	0.54	2.2	7.0	77	1.70	0.13	
Daejeon	Urban		TSP	24	25	98	0.81	3.3	5.3	40	1.64	0.16		
Suwon	Urban		TSP	25	39	101	1.06	2.3	5.8	59	1.59	0.12		
Busan	Urban		TSP	32	16	110	1.03	8.9	5.6	17	1.62	0.21		
Ulsan	Industrial		TSP	35	23	480	1.07	7.2	4.1	21	1.63	0.19		
Seoul	Urban		TSP	36	23	127	0.92	4.4	4.3	37	1.47	0.29		

1: Var et al.(2000), 2: Iijima(2001), 3: Katoh et al(1996), 5: Chen et al(2008), 4: Lau and Luk(2001), 6: Xu et al.(2012), 7: Wang et al(1998), 8: Fang et al.(2003), 9: Chen et al.(2003), 10: Kim et al.(2003), 11: Kim et al.(2002), 12: Kim et al.(2002), 13: Park et al.(2010), 14: This study.

#### IV. 토의

##### 가. 이어도의 주요 미량금속 원소 농도 변화

###### 가-1. 이어도의 시간에 따른 주요 미량금속 원소 농도 변화

시간에 따른 이어도 지역의 주요 미량금속 원소 농도 변화를 그림 16과 그림 17에 나타내었다. Pb, Cu, Zn, Cd, As, Fe, Sb, Ba, Mo, Tl의 농도 모두에서 이어도 22번 시료(9월 9일 경)부터 대기 중 금속 농도가 증가하는 현상이 관찰되었으며, 이후  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비가 급격하게 커지는 경향을 나타낸 이어도 28번 시료(10월 18일 경)부터는 모든 금속 원소의 농도가 감소하였다. 또한 이어도의 미량금속 이온 농도는 8월 10일부터 8월 15일까지 채취된 이어도 14 시료에서 두드러지게 높은 값을 나타내는 특징을 보였는데, 이와 같은 현상은 아연을 제외한 모든 금속 원소에서 관찰되었다.

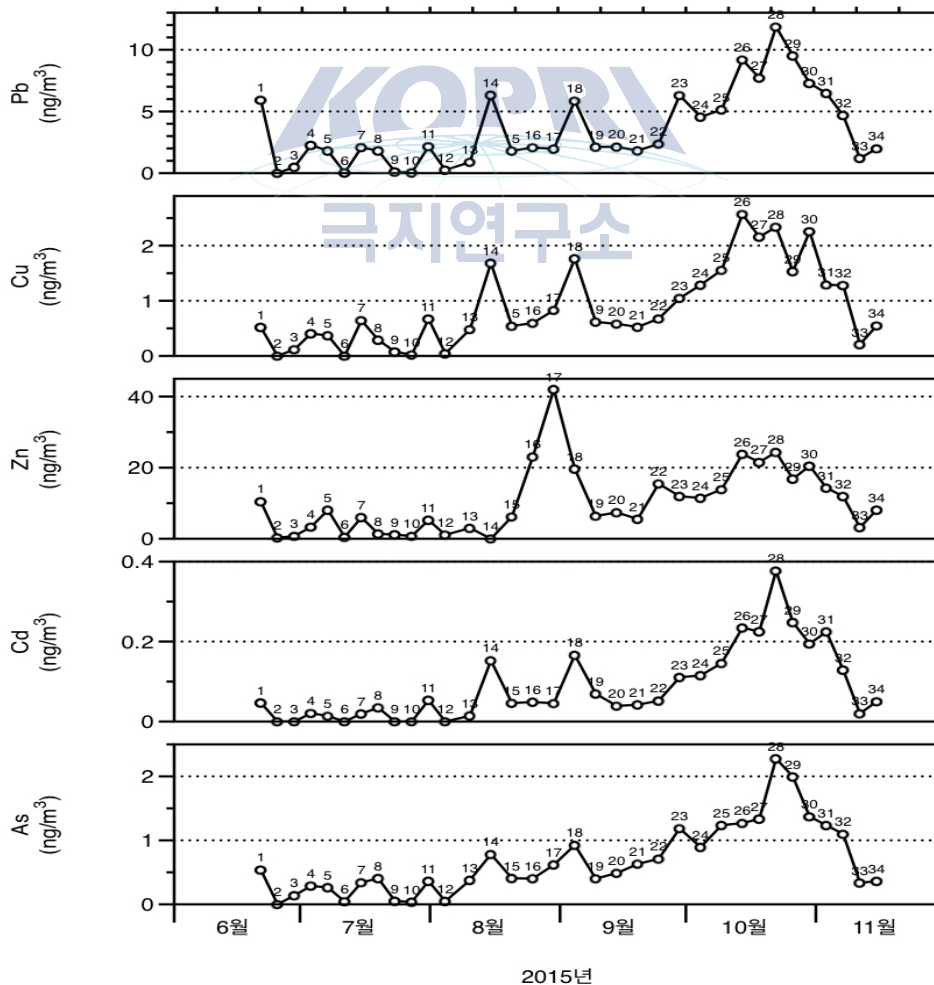


그림 16. 시간에 따른 이어도 지역의 Pb, Cu, Zn, Cd, As의 농도 변화

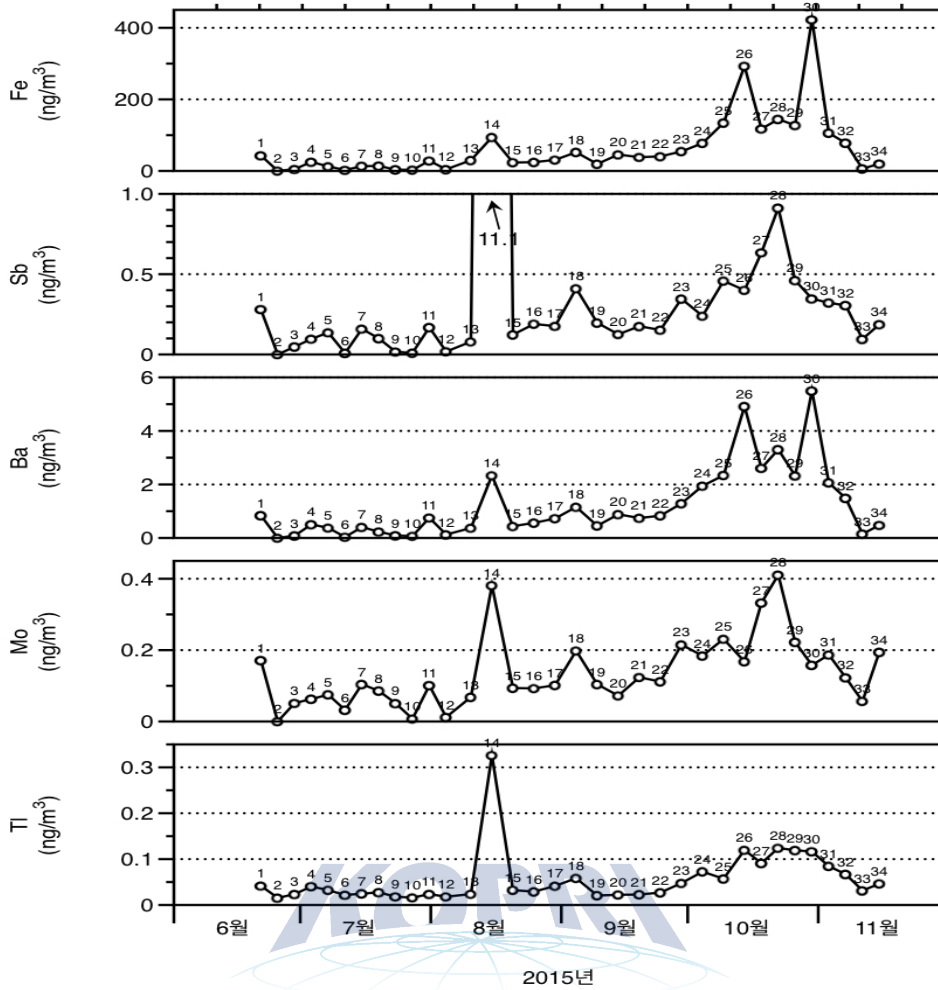


그림 17. 시간에 따른 이어도 지역의 Fe, Sb, Ba, Mo, Tl의 농도 변화

표 14는 이어도의 미량금속 원소 사이의 상관관계를 정리한 표이다. 이어도에서는 몰리브덴과 안티모니, 카드뮴과 납, 카드뮴과 비소, 마름과 철, 납과 비소 사이의 상관관계가 0.9이상으로 높게 관찰되었다.

표 14. 이어도의 미량금속 원소 농도간의 상관관계( $R^2$ )

Ieodo	Mo	Cd	Sb	Ba	Tl	Pb	Fe	Cu	Zn	As
Mo										
Cd	0.76									
Sb	<b>0.92</b>	0.88								
Ba	0.82	0.79	0.52							
Tl	0.58	0.87	0.75	0.82						
Pb	0.77	<b>0.95</b>	0.86	0.80	0.87					
Fe	0.39	0.68	0.33	<b>0.96</b>	0.67	0.70				
Cu	0.73	0.87	0.78	0.89	0.83	0.88	0.79			
Zn	0.58	0.69	0.70	0.61	0.63	0.71	0.46	0.78		
As	0.76	<b>0.91</b>	0.85	0.85	0.82	<b>0.92</b>	0.61	0.82	0.65	

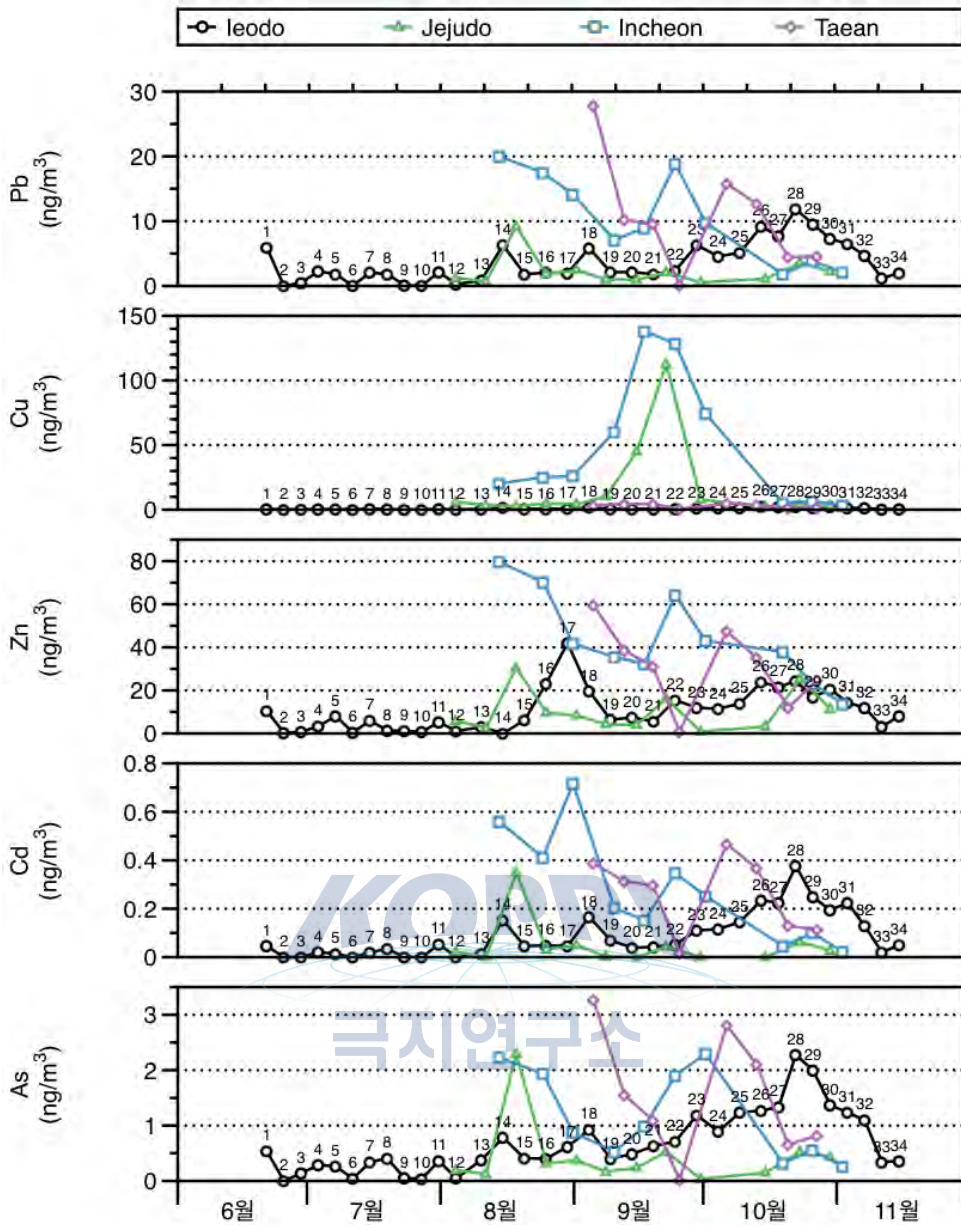
## 가-2. 시간에 따른 연속 시료 채취 지점 및 참고 지역의 미량금속 농도 변화

연속 시료 채취 지점의 시간에 따른 대기 중 납, 아연, 카드뮴 비소의 농도는 인천 및 태안지역과 비교하였을 때, 이어도와 제주도 지역에서 더 낮은 농도 값이 관찰되었다. 그러나 11월 초겨울에 이르러서는 이어도지역의 미량금속 농도가 제주 지역뿐만 아니라 다른 연속 시료 채취 지점보다 높은 값을 나타내었다(그림 18).

미량 금속 중 구리의 농도는 이어도와 태안지역에서는 꾸준히 낮은 값을 유지하였지만, 인천과 제주도 지역의 경우 구리의 농도가 9월 말에 이르러 높아졌다가 이후 다시 낮아지는 특징이 나타났다. 이어도와 제주도 지역에서 구리를 제외한 대부분의 금속원소의 농도가 유사한 경향이 나타난 것과는 두드러지는 차이점이라고 할 수 있다.

본 연구 기간 동안 연속 시료 채취지점과 이어도 지역의 Fe, Sb, Ba, Mo, Tl 농도는 그림 19와 같다. 이들 금속원소는 이어도 14번 시료에서 눈에 띄게 높은 농도를 기록하였고, 특히 안티모니의 농도는 다른 원소들에 비하여 매우 높은 값을 나타내었다. 그러나 비슷한 시기에 채취된 제주도 및 인천과 태안지역 시료에서는 이러한 현상이 관찰되지 않았는데, 이러한 사실은 해당 시기에 이어도 지역과 한반도 지역에 영향을 미친 기류가 서로 달라 금속 이온의 농도 변화를 가져온 결과로 판단된다.





2015년

그림 18. 시간에 따른 이어도 지역과 연속 시료 채취지점의 대기 중 Pb, Cu, Zn, Cd, As의 농도 변화

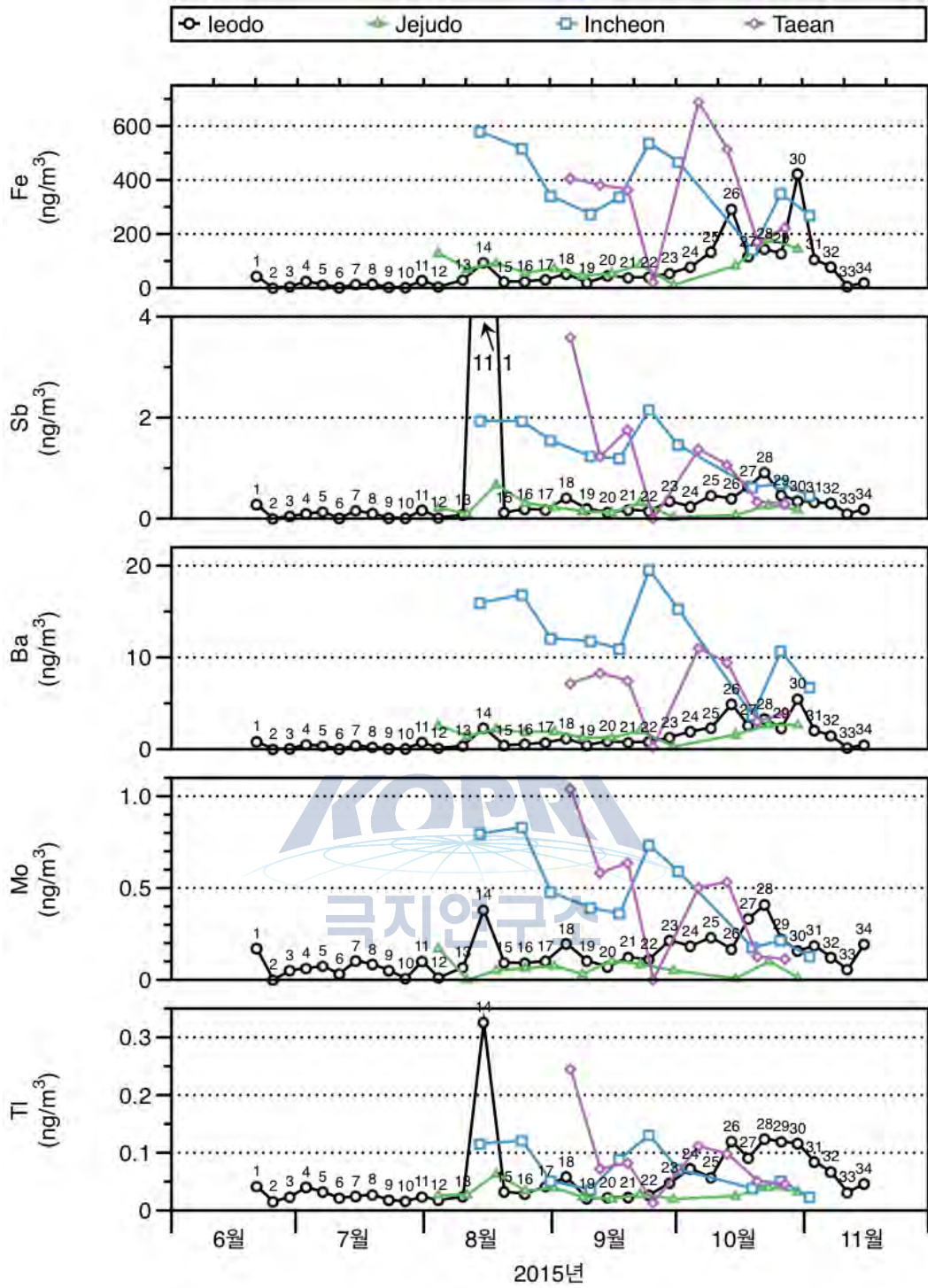


그림 19 시간에 따른 이어도 지역과 연속 시료 채취지점의 대기 중 Fe, Sb, Ba, Mo, Tl의 농도 변화

연속 시료 채취 지점의 미량금속원소 농도 사이의 상관관계는 지역마다 약간의 차이를 나타내었다(표 15, 16, 17). 제주도와 인천에서는 공통적으로 몰리브덴과 납의 상관관계가 높게 관찰되었고, 인천은 다른 두 지역에 비해 높은 상관관계를 가지는 원소가 적었다.

표 15. 제주도 미량금속 원소 농도간의 상관관계(R<sup>2</sup>). R<sup>2</sup>이 0.9 이상인 경우 Bold체 표시

Jejudo	Mo	Cd	Sb	Ba	Tl	Pb	Fe	Cu	Zn	As
Mo										
Cd	<b>0.98</b>									
Sb	0.88	0.85								
Ba	0.30	0.49	0.26							
Tl	0.79	0.85	0.81	0.28						
Pb	<b>0.93</b>	<b>0.97</b>	0.85	0.55	<b>0.91</b>					
Fe	0.16	0.39	0.08	0.81	0.15	0.55				
Cu	0.39	0.05	0.06	0.11	0.16	0.06	0.09			
Zn	0.66	0.66	0.75	0.39	0.75	0.78	0.33	0.08		
As	<b>0.98</b>	<b>0.98</b>	0.86	0.54	0.83	<b>0.97</b>	0.44	0.17	0.70	

표 16. 인천의 미량금속원소 농도간의 상관관계(R<sup>2</sup>). R<sup>2</sup>이 0.9 이상인 경우 Bold체 표시

Incheon	Mo	Cd	Sb	Ba	Tl	Pb	Fe	Cu	Zn	As
Mo										
Cd	0.51									
Sb	<b>0.93</b>	0.58								
Ba	0.82	0.36	0.85							
Tl	0.77	0.23	0.75	0.70						
Pb	<b>0.91</b>	0.67	<b>0.95</b>	0.77	0.76					
Fe	0.82	0.35	0.73	0.87	0.75	0.77				
Cu	0.09	0.00	0.19	0.22	0.23	0.10	0.08			
Zn	0.86	0.45	0.79	0.55	0.73	0.82	0.62	0.02		
As	0.83	0.29	0.71	0.73	0.69	0.67	0.84	0.12	0.66	

표 17. 태안의 미량금속원소 농도간의 상관관계(R<sup>2</sup>). R<sup>2</sup>이 0.9 이상인 경우 Bold체 표시

Taeon	Mo	Cd	Sb	Ba	Tl	Pb	Fe	Cu	Zn	As
Mo										
Cd	0.67									
Sb	<b>0.93</b>	0.50								
Ba	0.49	<b>0.93</b>	0.28							
Tl	0.81	0.50	<b>0.92</b>	0.26						
Pb	0.86	0.66	0.89	0.43	<b>0.97</b>					
Fe	0.41	<b>0.92</b>	0.26	<b>0.95</b>	0.29	0.45				
Cu	0.55	0.84	0.34	0.89	0.22	0.37	0.77			
Zn	0.82	0.82	0.74	0.68	0.76	0.88	0.66	0.60		
As	0.71	0.83	0.67	0.64	0.79	<b>0.91</b>	0.70	0.48	<b>0.91</b>	

참고지역들의 미량금속 원소 농도들의 상관관계를 산업지역과 도시지역, 비도시 지역으로 나누어 정리하였다(표 18, 19, 20). 산업지역에서는 미량금속원소들 사이의 상관관계가 매우 높게 관찰되었는데, 몰리브덴과 탈륨을 제외한 대부분의 원소 농도 사이에 높은 상관관계가 나타났다. 반면에 도시지역과 비도시지역은 원소들 간 낮은 상관관계를 가졌는데, 이는 산업지역이 도시와 비도시지역에 비해 인간활동에 의한 영향을 크게 받았기 때문인 것으로 사료된다. 이러한 사실은 납이나 아연 등 평소 인간활동의 영향을 크게 받는 것으로 알려진 원소에서 더욱 크게 관찰되었다.

표 18. 참고지역 중 산업 지역의 미량금속원소 농도간의 상관관계( $R^2$ ).  $R^2$ 이 0.9 이상인 경우 Bold체 표시

Industrial	Mo	Cd	Sb	Ba	Tl	Pb	Fe	Cu	Zn	As
Mo										
Cd	0.47									
Sb	0.42	<b>0.97</b>								
Ba	0.63	<b>0.95</b>	<b>0.90</b>							
Tl	0.35	0.69	0.84	0.66						
Pb	0.28	0.88	<b>0.97</b>	0.77	0.89					
Fe	0.55	<b>0.98</b>	<b>0.93</b>	<b>0.99</b>	0.66	0.82				
Cu	0.59	<b>0.95</b>	<b>0.97</b>	<b>0.95</b>	0.82	<b>0.90</b>	<b>0.95</b>			
Zn	0.37	<b>0.99</b>	<b>0.97</b>	<b>0.92</b>	0.69	<b>0.90</b>	<b>0.96</b>	<b>0.92</b>		
As	0.44	<b>1.00</b>	<b>0.98</b>	<b>0.94</b>	0.72	<b>0.91</b>	<b>0.97</b>	<b>0.96</b>	<b>0.99</b>	

표 19. 참고지역 중 도시 지역의 미량금속원소 농도간의 상관관계( $R^2$ ).  $R^2$ 이 0.9 이상인 경우 Bold체 표시

Urban	Mo	Cd	Sb	Ba	Tl	Pb	Fe	Cu	Zn	As
Mo										
Cd	0.78									
Sb	<b>0.90</b>	0.56								
Ba	0.47	0.15	0.68							
Tl	0.00	0.01	0.02	0.09						
Pb	0.67	0.87	0.43	0.09	0.09					
Fe	0.60	0.22	0.73	<b>0.92</b>	0.06	0.19				
Cu	0.68	0.34	0.81	<b>0.90</b>	0.07	0.21	0.88			
Zn	0.85	0.75	0.64	0.27	0.01	0.77	0.45	0.51		
As	0.22	0.34	0.17	0.01	0.07	0.44	0.00	0.00	0.19	

표 20. 참고지역 중 비도시 지역의 미량금속원소 농도간의 상관관계( $R^2$ ).  $R^2$ 이 0.9 이상인 경우 Bold체 표시

Rural	Mo	Cd	Sb	Ba	Tl	Pb	Fe	Cu	Zn	As
Mo										
Cd	0.79									
Sb	0.65	0.50								
Ba	0.04	0.06	0.49							
Tl	0.40	0.81	0.13	0.00						
Pb	<b>0.93</b>	<b>0.94</b>	0.59	0.08	0.72					
Fe	0.18	0.25	0.64	<b>0.92</b>	0.08	0.28				
Cu	0.49	0.65	0.88	0.35	0.23	0.62	0.52			
Zn	0.56	0.79	0.56	0.04	0.44	0.70	0.15	0.81		
As	<b>0.91</b>	0.80	0.29	0.00	0.78	0.88	0.06	0.30	0.48	

### 가-3. 이어도와 한반도 및 주변 국가들의 주요 미량원소 농도 비교

그림 20~24는 본 연구에서 분석한 이어도 및 한반도 지역과 주변 국가들의 대기 시료 중 주요 미량금속 원소의 농도를 나타낸 자료이다. 본 연구의 결과로 얻어진 이어도 및 기타 한반도 참고지역의 납 농도는 사전에 우리나라를 대상으로 진행되었던 연구결과들과 비교하였을 때 상당히 낮은 수준인 것으로 관찰되었다(그림 20). 특히 2000년대에 이르러 진행된 연구 결과를 살펴보면, 1990년대와 비교하여 납 및 기타 미량금속 원소들의 농도가 상당히 낮아진 현상을 볼 수 있는데, 2015년에 수행된 본 연구 결과에서는 모든 지역에서 국내 2000년대의 대기 중 납 농도보다 낮은 농도 값을 나타내었다. 국내 비교 결과와 마찬가지로 우리나라와 인접한 주변국들의 납 농도와 비교하였을 때에도 그 수준이 상당히 낮은 결과를 얻었으며, 특히 1990년대는 물론이고 2000년대에 이르러서도 높은 대기 중 납 농도를 유지하고 있는 중국과 비교 하였을 때 국내의 대기 중 납 농도가 뚜렷하게 낮은 수준임을 알 수 있었다. 국내의 일부 도시지역(서울, 울산, 부산 등)이 비교적 높은 ( $30 \text{ ng m}^{-3}$  이상) 납 농도를 나타내었으나, 이러한 농도 값 역시 주변국들과 비교하였을 때에는 높은 수준이 아닌 것으로 보인다.

반면에 대기 중 구리의 농도는 국내 일부 지역에서  $40 \text{ ng m}^{-3}$  이상의 농도를 나타내는 지역이 관찰 되었는데, 이는 중국을 제외한 주변국들의 대기 농도와 비교하였을 때 상당히 높은 수준에 속하는 결과였다.

본 연구의 대기 중 아연 농도와 카드뮴 농도 역시 주변국들과 비교 하였을 때 비슷하거나 낮은 수준을 나타내는 것으로 밝혀졌으며, 아연의 경우 원격지에 해당하는 울릉도( $592 \text{ ng m}^{-3}$ )와 연평도( $556 \text{ ng m}^{-3}$ )에서 매우 높은 값이 관찰되었다. 두 지역 모두 산업지역이나 도시지역과 멀리 떨어진 섬으로, 두 지역에서 높은 아연 농도가 관측된 것은 인위적인 배출원에 외에 다른 sources의 영향을 받았을 가능성이 큰 것으로 추정된다. 대기 중 카드뮴 농도는 아연과 다르게 대부분의 도시와 산업지역에서 비도시 지역보다 높은 농도를 기록하였다.

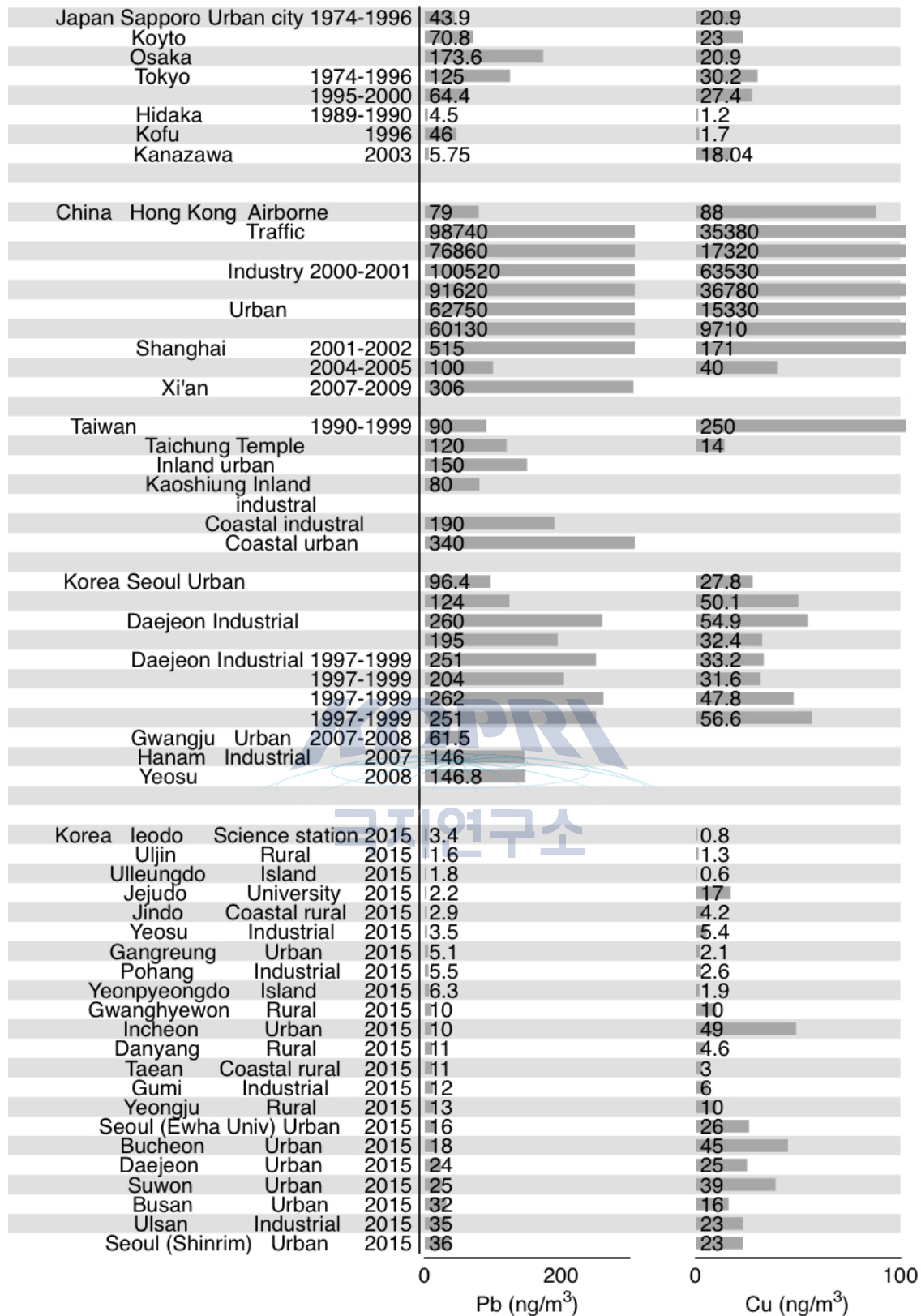


그림 20. 본 연구 지역과 국내외 참고 지역의 대기 중 Pb, Cu농도 비교

1: Var et al.(2000), 2: Iijima(2001), 3: Katoh et al(1996), 5: Chen et al(2008), 4: Lau and Luk(2001), 6: Xu et al.(2012), 7: Wang et al(1998), 8: Fang et al.(2003), 9: Chen et al.(2003), 10: Kim et al.(2003), 11: Kim et al.(2002), 12: Kim et al.(2002), 13: Park et al.(2010).



그림 21. 본 연구 지역과 국내의 참고 지역의 대기 중 Zn, Cd농도 비교

1: Var et al.(2000), 2: Iijima(2001), 3: Katoh et al(1996), 5: Chen et al(2008), 4: Lau and Luk(2001), 6: Xu et al,(2012), 7: Wang et al(1998), 8: Fang et al.(2003), 9: Chen et al.(2003), 10: Kim et al.(2003), 11: Kim et al.(2002), 12: Kim et al.(2002), 13: Park et al.(2010).

다음으로 비소와 안티모니의 대기 중 농도를 살펴보면, 두 금속 원소가 상당히 유사한 경향을 가지는 것을 관찰 할 수 있다(그림 22). 이 두 원소는 인위적인 석탄 연소 등에 의해 배출되어지는 원소로 주로 중국 지역에서 매우 높은 농도를 가지는 것으로 알려져 있다. 그림 21에서 역시 중국 지역의 비소 및 안티모니 농도가 인근 주변국과 비교하였을 때 상당 수준 이상의 높은 값을 나타내는 사실을 확인 할 수 있다. 본 연구의 결과 얻어진 대기 중 비소와 안티모니의 농도 값을 인근 지역과 비교하였을 때, 일본의 1990년대 수치와 유사하였으며, 두 원소 모두 도시지역에서 높게 나타나는 경향을 보였다.

그러나 비소가 국내에서 진행된 기존의 연구 결과들과 크게 다르지 않은 농도 값을 나타낸 사실과는 반대로, 안티모니의 경우 1990년대 및 2000년대의 국내 대기 중 농도보다 전반적으로 낮은 값을 나타내었다.

그림 22는 대기 미량금속 원소 중 몰리브덴과 탈륨의 농도를 제시하고 있다. 국내 대기 중 몰리브덴 농도는 가장 낮은 농도를 나타내는 원격지의 경우 중국에 비해 약 60배, 일본에 비해 약 20배 낮게 관찰되었고, 가장 높은 농도를 보이는 도시 지역은 중국에 비해 약 6배, 일본에 비해 약 2배 낮은 값을 보였다. 탈륨의 농도는 일본 지역과 유사하게 관찰되었다. 그러나 두 원소 모두 대기 중 소량으로 존재하는 금속 이온으로, 특히 탈륨의 경우 그 농도가 매우 미량이기 때문에(본 연구에서 조사된 농도의 범위는  $0.03-0.29 \text{ ng m}^{-3}$ 이었다.) 기존에 진행된 연구의 결과 데이터가 부족하여 비교 대상이 제한적이었다. 이들 원소에 대해서는 앞으로 더욱 광범위한 연구가 필요 한 것으로 판단된다.

마지막으로 주요 미량금속원소 중 바륨의 농도에 대해 살펴보면, 본 연구기간동안 조사된 대상 지역의 대부분의 금속 이온 농도와 마찬가지로 도시지역에서 비도시 지역보다 높은 농도를 나타내었다(그림 24). 또한 2001-2002년도 중국 상하이에서 관측된 매우 높은 농도 값( $2479 \text{ ng m}^{-3}$ )을 제외하면, 기존에 연구된 아시아지역의 대기 중 농도 범위와 유사하였다.

결과적으로 이어도의 대기 중 에어로졸에서 분석된 주요 미량원소의 농도는 한반도 및 선행 연구된 동북아 지역의 분석 결과 보다 현저히 낮은 값을 보였으며, 이를 통해 이어도는 우리나라에서 가장 청정한 지역 중 하나라는 것을 알 수 있다.



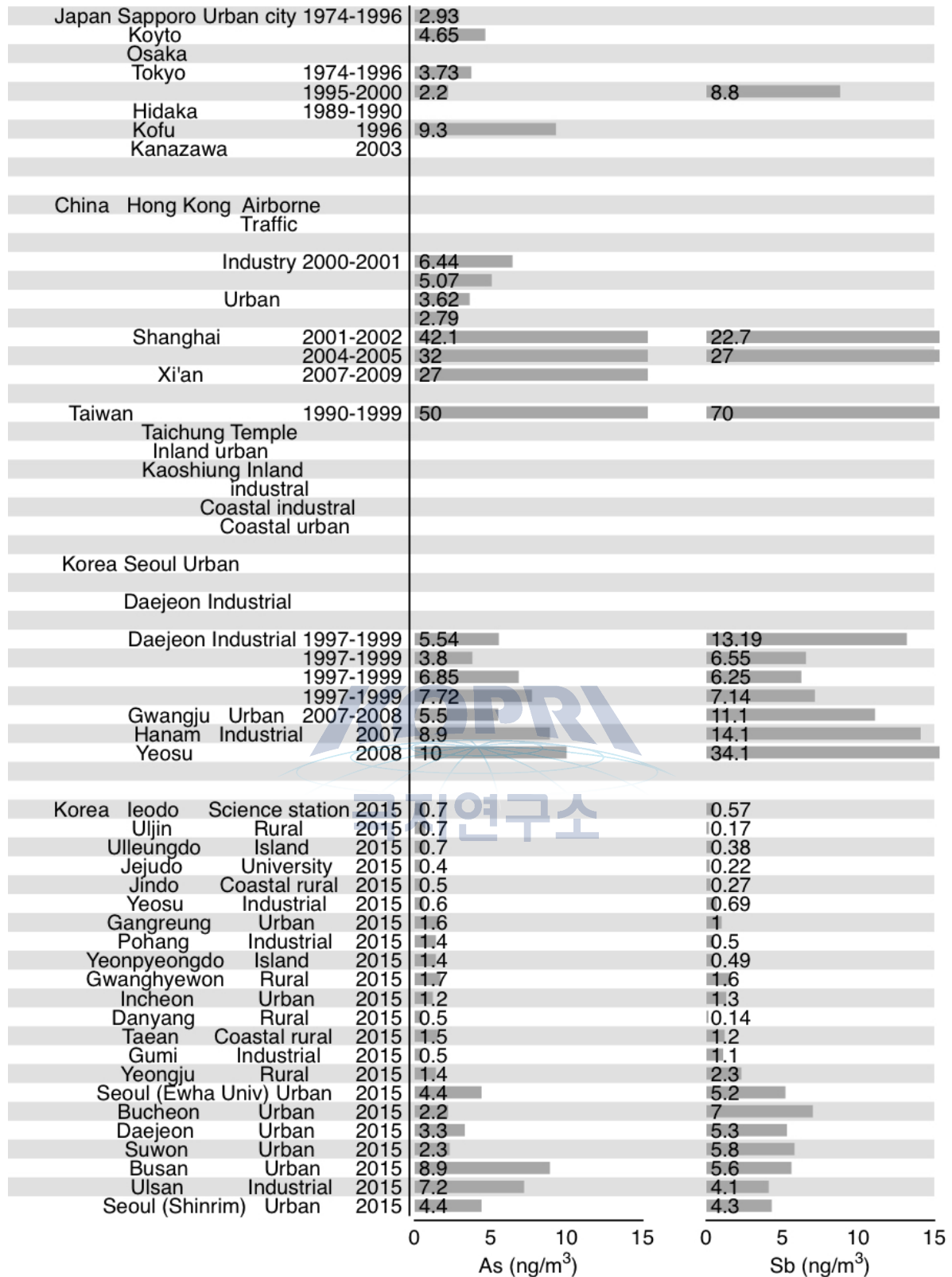


그림 22 본 연구 지역과 국내외 참고 지역의 대기 중 As, Sb농도 비교

1: Var et al.(2000), 2: Iijima(2001), 3: Katoh et al.(1996), 5: Chen et al.(2008), 4: Lau and Luk(2001), 6: Xu et al.(2012), 7: Wang et al.(1998), 8: Fang et al.(2003), 9: Chen et al.(2003), 10: Kim et al.(2003), 11: Kim et al.(2002), 12: Kim et al.(2002), 13: Park et al.(2010).

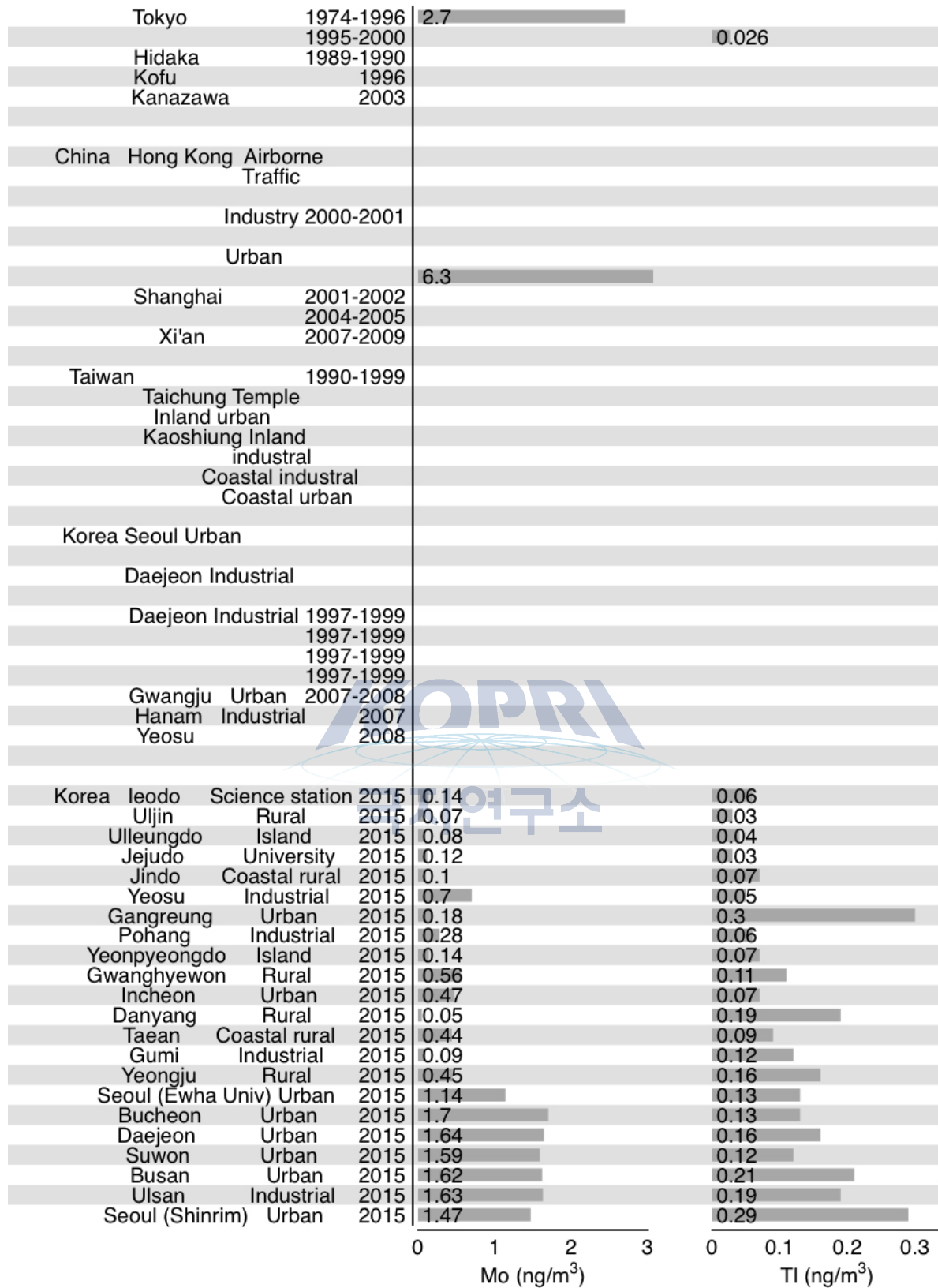


그림 23. 본 연구지역과 국내외 참고 지역의 대기 중 Mo, Tl농도 비교

1: Var et al.(2000), 2: Iijima(2001), 3: Katoh et al.(1996), 5: Chen et al.(2008), 4: Lau and Luk(2001), 6: Xu et al.(2012), 7: Wang et al.(1998), 8: Fang et al.(2003), 9: Chen et al.(2003), 10: Kim et al.(2003), 11: Kim et al.(2002), 12: Kim et al.(2002), 13: Park et al.(2010).

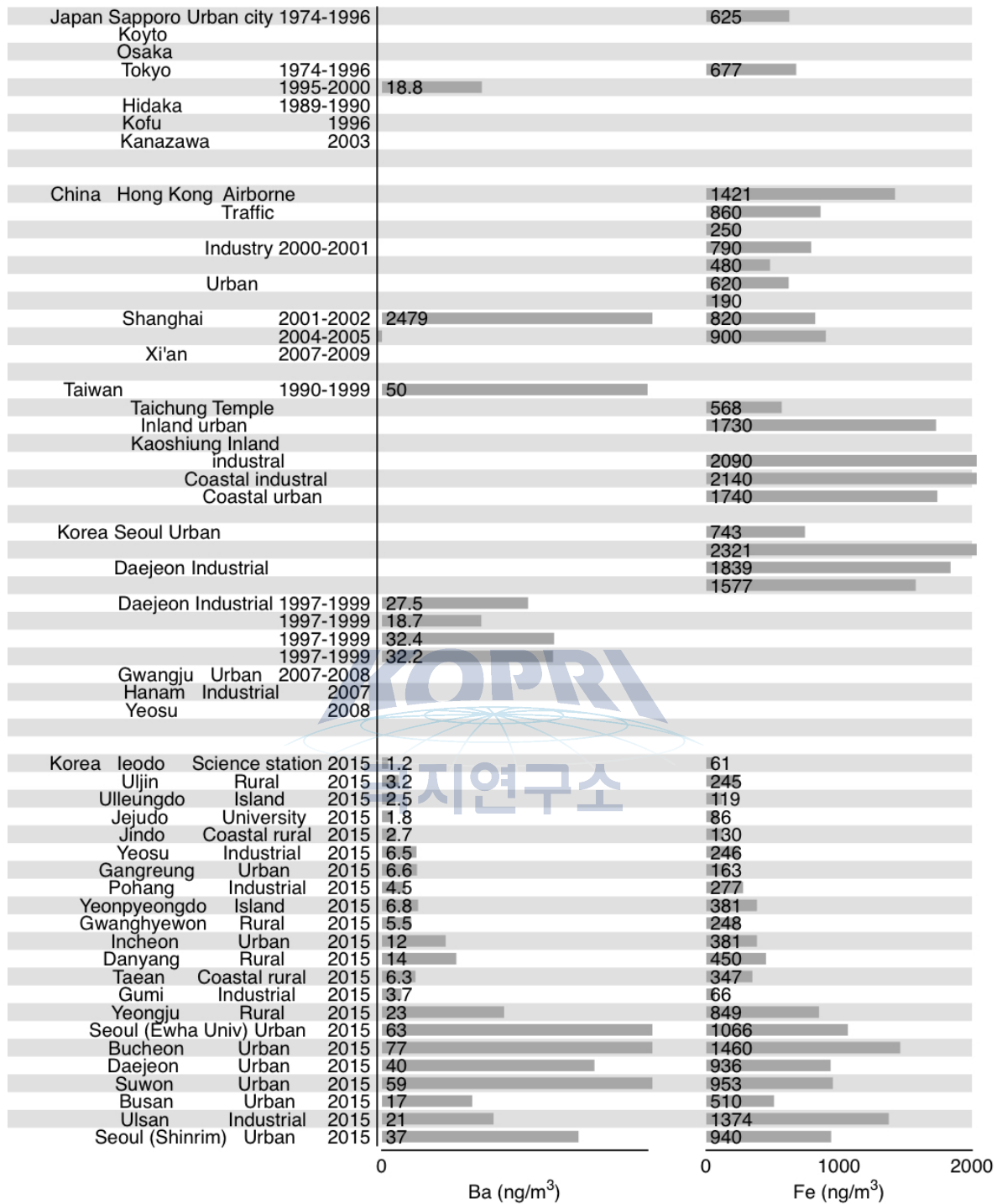


그림 24. 본 연구지역과 국내외 참고 지역의 대기 중 Ba, Fe 농도 비교

1: Var et al.(2000), 2: Iijima(2001), 3: Katoh et al.(1996), 5: Chen et al.(2008), 4: Lau and Luk.(2001), 6: Xu et al.(2012), 7: Wang et al.(1998), 8: Fang et al.(2003), 9: Chen et al.(2003), 10: Kim et al.(2003), 11: Kim et al.(2002), 12: Kim et al.(2002), 13: Park et al.(2010).

## 나. 이어도의 납 안정동위원소 조성과 납의 농도

### 나-1. 이어도의 시간에 따른 납 안정동위원소 조성과 납의 농도 변화

본 연구가 진행된 6월부터 11월 기간 동안 납 안정동위원소 비  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 의 변화를 그림 25에 나타내었다. 연구 기간 동안  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비가 급격하게 감소하는 현상이 관찰되었는데, 첫 번째 감소 현상은 이어도 3번 시료(6월 25일-6월 29일 채취)에서 관찰 되었으며 이후 이어도 20번 시료(9월 9일-9월 14일 채취)부터 뚜렷하게 낮아졌다가 점차 상승하는 경향이 나타났다. 이어도 지역의 납 농도 역시 같은 시기부터 상승하였다가 이어도 28번 시료가 채취된 10월 18일 경부터 감소하였다. 즉, 이를 통하여 이어도 지역에 우세한 영향을 주는 기류가 10월 18일 경부터 새로운 성질을 가지는 다른 기원의 기류로 바뀌었다고 추정 할 수 있다.

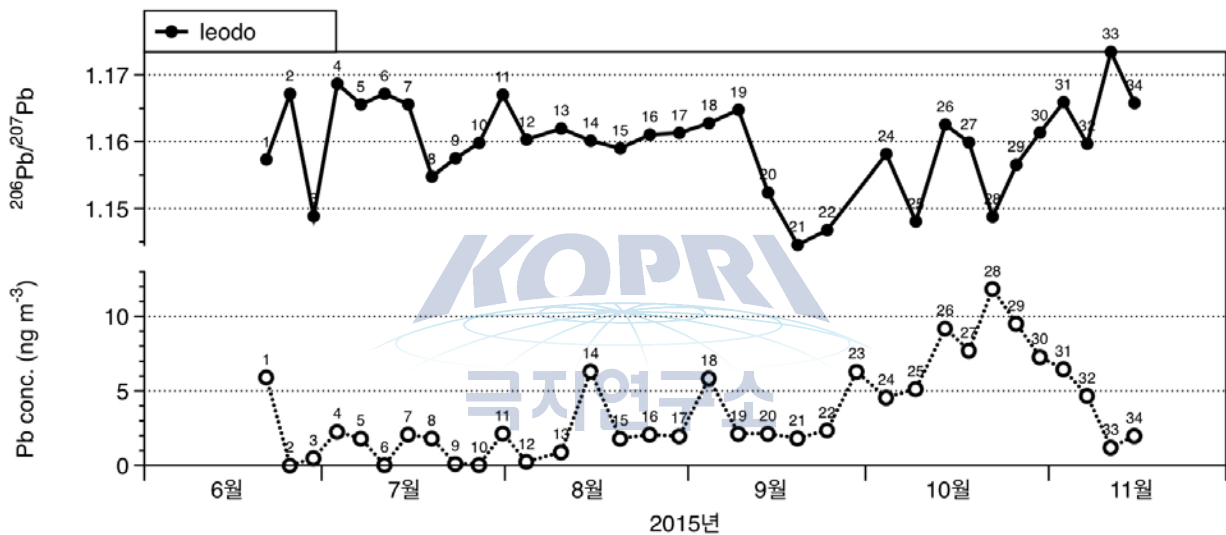


그림 25. 시간에 따른 이어도 지역의 납 안정동위원소  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비와 납 농도 변화

### 나-2. 시간에 따른 연속 시료 채취 지점과 한반도 참고 지역의 납 안정동위원소 조성

그림 26~28은 순서대로 시간에 따른 인천, 제주도, 태안지역의 납 안정동위원소 비와 납 농도의 변화를 나타내고 있다. 세 지역 모두  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비 값이 9월 말에서 10월 초 시기에 감소하는 비슷한 양상을 나타내었는데, 이는 이어도 지역에서 관찰되었던 현상과 일치한다. 따라서 이 시기의 한반도 역시 이어도 지역과 마찬가지로 일본과 한반도 북부를 지나 도달한 기류의 영향을 받은 것으로 추정된다. 반면 세 지역의 대기 중 납 농도는 각 지역 별로 고유한 변동을 가지는 양상을 나타내었다.

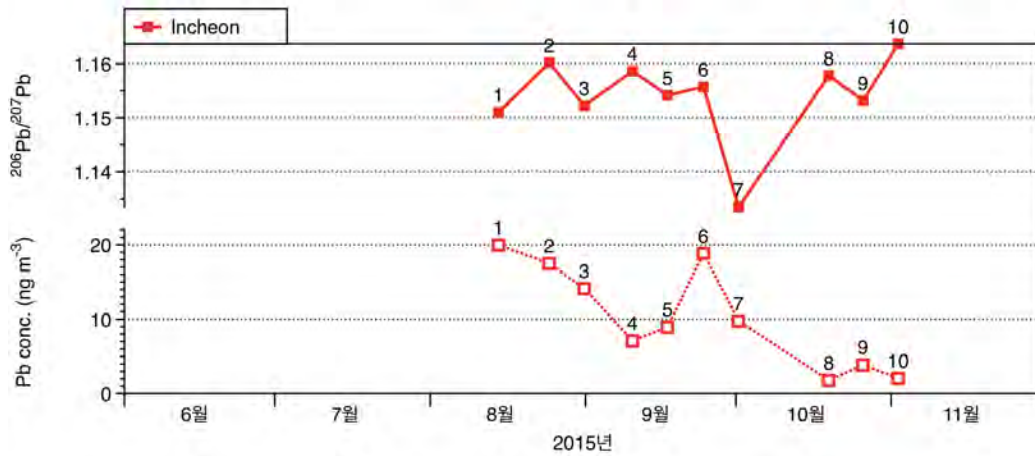


그림 26. 시간에 따른 인천 지역의  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  및 납 농도 변화

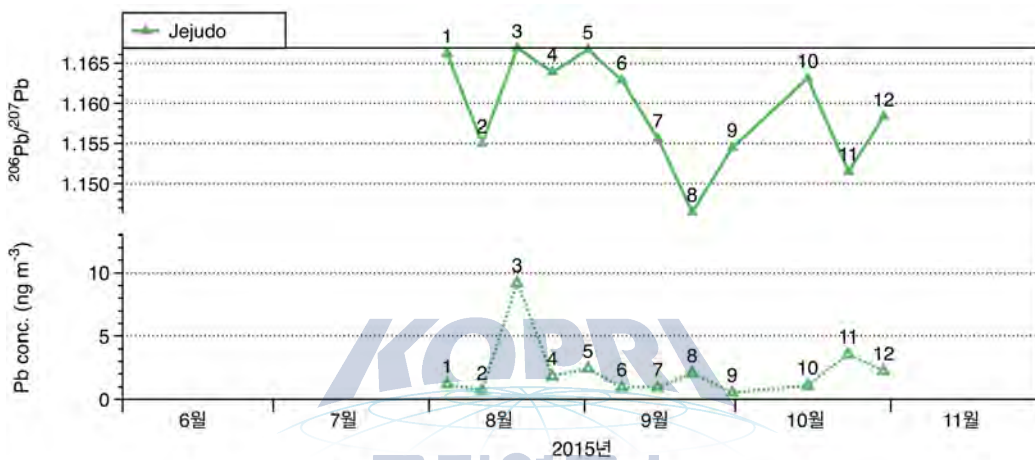


그림 27. 시간에 따른 제주도 지역의  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  및 납 농도 변화

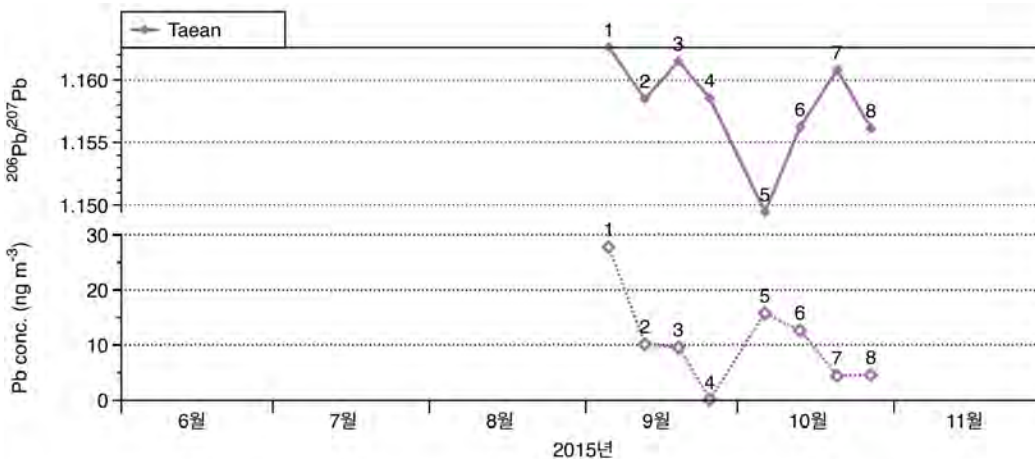


그림 28. 시간에 따른 태안 지역의  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  및 납 농도 변화

이어도 지역과 제주도 지역의 납 농도와  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비의 시간에 따른 변화를 동시에 그림 29에 나타내었다. 앞서 설명한 대로 다른 연속 시료 채취 지점과 비교하였을 때 이어도 지역은 제주지역과 가장 유사한  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비 값을 나타내었으며,

이러한 특징은 납 농도에서도 찾아 볼 수 있었다. 그러나 9월 말부터는 이어도 지역의 대기 중 납 농도가 점차 상승하였으며, 이 시기에 제주도 지역의 대기 중 납 농도보다 오히려 높게 관측되는 현상이 나타났다. 이어도 지역은 제주도보다 인간 활동에 의한 영향이 훨씬 적은 지역이기 때문에, 이와 같은 현상의 원인은 이어도 자체적인 납의 농도가 아니라, 외부로부터 높은 납 농도를 특징으로 하는 기류가 장거리 이동에 의해 이어도의 대기질에 영향을 준 것으로 판단되어 진다.

인천과 태안 지역의 납 안정 동위원소  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 의 비 역시 서로 상당히 유사한 경향을 나타내었으나, 대기 중 납의 농도는 일부시기에 반대 경향을 나타내기도 하였다(그림 30).

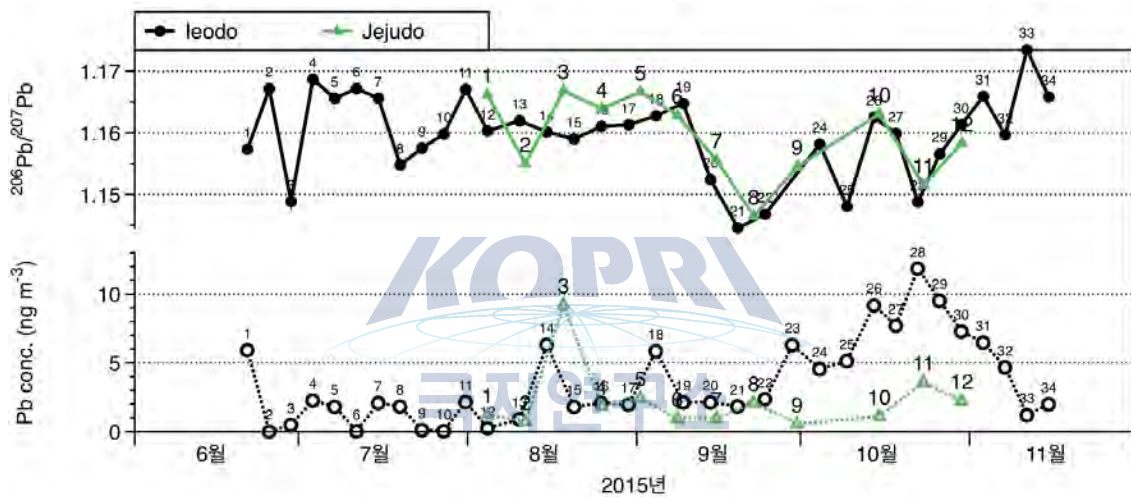


그림 29. 시간에 따른 이어도와 제주도 지역의  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  및 납 농도 변화

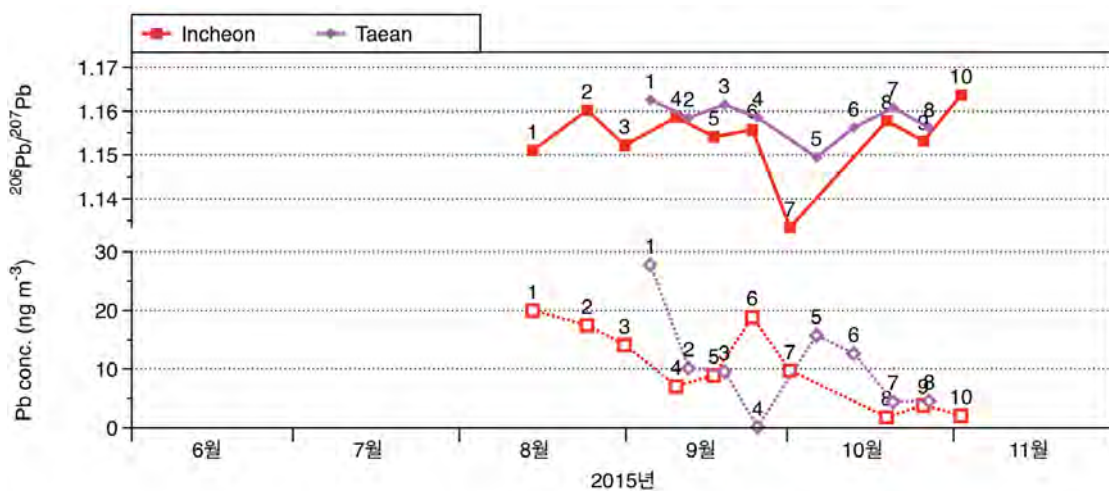


그림 30. 시간에 따른 인천과 태안 지역의  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  및 납 농도 변화



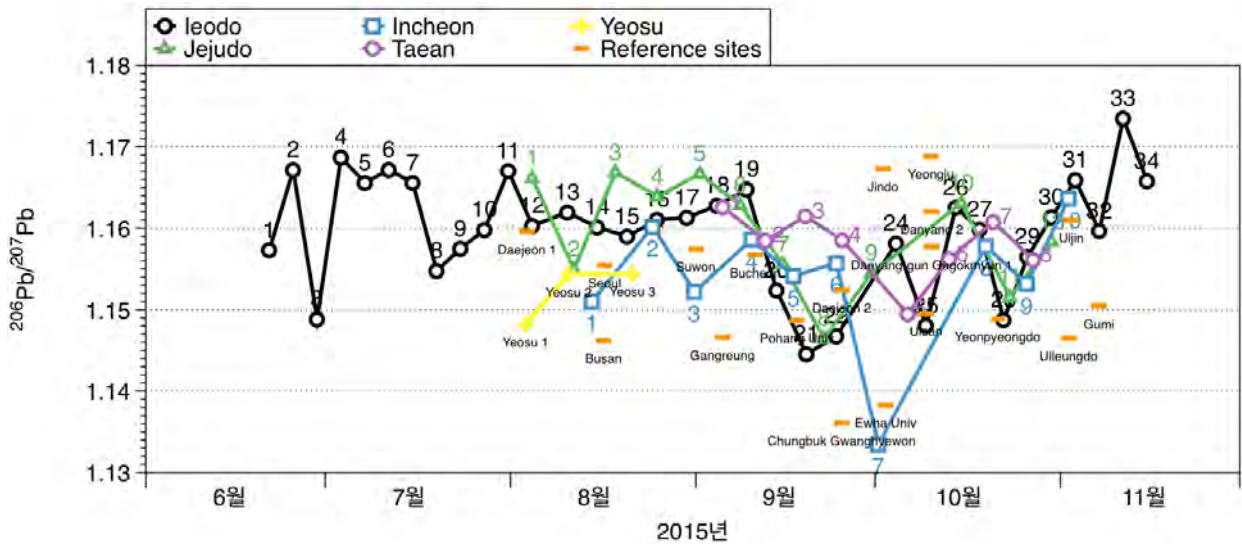


그림 32. 시간에 따른 이어도와 연속 시료 채취 지점 및 기타 참고지역의 납 안정동위원소  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비 변화

시간에 따른 납 안정동위원소  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비의 변화는 그림 33을 통하여 나타내었다. 앞선 그래프의  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비의 결과와는 반대로 이어도지역과 기타 연속 시료 채취 지점 사이에 큰 유사성이 관찰되지 않는 양상을 나타내었으며, 이어도지역은 시간에 따라 전반적으로  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비의 값이 약간 상승하는 경향을 보였지만 다른 지점들에서는 이러한 현상이 관찰 되지 않았다. 또한, 이어도 지역의  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 의 비가 11월에 이르러 감소하는 경향을 관찰 할 수 있었는데 이는 같은 시기에  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비가 감소하는 경향과는 반대되는 현상이었다.

연속 시료 채취지점 중 제주도 지역의  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비의 경향이 이어도 지역과 유사했던 현상과는 다르게  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비 에서는 이어도 지역과 차이가 나는 결과를 나타냈다. 특히 Jeju 9번 시료에서 오히려  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비가 감소하는 양상을 보였는데, 이 시기에는 제주도에 영향을 주는 대기 에어로졸의 기원지가 이어도와는 현저하게 달랐음을 추측할 수 있다.



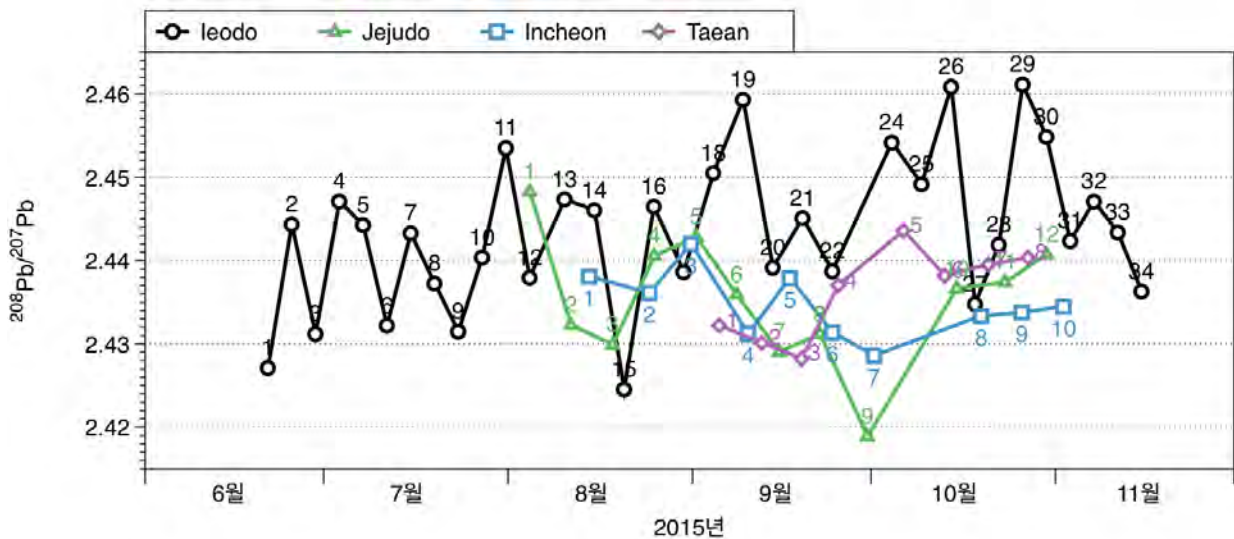


그림 33. 시간에 따른 이어도와 연속 시료 채취 지점의 납 안정동위원소  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비 변화

### 나-3. 납 안정동위원소 비( $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ )를 이용한 이어도 지역의 장거리 이동 오염원 추적

본 연구 결과를 포함한 우리나라 및 주변국에서 측정된 에어로졸 시료와 잠재적 오염원의 납 안정동위원소 비를 그림 34에 나타내었다. 우리나라의 잠재적 오염원들의  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비는 매우 다양한 범위 값을 가지는 것으로 조사되었으며, 본 연구의 이어도 및 국내 참고지역의 결과와 비교 하였을 때 그 값이 약간 크거나 유사한 경향을 나타내었다. 중국의 잠재적 오염원의  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 를 살펴보면 가연 휘발유를 사용한 자동차 배기에서 매우 낮은  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비를, 토양 시료에서 높은  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비를 나타내었고, 중국지역의 에어로졸 시료는 중국 석탄 및 중국 시멘트의  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비와 유사한 범위 값으로 조사되었다. 본 연구기간동안 분석한 이어도와 기타 한반도 참고지역의 납 동위원소 비의 범위는 중국의 2000년대, 일본의 에어로졸 시료와 큰 차이가 없었다. 따라서  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비만으로는 국내 납의 오염원 판명이나 인근 국가로부터의 영향성 유무 여부를 판단하기는 힘든 것으로 나타났다.

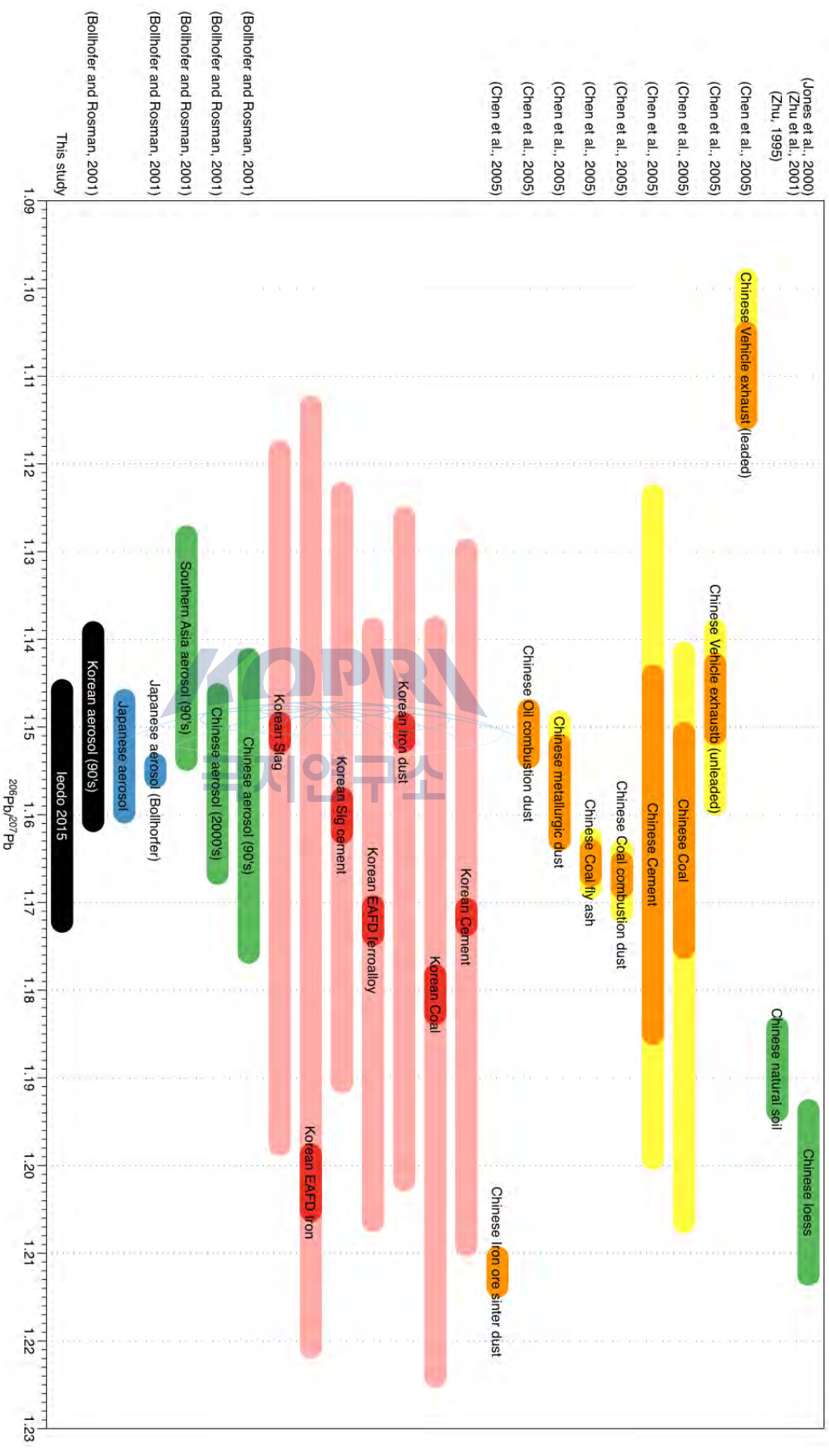


그림 34. 우리나라 및 인근 국가에서 측정된 에어로졸 시료와 잠재적 오염원의  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  비

Mukai et al.(1993), Sasaki A.(1982), Nakano et al.(2006), Jo et al.(2011), Ye et al.(2003), Fang et al.(2003), Fang et al.(2004), Bollhofer and Rosman(2001), Chen et al.(2005), Tan et al.(2006), Zhu et al.(2001), Lee et al.(2007),

이어도의 납 안정동위원소 특성을 통하여 그 기원지를 파악하고자 다양한 대기 시료 샘플과 잠정적 오염원의 납 안정동위원소 조성을 그림 35와 그림 36에 정리하였다. 각 그래프는 x축을  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ , y축을  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 의 비로 나타내었으며, 그림 35에는 우리나라 및 인접 국가들의 대기 시료와 석탄시료를, 그림 36에는 다양한 인위적 오염원 시료의 납 안정동위원소 조성을 표시하였다. 각 국가별로 특징적인 납 안정동위원소 비가 나타나는데, 중국 지역의 경우 중국 남부 지역의 납 동위원소 비가 중국 북부 및 중부 지역의 납 동위원소 비와 뚜렷하게 구분 되는 특징을 보였다. 일본 북부는 regression line을 따라 넓은 범위 값을 나타낸 반면 일본의 중심부 및 동부는 편차가 적은 값을 가졌다. 또한 대만 지역에서 채취된 에어로졸 시료는 납 안정동위원소 비의 범위가 한국, 중국, 일본의 동북아시아 국가들과 구분되어 나타났다.

그림 37과 38은 앞서 언급한 참고 자료들을 바탕으로 각각 이어도와 제주도, 인천과 태안의 납 안정동위원소 결과와 함께 나타내었다. 본 연구에서 조사된 이어도의 납 안정동위원소 조성은 주변국들과 인위적 오염원의 영향으로 시기적으로 차이를 보이며 나타나고 있다. 하지만 일본의 남서부, 중동부, 남서부, 그리고 중국의 북동부 지역의 에어로졸 결과 값들은 그 분포 범위가 매우 인접하게 나타나거나 겹치게 나타나고 있어서 일부시료들의 경우 명확한 오염원 추적이 어려운 것으로 확인되었다.

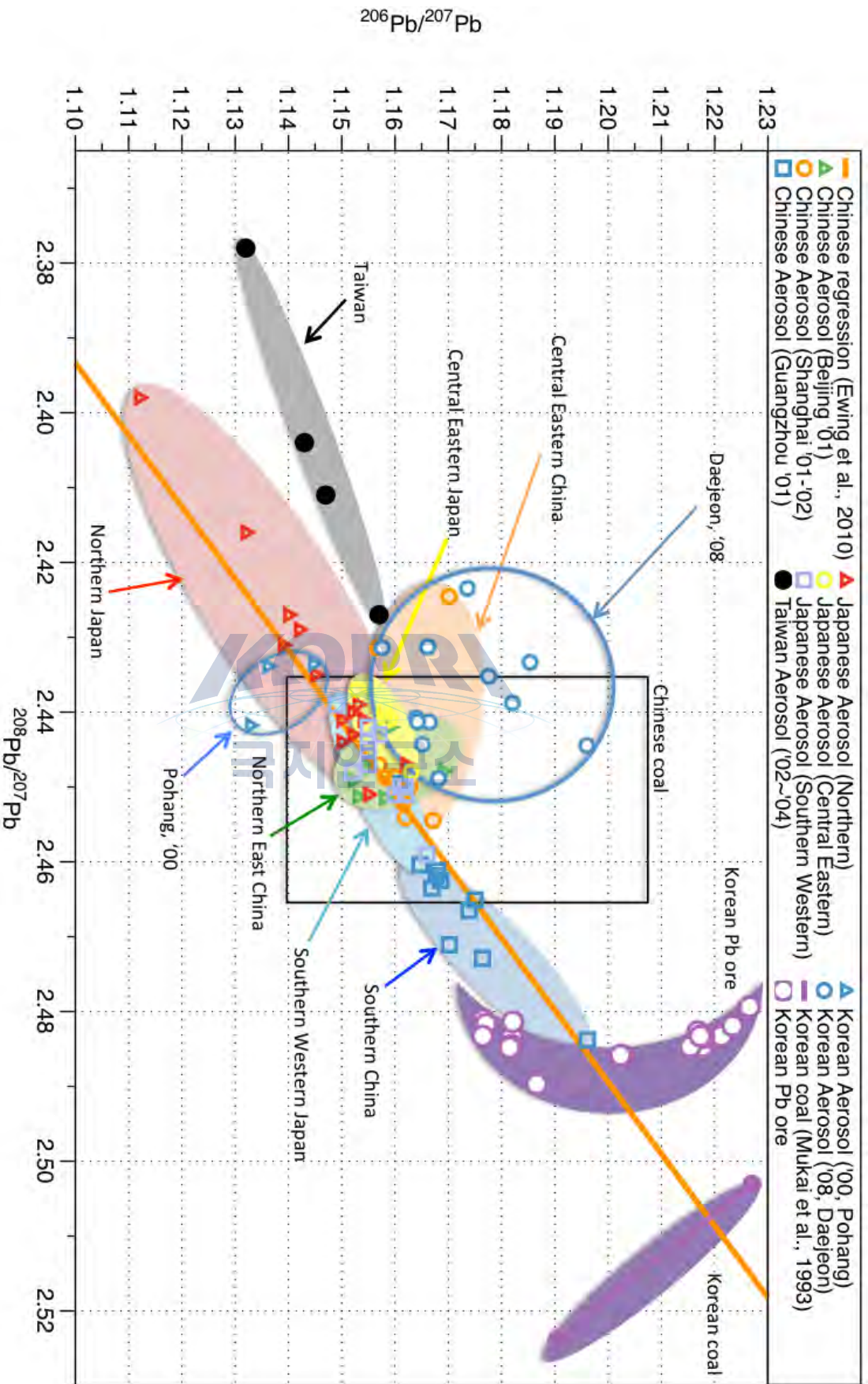


그림 35. 우리나라 및 인접 국가의 대기 시료와 참고물질에서 나타난 납 안정동위원소 비

Mhaki et al.(1993), Sasaki, A.(1982), Hsu et al.(2006), Bollhofer and Rosman(2001), Nakano et al.(2006), Jo et al.(2011), Zhu et al.(2001), Lee et al.(2007), Chen et al.(2005), Lee et al.(2015), Tan et al.(2006).







## 다. 납 안정동위원소 조성과 역궤적 추적 분석을 결합한 오염원 추적 기술

### 다-1. 역궤적 추적 분석

기존의 연구에 따르면 납 안정동위원소 조성은 지역별, 오염물질별로 다르게 나타나고 있어서 그 기원지를 밝히는데 유용하게 쓰이지만, 실제로 동아시아 지역에서 보고된 에어로졸의 납 안정동위원소 조성은 서로가 복잡하게 나타나고 있으므로 납 안정동위원소 조성만으로는 이어도로 유입된 에어로졸의 명확한 기원지 추적이 어렵다. 특히, 에어로졸의 납 안정동위원소 조성이 중첩되어 나타나는 경우에는 납 안정동위원소 조성만으로는 기원지 추적이 불가능하다. 따라서 에어로졸의 납 안정동위원소 조성이 비슷하게 나타나는 경우 납의 농도와 기류의 역궤적 추적방법을 이용한 복합적인 해석이 필요하다. 그림 39에는 각각 다른 납 안정동위원소 조성 값을 갖는 대표적인 4개의 역궤적 추적(HYSPLIT) 분석 결과를 나타내었다.

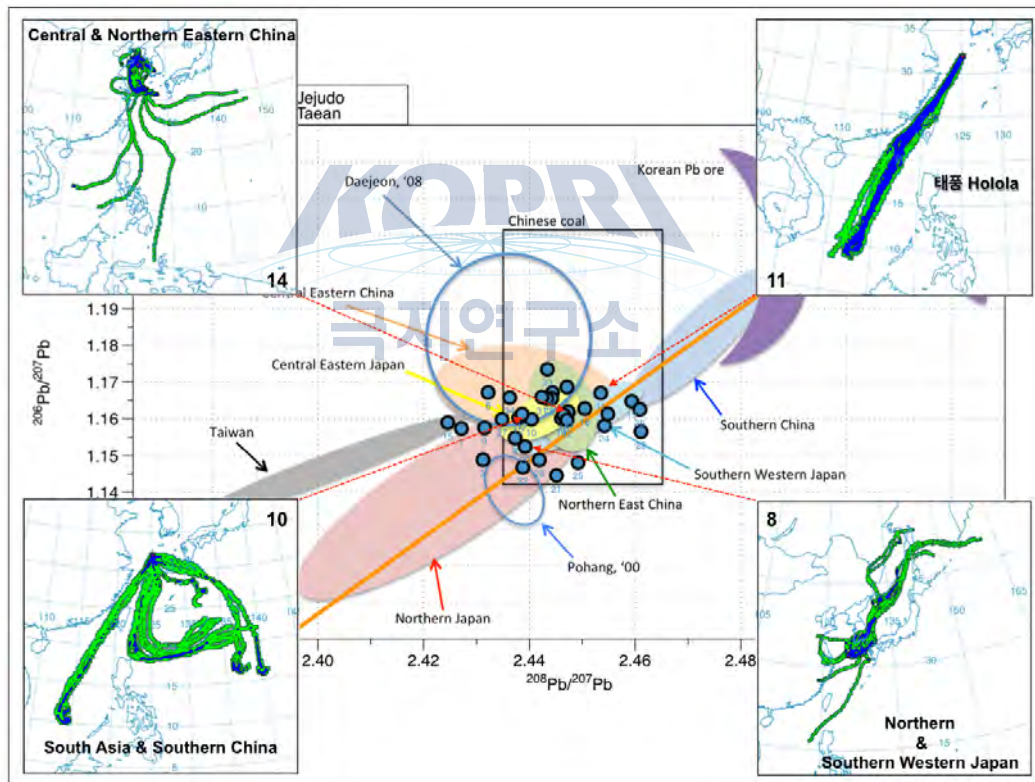


그림 39. 이어도의 납 안정동위원소 비와 특징적 역궤적 추적 결과

### 다-2. 납 동위원소와 역궤적 추적 모델을 결합한 오염원 추적 기술

특징적인 납 안정동위원소 조성을 나타내는 이어도 시료를 시기별로 역궤적 추적 방법과 연계하여 살펴보았다. 이어도 6번, 9번, 10번, 12번의 경우 납의 농도가 낮게



나타나는데 대만과 일본 남서부로부터의 에어로졸 유입으로 납 안정동위원소 조성이 두 지역의 중간 값을 갖는 것으로 나타났다. 비슷한 납 안정동위원소 조성을 갖는 다른 시료들은 농도가 높은 특징이 있으며, 중국 중동부로부터 에어로졸의 유입이 있었던 것으로 사료된다. 그림 39는 이어도의 납 안정 동위원소 조성파 이어도 6, 9, 10, 12번에 해당하는 시기의 기류를 추적하여 나타내고 있다.  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 가 다른 시료에 비해 현저히 낮은 이어도 3, 21, 22, 제주도 8번 시료의 경우 납 농도가 상대적으로 낮게 나타났으며 역계적 추적 경로를 확인한 결과 일본 북부 지역으로부터 유입된 에어로졸의 영향을 받은 것으로 사료된다(그림 40).  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 가 높게 나타나고 납 농도가 낮은 시료들을 기류의 역계적 추적 경로와 연계하여 살펴보면(이어도 2, 4, 5, 7, 33번 시료) 대부분의 기류가 몽골 위쪽에서 만주를 거쳐 왔거나(33번 시료), 일본의 남부 기원(2번 시료), 혹은 일본의 남부에서 출발해 중국의 중동부를 거쳐 온 것으로 분석되었다(그림 41). 중국의 Loess, 일본 남부지역, 중국 중동부 지역의 납 안정동위원소 비는 상대적으로 높게 나타나고 있으며, 납 안정동위원소 조성만으로는 명확히 구분할 수 없었던 기원지 추적을 역계적 추적 분석을 통해 좀 더 명확하게 구분할 수 있는 것으로 확인되었다.

납 농도가 높은 시료들 중 납 안정동위원소 비가 높은 시료들은 중국 동북부 지역 (30번, 24번, 14번 시료), 또는 일본 남서부 지역으로부터 발원하여 서해를 거쳐 유입된 것으로 사료된다(그림 43).

이어도 15, 16, 17번 세 시료의 경우  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 가 비슷하고 농도가 낮게 나타나는데  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 의 값에서 차이가 나타난다. 15번 시료의 경우 주로 동해방향에서 유입되어  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 이 낮게 나타나고, 16번 시료는 서해방향에서 유입되어  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 가 가장 높게 나타난다. 17번 시료의 경우 중국 남동쪽에서 유입된 것으로 확인되었고,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 가 중간정도의 값을 보이고 있다. 제주도 12번 시료의 경우 이어도 17번 시료와 비슷한 납 안정동위원소 조성을 보이고 있다(그림 44).

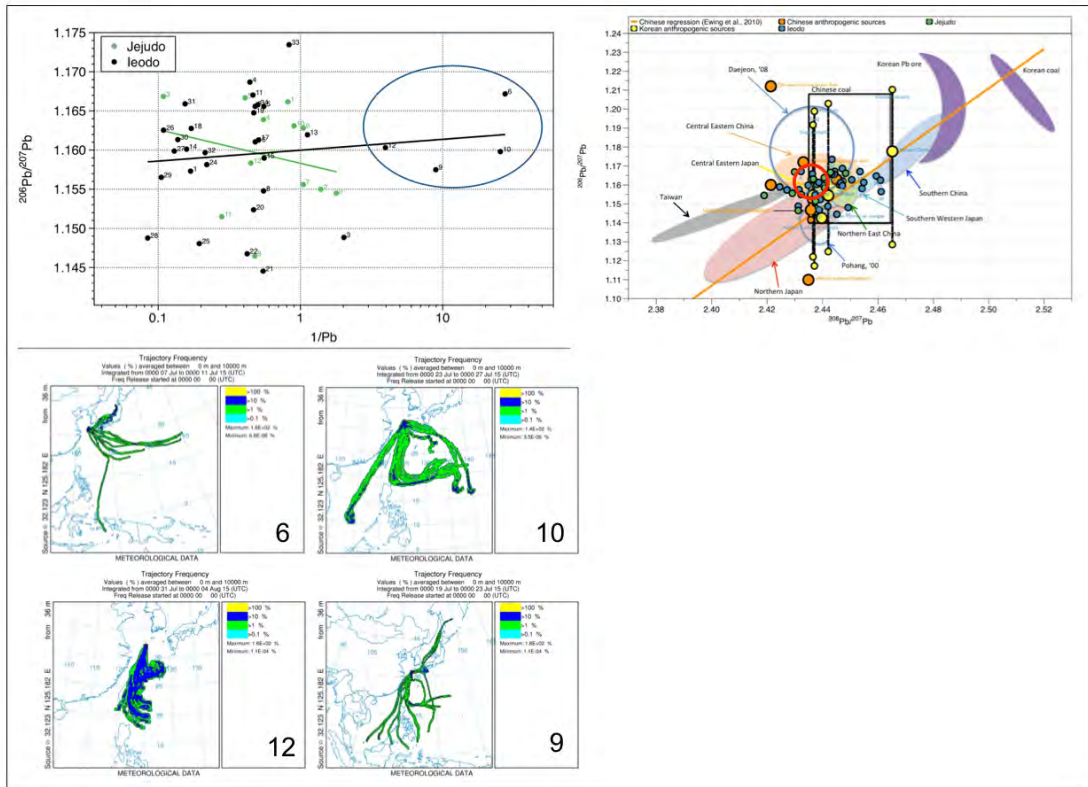


그림 40. 이어도에서 낮은 납 농도가 나타난 시기의 납 안정동위원소 조성과의 역계적 추적 결과

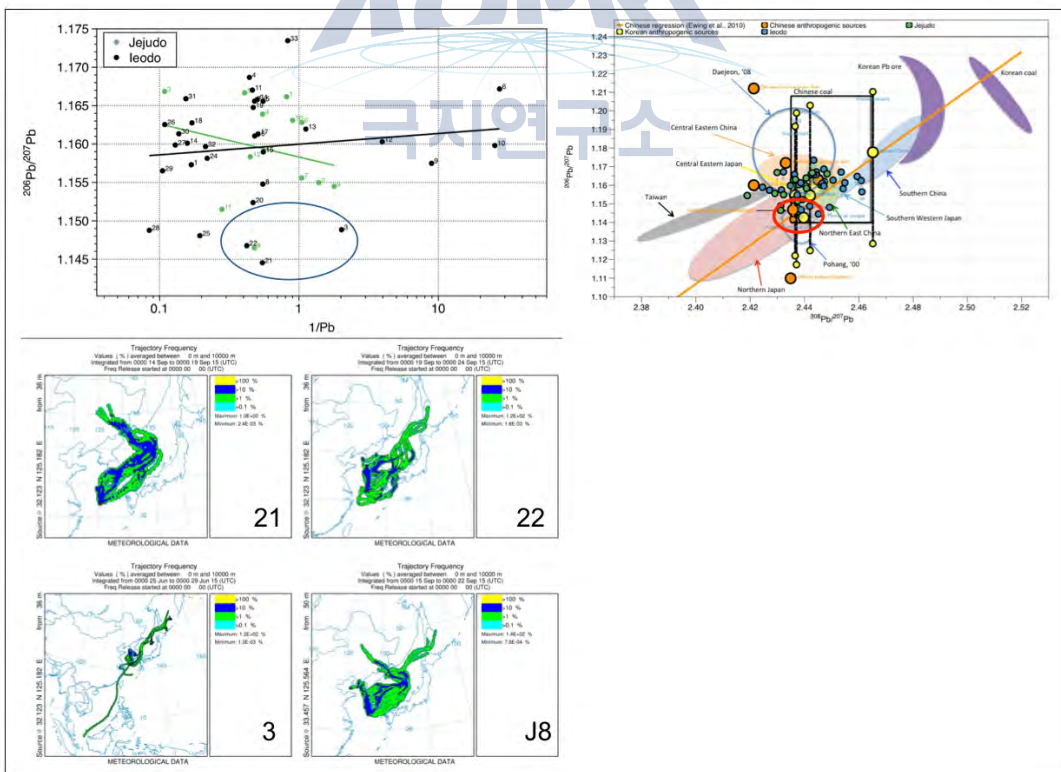


그림 41. 이어도에서 낮은  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비가 나타난 시기의 납 안정동위원소 조성과의 역계적 추적 결과

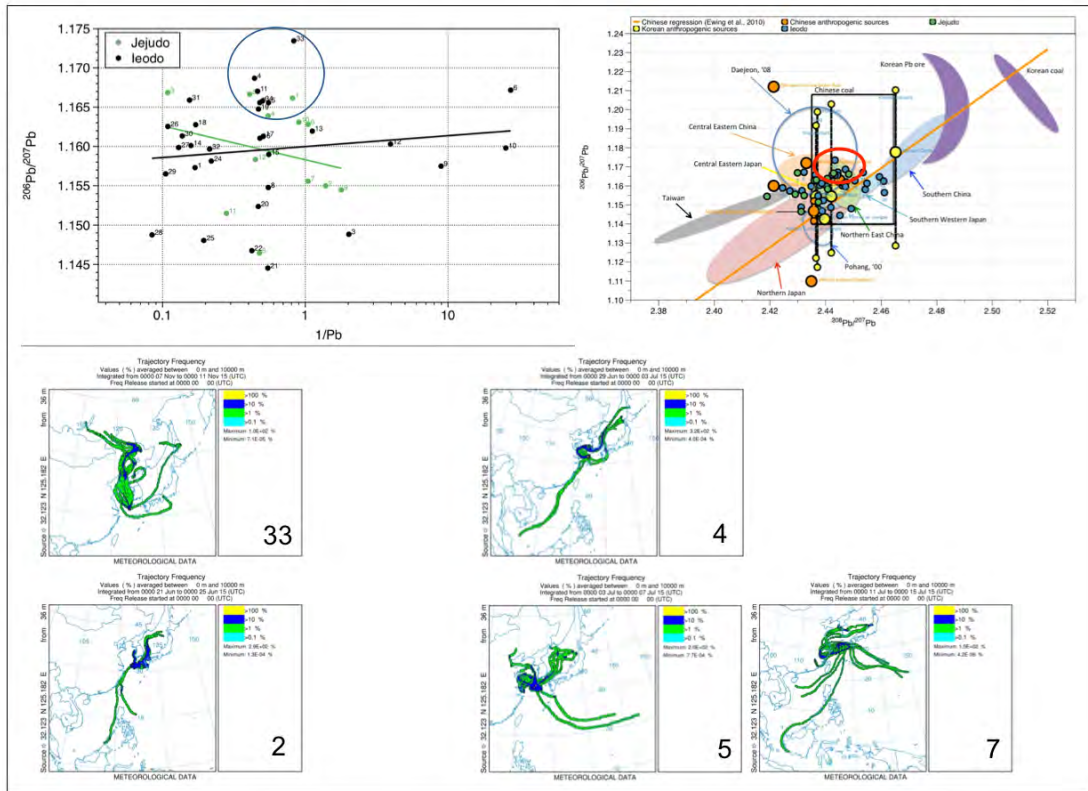


그림 42. 이어도에서 높은  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비와 낮은 납 농도가 나타난 시기의 납 안정동위원소 조성과 역계적 추적 결과

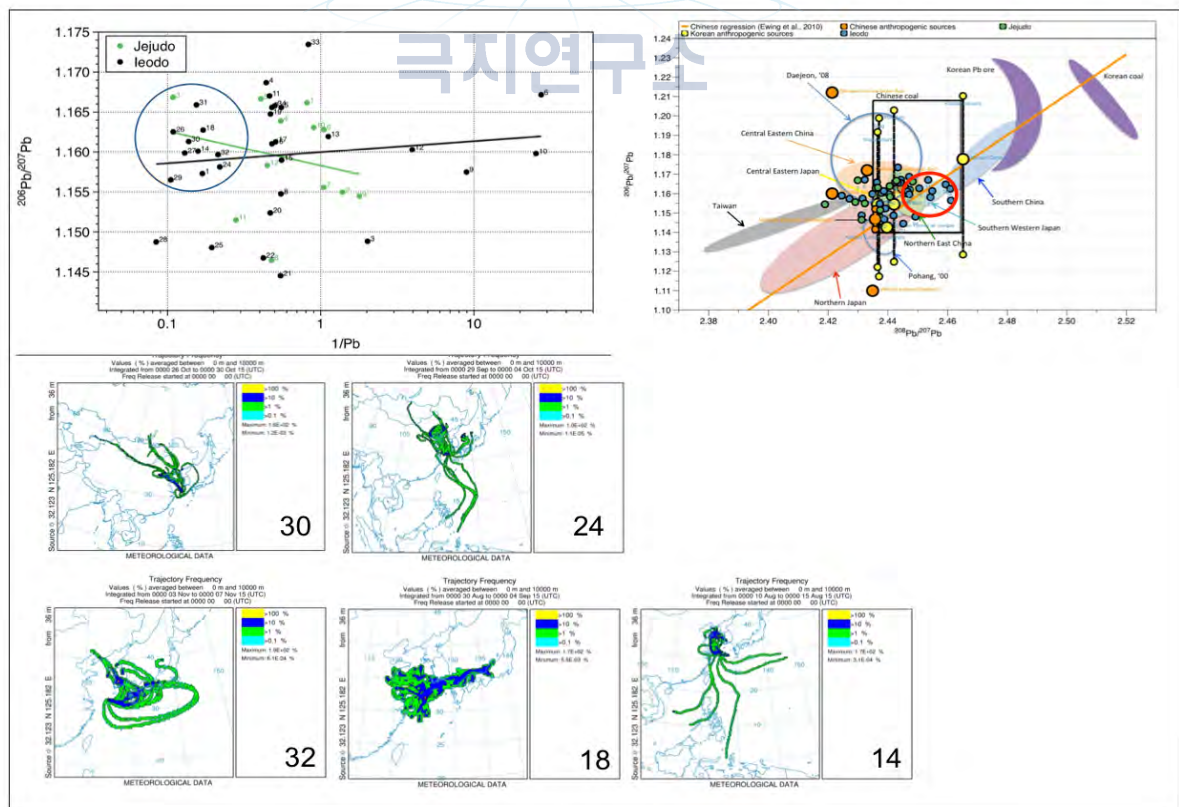


그림 43. 이어도에서 높은  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 비와 높은 납 농도가 나타난 시기의 납 안정동위원소 조성과 역계적 추적 결과

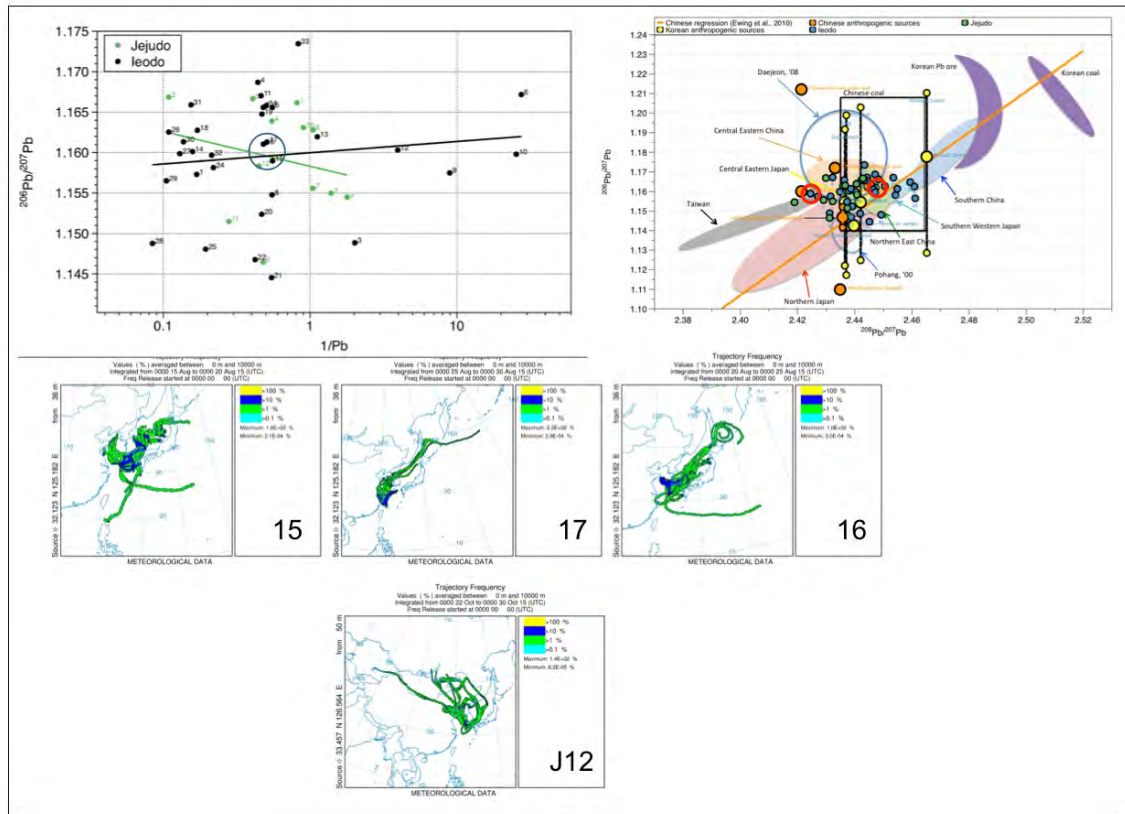


그림 44. 이어도에서 특징적인  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  조성이 나타난 시기의 납 안정동위원소 조성 및 역계적 추적 결과

### 다-3. 이어도 주변 해역의 잠재적 오염원

지금까지 분석된 납 안정동위원소 조성 및 납 농도와 역계적 추적 방법을 결합한 장거리 이동 오염원 추적 결과는 표 21과 22, 그리고 그림 45에 정리하였다.

이어도와 제주도의 에어로졸은 중국, 일본, 한국 및 남아시아의 오염원 기원지들 중에서 1개 지역 혹은 2개 이상의 지역에서 영향을 받았음을 알 수 있다. 전체 조사기간 동안 이어도의 대기질에 영향을 주었던 기원지는 중국 27회, 일본 26회, 한국 11회, 남아시아 6회로 밝혀졌다. 특히 권역별로 구분하면 중국의 북동부와 중동부가 22회로 가장 많았고, 다음이 일본 남서부 13회로 나타났다.

시기별로 이어도는 6, 7월에 주로 중국의 동중부에서 기원한 기류와 일본에서 기원한 기류의 영향을 받는 것으로 사료되며, 8월 중순에 이르러서는 중국의 영향이 더 크게 관찰되었다. 이후 가을이 시작되면서 중국 북동부 및 한반도의 영향이 나타나기 시작하였고, 11월경에 이르러서는 일본 남서부, 중국 북동부 및 한반도의 영향이 크게 나타나는 것으로 추정된다. 제주도의 경우에는 7월 말부터 8월 초에 해당하는 시기에 중국의 남동부 및 중동부의 영향을 받는 것으로 추정되며, 9월에

는 한반도와 일본 남부, 그리고 중국의 영향이 함께 나타났다. 또한 중국의 중부 및 동부와 한반도의 영향을 받는 시기에 두 지역에서 높은 납의 농도가 관찰되었다.

납 안정동위원소 조성과 역계적 추적 분석 방법을 결합한 결과 기준에 구분할 수 없었던 대기 에어로졸의 잠재적 오염원을 좀 더 명확하게 구분할 수 있었으며, 이어도 주변 해역의 에어로졸은 한반도 및 주변국가의 다양한 오염원에 의해 매우 민감하게 변화한다는 것을 확인 할 수 있었다.

**표 21.** 이어도의 시료 번호 별 역계적 추적을 결합한 오염원 분석 결과

Source region	Sample No.
Northern Japan	(3), (6), 8, (9), (21), (22)
Central Eastern Japan	2, (4), (5), (6), (7), (15), (16)
Southern Western Japan	(6), (11), 13, (16), (18), (19), (24), (25), (28), (29), (30), (32)
Northern Eastern China	(14), (24), (25), (26), (29), (30), (31), (32), 33
Central Eastern China	1, (4), (5), (7), (11), (14), (16), (17), (18), (26), (27), (31), (34)
Southern China	(10), (11), (12), (17), (19)
Korea	(3), (15), (16), 20, (21), (22), (25), (27), (28), (32), (34)
South Asia	(6), (9), (10), (11), (12), (15),

**표 22.** 제주도의 시료 번호 별 역계적 추적을 결합한 오염원 분석 결과

Source region	Sample No.
Northern Japan	(9), (11), (12)
Central Eastern Japan	(11),
Southern Western Japan	(2)
Northern Eastern China	(2), (12)
Central Eastern China	(2), 3, 4, 5, (6), 10,
Southern China	(1)
Korea	(6), 7, 8, (9), (11),
South Asia	(1)

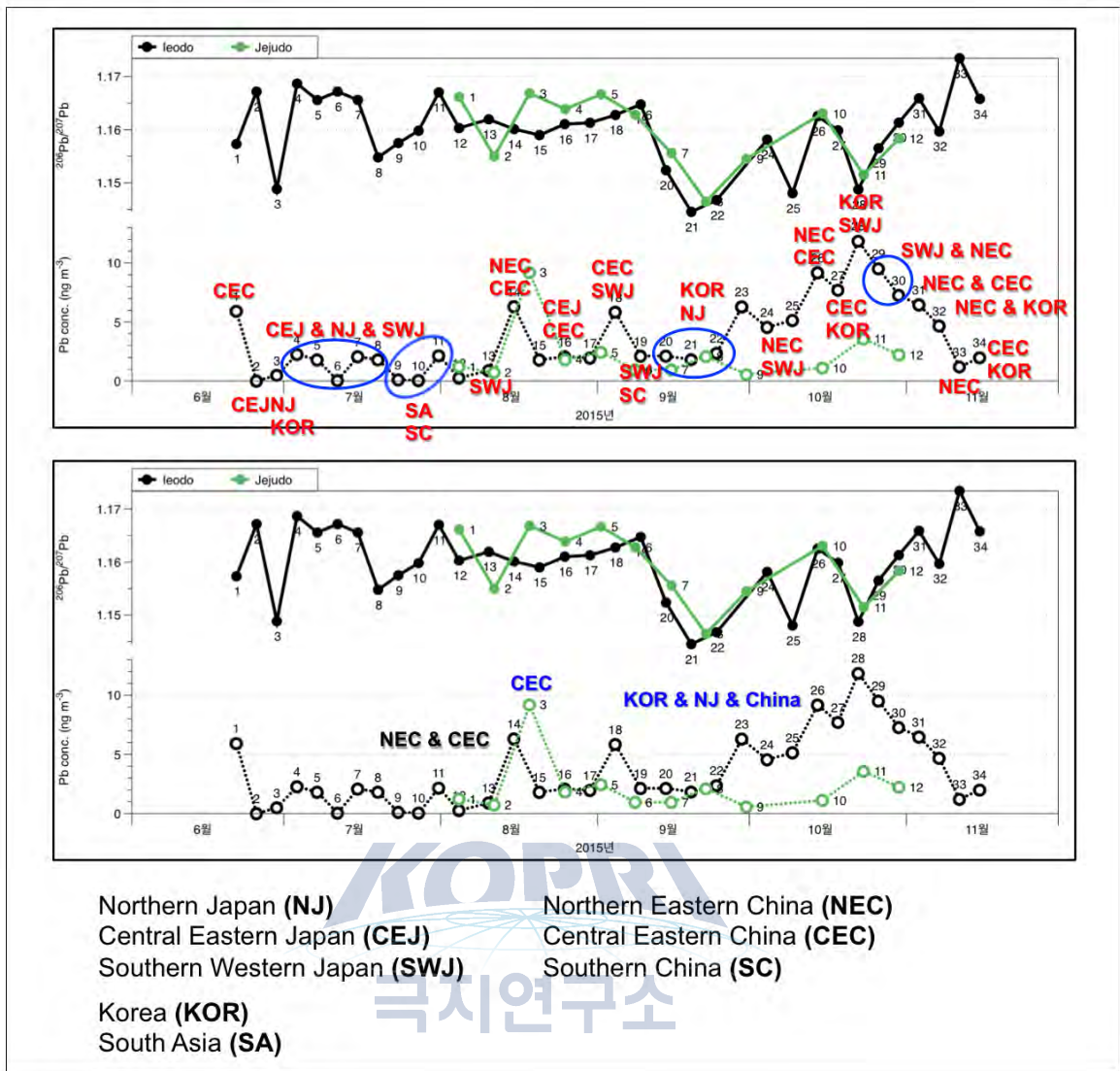


그림 45. 역궤적 추적 방법을 이용하여 분석한 이어도(위 그림)와 제주도(아래 그림)의 시기별 오염원 변화.

## V. 결론 및 제언

이어도 주변 해역의 대기질 평가를 위해 2015년 6월 18일부터 11월 15일까지 총 34개의 대기 에어로졸 시료를 채취하여 납을 포함한 주요 미량금속원소의 농도와 납 안정동위원소를 분석하였다. 이어도는 시기적으로는 여름철에(6, 7, 8월) 미량금속의 농도가 낮게 나타나다가 가을철에(10월) 최대 농도를 보이고 다시 감소하는 추세를 보였다. 기타 참고지역인 인천과 태안의 경우 10월에 전체적인 농도가 감소하는 것으로 볼 때 짧은 시간 동안에도 대기의 이동경로에 따라 지역적으로 미량금속의 농도 변화 패턴이 큰 차이를 보이는 것으로 나타났다. 또한, 이어도의 대기 중 미량금속 농도는 한국, 중국, 일본보다 수 배에서 최대 10,000배 정도 낮은 농도 수준으로 나타나는 것을 확인하였다. 하지만 중국으로부터의 오염물질 유입이 가장 많이 발생하는 봄철에는 그 농도가 많이 증가될 것으로 사료되며 이에 대한 추가적인 연구가 필요할 것으로 생각된다.

또한, 이어도의 대기 중 미량금속 농도는 한국, 중국, 일본보다 수 배에서 최대 10,000배 정도 낮은 농도 수준으로 나타나는 것을 확인하였다. 특히, 납과 구리 등 인간의 활동에 의한 오염물질들의 농도가 현저히 낮게 나타나고 있어서 현재 대기의 배경농도를 알 수 있는 참고지역으로 적합하다고 할 수 있다. 하지만 중국으로부터의 오염물질 유입이 가장 많이 발생하는 봄철에는 그 농도가 많이 증가될 것으로 사료되며 이에 대한 추가적인 연구가 필요할 것으로 생각된다.

이어도 주변해역으로 유입되는 에어로졸은 대기의 유입형태에 따라 한국, 중국, 일본, 대만 등지에서 발원한 오염물질들을 포함하고 있다. 이어도 주변의 장거리 이동 오염원 추적을 위해 납 안정동위원소 조성( $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ )을 이용하여 중국과 일본을 포함하는 주변국들의 에어로졸 분석 선행 연구결과와의 비교, 그리고 대기 모델의 하나인 HYSPLIT를 이용한 역계적 추적 분석 방법은 이어도 주변해역의 장거리 이동 오염원 추적에 효과적인 것으로 나타났다. 실례로, 여름철에 채취된 에어로졸 시료들의 경우 납 안정동위원소 조성이 비슷하게 나타나지만 납 농도가 낮은 시료의 경우 대만과 일본 남서부 지역에서 유입되는 것으로 나타났으며, 납 농도가 높은 경우 중국의 중동부 지역에서 유입되는 것으로 확인되었다. 이처럼 납 안정동위원소 조성과의 역계적 추적 분석 방법을 결합하면 장거리 이동 오

염원 추적을 효과적으로 수행할 수 있다. 그 결과 여름과 가을철에 이어도의 납 농도 증가에 영향을 주는 기원지는 중국의 북부 및 중동부 지역 > 한반도 > 일본 > 한반도 > 동남아시아 순으로 나타났다. 또한, 연구지역중 상대적으로 가까운 지역에 위치해있는 이어도와 제주도의 경우에도 같은 기간 동안 서로 다른 역궤적 추적 분석 패턴이 나타나며, 이는 대기 이동의 경로에 따라 지역별로 큰 차이가 발생한다는 것을 의미한다.

납 안정동위원소와 역궤적 추적 분석을 결합한 방법을 이용하여 연 주기(특히 겨울과 봄철) 연구를 진행한다면 이어도 주변 해역의 보다 명확한 대기질 평가 및 장거리 이동 오염원 추적이 가능할 것으로 사료된다.

마지막으로 이어도의 대기질은 우리나라의 어느 지역보다 청정하며, 참고지역인 제주, 인천, 태안 등의 지역보다 훨씬 다양한 기원지로부터 대기 오염물질이 유입되고 있다는 점을 감안하면, 이어도 해양과학기지는 동북아시아의 대기질 평가하고 오염물질의 운반 경로를 추적하여 주변국의 상대적 영향을 평가하기 위한 연구에 최적합지라고 판단된다.





## 참고문헌

- 조완근, 이현철, 김근모 (2011) PM10 내 납의 동위원소와 농도를 활용한 산업도시지역 대기 중 납 오염원 평가. *대한환경공학회지*, 174-182.
- Allègre, C.J., Manhès, G., Gopel, C. (2008) The major differentiation of the Earth at similar to 4.45 Ga. *Earth Planet. Sci. Lett.* 267, 386-398.
- Bard, S.M. (1999) Global transport of anthropogenic contaminants and the consequences for the Arctic marine ecosystem. *Mar. Poll. Bull.*, 38, 356-379.
- Bellis, D., Satake, K., Inagaki, M., Zeng, J., Oizumi, T. (2005) Seasonal and long-term change in lead deposition in central Japan: evidence for atmospheric transport from continental Asia. *Sci. Total Environ.*, 341, 149-158.
- Bollhöfer, A. and Rosman, K.J.R. (2000) Isotopic source signatures for atmospheric lead: the Southern Hemisphere. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 64, 3251-3262.
- Bollhöfer A. and Rosman, K.J.R. (2001) Isotopic source signatures for atmospheric lead: the Northern Hemisphere. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 65, 1727-1740.
- Chen, J., Tan, M., Li, Y., Zhang, Y., Lu, W., Tong, Y., Zhang G., Li, Y. (2005) A lead isotope record of Shanghai atmospheric lead emissions in total suspended particles during the period of phasing out of leaded gasoline. *Atmos. Environ.*, 39, 1245-1253.
- Doe, B. (1970) *Lead isotopes*, Springer-Verlag.
- Duzgoren-Aydin, N.S. (2007) Sources and characteristics of lead pollution in the urban environment of Guangzhou. *Science of the Total Environment*, 385, 182-195.
- Ewing, S.A., Christensen, J.N., Brown, S.T., Vancuren, R.A., Cliff, S.S., Depaolo, D.J. (2010) Pb isotopes as an indicator of the Asian contribution to particulate air pollution in urban California. *Environ. Sci. Technol.*, 44, 8911-8916.
- Han, C., Burn-Nunes, L.J., Lee, K., Chang, C., Kang, J., Han, Y., Hur, S.D., Hong, S. (2015) Determination of lead isotopes in a new Greenland deep ice core at the sub-picogram per gram level by thermal ionization mass spectrometry using an improved decontamination method. *Talanta*, 140, 20-28.
- Hofmann, A., (1997) Mantle geochemistry: the message from oceanic volcanism. *Nature*, 385, 219-229.
- Järup, L. (2003) Hazards of heavy metal contamination. *British Med. Bull.*, 68, 167-182.
- Jones, C.E., Haddiday, A.N., Rea, D.K., Owen, R.M. (2000) Eolian inputs of lead to the North Pacific. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 64, 1405-1416.
- Fang, G.C., Wu, Y.S., Huang, S.H., Rau, J.Y. (2005). Review of atmospheric metallic elements in Asia during 2000-2004. *Atmos. Environ.*, 39, 3003-3013.
- Kim, K.H., Choi, G.H., Kang, C.H., Lee, J.H., Kim, J.Y., Youn, Y.H., Lee, S.R. (2003) The chemical composition of fine and coarse particles in relation with the Asian Dust events. *Atmos. Environ.* 37, 753-765.
- Lee, C.S.L., Li, X.D., Zhang, G., Li, J., Ding, A.J., Wang, T. (2007) Heavy metals and Pb isotopic composition of aerosols in urban and suburban areas of Hong Kong and Guangzhou, South China-Evidence of the long-range transport of air contaminants. *Atmospheric Environment* 41, 432-447.
- Lee, K., Hur, D.D., Hou, S., Burn-Nunes, L.J., Hong, S., Barbante, C., Boutron, C.F., Rosman, K.J.R. (2011) Isotopic signatures for natural versus anthropogenic Pb in high-altitude Mt. Everest ice cores during the past 800 years. *Sci. Total Environ.*

- Environ., 412-413, 194-202.
- Lee, P.K., Youm, S.J., Jo, H.Y. (2013) Heavy metal concentrations and contamination levels from Asian dust and identification of source: A case-study. *Chemosphere*, 91, 1018-1025.
- Lee, K., Hong, S.B., Lee, J. Chung, J., Hur, S.D., Hong, S. (2015) Seasonal variation in the input of atmospheric selenium to northwestern Greenland snow. *Sci. Total Environ.* 526, 49-57.
- Millot, R., Allegre, C.J., Gaillardet, J., Roy, S. (2004) Lead isotopic systematics of major sediments: a new estimate of the Pb isotopic composition of the Upper Continental Crust. *Chemical Geology* 203, 75-90.
- Mukai, H., Furuta, N., Fujii, T., Ambe, Y., Sakamoto, K., Hashimoto, Y. (1993) Characterization of sources of lead in the urban air of Asia using ratios of stable lead isotopes. *Environ. Sci. Technol.*, 27, 1347-1356.
- Mukai, H., Tanaka, A., Fujii, T. (1994) Lead isotope ratios of airborne particulate matter as tracers of long-range transport of air pollutants around Hapan. *J. Geophys. Res.*, 99, D2, 3717-3726.
- Mukai, H., Tanaka, A., Fujii, T., Zheng, Y., Hong, Y., et al. (2001) Regional characteristics of sulfur and lead isotope ratios in the atmosphere at several Chinese urban sites. *Environ. Sci. Technol.* 35, 1064-1071.
- Nakano, T., Morohashi, S., Yasuda, H., Sakai, M., Aizawa, S., Shichi, K., Morisawa, T., Takahashi, M., Sanada, M., Matsuura, Y., Sakai, H., Akama, A., Okada, N. (2006) Determination of seasonal and regional variation in the provenance of dissolved cations in rain in Japan based on Sr and Pb isotopes. *Atmospheric Environment*, 40, 7409-7420.
- Negrel, P., Petelet-Giraud, E., Guerrot, C., Millot, R. (2015) Lead isotopes tracing weathering and atmospheric deposition in a small volcanic catchment. *C. R. Geoscience*, 347, 236-246.
- Oh, Y.K., Ryu, S.P., Kim, H.C., Kawamura, H., Tennichi, Y., Matsuoka, N., Maeda, Y. (2004) Source identification of Pb in aerosols at Jeju-do, Korea by using  $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  and  $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ . *J. Radioanal. Nuclear Chem.*, 260, 279-282.
- Nriagu, J.O. (1989) A global assessment of natural sources of atmospheric trace metals. *Nature* 338, 47-49.
- Pacyna, J.M., Pacyna, E.G. (2001) An assessment of global and regional emissions of trace metals to the atmosphere from anthropogenic sources worldwide. *Environ. Rev.*, 9, 269-298.
- Patterson, C.C. (1956) Age of meteorites and the Earth. *Geochim. Cosmochim. Acta* 10, 230-237.
- Rasmussen, P.E. (1998) Long-range atmospheric transport of trace metals: the need for geoscience perspectives. *Environ. Geol.*, 33, 96-108.
- Rosen, B.P. and Liu, Z. (2008) Transport pathways for arsenic and selenium: A minireview. *Environ. Intern.*, doi:10.1016/j.envint. 2008.07.023.
- Rosman, K.J.R., Chisholm, W., Hong, S.M., Candelone, J.P., Boutron, C.F. (1997) Lead from Carthaginian and Roman Spanish mines isotopically identified in Greenland ice dated from 600 BC to 300 AD. *Environ. Sci. Technol.* 31, 3413-3416.
- Sasaki, A. (1982) Isotope systematics of ore leads from the Korean Peninsula and Japanese islands. *Min. Geol.* 37, 223-226.
- Shotyk, W., Weiss, D., Appleby, P.G., Cheburkin, A.K., Frei, R., Gloor, M., Kramers, J.D., Reese, S., van der Knaap, W.O. (1998) History of atmospheric lead

deposition since 12,370  $^{14}\text{C}$  yr BP from a peat bog, Jura Mountains, Switzerland. *Science* 281 :1635-1640.

Takeda, K., Marumoto, K., Minamikawa, T., Sakugawa, H., Fujiwara, K. (2000) Three-year determination of trace metals and the lead isotope ratios in rain and snow deposition collected in Higashi-Hiroshima, Japan. *Atmos. Environ.*, 34, 4525-4535.

Tan, M.G., Zhang, G.L., Li, X.L., Zhang, Y.X., Yue, W.S., Chen, J.M., Wang, Y.S., Li, A.G., Li, Y., Zhang, Y.M., Shan, Z.C. (2006) Comprehensive Study of Lead Pollution in Shanghai by Multiple Techniques. *Anal. Chem.* 78, 8044-8050.

United Nations Economic Commission for Europe (UN ECE). 1998. Air pollution. The convention on long-range transboundary air pollution. International cooperation in action. The United Nations Economic Commission for Europe, Geneva, Switzerland.

Var, F., Narita, Y., Tanaka, S. (2000) The concentration, trend and seasonal variation of metals in the atmosphere in 16 Japanese cities shown by the results of National Air Surveillance Network (NASN) from 1974 to 1996. *Atmos. Environ.* 34, 2755-277

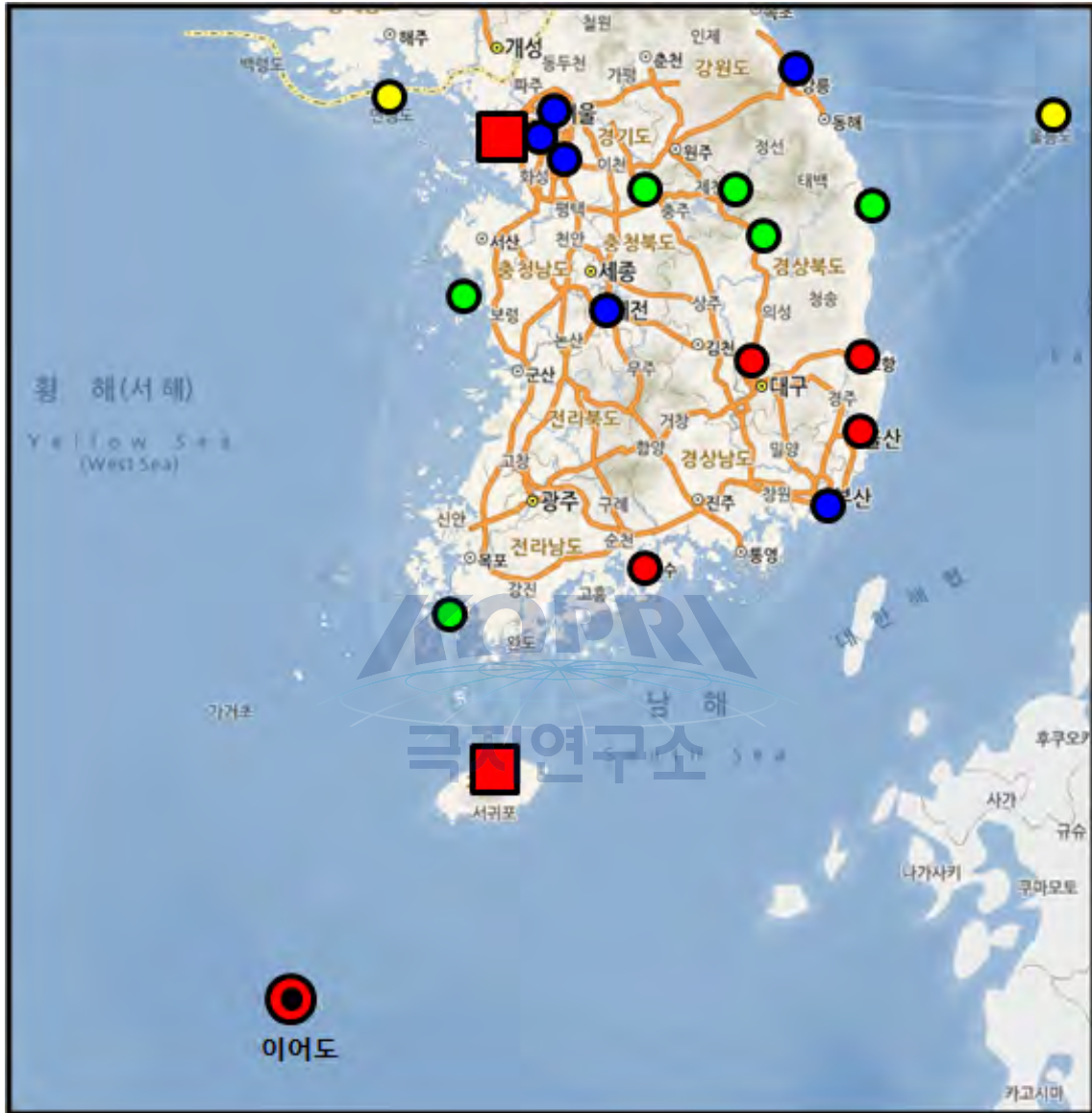
Widory, D., Liu, X., Dong, S. (2010) Isotopes as tracers of sources of lead and strontium in aerosols (TSP & PM<sub>2.5</sub>) in Beijing. *Atmos. Environ.*, 44, 3679-3687.

Wang, W., Liu, X., Zhao, L., Guo, D., Tian, X., Adams, F. (2006) Effectiveness of leaded petrol phase-out in Tianjin, China based on the aerosol lead concentration and isotope abundance ratio. *Science of the Total Environment*, 364, 175-187.

Zheng, J., Tan, M., Shibata, Y., Tanaka, A., Li, Y., Zhang, G., Zhang, Y., Shan, Z. (2004) Characteristics of lead isotope ratios and elemental concentrations in PM<sub>10</sub> fraction of airborne particulate matter in Shanghai after the phase-out of leaded gasoline. *Atmos. Environ.*, 38, 1191-1200.

Zhu, B.Q., chen, Y.W., Peng, J.H. (2001) Lead isotope geochemistry of the urban environment in the Pearl River Delta. *Applied Geochemistry*, 16, 409-417.

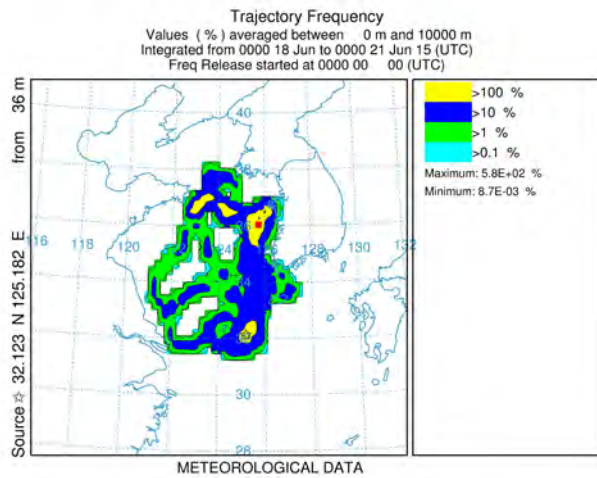
Appendix I. 에어로졸 시료 채취 지점



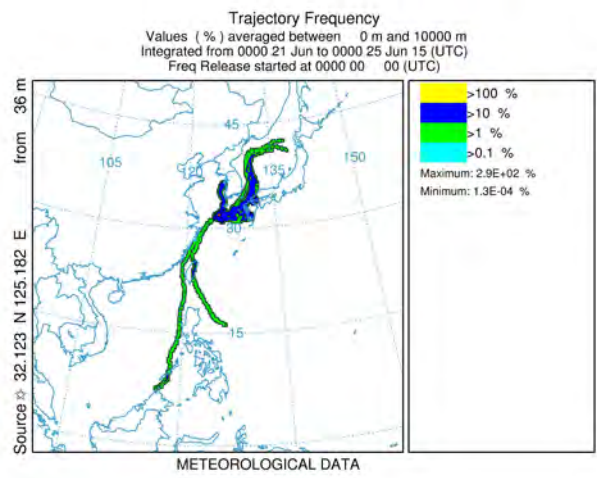
연속 시료 채취 지역인 이어도, 제주도, 인천을 포함한 참고지역 시료 채취 지점. 도시지역 (●), 산업단지(●), 비 도시지역(●), 그리고 원격지(●)로 구분하여 표시하였음

## Appendix II. 역궤적 추적 결과

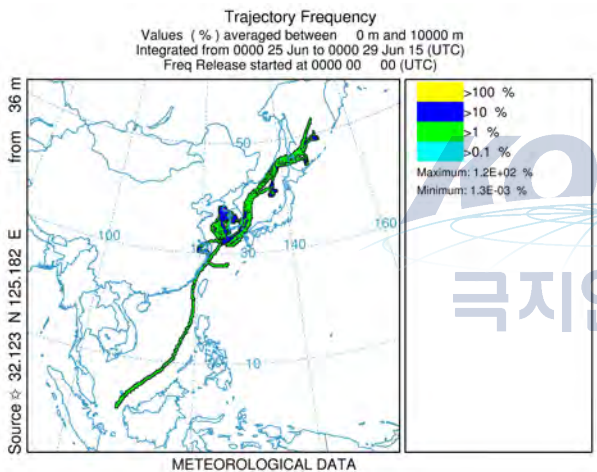
이러도 1



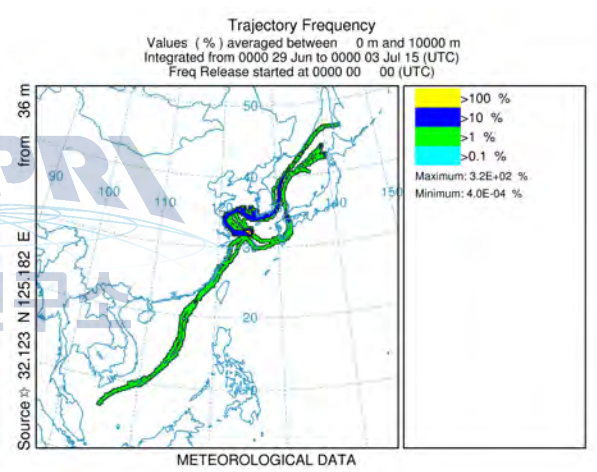
이러도 2



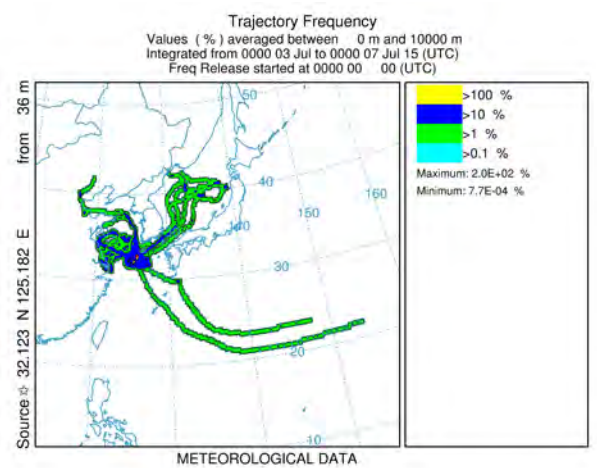
이러도 3



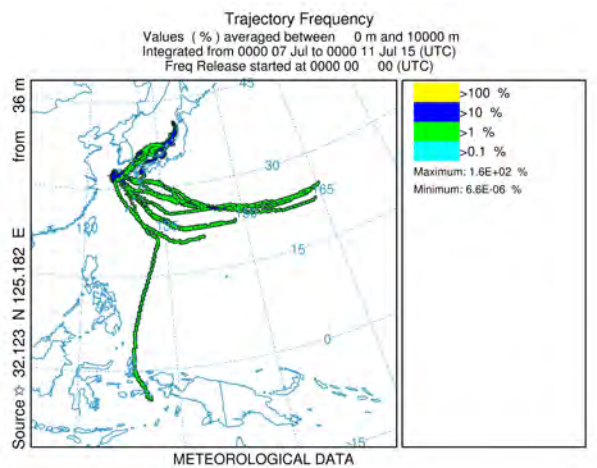
이러도 4



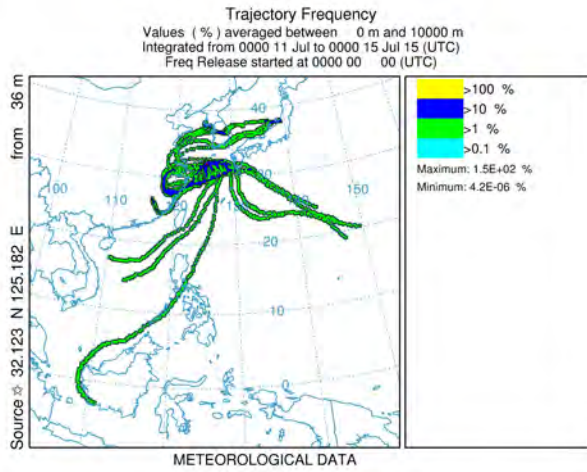
이러도 5



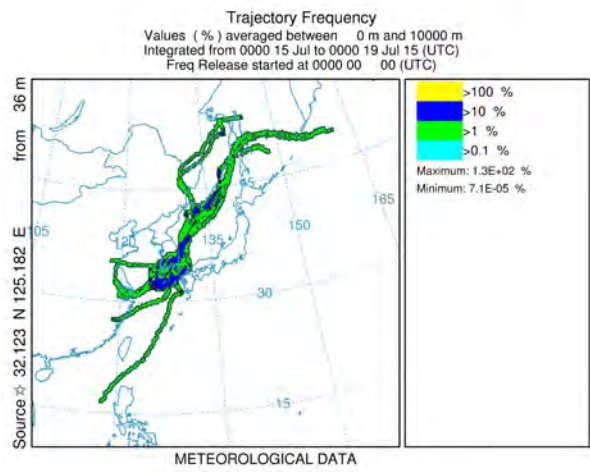
이러도 6



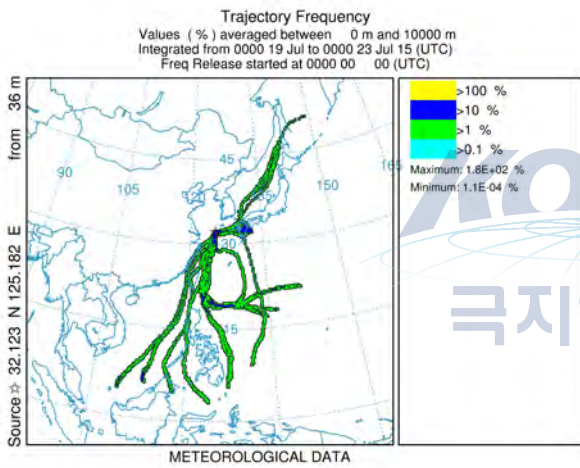
이러도 7



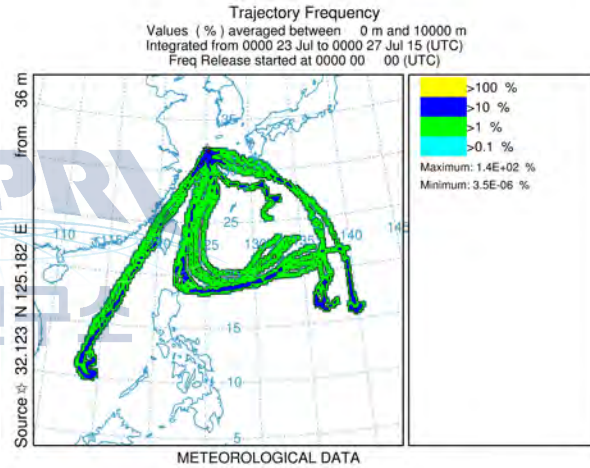
이러도 8



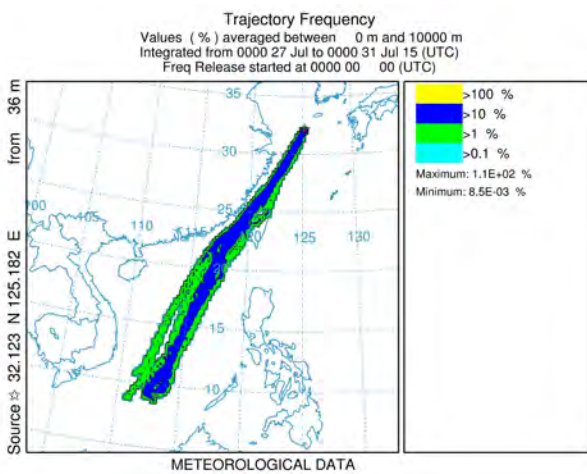
이러도 9



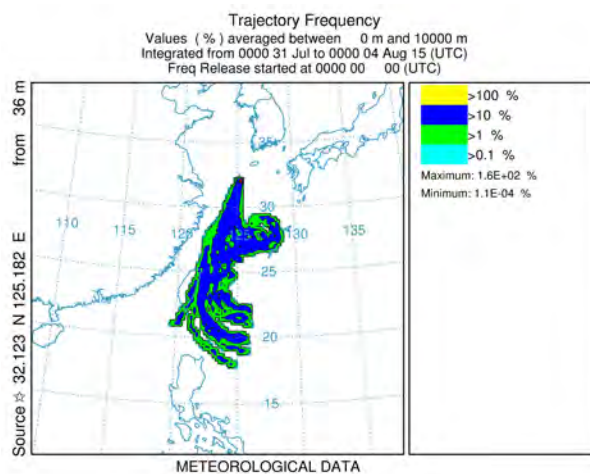
이러도 10



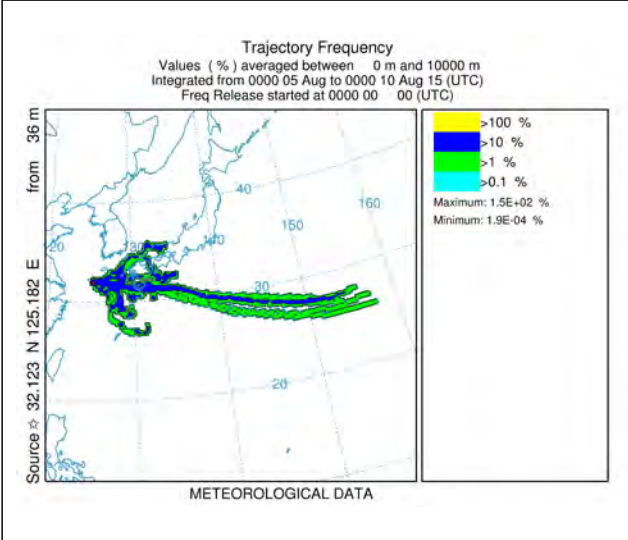
이러도 11



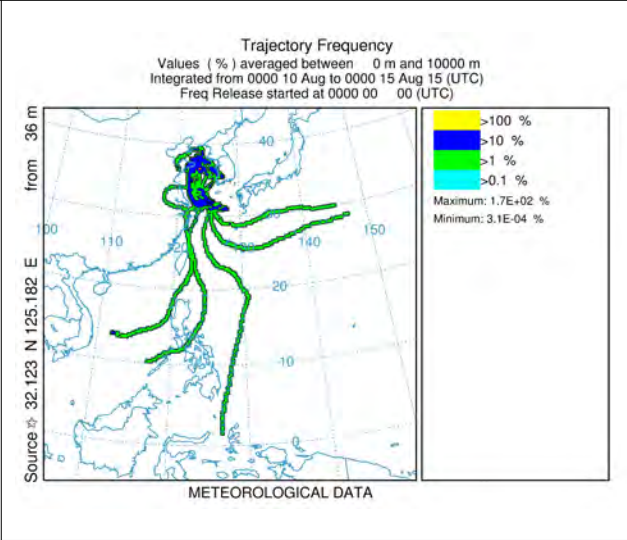
이러도 12



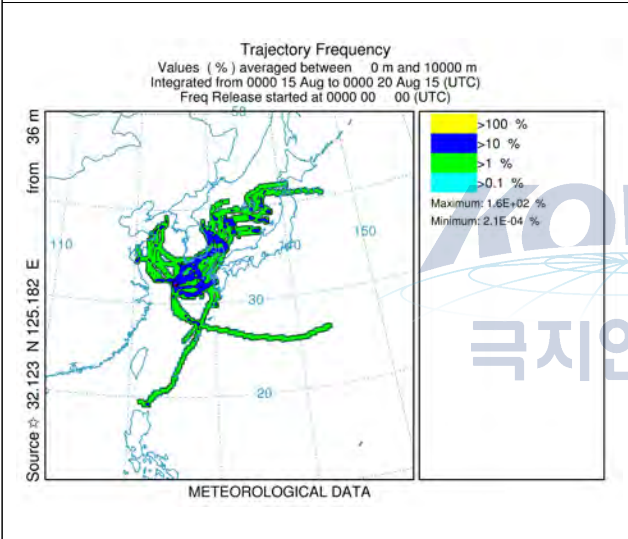
이러도 13



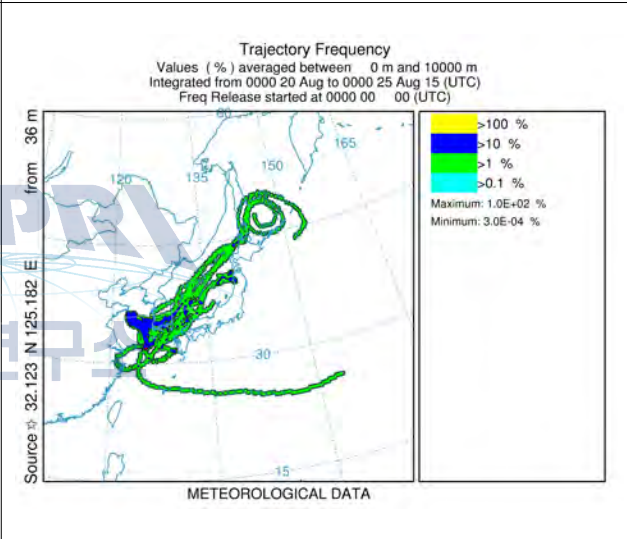
이러도 14



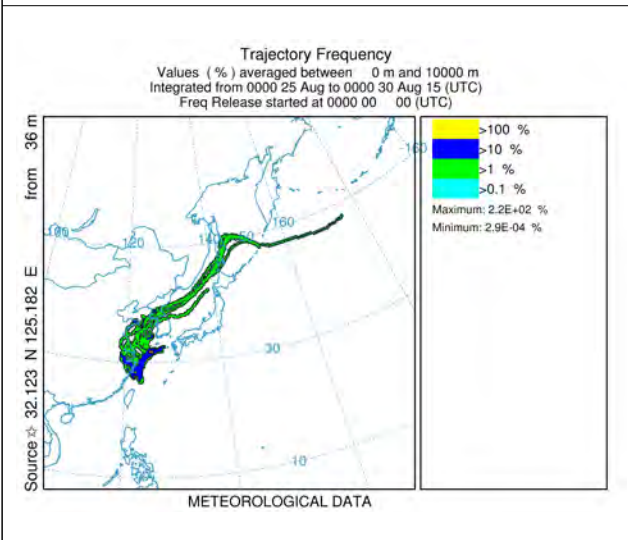
이러도 15



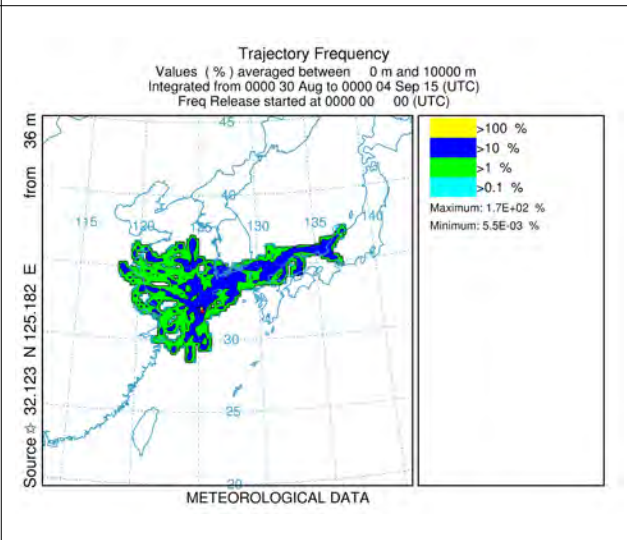
이러도 16



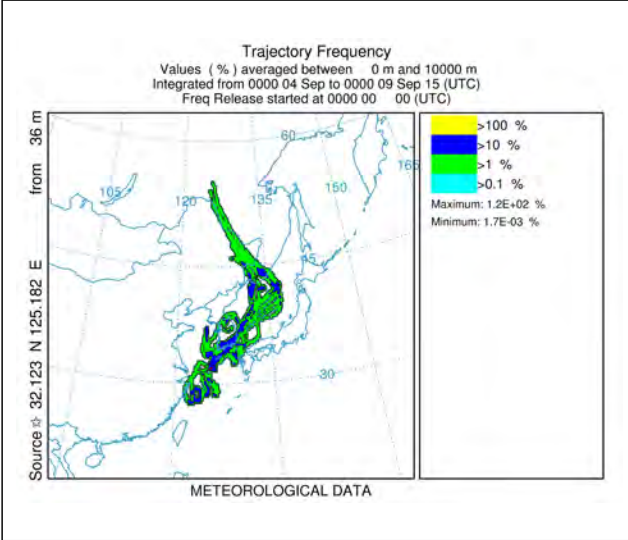
이러도 17



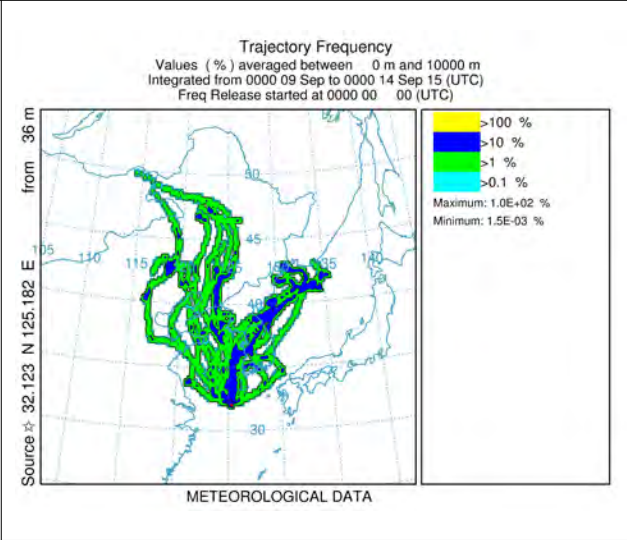
이러도 18



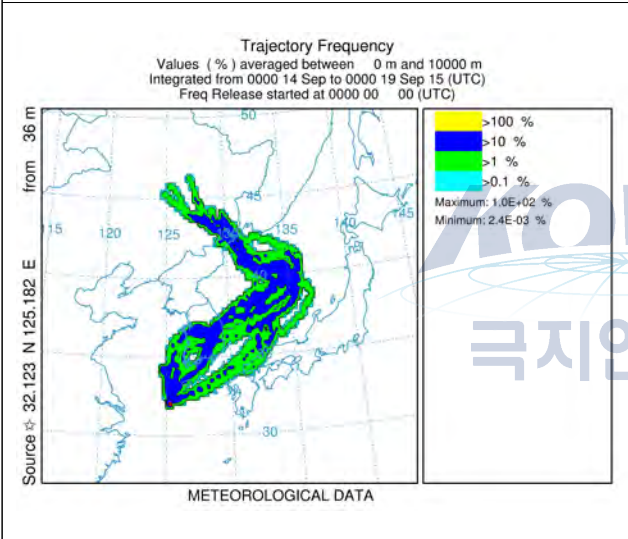
이러도 19



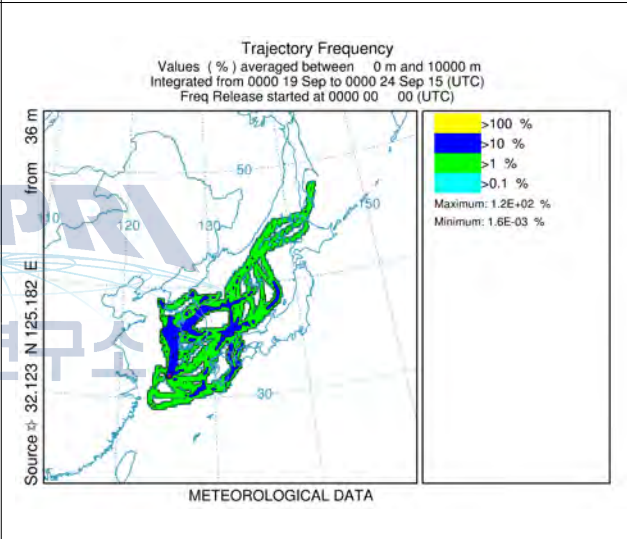
이러도 20



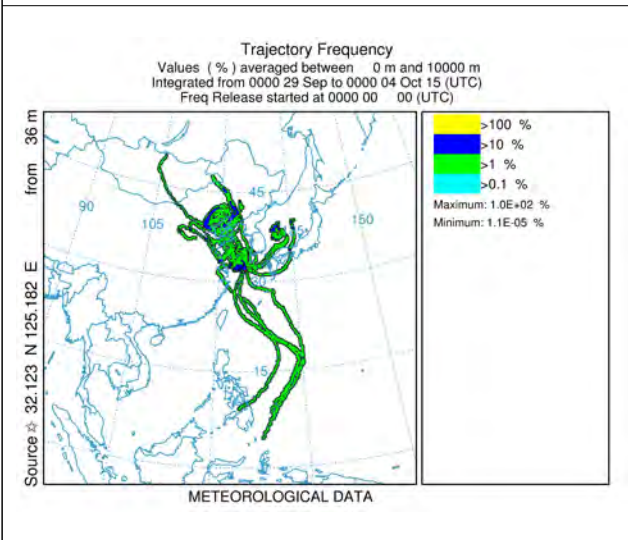
이러도 21



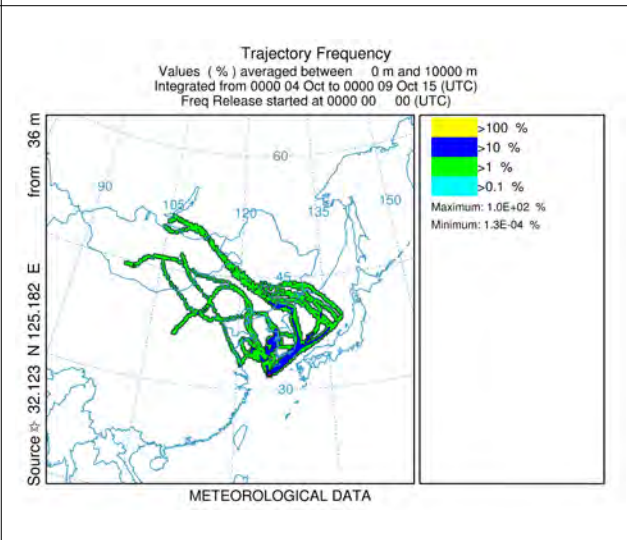
이러도 22



이러도 24

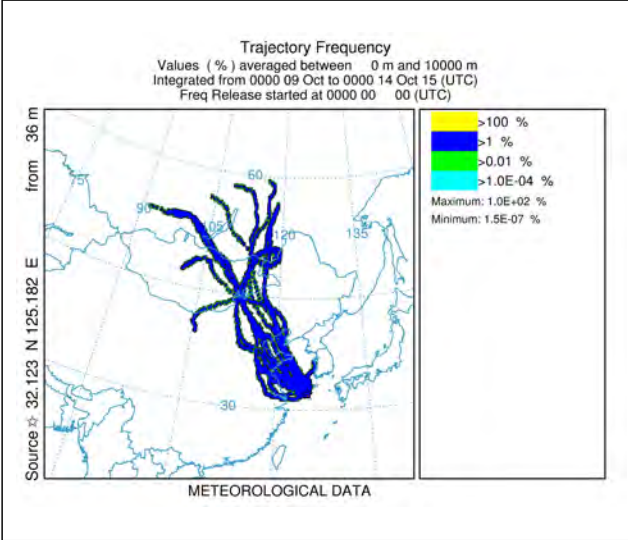


이러도 25

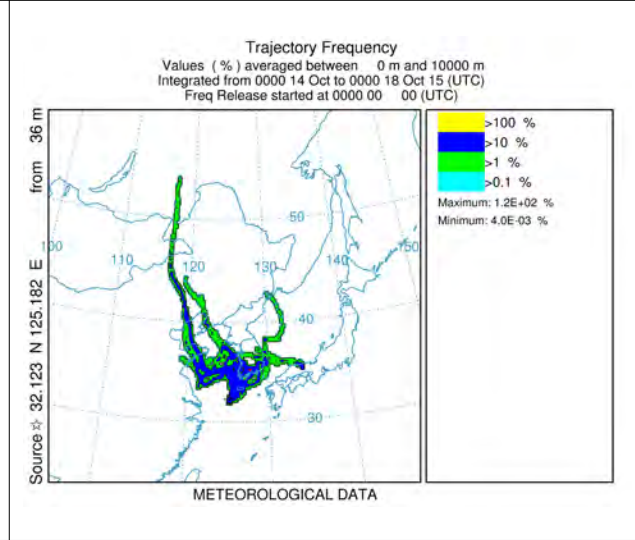




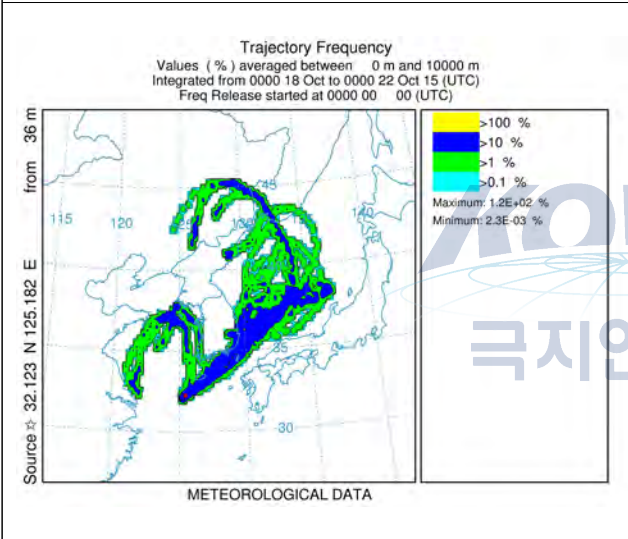
이러도 26



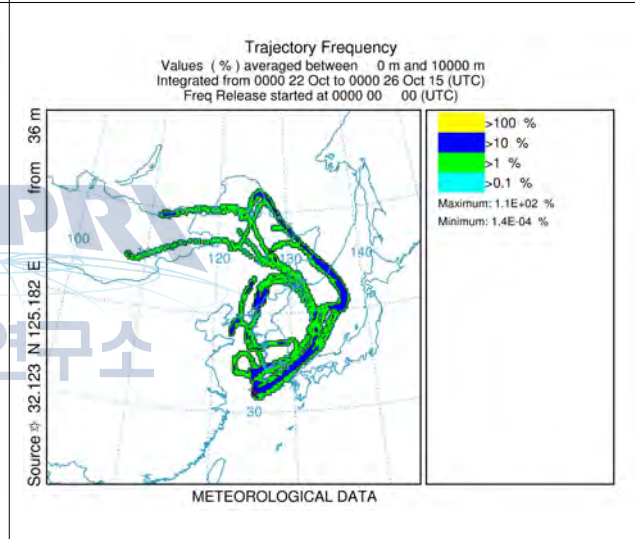
이러도 27



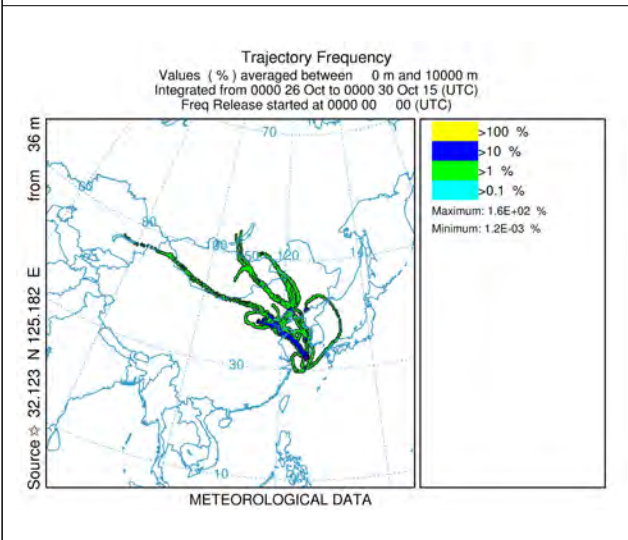
이러도 28



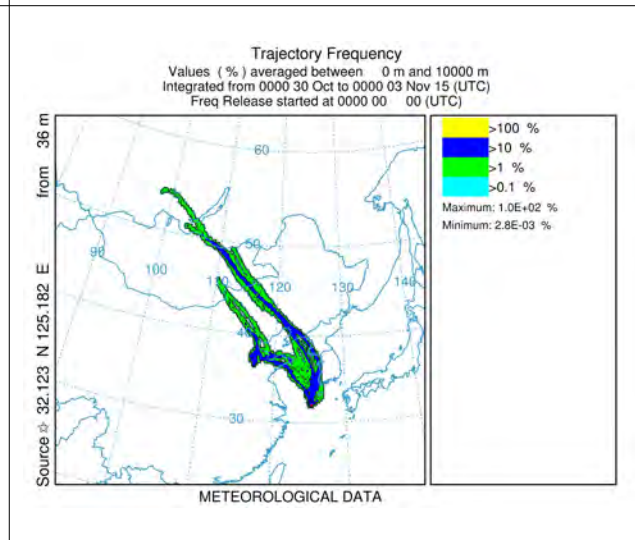
이러도 29



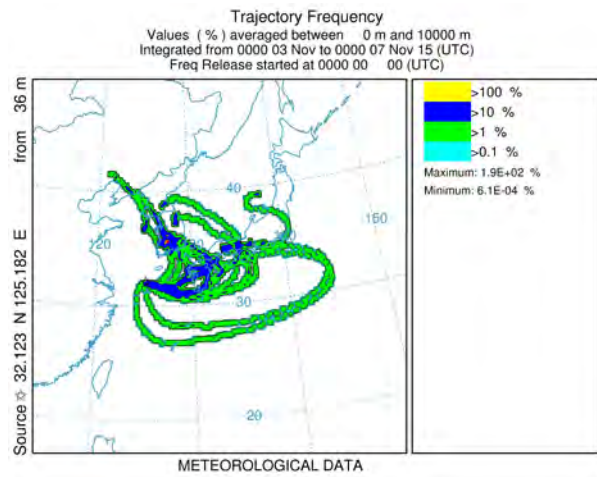
이러도 30



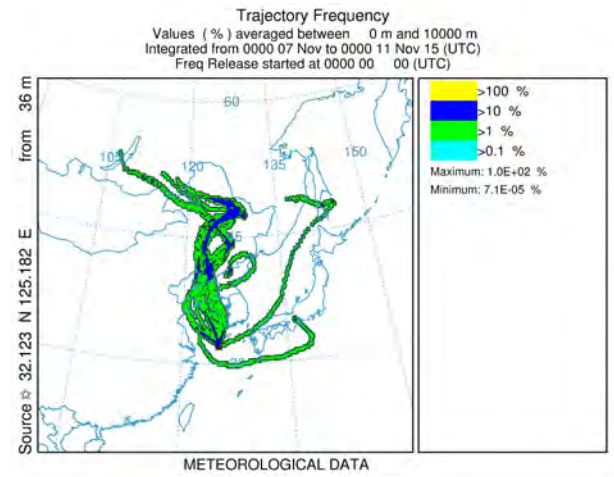
이러도 31



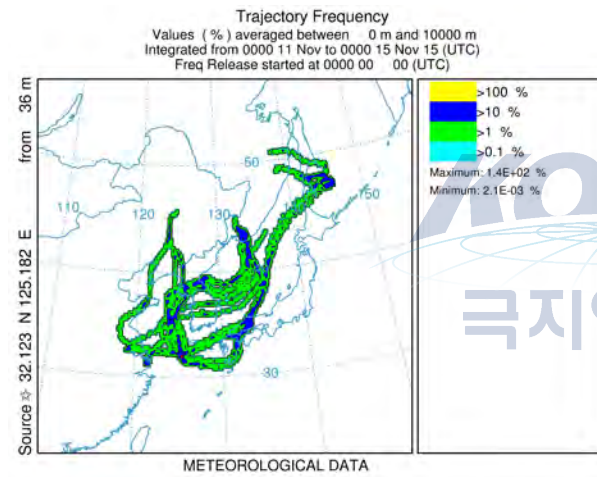
이러도 32



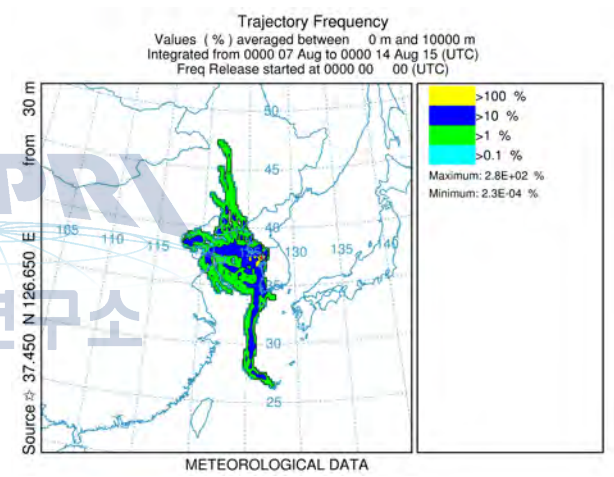
이러도 33



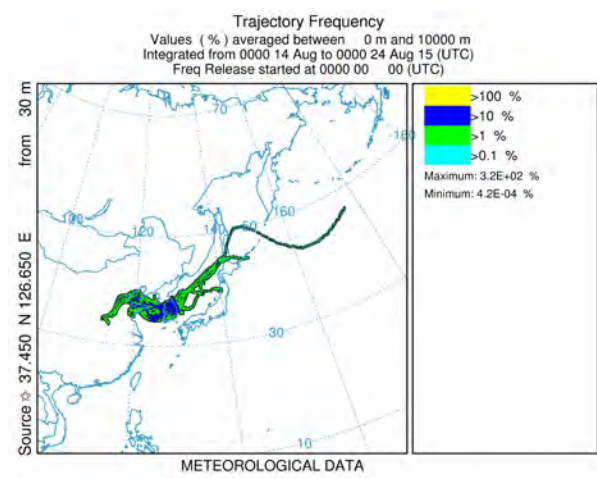
이러도 34



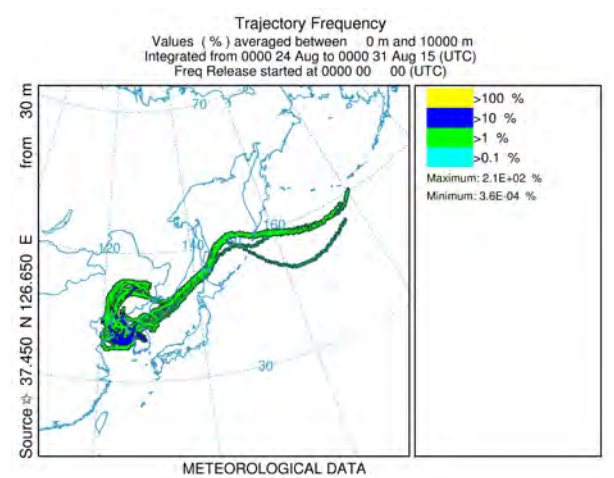
인천 1



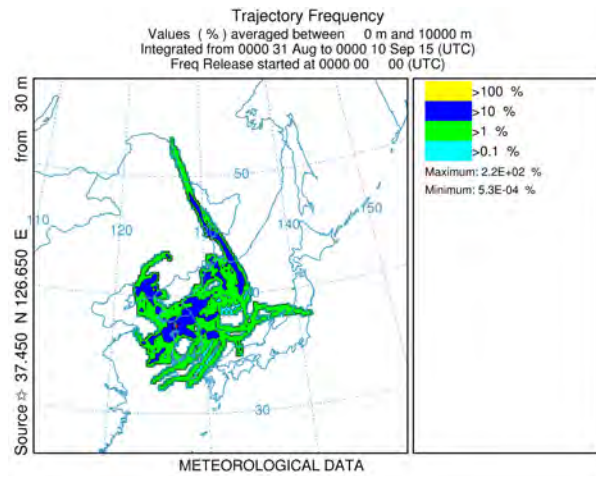
인천 2



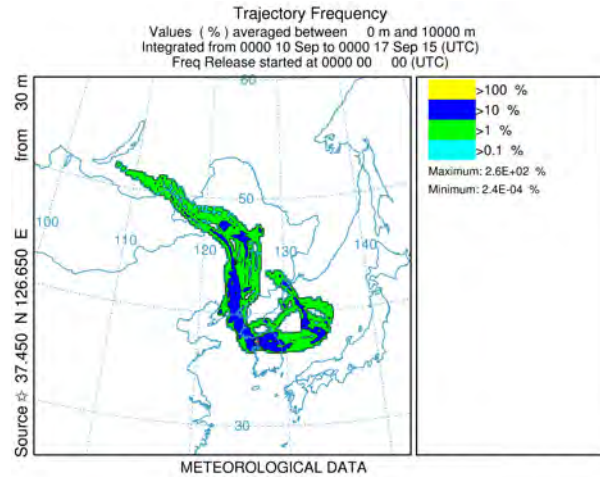
인천 3



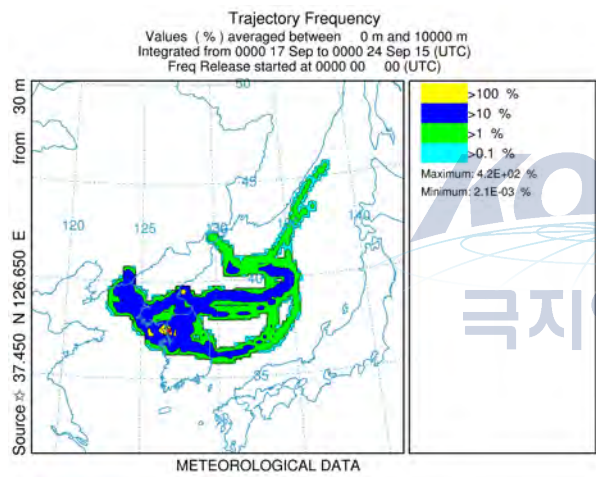
인천 4



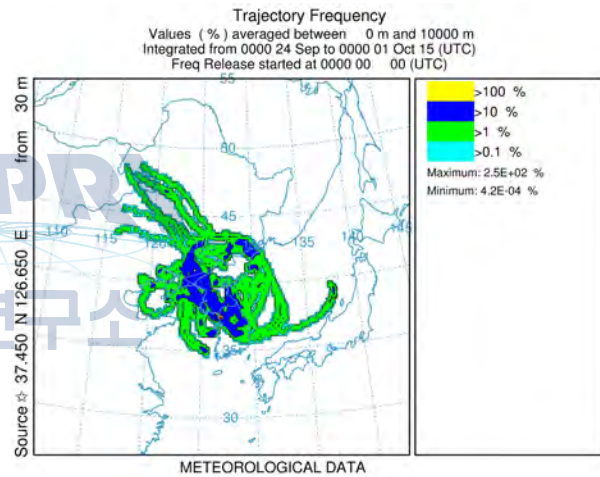
인천 5



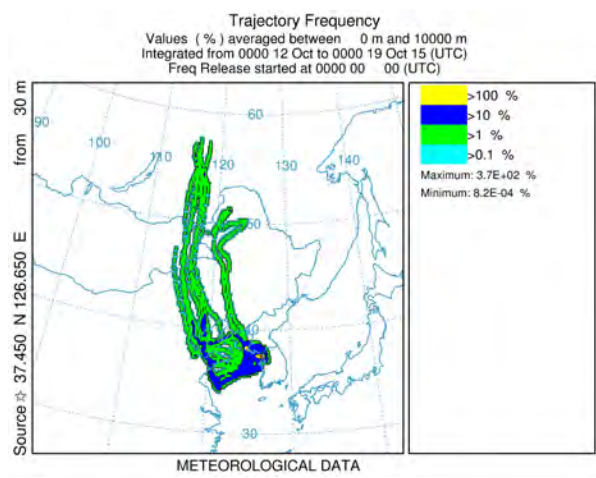
인천 6



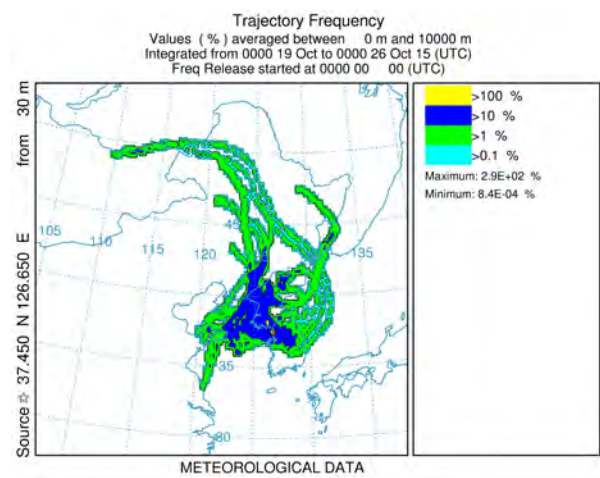
인천 7



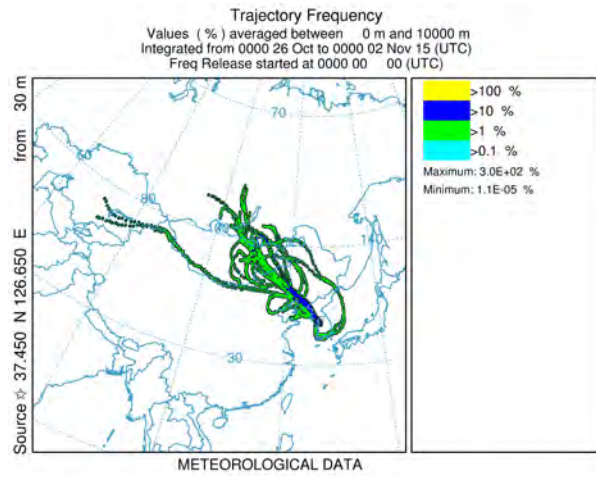
인천 8



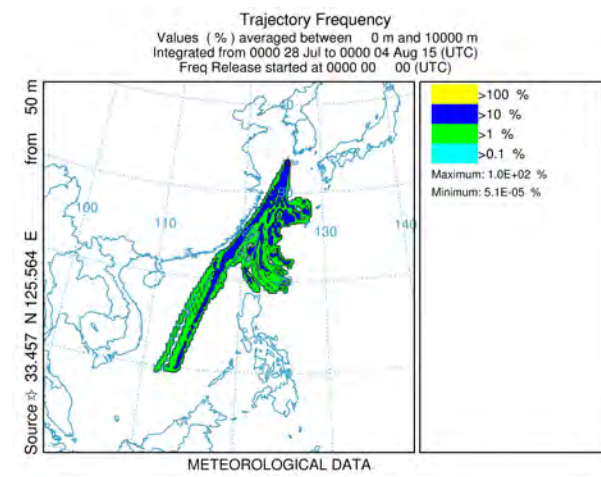
인천 9



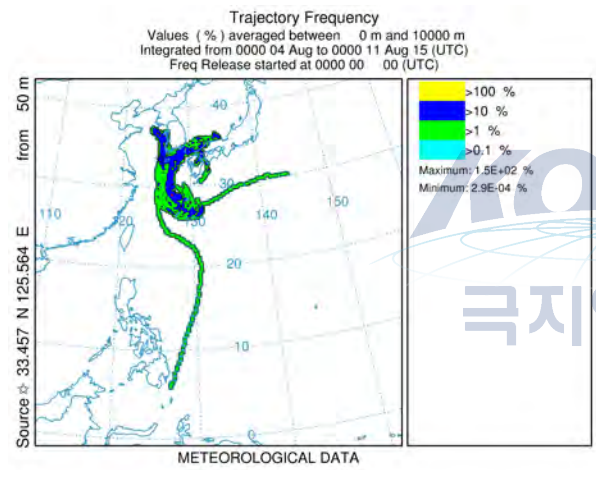
인천 10



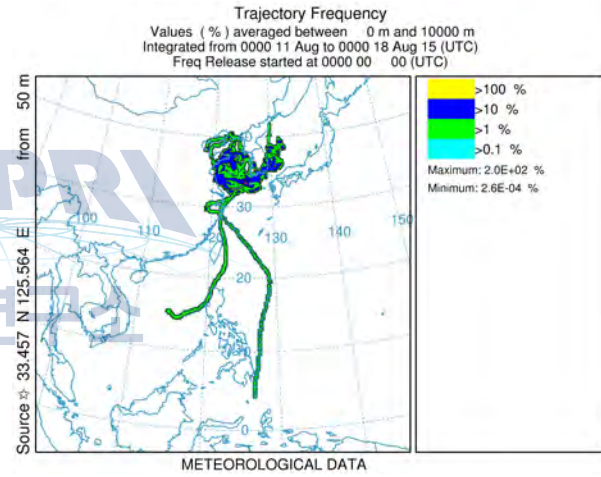
제주도 1



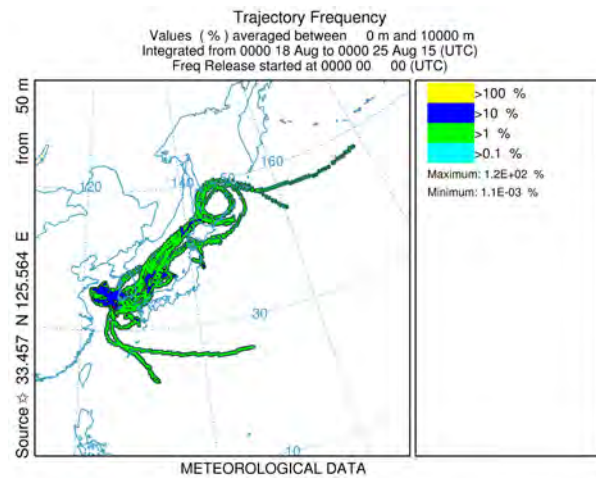
제주도 2



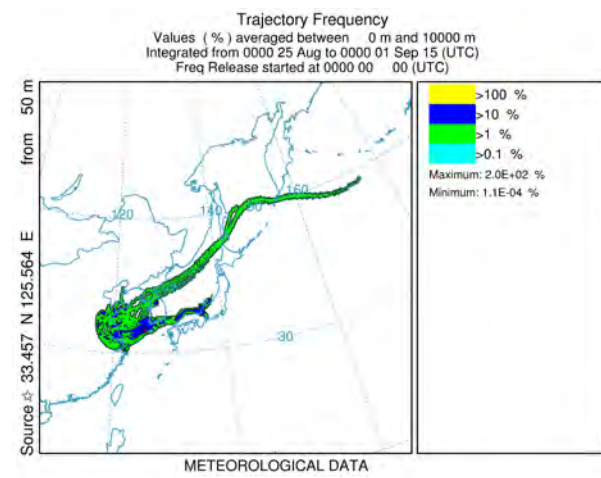
제주도 3



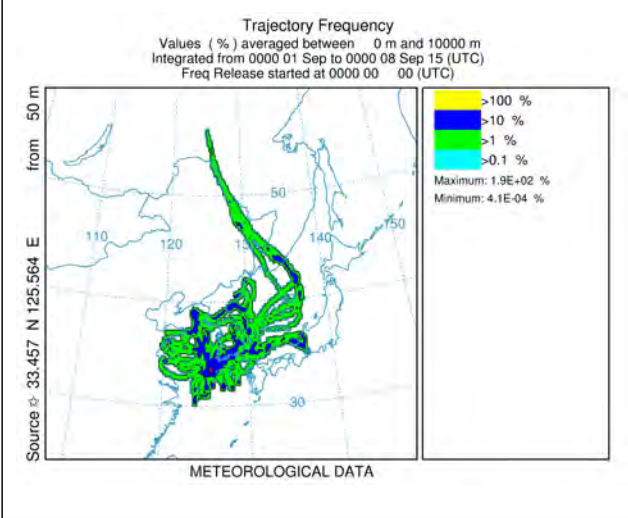
제주도 4



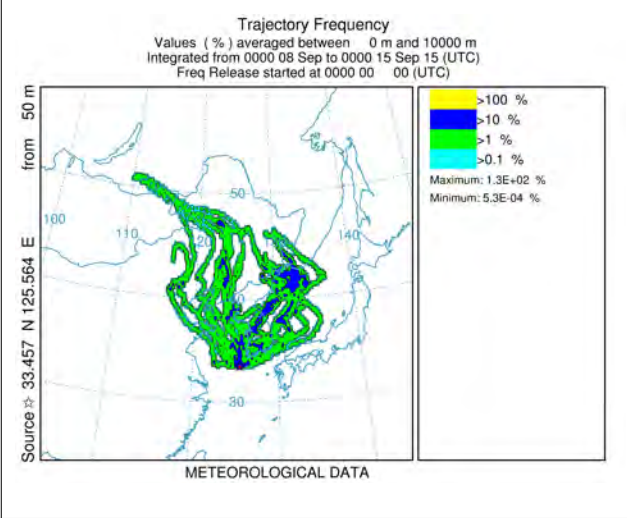
제주도 5



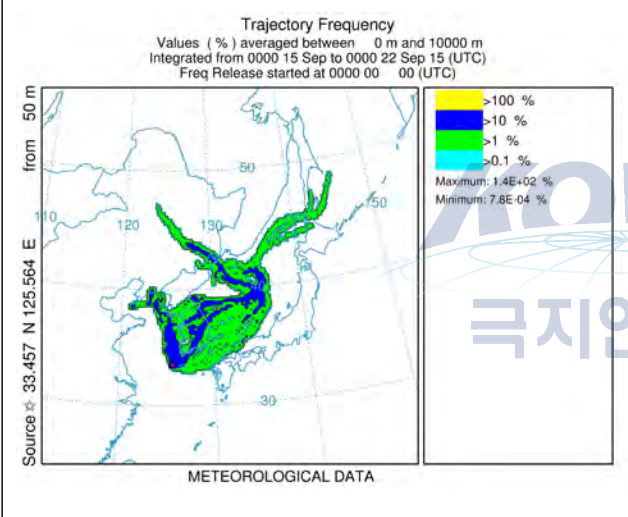
제주도 6



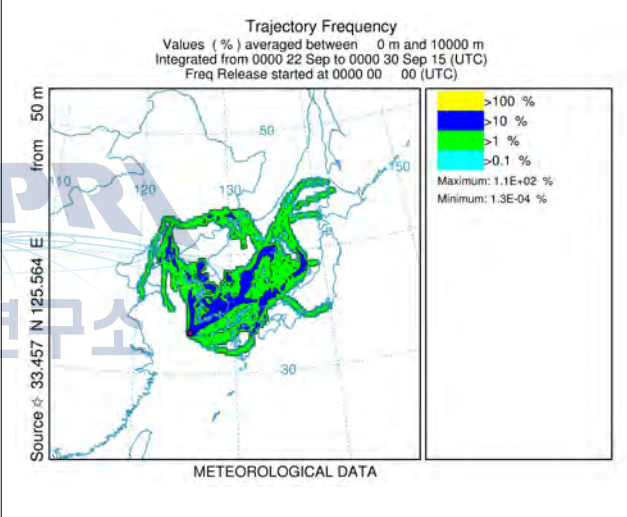
제주도 7



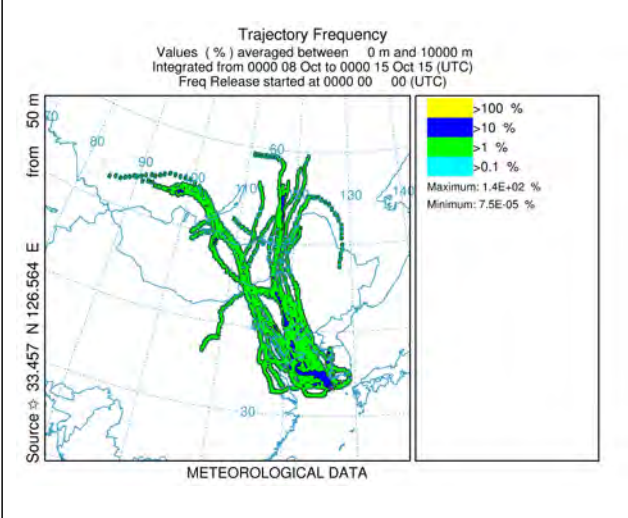
제주도 8



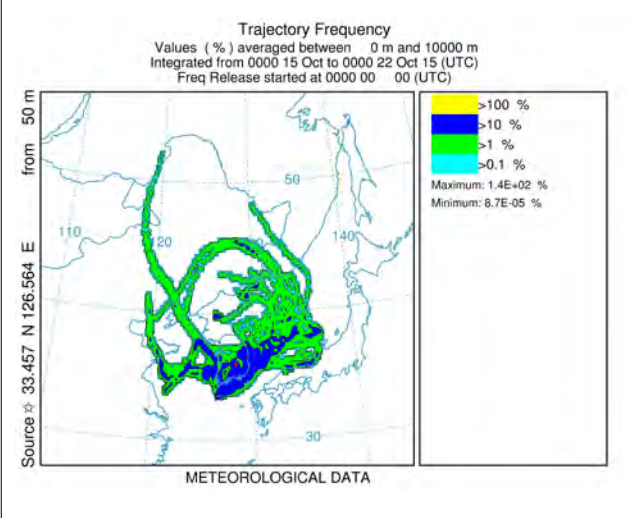
제주도 9



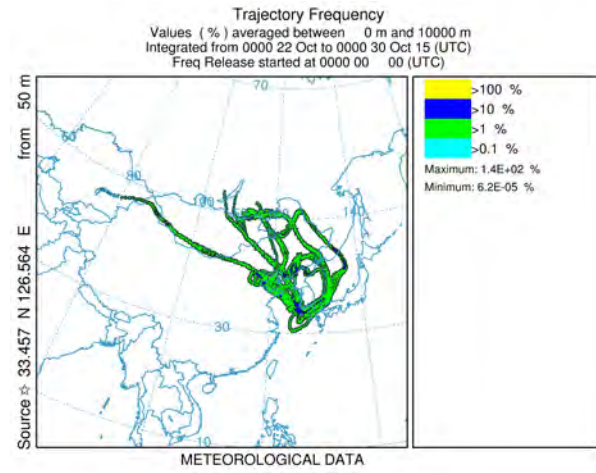
제주도 10



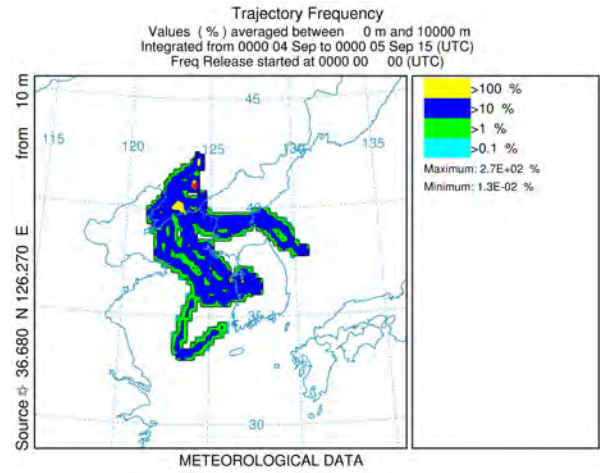
제주도 11



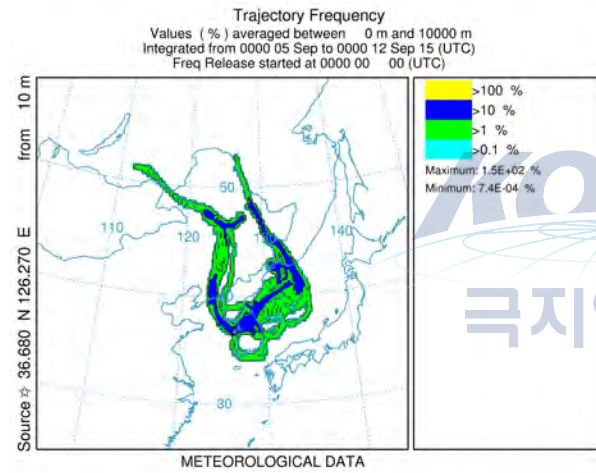
제주도 12



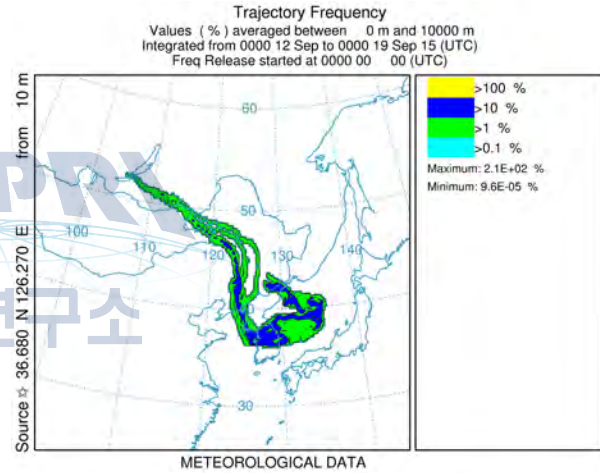
태안 1



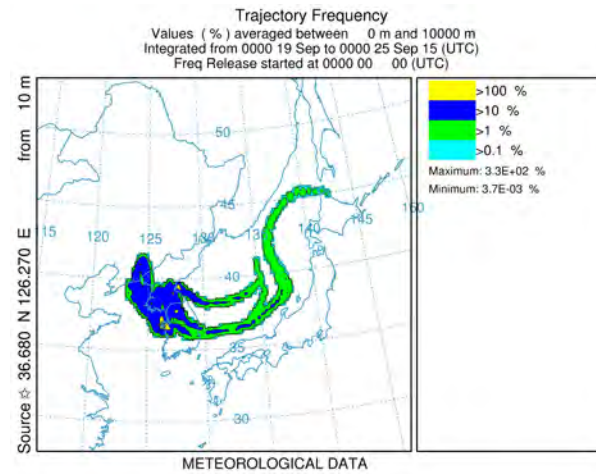
태안 2



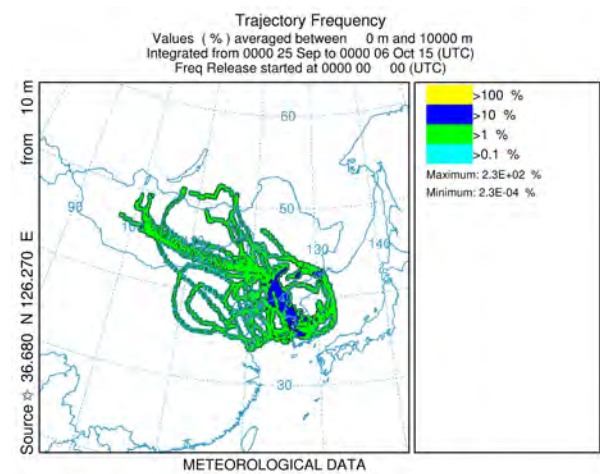
태안 3



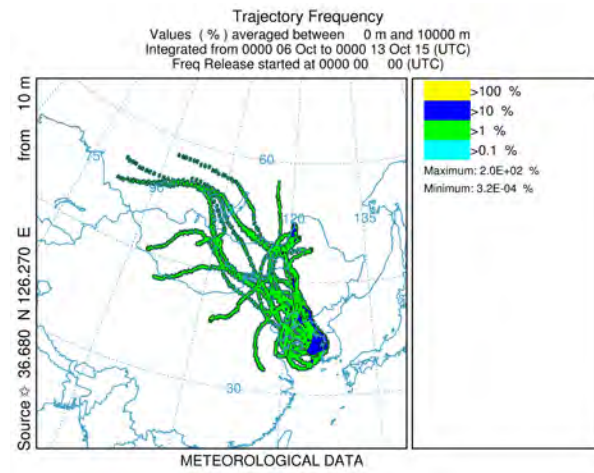
태안 4



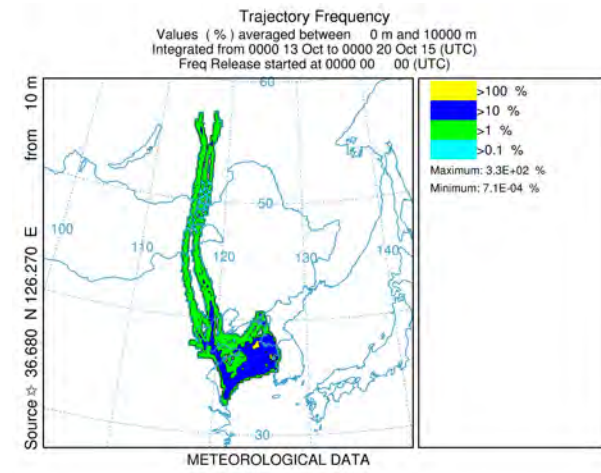
태안 5



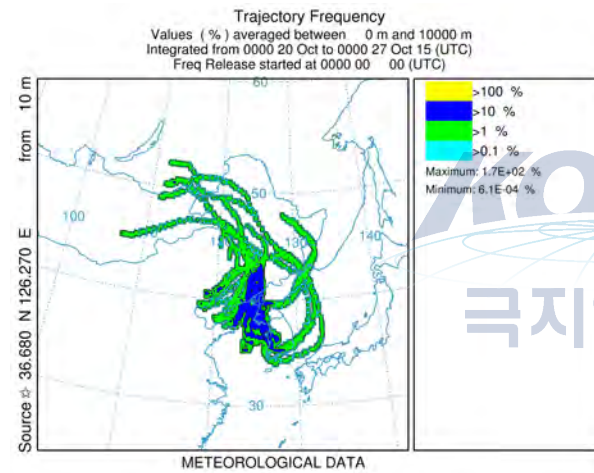
태안 6



태안 7



태안 8



KOPRI  
극지연구소

주 의 사 항

1. 본 보고서는 해양수산부 국립해양조사원의 수탁을 받아 인하대학교와 극지연구소에서 수행한 연구보고서입니다
2. 본 내용을 대외적으로 게재, 인용할 때에는 반드시 해양수산부 국립해양조사원의 사전 허락을 받기 바라며, 무단 복제를 금합니다.



**이어도 종합해양과학기지 주변 해역의  
대기질 평가 및 장거리 이동 오염원 추적 기술 개발**

---

발행일 . 2015년 12월 14일

발행처 . 해양수산부 국립해양조사원  
부산시 영도구 해양로 315번지(606-806)  
TEL.051-400-4351  
FAX.051-400-4191

---

---