

논문

# 국내 오존 예측모형 개발을 위한 지표면 오존 농도의 시공간적 경향 탐색

## Exploration of the Spatial and Temporal Patterns of Surface Ozone Concentrations for Development of Ozone Prediction Model in South Korea

정몽주, 김우진<sup>1)</sup>, 허종배<sup>2)</sup>, 김선영<sup>3)</sup>\*

서울대학교 통계학과, <sup>1)</sup>강원대학교 의과대학 호흡기내과 및 환경보건센터,  
<sup>2)</sup>부산연구원 해양·관광연구실, <sup>3)</sup>국립암센터 국제암대학원대학교 암관리학과

접수일 2021년 9월 11일  
수정일 2021년 12월 17일  
채택일 2022년 1월 14일

Received 11 September 2021  
Revised 17 December 2021  
Accepted 14 January 2022

\*Corresponding author  
Tel : +82-(0)31-920-2745  
E-mail : sykim@ncc.re.kr

Mongju Jeong, Woo Jin Kim<sup>1)</sup>, Jongbae Heo<sup>2)</sup>, Sun-Young Kim<sup>3)</sup>\*

Department of Statistics, Seoul National University, Seoul, Republic of Korea

<sup>1)</sup>Department of Internal Medicine and Environmental Health Center,

Kangwon National University, Chuncheon, Republic of Korea

<sup>2)</sup>Busan Development Institute, Busan, Republic of Korea

<sup>3)</sup>Department of Cancer Control and Population Health, Graduate School of Cancer Science and Policy, National Cancer Center, Goyang, Republic of Korea

**Abstract** As ozone concentration has consistently increased over time and toxicological studies suggested possible impacts on human health, recent epidemiological studies focused on the impact of long-term exposure to ozone on cardiovascular and respiratory diseases. However, there have been few studies in South Korea. With the goal of providing practical guidance to developing ozone prediction model for future epidemiological studies in South Korea, the present study aimed to explore temporal and spatial patterns of ozone concentration using regulatory monitoring data collected over 19 years. Given hourly measurements at 135~388 sites during 2001~2019, we computed daily 8-hour maximum and averaged over the warm season from May to September as the daily- and annual-representative concentrations. Using hourly, daily, monthly, and annual ozone concentrations, we explored short-term and long-term temporal patterns. In addition, we investigated spatial patterns using summary statistics of annual concentrations across 16 Metropolitan Cities and Provinces and spatial correlation structure over the country. Furthermore, we compared the temporal and spatial patterns of ozone with those of weather conditions as well as VOCs and NO<sub>x</sub> emissions. Over the past 19 years, annual ozone concentrations have increased by about 13 ppbv (42%) with a consistently increasing trend and showed the highest between May and June. In the spatial pattern, ozone concentration was lower in urban areas than in rural areas. The temporal pattern of ozone was similar to those of solar radiation, while NO<sub>x</sub> and VOCs generally showed negative correlation with ozone over space and time. Our findings provided temporal and spatial characteristics of ozone which can help future exposure assessment for epidemiological studies in South Korea.

**Key words:** Ozone, Regulatory monitoring network, South Korea, Spatial trend, Temporal trend

### 1. 서론

우리나라를 포함한 북미와 유럽의 많은 국가에서

시행한 국가 차원의 대기오염 저감 대책으로 미세먼지를 포함한 모든 주요한 오염물질의 농도가 감소했으나 (Amann *et al.*, 2020; US EPA, 2016), 오존은 최근

까지 농도가 지속해서 증가하고 있고 건강에 미치는 악영향까지 보고되면서 학계 관심이 증가하고 있다 (US EPA, 2020; Nuvolone *et al.*, 2013; Bogaert *et al.*, 2009). 오존은 2차 광화학 오염물질로서 질소산화물 (nitrogen oxides: NO<sub>x</sub>)과 휘발성유기화합물 (volatile organic compounds: VOCs)의 광화학반응을 통해 생성되며 일산화질소 (nitric oxide; NO)와의 반응을 통해 소멸한다 (US EPA, 2020; Trainer *et al.*, 1987). 기후 변화로 인한 지속적인 기온의 상승은 대기 중 오존 전구물질의 광화학반응을 활성화해 오존 농도를 증가시키고 빈번한 고농도 오존 발생 현상을 초래한다 (KEI, 2010). 우리나라의 오존 농도는 1990년대 이후 도시화의 가속으로 꾸준히 증가해 왔으며 (Kang *et al.*, 2019; Jung *et al.*, 2009) 2019년 현재 8시간 대기환경기준 (0.06 ppm/8 hr) (표 S1)을 달성한 측정소는 전체 367개 중 단 한 곳도 없었다 (MOE, 2019). 이는 대기환경기준이 설정된 8개 대기오염물질 중에서 기준이 강화된 PM<sub>2.5</sub>를 제외한 다른 6개 대기오염물질의 달성률에 비해 현저히 낮은 수준이다. 게다가 국외의 여러 역학 연구는 일찍이 고농도 오존 노출이 건강에 미치는 유의미한 영향을 보고하였다 (Jerrett *et al.*, 2009; Frischer *et al.*, 1993; Lippmann *et al.*, 1993; Ostro *et al.*, 1993; Romieu *et al.*, 1992; Thurston *et al.*, 1992; Kinney *et al.*, 1991; Kinney *et al.*, 1988). 최근 출판된 미국 환경보호청 리뷰 보고서에서는 단기간의 오존 노출이 호흡기 질환 및 심혈관 질환과 신진대사에 미치는 영향에 대한 방대한 연구 결과를 제시하였고 최근 장기간 오존 노출이 질병이나 사망 발생에 미치는 영향에 관한 연구도 소개하였다 (US EPA, 2020).

반면, 국내에서 오존의 건강 영향에 대한 연구는 제한적인 상황이다 (Kim *et al.*, 2020; Lee *et al.*, 2020a). 오존 노출이 질병 발생 및 진행이나 사망 등의 건강 결과에 영향을 준다는 인과관계를 증명하기 위해서는 건강한 사람들 개개인의 노출 정도와 건강 결과를 장기간 추적하는 대규모 코호트 연구가 필수적이다. 그러나 개개인의 오존 농도에 대한 측정값은 존재하지 않기 때문에, 장기간 개개인의 시간에 따른 거주지나

직장과 같은 장소에서의 농도를 예측하기 위한 전국 규모의 예측모형 개발이 선행되어야 한다. 하지만, 국내에서는 이에 관한 연구가 아직 이루어지지 않았다. 국내 오존 연구에서는 서울, 수도권 등 대도시 지역에서 고농도 오존이 생성되는 원인을 규명하거나 추이를 분석하였고 (Jeon *et al.*, 2021; Lee *et al.*, 2020b; Kang, 2019; Jeon, 2014; Kim and Yeo, 2013; Han *et al.*, 2013; Shin *et al.*, 2012; Jung *et al.*, 2009; Ghim and Oh, 1999) 수원이나 부산 등 소규모 지역에서 시간적 또는 시공간적 변화의 특성을 탐색하였다 (Kim and Son, 2020; An *et al.*, 2015). 또한, 전국을 대상으로 장기간 추세를 분석한 연구도 진행되었다 (Yeo and Kim, 2021; Seo *et al.*, 2014). 오존의 예측모형에 관한 연구는 주로 물리화학 모형에 기반해서 진행되었고 연구 기간이나 장소가 일부 계절이나 연도, 수도권이나 공단 지역으로 한정적이었다 (Bae *et al.*, 2018; Kang *et al.*, 2016; Kim, 2011). 반면, 국외에서는 최근 통계적인 방법을 이용해서 전국 또는 지역 규모의 예측모형을 개발하고 이 모형에서 예측한 오존 농도를 이용해서 질병 및 사망에 미치는 영향을 보고한 연구들이 증가하였다 (Kazemiparkouhi *et al.*, 2020; de Hoogh *et al.*, 2018; Turner *et al.*, 2016; Wang *et al.*, 2016, 2015). 이들은 모형에서 오존의 시공간 변동을 설명하기 위해 시간적, 공간적 또는 시공간적 예측인자나 통계적인 상관성 등을 예측모형에 포함하였다.

오존의 건강 영향을 파악하고 적절한 예방 정책들을 시행하기 위해서는 측정값이 없는 개개인에 대한 오존 노출값을 예측하는 모형의 개발이 필수적이고, 예측모형 개발을 위해서는 먼저 오존의 시공간적 변동의 특성을 파악하는 것이 중요하다 (Kim *et al.*, 2015; Malmqvist *et al.*, 2014). 오존의 시간적 공간적 특성에 대한 설명력이 높은 정보를 이용하고 특성에 적합한 가정을 바탕으로 통계적인 모형의 구조를 설정한다면 예측력 높은 모형을 만들 수 있을 것이다. 본 논문은 우리나라 전국 규모 장기간 오존의 통계 예측모형 개발에 필요한 정보를 제공하기 위해 오존 농도의 시공간 특성을 파악하는 목적의 탐색적 연구이

다. 이를 위해 계절 간이나 다수 연도의 시간적 변동과 거리나 지역에 따른 공간적 변동의 경향을 파악하고자 한다. 또한, 이러한 경향을 설명할 수 있는 기상 변수 및 전구물질의 경향과 비교하여 예측모형에서 기상이나 배출 원적 특성을 예측인자로서 활용할 수 있을지 파악하고자 한다. 모형에서 활용할 수 있는 최대한의 시공간 자료를 이용하고자 2001~2019년의 전국 135~388개 환경오염측정망 측정소에서 측정한 오존 농도 자료를 이용하였다.

## 2. 연구 방법

### 2.1 자료

#### 2.1.1 오존과 이산화질소(NO<sub>2</sub>)

2001년 1월부터 2019년 12월까지 19년간 전국 328~472개 환경부 환경오염측정망 측정소에서 측정한 오존의 시간별 측정자료는 에어코리아(<https://www.airkorea.or.kr>)의 자료를 활용하였다. 환경오염측정망은 4개 유형의 도시 대기(urban background), 도로변 대기(urban roadside), 국가 배경농도(national background), 교외 대기(regional background) 측정소를 포함하고 있고 이들은 각각 다른 목적으로 운영되고 있다(MOE, 2019). 2019년 12월 말 기준으로 전국 114개 시·군에 총 472개 측정소가 운영 중이고 4개 측정소 유형마다 각각 405, 42, 3, 22개가 설치되어 있다(그림 S1)(MOE, 2019). 도시 대기측정소는 도시지역의 평균대기질 농도 파악을 목적으로 하고 도로변 측정소는 자동차 통행량과 유동 인구가 많은 도로변의 대기질을 파악하고자 운영되고 있다. 국가 배경농도측정소는 국가적인 배경농도에 집중하여 외국으로부터의 대기오염 물질의 유입과 유출 상태, 장거리 이동 현황 등의 파악을 목적으로 하고 교외 대기측정소는 광범위한 지역의 배경농도를 파악하고 있다.

오존의 건강 영향에 대한 대부분의 연구에서는 태양광이 없는 야간에 오존 생성이 어려운 상황을 반영하여 대표 농도를 이용하였다(Kim *et al.*, 2020; Ander-

son and Bell, 2010; U.S. EPA, 2006). 즉, 일이나 년을 대표하는 농도를 계산할 때 24시간이나 365일 동안의 단순 평균을 사용하기보다는 일정한 낮 동안이나 온난계절의 평균이나 최댓값을 이용하였다. 본 연구에서는 오존에 대한 기존 연구 경향과 결과에 따라 오존 생성과 건강 영향을 반영할 수 있는 일별 대푯값으로 “일일 최대 8시간 평균(maximum daily 8-h average; MDA8)을 사용하였고 온난계절인 5~9월 동안의 일 대푯값의 평균을 연도별 대푯값으로 이용하였다(보충 문건의 “오존 대푯값에 대한 논의”). 또한, 대표성 있는 일/년 대푯값을 계산하기 위해 하루 중 75% 이상의 측정값이 있는 날과 월마다 최소 하루의 측정값이 있는 측정소만을 본 연구에 포함하였다. 이러한 기준을 적용해서 일 대푯값에 대한 분석에 포함한 측정소 수는 전체 연구 기간인 19년 동안 총 498개 중 482개였고, 년 대푯값을 이용한 측정소 수는 421개였다.

오존의 전구물질인 이산화질소(Nitrogen dioxide: NO<sub>2</sub>)도 같은 자료원에서 획득하였고 오존 분석에 사용하는 동일 측정소에 대해 24시간 동안의 일평균과 365일 동안의 연평균을 일과 년의 대푯값으로 계산하였다.

#### 2.1.2 기상

오존 생성에 영향을 주는 기상학적 변수에 대한 탐색을 위해 기상자료개방 웹 포털(<http://data.kma.go.kr>)에서 2001년에서 2019년의 시간별 종관기상관측(Automated Synoptic Observation System: ASOS) 자료를 활용하였다. 전체 102개의 측정소는 다수가 해안지역에 분포하고 있고 광역시 지역에는 1~2개 정도만 설치되어 있다. 이들 측정소 중 지역별로 시청 또는 도청 근처에 위치하는 대표 지점을 한 곳씩 선택하여 오존 농도와의 비교에 이용하였다. 이용한 기상 변수는 온도, 습도, 일조량, 일사량이다. 하루 24개의 시간별 측정값 중 특히 겨울 동안 관측된 일사/일조량에서 결측이 많았는데 대표할 수 있는 일 대푯값을 산출하기 위해 하루 중 11개 이상의 측정값이 있는 날만 분석에 포함하여 일평균을 계산하였다.

### 2.1.3 휘발성유기화합물

오존의 생성과 소멸에 영향을 주는 전구물질인 휘발성유기화합물 농도의 탐색을 위해 연구 기간의 가장 최근 3년간 2017~2019년의 월별 측정자료를 에어코리아(<https://www.airkorea.or.kr>)에서 획득하였다. 환경부에서 운영하는 측정소 중 광화학 대기오염물질 측정소는 오존 생성에 기여하는 VOCs 물질의 농도를 파악하는 목적으로 운영되고 있으며 2019년 12월 말 기준 전국 18개의 측정소가 운영되고 있다. 본 연구에서는 제공된 56개 VOC 물질을 모두 합한 Total VOCs (TVOCs) 농도를 이용하였다.

### 2.1.4 배출량

전구물질에 대한 또 다른 자료원으로 국립환경과학원(<http://airemiss.nier.go.kr/main.jsp>) 웹사이트의 연간 배출량 추정자료를 활용하였다. 배출량 자료는 공간 경향 탐색에 이용하기 때문에, 전체 연구 기간의 중위수에 해당하는 2010년의 1년 자료를 이용하였다. 자료에 포함된 오염원 변수 중에서 오존의 전구물질인 NO<sub>x</sub>와 VOCs의 배출량(kg/yr)을 이용하였다. 배출량 자료는 1킬로미터 격자로 제공되기 때문에, 해당 오존 측정소로부터 10, 20 km의 원형 버퍼(buffer) 내 총량을 계산하여(Eum *et al.*, 2015) 오존 농도와의 비교에 이용하였다.

## 2.2 시간적 경향

전체 연구 기간 동안 계절적인 추세를 포함해서 일관적인 경향을 보이는지 파악하기 위해 19년 전체 기간 및 월별 시계열 그림으로 경향을 탐색하였다. 또한, 시와 도의 지역에 따라 시간적 경향이 같게 혹은 다르게 관찰되는지 확인하였고, 오존 생성 과정에 영향을 미치는 기상 변수(일사, 일조, 온도, 습도)와 전구물질(VOCs, NO<sub>x</sub>, NO<sub>2</sub>)의 시간적인 변동성을 탐색해 보고 오존 경향과의 비교를 통한 결과해석을 제시하였다. 일반적인 오존의 시간적인 경향을 파악하기 위해 분석에는 거주지역의 오염 정도를 파악하는 목적으로 설치된 2001~2019년 동안 124~336개의 도시 대기 측정소 자료만을 포함하였고 주변 지역 환경에 영향

을 받는 다른 유형의 측정소는 제외하였다. 도로변 측정소의 경우 자동차 배기가스를 통해 발생하는 일산화탄소(NO)의 영향으로 오존 농도가 낮게 형성되었고(U.S. EPA, 2013), 국가 배경 측정소에서는 중국발 대기오염물질의 장거리 이동이 많은 시기에 높은 오존 농도가 관찰되었다(Nagashima *et al.*, 2010; Oh *et al.*, 2009). 측정소 유형에 따른 공간적인 차이는 공간 경향에 대한 분석에서 탐색하였다.

## 2.3 공간적 경향

공간적 경향 분석에는, MDA8의 년 대푯값을 이용하여 4가지 측정소 유형별 및 16개 시도별 평균과 표준편차를 계산하였고, 베리오그램(variogram)을 이용하여 공간적 상관성(dependency) 정도를 파악하였다. 측정소 유형별 분석을 제외한 나머지 공간 경향 탐색에서는 거주지역의 일반적인 경향을 확인하기 위해 도시 대기 측정소 자료만 이용하였다. 측정소 유형별 및 시도별 분석에서는 연도별 대푯값인 온난계절 평균 외에 비온난계절과 12개월 평균도 이용하였다. 공간적 경향은 시간에 따라 차이를 보일 수 있다는 가정 아래, 연도별로도 비교하였다. 시도별 분석에서는 2014년부터 대기 오염측정망이 설치된 세종시를 제외하고 16개 시도를 포함하였다. 또한, 오존과 전구물질의 공간적인 연관성을 탐색하기 위해 오존과 NO<sub>x</sub> 및 VOCs 총배출량의 측정소별 연평균을 비교하였다.

베리오그램( $\gamma(h)$ )은 공간적 상관성을 파악하기 위한 대표적인 공간통계 분석 방법으로 측정소 간 거리에 따른 농도의 차이에 대한 함수를 이용하고 대기오염 측정값이 없는 위치에 농도를 예측하는 크리깅(kriging)과 같은 통계 기반 예측 모형에 필요한 정보를 제공한다(U.S. EPA, 2020). 아래 계산식에서 보듯이 베리오그램을 통해 두 장소( $x_i, x_{i+h}$ )의 거리( $h$ )에 따른 관측값( $Y$ ) 간 차이의 경향을 탐색하게 된다(Cressie, 1993).

$$\gamma(h) = \frac{1}{2N_h} \sum_{i=1}^{N_h} [Y(x_{i+h}) - Y(x_i)]^2$$

베리오그램에서 거리에 따라 달라지는 농도( $Y$ ) 차이

의 공간적인 상관성은 세 가지 모수로 파악할 수 있는데, 공간적인 상관성이 존재하는 거리를 범위(range), 공간적인 변화와 측정 오차로 해석되는 비 공간적인 변화를 각각 부분실(partial sill)과 너겟(nugget)으로 정의한다(그림 S2). 베리오그램 분석은 온난계절의 평균값을 이용하여 제시하였고 모수는 최대우도(maximum likelihood) 방법으로 추정하였다.

### 3. 연구 결과 및 고찰

#### 3.1 시간적 경향

전체 조사 기간인 19년 동안 전국 124~336개 도시 대기 측정소의 일별 오존 농도의 연평균은 일정한 계절 경향을 유지하면서 전체 기간 증가하는 추세를 보였다(표 1, 그림 1, 그림 S3). 지난 19년 동안 전국 연평균 농도는 31.4 (표준편차=16.4) ppbv에서 44.5 (19.8) ppbv로 약 13 ppbv (42%)가 증가하였다. 2001년부터 2019년까지 지속해서 존재했던 111개의 측정소만 이용한 탐색에서도 2019년 연평균 농도는 42.6 ppbv로 비슷하여 시간에 따른 측정소 수의 증가와 관계없이 전반적인 오존의 증가 경향을 확인하였다. 특

히 온난계절 평균 농도의 경우에는 증가 폭이 16 ppbv (43%)로 더 컸다. 특별·광역시 지역과 도 지역에서도 위와 같은 비슷한 증가량을 보였지만 특별·광역시 지역에서의 증가 폭이 더 컸다. 이러한 증가 추세는 지역별로 살펴보았을 때도 같았다(그림 1, 그림 S4). 전국 연평균 농도에 대한 온난계절 농도의 비율은 2011년까지 1~2년 단위로 증가와 감소를 반복하다가 2011년부터 5년간 매우 증가하였다.

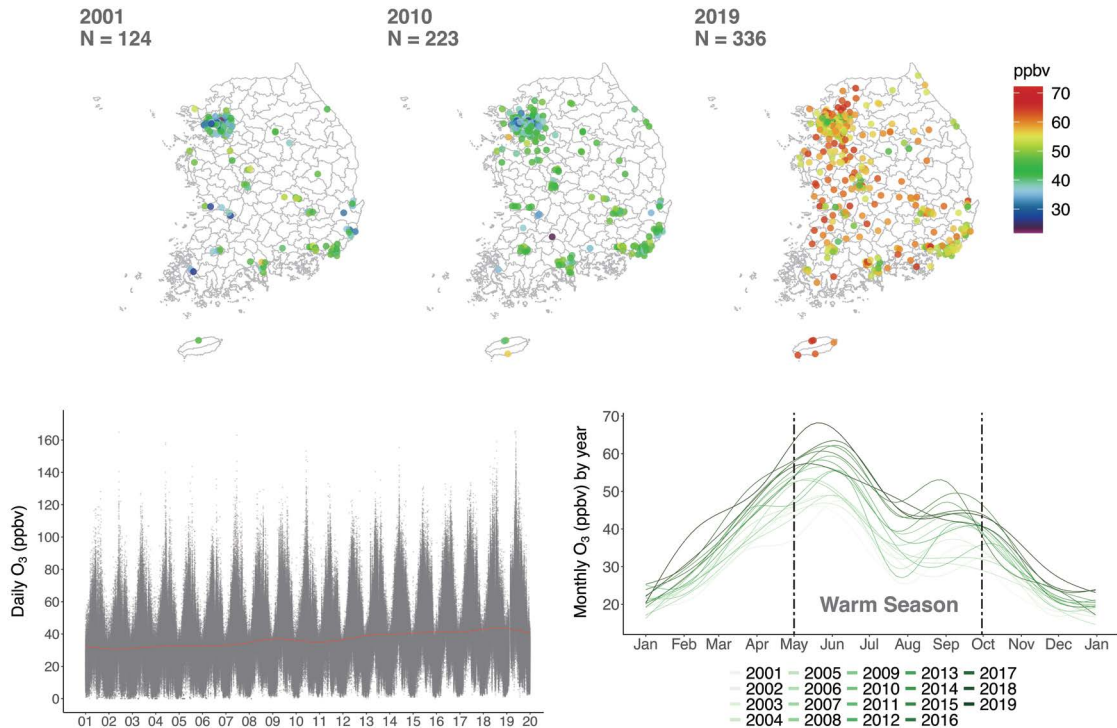
오존의 월별 패턴을 살펴보면 일반적으로 일사량이 많은 5~6월에 오존 농도가 최고값을 보였고(그림 1) 연중 최고 월평균 농도와 최저 농도의 차이는 약 35 ppbv였다. 오존과 일사량의 월별 경향 비교에서는, 최근 3년 동안 5~6월에 증가하고 7~8월에 감소하며 다시 9월에 증가 후 10월이 지나 감소하는 같은 경향을 확인하였다(그림 2). 이러한 경향은 5~6월 오존 생성 과정의 광화학반응에 유리한 조건인 높은 일사량이 같은 기간 오존 농도 증가에 기여하고(Monks, 2000) 7~8월 장마와 태풍 등의 영향으로 인한 일사량 감소가 같은 기간 오존 농도의 감소에 영향을 미치며 10월 이후 계절적인 일사량 감소에 따라 오존 농도 또한 감소추세를 보이는 것으로 해석된다(Lee and Choi, 2006). 일사량은 다른 기상 변수인 온도, 습도, 일조량

**Table 1.** Average (standard deviation) of maximum daily 8-h average ozone concentrations (ppbv) at urban background regulatory monitoring sites for 12 months, warm season (May~September), and cold season (January~April and October~December) by 8 Metropolitan Cities and 8 Provinces in South Korea by five different years from 2001 to 2019.

Area	Year	2001	2005	2010	2015	2019
	Number of sites <sup>1)</sup>	124	178	223	249	336
Period						
South Korea	12 months	31.4 (16.4)	32.4 (16.0)	34.6 (17.3)	40.5 (19.0)	44.5 (19.8)
	Warm	37.6 (17.3)	37.7 (17.5)	41.7 (19.7)	51.6 (17.8)	53.8 (21.0)
	Cold	26.9 (14.2)	28.7 (13.5)	29.4 (13.1)	32.5 (15.5)	37.1 (15.1)
8 Metropolitan Cities	12 months	29.7 (16.2)	31.7 (15.9)	34.3 (16.9)	39.1 (18.1)	42.2 (18.6)
	Warm	35.7 (16.8)	36.9 (17.8)	40.8 (19.2)	49.5 (17.2)	50.4 (19.9)
	Cold	25.3 (14.1)	27.9 (13.2)	29.6 (13.2)	31.7 (14.9)	35.7 (14.5)
8 Provinces	12 months	33.0 (16.5)	33.0 (16.0)	34.7 (17.5)	41.5 (19.4)	45.7 (20.3)
	Warm	39.3 (17.6)	38.3 (17.3)	42.3 (20.1)	53.1 (18.0)	55.5 (21.4)
	Cold	28.4 (14.0)	29.2 (13.7)	29.3 (13.0)	33.1 (15.8)	37.9 (15.3)

<sup>1)</sup>The numbers of urban background monitoring sites only. The numbers of all four types of sites were 135, 213, 273, 303, and 388 for 2001, 2005, 2010, 2015, and 2019, respectively.





**Fig. 1.** Maps of warm-season average ozone concentrations (ppbv) by 3 different years (top), and time-series plots of maximum daily 8-h average ozone concentrations (ppbv) over 19 years and 12 months (bottom) using urban background regulatory monitoring data from 2001 to 2019 in South Korea.

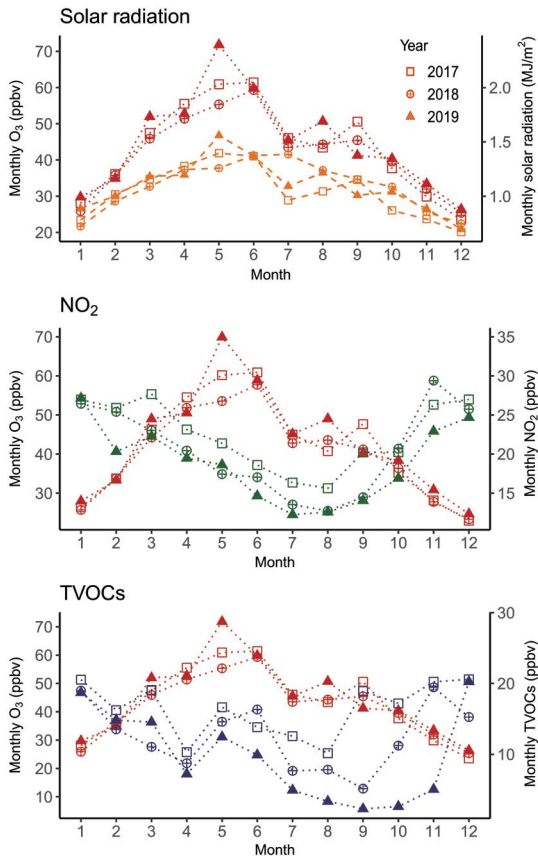
에 비해 오존과 훨씬 비슷한 월별 경향을 보여주었다 (그림 S5). 오존의 19년의 장기경향과 월별 경향은 일대뜻값으로 최대 8시간 평균 대신 최대 1시간 평균이나 24시간 평균값을 사용했을 때도 같았다 (그림 S6~S8, 표 S3).

오존의 월별 평균 경향은 오존의 전구물질인 NO<sub>2</sub>와 VOCs의 월별 평균 농도와 음의 상관성을 보였다 (그림 2). TVOCs는 최근 3년 모두 늦여름부터 농도가 감소하여 9월 전후로 최저 농도를 보이고 12월과 1월 중 최고 농도를 보이는 동일한 패턴이 관측되며, 이는 겨울에 최저 농도를 보이는 오존과 반대 경향이였다. NO<sub>2</sub> 또한 TVOCs와 비슷하게 늦가을과 겨울에 고농도를 보이고 봄부터 농도가 감소해 늦여름에 최저 농도를 보였다. 배출량에 큰 변화가 없다면 오존의 광화학 반응이 적게 일어나는 겨울철에는 전구물질들의

농도가 높게 유지될 수 있다. NO<sub>2</sub>/VOC와 오존의 상반된 월별 경향은 오존의 전구물질로서의 특징을 잘 보여준다.

### 3.2 공간적 경향

측정소별 유형에 따른 오존의 연도별 온난계절과 비온난계절 평균 농도는 대체로 국가 배경농도, 교외 대기, 도시 대기, 도로변 대기 측정소 순으로 낮았다 (그림 3). 도로변대기 측정소가 그 외 측정소보다 평균 농도가 낮은 것은 모든 연도에서 관측된 공통적인 특징이며, 나머지 측정소에서는 일부 기간에서 순위가 뒤바뀌기도 하였다. 온난계절에서는 2016년 이후부터 도시 대기, 국가 배경, 교외 대기 측정소에서의 농도가 비슷해지는 경향을 보였다. 하지만, 일별 대뜻값을 24시간 평균으로 설정하여 측정소별 연평균 농

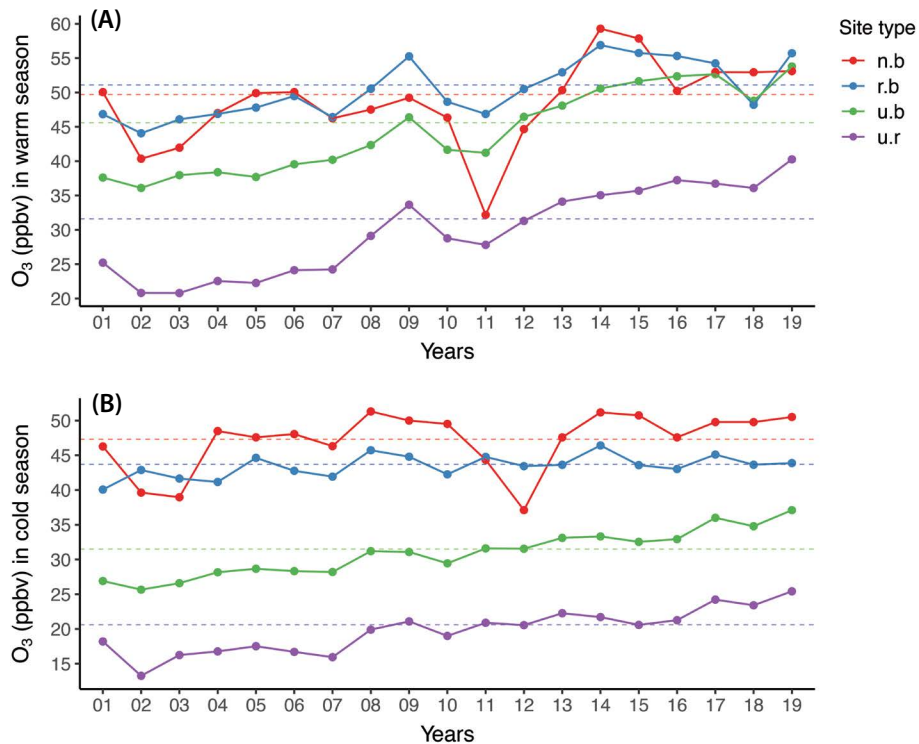


**Fig. 2.** Time-series plots of monthly averages of maximum daily 8-h average ozone concentrations (red), solar radiation (orange: top),  $\text{NO}_2$  concentrations (green: middle), and monthly sum of TVOCs (blue: bottom) against 12 months for 2017~2019 in South Korea.

도 값을 비교하면 최근 연도에서 순위가 겹침 없이 확연하게 구분되는 경향이 나타났다(그림 S8). 즉, 일별 최대 평균값(MDA1, MDA8)으로는 측정소별 농도 경향이 비슷했지만, 24시간 동안의 전체 시간을 반영하면 측정소별 차이가 분명하게 드러났다. 또한, 도시 대기 측정소를 제외한 나머지 세 곳에서는 비슷한 시간적 추세를 보인다. 국가 배경 및 교외 대기 측정소와 같은 배경 지역은 오존의 소멸 과정에 영향을 주는 일산화질소( $\text{NO}$ )의 영향이 적으며 중국발 대기오염 물질의 장거리 이동에 영향을 크게 받기 때문에 관찰되는 오존 농도가 도시지역에 비해 높은 것으로 보고

되었다(Oh *et al.*, 2009). 반면,  $\text{NO}_x$ 가 다량 배출되는 도시지역에서는 특히 자동차에서 배출된  $\text{NO}$ 가 대기 중 산소와 반응하여  $\text{NO}_2$ 로 전환되기 때문에 오존의 소멸 과정에 영향을 주어 낮은 농도가 관찰될 수 있다(Kim *et al.*, 2018). 그림 S9의 측정소 유형별  $\text{NO}_2$ 의 연평균 농도 비교에서도 오존과는 반대로 배경 지역 측정소에서 낮고 도시 지역에서는 높은 특징을 보였고, 특히 도로변 대기 측정소에서 연평균 농도가 가장 높게 관측되었다. 이는, 자동차에서 직접 배출되는 전구 물질의 농도가 도로변 대기 측정소에서 가장 높고 이들이 확산하여 이동하는 과정에서 반응하여 오존을 생성하기 때문에 도시 대기와 도로변 측정소에서는 상대적으로 낮은 오존 농도가 관찰된 것으로 보인다.

2001~2019년 19개년에 대한 시도별 도시 대기 측정소 오존 평균 농도의 최솟값은 서울 지역에서의 32.3 ppbv이고, 최댓값은 제주 지역에서의 44.7 ppbv였다(표 2). 일반적으로 특별시/광역시에서의 평균 농도가 도 지역의 평균 농도보다 낮았다(표 2, 그림 S10). 이는 도시 지역, 특히 주요 도로 주변에서는 자동차 매연 등에서 발생하는  $\text{NO}$ 에 의해 오존 소멸과정에 영향을 주기 때문이다(U.S. EPA, 2013). 하지만, 지역별 차이는 온난계절에서 약화되었다(그림 S10). 온난계절에서의 최솟값과 최댓값은 울산과 경남 지역에서 각각 41.3, 49.8 ppbv였다. 비온난계절에서의 최솟값과 최댓값은 전체 기간의 패턴과 동일하게 서울과 제주 지역에서 24.8 ppbv와 44.8 ppbv였다. 특이점은 제주 지역에서의 온난계절과 비온난계절의 경향이 반대로 관측된 점이다. 제주 지역에서는 7월과 8월에 잦은 장마 및 태풍으로 일사가 차단되고 북태평양 기단의 세력 확장에 따라 해양으로부터 유입되는 깨끗한 공기의 영향으로 지표 오존 농도가 저하되기 때문에(Kim, 2003), 오존 월평균이 7, 8월에 연중 최하 수준을 보인 것으로 해석된다. 또한 제주 지역에서는 최소 표준편차를 보여 상대적으로 연평균의 변동이 적은 일정한 농도 경향을 보였다. 울산의 최솟값은 울산 지역에 집중된 석유화학 공단과 공단에서 배출되는 VOC와 같은 다량의 전구물질에 따른 것으로 설명할



**Fig. 3.** Time-series plots of ozone concentrations (ppbv) averaged for the warm (A: May~September) and cold (B: January~April and October~December) seasons by four types of regulatory monitoring sites (u.b: urban background; u.r: urban roadside; n.b: national background; r.b: regional background) from 2001~2019 in South Korea (dashed lines: average concentrations by four site types).

수 있다(Na *et al.*, 2001). 전구물질은 가스상 물질의 특성상 잘 확산하고 이들이 대기 중에서 기상 조건에 따라 반응할 시간이 필요하므로 오존의 생성 반응은 발생지역인 울산보다는 주변 지역에서 활발할 수 있다(Kim *et al.*, 2019). 울산지역의 오존과 VOC의 연평균을 탐색한 결과에서는 다른 지역에 비해 낮은 음의 상관성 (피어슨 상관계수 = -0.27~-0.43)을 보였다 (표 S4). 경상북도 지역에서 관찰된 높은 상관성 (-0.5~-0.72)은 여름철 해풍의 영향으로 울산지역에서 배출한 전구물질이 내륙으로 이동해서 영향을 미친 것으로 해석할 수 있다.

전구물질과 오존 사이의 음의 상관관계는 2010년 연평균 배출량 자료를 이용하여 산출한 산점도에서도 확인할 수 있었다(그림 4). 도로변 대기 측정소의 오

존 농도는 NO<sub>x</sub>나 VOCs 배출 총량과의 상관성에서 측정소로부터 10 km보다는 20 km 반경 내에서 더 큰 음의 상관관계(NO<sub>x</sub> 10 km 및 20 km: -0.44, -0.56; VOCs 10 km 및 20 km: -0.58, -0.66)를 보였다. 이는 도로변에서 많이 발생하는 전구물질이 주변으로 확산함에 따라 배출지역보다 외부 지역에서 오존 생성이 활발한 것으로 해석할 수 있다. NO<sub>2</sub>와 오존 농도의 상관성 또한 도로변 대기 측정소보다 도시 대기 측정소에서 높았다(그림 S11). NO<sub>2</sub>의 농도와 시도별 경향 비교에서도(그림 S12) 오존은 서울을 포함한 특별시/광역시 지역에서 낮고 그 외 특히 제주 지역에서 높았던 반면 NO<sub>2</sub>는 특별시/광역시에서 높은 농도를 보였고, 특히, 전북지역을 제외한 모든 지역에서 오존과 반대의 방향성을 보였다.



**Table 2.** Means (standard deviation) of maximum daily 8-h average ozone concentrations (ppbv) for 12 months and warm (May~September) and cold (January~April and October~December) seasons at urban background regulatory monitoring sites by 16 Metropolitan Cities and Provinces in South Korea for 2001~2019.

City/Province <sup>1)</sup>	N <sup>2)</sup>	Total	Warm season	Cold season
Seoul	25	32.3 (18.9)	42.6 (20.0)	24.8 (13.9)
Busan	20	37.9 (15.7)	42.3 (17.6)	34.8 (13.2)
Daegu	12	38.8 (19.1)	47.9 (19.9)	32.1 (15.3)
Incheon	17	34.9 (17.6)	43.0 (18.9)	29.1 (14.0)
Gwangju	7	37.8 (16.7)	44.3 (17.5)	33.1 (14.3)
Daejeon	10	37.0 (19.0)	46.0 (19.6)	30.5 (15.5)
Ulsan	16	36.9 (16.2)	41.3 (19.0)	33.8 (13.0)
Gyeonggi	80	36.3 (19.7)	47.2 (20.4)	28.4 (14.7)
Gangwon	17	39.6 (18.4)	47.7 (19.9)	33.7 (14.7)
Chung-buk	12	39.0 (19.9)	49.4 (20.1)	31.5 (16.0)
Chung-nam	27	40.4 (18.3)	48.7 (19.9)	34.2 (14.1)
Jeon-buk	22	38.2 (18.2)	44.6 (19.6)	33.5 (15.5)
Jeon-nam	24	40.7 (16.4)	44.6 (18.6)	37.8 (13.9)
Gyeong-buk	16	40.0 (17.4)	45.6 (19.3)	35.9 (14.6)
Gyeong-nam	23	42.5 (18.3)	49.8 (20.4)	37.2 (14.5)
Jeju	5	44.7 (15.0)	44.6 (17.5)	44.8 (12.9)
Total	333			

<sup>1)</sup>16 Metropolitan Cities and Provinces except for the Sejong City which was established in 2012.

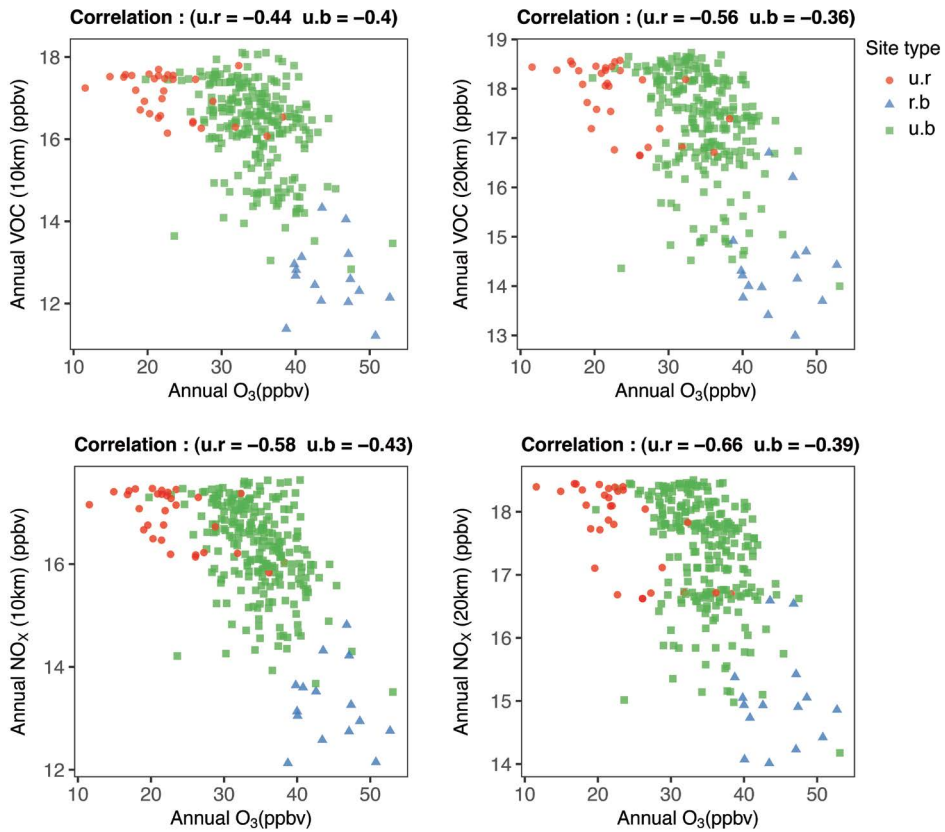
<sup>2)</sup>The number of urban background monitoring sites in each region in 2019. The total number of urban background monitoring sites is 333 which is different from 336 sites in Table 1 because the 3 monitoring sites are located in Sejong City.

그림 5의 베리오그램에서는 거리에 따라 두 측정소 간 오존 농도 차이를 나타내는 y축의 값이 증가하다가 어느 순간부터 일정해지는데, 이때의 거리는 공간적인 상관성이 존재하는 범위로 약 61 km로 추정되었다. 이를 통해 오존이 상당히 긴 거리에서 물리화학적인 반응 작용을 하는 2차 오염물질임을 알 수 있다. 우리나라의 도시 대기 측정소 간 거리는 2010년 기준 평균 31 km로, 특별시/광역시에서는 광주 지역을 제외하고 모두 10 km 내외이고, 도 지역은 대부분 40 km이며 경북, 강원 지역은 60 km가 넘는다(Yi *et al.*, 2016). 따라서, 측정소 간 거리의 한정적인 분포 경향을 고려할 때, 약 60 km 이전의 베리오그램 경향은 주로 특별시/광역시에 집중된 측정소들에서 관측된 오존 농도의 경향을 대변하게 된다. 표 2에서 확인한 바로는 특별시/광역시와 그 외의 도 지역의 전반적인 농도 차이가 존재했다. 따라서, 우리나라 전 지역의 공간적 상관성을 파악하고 이해하기 위해서는 도 지역과 특히 경북, 강원 지역에 추가적인 측정소 설치가 필요하다.

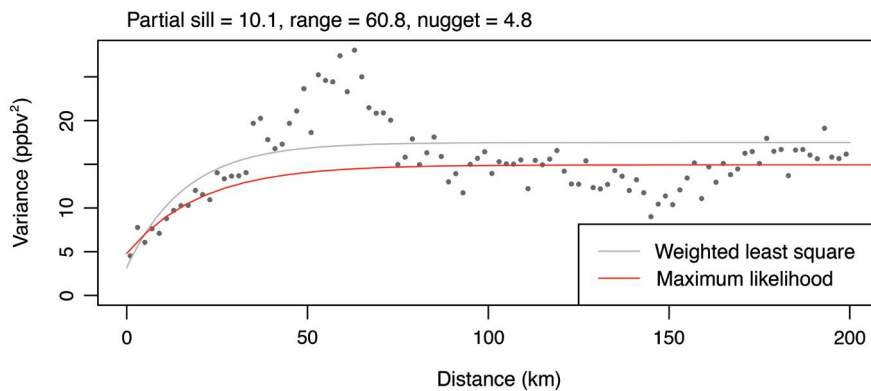
### 3.3 통계적 모형에 대한 제안

통계적인 방법으로 정확도 높은 시공간 예측모형을 구축하기 위해서는 현실 데이터의 특성을 잘 반영한 모형을 구축해야 한다. 본 연구는 오존의 시공간 탐색 결과를 통해 예측모형의 필수적인 정보인 시간적 경향, 공간적인 차이, 예측인자 등을 파악하였다.

본 연구의 오존 농도에 대한 시간적인 탐색에서는 과거 19년 동안 증가추세와 여름에 높고 겨울에 낮은 계절 경향을 보였다. 이러한 오존 농도의 뚜렷한 시간 경향은 향후 장기간 오존 농도 예측을 위한 시공간 예측모형에서 동일한 계절적인 시간 경향의 형태를 가질 수 있다. 지역이나 측정소 유형에 따라 관찰된 약간의 경향 차이는, 동일한 시간 경향에 대해 공간에 따른 차이를 부여하거나 추가적인 시간 경향을 포함할 수 있다. 또한, 기상변수 중 일사량이 오존과 가장 유사한 시간 경향을 보였기 때문에, 모형에서 오존의 시간적 변동을 설명하기 위해 일사량을 예측인자로 포함할 수 있겠다.



**Fig. 4.** Scatter plots of annual total VOC (ppbv) and NO<sub>x</sub> (ppbv) against the warm-season average of ozone concentrations (ppbv) and their correlation coefficients by three types of regulatory monitoring sites (u.b: urban background; u.r: urban roadside; and r.b: regional background) by two buffer sizes (10 and 20 km for left and right columns, respectively) in South Korea for 2010.



**Fig. 5.** Estimated variogram of 19-year warm-season average ozone concentrations at urban background regulatory monitoring sites in South Korea for 2001~2019.

오존 농도는 도시지역에서 낮고 비도시지역에서 높은 경향을 보였다. 특히 전구물질의 농도가 가장 높은 지역보다는 확산에 의한 반응으로 인근 지역에서 높은 오존 농도와 높은 전구물질과의 음의 상관성을 확인했다. 따라서 오존의 공간적인 차이를 설명하기 위해서는 지역 또는 전구물질과 관련한 예측인자를 포함해야 한다. 전구물질과 관련된 오염원을 파악하고 오염원을 대표할 수 있는 변수를 모형에 포함할 수 있겠다. 또한, 전구물질의 배출 자료를 예측변수로 이용할 때 거리에 따른 전구물질과 오존의 반응 패턴을 반영할 수 있는 모형을 구축해야 한다.

오존의 시공간적 경향은 오존의 대푯값에 따른 차이를 보였다. 시간적 패턴 분석에서 MDA8을 일 대푯값으로 사용했을 때 공간적인 농도 차이가 24시간 평균을 사용했을 때보다 작게 나타났다. 오존의 건강 영향을 평가하기 위해서는 공간적인 개개인의 오존 농도 차이와 그에 따른 건강 결과의 차이를 비교해야 하므로 이러한 공간적인 차이의 감소는 향후 건강 영향 분석에서 위험 추정치의 불확실성을 증가시킬 수 있다(Szpiro *et al.*, 2011). 따라서, 향후 정확한 오존의 건강 영향 평가를 위한 오존의 대푯값에 대한 논의가 필요하다.

#### 4. 결 론

본 연구는 지속적인 농도 증가와 최근 보고된 건강 영향으로 국제적인 연구 관심은 급격하게 증가하고 있으나 국내에서는 상대적으로 연구가 미흡한 대기오염물질인 오존에 집중해서, 향후 궁극적인 건강 영향 평가를 위한 노출 평가에 직접적으로 활용할 수 있는 탐색적인 결과를 제공하고자 했다. 20년에 가까운 기간 동안 약 400개 전국 측정소에서 측정된 우리나라 환경오염측정망 측정자료를 이용해서 시간 및 공간적인 경향을 탐색하고 기상 및 전구물질의 경향과 비교함으로써, 오존 농도 예측 모델 구축에 필수적인 정보인 시간 경향의 형태, 지역에 따른 차이, 공간상관

성의 정도, 예측인자로서 기상, 지역, 배출원의 역할을 파악하였다. 오존의 시간적인 탐색에서는 뚜렷한 계절적인 경향을 보였고 이 경향은 기상변수 중 일사량과 가장 유사하였다. 향후 예측모형에서 오존의 시간적인 경향에 대한 예측력을 높이기 위해서는 계절적인 경향을 반영하는 시간경향을 포함하고 일사량 등의 기상변수를 포함하는 것이 필요하다. 또한, 오존 농도의 공간 상관성이 상당히 긴 거리 내에서 존재하였고, 전구물질과 같은 지역 내에서 상관성이 낮았던 반면 근처 지역에서 상관성이 높아 오존의 특징적인 화학반응 결과를 보였다. 오존의 공간적인 예측력을 향상시키기 위해 이러한 공간상관성과 전구물질의 특성 역시 향후 예측모형에서 모수나 예측인자로 포함할 필요가 있다. 본 연구의 결과는 오존 관측값이 없는 개개인에 대해 예측농도를 제공하는 예측모형 구축과 예측력 향상에 기여하고, 향후 예측농도를 이용한 건강 영향 평가에서 정확도 높은 위험 정도를 파악하는데 기여할 것으로 기대된다.

#### 감사의 글

본 연구는 한국연구재단의 기초연구사업(과제번호: 2018R1A2B600460), 국립암센터의 공익적암연구사업(NCC-2110570), 환경부(환경보건센터)의 지원으로 수행되었습니다.

#### References

- Amann, M., Kiesewetter, G., Schöpp, W., Klimont, Z., Winiwarter, W., Cofala, J., Rafaj, P., Höglund-Isaksson, L., Gomez-Sabriana, A., Heyes, C., Purohit, P., Borken-Kleefeld, J., Wagner, F., Sander, R., Fagerli, H., Nyiri, A., Cozzi, L., Pavarini, C. (2020) Reducing global air pollution: the scope for further policy interventions, *Philosophical Transactions of the Royal Society A*, 378(2183), 20190331. <https://doi.org/10.1098/rsta.2019.0331>
- An, H.-J., Han, J.-H., Lee, M.-H., Kang, E.-H. (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). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2015.31.4.378>
- Anderson, G.B., Bell, M.L. (2010) Does one size fit all? The suitability of standard ozone exposure metric conversion ratios and implications for epidemiology, *Journal of Exposure Science & Environmental Epidemiology*, 20(1), 2-11.
- Bae, C.-H., Kim, B.-U., Kim, H.-C., Kim, S.-T. (2018) Quantitative assessment on contributions of foreign NO<sub>x</sub> and VOC emission to ozone concentrations over Gwangyang Bay with CMAQ-HDDM simulations, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(5), 708-726, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.5.708>
- Bogaert, P., Christakos, G., Jerrett, M., Yu, H.L. (2009) Spatiotemporal modelling of ozone distribution in the State of California, *Atmospheric Environment*, 43(15), 2471-2480. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2009.01.049>
- Bravo, M.A., Fuentes, M., Zhang, Y., Burr, M.J., Bell, M.L. (2012) Comparison of exposure estimation methods for air pollutants: ambient monitoring data and regional air quality simulation, *Environmental Research*, 116, 1-10. <https://doi.org/10.1016/j.envres.2012.04.008>
- Cakmak, S., Hebborn, C., Pinault, L., Lavigne, E., Vanos, J., Crouse, D.L., Tjepkema, M. (2018) Associations between long-term PM<sub>2.5</sub> and ozone exposure and mortality in the Canadian Census Health and Environment Cohort (CANHEC), by spatial synoptic classification zone, *Environment International*, 111, 200-211. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2017.11.030>
- Cressie, N.A.C. (1993) *Statistics for Spatial Data*, Wiley, New York.
- De Hoogh, K., Chen, J., Gulliver, J., Hoffmann, B., Hertel, O., Ketzel, M., Bauwelinck, M., van Donkelaar, A., Hvidtfeldt, U.A., Katsouyanni, K., Klompaker, J., Martin, R.V., Samoli, E., Schwartz, P.E., Stafoggia, M., Bellander, T., Strak, M., Wolf, K., Vienneau, D., Brunekreef, B., Hoek, G. (2018) Spatial PM<sub>2.5</sub>, NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub> and BC models for Western Europe - Evaluation of spatiotemporal stability, *Environment International*, 120, 81-92. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2018.07.036>
- Emery, C., Jung, J., Downey, N., Johnson, J., Jimenez, M., Yarwood, G., Morris, R. (2012) Regional and global modeling estimates of policy relevant background ozone over the United States, *Atmospheric Environment*, 47, 206-217. <http://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.11.012>
- Friberg, M.D., Zhai, X., Holmes, H.A., Chang, H.H., Strickland, M.J., Sarnat, S.E., Tolbert, P.E., Russell, A.G., Mulholland, J.A. (2016) Method for fusing observational data and chemical transport model simulations to estimate spatiotemporally resolved ambient air pollution, *Environmental Science & Technology*, 50, 3695-3705. <https://doi.org/10.1021/acs.est.5b05134>
- Frischer, T.M., Kuehr, J., Pullwitt, A., Meinert, R., Forster, J., Studnicka, M., Koren, H. (1993) Ambient ozone causes upper airways inflammation in children, *American Review of Respiratory Disease*, 148, 961-964. [https://doi.org/10.1164/ajrccm/148.4.Pt\\_1.961](https://doi.org/10.1164/ajrccm/148.4.Pt_1.961)
- Ghim, Y.-S., Oh, H.-S. (1999) Studies of High-Ozone Episodes in the Greater Seoul Area Between 1990 and 1997, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 15(3), 267-280, (in Korean with English abstract).
- Han, J.-H., Kim, H.-Y., Lee, M.-H., Kim, S.-Y., Kim, S.-W. (2013) Photochemical Air Pollution of Seoul in the Last Three Decades, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 29, 390-406, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2013.29.4.390>
- Jerrett, M., Burnett, R.T., Pope III, C.A., Ito, K., Thurston, G., Krewski, D., Thun, M. (2009) Long-term ozone exposure and mortality, *New England Journal of Medicine*, 360(11), 1085-1095. <https://doi.org/10.1056/NEJMoa0803894>
- Jeon, B.-I. (2014) Characteristics of ozone concentration weekend effect in Busan area, *Journal of Environmental Science International*, 23(5), 861-871, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5322/JESI.2014.5.861>
- Jeon, S.-H., Chae, C.-B., Park, J.-E., Young, S.-W. (2021) Analysis of ozone secondary pollution integrated management in Seoul due to emissions reduction during heat wave episodes, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 37(4), 612-625, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.4.612>
- Jung, S.-Y., Kim, K.-H., Kim, D.-H., Cho, S.-J., Kim, M.-Y. (2009) A long-term study on ozone concentration profiles in roadside and residential locations in Seoul, Korea, *Journal of the Korean Society for Environmental Analysis*, 12(3), 204-220, (in Korean with English abstract).
- Kang, Y.-H., Oh, I.-B., Jeong, J.-H., Bang, J.-H., Kim, Y.-K., Kim, S.-T., Kim, E.-H., Hong, J.-H., Lee, D.-G. (2016) Comparison of CMAQ Ozone Simulation with Two Chemical Mechanisms (SAPRC99 and CB05) in the Seoul Met-

- ropolitan Region, *Journal of Environmental Science International*, 25(1), 85-97, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5322/JESI.2016.25.1.85>
- Kang, Y.-H., Kim, Y.-K., Hwang, M.-K., Jeong, J.-H., Kim, H.S., Kang, M.-S. (2019) Spatial-temporal variations in surface ozone concentrations in Busan metropolitan area, *Journal of Environmental Science International*, 28(2), 169-182, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5322/JESI.2019.28.2.169>
- Kazemiparkouhi, F., Eum, K.D., Wang, B., Manjourides, J., Suh, H.H. (2020) Long-term ozone exposures and cause-specific mortality in a US Medicare cohort, *Journal of Exposure Science & Environmental Epidemiology*, 30(4), 650-658. <https://doi.org/10.1038/s41370-019-0135-4>
- Kim, D.-H., Son, Y.-S. (2020) Spatial-temporal variations in air pollution in busan metropolitan city (2020~2018), *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(3), 309-328. <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.3.309>
- Kim, D.-J. (2003) The characteristics of temporal and spatial distribution of ambient air ozone concentration in Jeju island, Cheju National University.
- Kim, J.-H., Ghim, Y.-S., Han, J.-S., Park, S.-M., Shin, H.-J., Lee, S.-B., Kim, J.-S., Lee, G.-W. (2018) Long-term trend analysis of Korean air quality and its implication to current air quality policy on ozone and PM<sub>10</sub>, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(1), 1-15. <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.1.001>
- Kim, S.-J., Kwon, H.-O., Lee, M.-I., Seo, Y.-W., Choi, S.-D. (2019) Spatial and temporal variations of volatile organic compounds using passive air samplers in the multi-industrial city of Ulsan, *Environmental Science and Pollution Research*, 26(6), 5831-5841. <https://doi.org/10.1007/s11356-018-4032-5>
- Kim, S.-T. (2011) Ozone simulations over the Seoul Metropolitan Area for a 2007 June episode, part V: Application of CMAQ-HDDM to predict ozone response to emission change, *Journal of Environmental Science International*, 27(6), 772-790, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2011.27.6.772>
- Kim, S.-Y., Kim, E., Kim, W.-J. (2020) Health effect of ozone on respiratory diseases, *Tuberculosis and Respiratory Diseases*, 83(Supple 1), S6-S11. <https://doi.org/10.4046/trd.2020.0154>
- Kim, S.-Y., Sheppard, L., Larson, T.V., Kaufman, J.D., Vedal, S. (2015) Combining PM<sub>2.5</sub> component data from multiple sources: data consistency and characteristics relevant to epidemiological analyses of predicted long-term exposures, *Environmental Health Perspectives*, 123(7), 651-658. <https://doi.org/10.1289/ehp.1307744>
- Kim, Y.-P., Yeo, M.-J. (2013) The trend of the concentrations of the criteria pollutants over seoul, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 29(4), 369-377, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2013.29.4.369>
- Kinney, P.L., Ware, J.H., Spengler, J.D. (1988) A critical evaluation of acute ozone epidemiology results, *Archives of Environmental Health*, 43(2), 168-173. <https://doi.org/10.1080/00039896.1988.9935847>
- Kinney, P.L., Özkaynak, H. (1991) Associations of daily mortality and air pollution in Los Angeles County, *Environmental Research*, 54(2), 99-120. [https://doi.org/10.1016/S0013-9351\(05\)80094-5](https://doi.org/10.1016/S0013-9351(05)80094-5)
- Korea Environment Institute (KEI) (2010) Climate change and air pollution effects on environmentally related disease Interactive effects of temperature and ozone on environmentally related disease RE 2010-06.
- Korea Meteorological Administration (KMA) <http://data.kma.go.kr> (assessed on 2021.12.10).
- Lee, H.-K., Choi, E.-L., Lee, H.-J., Lee, S.-Y., Lee, J.-Y. (2020b) Study on the Seasonal Correlation between O<sub>3</sub> and PM<sub>2.5</sub> in Seoul in 2017, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(4), 553-542. <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.4.533>
- Lee, J.-H., Choi, S.-W. (2006) A study on the ozone generation characteristics by using correlation analysis in Daegu, *Korean Society of Environmental Engineers*, 12, 692-698.
- Lee, G.-W., Park, J.-H., Kim, D.-G., Koh, M.-S., Lee, M.-H., Han, J.-S., Kim, J.-C. (2020a) Current status and future directions of tropospheric photochemical ozone studies in Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(4), 419-441, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.4.419>
- Lippmann, M. (1993) Health effects of tropospheric ozone: review of recent research findings and their implications to ambient air quality standards, *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology*, 3, 103-129.
- Malmqvist, E., Olsson, D., Hagenbjörk-Gustafsson, A., Forsberg, B., Mattisson, K., Strohm, E., Strömgren, M., Swietlicki, E., Rylander, L., Hoek, G., Tinnerberg, H., Modig, L. (2014) Assessing ozone exposure for epidemiological studies in Malmö and Umeå, Sweden, *Atmospheric Environment*, 94, 241-248. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.05.038>



- Ministry Of Environment (MOE) (2019) Annual report of air quality in Korea.
- Monks, P.S. (2000) A review of the observations and origins of the spring ozone maximum, *Atmospheric Environment*, 34(21), 3545-3561. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(00\)00129-1](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(00)00129-1)
- Na, K.-S., Kim, Y.-P., Moon, K.-C., Moon, I., Fung, K. (2001) Concentrations of volatile organic compounds in an industrial area of Korea, *Atmospheric Environment*, 35(15), 2747-2756. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(00\)00313-7](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(00)00313-7)
- Nagashima, T., Ohara, T., Sudo, K., Akimoto, H. (2010) The relative importance of various source regions on East Asian surface ozone, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(22), 11305-11322. <https://doi.org/10.5194/acp-10-11305-2010>
- Nuvolone, D., Balzi, D., Pepe, P., Chini, M., Scala, D., Giovannini, F., Cipriani, F., Barchielli, A. (2013) Ozone short-term exposure and acute coronary events: a multicities study in Tuscany (Italy), *Environmental Research*, 126, 17-23. <https://doi.org/10.1016/j.envres.2013.08.002>
- Oh, S.-H., Hwang, S.-M., Jo, J.-C., Shin, D.-S., Kim, W.-S. (2009) Seasonal variations of ozone and high ozone episodes at Seokmo-ri background site, *Atmospheric Environment*, 5, 413-415.
- Ostro, B.D., Lipsett, M.J., Mann, J.K., Krupnick, A., Harrington, W. (1993) Air pollution and respiratory morbidity among adults in Southern California, *American Journal of Epidemiology*, 137(7), 691-700. <https://doi.org/10.1093/oxfordjournals.aje.a116729>
- Romieu, I., Lugo, M.C., Velasco, S.R., Sanchez, S., Meneses, F., Hernandez, M. (1992) Air pollution and school absenteeism among children in Mexico City, *American Journal of Epidemiology*, 136(12), 1524-1531. <https://doi.org/10.1093/oxfordjournals.aje.a116474>
- Sahu, S.K., Bakar, K.S. (2012) Hierarchical Bayesian autoregressive models for large space-time data with applications to ozone concentration modelling, *Applied Stochastic Models Business Industry*, 28, 395-415. <https://doi.org/10.1002/asmb.1951>
- Seo, J., Youn, D., Kim, J.Y., Lee, H. (2014) Extensive spatiotemporal analyses of surface ozone and related meteorological variables in South Korea for the period 1999-2010, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 6395e6415. <https://doi.org/10.5194/acp-14-6395-2014>
- Shin, H.J., Cho, K.M., Han, J.S., Kim, J.S., Kim, Y.P. (2012) The effects of precursor emission and background concentration changes on the surface ozone concentration over Korea, *Aerosol Air Quality Research*, 12, 93e103. <https://doi.org/10.4209/aaqr.2011.09.0141>
- Trainer, M., Williams, E.J., Parrish, D.D., Buhr, M.P., Allwine, E.J., Westberg, H.H., Fehsenfeld, F.C., Liu, C.S. (1987) Models and observations of the impact of natural hydrocarbons on rural ozone, *Nature*, 329, 705-707.
- Thurston, G.D., Ito, K., Kinney, P.L., Lippmann, M. (1992) A multi-year study of air pollution and respiratory hospital admissions in three New York State metropolitan areas results for 1988 and 1989 summers, *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology*, 2(4), 429-450.
- Turner, M.C., Jerrett, M., Pope III, C.A., Krewski, D., Gapstur, S.M., Diver, W.R., Beckerman, B.S., Marshall, J.D., Su, J., Crouse, D.L., Burnett, R.T. (2016) Long-term ozone exposure and mortality in a large prospective study, *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine*, 193(10), 1134-1142. <https://doi.org/10.1164/rccm.201508-1633OC>
- U.S. Environmental Protection Agency (U.S. EPA) (1998) Guideline on data handling conventions for the 8-hour ozone NAAQS. [https://www3.epa.gov/ttn/naaqs/aqmguide/collection/cp2\\_old/19981201\\_oaqs\\_epa-454\\_r-99-017.pdf](https://www3.epa.gov/ttn/naaqs/aqmguide/collection/cp2_old/19981201_oaqs_epa-454_r-99-017.pdf)
- U.S. Environmental Protection Agency (U.S. EPA) (2006) Air quality criteria for ozone and related photochemical oxidants. EPA/600/R-05/004aF-cF.
- U.S. Environmental Protection Agency (U.S. EPA) (2008) Risk and Exposure Assessment to Support the Review or the NO<sub>2</sub> Primary National Ambient Air Quality Standard. Research Triangle Park, NCOffice of Air Quality Planning and Standards, U.S. Environmental Protection Agency Available: [https://www3.epa.gov/ttn/naaqs/standards/nox/data/20081121\\_NO2\\_REA\\_final.pdf](https://www3.epa.gov/ttn/naaqs/standards/nox/data/20081121_NO2_REA_final.pdf)
- U.S. Environmental Protection Agency (U.S. EPA) (2013) Integrated Science Assessment for Ozone and Related Photochemical Oxidants." EPA 600/R-10/076F.
- U.S. Environmental Protection Agency (U.S. EPA) (2016) Air trends report <https://gispub.epa.gov/air/trendsreport/2016/>
- U.S. Environmental Protection Agency (U.S. EPA) (2020) Integrated science assessment for ozone and related photochemical oxidants. EPA/600/R-20/012.
- Wang, M., Keller, J.P., Adar, S.D., Kim, S.Y., Larson, T.V., Olives, C., Sampson, P.D., Sheppard, L., Szpiro, A.A., Vedal, S., Kaufman, J.D. (2015) Development of long-term spatiotemporal models for ambient ozone in six metropolitan regions of the United States: the MESA Air study. *Atmospheric Environment*, 123, 79-87. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.10.042>

- Wang, M., Sampson, P.D., Hu, J., Kleeman, M., Keller, J.P., Olives, C., Szpiro, A.A., Vedal, S., Kaufman, J.D. (2016) Combining land-use regression and chemical transport modeling in a spatiotemporal geostatistical model for ozone and PM<sub>2.5</sub>, *Environmental Science & Technology*, 50(10), 5111-5118. <https://doi.org/10.1021/acs.est.5b06001>
- Yahya, K., He, J., Zhang, Y. (2015) Multiyear applications of WRF/Chem over continental US: Model evaluation, variation trend, and impacts of boundary conditions, *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 120, 12748-12777. <https://doi.org/10.1002/2015JD023819>
- Yeo, M.J., Kim, Y.P. (2021) Long-term trends of surface ozone in Korea, *Journal of Cleaner Production*, 294, 125352. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2020.125352>
- Yi, S.-J., Kim, H., Kim, S.-Y. (2016) Exploration and application of regulatory PM<sub>10</sub> measurement data for developing

long-term prediction models in South Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 32(1), 114-126, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2016.32.1.114>

## Authors Information

- 정몽주 (서울대학교 통계학과 박사수료) (kery0610@naver.com)
- 김우진 (강원대학교 의과대학 호흡기내과 및 환경보건센터 교수) (pulmo2@kangwon.ac.kr)
- 허종배 (부산연구원 해양·관광연구실 연구위원) (jongbaeho@gmail.com)
- 김선영 (국립암센터 국제암대학원대학교 암관리학과 부교수) (sykim@ncc.re.kr)

Supplementary Materials

오존 대푯값에 대한 논의

1979년 미국 환경보호청은 오존의 건강 기반 기준으로 일일 최대 1시간 평균을 사용하였다. 하지만, 낮은 오존 수치 또한 인간의 건강에 영향을 미치며 평균 시간이 길수록 오존 노출에 대한 건강 영향을 더 정확하게 반영한다는 연구 결과가 나오자 1997년 일일 최대 8시간 평균치를 규제하기 위해 기준을 개정했다(U.S. EPA, 2006). “일일 최대 1시간 평균(maximum daily 1-h average; MDA1)”과 “일일 최대 8시간 평균(maximum daily 8-h average; MDA8)”은 오존 농도의 일일 측정값 중 최댓값과 연속된 8시간의 평균값 중 최댓값으로 계산된다(U.S. EPA, 1998). 국내/국의 역학 연구에서도 대부분 MDA8와 MDA1을 사용하였고 일부 연구에서 24시간 평균값을 사용하였다(Yeo and Kim, 2021; Kazemiparkouhi *et al.*, 2020; Turner *et al.*, 2016; Wang *et al.*, 2016; Seo *et al.*, 2014). 또한 연 대푯값에 대해서도, 대부분의 국외 연구에서는 연중 온난계절(warm-season)을 정하고 그 기간에서의 일일 대푯값의 평균값을 산출하였다(표 S2). 본 연구에서 오존의 일별 대푯값으로 MDA8을 사용하였고, 연 대푯값으로 5월부터 9월까지의 일 대푯값의 평균을 사용하였다. 5월부터 9월까지를 온난계절로 선정한 이유는 크게 두 가지가 있다. 우선, 세 가지의 다양한 온난계절 후보 기간들로 4~9월, 4~6월, 6~8월을 선정하여 해당 기간에 일사량과의 상관관계(correlation)를 확인해보았다. 상관성을 탐색한 결과 다음 표와 같이 5월에서 9월까지의 도시 대기 측정소 자료를 사용했을 때 일사량과 가장 높은 상관계수의 평균이 관측되었다.

그리고 2001년, 2010년과 2019년 별 5~9월 온난계절 도시 대기 측정소별 평균값과 각 후보 온난계절인 4~6월, 4~9월, 6~8월 평균값의 비교 결과 전반적으로 비슷한 상관성을 보여, 온난계절의 정의에 따른

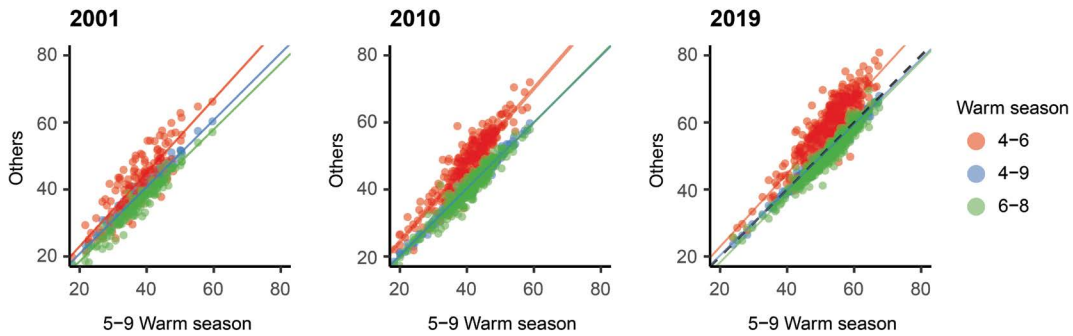
평균 농도의 차이는 크지 않은 것으로 확인하였다.

따라서, 각 후보끼리의 오존 농도 분포는 비슷하지만, 그중 일사량 요인과 높은 연관성을 보였던 5월부터 9월까지의 기간을 온난계절로 정의하였다.

이러한 대푯값을 사용하여 얻게 된 결과를 통해 향후 오존의 시공간적인 분석을 위한 논의 점들을 몇 가지 제시하고자 한다. 환경부에서 대기오염물질들의 대기환경기준 초과를 판단할 때 사용하는 일별 대푯값으로써 다른 오염물질은 24시간 평균이 사용되지만, 오존은 8시간/1시간 최댓값이 사용된다. 또한, 연 대푯값으로는 대개 온난계절 기간에서의 농도 평균값을 이용하지만, 연구마다 온난계절이 다르게 정의된다. 실제로 미국의 건강 영향에 대한 역학 연구에서는 이러한 오존의 특성을 반영하여 다수의 오존 측정소가 겨울에는 운영하지 않기 때문에 주로 4월에서 9월까지의 평균값을 연 대푯값으로 사용하였다(Jerrett *et al.*, 2009). 국내의 선행 연구 중 다수가 연 대푯값을 위해 12개의 월 자료를 이용한 평균과 백분위 수 등을 사용한 가운데(Kim and Son, 2020; Kang, 2019; An *et al.*, 2015; Han *et al.*, 2013) Jung *et al.* (2009)에서는 5월에서 9월까지를 대부분의 고농도가 발생하는 오존월로 정의하였다. 공간 변화 추세의 지역별 결과(표 2)에서 볼 수 있듯이 제주 지역에서는 비온난계절에서의 평균값이 더 높게 관측되었다. 이처럼 지역별로 7, 8월의 여름 강수의 영향에 차이가 있어 평균적으로 볼 땐 온난계절의 의미가 지역에 따라 다소 모순적일 수 있다. 하지만, 오존은 고농도에

Yearly	Temperature	Humidity	Sunlight	Solar radiation
24-months	0.25	0.22	0.28	0.25
5~9 <sup>1)</sup>	0.35	-0.07	0.55	0.41
4~6	0.33	-0.15	0.47	0.37
4~9	0.33	-0.03	0.52	0.37
6~8	0.36	-0.11	0.46	0.34

<sup>1)</sup>yearly metric that we choose to use.



**Table S1.** Air quality standards and accomplishment rates by eight pollutants in 2019.

Pollutants	Number of sites (valid <sup>1)</sup> )	Metric	Air quality standard	Accomplishment rate (%)
O <sub>3</sub>	405 (367)	8 hour	0.06 ppm	0.0
		1 hour	0.1 ppm	12.0
NO <sub>2</sub>	405 (366)	Annual average	0.03 ppm	94.5
		24 hour	0.06 ppm	90.7
		1 hour	0.1 ppm	97.3
PM <sub>10</sub>	405 (366)	Annual average	50 µg/m <sup>3</sup>	94.5
		24 hour	100 µg/m <sup>3</sup>	26.8
PM <sub>2.5</sub>	400 (361)	Annual average	15 µg/m <sup>3</sup>	1.9
		24 hour	35 µg/m <sup>3</sup>	0.0
CO	401 (362)	8 hour	9 ppm	100.0
		1 hour	25 ppm	100.0
Pb	57 (54)	Annual average	0.5 µg/m <sup>3</sup>	100.0
Benzene	38 (35)	Annual average	5 µg/m <sup>3</sup>	100.0
SO <sub>2</sub>	402 (364)	Annual average	0.02 ppm	100.0
		24 hour	0.05 ppm	100.0
		1 hour	0.15 ppm	100.0

<sup>1</sup>Valid sites mean sites with over 75% (6570) of the total number of hours per year (8760).

집중하는 물질이기 때문에 고농도가 발생하는 일 수에 따라 여름 강수 기간인 7, 8월을 온난계절에 포함하는 것이 더 의미가 있을 수 있다. 이처럼 국내에서 온난계절을 정의할 때 여름철 강수가 몰려있는 7, 8월을 온난계절에 포함할지 국내 오존 상황과 분석에서 사용하는 오존 메트릭을 반영한 추가적인 논의가 필요하다.

## 대기오염 및 기상자료 가공 시 특이점

Airkorea에서 얻은 대기오염 자료와 기상자료 개방 포털에서 얻은 기상자료는 모두 시간별로 측정된 값이다. 다만, 동일 날짜의 첫 시간별 관측치가 대기오염 자료는 01시 기상자료는 00시로 코딩됨을 확인하였다. 즉, 대기오염 자료는 대부분 하루 24개 측정

**Table S2.** List of ozone metrics representing long-term exposure in previous studies.

	Study	Metric	Country
1	Jerrett <i>et al.</i> , 2009	Warm-season (Apr~Sep) average of MDA1	USA
2	Turner <i>et al.</i> , 2016	Annual average Warm-season average of MDA8	USA
3	Kazemparkouhi <i>et al.</i> , 2020	Warm-season average of MDA1 Warm-season average of MDA8 Warm-season average of 24-h average	USA
4	Cakmak <i>et al.</i> , 2018	Warm-season (May~Oct) average MDA8	Canada
5	Friberg <i>et al.</i> , 2016	Annual average of MDA8	USA
6	Yahya <i>et al.</i> , 2015	Annual average of MDA8 Annual average of MDA1	USA
7	Bravo <i>et al.</i> , 2012	Warm-season average of MDA8	USA
8	Emery <i>et al.</i> , 2012	Annual 4 <sup>th</sup> highest of MDA8	USA
9	Sahu and Bakar, 2012	Annual 4 <sup>th</sup> highest of MDA8 from May to Sep 3-year rolling average of the annual 4 <sup>th</sup> highest	USA

**Table S3.** Means(standard deviation) of ozone concentrations (ppbv) of maximum daily 1-h averages (MDA1) and 24-h averages (24-h avg) for 12 months, warm season (May~September), and cold season (January~April and October~December) at urban background regulatory monitoring sites by 8 Metropolitan Cities and 8 Provinces in South Korea by five different years from 2001 to 2019.

MDA1	Averaging period	2001	2005	2010	2015	2019
(ppbv)						
South Korea	Annual	39.3 (19.5)	40.5 (19.0)	42.3 (19.8)	48.5 (21.8)	52.0 (21.9)
	Warm	47.1 (21.3)	47.5 (21.8)	51.1 (23.2)	61.4 (21.1)	62.3 (24.2)
	Cold	33.5 (15.6)	35.4 (14.7)	36.1 (14.0)	39.3 (17.0)	43.8 (15.5)
8 Metropolitan Cities	Annual	37.7 (19.2)	40.3 (19.3)	42.0 (19.4)	47.1 (20.9)	49.7 (20.7)
	Warm	45.6 (20.9)	47.7 (22.2)	50.2 (22.6)	59.3 (20.6)	59.2 (22.9)
	Cold	31.8 (15.5)	34.8 (14.5)	36.1 (13.9)	38.4 (16.3)	42.2 (15.0)
8 Provinces	Annual	40.9 (19.6)	40.7 (18.8)	42.6 (20.1)	49.5 (22.3)	53.0 (22.3)
	Warm	48.6 (21.7)	47.4 (21.5)	51.8 (23.6)	62.8 (21.3)	63.7 (24.6)
	Cold	35.2 (15.6)	35.8 (14.8)	36.1 (14.0)	39.8 (17.4)	44.5 (15.7)
(ppbv)						
24-h avg	Averaging period	2001	2005	2010	2015	2019
(ppbv)						
South Korea	Annual	20.0 (11.1)	21.0 (10.9)	22.6 (11.9)	26.7 (13.0)	30.2 (14.4)
	Warm	23.2 (11.0)	23.6 (10.9)	26.3 (12.8)	33.9 (11.9)	36.6 (14.6)
	Cold	17.6 (10.5)	19.1 (10.5)	19.9 (10.4)	21.5 (11.2)	25.1 (12.1)
8 Metropolitan Cities	Annual	18.7 (10.8)	20.7 (10.9)	22.6 (11.9)	26.1 (12.5)	29.1 (13.8)
	Warm	21.9 (10.7)	23.5 (11.1)	25.9 (12.6)	32.8 (11.3)	34.9 (13.9)
	Cold	16.3 (10.3)	18.7 (10.3)	20.2 (10.8)	21.3 (11.0)	24.6 (12.0)
8 Provinces	Annual	21.2 (11.2)	21.2 (10.9)	22.6 (11.9)	27.1 (13.3)	30.7 (14.6)
	Warm	24.5 (11.2)	23.8 (10.8)	26.6 (13.0)	34.6 (12.2)	37.3 (14.8)
	Cold	18.8 (10.5)	19.4 (10.6)	19.7 (10.2)	21.6 (11.3)	25.3 (12.1)

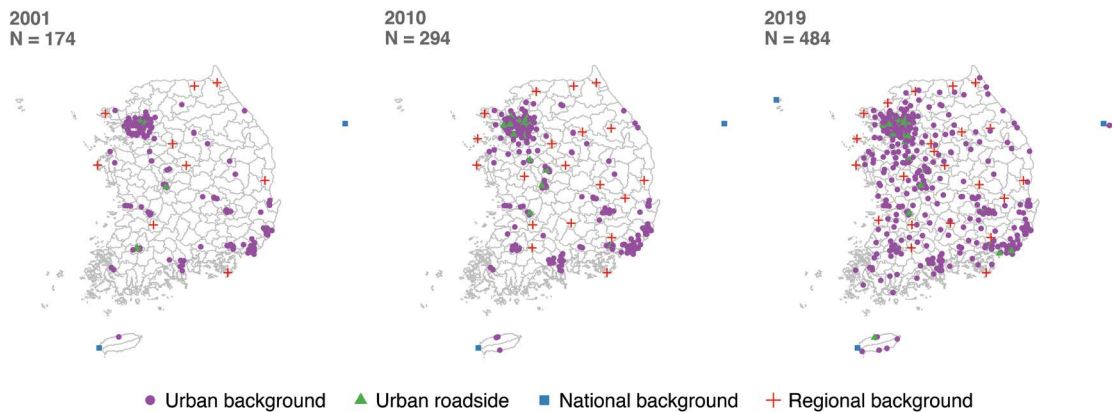


값의 시간정보를 01-24로, 기상자료는 00-23으로 표기가 되어있어 두 시간정보를 동일한 방식으로 통일한 후 자료의 병합이 가능하였다. 또한, 일시적으로

2004년 2분기 대기오염 자료에서도 기상자료와 같은 00-23시 체계로 코딩되어 있어서 추가적인 전처리 과정이 필요하였다.

**Table S4.** Correlation coefficients between scaled VOC/NO<sub>x</sub> and scaled O<sub>3</sub> by 16 Metropolitan Cities and Provinces in South Korea for 2010.

	N	Scaled VOC (3 km)	Scaled VOC (10 km)	Scaled VOC (20 km)	Scaled NO <sub>x</sub> (3 km)	Scaled NO <sub>x</sub> (10 km)	Scaled NO <sub>x</sub> (20 km)
Seoul	37	-0.23	-0.38	-0.08	-0.35	-0.4	-0.18
Busan	19	-0.59	-0.63	-0.48	-0.7	-0.61	-0.56
Daegu	13	-0.53	-0.47	-0.34	-0.62	-0.47	-0.34
Incheon	18	-0.71	-0.77	-0.65	-0.72	-0.75	-0.62
Gwangju	9	-0.79	-0.76	-0.12	-0.64	-0.58	-0.18
Daejeon	9	-0.55	0.35	0.08	-0.47	0.25	0.1
Ulsan	14	-0.27	-0.43	-0.35	-0.43	-0.46	-0.41
Gyeonggi	73	-0.57	-0.55	-0.44	-0.61	-0.56	-0.47
Gangwon	11	-0.81	-0.76	-0.83	-0.64	-0.62	-0.48
Chungbuk	9	-0.84	-0.65	-0.49	-0.82	-0.7	-0.75
Chungnam	9	-0.33	-0.32	-0.47	-0.51	-0.45	-0.31
Jeonbuk	11	-0.14	0.2	0.32	-0.29	0.01	0.21
Jeonnam	15	-0.16	-0.16	-0.27	-0.45	-0.36	-0.2
Gyeongbuk	14	-0.72	-0.66	-0.5	-0.67	-0.65	-0.53
Gyeongnam	19	-0.17	0.14	0.25	-0.21	-0.03	0.15
Jeju	3	-0.83	-0.93	-0.94	-0.94	-0.93	-0.93



**Fig. S1.** Maps of all regulatory monitoring sites (before the application of site inclusion criteria for our temporal and spatial exploration) by four site types in South Korea in 2001, 2010 and 2019.

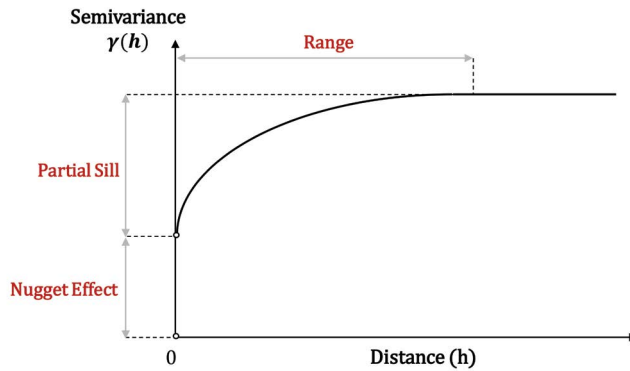


Fig. S2. Visualization of three covariance parameters (range, partial sill, and nugget) of variogram.

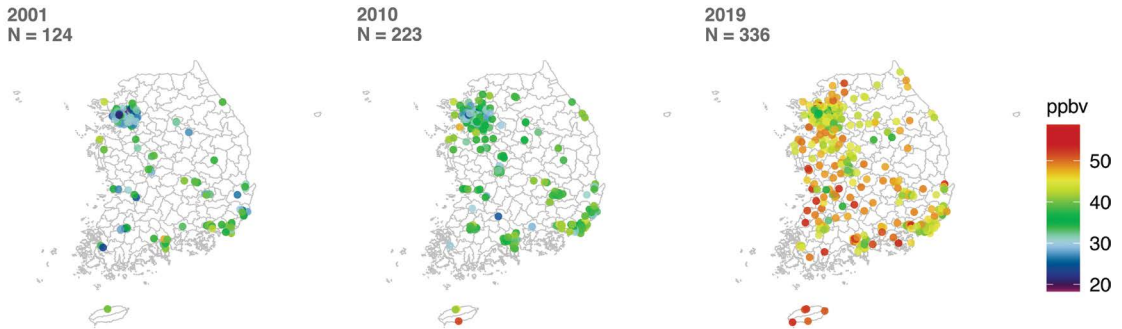


Fig. S3. Maps of average ozone concentrations (ppbv) for 12 months at urban background regulatory monitoring sites in South Korea in 2001, 2010, and 2019.

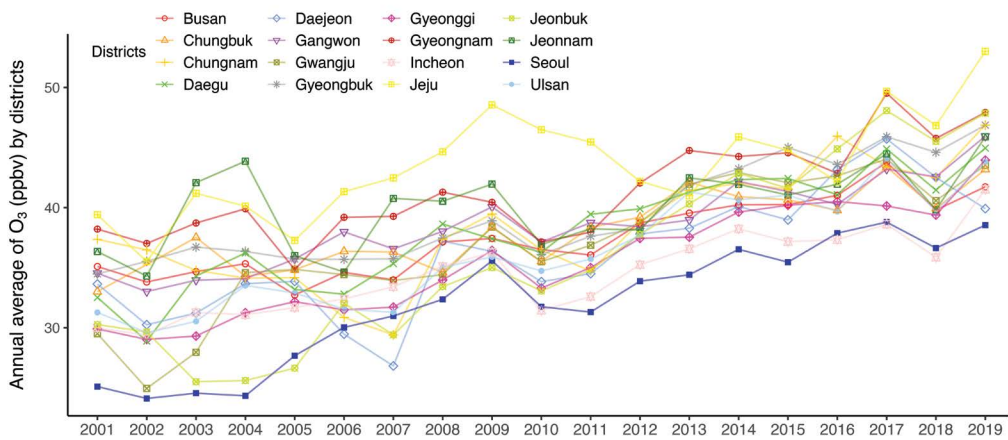
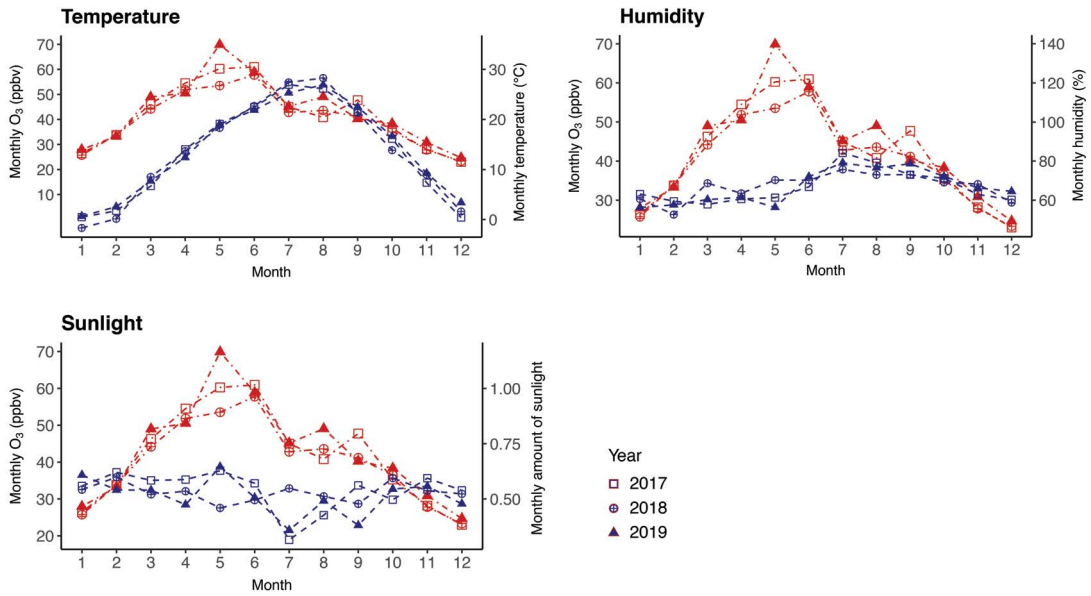
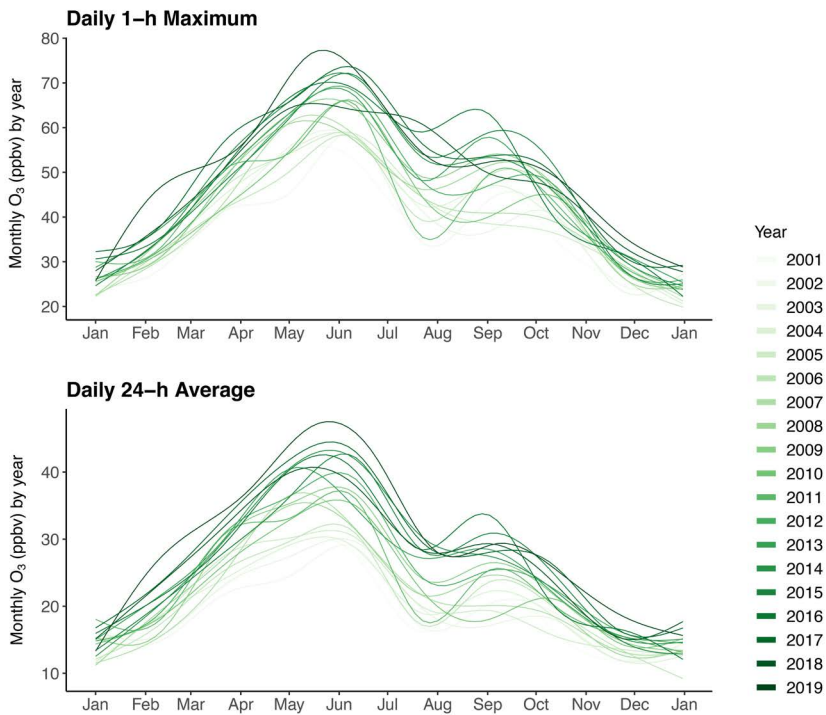


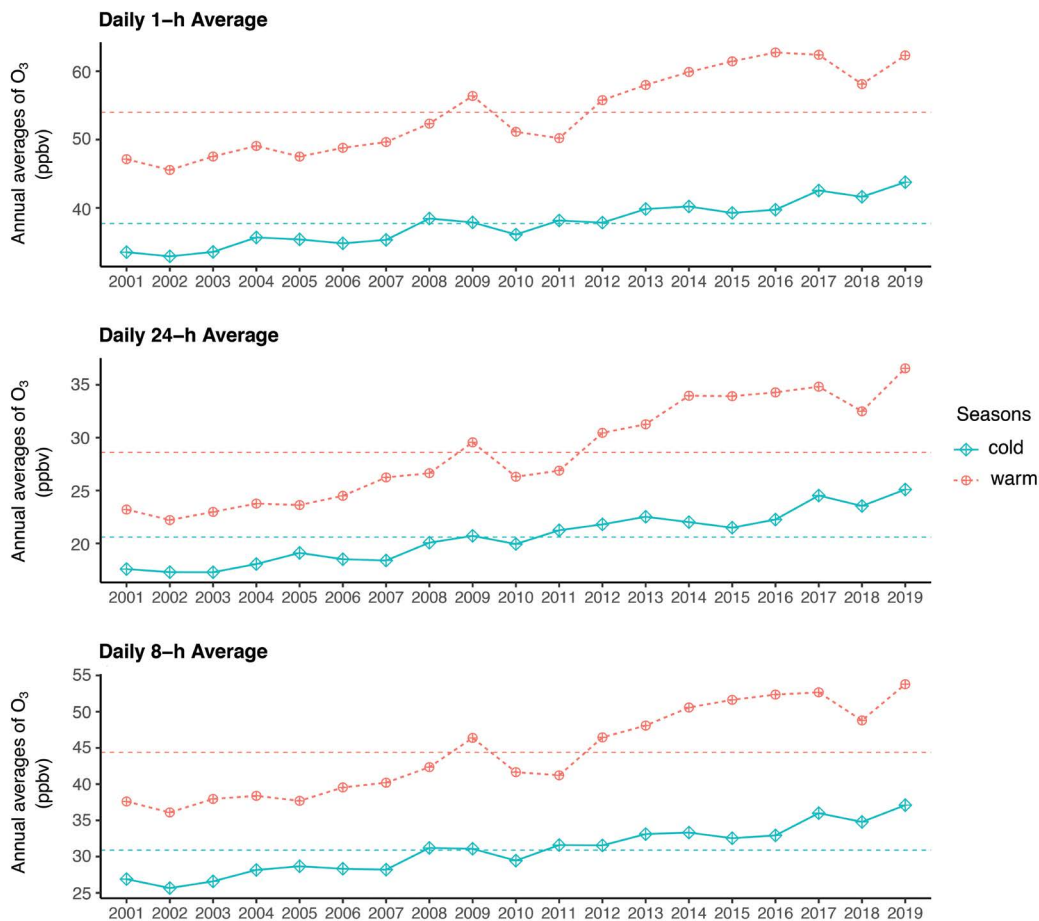
Fig. S4. Annual trends of annual average concentrations (ppbv) of maximum daily 8-h average of ozone at urban background monitoring network sites by 16 Metropolitan Cities and Provinces in South Korea from 2001 to 2019.



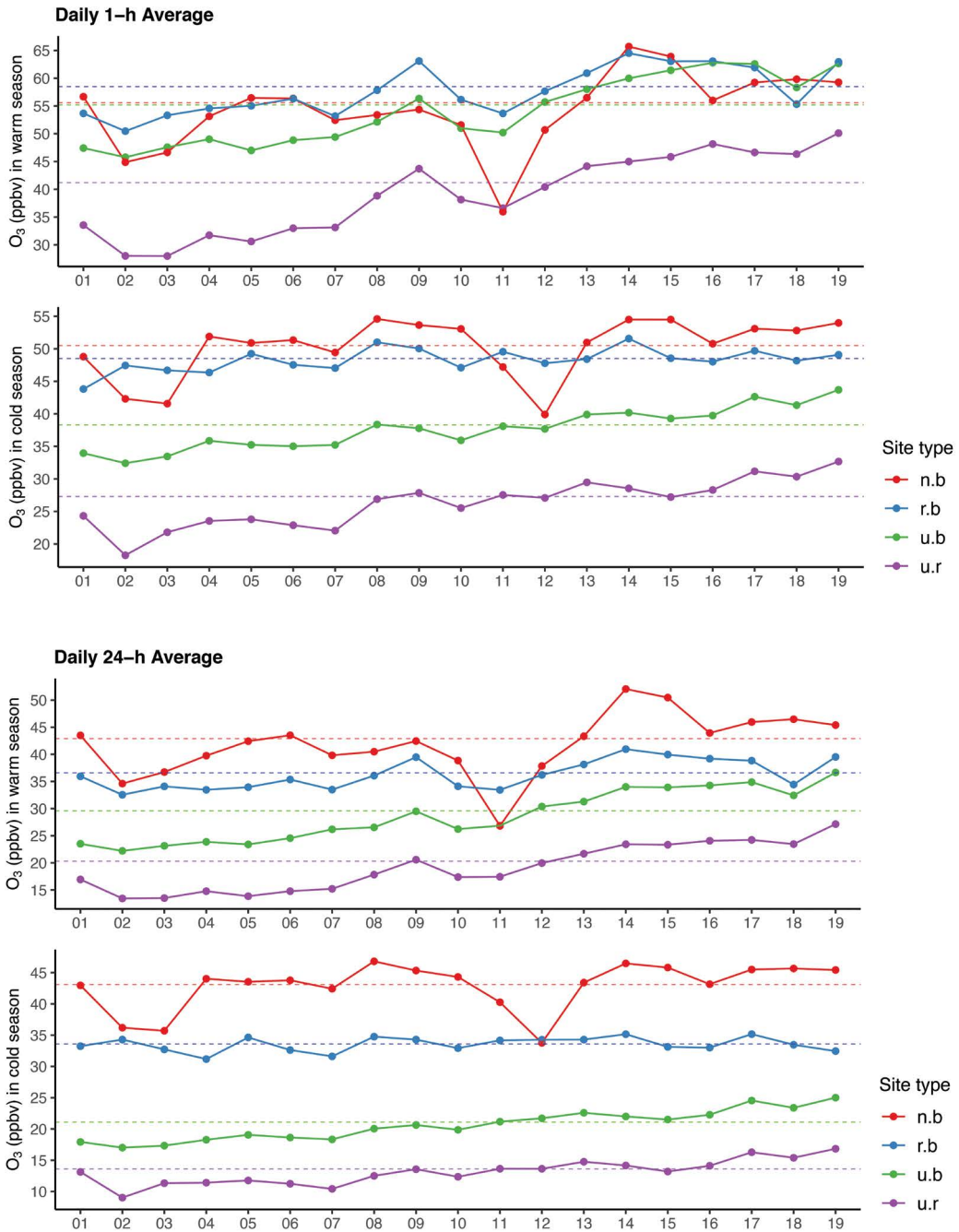
**Fig. 55.** Time-series plots of monthly averages of maximum daily 8-h average ozone concentrations (in red) and temperature, humidity and sunlight (in blue) by the year of 2017, 2018 and to 2019 in South Korea.



**Fig. 56.** Time-series plots of monthly averages of maximum daily 1-h average and 24-h average ozone concentrations (ppbv) at urban background monitoring sites by 2001 to 2019 in South Korea.

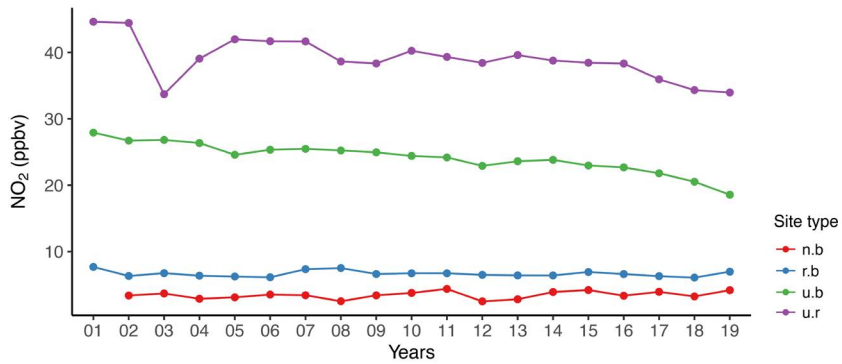


**Fig. S7.** Time-series plots of annual averages of maximum daily 8-h average, 24-h average, and maximum daily 1-h average of ozone concentrations (ppbv) across urban background monitoring network sites by the warm and cold seasons in South Korea from 2001 to 2019.

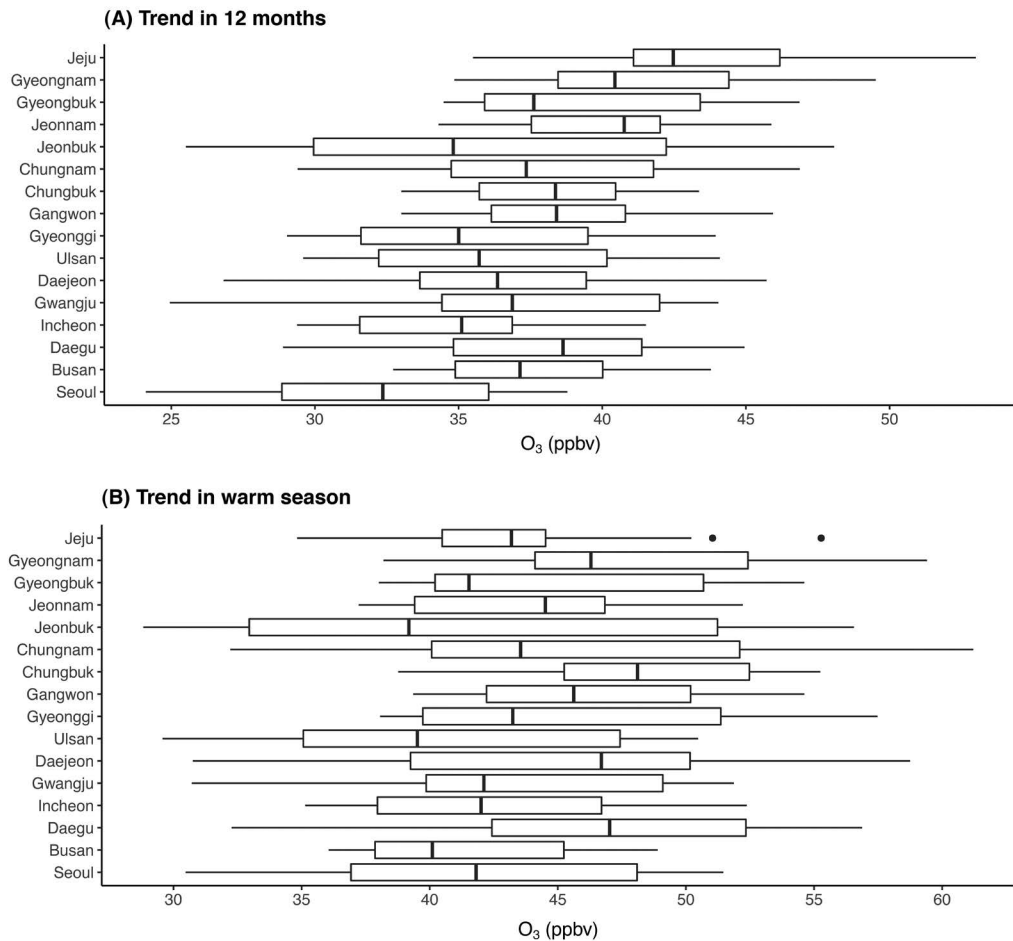


**Fig. S8.** Time-series plots of averages of maximum daily 1-h average and 24-h average of ozone concentrations (ppbv) by four types of regulatory monitoring sites (u.b : urban background; u.r : urban roadside; n.b : national background; r.b : regional background) during warm and cold-seasons in South Korea from 2001 to 2019.

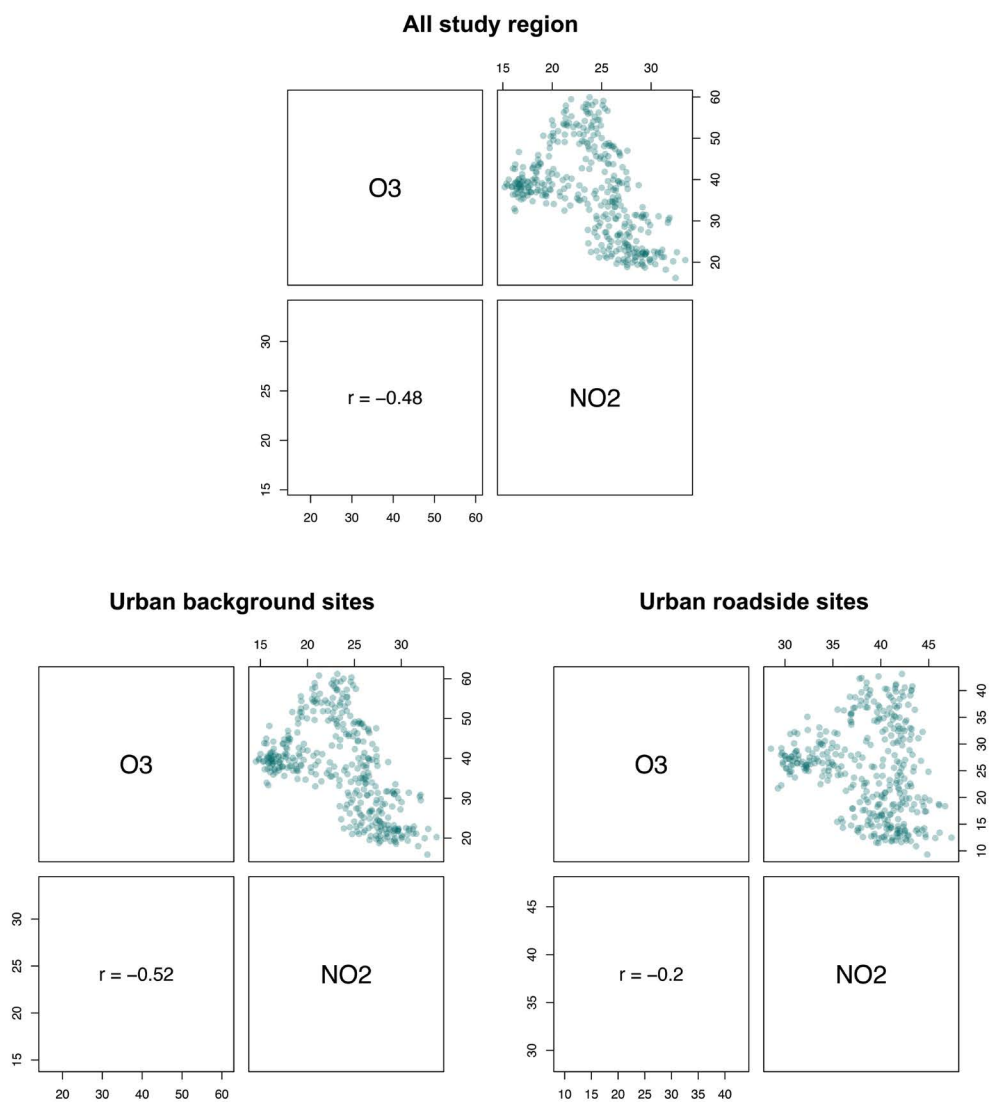




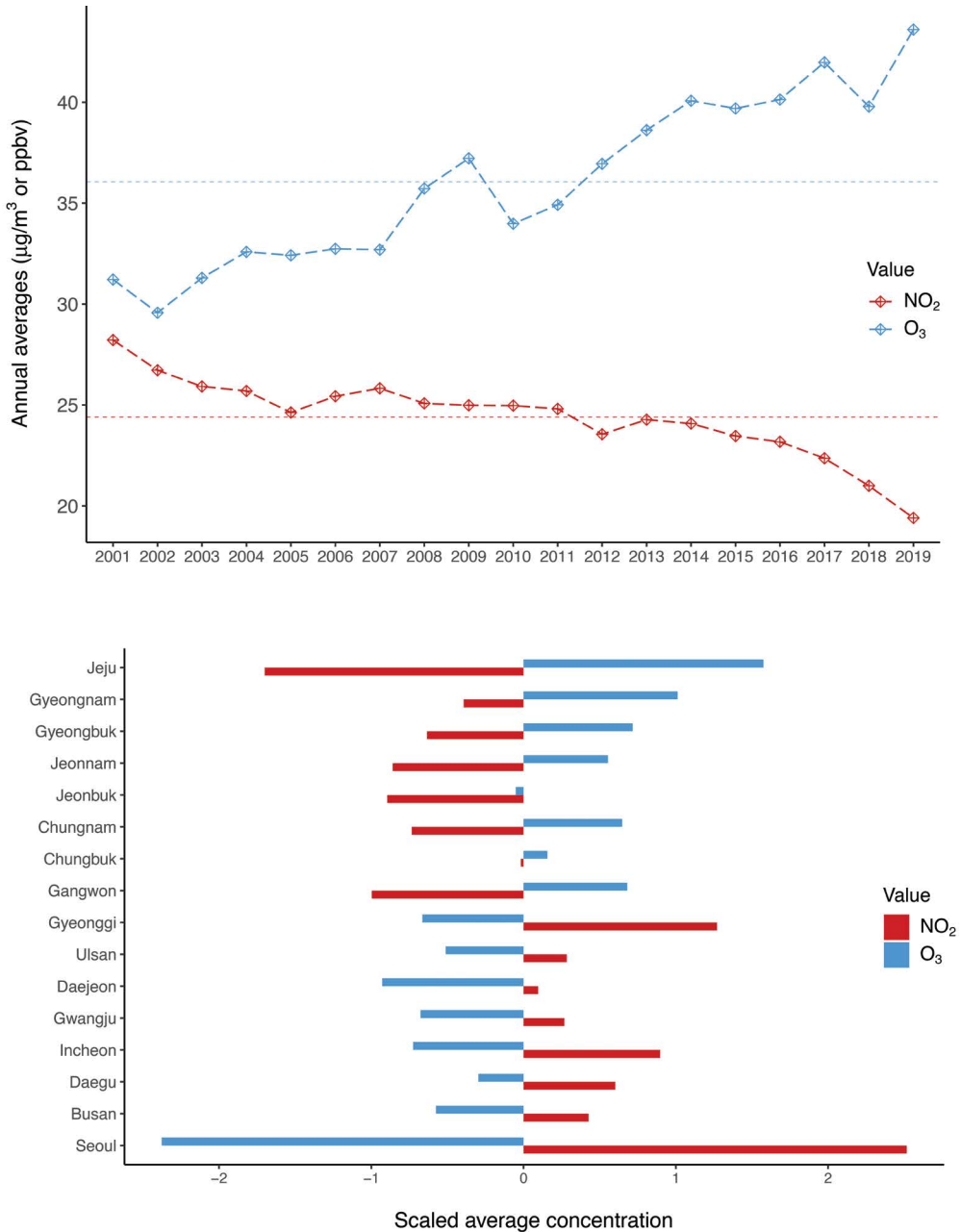
**Fig. S9.** Time-series plot of annual averages of NO<sub>2</sub> concentrations(ppbv) by four types of regulatory monitoring sites (u.b: urban background; u.r: urban roadside; n.b: national background; r.b: regional background) in South Korea from 2001 to 2019.



**Fig. S10.** Box plots of annual average ozone concentrations (ppbv) for 12 months (A) and warm (B) seasons across urban background regulatory monitoring sites by 16 Metropolitan Cities and Provinces in South Korea from 2001 to 2019.



**Fig. S11.** Scatter plots and correlation coefficients of daily mean concentrations between ozone and NO<sub>2</sub> at 482 whole monitoring sites (top), 417 urban background monitoring sites (bottom, left) and 40 urban roadside monitoring sites (bottom, right) in South Korea from 2001 to 2019.



**Fig. S12.** Temporal pattern of annual average concentrations ozone (warm-season average of maximum daily 8-h average; ppbv) and NO<sub>2</sub> (12-month average of 24-hour average; ppbv from regulatory monitoring data across 19 years (top; dashed line = average concentrations for three pollutants respectively) and spatial pattern of scaled annual average concentrations by 16 Metropolitan Cities and Provinces (bottom) in South Korea from 2001 to 2019.