

관측 기반 지상 대기오염물질 농도와 대기혼합고의 변동성 및 상관관계 분석

김현경¹⁾ · 정희정¹⁾ · 박정민²⁾ · 신혜정²⁾ · 이그림²⁾ · 이규영²⁾ · 김해리²⁾ · 엄준식^{1),3),4)*}

¹⁾부산대학교 BK21 지구환경시스템 교육연구단, 지구환경시스템학부 대기과학전공,

²⁾국립환경과학원 기후대기연구부 대기환경연구과, ³⁾부산대학교 대기환경과학과,

⁴⁾부산대학교 환경연구원

(접수일: 2024년 6월 25일, 게재확정일: 2024년 7월 2일)

Analysis of the Variability and Correlation between Ground-Level Air Pollutant Concentrations and Atmospheric Mixing Layer Height based on Observations

Hyunkyoung Kim¹⁾, Heejung Jung¹⁾, Jung Min Park²⁾, Hyejung Shin²⁾,
Greem Lee²⁾, Gyu-Young Lee²⁾, HaeRi Kim²⁾, and Junshik Um^{1),3),4)*}

¹⁾BK21 School of Earth and Environmental Systems, Division of Earth Environmental System,
Department of Atmospheric Sciences, Pusan National University, Busan, Korea

²⁾National Institute of Environmental Research, Climate and Air Quality Research Department,
Air Quality Research Division, Incheon, Korea

³⁾Department of Atmospheric Sciences, Pusan National University, Busan, Korea

⁴⁾Institute of Environmental Studies, Pusan National University, Busan, Korea

(Manuscript received 25 June 2024; accepted 2 July 2024)

Abstract This study analyzed the variability and correlation between ground-level air pollutant concentrations and the atmospheric mixing layer height using data from four types of air pollutants (PM_{2.5}, PM₁₀, NO₂, and O₃) collected at AirKorea monitoring stations nationwide over a five-year period (2018~2022), and aerosol backscatter data observed by the Vaisala CL31 to derive atmospheric mixing layer heights. The five-year trends and variability of ground-level air pollutant concentrations under seasonal and hourly conditions were examined, as well as the seasonal distribution and diurnal variation of the atmospheric mixing layer height. Five correlation coefficient methodologies were applied to analyze the correlations between ground-level air pollutants and atmospheric mixing layer height under various seasonal and hourly conditions, confirming the dilution effect of the atmospheric mixing layer height. The results showed that PM_{2.5}, PM₁₀, and NO₂ generally had negative correlations with the atmospheric mixing layer height, while O₃ showed a strong positive correlation up to an altitude of 1,200~1,500 meters, and a negative correlation beyond that altitude. It was also shown that a single high concentration event (e.g., PM₁₀) can alter the overall correlation. The correlation can also vary depending on the characteristics of the correlation coefficient methodology, highlighting the importance of applying the appropriate methodology for each case during the analysis process.

Key words: Atmospheric mixing layer height, Ground-level air pollutant concentrations, Seasonal and hourly variability, Correlation coefficient

*Corresponding Author: Junshik Um, Department of Atmospheric Sciences, Pusan National University, 2, Busandaehak-ro 63beon-gil, Geumjeong-gu, Busan 46241, Korea.
Phone: +82-51-510-2171, Fax: +82-51-515-1689
E-mail: jjunum@pusan.ac.kr

1. 서 론

대기오염은 국민의 건강과 환경에 중대한 영향을 미치는 문제로, 대기오염물질의 농도 변화를 이해하고 예측하는 것은 매우 중요하다. 최근 연구에 따르면, 오존(O₃)을 제외한 이산화질소(NO₂), 미세먼지(PM₁₀), 초미세먼지(PM_{2.5})와 같은 주요 지상 대기오염물질의 농도는 꾸준히 감소하는 추세를 보이고 있다(NIER, 2023). 그럼에도 불구하고, 고농도의 대기오염 사례는 여전히 주기적으로 보고되고 있다(Yeo and Kim, 2019; Hong and Song, 2022; Jee et al., 2022; Ju et al., 2023; Nam et al., 2023). PM_{2.5}와 PM₁₀은 천식, 폐 기능 저하와 같은 호흡기계 질환 뿐만 아니라 심혈관계 및 소화계 질환을 유발할 수 있는 것으로 알려져 있다(Choe and Lee, 2015; Choi et al., 2020). 또한, 고농도 O₃에 장시간 노출될 경우, 폐활량 감소와 인체 면역력 저하를 비롯한 다양한 호흡기 및 피부 질환을 초래할 수 있다(Wisthaler and Weschler, 2010; Han et al., 2020). 따라서 지속적인 대기오염물질 농도 관측을 통한 대기오염물질의 영향 이해와 그 농도를 결정하는 주요 요인들을 파악하는 것은 매우 중요하다.

지상 대기오염물질 농도는 도시화, 산업화, 기상 조건, 동아시아 몬순 등 다양한 요인에 의해 영향을 받는다(Schäfer et al., 2006; Su et al., 2018; Lee et al., 2019; Solanki et al., 2019; Kim et al., 2020; Kim et al., 2021; Ma et al., 2021; Wang et al., 2021; Bae et al., 2022). 지상 대기오염물질의 농도를 결정하는 다양한 요인 중 하나인 혼합층(Mixing Layer, ML)은 지표면에 인접한 대기층으로, 대류 및 기계적 난류에 의해 주로 1시간 이내에 대기오염물질이 혼합되는 난류층으로 정의된다(Stull, 1988; Seibert et al., 2000). 대기 혼합층의 높이 즉, 대기혼합고(Atmospheric Mixing Layer Height, AMLH)는 지표면에서 배출된 대기오염물질의 연직 확산을 결정하며, 이는 대기오염물질의 효과적인 희석에 중요한 역할을 한다고 알려져 있다(Stull, 1988; Seibert et al., 2000; Roy et al., 2012; Tang et al., 2016; Caicedo et al., 2017).

라디오존데를 이용하여 대기 연직구조를 직접 관측함으로써 대기혼합고를 산출하는 방법이 있지만, 이는 제한된 지역과 특정 시간대에서만 관측이 가능하기 때문에 연속적인 대기혼합고 관측에 어려움이 있다(Caicedo et al., 2017). 대기혼합고는 대기오염물질 농도 뿐만 아니라 기온 역전, 강한 수직 윈드시어 등과 연관되어 있어, 연속적으로 대기혼합고를 관측하기 위해서는 원격 탐사 방법이 적합하다(Wiegner et al., 2014). 현재 위성, 라이다, 라디오미터, 운고계 등 다양한 원격 관측 방법이 사용되고 있다. 그중에서도

운고계의 에어로졸 후방산란 관측 자료를 이용하여 대기혼합고를 산출하는 방법은 연속적인 관측과 경제성의 이유로 주목받고 있는 방법이다(Emeis et al., 2009; Tang et al., 2016; Jung and Um, 2022).

운고계 관측 자료를 통해 대기혼합고를 산출하는 연구는 활발하게 수행되었다. 예를 들어, Eresmaa et al. (2006)은 운고계와 라디오존데 관측 자료를 통해 산출된 대기혼합고를 비교하여 상관계수 0.90의 높은 상관성을 확인하였다. Caicedo et al. (2017)은 운고계로 관측한 에어로졸 후방산란 자료에 경사법(gradient method)과 군집 분석법, Haar wavelet 방법을 적용하여 산출한 대기혼합고를 비교하였다. Kotthaus and Grimmond (2018)은 운고계 관측 자료에 Characterising the Atmospheric Boundary Layer based on ALC Measurements 알고리즘을 적용하여 대기혼합고를 산출하였다. 이외에도 운고계 관측 자료에 다양한 방법론을 적용하여 대기혼합고를 산출하거나, 마이크로라디오미터 등 다양한 관측 장비를 동반하여 대기혼합고를 비교하는 연구가 수행되었다(Emeis et al., 2007; Wiegner et al., 2014).

대기혼합고를 산출하는 연구와 함께, 산출된 대기혼합고와 지상 대기오염물질 간의 상관성을 분석한 연구 또한 활발히 진행되고 있다. Kim et al. (2020)은 Korea-United States Air Quality (KORUS-AQ) 캠페인 기간 동안 서울과 수도권을 중심으로 운고계 관측 자료로부터 산출된 대기혼합고와 PM_{2.5}와 CO가 각각 결정계수가 0.1 및 0.23으로 음의 상관관계를 나타냈으며, O₃는 결정계수가 0.3의 양의 상관관계를 보였다고 보고했다. Lee et al. (2019)는 경사법 기반 알고리즘을 통해 산출한 대기혼합고와 O₃, PM₁₀, CO, NO₂, SO₂와의 상관성을 분석하여 양의 상관관계가 나타난 O₃를 제외한 대기오염물질에 대해 대기혼합고와 음의 상관관계가 나타났음을 보고했다. 그 밖에 다수의 선행연구에서 양의 상관관계를 나타내는 O₃를 제외한 대부분의 대기오염물질과 대기혼합고 사이에 대체로 음의 상관관계가 나타남을 보고하였다(Wagner and Kuttler, 2014; Solanki et al., 2019; Wang et al., 2019; Murthy et al., 2020; Ma et al., 2021). 그러나 최근 중국 화북 평원(North China Plain) 관측 자료를 사용한 연구는 O₃와 PM_{2.5} 모두 1,200 m 이하의 대기혼합고와 강한 양의 상관관계를 보였다(Wang et al., 2023). 또한, Geiß et al. (2017)에 따르면 교통 배출원 부근에서는 PM₁₀과 NO_x와 대기혼합고 사이에 양의 상관관계가 나타날 수 있음을 보고하였다. Nguyen et al. (2023)은 겨울철과 달리 슬로바키아의 여름철 PM₁₀, PM_{2.5}, NO_x와 대기혼합고는 유의미한 상관관계가 나타나지 않음을 보고하였다.

일부 선행연구에서는 결정계수 혹은 스피어만 상관

계수(Spearman correlation coefficient)를 사용하기도 하였으나(Schäfer et al., 2006; Kim et al., 2020; Li et al., 2021), 앞서 언급한 선행연구들을 비롯한 대부분의 선행연구에서 지상 대기오염물질과 대기혼합고와의 상관성 분석을 위해 피어슨 상관계수(Pearson correlation coefficient)를 이용하였다. 그러나 관측 자료의 수가 많거나 이상치가 많은 경우 명확한 상관관계를 확인하기 어려울 수 있다. Geiß et al. (2017)은 장소와 배출원과의 근접성 등의 영향으로 인해 상관관계가 변화할 수 있음을 보고하였고, Wagner and Schäfer (2017)의 연구에서는 대기오염물질의 농도가 배출 강도, 풍속, 대기 중 화학 반응 등 여러 요인에 의해 영향을 받기 때문에, 상관관계 분석 시 대기혼합고 값을 균집화하는 것이 필요함을 보였다. 이러한 이유로 많은 연구에서는 관측 자료를 균집화하여 상관성을 분석하였다(Wagner and Schäfer, 2017). 균집화를 통해 계산한 상관계수는 균집화하지 않은 전체 관측 자료를 사용하여 계산한 상관계수보다 더 뚜렷한 상관성을 보이기도 하였다(Wagner and Schäfer, 2017). 이렇듯 다양한 요인들과 균집화 여부에 따라 지상 대기오염물질의 농도와 대기혼합고 간의 상관성은 크게 변화할 수 있으며, 상황에 따라 적절한 상관계수 방법론을 적용하여 분석하는 것이 중요하다.

본 연구의 목적은 2018년부터 2022년까지 5년 간의 국내 지상 대기오염물질 농도 관측 자료와 운고계 관측 자료로부터 산출한 대기혼합고의 변동성과 상관

성을 분석하는 것이다. 장기간에 걸친 광범위한 지역의 관측 자료를 통해 배출원과 기상 조건과 같은 요인의 영향을 최소화하고, 다양한 사례에서 여러 상관계수 계산 방법론을 적용하여 대기혼합고와 지상 대기오염물질 간의 상관성 결과를 비교하고자 한다.

2. 연구 방법 및 자료

2.1 대기오염물질 자료 수집과 대기혼합고 자료 산출

본 연구는 2018년 1월부터 2022년 12월까지의 기간에 대해 수행되었으며, 이 기간 동안 에어코리아(www.airkorea.or.kr)에서 제공하는 대기오염물질 4종($PM_{2.5}$, PM_{10} , NO_2 , O_3)의 시간별 평균 농도의 최종 확정 자료를 수집하였다. 에어코리아의 최종 확정 자료는 일반대기환경 측정망의 도시대기 측정망 525개소, 국가배경농도 측정망 11개소, 교외대기 측정망 27개소, 도로변대기 측정망 58개소, 항만대기 측정망 24개소의 자료를 포함한다. 에어코리아 관측소 정보는 공공데이터포털(www.data.go.kr)에서 제공하는 2023년 기준 자료를 사용하였으며, 2023년 관측소 정보를 기준으로 전국 162개 시군에 설치된 645개소의 관측소 자료가 분석에 사용되었다(Fig. 1a).

국내에는 기상청, 국립환경과학원 대기환경연구소, 학교 등에서 운용하는 다양한 운고계가 설치되어 있다. 운고계는 주로 대기 중 운량 및 운저고도를 관측하는 데 목적을 두고 설치되었으나, 현재는 대기혼합

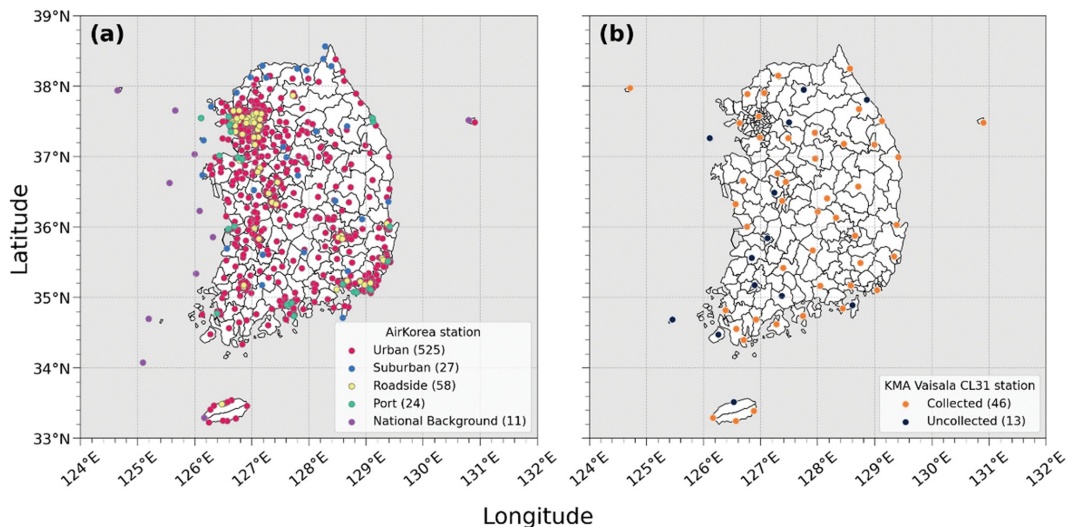


Fig. 1. (a) The spatial distribution of AirKorea monitoring stations across South Korea, categorized into urban, suburban, roadside, port, and national background networks. (b) The spatial distribution of Korea Meteorological Administration (KMA) stations equipped with Vaisala CL31 ceilometers for aerosol backscatter observations, showing stations with collected data and uncollected data during the study period.

고 추정에도 유용하게 사용하고 있다(Lee et al., 2018). 최근에는 대기혼합고 관측의 중요성에 따라 2022년 12월부터 환경부 산하 국립환경과학원 대기환경연구소 9개소에 운고계를 추가적으로 설치하여 운용 중이다. 기상청에서 운용 중인 운고계는 다양한 제조사의 장비를 포함하고 있으며, 각 장비는 레이저의 파장, 연직 관측 범위, 관측 해상도 등의 세부 사양에서 차이를 보인다. 본 연구에서는 관측 장비의 특성에 따른 영향을 최소화하기 위해, 전국적으로 가장 많은 관측소에서 운용하고 있는 Vaisala CL31 운고계를 보유한 기상청 관측소를 연구 대상으로 선정하였다.

Vaisala CL31 운고계는 라이다 기반 관측 장비로, 주기가 짧고 강력한 레이저 펄스를 수직 방향으로 송출한다. 이때 레이저 펄스는 대기 중 안개, 강수, 구름, 에어로졸 등에 의해 후방산란 되어 돌아오는 신호를 수신하고 처리한다. CL31 모델은 지상으로부터 연직으로 최대 7.6 km (25,000 ft)까지 관측할 수 있다. 연직 해상도는 5 m 또는 10 m이며, 측정 간격은 10초에서 60초 사이이다.

전국 기상청 관측소 94개소 중 Vaisala CL31 운고계가 설치된 관측소는 59개소이다. 이 중 연구 기간 동안 운고계 관측 자료가 존재하지 않는 지점은 13개소로, 최종적으로 46개소의 운고계 에어로졸 후방산란 자료를 수집하였다(Fig. 1b). 에어코리아 관측소의 대기오염물질 농도 자료는 1시간 평균 자료이므로, 대기혼합고 자료도 동일한 시간 해상도를 가질 수 있도록 1시간 평균값으로 산출하였다. 대기혼합고를 산출하기 위해 수집한 에어로졸 후방산란 자료를 Lee et al. (2019)에서 개발한 경사법 기반 알고리즘에 적용하여 대기혼합고 자료를 산출하였다. Tang et al. (2016)은 황사와 같은 모래-먼지가 운고계 관측 자료를 이용한 대기혼합고 산출에 큰 오차를 야기함을 보고했다. 또한, 강수 및 하층운이 있는 경우에도 운고계를 사용한 대기혼합고 산출의 신뢰도가 낮아지는 것으로 보고되었다(Zhao et al., 2019). 따라서 본 연구에서 황사일과 강수나 낮은 하층운이 존재하는 시점의 대기혼합고 자료는 분석에서 제외했다.

2.2 분석 방법

지상 대기오염물질과 대기혼합고의 각각의 변동성과 상관관계 분석을 위해 수집한 자료를 연도, 계절, 시간 조건에 따라 세분화하였다. 계절별 분석을 위해 봄은 3월부터 5월, 여름은 6월부터 8월, 가을은 9월부터 11월, 겨울은 12월과 1월부터 2월로 정의하였다. 시간대별 분석을 수행하기 위해 각 관측소의 위경도 정보를 이용하여 일출 및 일몰 시간을 계산하고, 이를 기준으로 변동성 분석 시에는 시간 조건을 하루 전체, 일출 시간부터 일몰 시간까지를 주간, 일몰 시

간부터 일출 시간까지를 야간으로 구분하였다.

일몰과 일출 시에는 태양 복사 에너지의 급격한 변화로 인해 운고계 관측 자료로부터 산출한 대기혼합고의 불확실성이 커진다(Wagner and Schäfer, 2017). 따라서 상관성 분석 시에는 주간을 일출 후 2시간부터 일몰 전 2시간까지, 야간을 일몰 후 2시간부터 일출 전 2시간까지로 정의하여 자료의 불확실성을 최소화하였다.

대기오염물질 농도 자료는 환경부에서 관리하고, 운고계 관측 자료는 기상청 산하 관측소에서 수집되기 때문에 대기오염물질 농도 자료와 운고계 관측 자료가 수집되는 관측소들의 위치는 서로 상이하다. 따라서 대기오염물질 농도와 대기혼합고의 상관성을 분석하기 위해 두 자료를 병합하는 과정이 필요하다. 더 많은 관측 자료를 이용하여 대기오염물질과 대기혼합고의 상관성을 분석하기 위해, 관측 지점 수가 더 많은 에어코리아 관측소를 중심으로 기상청 관측소 자료를 병합하였다. Zhu et al. (2018)에 따르면 평지를 기준으로 25 km 내에서의 대기혼합고는 낮은 변동성을 보인다. 하지만 한반도는 복잡한 지형적 특성을 가지고 있으므로, 이를 고려해 관측소 간 거리가 5 km 이내인 경우만 자료를 병합하고 분석을 수행했다. 따라서 상관성 분석 시, 에어코리아 관측소 116개소의 대기오염물질 농도 자료와 39개소의 기상청 관측소 자료로부터 산출된 대기혼합고 자료를 활용하였다. 에어코리아 관측소와 기상청 관측소의 거리는 관측 지점의 위경도 자료를 사용하여 계산하였다.

본 연구에서는 상관계수 방법론에 따른 대기오염물질 농도와 대기혼합고 사이의 상관성을 분석하기 위해 피어슨 상관계수를 사용하였다. 계절 및 시간 조건에 따라 구분된 사례들에 대해 상관계수를 구하는 3가지 방법론을 적용하였다. 1) 사례 전체 자료에 대한 피어슨 상관계수(r)를 계산하는 방법, 2) 대기혼합고를 기준으로 구간(bin)을 나누고, 구간별 평균 농도 값과 평균 대기혼합고 값을 이용하여 피어슨 상관계수(r_b)를 계산하는 방법, 3) 방법 2에 구간별 자료 수를 가중치로 두어 가중 상관계수(r_w)를 구하는 방법. 각 사례에 대한 대기혼합고 구간은 Sturges (1926)에서 언급한 Sturges 공식을 이용하여 계산하였다. 대기혼합고에 따른 최적의 구간 너비를 계산하는 과정은 식(1)과 같다.

$$C = \frac{R}{1 + 3.322 \log n} \quad (1)$$

여기서 C 는 대기혼합고의 최적의 구간 너비, R 은 대기혼합고 값의 최댓값과 최솟값의 차이, n 은 자료의 총 개수를 의미한다. 각 사례의 자료 개수에 따라 구간 너비는 113 m에서 203 m 사이로 설정되었으며,

평균적으로 약 163 m 간격으로 구성되었다.

다음으로, 상관계수 방법론의 첫 번째 방법인 피어슨 상관계수(r)를 구하는 방법은 식(2)와 같다.

$$r = \frac{\sum(X_i - \bar{X})(Y_i - \bar{Y})}{\sqrt{\sum(X_i - \bar{X})^2 \sum(Y_i - \bar{Y})^2}} \quad (2)$$

여기서 i 는 각 개별 관측 자료를 의미하며, X_i 는 대기오염물질의 농도, Y_i 는 대기혼합고 값을 나타낸다. \bar{X} 와 \bar{Y} 는 각각 대기오염물질 농도와 대기혼합고의 평균값을 나타낸다.

상관계수 방법론의 두 번째 방법, 구간별 평균값의 상관계수(r_b)를 구하는 방법은 식(3)과 같다.

$$r_b = \frac{\sum(X_{bi} - \bar{X}_b)(Y_{bi} - \bar{Y}_b)}{\sqrt{\sum(X_{bi} - \bar{X}_b)^2 \sum(Y_{bi} - \bar{Y}_b)^2}} \quad (3)$$

여기서 X_{bi} 와 Y_{bi} 는 구간별 대기오염물질 농도 평균값과 대기혼합고의 평균값을 나타내며, \bar{X}_b 와 \bar{Y}_b 는 구간별 대기오염물질 농도 평균값과 대기혼합고 평균값의 전체 평균을 나타낸다.

상관계수 방법론의 세 번째 방법, 가중 상관계수를 구하기 위해 대기오염물질 농도와 대기혼합고의 가중 평균 \bar{X}_w 와 \bar{Y}_w 를 구하는 과정은 식(4) 및 식(5)와 같다.

$$\bar{X}_w = \frac{\sum w_{bi} X_{bi}}{\sum w_{bi}} \quad (4)$$

$$\bar{Y}_w = \frac{\sum w_{bi} Y_{bi}}{\sum w_{bi}} \quad (5)$$

여기서 w_{bi} 는 각 구간의 자료의 개수로 정의된 가중치이다. 최종적으로 가중 평균을 이용하여 가중 상관계수(r_w)를 구하는 방법은 식(6)과 같다.

$$r_w = \frac{\sum w_{bi} (X_{bi} - \bar{X}_w)(Y_{bi} - \bar{Y}_w)}{\sqrt{\sum w_{bi} (X_{bi} - \bar{X}_w)^2 \sum w_{bi} (Y_{bi} - \bar{Y}_w)^2}} \quad (6)$$

추가적으로 각 구간들에 대해 자료의 개수가 30 이하인 경우, 구간별 상관계수에 이상치 또는 특정 사례의 영향이 크게 반영될 수 있으므로 이를 제외하고 계산 결과를 비교하였다. 이러한 결과를 각각 r_{b30} 과 r_{w30} 으로 나타냈다.

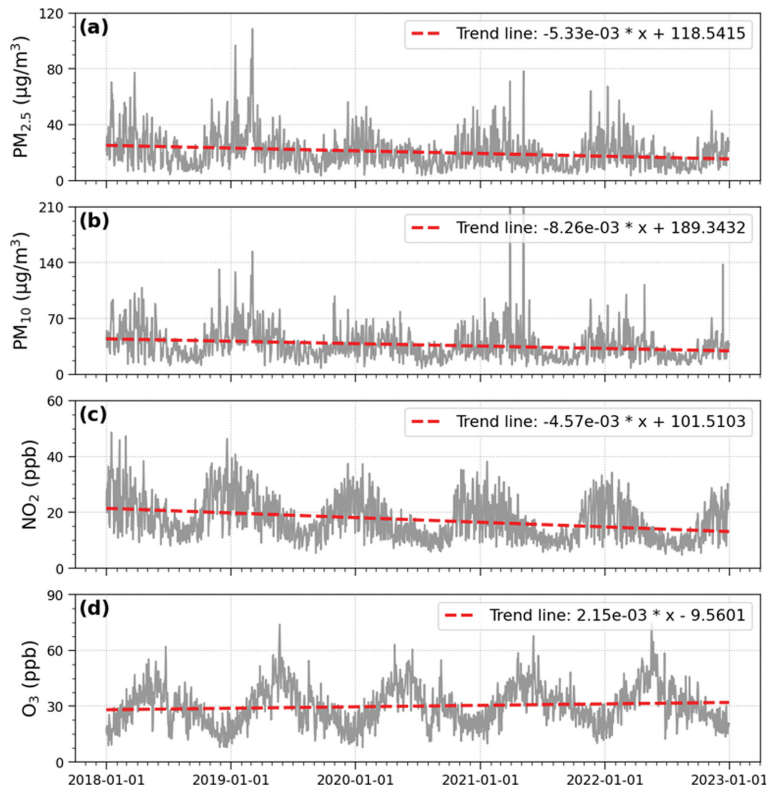


Fig. 2. Trends in air pollutant concentrations from 2018 to 2022. (a) PM_{2.5}, (b) PM₁₀, (c) NO₂, and (d) O₃ concentrations. Red dashed lines represent linear regression trends for each pollutant.

3. 연구 결과

3.1 지상 대기오염물질의 변동성 분석

에어코리아 사이트에서 수집한 전국 645개소의 최종 확정 자료를 이용하여 2018년부터 2022년까지 4종의 대기오염물질 농도의 시간적 변동성을 분석하였다. Figure 2는 2018년부터 2022년까지 대기오염물질별 농도 추세를 나타낸다. $PM_{2.5}$, PM_{10} , NO_2 는 5년 간 농도가 꾸준히 감소하는 경향을 보였다. $PM_{2.5}$ 농도는 2018년(연평균: $22.80 \pm 17.80 \mu\text{g m}^{-3}$)부터 2022년(연평균: $17.63 \pm 13.62 \mu\text{g m}^{-3}$)까지 감소 추세가 나타났으며(Fig. 2a), PM_{10} 농도도 2018년(연평균: $39.75 \pm 25.50 \mu\text{g m}^{-3}$)부터 2022년(연평균: $30.54 \pm 19.01 \mu\text{g m}^{-3}$)까지 감소하는 추세를 보였다(Fig. 2b). NO_2 농도 역시 2018년(연평균: $20.8 \pm 15.9 \text{ppb}$)부터 2022년(연평균: $14.6 \pm 12.2 \text{ppb}$)까지 꾸준히 감소하는 경향이 나타났다(Fig. 2c). 이러한 대기오염물질 농도의 감소 추세는 중국의 지속적인 배출량 감소, COVID-19의 발생, 국내 미세먼지 계절관리제와 같은 배출량 저감 정책 효과로 설명할 수 있다(Wang et al., 2021; Zhai et al., 2021; Bae et al., 2022). 반면, O_3 농도는 2018년(연평균: $26.8 \pm 19.2 \text{ppb}$)부터 2022년(연평균: $32.2 \pm 19.3 \text{ppb}$)까지 꾸준히 증가하는 경향을 보였다. 이는 장거리 수송, 다양한 기상 조건의 변화, NO_x 및

VOCs (volatile organic compounds) 배출량의 증가와 관련이 있다(Shin et al., 2012; Seo et al., 2014; Kang et al., 2019; Hong and Song, 2022).

Figure 3은 계절 및 시간 조건에 따른 대기오염물질별 농도 분포를 나타낸다. 각 박스 플롯에서 박스의 아래쪽 경계는 Q1(25번째 백분위수), 위쪽 경계는 Q3(75번째 백분위수)를 나타내며, 박스 내부의 검은 선은 중앙값(50번째 백분위수)을 나타낸다. 박스의 위와 아래쪽에 위치한 수염(whiskers)은 각각 $Q3 + 1.5 \times IQR$, $Q1 - 1.5 \times IQR$ 의 범위를 나타내며, 이때 IQR (interquartile range)은 $Q3 - Q1$ 으로 정의된다. 하얀색 원은 평균값을 의미한다.

$PM_{2.5}$ 는 겨울(주간: $25.75 \pm 19.07 \mu\text{g m}^{-3}$, 야간: $25.22 \pm 18.33 \mu\text{g m}^{-3}$)에 가장 높은 농도를 보였다(Fig. 3a). 겨울철 $PM_{2.5}$ 의 농도가 높은 이유는 장거리 수송, 대기 정체, 난방 등 다양한 원인에 의한 것으로 해석할 수 있다(Lee et al., 2020; Jeong et al., 2024). 반면 $PM_{2.5}$ 는 여름에 가장 낮은 농도(주간: $14.89 \pm 10.65 \mu\text{g m}^{-3}$, 야간: $14.75 \pm 10.59 \mu\text{g m}^{-3}$)를 보였다(Fig. 3a). PM_{10} 은 봄에 가장 높은 농도(주간: $47.15 \pm 46.71 \mu\text{g m}^{-3}$, 야간: $44.41 \pm 45.65 \mu\text{g m}^{-3}$)를 보였다(Fig. 3b). 이는 $PM_{2.5}$ 와 유사하게 황사와 대기 정체, 장거리 수송 등의 영향에 의한 것으로 해석된다(Nam et al., 2019; Han and Um, 2023). PM_{10} 도 여름에 가

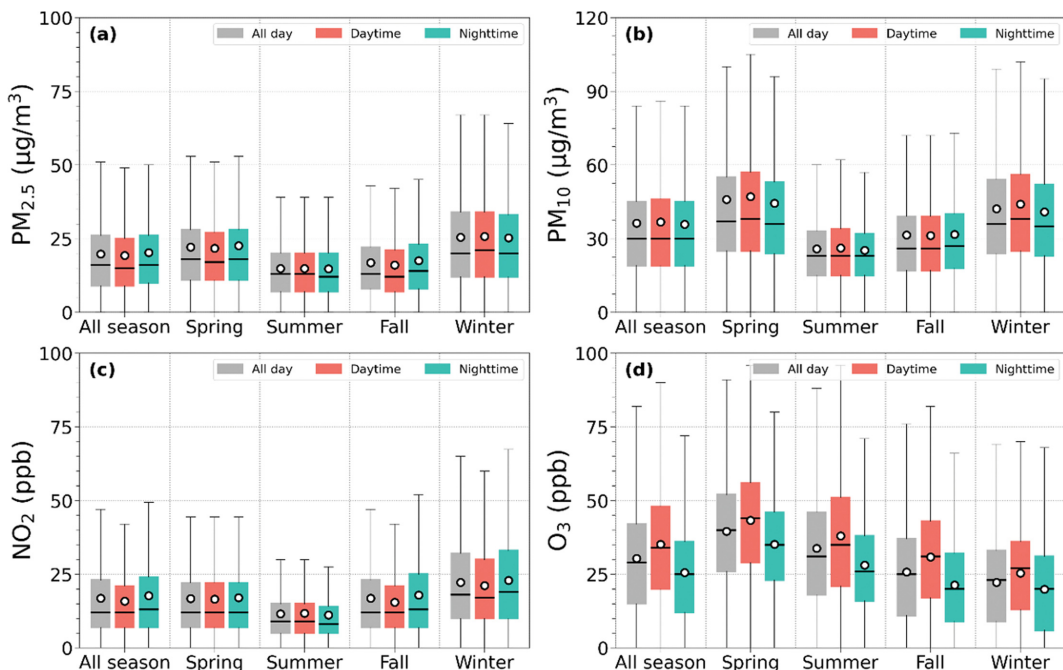


Fig. 3. Seasonal and diurnal variations of air pollutant concentrations: (a) $PM_{2.5}$, (b) PM_{10} , (c) NO_2 , and (d) O_3 . Boxplots show concentrations for all day (gray), daytime (red), and nighttime (cyan) across different seasons.

장 낮은 농도(주간: $26.24 \pm 15.86 \mu\text{g m}^{-3}$, 야간: $25.20 \pm 14.88 \mu\text{g m}^{-3}$)를 보였다(Fig. 3b). $\text{PM}_{2.5}$ 와 PM_{10} 은 여름철 높게 형성되는 대기혼합고와 강수에 의한 세정효과로 인해 다른 계절에 비해 농도가 낮게 나타난다(Kim and Kim, 2020; Han and Um, 2023).

NO_2 도 겨울에 가장 높은 농도(주간: 21.19 ± 15.09 ppb, 야간: 22.94 ± 16.19 ppb)를 보인 반면, 여름에 가장 낮은 농도(주간: 11.78 ± 9.55 ppb, 야간: 11.19

± 9.23 ppb)를 보였다(Fig. 3c). 겨울에 NO_2 의 농도가 높게 나타나는 이유는 태양 복사 에너지의 영향이 적어 NO_x 가 산화되어 NO_3 로 전환되는 속도가 느려지는 것과 겨울철 난방으로 인한 화석 연료 연소 등으로 설명할 수 있다(Albertin et al., 2024). 반면 여름철에는 강한 태양 복사 에너지로 인해 광화학 반응이 촉진되어 대기 중 NO_2 농도가 감소한다(Albertin et al., 2024).

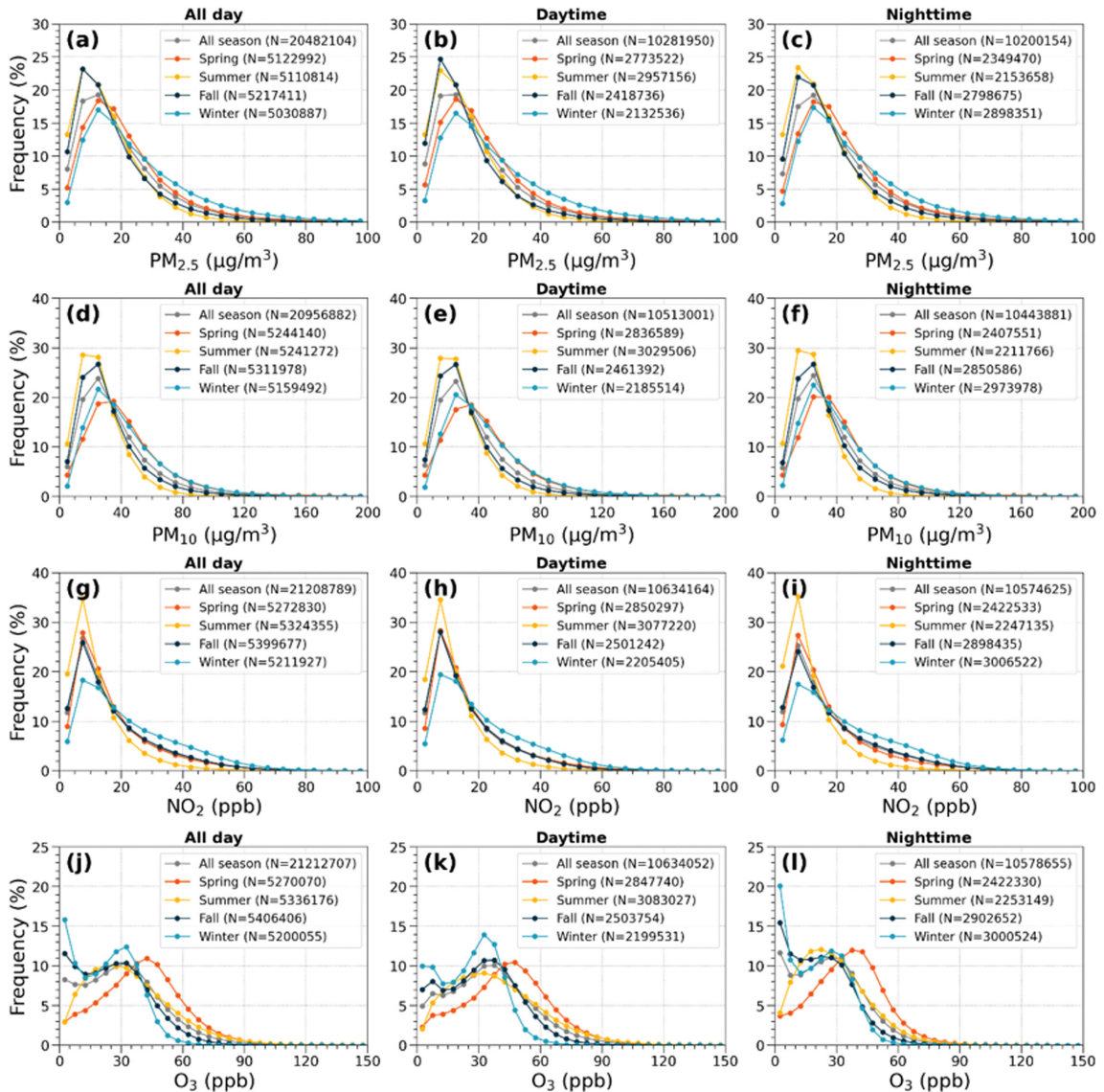


Fig. 4. Frequency distributions of air pollutant concentrations by season from 2018 to 2022. Each row represents a different air pollutant ($\text{PM}_{2.5}$, PM_{10} , NO_2 , and O_3), while each column represents all day, daytime, and nighttime distributions. The frequency is calculated as the number of data points within each bin divided by the total number of data points for each respective condition and season, multiplied by 100.

O₃는 봄에 가장 높은 농도(주간: 43.33 ± 20.90 ppb, 야간: 35.16 ± 17.17 ppb)를 보였으며 겨울에 가장 낮은 농도(주간: 25.41 ± 14.53 ppb, 야간: 19.85 ± 13.66 ppb)를 보였다(Fig. 3d). O₃는 주간에 농도가 높게 나타나며, 이는 주요 전구물질인 NO_x와 VOCs의 광화학 반응으로 인해 생성되는 2차 오염물질이라는 특성 때문이다(Hong and Song, 2022). 여름철 태양 복사에너지의 영향이 가장 큼에도 불구하고 봄에 농도가 가장 높은 이유는 겨울 동안 축적된 전구 물질의 활발한 반응에 의한 O₃ 생성과 성층권에서의 O₃ 유입, 그리고 여름철 강수에 의한 전구 물질의 세정효과에 의한 결과이다(Lim and Lee, 2011).

계절에 따른 대기오염물질의 농도 구간별 빈도 분포는 Fig. 4에서도 확인할 수 있다. PM_{2.5}, PM₁₀, NO₂의 농도 구간별 빈도 분포는 시간 조건과 관계없이 유사한 형태를 보였으며, 다른 계절과 비교했을 때 겨울에 상대적으로 고농도 구간의 빈도가 크게 나타났다(Figs. 4a-f). PM_{2.5}는 여름에 $5\sim 10 \mu\text{g m}^{-3}$ 구간에서 빈도가 집중되는 반면, 겨울에는 $10\sim 15 \mu\text{g m}^{-3}$ 구간에서 빈도 수 최고점을 보였다(Figs. 4a-c). PM₁₀은 봄에 $30\sim 40 \mu\text{g m}^{-3}$ 구간에서 빈도 수 최고점이

보였으며, 여름철에는 $10\sim 20 \mu\text{g m}^{-3}$ 구간에서 빈도의 최고점을 보였다(Figs. 4d-f). NO₂의 농도 빈도의 최고점이 나타나는 구간은 $5\sim 10$ ppb로 계절별로 큰 차이를 보이지 않았으나, 다른 계절과 비교했을 때 겨울철에 고농도 빈도가 더 높게 나타났다(Figs. 4g-i). O₃의 농도 구간별 빈도 분포는 계절별로 뚜렷한 차이를 보였다(Figs. 4j-l). 여름에 고농도 구간의 빈도 수가 크게 나타났으며 겨울에는 저농도 구간의 빈도수가 높게 나타났다(Figs. 4j-l). O₃의 경우 여름철 주간에 $45\sim 50$ ppb 구간에서 빈도가 가장 높게 나타났다(Fig. 4k). 겨울철 주간과 야간에는 각각 $30\sim 35$ ppb와 $25\sim 30$ ppb 구간에서 빈도가 가장 높게 나타났으며, 높은 빈도를 보이는 구간이 1개인 여름과 달리 $0\sim 5$ ppb 구간에서 주간과 야간 모두 두 번째로 높은 빈도를 보였다(Fig. 4k). 가을과 겨울철, 특히 야간에 발생한 높은 빈도의 저농도 O₃ (Fig. 4l)가 Fig. 3d에 보인 가을과 겨울철의 낮은 평균 농도를 야기했다.

Figure 5는 대기오염물질별 계절에 따른 일변화를 나타낸다. PM_{2.5}는 주로 오전 9시에서 11시 사이에 계절별 일 최대 농도를 보였으며, 16시부터 17시 사이에 일 최저 농도를 보였다(Fig. 5a). PM₁₀의 경우, 오

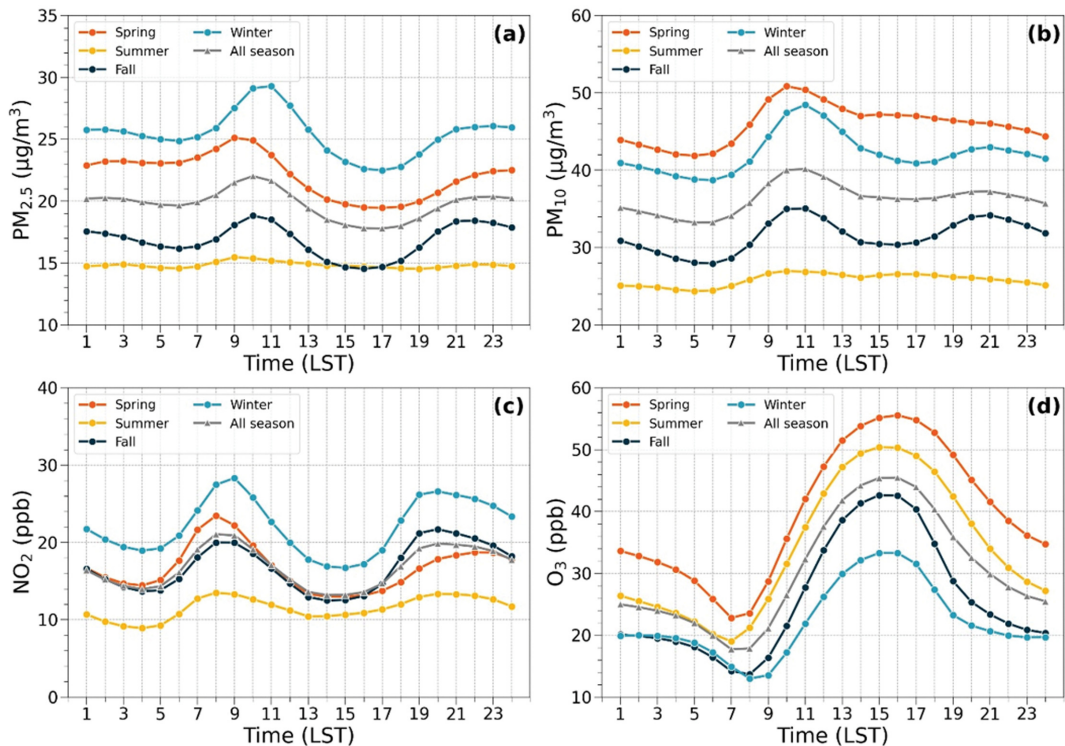


Fig. 5. Diurnal variations of air pollutant concentrations by season: (a) PM_{2.5}, (b) PM₁₀, (c) NO₂, and (d) O₃. Each panel shows the hourly pattern for different seasons: spring (orange), summer (yellow), fall (dark blue), winter (light blue), and all season (gray).

전 10시에서 11시 사이에 일 최대 농도를 보였으며, 5시부터 6시 사이에 일 최저 농도를 보였다(Fig. 5b). NO₂는 출퇴근 시간대인 오전 8시에서 9시와 오후 19시에서 23시 사이에 높은 농도를 보였다(Fig. 5c). 이는 출퇴근 시간 차량 배출에 따른 농도 증가와 야간에 잔류층에 존재하는 물질 간의 산화 반응에 의한 것으로 설명할 수 있다(Kim et al., 2016; Lee et al., 2019).

O₃는 다른 대기오염물질과 달리 낮 시간대인 오후 15시에서 16시 사이에 일 최대 농도를 보였다(Fig. 5d). 이는 O₃의 생성 기작이 주로 O₃의 전구 물질인 NO_x와 VOCs의 증가와 태양광에 의한 광화학 반응에 기인하기 때문으로 해석할 수 있다(Kim et al., 2016). O₃의 최소 농도는 오전 7시에서 9시 사이에 나타났다(Fig. 5d). 야간에는 광화학 반응에 의한 O₃ 생성이 제한됨에 따라 O₃ 소멸 및 지표 침적에 의해 농도가 감소하는 모습을 확인할 수 있었다(Kim et al., 2016).

3.2 대기혼합고의 변동성 분석

Figure 6은 계절 및 시간 조건에 따른 대기혼합고의 분포를 나타낸다. 계절에 따른 태양 복사 에너지

의 차이와 일출 및 일몰 시간의 영향으로 여름철 주간 대기혼합고가 가장 높게 발달하는 모습이 나타났다. 반면, 야간에는 복사 냉각과 대기 안정도의 영향으로 대기혼합고의 계절별 차이가 뚜렷하지 않았다. 여름철 주간 평균 대기혼합고는 1,158.73 ± 406.94 m, 겨울철 주간 평균 대기혼합고는 1,047.85 ± 343.02 m로 약 111 m의 차이를 보였다. 여름철 야간 평균 대기혼합고는 587.35 ± 303.61 m, 겨울철 야간 평균 대기혼합고는 543.44 ± 272.76 m로 약 44 m의 차이가 나타났다. 이는 야간에 비해 주간 계절에 따른 대기혼합고의 차이가 더 크게 나타남을 시사한다.

Figure 7은 계절 및 시간 조건에 따른 대기혼합고 구간별 빈도 분포를 나타낸다. Figure 7a는 하루 전체에 대한 대기혼합고 분포를 나타내며, 주간과 야간의 대기혼합고 분포 차이로 인해 이중봉(bimodal) 형태의 분포를 보였다. 이를 주간과 야간으로 나누어 분석한 결과, 주간에는 계절별로 차이가 있으나 1,000 m에서 1,300 m 부근에서 빈도의 최고점이 나타났으며(Fig. 7b), 야간에는 300 m에서 500 m 사이에서 빈도의 최고점을 보였다(Fig. 7c). Figure 6의 결과와 일치하게 주간의 경우 겨울에 비해 여름에 더 높은 고도 구간

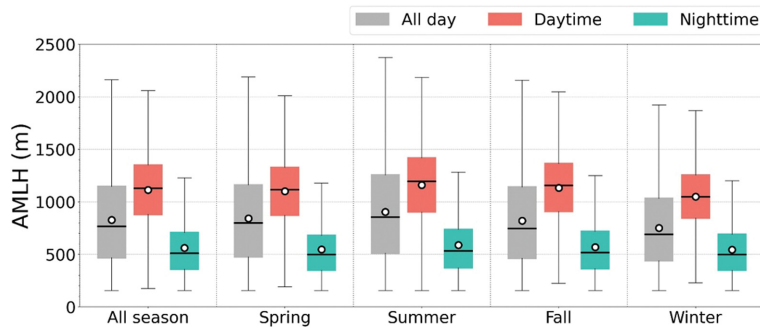


Fig. 6. Seasonal variations in atmospheric mixing layer height for all day (gray), daytime (red), and nighttime (cyan) from 2018 to 2022 across different seasons.

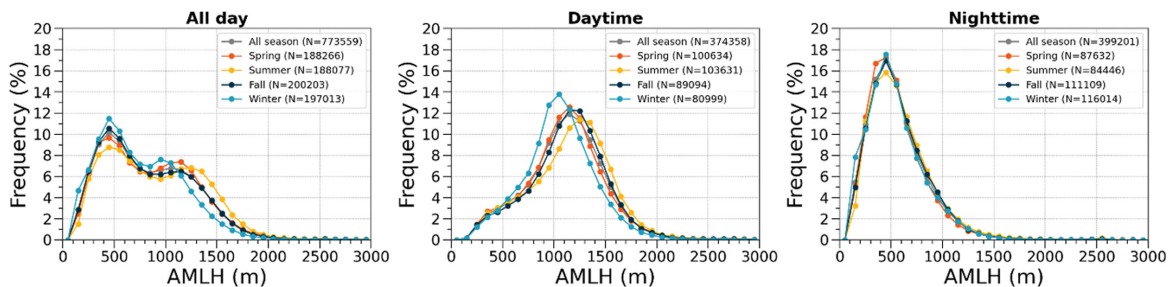


Fig. 7. Frequency distributions of atmospheric mixing layer height by season with different colors from 2018 to 2022. Each panel represents all day, daytime, and nighttime distributions. The frequency is calculated as the number of data points within each bin divided by the total number of data points for each respective condition and season, multiplied by 100.

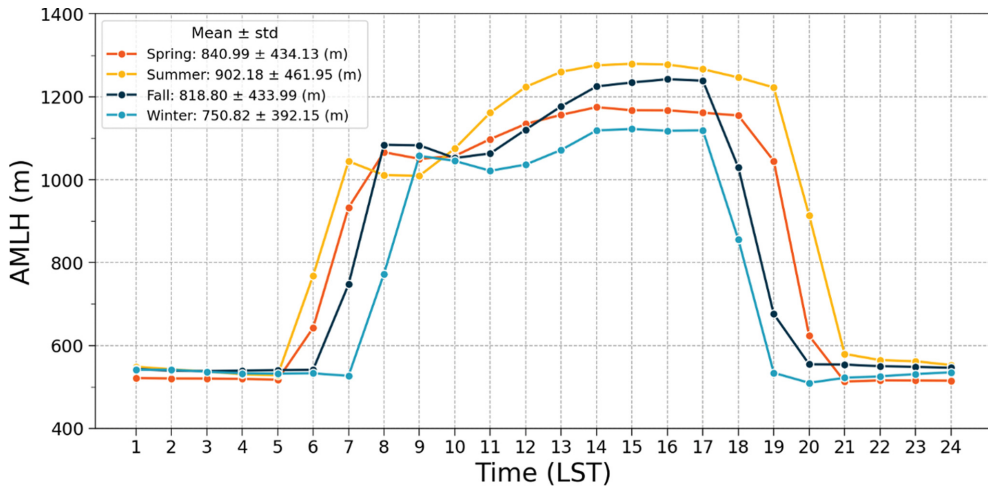


Fig. 8. Diurnal variation of atmospheric mixing layer height (mean \pm standard deviation) for different seasons. The data represents the hourly mean for spring (orange), summer (yellow), fall (dark blue), and winter (light blue).

에 빈도수의 최고점이 위치한 것을 확인할 수 있었다 (여름: 1,200~1,300 m 구간, 겨울: 1,000~1,100 m 구간; Fig. 7b). 야간의 경우 빈도의 최고점이 보이는 구간은 400~500 m 구간으로, 계절과 상관없이 동일하였으며 전체적인 분포는 유사했다(Fig. 7c).

Figure 8은 계절에 따른 대기혼합고 일변화를 나타낸다. 대기혼합고는 5시에서 7시경 일출 직후 발달하기 시작하여 14시에서 16시경 최대 높이에 도달하였다(여름: 1,279.30 m, 겨울: 1,118.74 m). 최대 높이에 도달한 이후 대기혼합고는 점차 낮아지기 시작하며, 일몰 직후 급격히 낮아져 최저 높이에 도달한다(여름: 552.70 m, 겨울: 509.73 m). 여름철에는 겨울철에 비해 태양이 일찍 뜨고 늦게 지기 때문에 태양 복사에너지를 받는 시간이 더 길어지고, 대기 중 혼합이 더 활발해져 대기혼합고가 더 높게 발달하게 된다.

3.3 지상 대기오염물질과 대기혼합고의 상관성 분석

대다수의 선행연구에서 $PM_{2.5}$ 와 대기혼합고 사이의 상관성은 대체로 음의 상관관계를 보인다고 설명하고 있다. Su et al. (2018)은 중국 화북 평원에서의 관측 자료 분석을 통해 $PM_{2.5}$ 와 대기혼합고 사이에 $r = -0.36$ 의 음의 상관관계가 나타났으며, 비선형 함수 적용 시에 $r = -0.49$ 로 나타난다고 보고하였다. Solanki et al. (2019)는 치앙마이 계곡의 건기 동안 $r = -0.31$ 에서 -0.56 까지 음의 상관관계를 보였다고 보고하였다. Murthy et al. (2020)과 Nguyen et al. (2023)은 각각 인도 델리와 슬로바키아에서 겨울철 동안 음의 상관관계를 확인하였다.

2018년부터 2022년까지 계절 및 시간 조건에 따라

분류된 사례에 대한 $PM_{2.5}$ 와 대기혼합고 사이의 상관성 분석 결과는 Fig. 9에 제시하였다. $PM_{2.5}$ 와 대기혼합고 사이의 상관성은 주간과 야간 모두 상관계수 방법론과 상관없이 대체로 음의 상관관계를 보였으며, 이는 선행연구와 일치한다. 대표적으로 주간의 경우, 여름철 높은 대기혼합고($1,176.04 \pm 352.94$ m)와 상대적으로 낮은 농도($16 \pm 11 \mu g m^{-3}$)로 인해 희석효과가 효과적으로 나타난 반면(Fig. 9c), 겨울철에는 낮은 대기혼합고($1,036.82 \pm 336.38$ m)와 높은 농도($25 \pm 18 \mu g m^{-3}$)로 인해 여러 상관계수 방법론에서 낮은 상관계수를 보인다(Fig. 9g). 야간의 경우, 대체로 주간에 비해 더 낮은 상관성을 보인다. 예를 들어, 여름철 주간(Fig. 9c)과 야간(Fig. 9d)의 5가지 상관계수를 비교하면, $r = -0.2094$ 에서 -0.0705 , $r_b = -0.8718$ 에서 -0.5937 , $r_{b30} = -0.9733$ 에서 -0.8146 , $r_w = -0.9735$ 에서 -0.8007 , $r_{w30} = -0.9737$ 에서 -0.7971 로 주간에 비해 야간에 상관성이 감소하는 확인할 수 있다.

Figure 10은 5가지 상관계수 방법론(r , r_b , r_{b30} , r_w , r_{w30})에 따른 $PM_{2.5}$ 와 대기혼합고의 상관계수 시계열을 나타낸다. 2021년 가을을 제외하고 주간에는 모두 음의 상관관계가 나타났다(Fig. 10a). 야간에도 대체로 음의 상관관계를 보였다(Fig. 10b). 5가지 상관계수를 비교한 결과, r 은 나머지 4개의 방법에 비해 상대적으로 낮은 상관성을 보였다. r_b 는 자료 수가 적은 구간의 영향을 받아 상관계수 값이 연도 및 계절에 따라 급격하게 변화하는 경향을 보였다. r_{b30} 은 이러한 문제를 해결하기 위해 구간 내 자료 개수가 30개 이하인 경우를 배제하고 상관계수를 구하는 방법으로, 자료 개수가 적은 구간의 영향을 배제하였다. 그 결

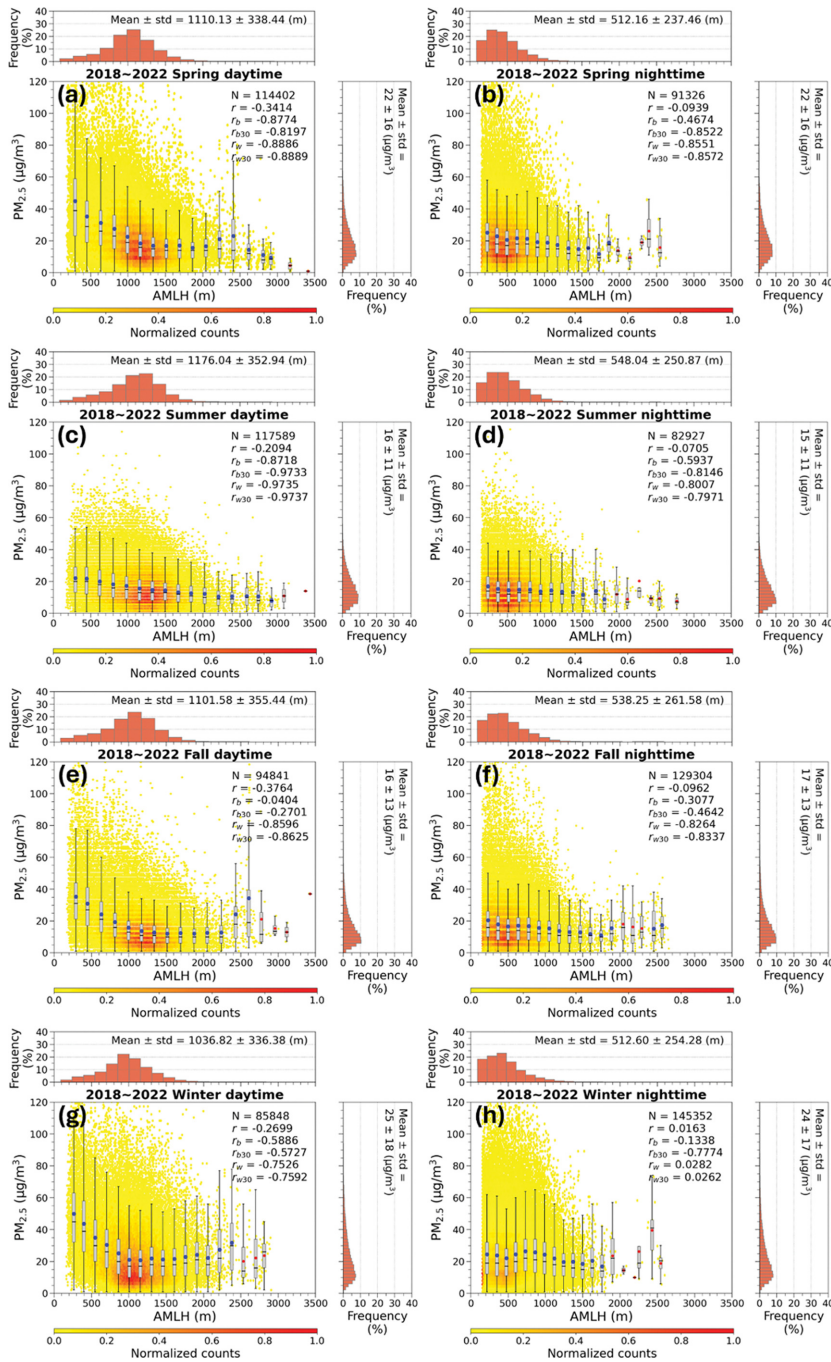


Fig. 9. Correlation between $PM_{2.5}$ and atmospheric mixing layer height (AMLH). Rows represent different seasons, and columns represent daytime and nighttime conditions. In the central plots, box plots depict the distribution of $PM_{2.5}$ concentrations within each AMLH bin, with the median shown as a black line and the mean as a blue circle. Red circles indicate bins with fewer than 30 data points. The color bar represents the normalized counts based on the total number of data points, with darker colors indicating higher data density. The histograms located at the top and right in each panel display the frequency distributions of AMLH and $PM_{2.5}$, respectively. Frequency is calculated as the number of data points within each bin divided by the total number of data points, multiplied by 100.

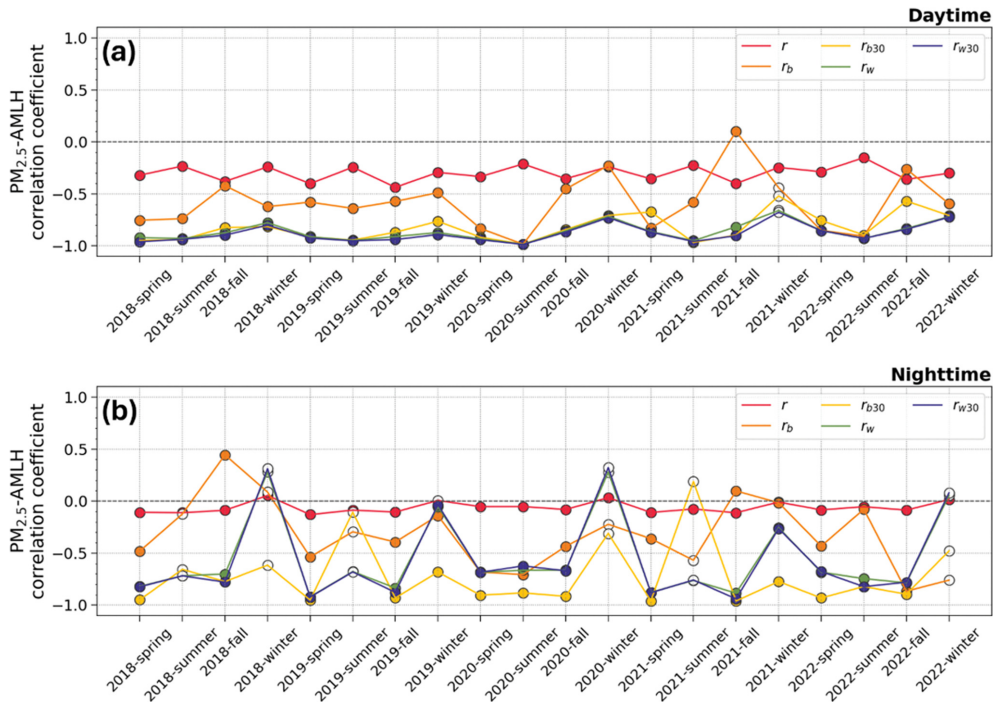


Fig. 10. Time series of five types of correlation coefficients between PM_{2.5} and atmospheric mixing layer height (AMLH) from 2018 to 2022 for (a) daytime and (b) nighttime. Empty circles indicate cases where the p-value exceeds 0.05.

과 더 강한 음의 상관관계를 보였으며, 연도 및 계절에 따른 상관계수 변동이 작아지는 결과가 나타났다. r_w 와 r_{w30} 은 구간별 데이터 수를 가중치로 두어 계산한 상관계수로, 가장 강한 음의 상관성을 보였다.

Solanki et al. (2019)에 따르면, 전기 동안 PM₁₀과 대기혼합고 사이에 $r = -0.27$ 에서 -0.55 사이의 음의 상관관계가 나타났으며, Nguyen et al. (2023)은 겨울철 PM₁₀과 대기혼합고 사이의 상관관계가 시간별 자료에 대해 $r = -0.3$, 일평균 자료에 대해서는 -0.5 로 나타났음을 보고했다. Schäfer et al. (2006)은 독일 뮌헨 도시 및 농촌 지역에서 전체 기간동안 $r^2 = 0.31$, 여름에는 $r^2 = 0.11$, 겨울에는 $r^2 = 0.84$ 의 음의 상관관계를 보고했다. 하지만 Geiß et al. (2017)은 PM₁₀과 대기혼합고의 상관성은 지역적 오염원, 풍향 및 풍속, 교통량 등의 요인에 의해 지역별로 차이가 있으며, 배경 지역이나 도심 외곽 지역 같은 일부 지역에서는 양의 상관관계가 나타났다고 보고했다.

PM₁₀과 대기혼합고 사이의 상관성은 계절 및 시간 조건, 방법론과 상관없이 음의 상관관계가 나타났으며, 대기혼합고에 따른 희석효과가 효과적으로 발생하고 있음을 확인하였다(Fig. 11). PM_{2.5}와 유사하게 r 을 제외한 나머지 4가지 상관계수 방법론에 대해 여름철 주간에 가장 강한 음의 상관관계가 나타났으며

(Fig. 11c), 이는 여름철 높은 대기혼합고($1,177.11 \pm 353.25$ m)와 낮은 농도 분포($29 \pm 17 \mu\text{g m}^{-3}$) 때문으로 해석될 수 있다. 반면 겨울철 주간에는 낮은 대기혼합고($1,038.52 \pm 335.73$ m)와 높은 농도 분포($45 \pm 27 \mu\text{g m}^{-3}$)에 의해 낮은 상관성을 보였다(Fig. 11g). 야간에는 대기혼합고가 낮게 분포하기 때문에 주간에 비해 전체적으로 상관성이 감소하는 것을 확인할 수 있었다(Figs. 11b, d, f, and h). 여름철을 제외한 주간에 약 1,100~1,200 m 구간까지 대기혼합고가 증가함에 따라 PM₁₀ 농도가 급격히 감소한다(Figs. 11a, e, and g). 1,100~1,200 m 구간 이후로는 PM₁₀ 농도 변동성은 매우 낮다.

가을철 주간에 나머지 4개의 상관계수 방법론에서 음의 상관계수가 나타난 것과 달리 $r_b = 0.0931$ 로 양의 상관관계를 보였으며 이는 약 2,500 m 전후로의 급격한 농도 상승 때문이다(Fig. 11e). 이를 자세히 분석하기 위해 추가적으로 가을철 주간의 PM₁₀과 대기혼합고의 상관성을 연도별로 구분하여 분석하였다(Fig. 12). Figure 11e에서 보인 낮은 상관성은 2021년 가을철에 발생한 특정 고농도 사례에 기인한 것을 확인할 수 있다(Fig. 12d). 2021년을 제외한 다른 연도에 대해서는 구간별 자료의 개수가 작아서 발생하는 고농도 이상치를 제외하고는 급격한 농도 변화는 나타나

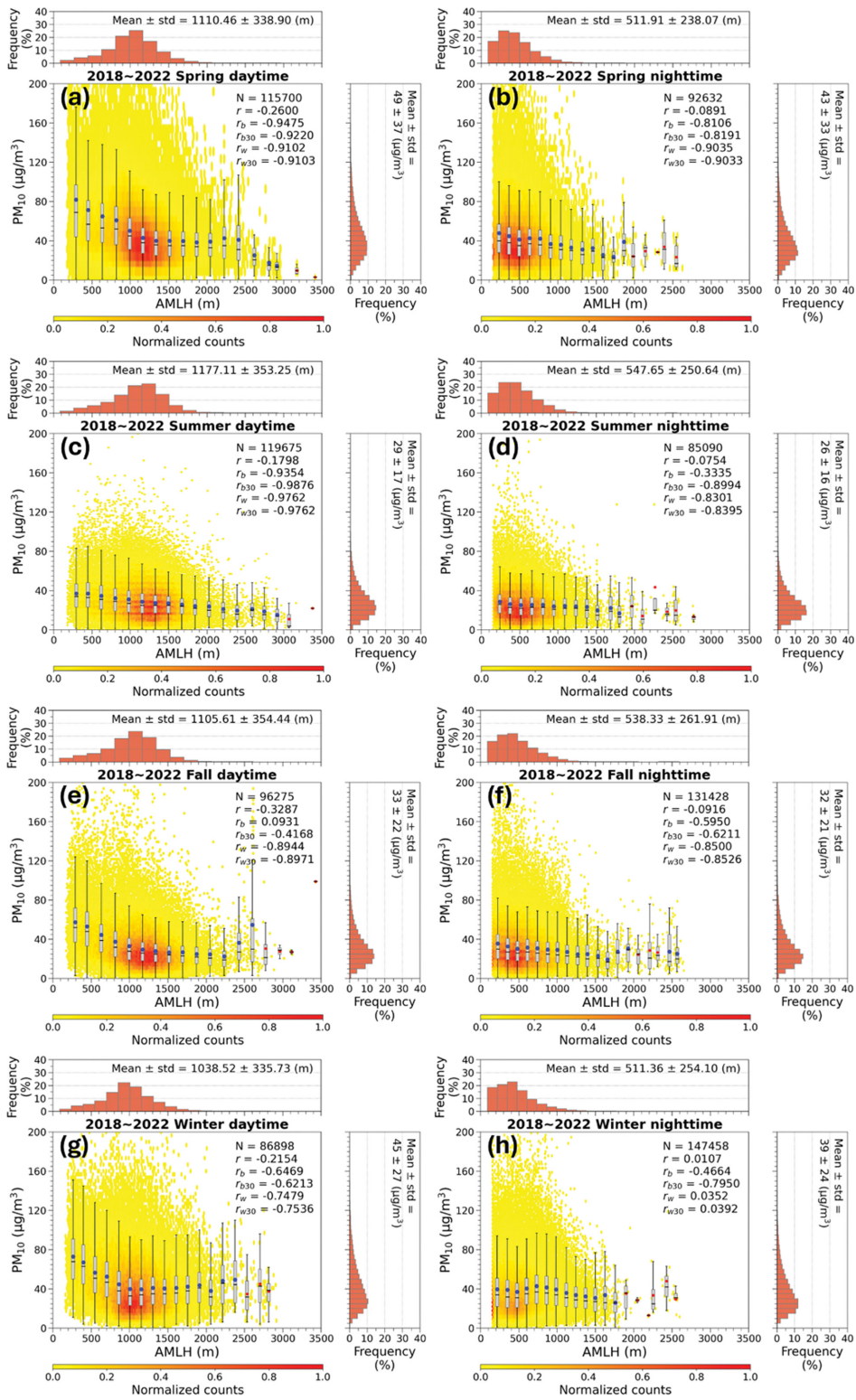


Fig. 11. As in Fig. 9, but for PM₁₀.

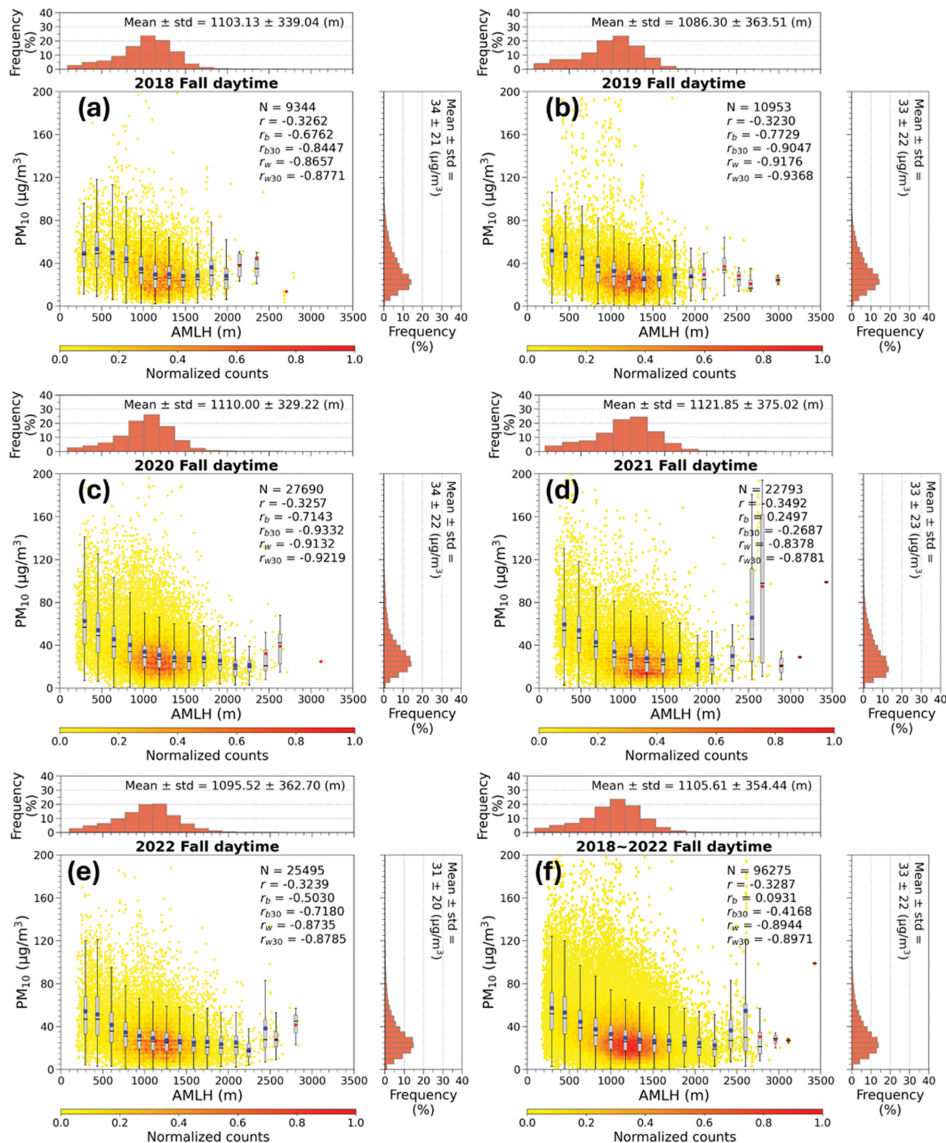


Fig. 12. As in Fig. 9, but for the correlation between PM_{10} and atmospheric mixing layer height (AMLH) during fall daytime for each year from 2018 to 2022.

지 않았다. 대체로 1,100~1,200 m 구간까지 효과적인 희석효과가 발생하고, 1,100~1,200 m 구간 이후로는 농도 분포의 변화가 매우 작게 나타났다(Figs. 12a, b, c, and e). 이처럼 특정 고도까지 농도가 급격히 감소하다가 일정한 농도를 보이는 이유는 대기 혼합이 활발해짐에 따라 대기오염물질이 충분히 확산되었기 때문으로 해석된다. 일부 고농도 사례의 영향을 배제하고 일반적인 사례들에 대해서는 대기혼합고가 증가함에 따라 희석효과가 효과적으로 발생함을 확인하였다.

Figure 13은 5가지 상관계수 방법론에 따른 PM_{10} 과 대기혼합고의 상관계수 시계열을 나타낸다. $PM_{2.5}$ 와 유사하게 5가지 상관계수 방법론에 대해 주간과 야간의 상관계수 시계열이 비슷한 분포를 보였으며, 방법론 차이에 의해 나타나는 일부 양의 상관계수 구간을 제외하고 대체로 음의 상관관계가 나타났다. 이는 앞서 언급한 선행연구들의 결과와 일치한다.

2018년부터 2022년까지 계절 및 시간 조건에 따른 NO_2 와 대기혼합고 사이의 상관성 분석 결과는 Fig.

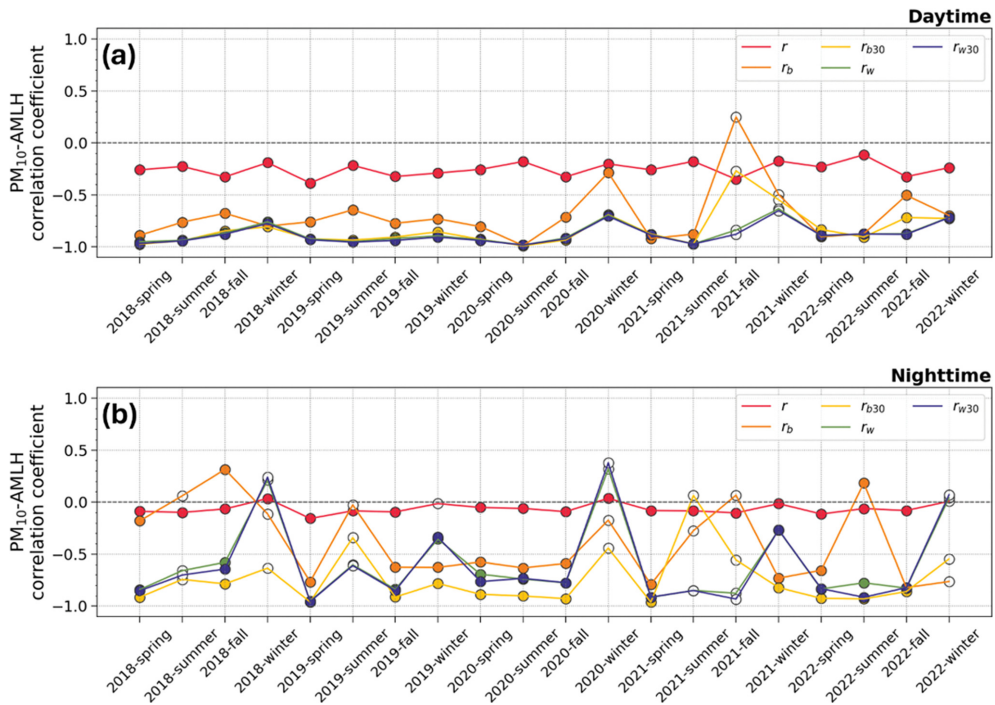


Fig. 13. As in Fig. 10, but for PM₁₀.

14에 제시하였다. 주간은 PM_{2.5}와 PM₁₀과 유사하게 여름철을 제외하고 1,100~1,200 m 구간까지 급격한 농도 감소를 보였다. 여름철 주간에 가장 강한 음의 상관성을 보였으며, 겨울철 야간에 가장 약한 상관성을 보였다. 겨울철 야간의 r , r_w , r_{w30} 결과를 제외하고 선행연구와 유사하게 음의 상관관계를 보였다.

Figure 15는 5가지 상관계수 방법론에 따른 NO₂와 대기혼합고의 상관계수 시계열을 나타낸다. PM_{2.5}와 PM₁₀과 유사하게 r 은 주간에 약한 음의 상관관계를 보였으며, 야간에는 거의 0에 수렴하였다. r_b 와 r_{b30} 은 r 에 비해 더 강한 음의 상관성을 보였으나, 구간별 자료 수의 차이로 인해 상관계수 변동이 크게 나타났다. r_w 와 r_{w30} 도 전반적으로 연도 및 계절에 따른 변동이 크게 나타났다.

Figure 16은 2018년부터 2022년의 기간 동안 계절 및 시간 조건에 따른 O₃와 대기혼합고 사이의 상관관계를 보여준다. 선행연구에서 O₃는 대기혼합고와 양의 상관관계를 보이는 것으로 보고되었다(Geiß et al., 2017; Murthy et al., 2020; Cao et al., 2023; Nguyen et al., 2023). 다른 대기오염물질과 달리 O₃는 특히 낮 시간에 태양광에 의한 광화학 반응이 활발하여 대기혼합고가 증가함에도 불구하고 희석효과보다 O₃ 생성의 효과가 커져 1,200~1,500 m까지 농도가 증가하는 특징을 보였다. 하지만 1,200~1,500 m 고도 이후로는

대기혼합고 내 혼합이 활발해짐에 따라 O₃ 생성보다 희석효과의 영향이 더욱 커지기 때문에 농도가 다시 감소하는 선행연구의 결과(Wang et al., 2023)와 일치하는 양상을 보였다. 이러한 특징은 여름철 주간에 더욱 뚜렷하게 나타난다. 야간에는 다른 대기오염물질들과 유사하게 음의 상관관계를 보였다. Figure 17a는 주간 O₃의 상관관계 시계열을 나타낸다. r_b 와 r_{b30} 을 제외하고 대체로 양의 상관관계가 나타났으나, 1,200~1,500 m 고도 이상에서 대기혼합고 증가에 따른 O₃ 농도 감소 효과가 함께 적용되어 상관성이 낮게 나타났다. 특히 r 의 경우, 여름철 1,200~1,500 m 고도까지 뚜렷한 농도 증가 추세에 따른 상관성을 수치적으로 확인하기 어려웠다. Figures 17b, c에서는 각 사례에서 대기혼합고 분포의 최고점을 기준으로 1,200~1,500 m 고도를 설정하여 구역을 분리하여 상관계수를 계산했다. 그 결과, 1,200~1,500 m 고도 이하에서는 5가지 상관계수 방법론 모두에서 양의 상관관계가 더욱 뚜렷해졌다. 특히 r_b , r_{b30} , r_w , r_{w30} 에 대해서는 매우 강한 양의 상관관계가 나타났다. 1,200~1,500 m 고도 이상에서는 대체로 뚜렷한 음의 상관관계가 나타났다. 따라서 광화학 반응을 통해 생성되는 2차 오염물질인 O₃와 대기혼합고와의 상관성 분석을 위해서는 대기혼합고를 1,200~1,500 m 고도 기준으로 구역을 나누어 상관성을 분석하는 과정이 필요하다.

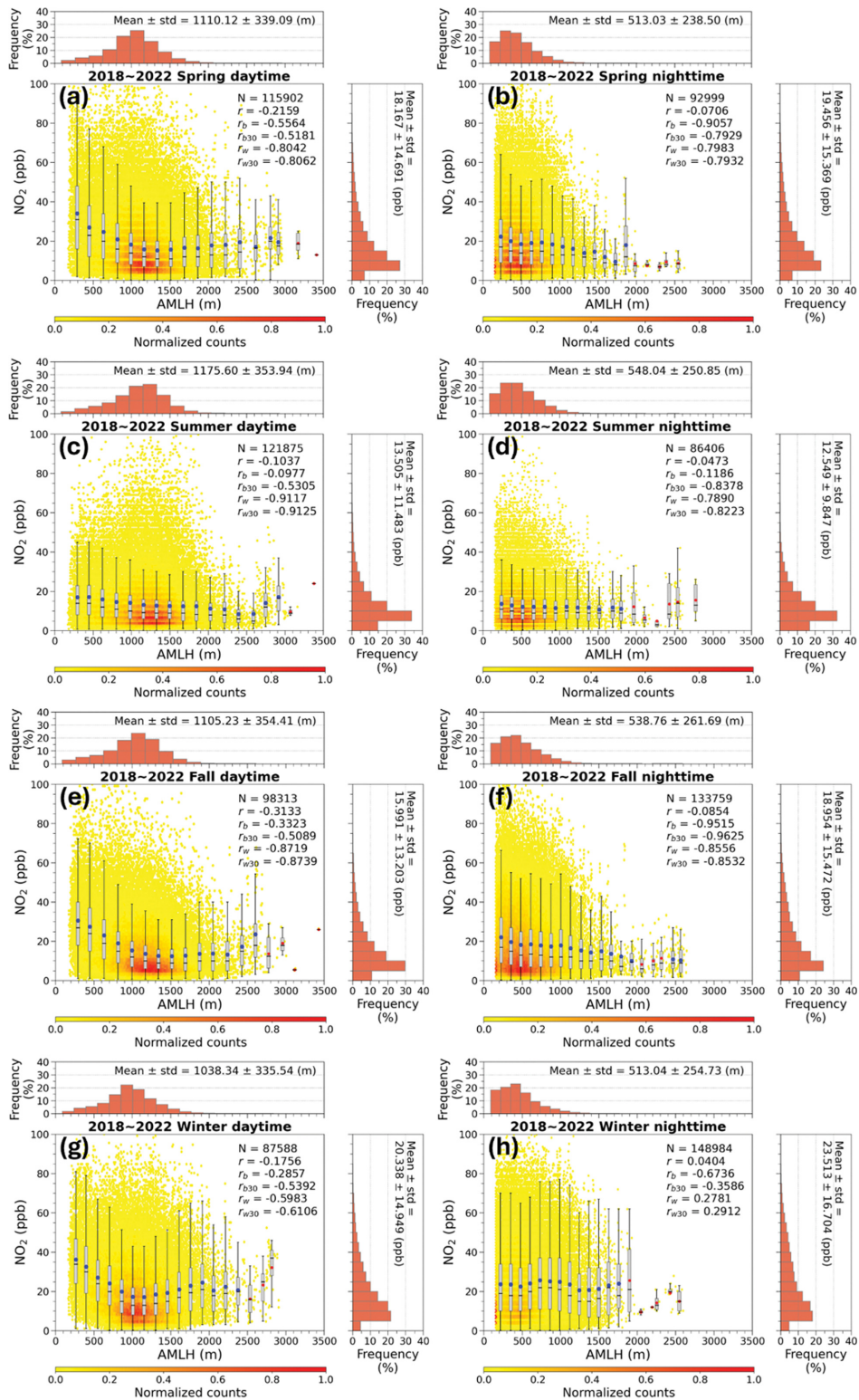


Fig. 14. As in Fig. 9, but for NO₂.

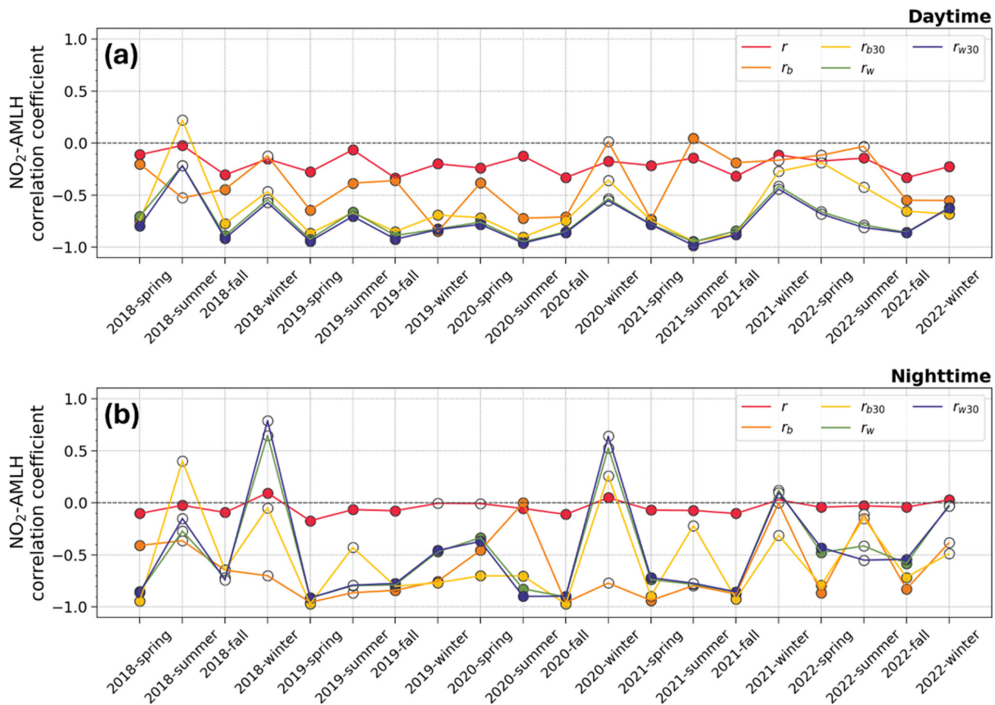


Fig. 15. As in Fig. 10, but for NO₂.

4. 요약 및 결론

본 연구는 2018년부터 2022년까지 에어코리아에서 제공된 대기오염물질 4종(PM_{2.5}, PM₁₀, NO₂, O₃)의 최종 확정 자료와 기상청 Vaisala CL31 운고계 관측 자료를 이용하여 지상 대기오염물질과 대기혼합고의 변동성 및 상관관계를 분석하였다. 지상 대기오염물질 농도 자료를 이용하여 2018년부터 2022년까지의 대기오염물질별 농도 추세를 확인하였으며, 계절별 일 변화와 계절 및 시간 조건(하루 전체, 주간 그리고 야간)에 따른 농도 분포를 확인하였다. 또한, 운고계로부터 관측된 후방산란 자료를 이용하여 산출한 대기혼합고의 계절별 일 변화 및 계절별 분포를 분석하였다. 지상 대기오염물질 농도와 대기혼합고 사이의 상관성을 분석하기 위해 5가지 상관계수 방법론을 적용하였으며, 다양한 계절 및 시간 조건에서 대기혼합고에 따른 회석효과를 확인하였다. 본 연구의 결론은 다음과 같다.

1) 본 연구의 연구 기간(2018~2022년) 동안 PM_{2.5}, PM₁₀ 그리고 NO₂ 농도는 꾸준히 감소하는 추세가 나타난 반면, O₃의 농도는 증가하는 추세가 나타났다. 이는 장거리 수송, 기상 조건의 변화, 배출량 변화 등의 요인에 의한 영향으로 판단된다.

2) 지상 대기오염물질의 변동성을 분석한 결과, PM_{2.5}

와 NO₂는 겨울철에 농도가 가장 높게 나타났다. PM₁₀과 O₃는 봄철에 가장 높은 농도를 보였으며, NO₂는 여름철에 가장 낮은 농도를 보였으며, O₃는 겨울에 가장 낮은 농도가 나타났다. 대기오염물질별로 계절적인 변동성을 보이는 이유는 장거리 수송, 대기 정체, 난방, 황사, 강수의 세정 효과 등의 영향으로 판단된다.

3) 대기혼합고의 계절별 일변화를 분석한 결과, 지표면에 도달하는 태양 복사 에너지 차이의 영향으로 여름철 주간에 가장 높게 발달하였으며, 겨울철에 가장 낮게 발달하였다. 계절에 따른 주간 평균 대기혼합고의 차이는 약 111 m, 야간 평균 차이는 약 44 m로 나타났다.

4) PM_{2.5}와 PM₁₀ 농도는 일반적으로 대기혼합고와 강한 음의 상관관계를 보였으며, 특히 여름철 주간에 이러한 특징이 더욱 뚜렷하게 나타났다. 겨울철에는 낮은 대기혼합고와 높은 대기오염물질 농도로 인해 약한 음의 상관관계가 나타났다. NO₂는 여름철에 가장 강한 음의 상관관계를 보였으며 겨울철 야간에 가장 약한 상관성을 보였다.

5) O₃는 대기혼합고와 양의 상관관계를 보였으며, 특히 1,200~1,500 m 고도까지 광화학 반응에 의해 매우 강한 양의 상관관계를 보였다. 1,200~1,500 m 이상의 고도에서는 광화학 반응에 의한 O₃ 생성보다 대

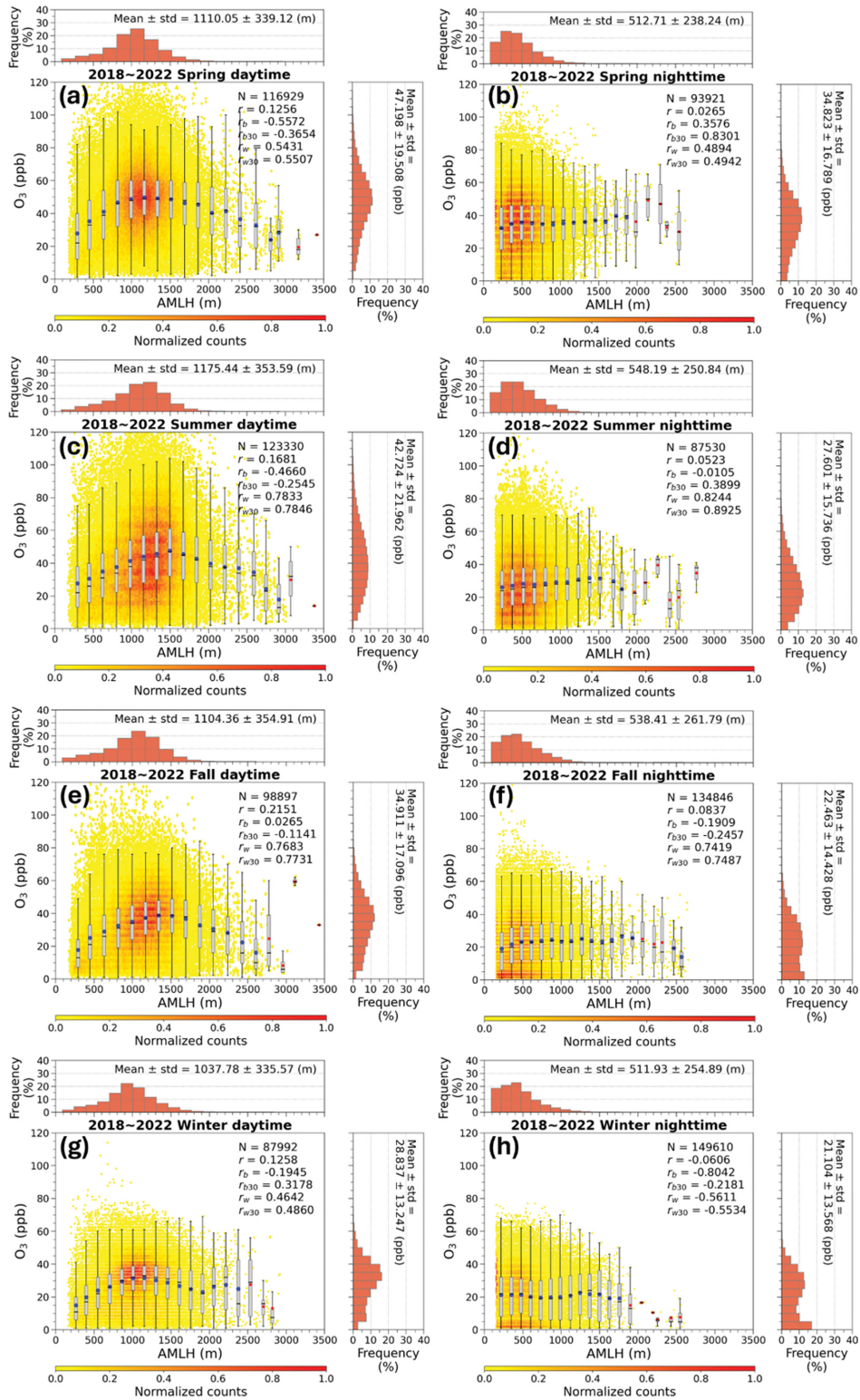


Fig. 16. As in Fig. 9, but for O₃.

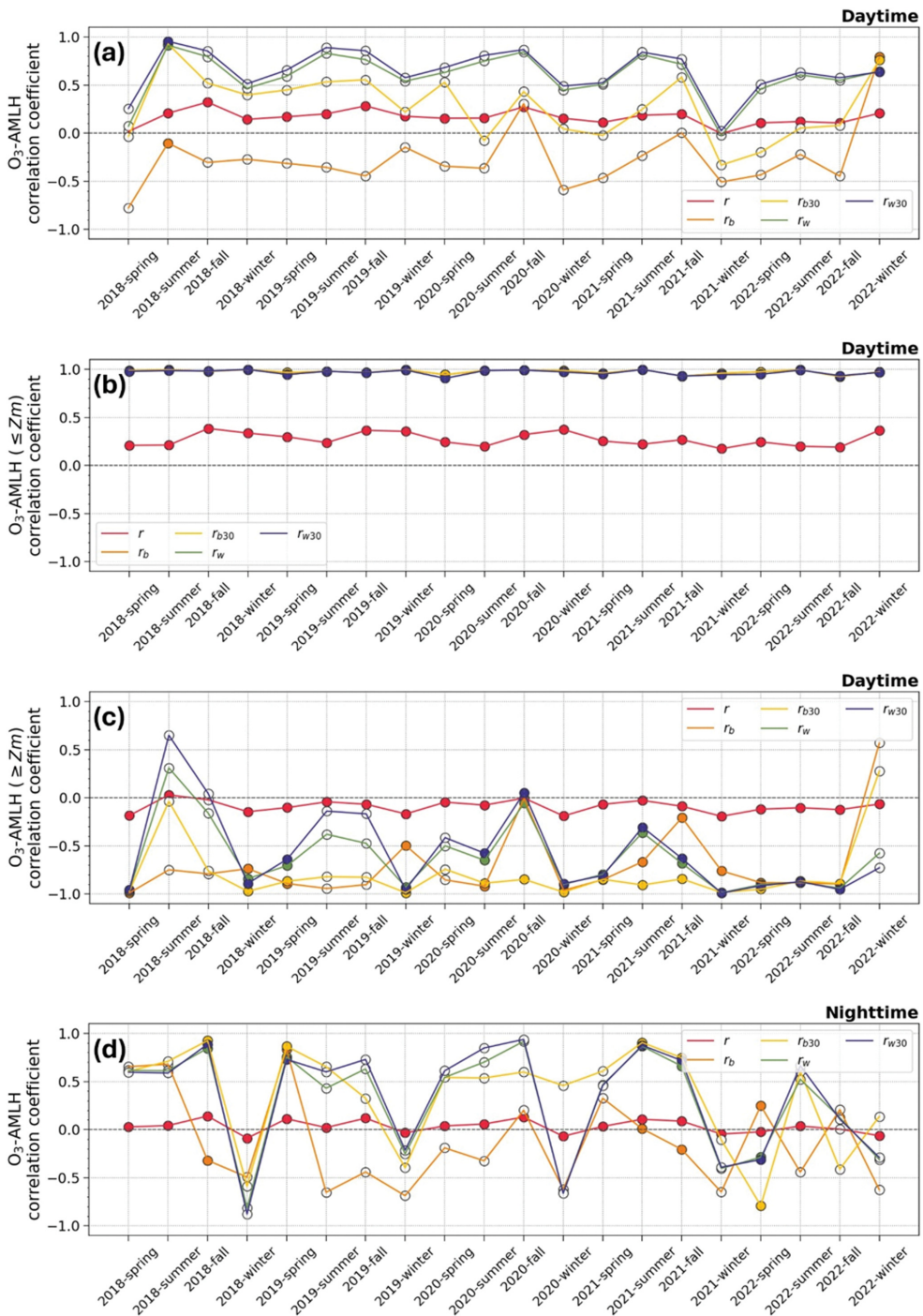


Fig. 17. As in Fig. 10, but for O₃: (a) daytime, (b) daytime (AMLH ≤ Z m), (c) daytime (AMLH ≥ Z m), and (d) nighttime. Here, Z ranges between 1,200 and 1,500 m.

기온함고에 의한 희석효과가 커져 음의 상관관계가 나타남을 확인했다.

6) 2021년 가을철 주간 PM₁₀ 사례와 같은 고농도의 단일 특정 사례가 지상 대기오염물질 농도와 대기혼

합고 간의 상관관계에 큰 영향을 미치는 것을 확인했다. 이는 분석에 사용되는 관측 자료의 기간과 상관계수 방법론에 대한 각별한 주의가 필요함을 의미한다.

본 연구는 기상 조건, 배출량, 지역적 특성에 따른 영향을 최소화하기 위해 장기간 관측 자료를 사용하여 지상 대기오염물질 농도와 대기혼합고 간의 상관성을 도출하였으나, 분명한 한계가 존재한다. 지상 대기오염농도는 다양한 요인들의 상호작용으로 인해 변화하기 때문에, 추후 연구에서는 이러한 요인들을 포함하여 대기혼합고와의 상관성을 분석할 필요가 있다. 또한, 운고계 관측 자료를 통해 산출된 대기혼합고 자료 자체의 불확실성이 존재하며, 특히 야간에는 안정경계층과 잔류층을 구분하기 어렵다는 문제점이 있다. 따라서 다양한 관측 자료를 통해 보다 정확한 대기혼합고 자료를 산출하고 이를 바탕으로 상관성을 분석하는 연구가 필요하다. 또한, 다양한 상관계수 방법론의 특성을 이해하고 사례별로 적절한 방법론을 적용하는 과정이 필요하다.

감사의 글

이 연구는 국립환경과학원 연구용역사업의 지원을 받아 수행된 연구임(NIER-2021-03-03-001, 권역별대기환경연구소 운영). 이 연구는 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(No. 2020R1A2C1013278). 이 연구는 2020년도 정부(교육부)의 재원으로 한국연구재단 기초연구사업의 지원을 받아 수행된 연구임(No. 2020R1A6A1A03044834).

REFERENCES

- Albertin, S., J. Savarino, S. Bekki, A. Barbero, R. Grilli, Q. Fournier, I. Ventrillard, N. Caillon, and K. Law, 2024: Diurnal variations in oxygen and nitrogen isotopes of atmospheric nitrogen dioxide and nitrate: Implications for tracing NO_x oxidation pathways and emission sources. *Atmos. Chem. Phys.*, **24**, 1361-1388, doi:10.5194/acp-24-1361-2024.
- Bae, M., S. Kim, and S. Kim, 2022: Quantitative evaluation on the drivers of PM_{2.5} concentration change in South Korea during the 1st - 3rd seasonal PM_{2.5} management periods. *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, **38**, 610-623, doi:10.5572/KOSAE.2022.38.4.610.
- Caicedo, V., B. Rappenglück, B. Lefer, G. Morris, D. Toledo, and R. Delgado, 2017: Comparison of aerosol lidar retrieval methods for boundary layer height detection using ceilometer aerosol backscatter data. *Atmos. Meas. Tech.*, **10**, 1609-1622, doi:10.5194/amt-10-1609-2017.
- Cao, Y., X. Zhao, D. Su, X. Cheng, and H. Ren, 2023: A machine-learning-based classification method for meteorological conditions of ozone pollution. *Aerosol Air Qual. Res.*, **23**, 220239, doi:10.4209/aaqr.220239.
- Choe, J.-I., and Y. S. Lee, 2015: A study on the impact of PM_{2.5} emissions on respiratory diseases. *J. Environ. Policy Adm.*, **23**, 155-172, doi:10.15301/jepa.2015.23.4.155.
- Choi, J. K., I. S. Choi, K. K. Cho, and S. H. Lee, 2020: Harmfulness of particulate matter in disease progression. *J. Life Sci.*, **30**, 191-201, doi:10.5352/JLS.2020.30.2.191.
- Ermeis, S., C. Jahn, C. Münkel, C. Münsterer, and K. Schäfer, 2007: Multiple atmospheric layering and mixing-layer height in the Inn valley observed by remote sensing. *Meteorol. Z.*, **16**, 415-424, doi:10.1127/0941-2948/2007/0203.
- _____, K. Schäfer, and C. Münkel, 2009: Observation of the structure of the urban boundary layer with different ceilometers and validation by RASS data. *Meteorol. Z.*, **18**, 149-154, doi:10.1127/0941-2948/2009/0365.
- Eresmaa, N., A. Karppinen, S. M. Joffe, J. Räsänen, and H. Talvitie, 2006: Mixing height determination by ceilometer. *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 1485-1493, doi:10.5194/acp-6-1485-2006.
- Geiß, A., M. Wiegner, B. Bonn, K. Schäfer, R. Forkel, E. von Schneidemesser, C. Münkel, K. L. Chan, and R. Nothard, 2017: Mixing layer height as an indicator for urban air quality?. *Atmos. Meas. Tech.*, **10**, 2969-2988, doi:10.5194/amt-10-2969-2017.
- Han, M., H. Koo, K. Lee, and S. Yoon, 2020: Analysis of ozone concentration in the Korean Peninsula using nonstationary generalized extreme value distribution. *J. Korean Data Anal. Soc.*, **22**, 1325-1334, doi:10.37727/jkdas.2020.22.4.1325.
- Han, S., and J. Um, 2023: Scavenging efficiency based on long-term characteristics of precipitation and particulate matters in Seoul, Korea. *Atmosphere*, **33**, 367-385, doi:10.14191/Atmos.2023.33.4.367.
- Hong, S.-O., and S.-K. Song, 2022: Analysis of long-term variation trends of ozone in the past 20 years and recent high concentration cases on Jeju Island. *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, **38**, 138-158, doi:10.5572/KOSAE.2022.38.1.138.
- Jee, J.-B., C.-R. Cho, Y.-J. Kim, and S.-S. Park, 2022: Analysis of meteorological characteristics by fine

- dust classification on the Korean peninsula, 2015-2021. *Atmosphere*, **32**, 119-133, doi:10.14191/Atmos.2022.32.2.119.
- Jeong, J. I., R. J. Park, C.-K. Song, S.-W. Yeh, and J.-H. Woo, 2024: Quantitative analysis of winter PM_{2.5} reduction in South Korea, 2019/20 to 2021/22: contributions of meteorology and emissions. *Sci. Total Environ.*, **907**, 168179, doi:10.1016/j.scitotenv.2023.168179.
- Ju, J.-T., S.-J. Lee, J. H. Choi, S. T. Kim, I. H. Song, H.-J. Jung, H. J. Shin, J. M. Park, and S.-D. Choi, 2023: Identification of pollution characteristics of PM_{2.5} using a geographic information system and statistical tools: a case study of the southeastern and southern regions of South Korea. *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, **39**, 478-491, doi:10.5572/KOSAE.2023.39.4.478.
- Jung, H., and J. Um, 2022: Calculations of surface PM_{2.5} concentrations using data from ceilometer backscatters and meteorological variables. *J. Environ. Sci. Int.*, **31**, 61-76, doi:10.5322/JESI.2022.31.1.61.
- Kang, Y.-H., Y.-K. Kim, M.-K. Hwang, J.-H. Jeong, H. Kim, and M.-S. Kang, 2019: Spatial-temporal variations in surface ozone concentrations in Busan metropolitan area. *J. Environ. Sci. Int.*, **28**, 169-182, doi:10.5322/JESI.2019.28.2.169.
- Kim, D.-S., J. Jeong, and J. Ahn, 2016: Characteristics in atmospheric chemistry between NO, NO₂ and O₃ at an urban site during MAPS (Megacity Air Pollution Study)-Seoul, Korea. *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, **32**, 422-434, doi:10.5572/kosae.2016.32.4.422.
- Kim, H., J. Gil, M. Lee, J. Jung, A. Whitehill, J. Szykman, G. Lee, D.-S. Kim, S. Cho, and J.-Y. Ahn, 2020: Factors controlling surface ozone in the Seoul Metropolitan Area during the KORUS-AQ campaign. *Elem. Sci. Anth.*, **8**, 46, doi:10.1525/elementa.444.
- Kim, S.-U., and K.-Y. Kim, 2020: Physical and chemical mechanisms of the daily-to-seasonal variation of PM₁₀ in Korea. *Sci. Total Environ.*, **712**, 136429, doi:10.1016/j.scitotenv.2019.136429.
- Kim, S. T., M. Bae, E. Kim, K. Son, Y.-H. Kang, Y. Kim, S. You, B.-U. Kim, and H. C. Kim, 2021: Identifying the drivers of PM_{2.5} concentration changes between December 2019 and December 2020 in South Korea. *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, **37**, 371-387, doi:10.5572/KOSAE.2021.37.3.371.
- Kotthaus, S., and C. S. B. Grimmond, 2018: Atmospheric boundary-layer characteristics from ceilometer measurements. Part 1: a new method to track mixed layer height and classify clouds. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **144**, 1525-1538, doi:10.1002/qj.3299.
- Lee, H. K., E. L. Choi, H. J. Lee, S. Y. Lee, and J. Y. Lee, 2020: A study on the seasonal correlation between O₃ and PM_{2.5} in Seoul in 2017. *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, **36**, 533-542, doi:10.5572/KOSAE.2020.36.4.533.
- Lee, J., W. S. Ha, Y.-H. Kim, and K. H. Lee, 2018: Interactive 3D visualization of ceilometer data. *J. Korea Comput. Graph. Soc.*, **24**, 21-28, doi:10.15701/kegs.2018.24.2.21.
- Lee, J., J.-W. Hong, K. Lee, J. Hong, E. Velasco, Y. J. Lim, J. B. Lee, K. Nam, and J. Park, 2019: Ceilometer monitoring of boundary-layer height and its application in evaluating the dilution effect on air pollution. *Bound.-Layer Meteor.*, **172**, 435-455, doi:10.1007/s10546-019-00452-5.
- Li, D., Y. Wu, B. Gross, and F. Moshary, 2021: Capabilities of an automatic lidar ceilometer to retrieve aerosol characteristics within the planetary boundary layer. *Remote Sens.*, **13**, 3626, doi:10.3390/rs13183626.
- Lim, H.-J., and Y.-J. Lee, 2011: Characterization of ozone distributions in Pohang: measurement data during 2002-2006. *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, **27**, 50-62, doi:10.5572/KOSAE.2011.27.1.050.
- Ma, X., W. Jiang, H. Li, Y. Ma, S. Jin, B. Liu, and W. Gong, 2021: Variations in nocturnal residual layer height and its effects on surface PM_{2.5} over Wuhan, China. *Remote Sens.*, **13**, 4717, doi:10.3390/rs13224717.
- Murthy, B. S., R. Latha, A. Tiwari, A. Rathod, S. Singh, and G. Beig, 2020: Impact of mixing layer height on air quality in winter. *J. Atmos. Sol.-Terr. Phys.*, **197**, 105157, doi:10.1016/j.jastp.2019.105157.
- Nam, K.-P., D.-G. Lee, and L.-S. Jang, 2019: Analysis of PM_{2.5} concentration and contribution characteristics in South Korea according to seasonal weather patterns in East Asia: focusing on the intensive measurement periods in 2015. *J. Environ. Impact Assess.*, **28**, 183-200, doi:10.14249/eia.2019.28.3.183.
- Nam, T.-C., and Coauthors, 2023: A study on the characteristics of PM_{2.5} and estimation of source identification in Jeollabuk-do: focused on Iksan City. *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, **39**, 985-1006, doi:10.5572/kosae.2023.39.6.985.
- Nguyen, D.-H., D. Štefánik, T. Šedivá, and C. Lin, 2023: Properties of the mixing layer height retrieved from ceilometer measurements in Slovakia and its relationship to the air pollutant concentrations. *Environ. Sci. Pollut. Res. Int.*, **30**, 115666-115682, doi:10.1007/s11356-023-30489-6.

- NIER, 2023: Annual report of air quality in Korea, 2022. National Institute of Environmental Research, 403 pp.
- Roy, S., P. Gupta, and T. N. Singh, 2012: Studies on meteorological parameters and mixing height in gold mining area. *Resour. Environ.*, **2**, 228-239, doi:10.5923/j.re.20120205.06.
- Schäfer, K., S. Emeis, H. Hoffmann, and C. Jahn, 2006: Influence of mixing layer height upon air pollution in urban and sub-urban areas. *Meteor. Z.*, **15**, 647-658, doi:10.1127/0941-2948/2006/0164.
- Seibert, P., F. Beyrich, S.-E. Gryning, S. Joffe, A. Rasmussen, and P. Tercier, 2000: Review and intercomparison of operational methods for the determination of the mixing height. *Atmos. Environ.*, **34**, 1001-1027, doi:10.1016/S1352-2310(99)00349-0.
- Seo, J., D. Youn, J. Y. Kim, and H. Lee, 2014: Extensive spatiotemporal analyses of surface ozone and related meteorological variables in South Korea for the period 1999~2010. *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 6395-6415, doi:10.5194/acp-14-6395-2014.
- Shin, H. J., K. M. Cho, J. S. Han, J. S. Kim, and Y. P. Kim, 2012: The effects of precursor emission and background concentration changes on the surface ozone concentration over Korea. *Aerosol Air Qual. Res.*, **12**, 93-103, doi:10.4209/aaqr.2011.09.0141.
- Solanki, R., R. Macatangay, V. Sakulsupich, T. Sonkaew, and P. S. Mahapatra, 2019: Mixing layer height retrievals from miniMPL measurements in the Chiang Mai valley: implications for particulate matter pollution. *Front. Earth Sci.*, **7**, 308, doi:10.3389/feart.2019.00308.
- Stull, R. B., 1988: *An introduction to boundary layer meteorology*. Roland B. Stull, Springer Dordrecht, 670 pp.
- Sturges, H. A., 1926: The choice of a class interval. *J. Am. Stat. Assoc.*, **21**, 65-66.
- Su, T., Z. Li, and R. Kahn, 2018: Relationships between the planetary boundary layer height and surface pollutants derived from lidar observations over China: regional pattern and influencing factors. *Atmos. Chem. Phys.*, **18**, 15921-15935, doi:10.5194/acp-18-15921-2018.
- Tang, G., and Coauthors, 2016: Mixing layer height and its implications for air pollution over Beijing, China. *Atmos. Chem. Phys.*, **16**, 2459-2475, doi:10.5194/acp-16-2459-2016.
- Wagner, P., and W. Kuttler, 2014: Biogenic and anthropogenic isoprene in the near-surface urban atmosphere—A case study in Essen, Germany. *Sci. Total Environ.*, **475**, 104-115, doi:10.1016/j.scitotenv.2013.12.026.
- _____, and K. Schäfer, 2017: Influence of mixing layer height on air pollutant concentrations in an urban street canyon. *Urban Climate*, **22**, 64-79, doi:10.1016/j.uclim.2015.11.001.
- Wang, C., M. Jia, H. Xia, Y. Wu, T. Wei, X. Shang, C. Yang, X. Xue, and X. Dou, 2019: Relationship analysis of PM_{2.5} and boundary layer height using an aerosol and turbulence detection lidar. *Atmos. Meas. Tech.*, **12**, 3303-3315, doi:10.5194/amt-12-3303-2019.
- Wang, J., J. Gao, F. Che, X. Yang, Y. Yang, L. Liu, Y. Xiang, and H. Li, 2023: Summertime response of ozone and fine particulate matter to mixing layer meteorology over the North China plain. *Atmos. Chem. Phys.*, **23**, 14715-14733, doi:10.5194/acp-23-14715-2023.
- Wang, N., and Coauthors, 2021: Air quality during COVID-19 lockdown in the Yangtze River Delta and the Pearl River Delta: two different responsive mechanisms to emission reductions in China. *Environ. Sci. Technol.*, **55**, 5721-5730, doi:10.1021/acs.est.0c08383.
- Wiegner, M., F. Madonna, I. Binietoglou, R. Forkel, J. Gasteiger, A. Geiß, G. Pappalardo, K. Schäfer, and W. Thomas, 2014: What is the benefit of ceilometers for aerosol remote sensing? An answer from EARLINET. *Atmos. Meas. Tech.*, **7**, 1979-1997, doi:10.5194/amt-7-1979-2014.
- Wisthaler, A., and C. J. Weschler, 2010: Reactions of ozone with human skin lipids: sources of carbonyls, dicarbonyls, and hydroxycarbonyls in indoor air. *Proc. Natl. Acad. Sci.*, **107**, 6568-6575, doi:10.1073/pnas.0904498106.
- Yeo, M. J., and Y. P. Kim, 2019: Trends of the PM10 concentrations and high PM10 concentration cases in Korea. *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, **35**, 249-264, doi:10.5572/KOSAE.2019.35.2.249.
- Zhai, S., and Coauthors, 2021: Control of particulate nitrate air pollution in China. *Nat. Geosci.*, **14**, 389-395, doi:10.1038/s41561-021-00726-z.
- Zhao, W., and Coauthors, 2019: Evolution of boundary layer ozone in Shijiazhuang, a suburban site on the North China Plain. *J. Environ. Sci.*, **83**, 152-160, doi:10.1016/j.jes.2019.02.016.
- Zhu, X., and Coauthors, 2018: The spatial representativeness of mixing layer height observations in the North China Plain. *Atmos. Res.*, **209**, 204-211, doi:10.1016/j.atmosres.2018.03.019.