

서울의 일차탄소성분 입자 농도 변화 및 관리 방향

최은락¹⁾ · 이지이¹⁾ · 김용표^{2)*}

¹⁾이화여자대학교 환경공학과

²⁾이화여자대학교 환경블라인드스팟 연구센터

(투고 2024년 2월 15일, 수정 2023년 3월 15일, 게재확정 2024년 3월 16일)

Trend and policy directions of primary carbonaceous aerosols in Seoul

Eunlak Choi¹⁾, Ji Yi Lee¹⁾, Yong Pyo Kim^{2)*}

¹⁾*Department of Environmental Science and Engineering, Ewha Womans University*

²⁾*Research Center for Strategic Solutions for Environmental Blindspots in the Interest of Society*

(Received February 15 2024; Revised March 15 2024; Accepted March 16 2024)

Abstract

The concentrations of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and elemental carbon (EC) in particulate matter, typical primary aerosols have decreased in Seoul between 2003 and 2018 (80% for PAHs and 85% for EC). The yearly mean benzo[a]pyrene (BaP) concentration has been lower than 1 ng/m³ since 2010–2011, the target value set by the European Union (EU) and China. A series of policies related to solid fuel and vehicle in South Korea and China should be effective in the reduction of the ambient PAHs and EC concentrations. But the emission data of PAHs and EC at both countries did not support that hypothesis. Possible causes are uncertainties in the emission inventories of primary carbonaceous aerosols in South Korea and China, although there may be a minor effect of the emissions from North Korea on the concentrations in Seoul. Thus the further policy directions against PAHs and EC such as improvements of emissions inventories and measurements, intensive regulation of non-road mobile sources and control of PAHs derivatives are discussed.

Keywords : Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs); elemental carbon (EC); emissions of PAHs and EC in South Korea and China; Air quality management; North Korea

* Corresponding author.
Tel : +82-2-3277-2832
E-mail : yong@ewha.ac.kr

1. 서론

우리나라나 중국 같은 동북아시아 지역에서 유기 에어로졸은 초미세먼지의 상당부분(20~90wt%)를 차지하고 있다(Song et al., 2021; Wang et al., 2022). 따라서 초미세먼지를 효과적으로 저감하기 위해서는 유기성분의 발생, 이동, 변환, 제거 과정에 대한 과학적인 이해가 필수적이다.

유기 에어로졸은 발생원에서 직접 배출되는 일차 유기 에어로졸(primary organic aerosol, POA)과 여러 전구기체들이 대기에서 반응하여 생성되는 이차 유기 에어로졸(secondary organic aerosol, SOA)로 구분할 수 있다. 일차 유기 에어로졸의 대부분은 화석연료나 생체연료의 연소 과정에서 불완전연소로 인해 발생한다. 따라서 일차 유기 에어로졸 배출은 불완전연소의 대표적인 지표 생성물인 일산화탄소(carbon monoxide, CO)와 원소상 탄소(elemental carbon, EC)의 배출과 밀접하게 연관되어 있으므로(Hong et al., 2016; Ohara et al., 2007), CO와 EC를 POC의 지표로 사용할 수 있다.

일차유기 에어로졸의 대표적인 성분의 하나는 다환방향족 탄화수소(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)이다. PAHs는 두개 이상의 벤젠고리가 결합한 유기화합물로 자동차, 난방, 산업공정 등의 배출원에서 유기물 연소과정에서 생성된다(Mu et al., 2015). 따라서 대부분의 입자상 PAHs는 초미세먼지 크기에 분포한다(Seinfeld and Pandis, 2016). PAHs는 인체 위해성이 커서 유해 대기 오염 물질(Hazardous Air Pollutants, HAPs)로 구분되어 있고, PAH 성분 가운데 상대적으로 독성이 강한 물질을 선정하여 관리하고 있다. 미국 독성물질과 질병 기록국(United States Agency for Toxic Substances and Disease Registry, ATSDR)은 PAHs 중 17 성분을 우선관리 PAHs(Priority PAHs)로 정하여 관리하고 있다(ATSDR, 1995). 미국 환경보호청(U.S. Environmental Protection Agency, USEPA)은 이 가운데 benzo[*j*]fluoranthene을 제외한 16종을 우선관리 성분으로 관리하고 있다(USEPA, 1982). 유럽연합(European Union, EU)은 미세먼지(PM₁₀)에 포함

된 PAH 가운데 독성이 강한 benzo[*a*]pyrene (BaP) 성분에 대해 연평균농도 권고치(non-mandatory target annual mean value)로 1 ng/m³을 설정하였고(EU, 2004), 중국은 BaP 대기 농도 기준을 일평균 2.5 ng/m³, 연평균 1 ng/m³으로 설정하였다(MEE, 2012). 우리나라는 아직 PAH에 대한 대기환경기준이 없다.

EC는 탄소원자에 약간의 다른 원소가 포함된 물질로 연소과정에서 생성된다(Seinfeld and Pandis, 2016). EC는 약 550°C 정도에서 휘발하지 않는 물질을 지칭하는 명칭으로 광학적으로 광흡수성을 갖는 탄소성분인 black carbon (BC)와 비슷한 명칭이다(Seinfeld and Pandis, 2016). 약 550°C 이하에서 휘발하는 성분은 유기탄소(organic carbon, OC)라고 한다. EC 또는 BC는 인체 유해성과 광학특성으로 대기환경에 영향을 주기 때문에 발생기작과 변환과정, 건강영향에 대해 많은 연구가 진행되고 있다.

PAHs와 EC는 일차로 배출되는 탄소성분 입자로(일차탄소성분 입자), 같은 배출원에서 배출되며, 인체 유해성으로 인해 많은 연구가 진행되었으며, 특히 인구가 많은 서울에 집중되어 있다. Han et al. (2019)은 2002~2013년 사이 관측한 PAHs 자료를 바탕으로 PMF 모델을 사용하여 주요 오염원의 상대적인 기여도 추이를 분석하였다. Choi et al. (2024)은 1993~2018년 사이 관측한 PAHs 농도 추이를 분석하고, 주요 오염원을 파악하며, 인체영향도를 계산하였다. Kim et al. (2020)은 2003~2017년 사이의 OC와 EC 농도 추이를 분석하였고, Kang et al. (2020)은 2013~2018년 사이의 OC와 EC 농도 추이를 분석하였다. 그러나 이 연구들은 농도 추이와 동북아시아의 대기오염물질 배출량 사이의 관계를 상세하게 분석하지는 않았다.

이 연구에서는 각종 문헌에 제시된 서울에서 관측된 일차유기탄소(primary organic carbon, POC) 성분의 하나인 PAHs와 EC 농도 추이와 PAHs와 BC 배출량 추이를 바탕으로 지금까지의 일차탄소성분 입자의 관리 정책 효과를 분석하고, 앞으로의 관리방향을 제안하였다. 분석 지역을 서울로 정한 것은 각종 관측 자료가 서울에 집중되어 있기 때문이며, 우리나라의 대

기관리 정책이 주로 서울, 수도권에서 먼저 시행되어 효과를 평가한 후 전국으로 확대되기 때문이다 (예를 들어 권역별 대기관리 정책).

2. 자료

이 연구에서 사용한 PAHs 자료는 (1) 서울에서 측정된 장기간(~1년 또는 그 이상) 자료로 저자가 측정, 분석에 참여하고 학술지에 게재된 자료와 (2) 환경부 유해대기물질측정망 자료 가운데 서울의 도시측정소 자료이다. 학술지에 게재된 논문에 제시된 측정기간, 예

어로졸 크기, 시료 개수, 분석한 성분 개수, 측정소 위치들의 정보를 표 1에 요약하였다. 표 1에 보듯이 각 기간마다 채취한 에어로졸 크기가 다르지만, PAHs가 연소과정에서 생성되는 물질이서 대부분 미세에어로졸 영역(fine particle range, 1 μm 이하 크기)에 존재한다(Seinfeld and Pandis, 2016). 환경부에서 측정된 자료에 대한 정보는 표 2에 제시하였다. 서울에는 2개소의 도시측정소(강남구, 광진구)와 1개소의 도로변 측정소(한강대로)가 있어서, 도시측정소 두 곳의 평균농도를 서울의 PAHs 농도로 제시하였다

Table 1. Previously published studies on PAH concentrations in Seoul. Sampling duration in these studies was 24 hours.

Period	Particle size	No. of samples	No. of analyzed compounds	Sampling site	Reference
Aug. 2002-Dec. 2003 (17 months)	TSP	68	17	Ewha Womans University (37°33'N, 126°56'E)	Lee et al. (2011)
Aug. 2006-Aug. 2007 ^a (13 months)	PM ₁₀	73	17	Seoul National University (37°27'N, 126°57'E)	Hong (2009)
Apr. 2010-Apr. 2011 ^b (13 months)	PM ₁₀	52	16	Seoul National University (37°27'N, 126°57'E)	Choi et al. (2016)
Oct. 2012-Sep. 2013 (12 months)	PM _{2.5}	114	16	Korea Institute of Science and Technology (37°60'N, 127°05'E)	Kim et al. (2016)
Jan. 2018-Dec. 2018 ^b (12 months)	PM _{2.5}	117	14	Seoul Metropolitan Air Pollution Research Center (37°61'N, 126°93'E)	Kang et al. (2020)

a. The concentration of Chry in 2006-2007 includes triphenylene.
 b. The concentrations of B[b+k]F in 2010-2011 and 2018 represent BbF.

Table 2. Information on the measurements of PAHs in Seoul provided by Ministry of Environment (MOE, 2020).

Period	Frequency of measurements	Data type	No. of compounds	Sampling site	Reference
Jul. 2005-Dec. 2005	Once per quarter of a year	Quarterly average	7	Hangang-daero (37°55'N, 126°97'E), Gangnam-gu (37°52'N, 127°05'E)	Annual Report of Air Quality in Korea
Jan. 2006-Dec. 2011	Once per a month	Annual average	7	Hangang-daero (37°55'N, 126°97'E), Gangnam-gu (37°52'N, 127°05'E), Gwangjin-gu (37°55'N, 127°09'E)	
Jan. 2012-Jun. 2018	Once per a month	Monthly average	7	Hangang-daero (37°55'N, 126°97'E), Gangnam-gu (37°52'N, 127°05'E), Gwangjin-gu (37°55'N, 127°09'E)	Monthly Report of Air Quality
Jul. 2018-	Twice per a month	Monthly average	16	Hangang-daero (37°55'N, 126°97'E), Gangnam-gu (37°52'N, 127°05'E), Gwangjin-gu (37°55'N, 127°09'E)	

표 1에 제시된 PAH 성분은 14~17 종이며, naphthalene (Nap), acenaphthylene (Acy), acenaphthene (Ace)과 fluorene (Flu)은 대기 조건에서 대부분 기체상으로 존재하므로 추이분석에서 제외하였다. 따라서 추이분석에 사용한 성분은 12종이며, 이는 다음과 같다; phenanthrene (Phen), anthracene (Anthr), fluoranthene (Flt), pyrene (Pyr), benzo[a]anthracene (BaA), chrysene (Chry), (benzo[b]fluoranthene (BbF)+ benzo[k]fluoranthene (BkF)), dibenzofa,h]anthracene (DahA), indeno[1,2,3-cd]pyrene (Ind) and benzo[a]pyrene (BaP) and benzo[g,h,i]perylene (BghiP). 표 2에 제시된 환경부 자료는 7종과 16종이 분석되었다. 환경부는 2005년부터 전국 16개소에서 PAHs 7종을 분기별로 측정하다가 2006년부터는 월별로, 그리고 2018년부터는 전국 34개 측정소에서 매월 2회씩 16종을 측정하고 있다. 2005년부터 측정된 7종은 BaA, Chry, BbF, BkF, DahA, Ind, BaP이고, 2018년부터 추가로 측정된 9종은 Nap, Acy,

Ace, Flu, Phen, Anthr, Flt, Pyr, BghiP이다(MOE, 2020).

이 연구에서는 표 1에 제시한 12종에 대해 추이분석을 주로 수행하였다 (Σ_{12} PAHs). 그러나 문헌에 나온 결과와 환경부 결과를 비교할 때에는 공통으로 분석한 6종의 PAH 농도 합(BaA, Chry, (BbF+BkF), DahA, Ind, BaP, Σ_6 PAHs)을 사용하였다. BaP 독성등가농도 (BaP toxic equivalent concentration, BaP_{TEQ})는 PAH 성분들의 농도를 가장 위해도가 높은 BaP의 위해도와 비교하여 농도를 계산하는 방법이다 (Nisbet and LaGoy, 1992). 이 연구에서는 12종 PAH 성분의 BaP_{TEQ}를 식 1과 같이 계산하였다.

$$\text{BaP}_{\text{TEQ}} = (\text{Phen}) \times 0.001 + (\text{Anthr}) \times 0.01 + (\text{Flt}) \times 0.001 + (\text{Pyr}) \times 0.001 + (\text{BaA}) \times 0.1 + (\text{Chry}) \times 0.01 + (\text{BbF}) \times 0.1 + (\text{BkF}) \times 0.1 + (\text{BaP}) \times 1 + (\text{DahA}) \times 1 + (\text{Ind}) \times 0.1 + (\text{BghiP}) \times 0.01 \quad (1)$$

사용한 OC 농도는 Kim et al. (2020)의 자료이며, EC 농도는 Kim et al. (2020)과 Kang et al. (2020) 자료를 같이 사용하였다. Kim et al. (2020)은

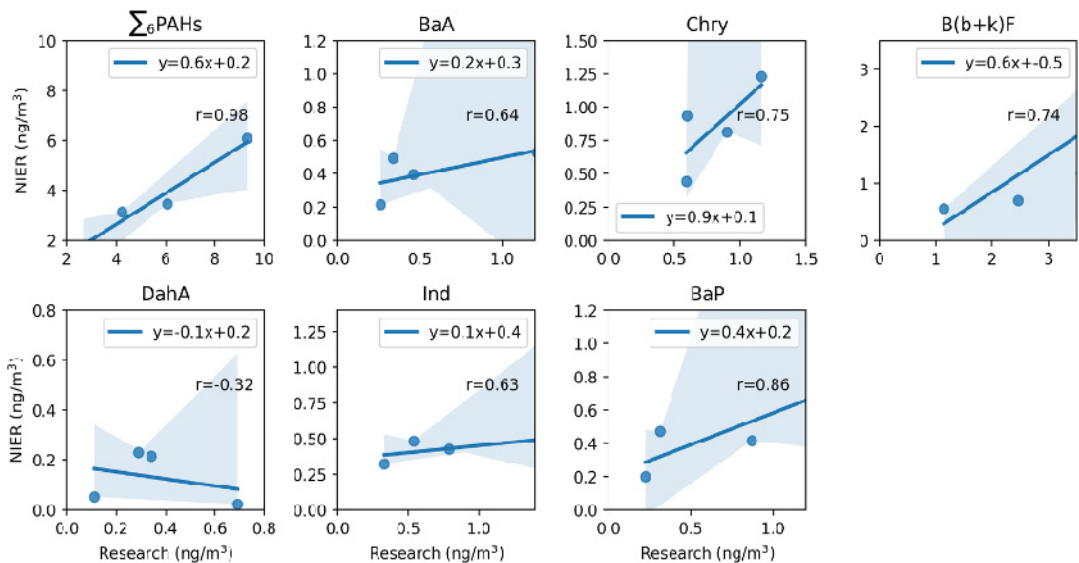


Figure. 1. Comparison of (a) Σ_6 PAHs (b) BaP (c) Chry, (d) DahA, (e) Baal, (f) B[b+k]F and (g) Ind between MOE and the previous studies published in the journals. X axis is concentration from the previous studies (research in the figure) and y axis is concentration from the National Institute of Environmental Research (NIER) (MOE). The blue shaded area is the confidence interval of the regression estimates.

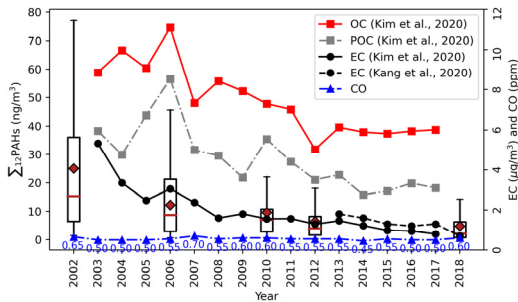


Figure 2. Temporal trend of concentrations of Σ PAHs (left axis, box), CO (right axis, blue), EC (right axis, black), OC (right axis, red) and POC (right axis, gray). EC data are from Kim et al., 2020 (solid line) and Kang et al. 2020 (dashed line). OC and POC concentrations are from Kim et al., 2020.

2003~2017년에 서울대학교 연건캠퍼스에서 3일 혹은 6일에 한번 24시간 채취를 통해 OC/EC 측정기로 분석한 결과이다. Kang et al. (2020)은 2013~2018년 사이에 불광동 소재 수도권대기환경연구소에서 1시간 채취하여 OC/EC 측정기로 분석한 결과이다. CO 농도의 경우 환경부의 도시대기측정망 자료 중 PAHs 농도와 동일하게 서울 2개소의 도시측정소(강남구, 광진구)의 자료를 활용하였다.

3. 결과와 토의

3.1 장기 추이

두 종류의 PAHs 자료가 있어, 두 자료의 정합성을 먼저 확인하여 추후 분석을 수행하였다. 그림 1에 문헌에 제시된 결과와 환경부에서 측정한 결과의 평균 농도를 비교하였다. 2장에서 설명하였듯이 환경부 자료는 2018년 이전에는 7종을 분석하여서, 비교는 두 자료 모두 분석한 6 성분과(BaA, Chry, B[*b*+*k*]F, DahA, Ind, Bap), 6 성분의 합(Σ_6 PAHs)에 대해 수행하였다. 문헌에 제시된 자료와 환경부 자료의 측정 기간이 같은 자료만을 선정하여서 자료가 많지 않아, 비교 결과의 신뢰도를 평가하기는 힘들다. 그러나 두 결과 사이의 기울기는 -0.1~0.9로 환경부의 자료가 이전 연구 결과보다 약 60% 낮은 것으로 보이며, r 은 -0.32~0.98로

약 0.6으로 나타났다. 이는 두 결과가 서로 다르며, 두 자료를 같이 활용하기 힘들다는 것을 보여준다. 따라서 앞으로의 결과 분석은 측정 결과의 정도관리 절차가 더 상세하게 제시된 학술지에 게재된 문헌 자료를 활용하였다.

그림 2는 문헌 자료의 Σ_{12} PAHs 농도와 EC, CO 농도를 보인 것이다. Σ_{12} PAHs 농도는 2002~2003년부터 계속 감소하고 있다. 2002~2003년 농도는 $25.0 \pm 27.1 \text{ ng/m}^3$ 였으나 2018년 농도는 $4.80 \pm 6.33 \text{ ng/m}^3$ 으로 80% 정도 감소하였다. PAHs와 같은 불완전연소 생성물인 EC 농도도 이 기간동안 크게 감소하였다. EC 농도는 Kim et al. (2020)에 의하면 2003년과 2017년 사이에 85% 감소하였다. Kang et al. (2020)의 자료에 의하면 2013년에서 2018년 사이 EC 농도가 60% 감소하였다. 그림 2에 같이 보이지는 않았지만 Choi et al. (2024)에 의하면 BaP_{TEQ}, BaP 농도 역시 감소하는 추세이다. BaP 농도는 2010~2011년 자료부터, BaP_{TEQ}는 2012~2013년 자료부터 EU 권장 농도와 중국 대기환경기준 농도보다 낮다. 또한 PAHs에 의한 건강영향 지표의 하나인 발암위해성(the incremental lifetime cancer risk, ILCR) 역시 0~1세 남성 영아를 제외한 모든 연령, 성별 그룹에서 2006~2007년부터 일반적으로 안전한 것으로 알려진 10^{-6} 보다 낮다(Choi et al. 2024). 하지만 0~1세 남성 영아 그룹은 2018에도 위해도가 10^{-6} 보다 높았다(Choi et al. 2024). PAHs와 마찬가지로 일차 대기 오염 물질인 CO 농도는 오히려 증가하였다. CO 농도는 2003년과 2018년 사이 20% 증가하였다. OC 농도는 Kim et al. (2020)에 의하면 2003년과 2017년 사이에 32% 감소하였고, Kang et al. (2020)의 자료에 의하면 2013년에서 2018년 사이 5% 증가하였다.

PAHs 농도와 EC 농도 사이의 상관관계는 높다($R^2 = 0.97$). 이는 이 두 물질이 같은 배출원에서 배출되었을 가능성이 큰 것을 의미하며, 두 물질 농도가 같이 크게 줄어든 것은 2000년대 초부터 서울에서 시행된 배출원 관리 정책이 성공적이었음을 의미한다(Kim and Lee, 2018). 이에 대해서는 3.2절과 3.3절에서 자세히 논의하였다. 그러나 PAHs와 CO ($R^2 = 0.15$), PM_{2.5} 질량 농도($R^2 = 0.37$), OC ($R^2 = 0.52$)와의 상관관계는 높

지 않았다. 이는 CO는 PAHs 배출원 외의 다른 오염원이 있기 때문에 보이며(외부에서의 장거리 이동 등), PM_{2.5} 경우에는 이차오염물질 비율이 높기 때문으로 보인다. OC 농도 추세가 EC 농도 감소 추세보다 낮거나 오히려 증가하고, OC와 PAHs 상관관계가 높지 않은 것은 OC의 SOA 비율이 높고, SOA 감소 추세가 낮기 때문으로 보인다. 이에 대해서도 3.3절에서 논의하였다.

우리나라 대기오염물질 농도에 영향을 미칠 것으로 보이는 중국의 PAHs와 EC 자료를 검토하였다. Hayakawa et al. (2020)에 의하면 중국 북동부 셴양(Shenyang)의 PAH 9개 성분(Flt, Pyr, BaA, Chry, B[b+k]F, BaP, BghiP, Ind) 농도는 2001~2002년에서 2013~2014년 사이에 증가하는 추세를 보이다 절반으로 줄어들었다. Cheng et al. (2021)에 의하면 2002~2013년 사이에 중국에서 EC 농도는 17%, OC 농도는 32% 감소하였다. 따라서 중국도 이 기간 PAHs와 EC 농도가 줄어드는 경향을 보인다.

3.2 정책과 대기오염물질 배출량 변화추이

PAHs나 EC, CO 같은 일차대기오염물질은 불완전 연소에 의해 주로 생성되므로 이들 물질의 배출을 줄이기 위해서는 불완전연소를 저감하는 것이 중요하다. 불완전연소를 줄이기 위해 가장 효과적인 방법은 연소 효율이 낮은 고체 연료 관리이다. 서울에 적용된 고체연료 관리 대책으로 중요한 것은 1985년부터 대도시에서 석탄과 나무 같은 고체연료 사용을 제한하였고, 2003년부터는 서울시에서 석탄 사용을 금지하였다(Kim and Lee, 2018). 이에 따라 1990년대부터 2000년대 초반까지 서울의 CO 농도는 1991년 2.2 ppm에서 2005년 0.5 ppm으로 크게 줄어들었다(Kim and Lee, 2018).

도시에서의 주요 연소원인 자동차의 경우 한국에서는 경유자동차에 대해 1991년 유럽 기준(Euro Standard 1, 유로1)을 도입하였고 2015년 유로6을 도입하였다. 이와 함께 서울에서는 2002년부터 천연가스(compressed natural gas, CNG) 버스를 도입하였고 2003년부터 노후 경유자동차에 입자제거장치(diesel particulate filter, DPF) 설치를 장려하여 EC와

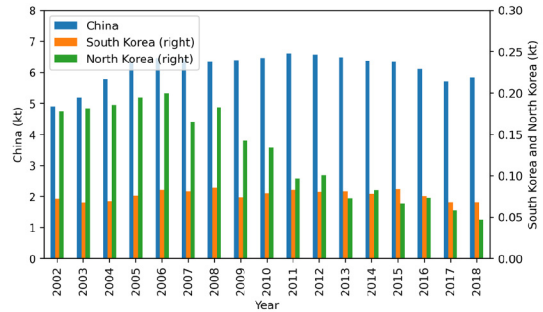


Figure 3. Temporal variation of PAHs (BaP, BkF, BbF, Ind) emission in China, South Korea and North Korea from 2002 to 2018 (Crippa et al., 2020).

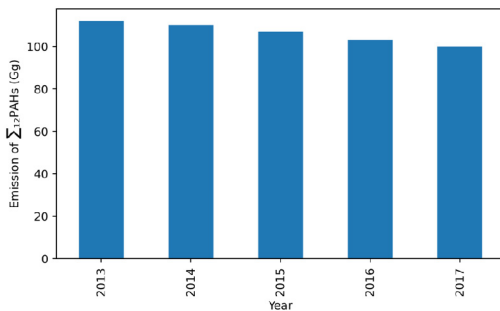


Figure 4. Temporal variation of PAHs emission in China from 2013 to 2017 (Reconstructed from Wang et al., 2021).

PAHs가 포함된 먼지 배출 저감을 위해 노력하였다.

우리나라에서 작성한 PAHs 배출량 자료는 없다. 그림 3에 보인 중국과 우리나라, 북한의 PAHs (BaP, BbF, BkF, Ind) 배출량 자료(Crippa et al., 2020)에 의하면 우리나라는 2002~2003년에서 2018년 사이에는 3% 정도만 감소하였다. 중국도 2003~2018년 사이 배출량이 오히려 12% 증가하였다. 그러나 2010년에서 2018년 사이에는 10% 감소하였다. 한편 Wang et al. (2021)에 의하면 2013~2017년 동안 중국의 PAHs 배출량은 12% 감소하였다(그림 4). 따라서 2002~2003년부터 2018년 사이의 서울의 PAHs 농도 저감 추이는 중국과 우리나라의 배출량 추이로는 설명이 되지 않는다.

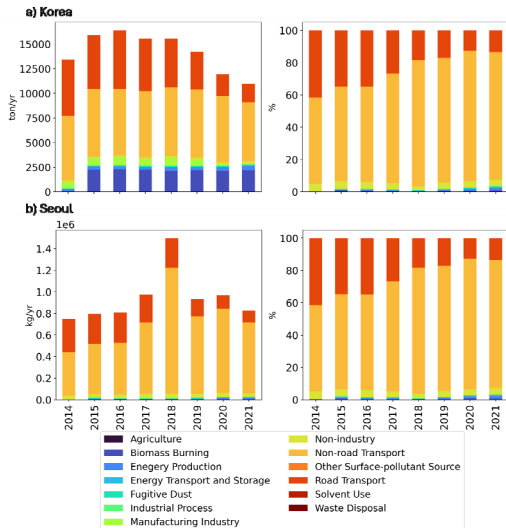


Figure 5. Changes in BC emissions between 2014–2021 in a) Korea and b) Seoul (Clean Air Policy Support System).

서울의 PAHs 농도에 영향을 미치는 인자의 하나는 북한의 영향이다. Lee and Kim (2007)은 표 1의 2002~2003년 자료에 수용모델을 적용하여, 서울에서 관측한 겨울 PAHs 농도의 80% 이상은 한국 외부(중국과 북한)의 고체연료(석탄과 생체) 연소에 의한 것이라고 주장하였다. Kim et al. (2013)은 표 1의 2002~2003년 자료에 수용모델과 역궤적 분석을 적용하여, 역궤적이 북한을 통과하는 경우가 역궤적이 중국에서 황해를 거쳐 오는 경우에 비해 생체소각 영향이 급증하여 PAHs 농도가 증가하는 것을 보였다. 또한 그림 3에서 보듯이 2002~2018년 사이 북한의 PAHs 배출량은 73% 감소하였다. Bae et al. (2018)에 의하면 2016년 기준 3차원 모델링 결과 수도권 연평균 PM_{2.5}의 15% 정도가 북한 영향이다. 따라서 서울에서 관측한 PAHs 농도 감소에는 북한의 영향이 어느 정도 있는 것으로 보이나, 서울의 PAHs 농도 추이를 모두 설명할 수는 없다.

이와 함께 생각할 수 있는 것은 서울과 수도권에 특화된 대기관리 정책의 효과이다. 우리나라 전역에는 PAHs 배출량이 크게 줄어들지 않았을 수 있지만, 수도권에 특화된 정책 효과로 수도권의 PAHs 배출이 줄어들었을 가능성이 있다. 특히 2005년부터 2014년까지

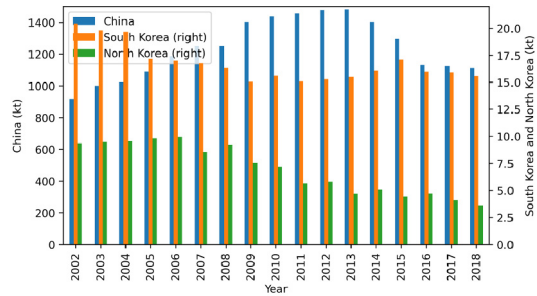


Figure 6. Temporal variation of black carbon (BC) emission in China, South Korea and North Korea from 2002 to 2018 (Crippa et al., 2020).

시행된 1차 수도권 대기환경관리 기본계획(기본계획)의 하나로 정부 예산이 집중 투입된 자동차 저공해화가 시행되었고, 2015년부터는 2차 수도권 대기환경관리 기본계획이 2024년까지 시행 중이다. 1차 기본계획이 시행된 2005~2014년 동안 총 3,081,429백만원의 예산이 집행되었고, 이 가운데 저공해 자동차 보급에 608,507백만원(19.7%), 운행차 저공해화에 2,306,145백만원(74.8%)이 집행되었다(Cheong and Kim, 2021). 이 가운데 운행차 저공해화의 중요한 대책은 배출가스 보증기간이 지난 자동차(특정경유자동차)에 DPF를 설치하여 배출 먼지를 저감하는 정책이었다. 고체연료 사용이 제한된 도시에서는 EC, 그리고 PAHs가 경유차 배출먼지에서 주로 배출되는 것을 고려하면, 이 정책의 효과가 EC와 PAHs 농도 저감에 큰 영향을 끼칠 수도 있을 것이다. 그림 2를 보면 2005년부터 2013년 사이 EC와 PAHs 농도가 감소하여, 1차 기본계획이 성공적인 것처럼 보인다.

그러나 Han et al. (2023)에 의하면 1999~2012년 사이 여러 종류의 자동차의 PM₁₀ 배출량 추이는 기본계획 대상지역인 수도권과, 대상지역이 아닌 비수도권이 비슷한 추이를 보이고 있었으며, 이는 주로 주행거리 감소에 의한 것으로 나타났다. 즉 DPF 설치 등에 의한 자동차 PM₁₀ 배출 저감 효과는 통계적으로 유의하게 나타나지 않았다. Cheong and Kim (2021)은 2001~2014년 사이 수도권과 비수도권 사이의 도시대

기측정소와 도로변측정소의 PM₁₀과 NO₂ 농도 추이를 이차분법과 사건역사분석법을 사용하여 분석하여, 운행차 저공해화 사업의 도로변 PM₁₀ 농도와 NO₂ 농도 저감효과는 통계적으로 유의미하지 않은 것으로(제한적인 것으로) 판단하였다.

단 이 두 효과 분석 연구는 PM₁₀과 NO₂ 배출과 농도에 대한 연구이어서, 경유차, 특히 노후경유차에서 배출되는 비중이 높은 EC와 PAHs에 대해서는 더 효과가 높았을 가능성이 있다. EC와 PAHs는 연소과정에서 생성되므로 미세에어로졸 영역 크기의 입자이어서 DPF 장착은 PM₁₀ 질량농도 저감에는 큰 효과가 없지만, 이 두 성분의 저감에는 어느 정도 효과가 있었을 것이다. 이에 대해서는 추가 연구가 필요하다.

우리나라에서 작성한 EC 배출량 자료는 없으나, EC와 비슷한 개념의 BC 배출량 자료는 2014년부터 국가대기오염물질 배출량(CAPSS)에 포함되어 있다. 그림 5에서 보듯이 2014~2018년까지는 증가하다가 2019년부터 감소하고 있다. 하지만 서울의 EC 농도 감소에 비해 한국 및 서울의 배출량 감소 정도가 작고 추이가 맞지 않는 것으로 보인다. 중국의 BC 배출량 자료를 그림 6에 보였다. 풍상지역인 중국에서도 EC 농도의 감소 추이(Cheng et al., 2021)가 보고된 반면, 중국의 BC 배출량은 2002년부터 2013년까지 증가하다가 2018년까지 감소하는 추이를 보였으나 2002년부터 2018년까지는 한국 및 서울의 배출량과 마찬가지로 뚜렷한 감소추이를 보이지는 않는다. 따라서 2002~2003년부터 2018년 사이의 서울의 EC 농도 저감 추이는 PAHs 농도와 마찬가지로 중국과 우리나라의 배출량 추이로는 설명이 되지 않는다.

한 지역의 대기오염물질 농도는 그 지역에서의 배출, 반응에 의한 생성 및 소멸, 제거(주로 침적), 외부에서의 유입 및 유출 정도에 따라 결정된다. PAHs나 EC 같은 일차대기오염물질의 경우, 우리나라에서의 농도는 풍상지역인 중국과 북한에서의 유입과 우리나라에서의 배출이 큰 영향을 미친다. 따라서 우리나라에서의 농도는 크게 줄어들었는데, 우리나라 배출량이 그다지 줄지 않고 풍상지역인 중국의 농도는 우리나라보다는 줄어드는 정도는 덜하지만 상당히 줄어들었다면, 배출량 자료의 불확실도가 그 원인으로 보인다.

3.3 앞으로의 정책 방향

서울에서 PAHs나 EC, CO 같이 유기물질의 불완전 연소에 의해 생성되는 일차대기오염물질의 농도는 지난 2002-2003년부터 2018년 사이 크게 줄어들었다. 이는 고체연료 사용 제한, 고효율 연소기기 사용, 연소원에서의 대기오염물질 배출허용기준 강화 등의 우리나라와 중국의 대기관리 정책의 성공 사례로 판단할 수 있다. 그러나 인체 영향 저감을 위해 이들 물질의 농도를 더 줄이기 위해서는 앞으로도 지속적인 강력한 대기 관리가 필요하다. 이를 위해 앞으로 시행하여야 할 정책 방향을 정리하였다.

1. 배출량 자료 고도화: 3.2절에서 보듯이 PAHs나 EC (BC) 배출량은 농도와 다르게 연구기간 동안 증가하다 감소하였고, 그 감소폭도 농도 감소폭보다 작았다. 북한의 영향도 있지만 반응성이 상대적으로 낮은 일차대기오염물질은 배출량 추이와 농도 추이가 비슷하다. 따라서 우리나라와 중국 모두 배출량 자료의 고도화로 보다 정확한 자료를 생산하는 것이 효과적인 정책 수립과 이를 대중에게 전달하기 위해 필수적이다.

2. 측정 고도화: 환경부의 유해대기측정망을 통해 2018년부터는 한 달에 두 번 측정이 이루어지기 때문에 3.1절에서 보듯이 자료의 수가 한정적이어서 다른 측정 및 분석 방법을 통해 보고되는 농도와 비교가 어렵다. 따라서 일차적으로는 측정 빈도를 늘려 충분한 양의 자료를 생산하여 활용도를 높이는 것이 바람직할 것으로 보인다. 또한 자료의 수가 한정적이기는 하나, 환경부의 유해대기측정망의 PAHs 측정 결과는 학술지에 게재된 자료와 다른 추이를 보이고 있다. 환경부 자료는 국가 공식 자료로 그 신뢰성을 확보하기 위해서는 측정을 고도화하여야 한다. 그러기 위해서는 측정, 분석 과정 및 방법에 대해 외부 전문가의 자문을 주기적으로 받아 신뢰성을 확보하는 것이 중요할 것으로 보인다.

3. 비도로 이동오염원 관리 강화: 그림 5에서 보듯이 우리나라 BC는 대부분 이동오염원에서 배출된다. Han et al. (2019)이 2002~2003년부터 2013년 서울에서 관측한 PAHs에 대해 수용모델을 사용하여 석탄 기여가 감소하고 이동오염원(자동차) 기여가 증가한 것을 보인 것처럼 EC와 PAHs는 이동오염원에서 주로 배출

된다. 그림 5에서 보듯이 이동오염원 가운데에서도 도로 이동오염원 기여율은 감소하고 있고, 비도로 이동오염원 비중이 상대적으로 증가하고 있다. 비도로 이동오염원은 균용 이동오염원, 철도, 선박, 항공기와 함께 건설기계와 농업기계가 중요한 부분이다. EC와 PAHs를 효과적으로 저감하기 위해서는 이들에 대한 보다 강력한 관리가 필요하다. 정부에서도 제3차 대기환경개선 종합계획(2023~2032년)에서 비도로 이동오염원의 대표적인 배출원인 농업기계와 건설기계 배출허용기준을 단계적으로 강화하고, 건설기계 저공해화를 지원하고 있다(MOE, 2023).

4. PAHs 유도생성물 연구 및 관리: 이전 연구(Choi et al., 2024)에 따르면 서울에서 PAHs에 의한 인체위해성은 그다지 크지 않은 것으로 나타났다. 그러나 PAHs가 산소, 질소, 할로겐 화합물과 반응하여 생성된 유도생성물인 O-PAHs, N-PAHs, halogenate PAHs의 위해도는 PAHs보다도 높은 경우가 있다(Vuong et al., 2020). 또한 서울의 O-PAHs 농도는 PAHs 보다도 높은 것으로 나타나(Shin et al., 2022) parent PAHs와 함께 PAHs 유도생성물에 대한 연구 및 관리가 필요할 것으로 보인다.

4. 결론

화석연료를 포함한 유기물의 연소 과정에서 불완전 연소로 인해 발생하는 EC와 PAHs의 서울 대기에서의 장기간 농도 추이를 분석하고, 농도에 영향을 미치는 배출량과 정책 영향을 검토하였다. 12종 PAH 성분 농도($\Sigma_{12}PAHs$)는 2002~2003년부터 2018년 사이 80% 정도 감소하였다. EC 농도도 자료에 따라 다르지만 2003년부터 2017년 사이에는 85%, 2013년부터 2018년 사이에는 60% 감소하였다.

이와 같은 농도 저감은 우리나라, 특히 수도권 대기 관리정책 효과가 가장 큰 것으로 보인다. 이들 정책은 연소 효율이 낮은 고체 연료 관리, 자동차, 특히 EC와 PAHs 주요 배출원인 경유자동차에 대한 배출허용기준 강화와 저공해자동차로의 전환(천연가스, LPG 자동차), 노후 경유자동차에 입자제거장치(DPF) 설치 등이 다. 이와 함께 중국의 대기오염물질 배출 관리와 그에

따른 대기오염물질 농도 저감도 지리적으로 중국의 풍하지역인 우리나라의 농도 관리에 영향을 미친 것으로 보인다. 그러나 우리나라와 중국의 PAHs와 EC (BC) 배출량 자료는 우리나라와 중국의 농도 저감 수준을 설명하기 힘들다. 서울에서 관측한 PAHs 농도 감소에는 북한의 영향이 어느 정도 있는 것으로 보이지만, 이것만으로는 서울에서의 PAHs와 EC 농도 저감을 모두 설명하기는 힘들며, 배출량 자료의 신뢰도 제고가 필요하다.

앞으로 PAHs나 EC 같은 일차유기대기오염물질 농도를 더 관리하기 위해서는 (1) 배출량 자료 고도화, (2) 측정 고도화, (3) 비도로 이동오염원 관리 강화, (4) PAHs 유도생성물 관리가 중요할 것으로 파악하였다.

감사의 글

이 연구는 2024년도 과학기술정보통신부의 재원으로 한국연구재단-동북아-지역연계 초미세먼지 대응 기술개발 사업의 지원을 받아 수행함. (과제번호: 2020M3G1A1114537)

References

- ATSDR (The Agency for Toxic Substances and Disease Registry). (1995). Toxicological profile for polycyclic aromatic hydrocarbons [ATSDR Tox Profile] (CIS/97/00215). <https://www.atsdr.cdc.gov/substances/toxsubstance.asp?toxid=25>
- Bae, M., Kim, H. C., Kim, B.-U., & Kim, S. (2018). PM_{2.5} Simulations for the Seoul Metropolitan Area:(V) Estimation of North Korean Emission Contribution. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(2). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.2.294>
- Cheng, Y., Chow, J. C., Watson, J. G., Zhou, J., Liu, S., & Cao, J. (2021). Decreasing concentrations of carbonaceous aerosols in China from 2003 to 2013. *Scientific Reports*, 11(1), 5352. <https://doi.org/10.1038/s41598-021-84429-w>
- Cheong S. W. & Kim, N. (2021). Effects and Management Risk of Air Quality Management Policies in the Seoul Metropolitan Area: Focusing on lessening PM₁₀ and NO₂ in the pollution reduction project of in-use diesel vehicles Cheong, Sang Woo, Kim, Nan Young. (37), 5-36. <http://data.doi.or.kr/10.22651/JAI.2021.37.5>
- Choi, E. L., Lee, J. Y., Kim, Y. P. (2024). Long-term (1993-2018) particulate polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) concentration trend in the atmosphere of Seoul: Changes in major sources and health effects. *Atmospheric Environment*, 319, 120418. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2024.120418>.
- Choi, N. R., Lee, S. P., Lee, J. Y., Jung, C. H., & Kim, Y. P. (2016). Speciation and source identification of organic compounds in PM₁₀ over Seoul, South Korea. *Chemosphere*, 144, 1589-1596. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2015.10.041>
- Crippa, M., Solazzo, E., Huang, G., Guizzardi, D., Koffi, E., Muntean, M., Schieberle, C., Friedrich, R., & Janssens-Maenhout, G. (2020). High resolution temporal profiles in the Emissions Database for Global Atmospheric Research. *Scientific Data*, 7(1), 121. <https://doi.org/10.1038/s41597-020-0462-2>
- EU (European Union). (2004). Directive 2004/107/EC of the European Parliament and of the Council of 15 December 2004 relating to arsenic, cadmium, mercury, nickel and polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient air (Off J Eur Union L, Issue. <http://data.europa.eu/eli/dir/2004/107/2015-09-18>
- Han, H., Kum, H., Kim, Y. P., & Jung, C. H. (2023). Evaluation of the Effectiveness and Efficiency of Atmospheric Particulates Reduction Policy: The Case of South Korea. *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 16(2), 2021130. <https://doi.org/10.5572/ajae.2021.130>
- Han, S., Lee, J. Y., Heo, J., & Kim, Y. P. (2019). Temporal Trend of the Major Contributors for the Particulate Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Seoul. *Aerosol and Air Quality Research*, 19(2), 318-330. <https://doi.org/https://doi.org/10.4209/aaqr.2018.06.0231>
- Hayakawa, K., Tang, N., Nagato, E., Toriba, A., Lin, J.-M., Zhao, L., Zhou, Z., Qing, W., Yang, X., Mishukov, V., Neroda, A., & Chung,

- H.-Y. (2020). Long-Term Trends in Urban Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Nitropolycyclic Aromatic Hydrocarbons: China, Russia, and Korea from 1999 to 2014. *International journal of environmental research and public health*, 17(2), 431. <https://doi.org/10.3390/ijerph17020431>
- Hong, Q., Xie, Z., Liu, C., Wang, F., Xie, P., Kang, H., Xu, J., Wang, J., Wu, F., & He, P. (2016). Speciated atmospheric mercury on haze and non-haze days in an inland city in China. <https://doi.org/10.5194/acp-16-13807-2016>
- Hong, S. B., Kang, C.H., Kim, W.H., Kim, Y.P., Yi, S.M., Ghim, Y.S., Song, C.H., Jung, C.H., Hong, J.H. (2009). PAHs concentrations of PM10 in Seoul metropolitan area (in Korean). *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 25(4), 347-359. <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2009.25.4.347>
- Kang, M., Kim, K., Choi, N., Kim, Y. P., & Lee, J. Y. (2020). Recent Occurrence of PAHs and n-Alkanes in PM2.5 in Seoul, Korea and Characteristics of their Sources and Toxicity. *Int J Environ Res Public Health*, 17(4). <https://doi.org/10.3390/ijerph17041397>
- Kim, B. M., Lee, S.-B., Kim, J. Y., Kim, S., Seo, J., Bae, G.-N., & Lee, J. Y. (2016). A multivariate receptor modeling study of air-borne particulate PAHs: Regional contributions in a roadside environment. *Chemosphere*, 144, 1270-1279. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2015.09.087>
- Kim, I. S., Lee, J. Y., & Kim, Y. P. (2013). Impact of polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH) emissions from North Korea to the air quality in the Seoul Metropolitan Area, South Korea. *Atmospheric Environment*, 70, 159-165. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.12.040>
- Kim, Y., Yi, S.-M., & Heo, J. (2020). Fifteen-year trends in carbon species and PM2.5 in Seoul, South Korea (2003-2017). *Chemosphere*, 261, 127750. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.127750>
- Kim, Y. P., & Lee, G. (2018). Trend of Air Quality in Seoul: Policy and Science. *Aerosol and Air Quality Research*, 18(9), 2141-2156. <https://doi.org/10.4209/aaqr.2018.03.0081>
- Lee, J. Y., & Kim, Y. P. (2007). Source apportionment of the particulate PAHs at Seoul, Korea: impact of long range transport to a megacity. *Atmos. Chem. Phys.*, 7(13), 3587-3596. <https://doi.org/10.5194/acp-7-3587-2007>
- Lee, J. Y., Kim, Y. P., & Kang, C.-H. (2011). Characteristics of the ambient particulate PAHs at Seoul, a mega city of Northeast Asia in comparison with the characteristics of a background site. *Atmospheric Research*, 99(1), 50-56. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2010.08.029>
- MEE (Minsitry of Ecology and Environment of the People's Republic of China). (2012). Ambient air quality standards. GB 3095-2012. China Environmental Science Press, Beijing. https://english.mee.gov.cn/Resources/standards/Air_Environment/quality_standard/1/201605/t20160511_337502.shtml
- MOE (Ministry of Environment of Korea). (2020). Monthly Report of Air Quality, September 2020. Sejong, Korea.

- <https://library.me.go.kr/#/search/detail/5702746?offset=4>
- Mu, X., Zhu, X., & Wang, X. (2015). An emission inventory of polycyclic aromatic hydrocarbons in China. EGU General Assembly Conference Abstracts, <https://meetingorganizer.copernicus.org/EGU2015/EGU2015-10012.pdf>
- Nisbet, I. C. T., & LaGoy, P. K. (1992). Toxic equivalency factors (TEFs) for polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs). *Regulatory Toxicology and Pharmacology*, 16(3), 290-300. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0273-2300\(92\)90009-X](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0273-2300(92)90009-X)
- Ohara, T., Akimoto, H., Kurokawa, J.-i., Horii, N., Yamaji, K., Yan, X., & Hayasaka, T. (2007). An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020. <https://doi.org/10.5194/acp-7-4419-2007>
- Seinfeld, J. H., & Pandis, S. N. (2016). *Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change*. John Wiley & Sons.
- Shin, S. M., Lee, J. Y., Shin, H. J., & Kim, Y. P. (2022). Seasonal variation and source apportionment of Oxygenated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (OPAHs) and Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in PM_{2.5} in Seoul, Korea. *Atmospheric Environment*, 272, 118937. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2022.118937>
- Song, I. H., Park, J. S., Park, S. M., Kim, D. G., Kim, Y. W., & Shin, H. J. (2021). Seasonal characteristics of PM₁ in Seoul, Korea, measured using HR-ToF-Aerosol Mass Spectrometer in 2018. *Atmospheric Environment*, 266, 118717. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2021.118717>
- USEPA (United States Environmental Protection Agency). (1982). Office of the Federal Registration (OFR) Appendix A: priority pollutants. <https://www.ecfr.gov/current/title-40/chapter-I/subchapter-N/part-423/appendix-Appendix%20A%20to%20Part%20423>
- Vuong, Q. T., Kim, S.-J., Nguyen, T. N. T., Thang, P. Q., Lee, S.-J., Ohura, T., & Choi, S.-D. (2020). Passive air sampling of halogenated polycyclic aromatic hydrocarbons in the largest industrial city in Korea: Spatial distributions and source identification. *Journal of Hazardous Materials*, 382, 121238. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.hazmat.2019.121238>
- Wang, T., Li, B., Liao, H., & Li, Y. (2021). Spatiotemporal distribution of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbon emissions during 2013-2017 in mainland China. *Science of the Total Environment*, 789, 148003. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.148003>
- Wang, Z., Wang, R., Wang, J., Wang, Y., McPherson Donahue, N., Tang, R., Dong, Z., Li, X., Wang, L., Han, Y., & Cao, J. (2022). The seasonal variation, characteristics and secondary generation of PM_{2.5} in Xi'an, China, especially during pollution events. *Environmental Research*, 212, 113388. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.envres.2022.113388>