



국내 기준성 대기오염물질의 권역별 장기 추이 및 원인 분석: PM₁₀과 오존을 중심으로

Long-term Trend Analysis of Korean Air Quality and Its Implication to Current Air Quality Policy on Ozone and PM₁₀

김정환 · 김영성 · 한진석¹⁾ · 박승명²⁾ · 신혜정²⁾ · 이상보²⁾ · 김정수²⁾ · 이강웅*

한국외국어대학교 환경학과, ¹⁾안양대학교 환경에너지공학과,

²⁾국립환경과학원 대기연구부

(2017년 12월 28일 접수, 2018년 1월 31일 수정, 2018년 2월 12일 채택)

Jeonghwan Kim, Young Sung Ghim, Jin-Seok Han¹⁾, Seung-Myung Park²⁾, Hye-Jung Shin²⁾,
Sang-Bo Lee²⁾, Jeongsoo Kim²⁾ and Gangwoong Lee*

Department of Environmental Science, Hankuk University of Foreign Studies

¹⁾*Department of Environmental and Energy Engineering, Anyang University*

²⁾*Air Quality Research Division, National Institute of Environmental Research*

(Received 28 December 2017, revised 31 January 2018, accepted 12 February 2018)

Abstract

Nation-wide systematic and comprehensive measurements of air quality criteria species have been made over 340 sites currently in Korea since 1990. Using these data, temporal and spatial trends of SO₂, PM₁₀, NO₂, O₃, CO and O_x (NO₂ + O₃) were analyzed to characterize and evaluate implementing efficiency of air quality policy and regulations. Due to strict and effective policy to use cleaner fuels in late 1980s and 1990s, the primary pollutants, such as SO₂, CO, and PM₁₀ decreased sharply by early 2000s in all parts of Korea. After this period, their concentrations declined with much lower rates in most parts of Korea. In addition, isolated but noticeable numbers of places, especially in major ports, newly developing towns and industrial parks, sustained high levels or even showed further degradation. Despite series of emission control strategies were enforced since early 1990s, NO₂ concentrations haven't changed much till 2005, due to significant increase in number of automobiles. Nevertheless, we confirmed that the staggering levels of NO₂ and PM₁₀ improved evidently after 2005, especially in Seoul Metropolitan Area (SMA), where enhanced regulations for NO₂ and PM₁₀ emissions was imposed to automobiles and large emission sources. However, their decreasing trends were much lessened in recent years again as current air quality improvement strategies has been challenged to revise further. In contrast to these primary species, annual O₃, which is secondary product from NO₂ and volatile organic compounds (VOCs), has increased consistently with about 0.6 ppbv per year in every urban part of Korea, while yearly average of daily maximum

*Corresponding author.

Tel : +82-(0)31-330-4273, E-mail : gwlee@hufs.ac.kr

8-hour O_3 in summer season had a much higher rate of 1.2 ppbv per year. Increase of O_3 can be explained mainly by reductions of NO emission. Rising background O_3 in the Northeast Asia and increasing oxidizing capacity by changing photochemistry were likely causes of observed O_3 increase. The future air quality policy should consider more effective ways to lower alarming level of O_3 and PM_{10} .

Key words : Air quality, Trends, Policy, Criteria pollutants, Monitoring

1. 서 론

우리나라는 1960년대 경제성장위주의 정책을 추진하면서 공업단지의 확대와 서울과 같은 주요 대도시의 급격한 성장으로 대기오염물질의 지속적인 증가를 초래하게 되었다(Lim, 2003). 1990년대부터 청정연료 사용의무화와 저황유 공급확대, 배출허용기준 강화, 저공해자동차 보급 등 대기오염물질의 저감정책을 통해 이산화황(SO_2), 일산화탄소(CO)와 같은 1차 오염물질의 농도가 꾸준히 감소하였다(Shin *et al.*, 2015; Yoo *et al.*, 2011; Nguyen and Kim, 2006). 그러나 지속적인 도시 인구집중과 자동차 및 통행량 증가와 대기오염물질배출 특성변화에 따라 이산화질소(NO_2)와 2차 오염물질인 미세먼지(PM_{10})와 오존(O_3)은 크게 개선되지 않았다(Lim *et al.*, 2012; Kim, 2010). 이런 변화에는 지역적 특성뿐만 아니라 장기변동 추이에서도 다르게 나타나므로 대기오염물질의 시공간적인 추이를 이해하고 분석하는 것이 중요하다.

현재 우리나라의 대기오염측정망은 크게 11개 종류의 측정망 가운데 505개(2015년 12월 기준) 측정소가 운영되고 있으며 일반측정망(10개)과 집중 측정망(1개)으로 구분되며, 일반 측정망은 대기 환경 기준물질(PM_{10} , $PM_{2.5}$, O_3 , NO_2 , CO, SO_2)을 측정하는 일반 대기오염 측정망과 유해물질, 중금속, 광화학오염물질 등을 측정하는 특수 대기오염 측정망으로 구성된다. 일반 대기오염 측정망은 다시 도시대기, 교외대기, 도로변대기, 국가배경으로 나뉘며 대부분이 도시대기로 구성된다(KME, 2016). 대기오염 측정망은 효과적인 대기오염 저감 대책 수립과 평가 및 개선, 대기 오염 예측 모델의 기본 자료 및 대기오염배출원의 감시 등 여러 기능을 수행하는 데 있어 기초자료로 사용되고 있다(Han *et al.*, 2008). 또한, 대기오염 측정망의 자료를 통해 오염물질의 환경 기준 달성여부 및 평가, 광범위한 지역의 배경 농도 및 국가적 배경농도에 대한 파악도

가능하다.

대기오염 측정망 자료를 이용해서 대기오염의 중·장기적인 분석을 실시한 선행 연구들이 다수 수행되었다. 울산 지역의 14개의 대기오염측정소에서 2005년부터 2009년까지 측정된 SO_2 를 시공간적 오염특성을 분석한 연구에는 공단지역의 측정소가 주거지역 측정소보다 2.4배 높은 평균 농도값을 가지며 기상조건에 따라 공단지역에서부터 주거지역으로 SO_2 의 이동이 커져 심각한 문제점이 있음을 발표하였다(Lee *et al.*, 2010). 최근 수원시에서 1991년부터 2012년까지 대기 중 O_3 과 NO_2 의 장기변동 및 특성을 분석한 연구에는 O_3 의 평균 농도가 22년간 지속적으로 증가하였으며 NO_2 의 농도는 2000년 이후 작은 변동폭을 유지한 결과를 발표하였다(An *et al.*, 2015). 대구지역에서 2006년부터 2008년의 3년간 대기 중 PM_{10} 의 농도와 기상 자료를 이용하여 대구지역의 PM_{10} 오염도 현황을 파악하는 연구가 수행되었고, 그 결과 PM_{10} 은 작은 수준으로 꾸준히 감소하다가 2008년 기상요인 즉, 연무일수 증가로 인해 고농도 발생횟수가 증가한 것으로 파악되었다(Hwang *et al.*, 2009). Lee *et al.*(2011)에 따르면 서울시내 27개의 도시대기 측정소에서 2001년부터 2008년까지 측정된 PM_{10} 자료를 이용하여 고농도 사례를 분석한 결과, 기상조건에 따라 중국발 미세먼지의 장거리 이동과 지역적 배출원인으로 고농도 사례를 평가하였다. 또한 측정망 자료의 정책 활용에서 국내 대기질 개선을 위한 종합적이고 실효성 있는 장기 대책의 시작으로 평가되는 수도권 대기환경관리 1차(2005~2014)와 2차(2014~2024) 기본계획을 수립하고 정책 효율성을 평가하는 데 대기오염 측정망의 자료가 가장 긴요하게 활용되었다. 특히 기존 수도권 기본계획의 추진실적 평가부분에서 오염물질 삭감량 및 대책시행의 검증에 활용되었고 새로운 2차 계획의 목표와 추진 방법의 마련에 결정적인 역할을 하였다.

오늘날까지 대부분의 선행 연구는 서울, 수도권, 대

구, 울산과 같은 거대 도시 및 공업지역 중심으로 이루어졌고 국내 지역 전체를 평가하는 노력이 부족한 실정이다. 대기오염은 다른 매질과 달리 특정 배출원지역의 제한적 문제만이 아니라 좁게는 지역경계를, 넓게는 국경을 넘어서는 연관성을 가지고 있어서 배출 중심지역 뿐만 아니라 수용지역을 포함하는 전국적 추이와 동시에 세분화된 권역별 특성을 이해하는 것이 중요하다. 본 연구에서는 대기오염 측정망 중 기준성 물질의 1시간 평균 상시 측정 자료를 위주로 전국 및 7개 권역별 대기질의 주요 중심지역 특성, 중·장기 추이 분석 및 그 원인을 파악하고자 하였다.

2. 분석 방법

2.1 대기오염 측정망 자료

본 연구에서는 국내에서 환경부와 지자체가 운영 중이거나 운영되었던 전국의 기준성대기오염물질 측정망 자료를 활용하여 분석하였다. 표 1에 1998년부터 2016년까지 권역별로 운영되고 있는 대기오염측정소의 연도별 개수가 나타나 있다. 측정소의 대부분이 수도권권을 중심으로 위치해 있으며 경기도의 측정소 개수가 다른 지역보다 빠르게 증가했고, 수도권외 지역의 경우 면적대비 측정소의 밀도가 현저히 낮음을 알 수 있다. 2016년 300여개의 측정소 자료 및 과거 자료가 활용 가능하며 측정망 기본계획상의 지역 특성에 따라 도로변, 도시대기, 교외대기, 국가배경측정망으로 구별되며 표 1에 제시된 측정소에서 2016년 기준 백령도를 제외할 시, 지역별로 64%에서 88%까지로 대부분은 도시대기측정소이다. 대기오염측정망의 자료는 측정망 운영지침 중 자료질 관리 프로토콜을 통과한 것을 추가적인 자료의 필터링없이 모두 사용하였다. 상당히 많은 수의 측정소가 처음 위치와 다르게 이동을 한 경우가 있는 것으로 파악되었으나 상이한 행정구역으로 이동이나 측정망의 성격이 달라지는 경우는 없어 대단위 권역별 특성을 파악하는 데는 지장을 주지 않는 것으로 파악되어 이들 자료에 대한 상세 분류는 실시하지 않았다. PM_{2.5}의 경우 일부 측정소에서 2015년부터 관측이 실시되고 있으나 장기적인 추이 분석에는 적합하지 않아서 분석에 활용하지 않았다.

2.2 추이 분석

미국 EPA는 전체 측정망을 대표하는 장기적인 측정망의 추이 분석을 위해서 각 측정소의 연간 자료 중 일정 백분위수 값의 표본자료에서 연간 25%, 50%, 75%의 변동치를 활용한다. PM₁₀, SO₂, CO는 99 백분위수, 오존의 경우 여름철 8시간 이동 평균 값의 하루 최대 농도 중 연간 4번째 순위 농도를, NO₂는 98 백분위수를 이용한다. 하지만 우리나라처럼 황사와 같은 고농도 현상이 주기적으로 나타날 경우 99 백분위수로는 전체 장기변동에 이들 현상의 기여도가 너무 크게 좌우되기 때문에 본 연구에서는 PM₁₀에 98 백분위수를 이용하였다. O₃과 NO₂를 제외한 대부분의 기준성 물질은 측정망 관측이 실시된 이후 1990년초부터 2000년대 초까지 급격하게 감소하였다(Ray and Kim, 2014; Sharma *et al.*, 2014; Ghim and Kim, 2013; Susaya *et al.*, 2013; Kim, 2010; Kim *et al.*, 2004). 기준성 대기오염물질의 추이를 분석하기 위해서는 연속 측정자료에서 장기변동효과만을 선택적으로 산출해야 한다. 이를 위해서 본 연구에서는 시계열 분석 방법인 additive decomposition과 Kolmogorov-Zurbenko (KZ) 필터를 사용하였다. 두 방법 모두 측정자료에는 장기추이, 시간효과(하루주기, 주간 주기, 계절주기)와 무작위 변동이 포함된 것을 가정하고 먼저 주기적인 시간 효과를 산정하고 장기 추이를 추정하는 작업이다(Kang *et al.*, 2013). 두 방법의 차이는 시간효과가 동일한 크기인지(additive decomposition) 아니면 시간에 따라 변동이 있을 수 있는지(KZ 필터)에 따라 달라진다. 본 연구에서는 시간, 주간별 변동을 배제하고 계절효과만을 산정하기 위해서 모든 측정소의 자료를 월별로 평균한 값을 이용하여 장기변동을 산정하였다. Additive decomposition과 KZ 필터는 통계프로그램인 R의 기본 패키지와 kza 패키지틀 이용하였다(Close and Zurbenko, 2016). 이들 모두 초기의 급격한 감소 추세가 포함되면 최근의 농도 추이가 왜곡될 가능성이 있어서 최종 농도 추이 분석에는 2000년 이후의 자료만을 이용하였다. 또한, 자료에 포함되어 있을 수 있는 이상치에 의한 왜곡을 최소화하기 위해서 장기변동 추이는 중간값을 활용하였으며 연간 변동은 로버스트 선형 회귀법인 Theil-Sen 알고리즘을 활용하여 계산하였다(Theil, 1992).

Table 1. Number of air quality monitoring stations located in each sector from 1998 to 2016.

Sector	City/Province	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016
SMA	Seoul	34	34	34	34	34	34	34	34	34	34	36	39	37	37	40	40	40	40	40
	Incheon	9	11	12	12	12	14	14	15	16	17	20	20	20	21	21	21	21	21	21
	Gyeonggi	23	31	37	37	45	49	61	63	66	68	70	73	74	76	79	80	80	81	82
Central	Daejon	4	4	4	4	4	6	7	7	8	9	9	9	9	10	10	10	10	10	10
	Chungcheong-buk	2	4	4	5	5	6	7	7	8	9	9	9	10	11	11	11	11	11	11
	Chungcheong-nam	3	3	4	4	4	5	7	7	7	9	10	10	10	10	10	10	10	10	10
Honam	Gwangju	5	6	6	6	6	6	7	7	8	9	9	9	9	9	9	9	9	9	9
	Jeolla-buk	6	6	7	7	7	9	10	12	12	12	12	12	13	14	14	14	14	14	16
	Jeolla-nam	8	8	8	8	8	9	10	10	11	12	13	15	15	16	17	17	17	17	17
Yeongnam	Daegu	8	8	8	8	9	13	13	13	13	13	13	13	13	13	13	13	13	13	13
	Busan	11	11	13	13	15	17	18	19	19	19	19	19	19	20	21	21	21	21	21
	Ulsan	10	12	13	13	13	14	14	14	14	14	14	14	14	14	14	15	15	15	15
	Gyeongsang-buk	9	9	11	11	12	12	13	14	15	15	15	15	16	17	18	18	18	18	18
	Gyeongsang-nam	10	8	10	10	10	11	11	13	15	17	19	20	20	21	21	23	23	23	23
Gangwon	Gangwon	3	4	6	6	8	8	9	9	10	11	11	11	11	11	11	11	11	11	11
Jeju	Jeju City	1	1	2	2	2	2	2	2	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3
	Seogwipo	0	0	0	0	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
Baengyoung	Baengyoung	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	1	1	1	1
	Total	146	160	179	180	195	216	238	247	260	272	283	292	294	304	314	318	318	321	327

2.3 지역 특성 분석

지역별 농도 특성은 각 측정소의 각 연도별 한 시간 평균 99 백분위수 농도를 지도상에 표시하여 분석하였다. 표 1과 같이 측정소의 위치가 도시 지역에 집중되어 있고 공간적으로도 균일하게 분포되어 있지 않기 때문에 지도상에 표출 시 거리 반비례법으로 격자점 보간을 먼저 실시한 후, 2 변수 보간기법으로 최종 도식화하여 공간적인 분포를 분석하였다. 또한 대기질의 지역별 분석을 위해서 측정망을 수도권, 강원권, 중부권, 호남권, 영남권, 제주권, 백령도 7개 권역으로 분류하고 각 권역별 특성을 분석하였다. 또한, 추이 분석을 통해 얻어진 지역별 농도 변화 경향에 대해서도 동일하게 공간 분석과 권역별 분석을 실시하였다.

2.4 기상조건별 추이 분석

20년 이상의 운영 기간 동안 많은 측정소가 주변 환경변화나 지역 특성을 반영하는 기상변화에 영향을 받을 수 있다. 주변 환경요인의 분석을 위해서 각 측정소별로 각 항목별로 풍향에 따른 장기적인 변동 여부를 polar plot으로 분석하였고(Carslaw and Ropkins, 2012), 기상요소들의 영향을 가장 많이 받는 O₃의 경우에는 여름철 5~8월 기간 동안 8시간 오존 이동평균의 일일 최대치와 같은 날의 오전 풍속, 오후 풍속, 온도, 습도, UV 광량, 강우시간, 가시도, 구름양, 요일을 반영하여 일반화선형모형을 구현하였다. 회귀분석이나 분산분석은 정규분포를 가정한 종속변수와 독립변수와의 상관성을 평가한다. O₃의 농도에 영향을 주는 특정 연도, 요일 등 일부 변수들이 정규분포라는 가정을 할 수 없기 때문에 일반화선형모형을 사용하였다. 특히, 기상조건은 배제한 연도별 장기변동을 평가하기 위해 이들 기상 변수를 요인화한 일반화선형모형을 작성하였고, 이를 통해 구해진 기상조건 변동 영향을 배제하고 연도별 장기변동만을 산정하고자 하였다. 이러한 과정을 통해 기상의 영향을 받지 않는 순수한 연도별 O₃의 증가 추이만을 확인하고자 하였다.

3. 결 과

3.1 지역 특성 분석

기준성 오염물질의 지역적 현황을 파악하기 위해서

가장 최근 자료인 2016년 한해의 각 측정소별 1시간 평균 농도의 99 백분위수의 지역적 분포를 도식화하였다(그림 1). PM₁₀이 상대적으로 높은 지역은 경기 북부, 서산, 평택, 당진지역, 충북 북부지역, 전북지역, 부산지역으로 나타났다(그림 1(a)). 고농도 O₃은 인천부터 당진까지의 서해안 지역, 경기 동부와 강원접경지역, 전북지역, 대전과 충북 남부, 대구 및 부산 외곽지역으로 나타났다(그림 1(b)). 이들은 모두 대규모 O₃ 전구물질 배출원의 풍하지역에 위치한 지역이다. 이에 반해서 경북 의성과 안동의 PM₁₀과 O₃은 주변 지역보다 매우 낮은 값을 보였다. 국내 NO₂의 전반적인 농도 분포는 대도시주변과 주요도로망에 인접한 지역에서 농도가 크게 나타났다(그림 1(c)). 특히 수도권은 독보적으로 NO₂의 농도가 높게 나타나 NO₂ 저감정책의 우선 순위가 높은 것을 알 수 있다. 대도시 이외에 당진, 서산지역의 농도가 높은 것은 대규모 점오염원이 밀집된 것과 관계가 있다. SO₂는 인천, 평택, 군산, 부산, 울산 등 주요 항구를 중심으로 농도가 높아서 항구의 선박에 의한 영향이 지대함을 알 수 있다(그림 1(d)). 이들 지역에서 99 백분위수의 농도가 30 ppbv를 넘고 있어, 고농도의 SO₂가 무시할 수 없는 빈도로 영향을 주는 것을 알 수 있다. 항만지역을 제외하고는 경북 영주의 SO₂ 농도가 주변 지역보다 높게 나타나 가까운 의성과 안동의 낮은 농도와 극명한 대비를 나타내고 있다. 영주 관측소는 최근 들어 NO₂와 SO₂의 경우 주변 북부와 동부지역으로부터 고농도 대기의 영향을 받는 것으로 확인되었다(그림 2). 이와 비교해 O₃은 남서지역으로부터 고농도가 유입되고 있고, PM₁₀도 2001년 외에 뚜렷하지 않지만 남서지역으로부터 고농도가 유입되는 경향을 보이고 있다. 인근 산단들이 남서쪽이나 북서쪽에 위치한 것을 볼 때 O₃과 PM₁₀은 이들의 영향을 받은 것으로 나타났으나 NO₂와 SO₂는 주변 도로의 자동차와 상업시설 증가에 따른 영향으로 추정된다.

3.2 추이 분석

그림 3는 전국 340개 각 측정소의 연도별 99 백분위수(SO₂, CO, O₃)과 98 백분위수(PM₁₀과 NO₂), O₃의 경우 여름철 8시간 이동 평균 값의 하루 최대 농도 중 연간 4번째 순위를 나타내는 것으로 가운데 실선은 각 측정소들의 중간값, 그 위와 아래는 75, 25 백분위수를 나타낸다. 전국적으로 PM₁₀은 1990년대 중반까지 급

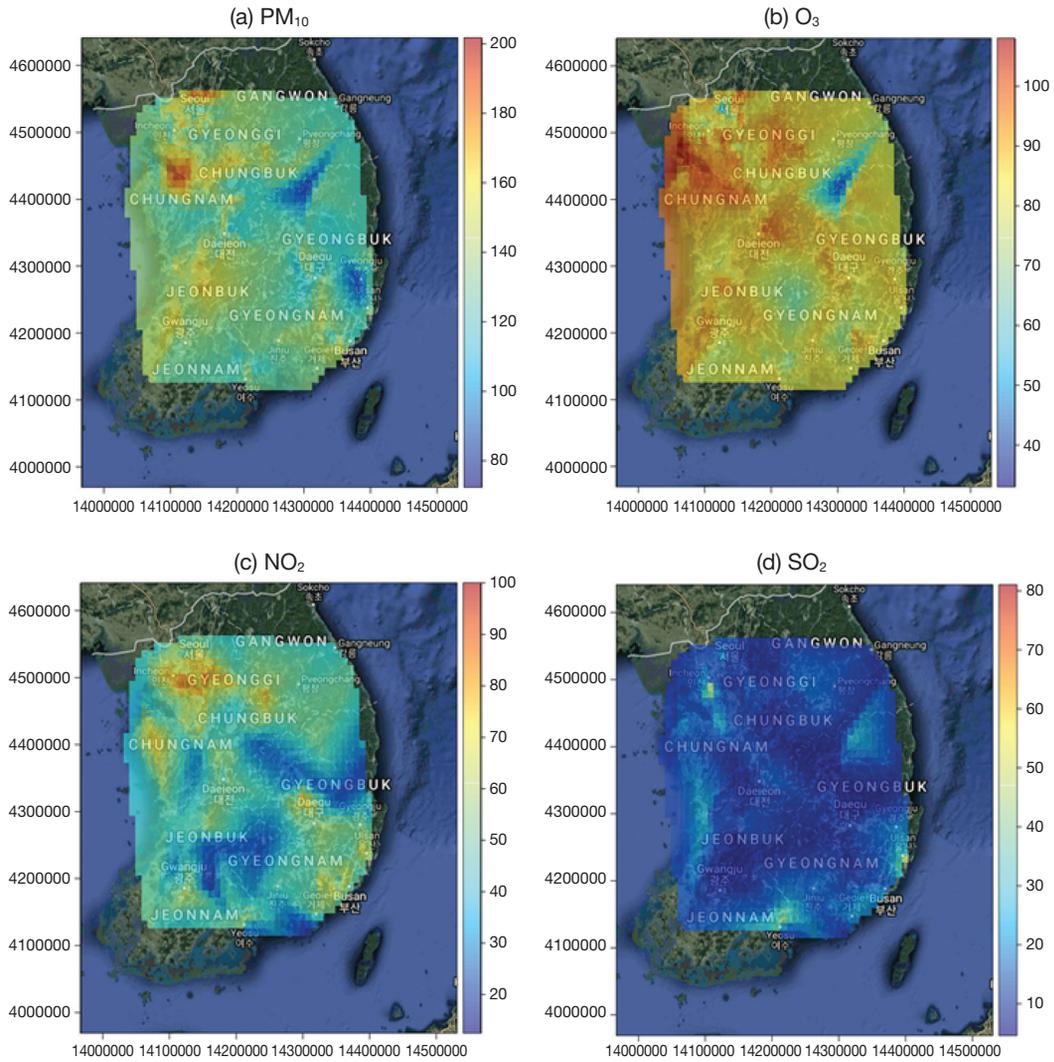


Fig. 1. Distribution of annual 99th percentile of 1-hour PM_{10} (a), O_3 (b), NO_2 (c) and SO_2 (d) in 2016.

격한 감소를 보이다가 그 이후에는 완만한 감소를 보이고 있다. 이에 반해 오존은 1990년 이후 꾸준히 증가하고 있는 것을 알 수 있다. 전국적으로 도시지역에서 오존은 중간값 기준 0.6 ppbv/year 수준의 증가(표 2)를 보이는데 여름철 8시간 일중 최고농도의 경우에는 이보다 훨씬 높은 연간 1.2 ppbv 정도의 매우 가파른 추세를 보이고 있다. 이와 같은 국내의 오존농도의 급격한 증가는 2000년 이후 큰 증가를 보이는 중국(0.2~0.5 ppbv/year)의 경우보다 높고 세계적으로도 가

장 높은 수준의 증가폭이다(Verstraeten *et al.*, 2015). 오존의 전구물질인 NO_2 는 매우 작은 농도 변화가 나타나고 있다. 특히, 2000년 이후에 농도감소가 미약하나마 가시적인 농도감소가 나타나고 있다. 자동차 등 록대수가 2000년에 1200만대에서 2016년에 2000만대보다 높게 증가한 것을 고려할 때 NO_2 저감 노력이 상당한 성과를 거두었음을 확인할 수 있다. 기준성 대기 오염물질 중 가장 극적인 감소를 보이는 것이 SO_2 이다. 특히 1990년부터 10년간 SO_2 농도가 1/10 수준으

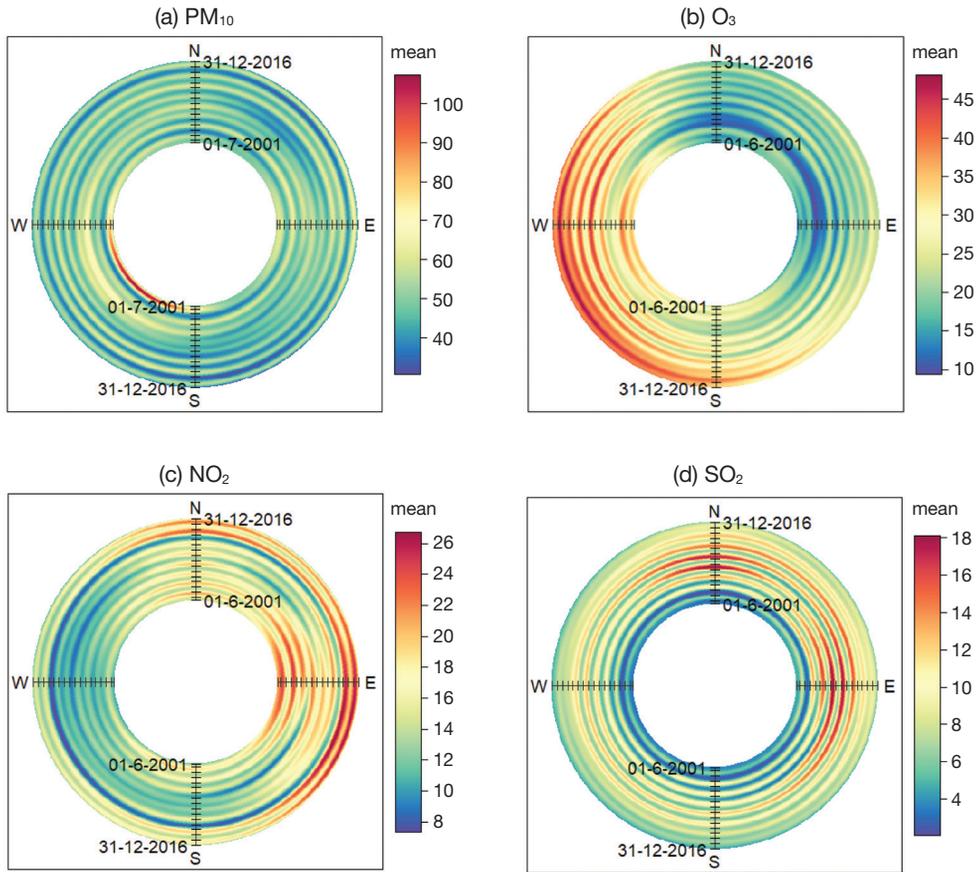


Fig. 2. Polar temporal trend plots for PM₁₀ (a), O₃ (b), NO₂ (c), SO₂ (d) from 2001 to 2016 at Yoengju site. Concentrations vary with color bars, while times increase from inner circle (2001) to outer surface (2016) along with wind directions.

로 떨어진 것은 저항 연료의 전환효과이다. 하지만 2000년 이후에는 농도가 정체되거나 매우 미약한 감소 추세이다. SO₂와 동일하게 연료전환의 효과로 CO의 농도도 2000년까지 급격한 감소를 보이고 있으며 이후에도 꾸준한 감소 추세를 보이고 있다. 이는 SO₂와 다르게 CO의 주요 배출원인 자동차에서의 배출 저감효과가 꾸준히 나타나는 결과이다. 자동차배기가스의 강화된 규제와 전기자동차, 고효율 연비자동차의 증가 추세에 따라 앞으로도 CO 농도의 감소는 이어질 것으로 추정된다. 전국적인 O₃의 장기변동의 경우 2000대 초반까지 농도 증가를 보이다가 약 10년간 농도가 정체된 이후에 2010년 이후에 다시 뚜렷한 증가 양상을 보이고 있다. 그림 3의 O₃ 변화는 연평균을 도

식화한 것으로 광화학적 반응이 지배적인 여름철만을 산출하면 오존의 증가 추이보다는 완만하지만 뚜렷한 증가를 보이고 있다. 모든 측정소의 일, 월평균 농도 자료에 대해서 시계열 분석 방법인 additive decomposition과 KZ 필터를 적용한 결과, 측정소의 이상치(관측 이상이 아닌 황사 등 고농도 현상의 영향)에 따라서 장기변동추이가 크게 좌우되어 일관성 있는 자료의 산출이 어려웠다(그림 4(a), (b)).

이상치에 의한 왜곡을 최소화하기 위해서 월별 중간값을 활용하여 Theil-Sen 알고리즘으로 서울시 중구측 정소의 2000년 이후 2016년까지의 PM₁₀ 농도 변화 추이를 기울기로 나타내었다(그림 4(c)). 같은 방법으로 Theil-Sen 알고리즘을 이용하여 권역별로 구분된 물질

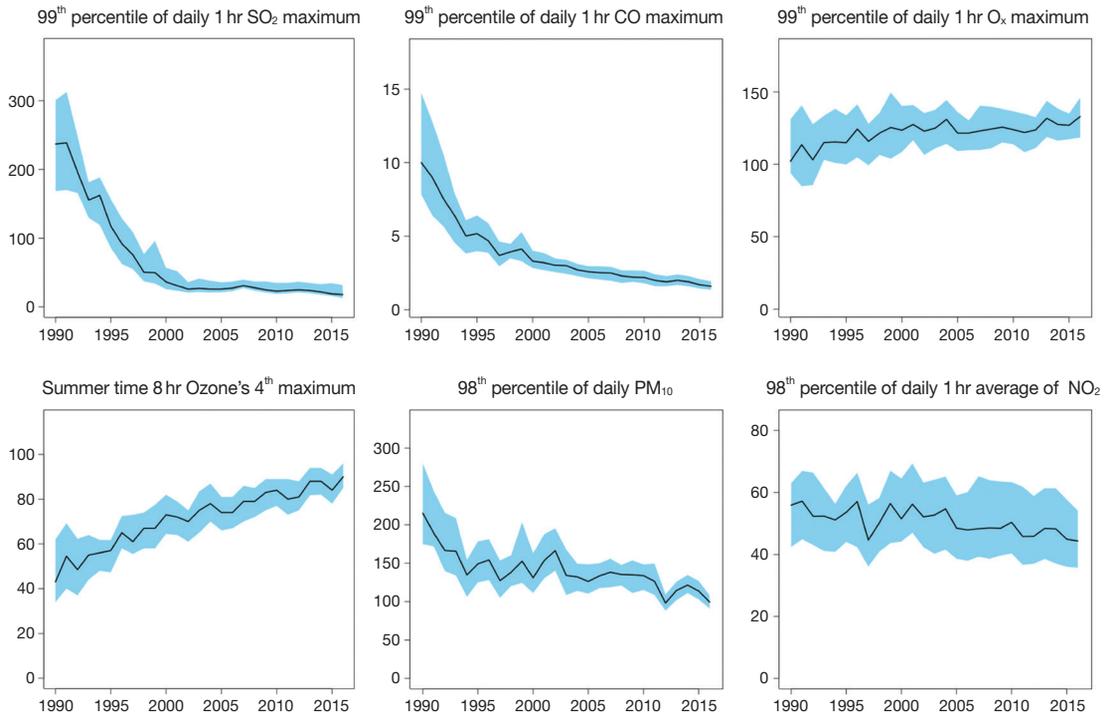


Fig. 3. Long-term national trends of criteria pollutants (annual 99th percentile of SO₂, CO and O₃, annual 4th maximum of daily max 8-hour average for O₃, 98th percentile of PM₁₀ and NO₂).

들의 장기적인 추세를 기술품과 상관성을 구하여 표 2에 나열하였다. 표 2에 나타난 바와 같이 대부분의 권역에서 특히 PM₁₀의 경우 도심과 도로변 측정소에서 그림 3의 전국적인 농도 추이와 유사한 변동 추이가 나타나고 있음을 확인할 수 있다.

특히 월별 중간값의 장기변동에서 O₃과 O_x는 교외지역과 배경농도 지역을 제외한 모든 권역의 도시와 도로변측정소에서 비교적 뚜렷한 (R²>0.5) 증가 추세가 나타났다(표 2). 교외지역의 경우 수도권과 영남지역에서는 이들 농도의 증가가 나타나지 않았지만 호남과 중부지역에서는 뚜렷한 증가 양상이 나타나고 있다. 백령도의 경우 매우 큰 기술품의 O₃과 O_x의 증가를 보이고 있다. 이 지점의 경우 관측이 2002년부터 이루어져서 장기변동을 추정하기에는 적합하지 않으나 장기적인 자료의 축적이 이루어질 경우 중국으로부터 O₃ 배경농도의 변동을 추정하는 데 매우 유용한 자료로 활용이 가능하다. PM₁₀, SO₂, CO의 경우 전국적인 변화와 동일하게 대부분 측정소에서 농도감소가 나타나

고 있다. 하지만 영남과 강원 일부 측정소에서 PM₁₀의 농도증가 추이가 관측되고 있다. 거의 모든 도시와 도로변 측정소에서 NO₂는 감소 추세이나 중부, 호남, 영남의 교외지역에서 농도가 정체되거나 증가 추세이다.

수도권 지역 전체의 평균 변화추세의 대부분의 경우 PM₁₀은 감소하고 O₃은 증가하지만 수도권내에서도 지역적인 차이가 많이 존재하였다(그림 5). PM₁₀은 인천, 경기 및 서울 서부지역, 경기 동남부, 충북지역에서 농도가 감소 추세지만 평택, 당진, 서산, 동탄, 천안지역과 서울 북동부, 경기 포천지역은 농도가 증가하는 추세이다. O₃은 PM₁₀과 달리 수원 일부(광교), 가평, 경북 북부지역을 제외하고 거의 모든 지역에서 농도 증가가 나타나고 있다. PM₁₀과 O₃의 농도증가가 동시에 나타나는 지역으로는 포천, 동탄, 당진, 평택지역으로 나타났다. 광교지역은 2000년 이후 PM₁₀의 고농도와 동시에 O₃의 급격한 감소가 나타나 최근 일차오염물질의 배출이 급증한 것을 짐작할 수 있다.

Table 2. Yearly trends (slope and correlation coefficients) of key air quality species from 2000 to 2016. (unit: ppbv/year for gas species and µg/m³/year for PM₁₀).

Sector	Type	O ₃		NO ₂		O _x		PM ₁₀		SO ₂		CO	
		Slope	R ²	Slope	R ²	Slope	R ²	Slope	R ²	Slope	R ²	Slope	R ²
SMA	Urban	0.646	0.905	-0.265	0.534	0.315	0.839	-0.873	0.729	-0.055	0.333	-0.016	0.700
	Road side	0.379	0.886	-0.353	0.412	0.282	0.634	-1.044	0.824	-0.080	0.311	-0.028	0.603
	Rural	0.152	0.040	-0.070	0.227	0.092	0.149	-0.528	0.615	-0.137	0.453	-0.008	0.428
	Background	0.703	0.554	-0.067	0.155	0.741	0.758	-0.958	0.431	0.198	0.610	0.001	0.003
Central	Urban	0.505	0.818	-0.089	0.268	0.235	0.275	-0.207	0.221	-0.132	0.687	-0.024	0.797
	Road side	0.645	0.459	-0.330	0.108	0.265	0.077	-1.966	0.493	-0.163	0.562	-0.051	0.738
	Rural	0.600	0.330	0.056	0.263	0.633	0.405	-0.666	0.432	0.021	0.020	-0.022	0.619
	Background	-0.054	0.010	0.018	0.012	0.055	0.010	-0.390	0.191	-0.030	0.077	-0.001	0.001
Honam	Urban	0.619	0.882	-0.161	0.273	0.359	0.410	-0.459	0.612	-0.022	0.107	-0.010	0.724
	Road side	0.612	0.665	0.291	0.129	1.074	0.574	-0.776	0.127	-0.198	0.232	-0.029	0.515
	Rural	0.667	0.575	0.034	0.033	0.692	0.570	-0.719	0.312	0.024	0.030	-0.021	0.797
Yeongnam	Urban	0.587	0.947	-0.310	0.784	0.175	0.424	-0.654	0.761	-0.128	0.646	-0.018	0.757
	Road side	0.452	0.441	-0.131	0.033	0.252	0.147	-1.014	0.370	-0.315	0.720	-0.038	0.778
	Rural	0.148	0.030	0.114	0.299	0.279	0.115	0.624	0.434	-0.017	0.058	0.004	0.068
	Background	0.402	0.220	-0.051	0.063	0.352	0.165	0.087	0.017	-0.014	0.030	-0.017	0.851
Gangwon	Urban	0.591	0.928	-0.050	0.037	0.469	0.774	-0.497	0.340	-0.178	0.627	-0.024	0.605
	Rural	0.059	0.012	0.070	0.183	0.172	0.100	0.471	0.199	-0.191	0.588	-0.021	0.444
Jeju	Urban	0.448	0.507	-0.480	0.419	-0.038	0.004	0.369	0.246	-0.037	0.209	-0.005	0.082
	Background	0.088	0.010	-0.015	0.024	0.012	0.000	0.431	0.276	-0.030	0.052	-0.009	0.081
Baengyoung	Background	4.800	0.598	0.580	0.569	5.750	0.683	1.600	0.674	-0.420	0.393	0.010	0.125

SMA:Seoul Metropolitan Area compasses Seoul, Incheon, and Gyunggi province

Central: Daejeon, Chungcheong province

Honam: Gwangju and Jeolla province

Yeongnam: Daegu, Busan and Gyeongsang province

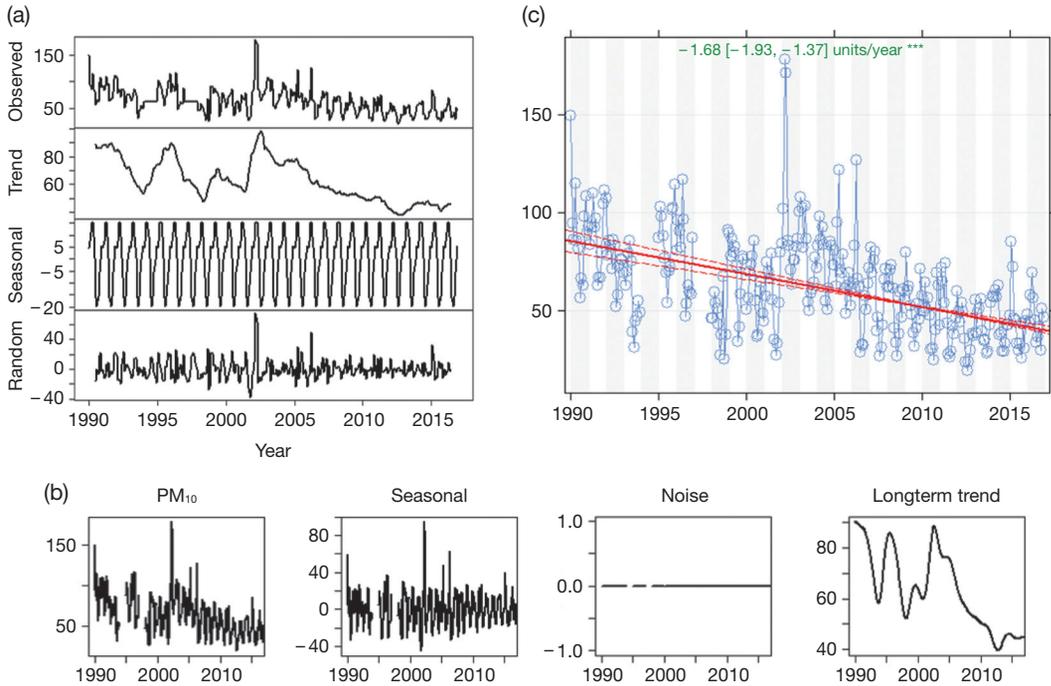


Fig. 4. Trends analysis of PM₁₀ at Jung-gu monitoring station with time additive decomposition (a), KZ filter (b) and Theil-Sen algorithm (c). The three lines of (C) indicates the slopes for long-term trends with 25, 50, 75% percentile.

3.3 대기오염 추이의 기상효과 분석

앞 절에 이미 기술한 바와 같이 오존은 다른 오염물질과 다르게 증가 추세이며 변화속도 또한 매우 급격하다. O₃은 특히 다른 물질보다 상대적으로 기상적인 변화에 매우 민감하게 농도변동이 발생한다. 지난 37년(1979~2015년) 동안 우리나라 여름철(6~8월) 평균 기온은 23.7°C로 1979년 이후 현재까지 꾸준히 증가하는 추세이다(Won *et al.*, 2017). 여름철 평균 기온은 약 0.24°C/10년 정도로 같은 기간 동안 약 1°C가 증가한 것으로 매우 빠른 증가 속도이다. 기온이 증가하면 O₃의 광화학적 반응이 증가되어 본 연구에서 분석한 O₃의 농도 증가에 이와 같은 자연적인 기온변화의 영향이 반영되어 있다. 또한 강수, 습도, 풍속 등도 O₃ 농도에 지대한 영향을 주는 것으로 알려져 있기 때문에 O₃의 장기변동에서 기상의 영향을 선택적으로 배제하여 추이를 산정할 필요가 있다. 그림 6은 1990년부터 2016년까지 여름철 기간 중 수도권 지역의 8시간 일중 O₃ 최대 농도와 주요 기상인자 간의 상관성을 나타낸 것

이다. O₃은 온도와 자외선량에 뚜렷한 양의 상관성을 보이고 있으며 운량, 습도, 강우량에는 음의 상관성을 보인다. 풍속의 증가는 일반적으로 O₃ 전구물질의 확산과 이동을 촉진하여 도심에서는 O₃ 생성을 저해하는 요소이나 풍하 교외지역에서는 전구물질의 이동이 촉진되어 O₃의 생성을 유발하게 된다. 그림 6(f)는 수도권 전체 평균 O₃ 농도와 풍속을 나타내고 있는데 도심 지역과 풍하지역의 특성이 함께 혼재되어 뚜렷한 경향성을 보여주지는 않았다.

Camalier *et al.*(2007)이 제시한 방법으로 8시간 여름철 O₃의 연도별 장기변동을 평가하기 위해 연도별 O₃를 종속변수, 기상요인을 독립변수로 일반화 선형모델을 작성한 뒤 기상요인을 선택적으로 배제한 결과가 그림 7에 나타나 있다. 기상요인을 고려할 경우, O₃ 연간변동 폭이 원 자료보다 일부 감소하였다. 특히 2012년 이후의 고농도 O₃에서 기상요인이 많이 포함된 것을 알 수 있다. 결국 최근의 급격한 O₃ 농도의 증가의 원인에는 인위적인 요인과 함께 자연적인 기상요인을

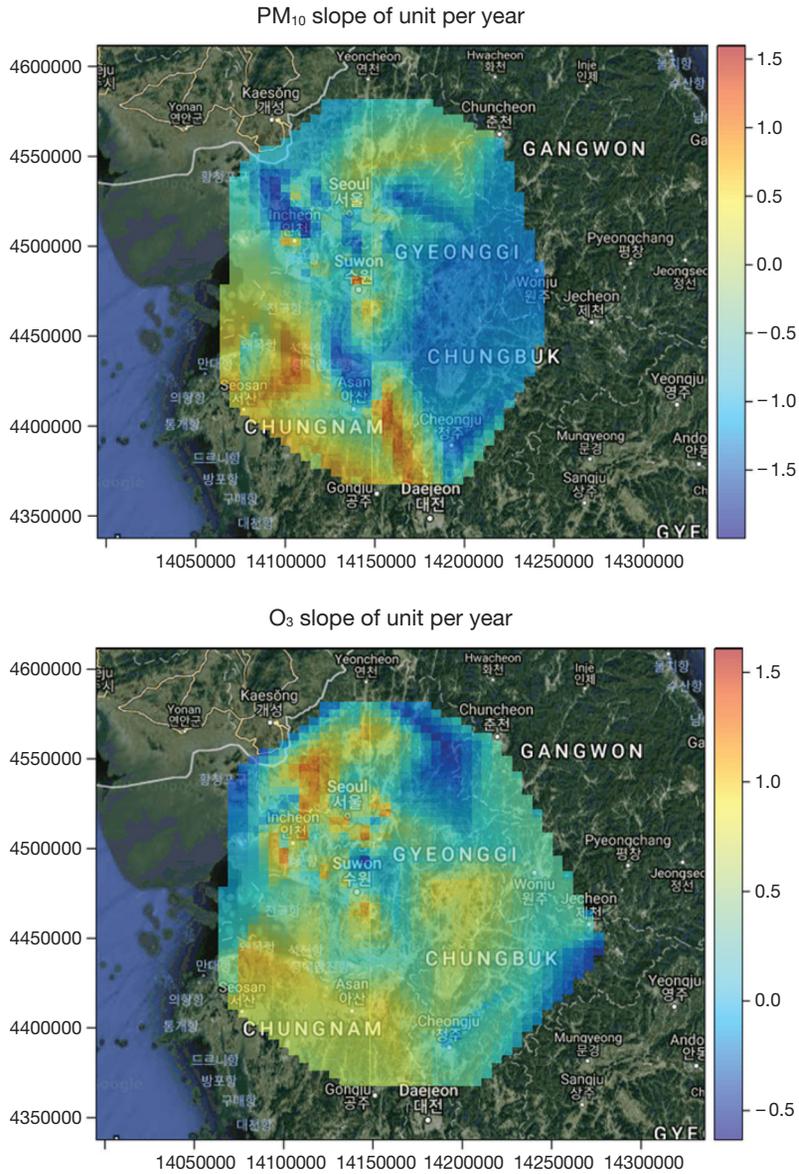


Fig. 5. PM₁₀ and O₃ yearly trend plot for Seoul Metropolitan Area, Gangwon and northern Chungcheong Province. Color bar indicate µg/m³/year and ppbv/year for PM₁₀ and O₃, respectively.

상당히 포함하고 있는 것을 알 수 있다. 하지만 1990년 이후에 계속적으로 증가하는 O₃의 추이에는 기상요소가 큰 영향을 주지 않는 것으로 보인다. 이는 국내 측정망에서 공통적으로 관찰되는 O₃의 급격한 증가 양상이 자연적, 기후변화에 따른 요인과는 거의 무관함을 지시한다.

그림 7에서 볼 수 있듯이 앞절에서 설명된 1시간 평균 O₃ 중간값의 연간 장기추이인 0.6 ppbv/year보다 여름철 8시간 O₃의 연평균 증가는 거의 2배 이상인 1.2 ppbv/year이다. 국내 O₃ 증가는 특히 도심지역에서는 자동차에서 배출되는 NO의 O₃ 적정효과(titration effect)에 상당 부분 기인하는 것으로 알려져 있다(Iqbal et

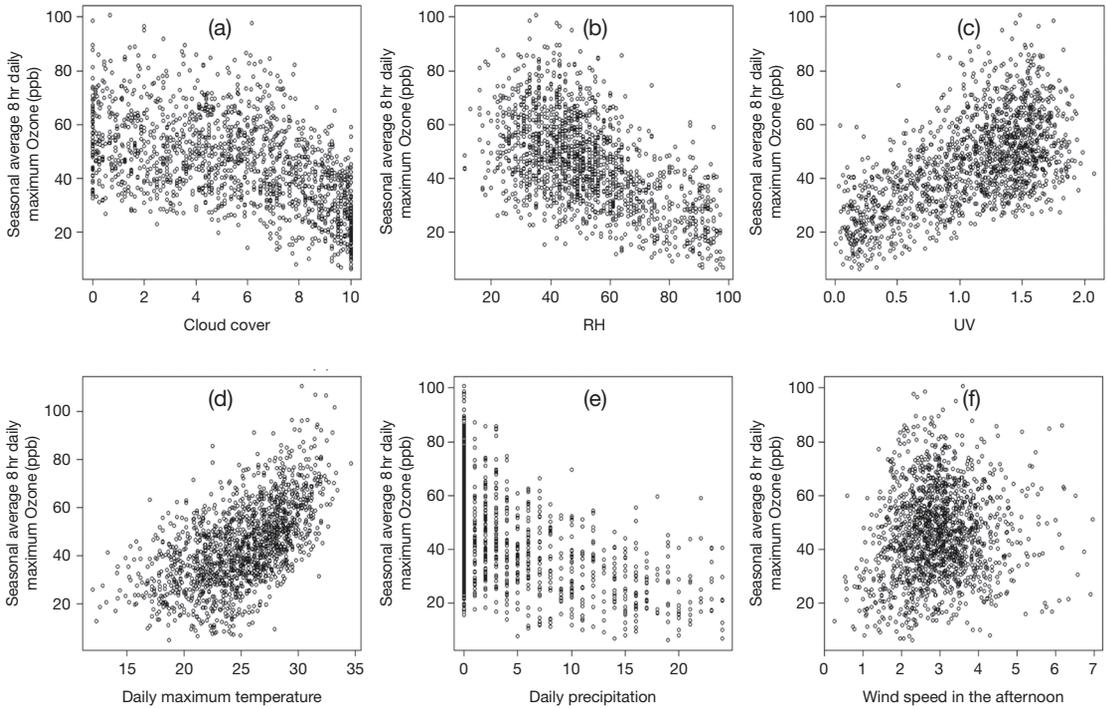


Fig. 6. Seasonal average of 8-hour maximum O₃ during the period between 1990 and 2016 in SMA vs cloud cover (a), RH (b), UV (c), daily maximum temperature (d), daily precipitation (e), and wind speed in the afternoon (f).

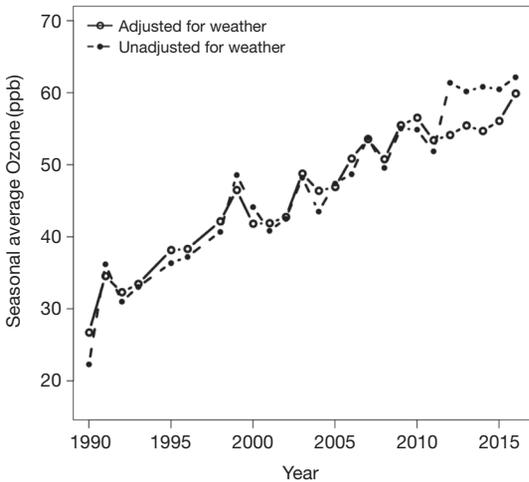


Fig. 7. Average of the daily maximum 8-hour O₃ concentrations from 1990 to 2016 in SMA. The dotted line with closed circle show the trend in observed O₃ concentrations at SMA, while the dotted line with open circle show the underlying O₃ trend at those sites after removing the effects of weather.

al., 2014). 이와 같은 이유로 O₃의 증가폭이 NO 배출 감소가 두드러진 도심지역에서 교외나 배경지역보다 크게 나타나는 이유이다(표 2). 2000년 이후 사용이 확대된 디젤입자후 처리기(DOC/DPF)의 사용과 디젤 승용차의 증가는 배출되는 NO_x 중 NO₂의 비율($f(\text{NO}_2)$)을 높이는 역할을 했을 것으로 추정한다. $f(\text{NO}_2)$ 의 증가는 NO 적정효과를 감소시킬 뿐 만 아니라 O_x의 직접적인 증가 효과를 주어 오존의 생성을 촉진하게 된다. 본 연구에서 관측된 O₃의 급격한 농도증가 추이에는 이와 같은 $f(\text{NO}_2)$ 의 증가영향도 있을 것으로 판단되지만 현재 도로변 측정소에서 NO 자료의 분석을 수행할 수 없어서 이에 대한 직접적인 해석이 어려운 상황이다. NO_x 배출 중 NO₂ 비의 증가로 O₃의 농도가 증가할 경우 O_x와 O₃의 증가추이는 동일한 값을 가져야 한다. 하지만 표 2에서와 같이 O_x의 농도변화 추이는 여름철 O₃ 추이의 1/2 수준인 것을 볼 때 $f(\text{NO}_2)$ 의 증가 영향만으로 급격한 여름철 O₃의 증가를 설명할 수 없다. 이에 대한 가장 신빙성 있는 가설은 동북아시아

의 O₃ 배경농도의 증가와 함께 수도권과 국내 대기 중의 산화력이 증가하고 있는 것이다. 이를 해명하기 위해서는 국내 대기 중 산화력의 장기적인 변동을 추산할 수 있는 종합적인 연구가 수행되어야 할 것이다. 이를 통해서 악화되고 있는 O₃ 오염의 명확한 진단이 가능하며 효율적인 정책이 마련될 수 있을 것이다.

3.4 국가 및 권역별 대기오염 관리 정책의 평가

1986년 울산, 1996년 여수 산단을 대기오염특별대책 지역으로 지정하여 지역내의 연료사용규제, 휘발성 유기화합물의 배출규제, 굴뚝자동측정망의 설치 운영 등을 통한 대기오염피해를 최소화하기 위한 노력이 국가의 대기오염의 직접적이고 체계적인 관리의 시작이었다. 이들 지역이 위치한 권역에서 특별대책지역은 일부분을 차지하지만 이들 권역의 도시, 도로변의 평균 미세먼지와 SO₂의 농도가 2000년 이후에도 다른 권역보다 감소 추이가 더 두드러지게 나타나는 것은 특별대책지역을 통한 관리가 최근까지도 상대적으로 상당한 성과를 거두고 있음을 보여주고 있다(표 1). 최근 다른 지자체를 중심으로 안산 시화, 서산 대산을 특별대책지역으로 지정하기 위한 노력이 추가로 제기되고 있는 것은 특별대책지역의 이와 같은 성과를 반증하는 것으로 볼 수 있다. 지역적 대기오염 저감을 위해서 국가적 책임과 지원보다는 지방자치단체 역할의 비중을 높인 대기환경규제지역으로 1997년 7월에 지역 대기오염도가 환경기준의 80% 이상인 서울특별시, 인천광역시(강화군·옹진군 제외), 경기도 15개시(수원시·부천시·고양시·의정부시·안양시·군포시·의왕시·시흥시·안산시·과천시·구리시·남양주시·성남시·광명시·하남시)를, 1999년 12월에는 부산(김해 포함), 대구 및 광양만권역(여수, 광양, 순천, 하동화력발전소)을 추가 지정·고시하였다(CNI, 2015).

이외에 전국적인 대기오염관리를 위해서 대기환경종합계획이 수립되었고 1차 종합계획은 2005~2015년, 2차 종합계획은 2016~2025년까지 대기환경기준 달성에 최우선 목표로 다양한 배출량 저감계획이 마련되어 있다. 본 연구에서 전국적으로 유사하게 나타나는 1차 오염물질의 꾸준한 감소는 이와 같은 국가적인 노력의 성과로 볼 수 있다. 특히 대도시의 특히 도심과 도로변 관측망에서 1차 대기오염물질의 농도 감소가 두드러지게 나타나는 것은 대도시중심의 1차 대기환

경종합계획의 성과로 볼 수 있다. 하지만 표 2에서 나타나듯이 영남권, 강원권 교외지역의 PM₁₀이 증가 추세이며 중부, 호남, 영남권, 강원권 교외지역의 NO₂가 증가 또는 정체되는 것이 의미하는 것은 이제는 대도시 위주의 관리정책에서 벗어나 교외 및 풍하지역을 포함한 광역적이고 통합적인 관리가 필요한 것을 나타낸다. 다행히 2차 대기환경종합계획은 환경기준초과지역을 중심으로 통합적인 관리와 지자체별 특화대책을 제시하고 있기 때문에 좀 더 효율적인 지역적 관리를 기대하고 있다. 광역적이고 통합적인 지역관리 대책 중 가장 대표적인 것이 수도권 대기특별대책이다. 2013~2014년 1차 계획이 수행되었고 그 결과 수도권의 배경지역(강화도)을 제외한 수도권의 모든 측정망에서 모든 1차 대기오염물질이 감소추이를 나타내었다. 하지만 같은 대책수행기간 동안 1차 대기오염물질의 감소 추이가 충분하지 못해서 소기의 대기환경목표를 달성하지 못한 점은 개선이 필요하였고, 이를 반영하여 더욱 강화된 2차 수도권대기개선 특별대책을 마련하였다. 추가된 대기오염대책의 효율성과 성과는 앞으로 주기적으로 꾸준히 평가되어야 할 것이다.

본 연구에서 나타난 전국적인 오존의 환경기준미달 실정과 오존의 심각한 증가추이는 지금까지 국내의 대기환경개선대책이 심각한 문제가 있는 것을 지시한다. 대기오염특별대책, 대기환경규제지역, 대기환경종합계획, 수도권대기특별대책 등 대부분의 대기오염관리정책이 지금까지 PM₁₀과 NO_x의 배출감소에 집중되었다. 실제로 1차 대기환경종합계획 및 1차 수도권 대기특별대책에는 아예 오존에 대한 목표설정조차 되어 있지 않았다. 이제는 미세먼지의 기준이 PM₁₀에서 PM_{2.5}로 전환되면서 2차 생성미세먼지의 기여율이 월등히 높아지는 상황이고, 2차 생성미세먼지와 생성과 발생 메카니즘을 많은 부분 공유하고 상호 연관성이 큰 오존의 심층적이고 국가적인 관리가 매우 중요한 시점이다.

4. 결 론

본 연구에서는 1990~2016년 대기측정망 중 일반 대기오염 측정망에서 측정된 SO₂, CO, PM₁₀, O₃, NO₂, O_x의 자료를 이용하여 추이 분석, 일반화 선형모형모

델을 이용한 기상조건별 추이 분석, 지역별 농도 특성을 분석하였다. 1990년대부터 SO₂는 저유황 연료 전환 효과, CO는 자동차배기가스 규제 효과로 큰 감소폭을 보이지만 SO₂는 2000년 이후부터 감소폭이 미약하거나 정체된 것을 확인하였고, CO는 꾸준한 감소 추세를 보였다. 하지만 인천, 평택, 군산, 부산, 울산 등 주요 항구도시들은 여전히 고농도 SO₂가 관측되고 있다. PM₁₀은 대부분의 지역에서 1990년말까지 큰 감소폭을 보이다가 2000년 이후에는 낮은 감소 추세를 보이고 있다. 이미 상당히 높은 PM₁₀ 수준을 보이는 포천, 평택, 당진, 서산, 동탄, 천안지역에서 2000년부터 다시 두드러진 증가 추세를 보이고 있다. 전국 대부분의 지역에서 NO₂는 낮은 수준이기는 하지만 감소 추세를 보이며, 중부, 호남, 영남의 교외지역은 2000년 이후에 정체되거나 미약한 증가 추세를 보이고 있다. 자동차 등록 수가 같은 기간 약 2배 늘어난 것에 비해 NO₂ 저감 노력은 비교적 성공적이었음을 알 수 있다. 특히, 수도권 지역에서는 수도권 대기환경 관리 노력으로 NO₂ 저감 효과가 상대적으로 크게 나타났다. 이에 비해 O₃과 O₃은 반대로 증가 추세로 나타났다. O_x 농도는 2000년대 초반까지 증가 추세를 보이다가 약 10년간 정체된 후 2010년 이후에 다시 꾸준한 증가 경향을 보였다. O₃은 1990년부터 꾸준히 증가 추세를 확인하였다. 2000년부터 O₃과 O_x는 모든 권역의 도시, 도로변 측정소에서 뚜렷한 증가 추세가 나타났다.

전국 도시 대기에서는 O₃이 연간 0.6 ppbv 수준의 증가를 보였으며 여름철 8시간 일중 최고농도의 경우에는 연간 1.2 ppbv 수준의 증가 추세를 보였다. 이러한 증가 정도는 세계적으로 높은 수준임을 확인하였다. O₃ 장기변동 추이에 기상변화를 고려한 결과, 2012년 이후의 급격한 O₃ 증가 추세 이외에는 1990년 이후에 나타난 꾸준한 O₃ 농도 증가에 기상요소가 주는 영향이 크지 않음을 확인할 수 있었다. 도심지역에서 O₃ 농도 증가 추세는 NO 배출감소에 따른 O₃ 증가(O₃ 적정 효과)와 디젤자동차 확대에 따른 f(NO₂)의 증가가 역할을 한 것으로 추정된다. 이외에 동북아시아 오존 배경농도 증가로 인해 수도권과 국내 대기 중의 산화력이 증가하는 것이 큰 영향을 주는 것으로 추정된다. 하지만 이를 분석하기 위해서는 대기 중 산화력의 장기적인 추이를 예측할 수 있는 종합적인 연구가 필요하다. 산화력의 증가는 궁극적으로 2차 오염물질의 농도

증가를 야기하기 때문에 이에 연관된 심층적인 연구를 통해서 2차 오염인 O₃과 PM₁₀의 대기질 관리 방향 설정의 기반을 확보하는 것이 중요하다.

감사의 글

이 연구는 국립환경과학원의 “권역별 배출원-기상-지형을 고려한 대기질 특성 심층 분석 연구”와 2017년도 정부(과학기술정보통신부, 환경부, 보건복지부) 재원 한국연구재단-미세먼지 국가전략프로젝트사업(2017M3D8A1092015)의 지원으로 수행되었습니다.

References

- An, H., Han, J., Lee, M., Kang, E. (2015) The Long-term Variations of Ozone and Nitrogen Oxides in Suwon City during 1991~2012, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 31(4), 378-384. (in Korean with English abstract)
- Camalier, L., Cox, W., Dolwick, P. (2007) The effects of meteorology on ozone in urban areas and their use in assessing ozone trends, *Atmospheric Environment*, 41(33), 7127-7137.
- Carlsaw, D.C., Ropkins, K. (2012) Openair - An R package for air quality data analysis, *Environmental Modelling & Software*, 27, 52-61.
- Chungnam Institute (CNI) (2015) A Study on the Improvement of Air Quality Resources in Chungcheongnam-do to Promote the Local Environment and Economies.
- Close, B., Zurbenko, I. (2016) Kolmogorov-Zurbenko Adaptive Filters.
- Ghim, Y.S., Kim, C.H. (2013) Regional Trends in Short-Term High Concentrations of Criteria Pollutants from National Air Monitoring Stations, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 29(5), 545-552. (in Korean with English abstract)
- Han, J., Lee, M., Ghim, Y.S. (2008) Cluster Analysis of PM₁₀ Concentrations from Urban Air Monitoring Network in Korea during 2000 to 2005 *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 24(3), 300-309. (in Korean with English abstract)
- Hwang, Y.-J., Lee, S.-J., Do, H.-S., Lee, Y.-K., Son, T.-J.,

- Kwon, T.-G., Han, J.-W., Kang, D.-H., Kim, J.-W. (2009) The Analysis of PM₁₀ Concentration and the Evaluation of Influences by Meteorological Factors in Ambient Air of Daegu Area, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 25(5), 459-471. (in Korean with English abstract)
- Iqbal, M.A., Kim, K.-H., Shon, Z.-H., Sohn, J.-R., Jeon, E.-C., Kim, Y.-S., Oh, J.-M. (2014) Comparison of ozone pollution levels at various sites in Seoul, a megacity in Northeast Asia, *Atmospheric Research*, 138(Supplement C), 330-345.
- Kang, D., Hogrefe, C., Foley, K.L., Napelenok, S.L., Mathur, R., Trivikrama Rao, S. (2013) Application of the Kolmogorov-Zurbenko filter and the decoupled direct 3D method for the dynamic evaluation of a regional air quality model, *Atmospheric Environment*, 80(Supplement C), 58-69.
- Kim, C.-H., Park, I.-S., Lee, S.-J., Kim, J.-S., Jin, H.-A., Sung, H.-G. (2004) On the Recent Air Pollution Levels Observed in the Regional Air Monitoring Network -High Air Pollution Concentration Episodes and Their Meteorological Characteristics in 2002, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 20(2), 215-224. (in Korean with English abstract)
- Kim, Y.-P. (2010) Analysis of the trend of atmospheric PM₁₀ concentration over the Seoul Metropolitan Area between 1999 and 2008, *Journal of Environmental Impact Assessment*, 19(1), 59-74. (in Korean with English abstract)
- Korea Ministry of Environment (KME) (2016) Operation Plan of Air Pollution Monitoring Network (2016~2020), Climate and Air Quality Management Division.
- Lee, S., Ho, C.-H., Choi, Y.-S. (2011) High-PM₁₀ concentration episodes in Seoul, Korea: Background sources and related meteorological conditions, *Atmospheric Environment*, 45(39), 7240-7247.
- Lee, S.-W., Lee, C.-H., Ji, D.-H., Youn, H.-J. (2010) Temporal and Spatial Distribution of Ambient Sulfur Dioxide Concentration in Forest Areas, Korea, *Korean Journal of Soil Science and Fertilizer*, 43(6), 1035-1039. (in Korean with English abstract)
- Lim, D.-Y., Lee, T.-J., Kim, D.-S. (2012) Quantitative Estimation of Precipitation Scavenging and Wind Dispersion Contributions for PM₁₀ and NO₂ Using Long-term Air and Weather Monitoring Database during 2000~2009 in Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 28(3), 325-347. (in Korean with English abstract)
- Lim, Y.-T. (2003) Korea-China industrial and technological cooperation and further development strategy, *Journal of Asian Economics*, 14(2), 283-309.
- Nguyen, H., Kim, K.-H. (2006) Comparison of spatiotemporal distribution patterns of NO₂ between four different types of air quality monitoring stations, *Chemosphere*, 65(2), 201-212.
- Ray, S., Kim, K.-H. (2014) The pollution status of sulfur dioxide in major urban areas of Korea between 1989 and 2010, *Atmospheric Research*, 147(Supplement C), 101-110.
- Sharma, A.P., Kim, K., Ahn, J., Shon, Z., Sohn, J., Lee, J., Ma, C., Brown, R.J.C. (2014) Ambient particulate matter (PM₁₀) concentrations in major urban areas of Korea during 1996~2010, *Atmospheric Pollution Research*, 5(1), 161-169.
- Shin, H., Park, J., Son, J., Rho, S., Hong, Y. (2015) Statistical Analysis for Ozone Long-term Trend Stations in Seoul, Korea, *Journal of Environmental Impact Assessment*, 24(2), 111-118.
- Susaya, J., Kim, K.-H., Shon, Z.-H., Brown, R.J.C. (2013) Demonstration of long-term increases in tropospheric O₃ levels: Causes and potential impacts, *Chemosphere*, 92(11), 1520-1528.
- Theil, H. (1992) A Rank-Invariant Method of Linear and Polynomial Regression Analysis, in: Henri Theil's Contributions to Economics and Econometrics, *Advanced Studies in Theoretical and Applied Econometrics*. Springer, Dordrecht, pp. 345-381.
- Verstraeten, W.W., Neu, J.L., Williams, J.E., Bowman, K.W., Worden, J.R., Boersma, K.F. (2015) Rapid increases in tropospheric ozone production and export from China, *Nature Geoscience*, 8(9), 690-695.
- Won, Y.J., Yeh, S.-W., Yim, B.Y., Kim, H.-K. (2017) Relationship Between Korean Monthly Temperature During Summer and Eurasian Snow Cover During Spring, *Atmosphere*, 27(1), 55-65.
- Yoo, S.-S., Jeon, J.-S., Jung, K., Shin, E.-S., Jung, B.-J., Ryu, R.-N., Woo, J.-H., Sunwoo, Y. (2011) Analysis on Air Quality Characteristics through Air Quality Monitoring Stations in urban Background and High Altitude in 2005~2006 in Seoul, *Journal of Environmental Impact Assessment*, 20(1), 49-59. (in Korean with English abstract)