

부산지역 미세먼지 중 2차 생성 기여도 평가 연구

김민경 · 차영욱 · 이소림 · 유은철
대기보전과

Study on the Secondary Formation Contribution of PM in Busan

Kim Min-kyeung, Cha Young-wook, Lee So-lim, Yoo Eun-chul
Air Preservation Division

Abstract

The secondary formation of PM in air is known as the major process in the creation of PM, especially PM_{2.5}. (NH₄)₂SO₄, NH₄NO₃ and organic carbon are the major chemical components concerning the secondary aerosol. In this study, the statistical analysis regarding the component parts of PM_{2.5} and numerical meteorological modeling (WRF) were used to understand the secondary formation of PM_{2.5} in Busan area. The research materials were as follows: the mass concentration of PM_{2.5}, eight ionic species, two carbonaceous species and fourteen metallic elements. The concentration of (NH₄)₂SO₄, NH₄NO₃ and organic carbon were high under the weather condition of stagnant air circumstances, low PBL height and high humidity. As the result of the factor and cluster statistical analysis and the back ward trajectory, the concentration of (NH₄)₂SO₄, NH₄NO₃ and organic carbon were high in the air current from the eastern or southern part of China under the stagnant weather condition. In the case of the air current from the eastern China, the concentration of (NH₄)₂SO₄ and NH₄NO₃ were high and the ratio of OC to EC was the low. On the other hand, the concentration of (NH₄)₂SO₄ and NH₄NO₃ were low and the ratio of OC to EC was high under the air current of the southern part of China and it occurred in summer when the temperature was the high and the air was affected by the biomass burning in the southern part of China.

Key words : PM_{2.5}, Secondary aerosol, Mass Closer Model, OC, WRF

서 론

보다 쾌적한 대기환경에서 살고자 하는 시민들의 욕구는 증가하고 있으나, 도시로의 인구 집중화, 적극적인 토지개발, 자동차, 연료 및 여러 화학물질의 사용 증가 등으로 대기 배출량은 지속적으로 증가 추세에 있으며, 특히 대기 배출원이 복잡하게 얽혀 있는 도시에서의 대기환경 개선은 쉽지 않다¹⁾. 2013년 우리원의 대기질 분석 결과 중 부산지역의 대기질 환경기준 초과 현황을 살펴보면 도

시대기측정소 기준으로 SO₂, NO₂, CO는 환경기준을 만족하고 있으나, O₃는 1시간 평균농도 기준만 만족하였고, 8시간 평균농도의 99백분위수 값이 0.083 ppm으로 환경기준(0.06 ppm)을 초과하였으며, PM₁₀은 연간 49 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 환경기준은 만족하였으나, 24시간 평균농도의 99백분위수 값이 128 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 환경기준 100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 을 초과한 것으로 나타났다²⁾. 특히 최근 중국발 스모그의 영향으로 고농도 미세먼지 발생빈도가 높아짐에 따라 실제 시민들의 미세먼지에 대한 우려 또한 높다. 2014년 기준 PM₁₀의 24시간 환경기준을 초과한 횟수는 19개 도시대

† Corresponding author, E-mail : kmink@korea.kr

Tel : +82-51-309-2922, Fax : +82-51-309-2929

기측정소 기준으로 236회로 집계되었으며, 일수로는 42일로 분석되었다. 연도별로 살펴보면 2010년 50일, 2011년 43일, 2012년 28일, 2013년 56일로 2012년까지 감소추세로 나타나다가 2013년 증가, 2014년 다소 감소한 것으로 나타났다. 즉 최근 5년간 PM10 24시간 환경기준 초과일은 전체일 중 12%를 차지하는 것으로 분석되어, 부산시민의 쾌적한 대기환경 조성을 위해서 부산지역의 미세먼지 개선은 필수적이고 시급한 사안이라고 할 수 있다.

부산지역 미세먼지 개선을 위해서 가장 기초적인 연구가 발생원에 대한 분석이다. 미세먼지는 발생원에서 직접 배출되는 1차 오염물질과 대기중 물리-화학반응을 통하여 생성, 변환되는 2차 오염물질로 구분할 수 있다. 특히 미세먼지 중 입자크기가 더 작은 PM2.5가 PM10보다 인체유해성이 더 크며³⁾, 이러한 PM2.5는 2차 생성에 의한 발생이 주류를 이루는 것으로 알려져 있다⁴⁾. 특히 대기중 SO₂ 등과 같은 가스상 오염물질은 1차 광화학반응에 의해 생성된 물질이 매우 복잡한 2차 반응을 일으켜 이와 관련된 메커니즘을 규명하는 것은 쉽지 않다⁵⁾.

미세먼지의 2차 생성에 관한 연구는 일반적으로 반응식을 통해 추정하거나 수용모델을 이용한 배출원 기여도 분석, 모델링을 통한 대기 화합물의 수치분석, 챔버연구 등 실제 대기환경 상황을 인위적으로 축소시켜 만들어 미세먼지 생성 및 변환에 대한 실제적 반응 메커니즘을 연구하는 분야로 구분할 수 있다. 본 연구에서는 부산지역을 대상으로 2차 미세먼지 생성과 관련하여 통계적, 물리화학적 분석기법을 사용하여 생성과정을 제한적으로나마 규명해 보고자 하였다.

미세먼지(PM2.5)의 구성 성분은 SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺, 탄소성분 등이며, 입자크기가 작고 상대적으로 표면적이 커서 용이하게 각종 중금속과 유해 오염물질들을 흡착할 수 있다. 이들 중 가장 높은 농도를 나타내는 성분은 SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺ 등과 같은 이온 성분으로, 대부분 가스에서 입자로 전환되는 과정에서 생성되는 2차인 것으로 알려져 있다. 다음으로는 탄소성분이 차지하고 있으며, 일반적으로 약 10%를 차지하며, 많게는 40% 이상까지도 차지하는 것으로 알려져 있다⁶⁾. 탄소성분은 유기탄소(Organic Carbon)와 원소탄소(Elemental Carbon)로 나눌 수 있으며, OC는 화석연료의 연소 등에 의해 공기 중에서 직접적으로 배출되는 일차오염물질이기도 하고, 대기중에서 화학반응에 의해 입자상으로 생성되는 이차오염물질이기도 하다. 반면에 EC 성분은 주로 연소과정에서 발생하는 일차오염물질로 알려져 있다. 대기 중의 OC와 EC는

같은 오염원으로부터 배출되므로 EC의 농도는 탄소성분의 기원을 해석하는 중요한 인자로 활용되고 있다. OC 중 특히 2차 유기탄소 성분을 SOC (Secondary organic carbon)라고 부르며, OCC는 SOC를 도시지역에서는 7% ~ 13%, 배경지역에서는 4% ~ 12%로 산정하였으며, 계절별로는 대도시 지역에서 여름철이 겨울철 SOC보다 1.5 배 ~ 2.1배까지 높아지기도 하여 이는 여름철 활발한 광화학반응에 의한 것으로 분석하였다⁷⁾. OC는 주로 생물기원 유기탄소의 광화학반응에 의하여 생성되는 것으로 알려져 있으며⁸⁾, OC는 여러 종류의 유기물들의 혼합되어 있는 형태로 PAH (Polycyclic Aromatic Hydrocarbons) 등을 포함하여 인체에 유해한 영향을 미친다⁹⁾.

OC와 같은 대기 중의 유기에어로졸은 생성방식에 따라 직접 배출되는 일차 유기에어로졸(Primary organic aerosol)과 기체상 물질(Secondary organic aerosol)의 산화로 생기는 이차 유기에어로졸로 나뉜다. 일차 유기에어로졸은 주로 화석연료 및 생체연료의 사용으로 배출되며 특히 큰 산불과 같은 생체소각이 중요한 전구 배출원이다. 이에 반해, 이차 유기에어로졸의 생성에 기여하는 전구기체는 주로 식물에서 배출되는 biogenic 유기기체들로서(monoterpene, isoprene) 전구적 규모에서 중요하며, 산업이 밀집되어 있는 대도시에서는 인위적 방향족 탄소화합물(toluene, benzene, xylene 등) 등의 반응성이 높은 기체들이 중요한 것으로 알려져 있다^{10), 11)}.

본 연구에서는 부산지역 2차 대기오염물질 생성메커니즘 규명을 위하여 제한된 자료(PM2.5 및 이온성분 등)를 통계적, 물리화학적 분석 방법을 사용하였다. 기상요소를 검토하였으며, 이동 경로 등을 확인하여 부산지역 미세먼지 주요 오염원을 추정하고자 하였고, 이를 통하여 2차 대기오염물질의 생성과정을 규명하고 효과적인 제어방안을 제시하고자 하였다.

연구방법

본 연구에서는 부산지역의 미세먼지 중 2차 생성 기여도 평가를 위하여 먼저 통계분석을 이용하여 어떠한 요인들이 PM2.5 농도에서 주요한 요인으로 작용하는지를 파악하였으며, 대상일들을 요인별로 유사성이 있는 군집으로 분류해 보았다. 다음으로 물리, 화학적 반응식을 이용하여 2차 대기오염물질 생성량을 추정해 보았으며, 마지막으로 기상모델링을 이용하여 PM2.5고농도일의 기상요소를 분석해 보았다.

연구재료

부산지역을 대상으로 하였으며, PM_{2.5}의 농도 및 성분 조사는 부산의 중심지에 위치한 연산동 대기오염측정소에서 실시한 결과를 사용하였다. 연산동 측정소는 용도지역별로는 주거지역에 속해 있으며, 주변(1 km 이내)에 비교적 교통량이 높은 연산교차로가 위치해 있다.

본 연구의 PM_{2.5} 농도는 대기오염측정망 자료를 이용하였으며, 2012년 ~ 2013년간 한일공동연구인 「미세먼지(PM_{2.5})에 관한 광역 분포 특성 조사」¹²⁾에서 실시한 성분조사 결과를 이용하였다. 성분조사는 총 7회(2012년 4월, 8월, 10월, 12월, 2013년 2월, 4월) 실시되었으며, 1회당 7일 분석되었으며, 분석항목은 수용성 이온성분 8개 항목, 무기원소 성분 17개 항목, 탄소성분 3개 항목을 분석하였다. 이온성분은 Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, Cl⁻, Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺를 대상항목으로 하였으며 IC법(이온크로마토그래프법), UV법(흡광광도법), ICP법(유도결합플라즈마법)로 분석하였다. 무기원소 분석항목은 Mg, Al, K, Ca, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, Se, Cd, Pb이며, ICP-MS(유도결합플라즈마-질량분석법) 방법으로 성분분석하였으며, 탄소성분은 TOT(열광학적 투과도법, NIOSH법)으로 성분분석을 실시하였다.

다음으로 기상요소 분석을 위하여 기상청에서 제공하고 있는 지표면 일기도와 850 hPa 일기도, AWS(Automated Weather Station)의 현천(현재날씨)를 이용하였으며, 대기경계층 고도는 NCEP/NCAR(National Center for Environmental Prediction/National Center for Atmospheric Research) 재분석 자료를 이용하였다. 또한 공기와 이동경로를 파악하기 위하여 역궤적분석을 실시하였으며, 미국의 NOAA/ARL에서 제공하는 HYSPLIT-4(Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory)모델을 이용하였으며, 사용된 기상자료를 미국 NCEP/NCAR의 GDAS(Global Data Assimilation System)를 사용하였다. 72시간 동안의 공기 이동경로를 500 m 고도에서 분석하였다.

통계분석

각 사례일의 화학적 특징을 추출하고 배출원을 추정하고자 요인분석(Factor Analysis)을 실시하였으며, 요인별로 유사성을 가지는 사례일 분류를 위해 군집분석(Cluster Analysis)을 실시하였다. 이 두 분석결과를 바탕으로 대상일의 화학적 특징을 추출해 보았으며, 통계분석을 위하여 SPSS 12.0 K를 이용하였다. 요인분석은 많

은 변수의 상호관련성을 소수의 기본적인 요인(factor)으로 집약하는 방법의 하나로 전체 변수에 공통적인 요인이 있다고 가정하고 이 요인을 찾아내어 각 변수가 어느 정도 영향을 받고 있는지 그 정도를 산출하기도 하고, 그 집단의 특성이 무엇인가를 기술하려는 통계분석방법이다. 요인분석의 결과인 요인적재값(factor loading)으로부터 고유값(eigenvalue)을 도출해 내고, 고유값은 변수 속에 담겨진 정보가 어떤 요인에 의해 어느 정도 표현될 수 있는가를 말해주는 비율이다. 본 연구에서는 인자 분석 시 주성분분석방법을 이용하였으며, 인자추출에서 고유값 1.0보다 큰 인자만을 선택하였고 Varimax 방식으로 회전시켰다. 군집분석은 많은 객체들을 일정한 속성에 따라 몇 개의 군집으로 분류하는 방법으로 본 연구에서는 비계층적 군집화 방법으로 K-평균 군집분석법을 이용하였다.

물리, 화학적 반응식 이용한 2차 대기오염물질 생성 추정

PM_{2.5}의 화학조성들에 대한 구성성분을 재해석해 보았으며, 미국 시정과 에어로졸 IMPROVE(Interagency Monitoring of PROtected Visual Environments)에서 사용된 방법인 Mass Closure Model을 사용하였다. Ammonium sulfate ((NH₄)₂SO₄)는 SO₄²⁻의 1.375배, Ammonium Nitrate ((NH₄NO₃)는 NO₃⁻의 1.29배, Seasalt는 Na⁺의 2.5배, OM(Organic Matter)는 OC(Organic Carbon)의 1.4배로 산정하였다. Soil or Crustal 항목은 Al의 9.18배 + Ca의 1.4배 + Fe의 1.38배 + Ti의 1.67배로 산정하였다¹³⁾.

기상모델링을 통한 기상요소 분석

해당 사례일의 기상분석을 위해 기상장 수치모델인 WRF(Weather Research and Forecasting model)를 이용하여 기상요소의 상세한 정보를 도출하였다. 본 연구에서는 ARW(3.3 버전)를 사용하였으며, 초기 입력장으로는 1.0° × 1.0°의 해상도를 가지며, 6시간 간격으로 제공되는 NCEP FNL(Final Analyses) 자료를 사용하였다. 지형 및 토지이용자료는 미국항공우주국에서 제공하는 SRTM(Shuttle Radar Topography Mission) 3초 지형자료와 환경부에서 제공하는 KLU(Korea Land Use) 1초 토지이용자료를 사용하여 정확도를 향상시켰다. 수치모의 수행을 위한 시스템 설정은 Table 1과 같다. 영역 1은 한반도를 중심으로 한 동북아시아 일부를 포함하는 수평 격자 27 km의 영역이며, 영역 2, 영역 3은 수평 해상도를

9 km, 3 km로 높여 갔으며, 최종 도메인인 영역 4에는 수평해상도 1 km로 설정하였다.(Fig. 1) 연직 층수는 28 개의 층으로 설정하였고 이러한 실험 설계를 바탕으로 각 사례일마다 138시간 동안 수치적분을 실시하였다.

결과 및 고찰

기상조건 분석

사례일 기간 동안의 기상 요소 분석결과와 PM2.5 평균 농도를 표 2와 같이 정리하였다. 전체 사례일 동안의 평

균 PM2.5 농도는 $22.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 나타났으며, 2012년 4월 사례일과 2013년 6월 사례일 기간 동안 연무가 발생하여 PM2.5 평균농도는 각각 $32.2, 30.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 사례일 기간 동안 가장 높은 수준을 나타내었다. 2012년 4월 사례일 기간에는 강수일 4일, 박무일 6일, 연무일 2일이 포함되었으며, 고기압의 가장자리에 위치해 있다가 저기압의 영향으로 강수가 내렸으며 이후 이동성고기압의 영향을 받으면서 연무가 형성된 것으로 판단된다.(그림 2 참조) 특히 연무일 2일 동안에는 PBL고도가 177 m ~ 398 m 로 매우 낮게 형성되었고, 72시간 동안의 역궤적 분석 결과 도시화가 많이 진행된 중국 동부지역에서 유입된 것으로 분석되어 연무가 발생하기에 적당한 기상조건이었던

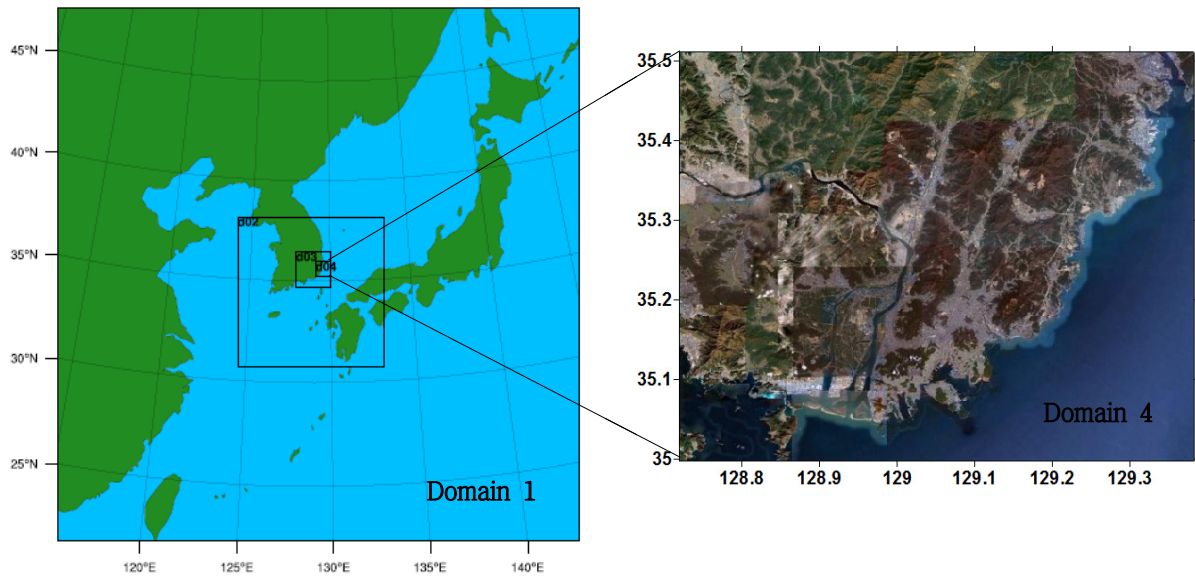


Fig. 1. The numerical model domains for WRF simulation.

Table 1. Description of WRF system

	Domain 1	Domain 2	Domain 3	Domain4
Horizontal grid	124 × 131	73 × 85	85 × 179	72 × 72
Horizontal resolution	27 km	9 km	3 km	1 km
Vertical layers	27 layers			
Longwave radiation option	RRTM scheme			
Shortwave radiation option	Dudhia scheme			
Microphysics option	WSM 3-class simple ice scheme			
Surface-layer option	Monin-Obukhov scheme			
Land-surface option	Unified Noah land-surface model			
Boundary-layer option	YSU scheme			
Cumulus option	Kain-Fritsch (new Eta) scheme			
Initial data	NCEP FNL Operational Global Analysis data			

것으로 판단된다. 다음으로 2013년 6월 사례일 기간에는 박무일 6일, 강수일 2일, 연무일 2일이 포함되었으며, 사례일 초반에는 고기압 가장자리에 위치해 있다가 남쪽지역에서 저기압과 태풍의 간접 영향을 받다가 이동성 고기압의 영향을 받았다. 역궤적 분석결과 중국 상하이와 같은 남동부지역과 북태평양, 동해에서 발생된 기류의 영향을 받았으며, PBL 고도가 152 m ~ 577 m로 대기가 안정되면서, 연무가 발생하여 PM2.5가 높아진 것으로 판단된다. 반면, 2012년 12월 사례일이 14.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 가장 낮게 나타났다. 2012년 12월의 사례일 동안에는 맑은 날이 5일, 강수일이 2일 포함되었으며, 강수일을 제외하고는 고기압 가장자리에 위치해 있었으며, 850 hPa에는 저기압이 비교적 좁은 형태로 위치해 있어 기압경도력이 높아 이류가 활발한 것으로 나타났으며, PBL고도도 500 m 이상으로 높게 형성되었고, 72시간 동안의 역궤적 분석결과 배출량이 낮은 먼 지역에서 이동하여 PM2.5 농도가

낮게 나타난 것으로 판단된다.

특히 PM2.5 농도가 높게 나타난 2012년 4월 사례일과 2013년 6월 사례일에는 총 14일 중 박무일이 11일로 나타나 박무 즉 수분의 영향이 컸던 것으로 나타났다. 부산지역의 경우, 해안가에 위치해 있어 박무 혹은 해무의 발생이 빈번하여, 수분과 PM2.5 2차 생성에 관한 내용이 중요하다고 할 수 있다. 박무 혹은 안개가 발생하는 경우 PM2.5 농도가 대개 높은 수준을 나타내고 있으며, 이는 가스상 이온이 수분의 존재 하에서 2차 에어로졸을 생성하는 반응이 크게 증가하기 때문이다. 수분이 존재할 경우, 즉 상대습도가 높아서 이미 형성된 이온성 에어로졸 ((NH₄)₂SO₄, Na₂SO₄ 등)의 용해임계치(deliquescence relative humidity)를 초과할 경우 고체 입자는 순간적으로 다량의 수분을 흡수하여 용액 상태로 존재하게 되며, PM2.5의 농도는 크게 증가하게 된다. 그 후 안개가 걷혀 상대습도가 매우 낮게 되면 젖은 입자의 수분은 일부 혹

Table 2. The weather conditions on this study period

	2012, 4.18.~4.24.	2012, 8.1.~8.7.	2012, 10.9.~10.15.	2012, 12.5.~12.11.	2013, 2.13.~2.19.	2013, 4.10.~4.16.	2013, 6.7.~6.13.
Clear Days	1	7	7	5	4	6	2
Mist Days	6			1	3		5
Rainy Days	4			2	1	1	2
Haze Days	2						2
Average of PBL Height (m)	515.5	575.2	559.5	1003.4	671.9	911.7	327.6
Average of PM2.5 concentration	32.2	18.7	17.9	14.8	21.1	19.9	30.2

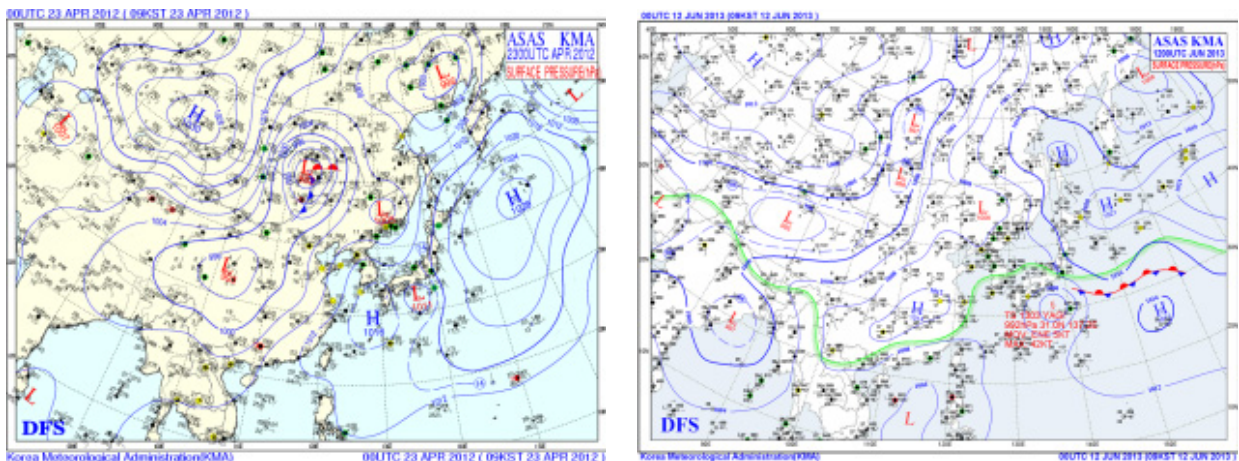


Fig. 2. Weather chart.

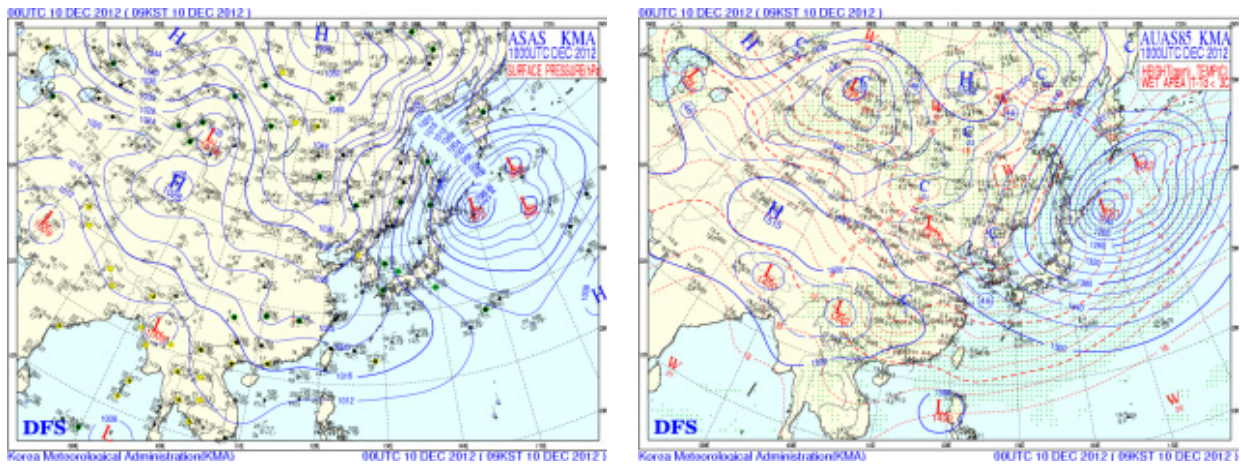


Fig. 2. Continued.

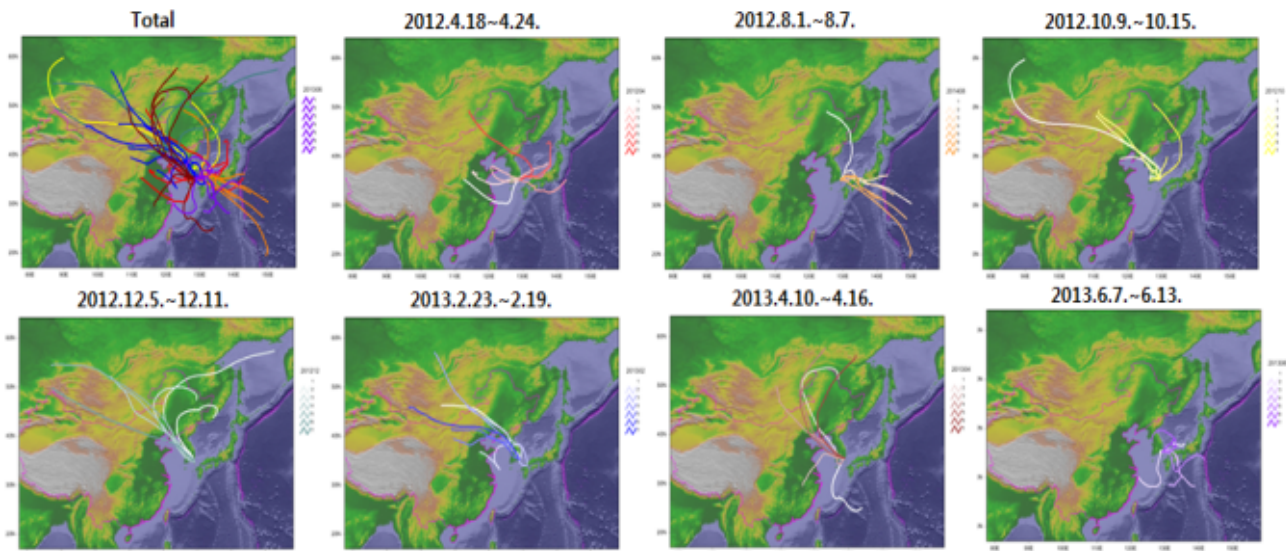


Fig. 3. The Back Ward Trajectory on this study period.

은 전부 증발할 수 있지만, 용액 상태로 존재하던 이온성 에어로졸은 과포화상태로 남아있게 되며 결정화(crytallization)가 일어난다^{14, 15}. 따라서 중국 동부 또는 남동부 지역과 같은 산업화가 발달된 지역에서 발생된 기류의 영향과 낮은 PBL고도, 이동성 고기압의 영향과 같은 안정한 대기 환경조건, 습도가 풍부할 때 PM2.5 농도가 높게 나타나는 것으로 판단된다.

성분 분석

PM2.5의 성분조성을 살펴보면, 일반적으로 이온 성분 > 탄소 성분 > 무기 원소 성분의 순으로 SO₂, NO₂, NH₃ 등 가스상 물질이 대기 중에서 체류하는 동안 각종 화학

반응에 의해 입자로 전환되어 2차 입자의 형태로서 이것에 해당하는 이온성분이 가장 많이 차지하는 것으로 알려져 있다. 사례일 동안의 PM2.5 구성성분의 농도(조성)는 그림 4와 같으며, 이온성분이 11.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (52.2%), 탄소 성분이 3.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (14.4%), 무기원소 성분이 0.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (3.7%), 미확인 물질이 6.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (29.6%)로 분석되었다. 2차 생성 관점에서 살펴보면, 이온성분은 대부분 대기 중 가스상 물질의 화학 물리적 반응으로 생성된 2차 에어로졸이며, 탄소 성분 중 OC의 일정부분이 2차 에어로졸이라고 할 수 있다. 선행연구에서 탄소성분 중 OC의 비율은 전체 탄소의 70% 이상을 차지하며, OC에 대한 SOC의 비율은 평균 40% 정도인 것으로 조사되었다¹⁶.

PM2.5 성분조사 결과를 바탕으로 그림 5와 같이 Mass closure 모델을 이용하여 재조성해 보았다. 분석 결과 사례기간 동안 (NH₄)₂SO₄는 8.04 μg/m³ (36.4 %)로 가장 높게 나타났으며, 다음으로 OM(유기물질) 3.22 μg/m³ (14.6 %), NH₄NO₃ 3.11 μg/m³ (14.1 %), Crustal 1.55 μg/m³ (7.0 %), EC (무기탄소) 0.90 μg/m³ (4.1 %), Seasalt 0.7 μg/m³ (3.2 %), 이온성분 0.41 μg/m³ (1.8 %), Trace (미량무기원소) 성분 0.18 μg/m³ (0.8 %), 기타 3.97 μg/m³ (18.0 %)로 나타났다. PM2.5 농도가 가장 높게 나타난 2012년 4월 사례일에서는 (NH₄)₂SO₄가 가장 높은 값을 보였으며, 특히 2012년 4월 기간과 2013년 6월 기간에 높게 나타났다. 이는 SO₂ 등의 가스상 물질이 산화하여, NH₃과 결합하여 생성된 2차 생성입자로서 (NH₄)₂SO₄, (NH₄)₃H(SO₄)₂와 같은 황산염의 형태로

변환되기 때문이다. 일반적으로 온도가 높고 가시광선이 강하며 습기가 많을 때 2차 황산염의 생성이 크다고 보고된 바 있다.

NH₄NO₃는 2012년 4월과 2013년 6월 동안 가장 높은 수준으로 나타났으며 이 오염원 또한 화학반응을 통하여 생성되는 오염원으로, 국내배출량으로는 이동오염원에 의한 NO_x와 장거리 국외배출량인 중국 지역의 NO_x가 산화하여 NH₃와 결합한 2차 분진 형태로 질산염은 낮은 온도와 높은 습도에서 큰 분율을 가지는 것으로 알려져, 겨울과 봄철 기여도가 높은 것으로 알려져 있다. 2012년 8월과 10월에 낮은 값을 보이고 있으며 이는 선행 연구를 참고해 보면 여름철 낮에는 광화학 입자를 생성하고 기온이 낮아지는 밤에는 입자를 형성하며, 기온이 높은 낮에는 입자가 증발하여 Chloride loss로 NH₄NO₃가 다소 낮

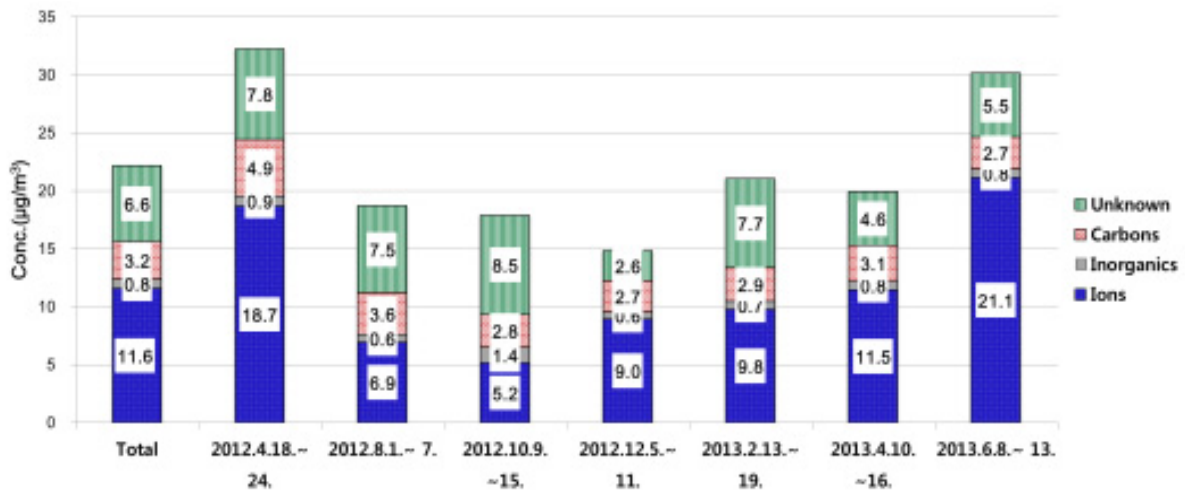


Fig. 4. Chemical composition associated with PM2.5.

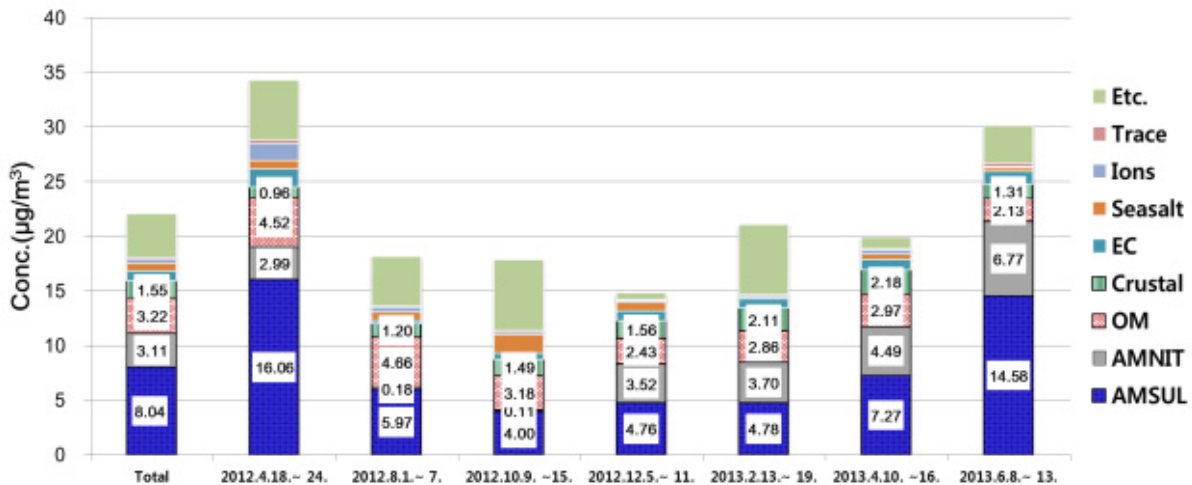


Fig. 5. Chemical composition associated with PM2.5.

게 나타날 가능성이 있는 것으로 판단된다⁵⁾.

통계 분석

PM2.5의 발생기원 특성을 확인하기 위하여 요인분석(factor analysis)를 실시하였으며, 주성분의 누적 기여율은 표 3에, 각 사례기간별 요인부하량은 그림 7에 나타내었다. 주성분 1 ~ 6까지의 누적 기여율은 총 78.4 %로 나타났으며, 제1주성분의 기여율은 19.1 %로 Ca, Cr, Mn, Ni 등 무기원소성분의 부하량이 높게 나타나, 비철 금속 관련 제조업으로 추정하였다. 제2주성분은 17.7 %

로 NH₄⁺, SO₄²⁻, NO₃⁻ 이온성분 및 V 등 무기원소성분, EC의 부하량이 높게 나타나, 2차 황산염과 질산염 입자 관련 및 중유연소 관련 발생원의 기여율이 높게 나타났다. 제3주성분은 13.9 %로 K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺의 부하량이 높게 나타나, 식물계 연소, 중국 등 장거리 수송과 관련된 것으로 분석하였다. 제4주성분은 13.7 %로 Se, Cd, Pb 등의 무기원소성분과 OC의 부하량이 높게 나타나 소각관련 연소 배출원으로 추정하였다. 제5주성분은 7.4 %로 K 무기원소성분의 비율이 높게 나타났으며, 제6주성분은 6.5 %로 Cl⁻, Na⁺의 부하량이 높게 나타나 해염관련 성분 등 해양기원 발생원으로 추정하였다. Na⁺는 주로 장거

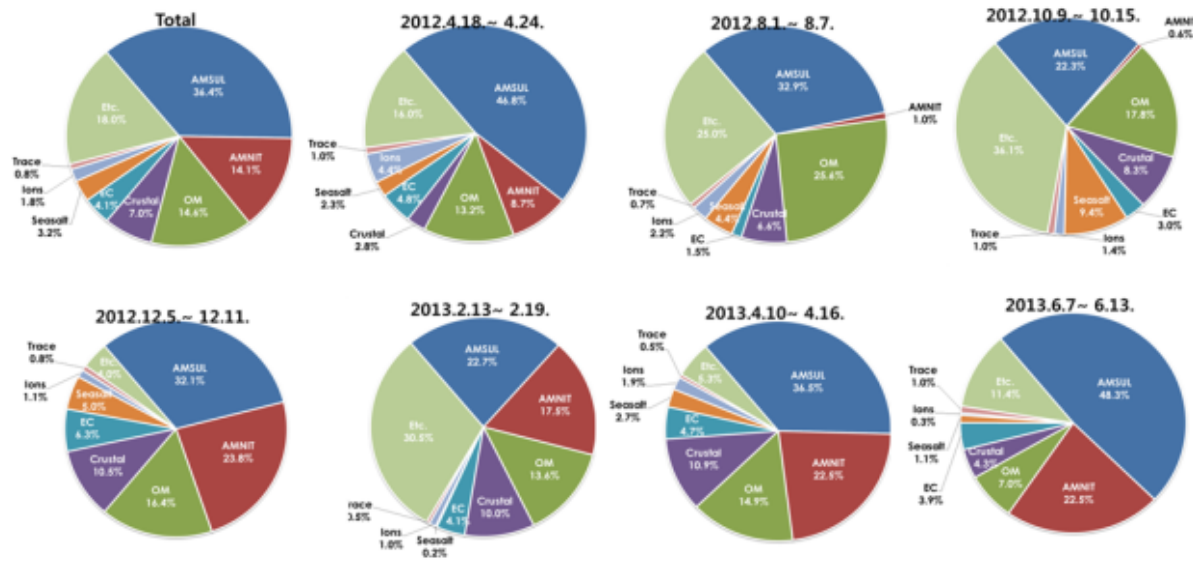


Fig. 6. Reconstructed PM2,5 mass by Mass Closure Model.

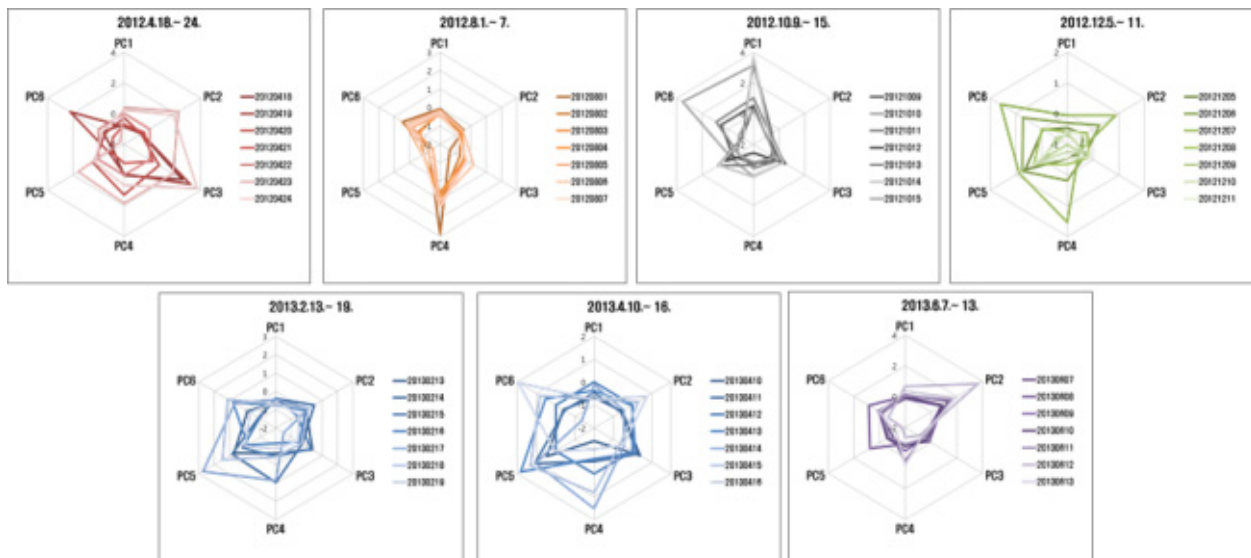


Fig. 7. Radar chart of PC scores on this study period.

리 이동 오염원으로 조대입자에 포함되는 되며, SOC와 관련성은 떨어지는 것으로 알려져 있다.

따라서 PM2.5의 2차 생성과 관련이 높은 인자로는 이온성분의 농도가 높은 제2주성분과 OC의 농도가 높은 제4주성분인 것으로 나타났다. 사례일별로는 2013년 4월 사례일이 제2주성분의 영향을 가장 크게 받는 것으로 나타났으며, 2012년 8월이 제4주성분의 영향을 가장 크게 받는 것으로 나타났다. PM2.5 농도가 가장 높게 나타났던 2012년 4월 사례일은 사례기간 초반에는 제3주성분과 제6주성분의 높아 해양 기원 발생원의 영향을 크게 받다

가 연무가 발생하였던 후반으로 갈수록 제2주성분 ~ 제5주성분이 높아 1차 생성과 함께 2차 생성의 영향도 크게 받았던 것으로 판단된다. PM2.5 농도가 가장 낮게 나타났었던 2012년 12월 사례일 동안에는 제2, 제4, 제6주성분이 높게 나타났으며, 해양기원 발생원과 함께 이온성분과 OC의 비율도 높게 나타나, 농도가 낮게 나타났으나, PM2.5 생성 중 2차 생성의 비율이 비교적 높은 것으로 분석되었다.

앞서 살펴본 요인분석 결과를 총 49일의 대상 사례일에 대하여 군집분석을 실시하였다. 그 결과 총 5개의 군집으

Table 3. Rotated Varimax factor analysis for ionic species in PM2.5

	PC 1	PC 2	PC 3	PC 4	PC 5	PC 6
Cl ⁻	-0.08047	0.066732	0.060726	0.077853	0.212316	0.817585
NO ₃ ⁻	-0.16028	0.783396	-0.11581	-0.16678	0.074552	0.04809
SO ₄ ²⁻	0.028458	0.726796	0.456613	0.259115	-0.00049	0.01453
Na ⁺	0.338488	-0.13136	0.275768	0.051076	-0.14696	0.678839
NH ₄ ⁺	0.005519	0.932144	-0.0159	0.08229	0.043995	0.150954
K ⁺	0.236591	0.06953	0.817356	0.112158	0.422255	0.051079
Ca ²⁺	-0.09301	0.105335	0.822596	0.34637	-0.0504	0.060504
Mg ²⁺	-0.04084	0.07346	0.892241	0.178587	-0.04003	0.201934
Mg	0.467419	-0.11149	-0.00232	0.409104	0.463704	-0.12074
Al	-0.32159	0.216111	-0.25241	0.097713	0.594051	0.269309
K	0.238726	-0.01037	0.406087	0.074512	0.759791	0.025713
Ca	0.799996	-0.29858	-0.01734	0.03795	0.082533	-0.00093
V	0.087935	0.824224	-0.07923	-0.08182	-0.38426	-0.11519
Cr	0.931837	-0.04576	0.031848	-0.05375	0.019021	0.00752
Mn	0.919057	0.147087	0.084353	-0.0395	0.121628	0.028652
Fe	0.471886	0.679687	0.319984	0.222122	0.218466	-0.07185
Ni	0.963468	0.056286	-0.04021	-0.09632	-0.05343	0.082634
Cu	0.650924	0.250005	0.009761	0.395417	-0.17519	0.091761
Zn	-0.08891	0.504348	0.278544	0.353187	0.108761	-0.3215
Se	-0.10495	0.01191	0.284074	0.826996	0.121049	0.14265
Cd	0.171177	-0.010589	0.029001	0.830448	0.038442	0.235491
Pb	-0.20331	0.277136	0.160942	0.833409	0.173273	-0.09508
OC	0.152571	0.075751	0.37216	0.631757	-0.06189	-0.16734
EC	-0.00926	0.675263	0.47339	0.132099	0.26343	-0.15249
Eigenvalue	4.58975	4.237225	3.337783	3.294376	1.783916	1.563418
Contribution Rate (%)	19.12396	17.6551	13.90743	13.72657	7.432982	6.51424
Accumulation of Contribution Rates (%)	19.12396	36.77906	50.68649	64.41306	71.84604	78.36028

로 분류할 수 있었으며, 각 군집별 역궤적 분포와 PM_{2.5} 성분 재구성 결과를 그림 8에 나타내었다. 군집 1은 제1, 제5, 제6주성분이 높은 군집으로 무기원소성분과 해양 및 토양 관련 배출량이 높게 나타나는 특징이 있으며, 사례일로는 2012년 10월 중 3일이 포함되었다. PM_{2.5} 성분 재구성 결과, 황산암모늄염은 5.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 질산암모늄염은 0.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 다른 군집보다 상대적으로 낮게 나타나 인위적인 오염원에 의한 2차 입자 생성은 다른 사례일에 비해서는 크지 않은 것으로 판단된다. 그러나 OC/EC 비율은 6.1로 비교적 높게 나타났으며, 2차 유기탄소 에어로졸의 생성과정이 비교적 활발히 이루어 졌으며, K^+ 가 0.207로 비교적 높게 나타나 생물연소에 의한 영향으로 판단된다. 이 중 2012년 10월 10일은 Cl^- 농도가 0.5966 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 분석기간 동안 가장 높게 나타났으며, 역궤적 분석 시에도 동해쪽에서 발생된 정체성 기류가 유입된 경우로 해양의 영향을 가장 크게 받은 것으로 판단된다. 해양의 영향을 크게 받은 것으로 판단되는 2012년 10월 10일의 OC/EC 비율도 4.4로 비교적 높게 나타나 해양에 의한(수분포함) 2차 유기탄소 에어로졸 생성이 발생된 것으로 사료된다. 군집 2는 제3주성분이 높게 나타난 군집으로 제3주성분은 K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} 의 부하량이 높게 나타난 군집으로 PM_{2.5} 질량 농도는 17.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 가장 낮게 나타났다. 2차 생성과 관련된 제2, 제4주성분이 가장 낮게 나타나 2차 생성의 영향을 상대적으로 적게 받은 사례일로 평가되었다. 군집 3은 제4주성분이 높은 군집으로 OC의 비율이 7.0으로 분석되었다. 2012년 8월 전체 사례일이 해당되었으며, 특히 OC/EC의 비율이 6.1로 육지의 직접적인 영향이 가장 적었으며, 이는 상승한 기온과 함께 생물 활동의 증가에 기인한 생물학적 OC의 배출이 그 원인으로 판단된다. 해당 사례일에서 2차 생성 미세먼지가 상당부분 생성되었으며, 이에 대한 원인 분석은 좀더 이루어져야 할 것으로 판단된다.

군집 4는 이온성분이 높은 제2주성분의 영향을 크게 받고 있었다. PM_{2.5} 질량농도는 31.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 다소 높게 나타났으며, PM_{2.5} 성분 재구성 결과 황산암모늄은 27.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 질산암모늄은 14.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 다소 높게 나타나 인위적인 오염원에 의한 2차염의 생성 영향을 크게 받았으며, OC는 1.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, OC/EC는 1.3으로 2차 유기탄소 입자 생성 영향은 크지 않았던 것으로 분석되었다. 2013년 6월에서 대부분 발생되었으며, 연무일을 포함하고 있었고, 역궤적 분석결과 정체성 해양의 기류 영향을 많이 받은 것으로 분석되었다. 해당 사례일의 역궤적 분석을 살펴보면, 중국 상하이 주변과 한반도 남쪽 해양, 일

본 남쪽 지역의 영향을 받은 것으로 판단된다. 해양의 영향을 받는 것으로 판단되었던 군집 3의 경우와는 다르게 OC/EC의 비율이 1.2로 다른 사례일에 비해 낮게 나타났으며, 이는 화석 연료 연소에 기인한 1차적인 배출의 영향이 큰 것으로 판단되며, 이는 역궤적 분석을 토대로 중국 남쪽지역 또는 일본 남쪽지역의 영향을 받은 것으로 보인다.

군집 5는 제2, 제3, 제4, 제5 주성분 영향을 크게 받은 경우로, 2012년 4월 연무발생일이 이 군집에 해당되었다. 즉, 중국 동쪽지역에서 기류가 유입되었으며, PM_{2.5} 농도도 60.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 가장 높고, 1차, 2차 미세먼지 생성이 함께 활발히 나타났던 사례라고 할 수 있다. PM_{2.5} 재구성 결과를 살펴보면, 황산암모늄염은 28.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 질산암모늄염은 4.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 황산암모늄이 군집 중 가장 크게 나타났으며, EC는 3.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, OC는 4.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 사례일중 가장 높게 나타났으며, OC/EC 비율은 1.5로 사례일 중 가장 낮게 나타났다. 선형연구를 살펴보면, 군집 5의 사례와 유사하게 OC와 EC는 겨울철에 농도가 가장 높게 나타나고 상관관계도 높게 나타났다. 겨울철에는 강한 북서풍이 우세하므로 비교적 유사한 배출원을 가지는 입자상 물질이 온도가 낮은 가운데 빨리 이동되어 대기 중 변환작용을 적게 받는 것으로 해석하였다.

미세먼지 2차 생성과 관련하여 군집분석 결과를 정리해보면, 군집 1은 SO₂, NO₂ 등의 가스상에 의한 영향은 적었으나, 유기탄소 에어로졸 생성 영향은 컸던 군집이었으며, 군집 2는 PM_{2.5} 질량 농도가 낮은 경우로 2차 생성에 의한 영향이 적었다. 군집 3은 SO₂, NO₂ 등의 가스상에 의한 영향과 유기탄소 에어로졸 생성 영향을 동시에 받았으나, PM_{2.5} 질량 농도는 높지 않았던 군집으로 판단되었으며, 군집 4는 SO₂, NO₂ 등의 가스상에 의한 영향은 높았으나, 유기탄소 에어로졸 생성 영향은 낮았던 것으로 판단되었다. 군집 5는 PM_{2.5} 질량 농도가 높았던 사례로 1, 2차 미세먼지 생성이 활발하였던 것으로 판단된다. 역궤적 분석 결과로는 군집 4와 5는 중국 동부 또는 남동부 지역에서 발생한 기류로 SO₂, NO₂ 등의 가스상에 의한 영향은 높아 인위적인 오염원의 영향을 받았던 것으로 보인다. 유기탄소 에어로졸은 군집 1, 3, 5에서 영향을 크게 받았으며, 이는 중국지역의 인위적인 오염원의 영향을 받은 경우와 생물연소에 의해 영향을 받은 경우로 구분할 수 있으며, 역궤적 분석 결과로는 중국에서 발생한 기류를 직접 받는 경우, 정체성 기류, 중국 북부지역 및 러시아등 장거리 기류, 해양성 기류로 나눌 수 있다.

Table 4. The results of Cluster Analysis

	Cluster 1	Cluster 2	Cluster 3	Cluster 4	Cluster 5
Factorscore for PC1	3.427896	-0.36246	-0.27838	0.168298	0.33098
Factorscore for PC2	-0.65767	-0.36031	-0.30639	1.690222	2.050899
Factorscore for PC3	0.03851	0.176963	-0.45735	-0.63002	2.769989
Factorscore for PC4	-0.13944	-0.67347	1.244384	-0.46329	1.255488
Factorscore for PC5	0.412633	0.152443	-0.04971	-0.99796	0.944969
Factorscore for PC6	0.391761	0.083637	-0.01736	-0.14419	-1.00404
Days	3	23	13	6	2
Major Period	2012. 10.	2012. 12. 2013. 2. 2013. 4.	2012. 8.	2013. 6.	2012. 4.
The average of PM2.5 concentration ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	22.1	17.1	21.5	31.7	60.0
Cl-	0.229	0.209	0.198	0.141	0.113
NO3-	0.156	2.125	1.932	5.569	3.242
SO42-	3.782	4.117	4.882	10.828	21.050
Na	0.731	0.285	0.240	0.105	0.491
NH	1.633	1.821	2.162	5.037	5.770
K	0.206	0.112	0.066	0.024	0.401
Ca	0.149	0.196	0.311	0.038	1.388
Mg	0.050	0.048	0.033	0.016	0.209
OC	2.513	1.755	3.136	1.664	4.544
EC	0.496	0.748	0.742	1.257	3.190
Mg	0.090	0.028	0.056	0.020	0.079
Al	0.011	0.109	0.139	0.088	0.152
K	0.152	0.098	0.080	0.033	0.193
Ca	1.466	0.129	0.206	0.045	0.000
V	0.000	0.006	0.011	0.114	0.062
Cr	0.093	0.003	0.003	0.013	0.011
Mn	0.151	0.018	0.018	0.039	0.058
Fe	0.340	0.117	0.144	0.273	0.660
Ni	0.037	0.004	0.003	0.009	0.008
Cu	0.020	0.006	0.010	0.013	0.015
Zn	0.008	0.053	0.088	0.110	0.437
Se	0.001	0.001	0.003	0.001	0.003
Cd	0.001	0.000	0.001	0.000	0.001
Pb	0.006	0.009	0.022	0.012	0.035

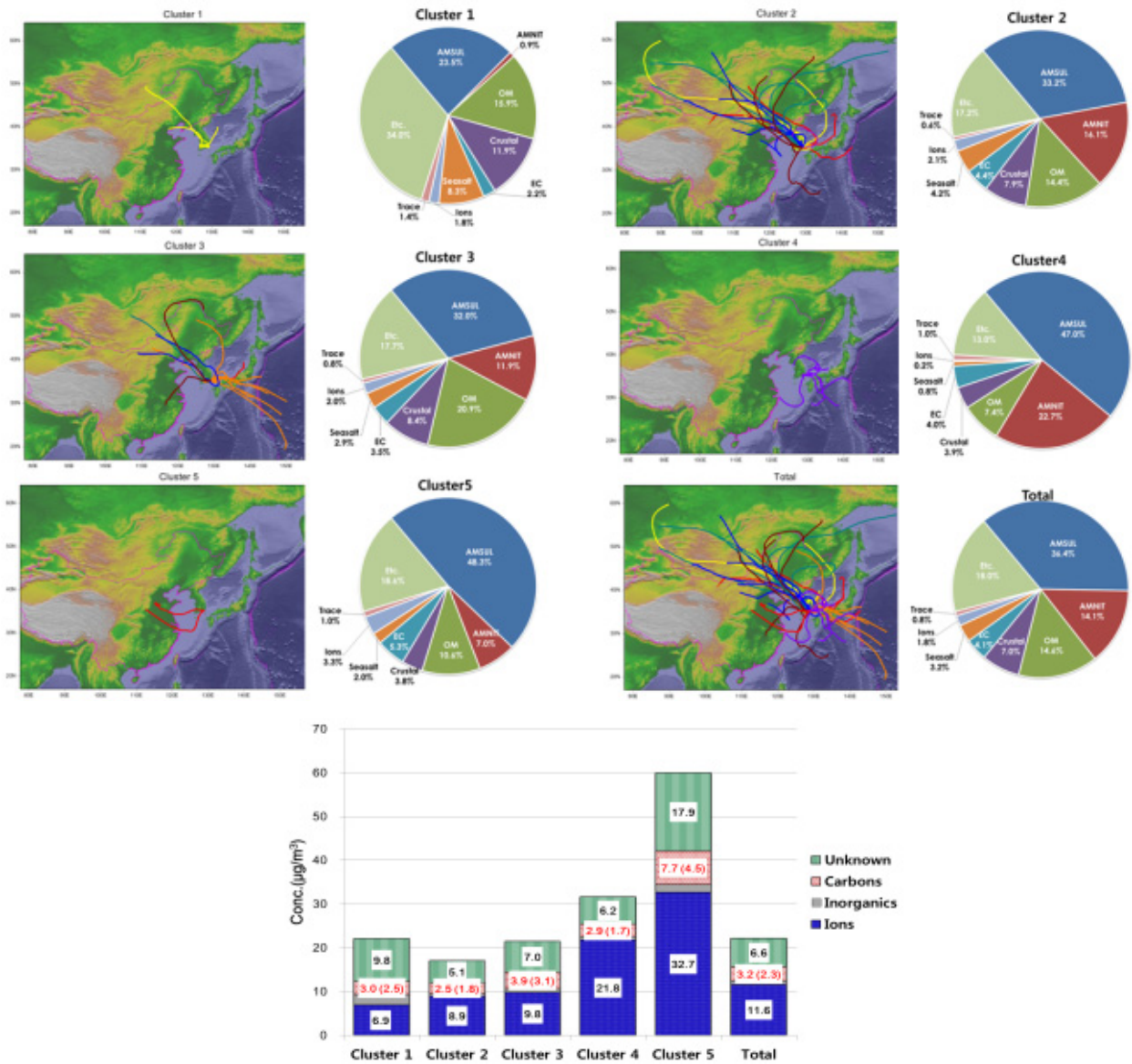


Fig. 8. The air backward trajectory and reconstructed PM_{2.5} mass composition according to each cluster.

기상모델링 분석

미세먼지 2차 생성과 관련하여 기상요소를 공간적으로 상세히 분석하기 위하여 앞서 분석되었던 군집별로 가장 농도가 높은 사례일에 대하여 기상모델링을 수행하였으며, 그 결과를 그림 10에 나타내었다. 시간 및 일자별로 기류유입을 확인하여 기류에 따른 2차 생성 미세먼지의 추이를 확인하였다.

그림 9는 각 군집별 최고 PM_{2.5} 농도를 나타낸 시간에 대한 기상장 수치모의의 결과와 역궤적 분석 결과를 나타낸 그림이다. 군집 1중 최고 농도를 나타낸 날은 2012년 10

월 14일 22LST에 나타났으며, 이 군집은 SO₂, NO₂ 등의 가스상에 의한 영향은 적었으나, 유기탄소 에어로졸 생성 영향은 컸던 군집으로 역궤적 분석결과 중국 동북부 지역의 영향을 받고 있었으며, 한반도의 PBL은 500 m 이하로 낮게 형성되었고, 북동풍의 영향을 받고 있었던 것으로 분석되었다.

군집 2중 최고 농도를 나타낸 날은 2013년 4월 14일 8LST로 PM_{2.5} 농도가 군집들 중에서는 가장 낮은 농도로 나타났다. 한반도 PBL은 1 km내외로 형성되었으며, 중국 대륙에서의 PBL도 1 km 이상으로 대기안정도가 낮아 대기오염물질 농도도 낮게 나타나면서 한반도 PM_{2.5}

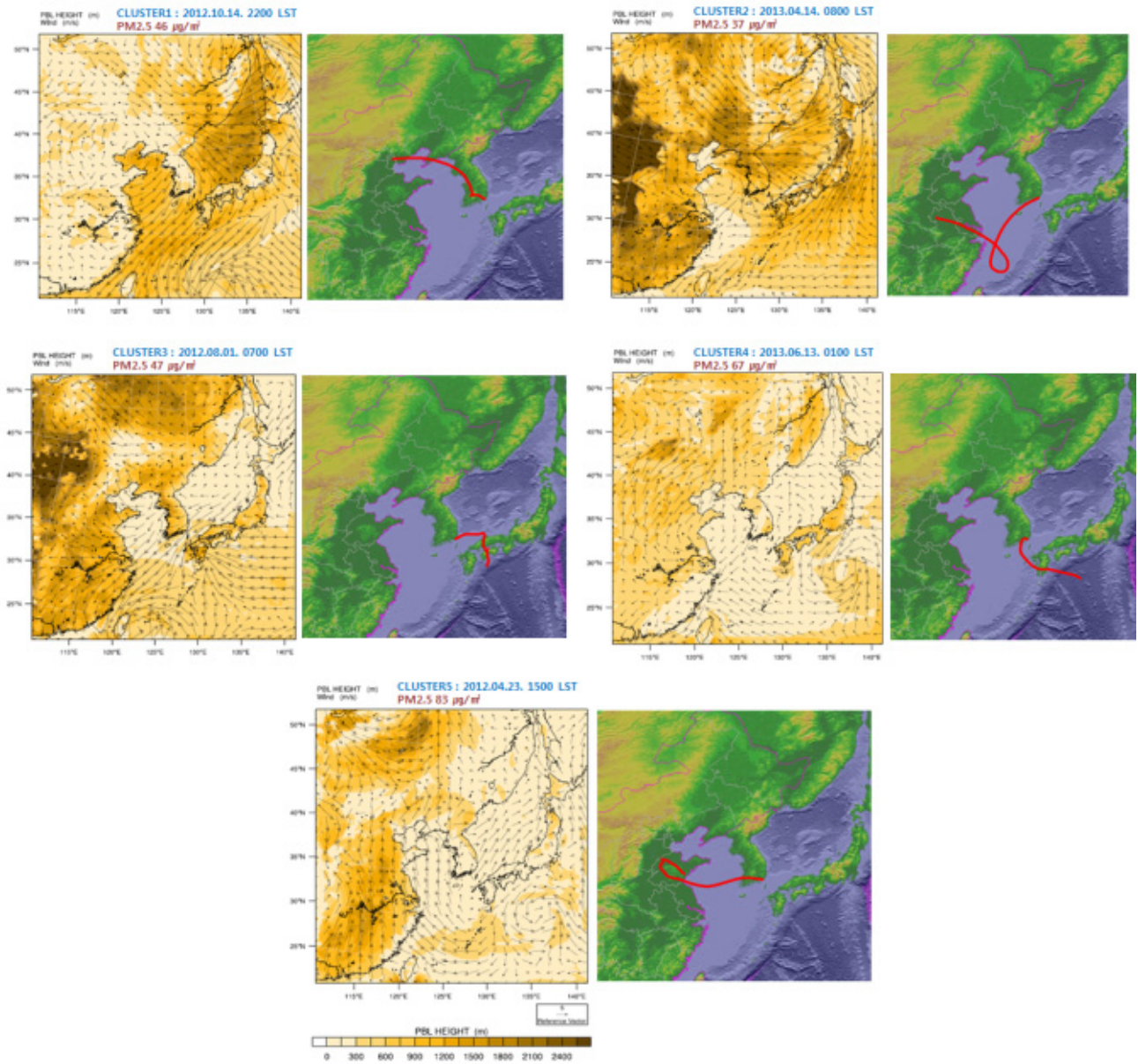


Fig. 9. The results of the atmospheric modeling at the high PM2,5 concentration time among each cluster.

농도도 낮게 나타난 것으로 판단된다. 군집 3중 가장 높게 나타난 날은 2012년 8월 1일 7LST로 SO₂, NO₂ 등의 가스상에 의한 영향과 유기탄소 에어로졸 생성 영향을 동시에 받았으나, PM2.5 질량 농도는 높지 않았던 것으로 앞서 분석되었다. 이 날은 한반도를 포함한 동북아 지역의 PBL농도가 대부분 1 km 이상으로 대기안정도가 낮게 나타난 날이었으며, 역궤적 분석결과 일본 남부지역에서의 기류 영향을 받았으며, 부산지역은 북동풍의 해양의 영향을 받고 있었던 것으로 분석되었다. 군집 4의 최고일

은 2013년 6월 13일 1LST로 SO₂, NO₂ 등의 가스상에 의한 영향은 높았으나, 유기탄소 에어로졸 생성 영향은 낮았던 것으로 앞서 분석되었으며, 일본 남부 지역에서의 역궤적 기류 영향을 받았고, 부산지역은 남서풍의 영향을 받고 있었다. 군집 5의 최고일은 2012년 4월 23일 15LST로 PM2.5 질량 농도가 다른 군집에 비해 높았던 사례로 1차, 2차 미세먼지 생성이 활발하였던 것으로 앞서 분석되었다. 한반도의 PBL은 500 m 이하로 낮게 나타났으며, 역궤적 분석결과 중국 동부지역의 영향을 받았

으며, 당시 바람은 남풍이 나타나고 있었다.

결론

부산지역 2차 생성 미세먼지의 특성을 이해하고 관련 배출원을 분석하여 대기질 개선을 위해 통계적, 물리화학적 분석 및 대기질 모델링 방법을 사용하였다. 기상요소와 기류의 역궤적을 분석하였으며, 부산지역 2차 미세먼지 생성에 관하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 대기 중 1차오염물질인 가스상에서 2차 미세먼지 생성은 주로 PM10보다는 입자의 크기가 더 작은 PM2.5와 관련되어 있다고 할 수 있다. 부산지역 PM2.5는 중국 동부 또는 남동부 지역과 같은 산업화가 발달된 지역에서 발생한 기류의 영향과 낮은 PBL 고도, 이동성 고기압의 영향과 같은 안정한 대기환경 조건, 습도가 풍부할 때 농도가 높은 것으로 나타났다.
2. 대상사례기간 중 PM2.5 평균농도는 22.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 나타났다. Mass closure 모델을 이용한 PM2.5 성분 재조성 결과, $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 8.04 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (36.4 %) > OM (유기물질) 3.22 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (14.6 %) > NH_4NO_3 3.11 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (14.1 %) > Crustal 1.55 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (7.0 %) > EC(무기탄소) 0.90 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (4.1 %) > Seasalt 0.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (3.2 %) > 이온성분이 0.41 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (1.8 %) > Trace (미량무기원소) 0.18 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (0.8 %)로 나타났고, 기타 미확인 물질은 3.97 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (18.0 %)으로 확인되었다. 여기서 2차 생성과 관련된 부분은 대기 중 SO_2 , NO_2 등 가스상 물질이 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 와 NH_4NO_3 과 같은 입자를 생성하는 부분으로 50.5 %를 차지하였고, 식생 연소 등에 의한 2차 유기 입자와 관련된 부분은 14.6 % 그리고 미확인 부분인 18.0 %에도 상당부분 존재할 것으로 판단된다.
3. 군집분석 결과 총 5개의 군집으로 나눌 수 있었으며, 그 중 2차 생성과 관련하여 4개의 군집으로 정리할 수 있었다. 군집 1은 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 와 NH_4NO_3 과 같은 입자의 비율이 적었으나, 유기탄소입자 영향이 큰 경우로 전체 PM2.5 질량농도는 낮았으며, 중국 북부지역과 러시아 지역에서의 기류 영향을 받았던 것으로 분석되었다. 군집 3은 SO_2 , NO_2 와 같은 가스상의 영향과 유기탄소 입자 영향을 동시에 받았으나, PM2.5 질량농도가 높지 않았으며, 중국 북부지역과 러시아 또는 북태평양의 기류를 받은 것으로 분석되었다. 군집 4는

가스상 영향은 높았으나 유기탄소 입자 영향이 낮았던 군집으로 중국 남동부 지역과 한반도 주변 정체성 기류의 영향을 받았다. 군집 5는 PM2.5 농도가 높게 나타났다. 1차, 2차 미세먼지 생성이 활발하였던 군집이었으며, 중국 동부 지역에서 발생한 기류의 영향을 받고 있었다.

4. 기상모델링을 이용하여 각 군집별 최고 PM2.5 농도를 나타내는 시각의 기류와 역궤적을 분석해 보았다. 가장 농도가 높은 2012년 4월 23일 15LST는 1차, 2차 미세먼지 생성이 활발했던 군집 5에 속했던 날로 한반도의 PBL고도가 500 m 이하로 낮게, 중국 동부지역의 역궤적 영향을 받았던 것으로 분석되었다. 다음으로 농도가 높은 날은 2013년 6월 13일 1LST로 SO_2 , NO_2 등의 가스상에 의한 영향은 높았으나, 유기탄소 에어로졸 생성 영향이 낮았던 군집 4에 속해 있었고, PBL고도가 낮게 나타났으며, 일본 남부지역의 역궤적의 영향을, 남서풍의 영향을 받고 있었다.

참고문헌

1. 국립환경과학원, “2011 대기오염물질 배출량”.
2. 부산광역시 보건환경연구원, “2013 대기질 평가 보고서”, (2014).
3. 강충민, 박성균, 선우영, 강병욱, 이학성, “서울시 미세먼지(PM_{2.5})의 호흡기질환 사망과의 연관성 연구”, *한국대기환경학회지*, 22(5), pp.554~563(2014).
4. 박기형, “부산지역 대기 중 PM_{2.5}의 화학적 조성과 건강 위해도 평가 연구”, *공학박사 학위논문*(2014).
5. 박태술, “포천지역에서 측정된 PM₁₀ 중 2차 생성 입자에 관한 연구”, *대한위생학회*, 20(4), pp.9~20(2005).
6. Monk, P. S., C. Granier, S. Fuzzi, A. Stohl and R. von Glasow, “Atmospheric composition change—global and regional air quality”, *Atmospheric Environment*, 43(33), pp.5268~5350(2009).
7. Harrison, R. M. and R. V. Grevken, “Atmospheric Particles, IUPAC series on analytical and physical chemistry of environmental system” *volume 5*, John Wiley & sons, New York(1998).
8. Seinfeld, J.H. and S.N. Pandis, “Atmospheric Chemistry and Physics from Air pollution to Climate Change”, *John Wiley & Sons, New York*, pp.239~244, 507~508, 531~537, p.738.

9. Zhao, W. X. and P. K. Hopke, "Source apportionment for ambient particles in the San Gorgonio wildness", *Atmospheric Environment*, 35(35), pp.5901~5910(2004).
10. Atkinson, R., "Atmospheric chemistry of VOCs and NOx", *Atmospheric Environment*, 34(12~14), pp.2063~2101(2000).
11. "월경성 대기 에어로졸 모니터링 및 영향분석 연구(2)", *국립환경과학원 연구용역과제*, 2010. 11.
12. "「미세먼지(PM2.5)」에 관한 광역 분포 특성 조사 보고서"(2014).
13. United States Environmental Protection Agency, "Air Quality Criteria for Particulate Matter, National Center for Environmental Assessment Office of Research and Development"(2001).
14. Heald, C. L., D. J. Jacob, R. J. Park, L. M. Russell, B. J. Huebert, J. H. Seinfeld, H. Liao, and R. J. Weber, "A large organic aerosol source in the free troposphere missing from current models", *Geophysical Research, Lett*, 32(18)(2005).
15. 임세희, 이미혜, 강경식, "제주도 고산 PM10, PM2.5, PM1.0 중 OC와 EC의 계절적 변화 특성", *한국대기환경학회지*, 26(5), pp.567~580(2010).
16. 정진희, 김성락, 최보라, 김계신, 허중배, 이승묵, 한영지, "춘천과 서울에서 측정된 PM2.5내 탄소성분의 농도 특성에 관한 연구", *한국대기환경학회*, 25(2), pp.141~153(2009).