

황해 직선 항로상 대기오염물질의 측정

Shipboard Measurements of Air Pollutants across the Yellow Sea

이승복 · 배귀남* · 진현철 · 김영성 · 문길주 · 심상규

한국과학기술연구원 대기자원연구센터

(2003년 8월 6일 접수, 2003년 12월 10일 채택)

Seung-Bok Lee, Gwi-Nam Bae*, Hyun-Chul Jin,

Young Sung Ghim, Kil-Choo Moon and Shang Gyoo Shim

Air Resources Research Center, Korea Institute of Science and Technology, Seoul, Korea

(Received 6 August 2003, accepted 10 December 2003)

Abstract

Air pollutants were measured eight times from June 1999 to June 2002 on regular ferries cruising across the Yellow Sea between Incheon in Korea and Qingdao or Tianjin in China. PM_{10} and $PM_{2.5}$ were measured as particulate matters and SO_2 , CO, and NO_x were measured as gaseous pollutants. On each route, sampling was made, starting two hour after departure and ending two hour before arrival. Low concentrations of gaseous pollutants that were not much varied according to sampling period and location revealed that atmosphere over the sea was not directly affected by anthropogenic emissions. However, concentrations of fine particles were generally higher than those measured at Deokjeok Island, 50 km west of the western seashore, at similar periods. It was believed that considerable influence of China in the form of secondary pollutants was exerted over the sea.

Key words : Shipboard measurement, Aerosol, Sulfur dioxide, Yellow Sea

1. 서 론

황해의 대기환경을 종합적이고 체계적으로 조사하기 위해 1998년 12월부터 황해종합조사사업의 일부로 “해양-대기 조사 연구”가 수행되었다(문길주 등, 2002, 2001). 황해상의 덕적도에서 측정된 대기오염물질의 농도를 분석한 결과에 의하면, 덕적도의 미세입자 및 조대입자의 질량농도와 인위적 대기오염물질의 농도가 국가 장거리 이동 측정망의 하나인

강화 측정소에 비하여 낮았다(김진영 등, 2003; 이승복 등, 2002). 그러나, 덕적도가 다른 측정소에 비하여 상대적으로 배출원이 적어도 1,500명 정도의 인구가 상주하고 있는 관광지이므로, 국소 오염원의 영향을 어느 정도 받을 수밖에 없다(윤용석 등, 2002). 김영성 등(2003)은 오존과 SO_2 농도의 상관관계를 이용하여 덕적도 측정소에서 국소 오염원의 영향이 지배적인 것으로 추정되는 사례일과 장거리 이동에 의한 영향이 지배적인 것으로 추정되는 사례일로 구분하여 대기오염물질의 변화 특성을 고찰하였다.

이처럼 도서나 황해에 인접한 고정 측정소의 측정 자료에는 황해 대기질에 광범위하게 영향을 미치지

* Corresponding author

Tel : +82-(0)2-958-5676, E-mail: gnbae@kist.re.kr

못하는 국소 오염원의 영향이 포함되어 있을 수 있다. 또한, 김영성 등(2003)이 지적한 것과 같이 오염물질의 장거리 이동의 영향이 지역별로 차이가 있으므로, 황해상 한 지점인 도서에서의 측정자료로 황해 전체의 대기 오염도를 대표하는데 한계가 있다. 그러므로, 황해상 대기질을 감시하는 고정 측정소에서 얻은 대기오염물질 실측자료가 황해 전체 또는 황해 일부를 잘 대표하는지 검토할 필요가 있다. 즉, 황해상 대기질을 감시하기 위해 덕적도에서 운영되는 고정 측정소의 측정자료에 포함될 수 있는 국소 오염원의 영향을 최소화시키고, 고정 측정소의 공간적인 한계를 극복하기 위하여 실제 황해상 넓은 지역에서 대기오염물질을 측정할 필요가 있다. 이러한 목적을 달성하는데 황해를 항해하는 정기 여객선을 이용한 대기오염물질 측정이 매우 유용하다.

지금까지 황해 대기질에 대하여 주로 다음과 같은 연구들이 수행되었다. 대기오염물질의 장거리 이동을 연구하기 위해 중국 동해안, 우리나라 서해안 및 제주도에도 고정 측정소들이 장기적으로 운영되고 있으며, 황해 물질 플럭스를 연구하기 위해 우리나라 서해안에 위치한 고정 측정소 및 황해 전역을 항해하는 연구 조사선이 이용되어 중금속, 영양염류 등이 측정되었다(Lee *et al.*, 2001; 홍기훈 등, 1997). Kim *et al.* (2001)은 항공기를 이용하여 황해 상공의 대기질을 측정하여 황해 대기가 오염된 대륙의 대기질 특성과 청정한 배경농도 지역의 대기질 특성을 함께 나타내고 있으며, 중국 대륙에서 기원한 오염된 공기괴의 영향을 자주 받는다고 보고하였고, SO₂가 황해를 거쳐 장거리 이동하면서 비해염 황산염으로 변환된 것으로 추정되는 사례일을 제시하였다. Gao *et al.* (1997, 1996)은 황해와 인접한 동중국해에서 선박을 이용하여 측정한 입자상 물질의 경우 중국 내륙 및 동해안에 위치한 도시들에서의 측정결과에 비하여 인위적 오염물질 및 토양먼지의 농도가 낮다는 것을 밝혀냈고, 해양과 해안에서 질산염의 입경분포가 서로 유사한 것을 해염 입자와의 반응으로, 내륙과 해양에서 토양 원소의 입경분포가 서로 다른 것을 오염원으로부터의 거리로 설명하였다.

본 연구에서는 황해를 항해하는 정기 여객선들 중에서 황해 중앙을 가로지르면서 육지(연안)로부터 가능한 멀리 떨어져 있는 인천-청도(중국)간 노선을 선정하였으며, 황해 북부영역도 조사하기 위하여

인천-천진(중국) 노선을 추가하였다. 1999년 6월부터 2002년 6월까지 3년 동안 연 2회씩 왕복으로 인천과 중국 청도(7회), 인천과 중국 천진(1회)을 항해하는 정기 여객선을 이용하여 황해상 대기 에어로졸 및 가스상 물질을 측정하였다. 1999년 6월 인천-청도간 항해에서 측정한 휘발성 유기화합물과 중메틸황(DMS)의 측정결과는 이미 발표되었다(김기현 등, 2000; 김용표 등, 2000).

본 고에서는 가스상(SO₂, CO, NO_x, HCl, HNO₃, NH₃) 및 입자상(PM₁₀ 및 PM_{2.5}) 대기오염물질의 황해 직선 항로상 공간적인 농도분포 및 평균 농도를 분석하여 황해 직선 항로상 대기오염물질의 농도 특성을 파악하였다. 황해 대기질 감시를 위해 장기적으로 운영되고 있는 덕적도 측정소의 실측자료가 황해의 대기 농도를 잘 반영하고 있는지 살펴보기 위하여 선박 측정결과를 비슷한 측정일의 덕적도 측정소의 결과와 비교하여 농도 수준 및 상관성을 검토하였다. 또한, 선박 측정결과를 국내의 기존 황해 인접 측정소들의 자료와 비교하여 황해 대기오염물질의 농도 수준 및 특성을 파악하였다.

2. 측정 및 분석

국소 오염원의 영향을 최소화하여 황해상 대기오염물질의 공간적인 농도분포를 파악하기 위하여 인천과 청도/천진(중국)을 항해하는 정기 여객선을 이용하여 1999년 6월부터 2002년 6월까지 3년 동안 매년 2회씩 모두 8회 대기 에어로졸과 가스상 물질을 측정하였다. 정기 여객선의 항로를 기존 고정 측정소들의 위치와 함께 그림 1에 나타냈다.

인천-청도간 측정에 사용된 선박은 주로 위동항운의 약 16,000톤 컨테이너 여객선인 향설관호이었고, 2001년 2월의 경우 뉴골든 브릿지 2호를, 2002년 6월의 경우 뉴골든 브릿지 3호를 이용하였다. 2002년 5월 인천-천진간 측정에 사용된 선박은 진천항운의 진천훼리로 위동항운의 뉴골든 브릿지 2호와 동일한 모델이다. 출항시간 및 도착시간은 계절 및 조수간만의 차에 따라 조금씩 달랐지만, 주로 오후 1~2시에 인천항에서 출항하여 1시간 후에 판문을 통과하여 항해한 후 그 다음날 오전 10시경에 중국 청도항에 도착하였다. 평일의 경우 청도항에 도착한

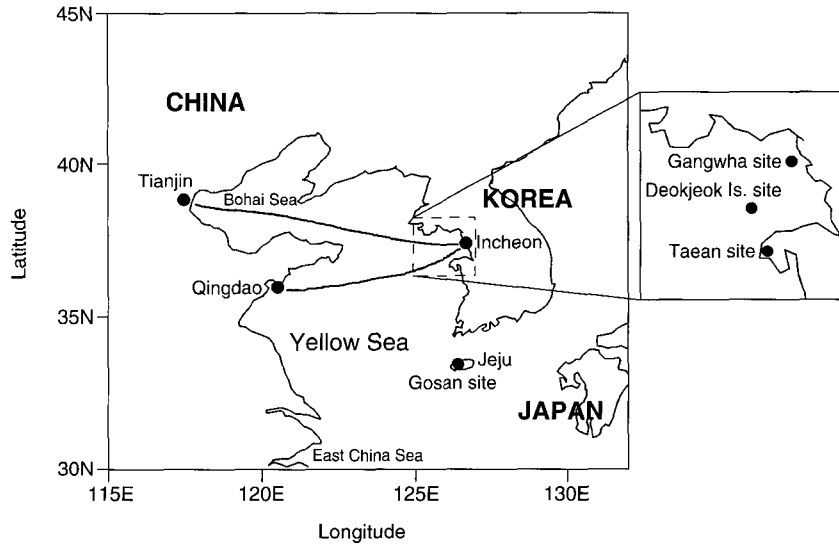


Fig. 1. Cruising routes of shipboard measurements between Incheon, Korea and Qingdao or Tianjin, China.

Table 1. Outline of the shipboard measurements conducted in this study.

Season	Period	Day	Aerosols (compositions)			Gases (sampling method)				Ship*	Cruising route**
			TSP	PM ₁₀	PM _{2.5}	HCl, HNO ₃ , NH ₃	SO ₂	CO	NO _x		
Spring	04/14-04/17/01	Sat.-Tue.	-	ions ¹⁾ /trace ²⁾	ions	filter	bag (8) ³⁾	bag (8)	-	XI	IC-QD
	05/28-05/31/02	Tue.-Fri.	-	trace	ions	filter	bag (10)	-	bag (11)	JI	IC-TJ
Summer	06/12-06/15/99	Sat.-Tue.	ions	-	ions	filter	bag (6)	-	-	XI	IC-QD
	06/03-06/06/00	Sat.-Tue.	-	trace	ions	filter	bag (12)	bag (12)	-	XI	IC-QD
	06/03-06/04/02	Mon.-Tue.	-	trace	ions	filter	bag (8)	-	bag (8)	N3	IC-QD
	06/07-06/08/02	Fri.-Sat.	-	trace	ions	filter	bag (8)	-	bag (8)	N3	IC-QD
Fall	10/23-10/26/99	Sat.-Tue.	-	ions	ions	filter	bag (3)	-	-	XI	IC-QD
Winter	12/20-12/22/00	Wed.-Fri.	-	ions	ions	filter	bag (14)	bag (14)	-	XI	IC-QD
	02/28-03/02/01	Wed.-Fri.	-	ions	ions	filter	bag (11)	bag (11)	-	N2	IC-QD

¹⁾ ions: water soluble ions, ²⁾ trace: trace elements, ³⁾ number of samples

*XI: Xiang Xue Lan, JI: Jinchon ferry, N2: New golden bridge II, N3: New golden bridge III

**IC-QD: Incheon-Qingdao, IC-TJ: Incheon-Tianjin

당일 저녁에, 주말의 경우 청도항에 도착한 다음날 저녁 8시경에 청도항을 출발하여 그 다음날 오후 2시경에 인천항에 도착하였다. 같은 저녁 시간대에 상대적으로 인천에 가까운 위치에 있게 되는 인천발 항해와 상대적으로 청도에 가까운 청도발 항해는 지역별 일변화의 영향이 포함될 수 있다. 총 소요시간은 약 19시간이지만 접안하는 시간을 제외하면 실제 항해시간은 약 16시간이었다. 인천-천진간 항해의

경우 인천에서 출항한 시간은 청도항과 비슷하였고, 약 24시간 지난 후인 다음날 오후 2시경 천진에 도착하였다. 천진항에서 출항한 시간은 오후 1시경이었고 인천항에 도착한 시간은 정오경이었다. 육지 및 항구에 있는 오염원 및 주위 선박들의 영향을 최소화하기 위해 출항후 약 2시간부터 입항전 약 2시간까지 입자상 물질을 채취하였다. 출항시간이 일정한 정기 여객선을 이용하였기 때문에 낮 시간 동안에는

측정할 수 없었다. 측정기간 및 측정항목을 요약하여 표 1에 나타냈다. 총 8회 왕복 측정하였으며, 계절별로 봄에 2회, 여름에 3회, 가을에 1회, 겨울에 2회 측정하였다.

측정장비는 선박 굴뚝에 의한 영향을 최소화하기 위해 굴뚝의 앞쪽으로 약 16 m 떨어진 상갑판에 설치하였다. 이 위치는 해수면으로부터 약 25 m 높이이므로 해양입자의 영향은 크지 않을 것이다. 또한, 이 위치는 선박 굴뚝보다 약 3 m 낮지만 이들 선박의 평균 항해 속도가 약 10 m/s이므로, 선박 굴뚝에 의한 오염은 무시할 수 있을 것으로 생각된다. 측정에 주로 사용된 항실란호에서 샘플링 위치와 대기오염 물질 채취장비 및 기상장비의 모습을 그림 2에 나타냈다.

황해상 대기 중 입자상 물질의 농도를 파악하기 위하여 조대입자인 PM_{10} 과 미세입자인 $PM_{2.5}$ 를 측정하였다. 1999년 6월 첫 번째 측정에서는 조대입자로 총부유분진 (total suspended particulates, TSP)을 채취하였는데, 총부유분진 샘플러의 경우 특정 크기 이상의 입자를 미리 분리하지 않으므로 큰 입자에 의한 질량농도의 변동이 크고, 필터팩 입구의 직경이 커서 흡입속도가 작아 입자의 흡입효율 (aspiration efficiency)이 낮을 수 있으므로 두 번째 측정부터

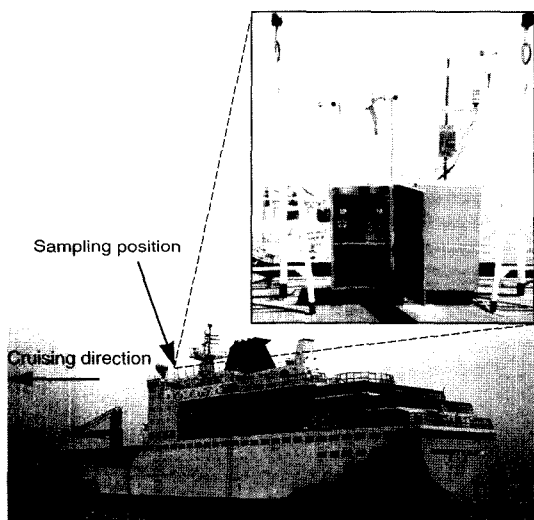


Fig. 2. Sampling position on a regular ferry (Xian Xue Lan) mainly used in this study and aerosol sampling and meteorology measuring equipments.

PM_{10} 으로 교체하였다. PM_{10} 채취장비는 유량 16.7 L/min에서 분리입경 (cut size, aerodynamic diameter)이 10 μm 인 싸이클론(2000-30ENB, URG), 1단 테플론 필터팩(#6T-471, Saville), 플로우트 유량계, 차압계, 진공펌프 등으로 구성하였다. $PM_{2.5}$ 채취장비는 유량 16.7 L/min에서 분리입경이 2.5 μm 인 싸이클론(2000-30EH, URG)과 3단 테플론 필터팩(#6T-473, Saville)만 다르고 나머지 구성요소는 PM_{10} 채취장비와 동일하였다. 일반 대기의 풍속과는 달리 평균 10 m/s의 빠른 속력으로 항해하는 선박에서 측정하였기 때문에 싸이클론 입구에서 입자의 흡입효율이 실제조건보다 낮아질 수 있었다. 특히, 관성의 영향을 더 많이 받는 조대입자의 흡입효율이 미세입자보다 더 낮을 수 있었다.

PM_{10} 과 $PM_{2.5}$ 모두 입자 채취용 거름종이로 테플론 멤브레인 거름종이 (Zefluor, pore size 2 μm , Gelman)를 사용하였다. $PM_{2.5}$ 용 3단 필터팩의 경우 테플론 멤브레인 거름종이 후단에서 나일론 거름종이를 이용하여 질산과 염산을, 전처리한 석영섬유 거름종이를 이용하여 암모니아를 채취하였다. PM_{10} 및 $PM_{2.5}$ 입자에 포함된 수용성 이온성분 분석에 관한 자세한 사항은 이승복 등 (2002)에 기술되어 있다.

PM_{10} 시료의 경우 측정에 따라 미량금속원소 (Al, As, Ba, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, Mg, Mn, Ni, Pb, Zn)를 분석하기도 하였다. 표 1에 나타낸 바와 같이 2001년 4월 측정에서 PM_{10} 시료의 경우 거름종이를 이등분하여 수용성 이온성분과 미량금속원소를 분석하였다. 미량금속원소 분석용 거름종이를 마이크로 오븐 (Q15 Microprep, Questron Technologies)의 테플론 용기 안에 넣고, 질산 5 mL와 과산화수소 1 mL를 넣은 후 마이크로 오븐의 power 8에서 3분, power 6에서 2분, power 4에서 1분 동안 두어 3단계에 걸쳐 파괴시킨 후 용기를 냉장고에서 서서히 식혔다. 이렇게 전처리한 용액을 원자 흡광도계 (AAAnalyst 300, Perkin Elmer) 또는 KIST 특성분석센터의 ICP-MS를 이용하여 분석하였다. 미량금속원소의 검출한계는 As의 경우 0.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, Cr과 Fe의 경우 0.08 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 그리고 나머지 원소들은 모두 0.005 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이하이었다.

SO_2 , CO, NO_x 등 가스상 물질을 측정하기 위해 휴대용 소형 펌프 (224-PCXR7, SKC)를 이용하여 5~10 L 용량의 테들러백 (AAK-10, GI Science)에

1~5 L/min 유량으로 공기시료를 채취한 후 실험실에서 가스분석기(SO₂ model 43C, CO model 48C, NO_x model 42C, Thermo Environmental Instruments)로 분석하였다. 항구 및 직선 항로상에서 경도에 따라 여러 개의 시료를 채취하여 가스상 물질의 황해 직선 항로상 공간적인 농도분포 및 평균 농도를 얻었다. 2000년 12월과 2001년 2월 측정에서는 2~3개의 시료를 연속해서 채취하기도 하였다. 가스분석기의 검출한계는 SO₂ 0.1 ppb, CO 0.04 ppm, NO_x 0.4 ppb이다. 화학발광법 연속가스분석기의 특성상 NO_x 농도에는 HONO, HNO₃, peroxy acetyl nitrate 등의 질소화합물의 농도가 포함될 수 있는데(Winer *et al.*, 1974), 본 측정결과에서는 NO가 대부분을 차지하였다. 테들러백 표면에서 손실 등에 의하여 본 연구에서 구한 가스상 물질의 농도는 실제보다 낮게 평가되었을 수 있지만, 고농도 시료가 아니므로 측정오차는 크지 않을 것으로 생각된다. 1999년 10월 측정을 제외하고 해상에서 안개가 자주 관측되었는데, 이로 인해 황해상 SO₂ 농도가 낮아졌을 수도 있다.

항해 중 선박에서 측정되는 풍향과 풍속은 황해상 절대 풍향과 풍속이 아니라 선박의 항해 속력과 방향의 영향이 반영된 상대적인 값이다. 2001년 2월 측정을 제외하면, 평균 풍속은 8~15 m/s 범위이었고, 풍향은 대부분 선두에서 선미 방향이었다. 2001년 2월의 경우 측정장비를 선박 상갑판의 측면에 설치하였는데, 항해실 등에 의해 형성된 유동 경계층의 영향을 받아 풍속이 7 m/s 이하로 측정되었다.

3. 결과 및 검토

1999년 6월부터 3년 동안 8회에 걸쳐 인천-청도 및 인천-천진간 운항되는 정기 여객선에 탑승하여 황해 직선 항로상 대기 중의 입자상 물질과 가스상 물질을 측정하였다. 먼저 직선 항로상 가스상 물질의 공간적인 농도분포를 살펴보고, 사례별로 가스상 및 입자상 물질의 평균 농도를 덕적도 측정소의 결과와 비교한 후 황해에 인접한 기존 측정소들의 자료와 비교하였다. 입자상 물질과 거름종이로 채취한 가스상 물질(HCl, HNO₃, NH₃)의 경우 편도 1개씩 시료를 얻었기 때문에 인천-청도 및 인천-천진 항로상의 공간적인 분포를 알 수 없었다.

3.1 황해 직선 항로상 가스상 물질의 농도분포

황해 직선 항로상 위치(경도)에 따른 SO₂, CO 및 NO_x의 농도분포를 그림 3에 나타냈다. 그림 3을 보면, 대부분의 측정에서 가스상 물질의 농도는 황해 직선 항로상 경도에 따라 큰 차이를 나타내지 않았다. 또한, 측정일과 측정시간이 다름에도 불구하고 인천발 항해 중 측정된 농도분포와 청도발 항해 중 측정된 농도분포가 크게 다르지 않았다. 이것은 황해상 대기질이 대체로 지역 규모(regional scale)로 이동되는 오염물질의 영향을 받기 때문인 것으로 생각된다.

SO₂ 농도는 총 72개 시료 중에서 63개 시료가 위치에 상관없이 1 ppb 이하였고, CO 농도는 총 45개 시료 중에서 34개 시료가 0.4 ppm 이하였고, NO_x 농도는 총 19개 시료 중에서 14개 시료가 10 ppb 이하였다. SO₂, CO 및 NO_x 농도가 각각 1 ppb, 0.4 ppm, 10 ppb를 초과하는 시료들은 모두 청도항 및 인천항 연안이거나 발해만 지역으로 육지와 가까운 위치에서 채취한 것이었다.

그런데, 2002년 6월과 1999년 10월의 경우 황해 직선 항로상 위치에 따라 가스상 물질의 농도 변화가 뚜렷하게 나타났다. 그림 3(e)에 나타난 2002년 6월 인천-청도간 항해 중 측정에서 SO₂ 및 NO_x 농도는 청도 연안과 황해 중간에서 낮았으나 인천 연안에서 높았다. 이것은 인천 연안의 섬 또는 주위 선박들의 영향을 받았기 때문인 것으로 추정된다. 이와 반대로 그림 3(f)에 나타난 1999년 10월 청도발 항해 중 측정의 경우 SO₂ 농도는 청도 연안에서 2.1 ppb로 상대적으로 가장 높았고 황해 중간에서 약 1.9 ppb로 높았으며, 인천 연안에서 1.4 ppb로 가장 낮았다. 이러한 농도분포는 대기오염물질이 장거리 이동될 때 나타날 수 있는데, 시료수가 적고 농도 차이가 크지 않아 장거리 이동의 결과로 단정하기는 어렵다. 장거리 이동의 영향을 파악하기 위해서는 공기피의 역래적 분석과 같은 연구가 추가로 수행되어야 한다.

3.2 황해 직선 항로상 대기오염물질의 평균 농도

테들러백으로 채취한 가스상 물질의 경우 각 측정에서 시료수 및 채취 위치의 간격이 일정하지 않지만, 본 연구에서는 연속 채취한 시료들의 경우 평

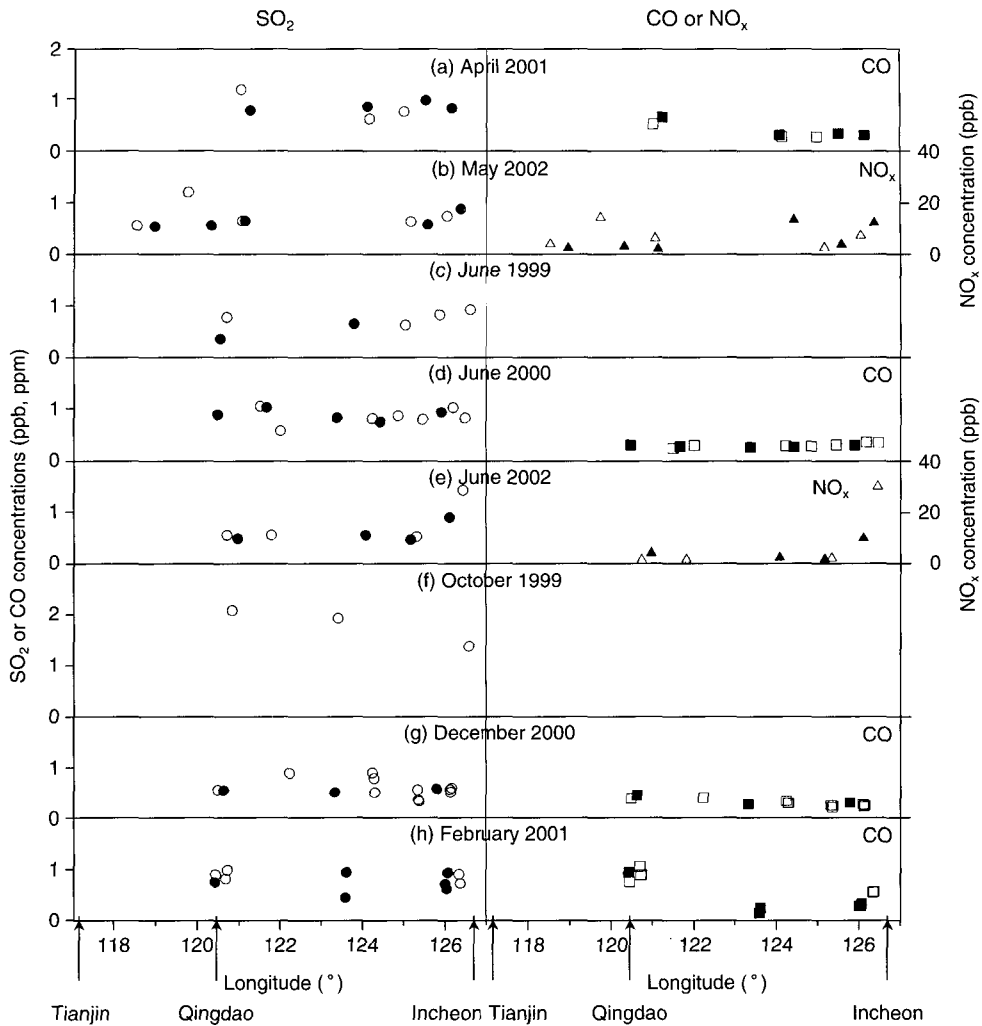


Fig. 3. Longitudinal concentration distributions of SO₂, CO, and NO_x over the Yellow Sea. Solid symbols represent the data for forward cruising from Incheon to Qingdao or Tianjin, and open symbols for backward cruising.

균값 1개를 사용하여 나머지 시료들의 농도와 함께 산술적으로 평균하여 황해 직선 항로상 평균 농도를 구하였다. 또한, 황해 연안에 인접한 내륙의 영향을 최소화시키기 위하여 그림 3에 나타난 가스상 물질의 농도들 중에서 입자상 물질을 채취하는 동안의 시료를 대상으로 각 측정별 황해상 평균 농도를 구하였다. 인천-청도 항로상 SO₂, CO 및 NO_x 평균 농도의 평균값, 최대값 및 최소값을 구하여 그림 4에 나타냈다.

인천-청도간 직선 항로에서 태들리백으로 채취한

가스상 물질의 평균 농도는 SO₂의 경우 0.82 ppb, CO의 경우 0.435 ppm, NO_x의 경우 5.58 ppb이었다. 우리나라 장거리 이동 측정망의 하나인 제주도 고산의 경우 SO₂, CO 및 NO_x의 1999년 연평균 농도는 각각 1 ppb, 0.2 ppm, 7 ppb이었으므로(환경부, 2000), 황해상 SO₂와 NO_x 농도는 고산의 농도와 비슷하고 CO 농도는 2배 가량 높은 수준임을 알 수 있다. Kim *et al.* (2001)은 항공기를 이용하여 우리나라 서해안 상공에서 SO₂를 측정하였는데, 14회의 비행 중에서 3회의 고농도 SO₂ (1.9~7.4 ppb)가 관측된 것

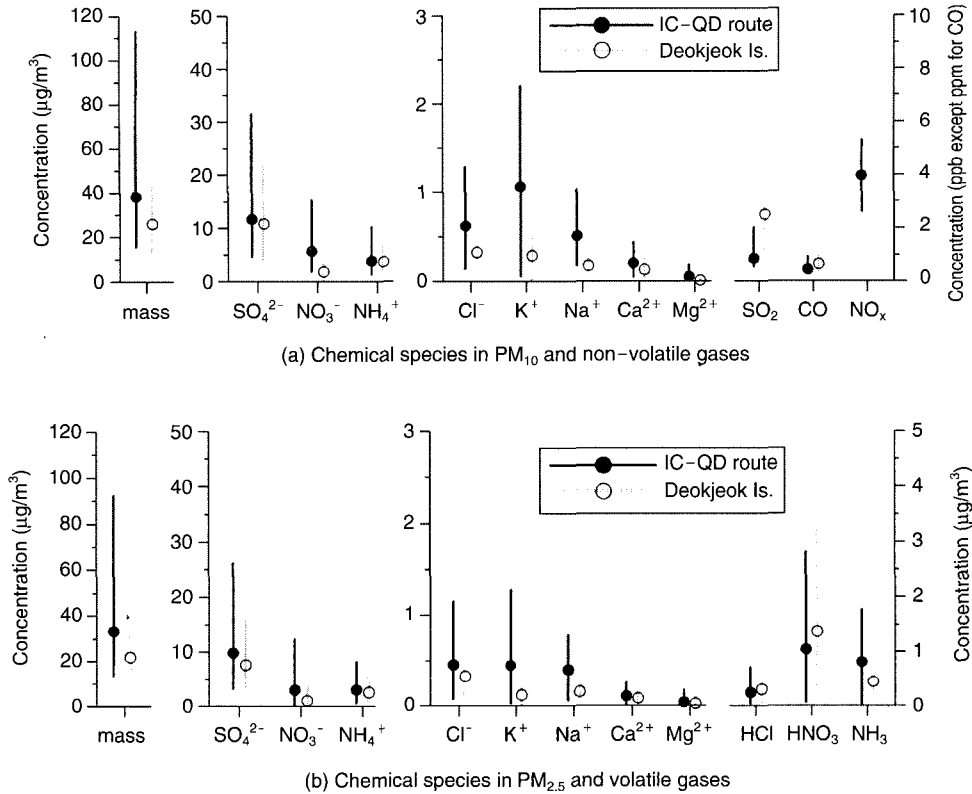


Fig. 4. Concentrations of chemical species in PM₁₀ and PM_{2.5}, and concentrations of gaseous species measured on both Incheon-Qingdao cruising route and Deokjeok Island at similar periods.

을 제외하고 모두 1.5 ppb 이하였다.

해상에서 안개가 관측되지 않았던 1999년 10월 청도발 측정에서 SO₂ 농도가 2 ppb였던 것을 제외하면, 모든 측정의 평균 농도가 1 ppb 이하로 계절에 따른 농도 차이가 거의 없었다(그림 5 참조). 해상 안개에 의해 SO₂가 용해되고 황산염으로 산화될 수 있으므로, 안개에 의해 황해상 SO₂ 농도가 낮아졌을 수 있다(김영성 등, 2003; Zhuang *et al.*, 1999; Seinfeld and Pandis, 1998). CO의 경우 시료수가 적었지만 겨울에 고농도가 관측되었고, 겨울 평균 농도도 다른 계절에 비해 높았다. NO_x는 2002년 5월에 측정한 인천-천진간 농도가 2002년 6월에 측정한 인천-청도간 농도보다 약 1.8배 높았다.

인천-청도간 정기 여객선을 이용하여 7회 왕복 측정한 황해 직선 항로상 대기 중 PM₁₀ 및 PM_{2.5}의 질량, 수용성 이온성분 및 입자상 물질과 함께 채취

한 휘발성 산성 및 염기성 가스상 물질의 평균, 최대 및 최소 농도를 구하여 그림 4에 나타내었다. PM₁₀과 PM_{2.5}의 경우 편도당 1개의 시료를 얻었으므로, 각 시료의 농도를 황해 직선 항로상 농도를 대표하는 것으로 간주하였다.

인천-청도간 직선 항로에서 PM₁₀의 질량농도는 15.6~113.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 범위이었고, 1개의 시료를 제외하면 모두 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이하였다. 총 11개 PM₁₀ 시료의 평균 질량농도는 38.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이었고 최고농도를 제외한 10개 시료의 평균 질량농도는 30.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이었다. 측정기간 및 시료수가 다르지만 우리나라 장거리 이동 측정망의 1999년 연평균 PM₁₀ 질량농도와 비교하면, 인천-청도 항로상 PM₁₀ 질량농도는 강화(59 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)와 태안(68 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)보다 낮은 반면, 고산(28 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)보다는 약간 높았다(환경부, 2000). 국소 오염원의 영향과 밀접한 조대입자의 질량농도가 강화와 태안에

비하여 상대적으로 낮은 것은 선박 측정에서 국소 오염원의 영향을 거의 받지 않았기 때문이라고 생각된다. 인천-천진 항로상 PM₁₀의 질량농도는 38.0~169.7 μg/m³ 범위로 인천-청도 항로 뿐만 아니라 강화, 태안 및 고산의 농도보다 훨씬 높으므로, 황해 북부 지역이 중부 지역에 비해 상대적으로 심하게 오염되어 있을 것으로 추정된다(표 2 참조).

계절별 평균, 최대 및 최소 농도를 비교하여 나타낸 그림 5를 보면, 2000년 12월과 2001년 2월의 겨울철 시료 모두 PM₁₀ 질량농도가 나머지 계절의 시료들에 비하여 높았다. 이것은 겨울철의 연료 사용량 증가에 기인된 것으로 추정된다.

장거리 이동과 관련되는 PM_{2.5}의 경우 인천-청도 항로상 질량농도는 13.7~92.2 μg/m³ 범위를 나타냈으며, 최고 농도를 제외하면 모두 57 μg/m³ 이하였다. 총 13개 PM_{2.5} 시료의 평균 질량농도는 33.3 μg/m³이었고 최고 농도를 제외한 12개 시료의 평균 질량농도는 28.4 μg/m³이었다. 그림 5에 나타낸 바와 같이 PM_{2.5}도 PM₁₀과 동일하게 겨울철 농도가 높는데, 이것은 덕적도에서 가을을 제외하고 계절별 PM_{2.5} 질량농도가 비슷한 것과는 다르다(윤용석 등, 2002).

인천-청도 항로상 동일 측정에 대하여 질량농도

의 미세입자 분율(PM_{2.5}/PM₁₀)을 살펴보면, 미세입자 분율은 모든 측정에서 0.7 이상이었고, 1.0을 초과한 2개 시료를 제외한 나머지 시료의 평균 분율은 0.9로 매우 높았다. 2001년 2월 인천발 항해 중 채취한 시료의 경우 PM₁₀ 샘플러의 흡입유량이 싸이클론의 설계유량인 16.7 L/min보다 1.5배 높은 조건에서 작동되어 분리입경이 약 7 μm로 작아졌을 뿐만 아니라 전력 부족으로 인해 PM₁₀ 샘플러를 PM_{2.5} 샘플러보다 40분 일찍 종료하여 상대적으로 육지와 가까운 위치에서 PM₁₀을 채취하지 못하여 미세입자 분율이 높아져 최고값(1.11)이 된 것으로 추정된다. 앞에서 언급한 것과 같이 높은 풍속에서 조대입자의 흡입 효율 저하가 미세입자의 경우보다 더 큰 것도 미세입자 분율이 실제보다 좀더 높아진 원인이 될 수 있다. 국가 장거리 이동 측정망이 있는 강화와 태안 측정소의 미세입자 분율인 0.29와 0.42에 비하여 황해상의 미세입자 분율은 2배 이상 높음을 알 수 있다(이승복 등, 2002). 즉, 황해상 대기 에어로졸은 국소 오염원의 영향을 많이 받는 조대입자보다 장거리 이동하기 쉬운 미세입자가 대부분을 차지하였다. 황해상에는 선박을 제외하고 국소 오염원이 없기 때문에 외부에서 유입된 공기에 의해 대기질이 좌우되며, 이

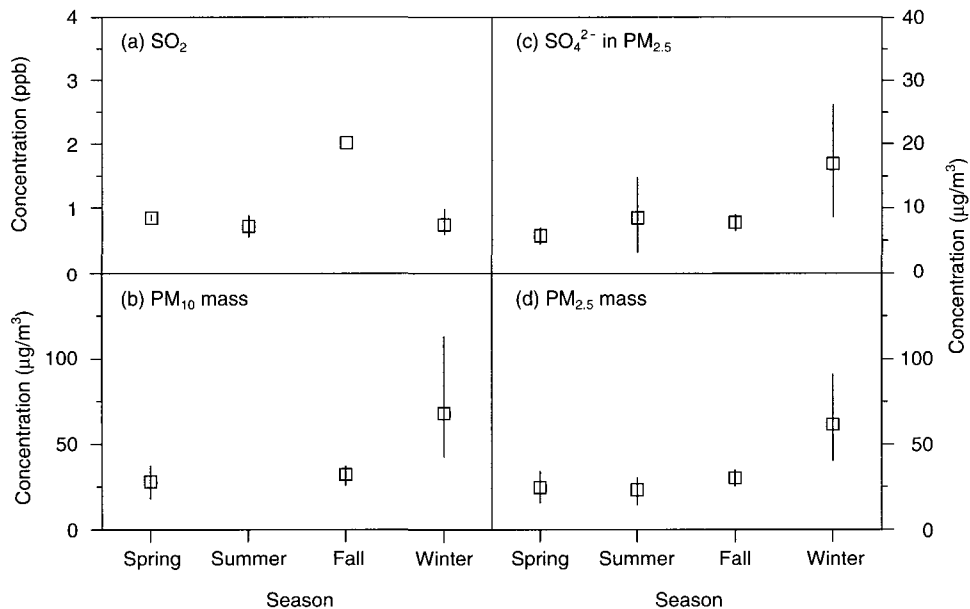


Fig. 5. Seasonal variation of air pollutants concentrations on the Incheon-Qingdao cruising route.

로 인해 황해상 미세입자 분율이 고정 측정소에 비하여 높은 것으로 생각된다.

인천-청도 항로상 입자상 물질에 포함된 수용성 이온성분을 분석한 결과에 의하면, 양이온 합에 대한 음이온 합이 양이온의 1.04~1.55 배로 음이온이 약간 많았다. $PM_{2.5}$ 및 PM_{10} 에 포함된 Na^+ 의 평균 농도 ($0.40, 0.51 \mu g/m^3$)는 각각 평균 질량농도의 약 1.1%를 차지하였다. Na^+ 을 모두 해양 기원으로 가정하여도 질량농도에 대한 해양입자의 기여도가 크지 않은데, 이것은 측정 선박에서 입자 샘플링 위치가 해면으로부터 충분히 높았기 때문인 것으로 생각된다. PM_{10} 및 $PM_{2.5}$ 에 포함된 비해양 염산염의 대부분이 음수인데, 이것은 염소의 휘발(chloride loss)이 발생되었기 때문인 것으로 생각된다(윤용석 등, 2002).

PM_{10} 시료에서 Al, Ca, Fe, Pb, Zn을 제외한 미량금속원소들의 농도는 대부분 검출한계 이하이었다. 대표적 지각원소인 Al과 Ca 농도는 검출한계 이하부터 각각 $3.48, 4.86 \mu g/m^3$ 까지 분포하였는데, 제주도 성산포에서 측정된 TSP에 포함된 Al과 Ca의 농도 범위인 $0.11 \sim 4.95, 0.05 \sim 4.19 \mu g/m^3$ 와 유사하였다(최만식 등, 1999). 반면 인위적 오염물질인 Zn의 경우 최고 농도($0.32 \mu g/m^3$)는 제주도 성산포의 TSP에 포함된 Zn의 최고 농도보다 2.6배 가량 높았다(최만식 등, 1999). 1992년 또는 1996년 중국 청도에서 측정된 미량금속원소들의 농도와 비교하면, 선박 측정 시 최고 농도는 청도에 비해 Al과 Ca의 경우 각각 1/10, 1/3 수준이며, 평균 농도는 Al의 경우 1/4 수준, Ca과 Zn의 경우 서로 비슷하다(Zhang *et al.*, 2001; Gao *et al.*, 1996).

3.3 덕적도 측정결과와 사례 비교

황해 대기질을 감시하기 위해 장기적으로 운영되고 있는 덕적도 측정소의 실측자료가 황해의 대기 농도를 잘 반영하고 있는지 살펴보기 위하여 인천-청도간을 운항하는 정기 여객선을 이용하여 측정된 황해 직선 항로상 대기오염물질의 농도를 비슷한 기간의 덕적도 측정결과와 비교하였다. 선박 측정의 시료수가 고정 측정소의 시료수에 비하여 현저히 적기 때문에 전체 평균값으로 비교하기 전에 측정기간이 유사한 자료들을 비교하였다. 덕적도 측정소의 입자상 물질 중 수용성 성분 및 가스상 물질의 평균, 최

대 및 최소 농도를 그림 4에 나타내었다. 덕적도에서 연속가스분석기로 측정된 SO_2 와 CO는 선박 측정과 동일한 측정시간 동안의 1시간 평균 농도를 평균하여 나타냈다. 덕적도에서 입자상 물질 및 휘발성 가스상 물질의 채취는 측정일 오전 9시경에 시작하여 다음날 오전 9시경에 종료하는 것을 원칙으로 하였으나, 2일 이상 채취한 시료도 있었으며 채취장비는 선박 측정에서 사용한 것과 동일하였다.

그림 4에 나타낸 것과 같이 유사한 측정기간 동안 덕적도에서 측정된 $PM_{2.5}$ 및 PM_{10} 의 질량농도 및 수용성 이온성분의 평균 농도는 인천-청도 항로상 평균 농도의 20~80%로 낮았다. 입자상 물질과는 달리 덕적도에서 측정된 가스상 물질의 농도는 NH_3 를 제외하고 황해상보다 1.5~2.2배 높았다.

이러한 경향이 개별 측정에서도 나타나는지를 알아보기 위해 황해상 선박에서 측정된 미세입자중의 인위적 오염성분($SO_4^{2-}, NO_3^-, NH_4^+$)의 농도가 덕적도보다 높은 날(그룹 A)과 낮은 날(그룹 B)로 구분하여 사례별로 비교하였다. 비교가 가능한 총 12회 측정 중 9회 측정이 그룹 A에, 나머지 3회 측정이 그룹 B에 해당되었다. 그룹 A에는 2001년 2월과 4월 및 2002년 5월의 왕복 측정, 1999년 6월과 2000년 12월의 청도발 측정, 2002년 6월의 인천발 측정이 포함된다. 그룹 A의 대표적 측정인 1999년 6월 청도발 항해에서 측정된 황해상 미세입자의 질량농도, 화학적 성분 및 가스상 물질의 농도를 덕적도 측정결과와 비교하여 그림 6(a)에 나타내었다. 선박 측정의 측정시간을 모두 포함하기 위하여 덕적도 측정 결과는 두 개의 시료를 평균하여 나타냈다. 그림을 보면, 황해상 오염물질의 농도가 덕적도에 비하여 $PM_{2.5}$ 질량의 경우 1.7배, 황산염의 경우 1.3배, 질산염의 경우 7.3배, 암모늄염의 경우 1.1배 높았다. 질산염과 암모늄염은 가스상 물질로 변환될 수 있으므로, 질산염과 질산 기체를 합한 총질산, 암모늄염과 암모니아 기체를 합한 총암모늄으로 비교해도 각각 1.5배, 1.3배 높았다. 질량농도에 대한 기여도가 작은 이온들의 황해상 농도도 K^+ 을 제외하고 모두 덕적도보다 높았다.

2001년 4월 청도발 측정을 제외하고 모두 $PM_{2.5}$ 질량농도가 $25 \mu g/m^3$ 이상으로 높았고, 덕적도에서 측정된 $PM_{2.5}$ 질량농도는 $10.4 \sim 35.4 \mu g/m^3$ 범위로 다양하였다. 그룹 A에서 PM_{10} 질량농도 및 PM_{10} 에

포함된 인위적 오염성분 농도 역시 미세입자와 마찬가지로 황해상 농도가 덕적도보다 높았다. PM₁₀ 질량농도는 2001년 4월 청도발 측정을 제외하고 모두 38 µg/m³ 이상이었고 100 µg/m³ 이상인 시료도 2개 있었다. PM₁₀에 포함된 미량금속원소의 경우 성분에

따라 황해상 농도가 덕적도보다 낮기도 하였다. 반면, 입자상 물질의 경향과는 달리 그룹 A에서 CO 농도는 비교가 가능한 측정의 황해상 농도가 모두 덕적도보다 낮았다.

황해상 선박에서 측정된 미세입자에 포함된 인위

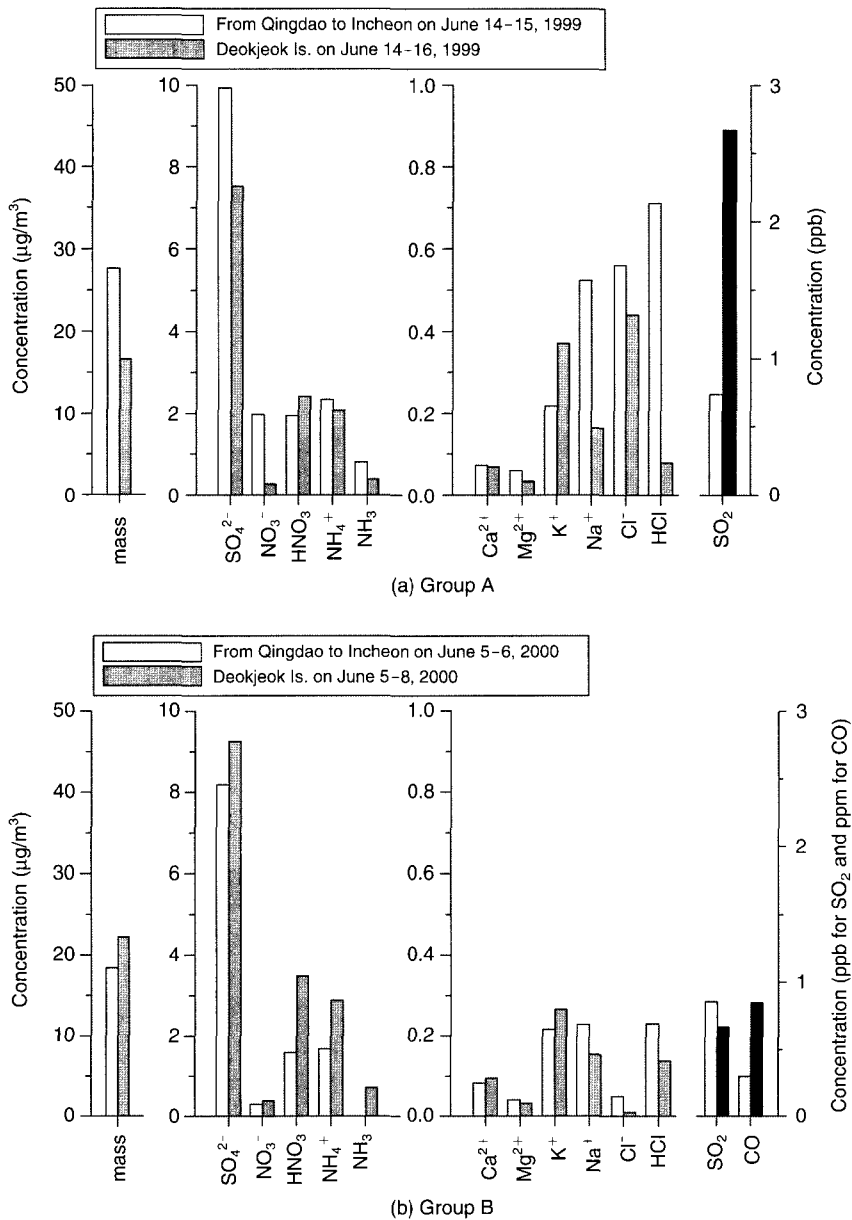


Fig. 6. Comparison of mass and chemical species concentrations in PM_{2.5} measured on shipboard with those of Deokjeok Island.

적 오염성분의 농도가 덕적도보다 낮은 그룹 B에는 1999년 6월의 인천발 측정, 2000년 6월과 2002년 6월의 청도발 측정이 포함된다. 그룹 B의 대표적 측정인 2000년 6월 청도발 항해에서 측정된 황해상 미세먼지의 질량농도, 화학적 성분 및 가스상 물질의 농도를 덕적도 결과와 비교하여 그림 6(b)에 나타내었다. 그림에서 덕적도 측정결과는 약 72시간 동안 채취한 것으로 입자의 채취에 따른 유량 저하는 크지 않았다. 덕적도 농도에 비하여 황해상 대기오염물질 농도는 PM_{2.5} 질량의 경우 83%, 황산염의 경우 88%, 질산염의 경우 73%, 암모늄염의 경우 58% 수준이었다. 총질산과 총암모늄의 농도를 비교해도 경향은 마찬가지였다. CO의 경우 약 40% 수준인 반면, SO₂의 경우 1.3배로 약간 높았다. 이 때 황해상 SO₂ 농도가 다른 측정에 비하여 높았다기보다는 덕적도에서 측정된 SO₂ 농도(0.67 ppb)가 다른 측정에 비

하여 낮았다.

그룹 B의 3회 측정 모두 황해상 PM_{2.5} 질량농도는 25 µg/m³ 이하로 낮았으며, 덕적도의 PM_{2.5} 질량농도는 16~29 µg/m³ 범위로 1999년 4월부터 2000년 3월까지의 덕적도 평균 농도(18.7 µg/m³)보다 약간 높았다(이승복 등, 2002). PM₁₀ 질량농도도 PM_{2.5}와 마찬가지로 황해상 농도가 덕적도보다 낮았다. 2000년 6월 청도발 측정결과와는 달리 1999년 6월 인천발 항해중 측정된 SO₂ 농도는 덕적도보다 낮았다.

선박 측정시 기상 상태를 알아보기 위하여 기상청으로부터 1999년 6월부터 2001년 4월까지 측정기간의 일기도를 입수하여 850 hPa에서 공기유선(stream-line)을 분석하였다. 풍향이 비교적 뚜렷한 11일의 측정일 중에서 8일이 대체로 중국 대륙에서 황해상으로 공기가 유입되었고, 3일이 한반도로부터 황해상으로 공기가 유입된 것으로 판단된다. 그룹 A에

Table 2. Comparison of average concentrations of particle and gas phase species measured on shipboard with results of monitoring sites next to the Yellow Sea and in clean World Oceans.

Size	Site	Concentration* (µg/m ³)						
		Mass	nss SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	nss Ca ²⁺	SO ₂
PM ₁₀	IC-QD ¹⁾ (n**=11/7)	38.2±27.0	11.5±9.3	5.7±4.5	3.93±3.01	0.51±0.30	0.18±0.15	
	IC-TJ ¹⁾ (n=2/0)	103.9	NM***	NM	NM	NM	NM	
	Qingdao, China ²⁾ (n=24/24)	77.8±43.2	15.8±10.9	7.2±5.7	7.08±5.41	0.68±0.31	NM	
	World Oceans ³⁾ (n=11/11)	17.4	3.57 [#]	1.58	0.85	NM	NM	
PM _{2.5}	IC-QD ¹⁾ (n=13/13)	33.3±20.7	9.7±6.1	3.0±3.4	2.99±2.08	0.40±0.24	0.09±0.08	2.2±1.0
	IC-TJ ¹⁾ (n=2/2)	46.0	14.3	5.2	5.06	0.34	0.09	1.8
	Deokjeok Is. ⁴⁾ (n=50/37)	18.7±10.1	5.4±3.1	1.0±1.3	1.69±1.01	0.31±0.27	0.08±0.05	6.2±6.0
	Gangwha ⁵⁾ (n=61/60)	29.3±17.7	6.2±6.1	1.4±1.9	2.40±1.84	0.62±0.48	0.55±1.26	11.2±4.8
	Tae'an ⁶⁾ (n=64/64)	20.6±17.9	4.0±3.4	0.7±1.1	1.29±1.41	0.56±0.39	0.11±0.10	5.0±4.2
	Gosan ⁷⁾ (n=40/40)	16.6±1.23	5.0±0.5 [#]	0.7±0.1	1.5±0.1	0.6±0.1	0.15±0.03 [#]	3.9±1.6
	Qingdao, China ²⁾ (n=24/24)	50.5±29.4	13.9±9.9	5.8±5.2	6.83±5.34	0.29±0.13	NM	50.8
	World Oceans ³⁾ (n=11/11)	9.7	2.77 [#]	0.46	0.68	NM	NM	0.3±0.2

1) This study, 2) March, June, and November 2000 for particle phase (Moon *et al.*, 2000) and from September 1997 to November 2000 for SO₂ (Hu *et al.*, 2002), 3) San Nicolas Island in North Pacific from June to September 1987 for particle phase species (Chow *et al.*, 1994) and Santa Maria Island in Azores in the mid-North Atlantic Ocean during 2-23 June, 1992 for SO₂ (Harrison *et al.*, 1996), 4) April 1999-March 2000 (Lee *et al.*, 2002; Kim *et al.*, 2003), 5) July 1998-June 1999 for particle phase (Lee *et al.*, 2002) and January 1999-December 2000 for SO₂ (Kim *et al.*, 2003), 6) November 1998-July 1999 for particle phase (Lee *et al.*, 2002) and January 1999-December 2000 for SO₂ (Kim *et al.*, 2003), 7) March 1996-December 1997 for particle phase (Lee *et al.*, 2001) and January 1999-December 2000 for SO₂ (Kim *et al.*, 2003).

*XX±YY: average ± standard deviation, **n=A/B: sample number for mass/ for ions, ***NM: not measured, [#]Not non-sea-salt but total ions.

속한 6일 모두 대체로 공기가 중국 대륙으로부터 유입되었고, 그룹 B에 속한 2일은 황해 남쪽이나 황해 상에서 바람이 기원되었다고 생각된다.

위의 비교결과를 종합하면, 황해상 대기오염이 비교적 심한 경우($PM_{2.5}$ 질량농도가 약 $25 \mu g/m^3$ 이상인 그룹 A의 8회 측정) 덕적도의 입자상 물질의 농도에 상관없이 황해상 입자상 물질의 농도가 덕적도보다 높았고, 황해상 대기오염이 비교적 심하지 않은 경우($PM_{2.5}$ 질량농도가 약 $25 \mu g/m^3$ 이하인 그룹 A의 1회와 그룹 B의 3회 측정) 덕적도의 입자상 물질의 농도에 따라 황해상 입자상 물질의 농도가 높거나 낮았다. 이것은 중국으로부터 많은 대기오염물질이 황해로 유입되는 경우 덕적도 주변의 국소 오염원 및 한반도로부터 오염물질의 근거리 이동의 영향은 덕적도의 입자상 농도가 황해상보다 높을 만큼 크지 않음을 암시한다. 입자상 물질과 달리 가스상 물질의 경우 황해상 농도가 덕적도보다 대체로 낮았으며, 황해상 대기질이 비교적 심하게 오염된 날에도 이러한 경향은 마찬가지였다.

3.4 기존 측정소 결과와 비교

선박을 이용하여 측정한 황해상 대기오염물질의 농도 수준을 파악하기 위하여 황해에 인접한 국내의 측정소 및 청정한 해양에서 측정된 주요 입자상 및 가스상 물질의 평균 농도를 구하여 표 2에 나타내었다. 이 중에서 SO_2 , $PM_{2.5}$ 및 $PM_{2.5}$ 에 포함된 $nss-SO_4^{2-}$ 와 NO_3^- 의 농도를 비교하여 그림 7에 나타냈다. 인천-청도 항로상 PM_{10} 의 평균 질량농도 및 인위적 오염물질의 농도는 중국 청도의 도시 배경농도의 49~79% 수준으로 낮았다. $PM_{2.5}$ 의 경우 인천-청도 항로상 평균 질량농도 및 인위적 오염물질의 농도는 중국 청도의 44~70% 수준으로 낮았지만, 황해에 인접한 도시인 고산과 덕적도, 서해안에 위치한 태안 파도리와 강화 석모도의 결과들보다 높았다. 반면, 가스상 물질인 SO_2 의 경우 황해상 농도가 도시 및 해안에 위치한 모든 측정소들의 결과보다 낮았다. 이것은 앞에서 측정기간이 유사한 덕적도 측정소 농도와 비교한 결과와도 일치한다. 인천-청도 항로 상에서 측정한 입자상 물질의 농도가 황해에 인접한 도시 및 서해안보다 높은 것은 산동반도에서 가까운 항로에서도 시료를 채취하였기 때문일 수도 있다. 그러나, 그림 3에서 볼 수 있듯이 가스상 물질인 SO_2 ,

CO 및 NO_x 농도가 청도 근처에서 상대적으로 크게 높지 않았으므로, 채취위치의 영향은 적었을 것으로 추정된다.

인천-청도를 항해하는 선박에서 측정한 대표적 토양성분인 비해염 Ca^{2+} 농도는 측정소 주위에 농경지가 있는 강화의 1/5 수준으로 매우 낮았고, 태안과 고산보다는 약간 낮았고, 덕적도보다는 약간 높았다. 선박에서 측정한 대표적 해염성분인 Na^+ 농도는 덕적도를 제외하고 황해에 인접한 모든 고정 측정소의 농도보다 낮았는데, 이것은 선박의 빠른 항해속도에 의해 입자의 흡입효율이 낮아졌기 때문인 것으로 생각된다. 그런데, 인천-청도 항로상 비해염 Ca^{2+} 과 Na^+ 농도가 모두 덕적도보다 높은 것은 해염 및 토양의 거대 배출원(해양 및 중국 건조지역)으로부터의 거리가 상대적으로 가까울 뿐만 아니라 덕적도

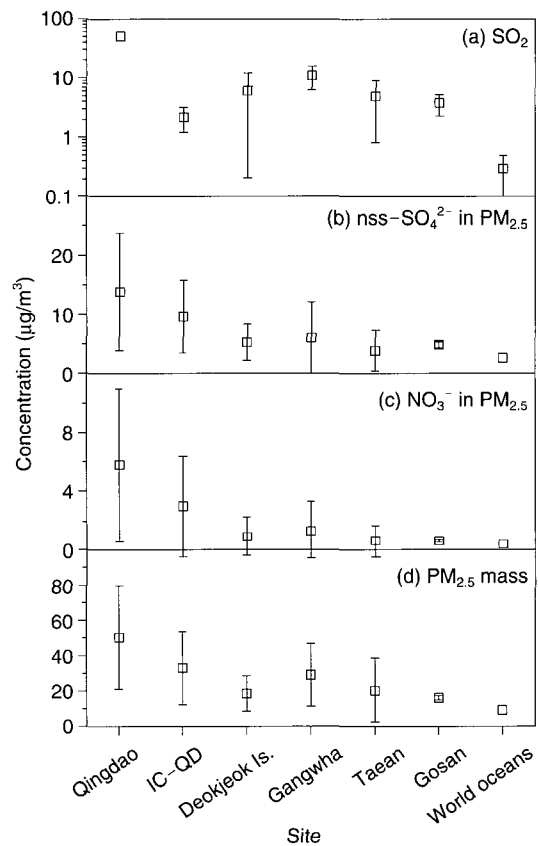


Fig. 7. Comparison of major anthropogenic pollutants concentrations.

측정소의 해발고도(약 160 m)가 상대적으로 높기 때문이라고 생각된다.

황해 중부지역의 대기오염 수준을 살펴보기 위해 선박 측정결과를 국외 청정 해양에서의 측정자료와 비교하면, 황해상 인위적 대기오염물질의 농도가 국외 청정 해양에 비하여 2~7배 가량 높다.

4. 결 론

본 연구에서는 황해 대기오염 현황을 파악하기 위하여 1999년부터 6월부터 3년 동안 8회에 걸쳐 황해를 가로지르며 항해하는 인천-청도/천진간 정기 여객선을 이용하여 황해 직선 항로상 대기오염물질의 농도를 측정하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

황해 직선 항로상에서 SO₂, CO 및 NO_x 농도는 대부분 위치(경도)에 따른 변화가 뚜렷하게 나타나지 않았지만, 육지에 인접한 항구 연안이나 발해만 지역에서 상대적으로 높은 농도를 나타냈다. 대부분의 시료에서 SO₂ 농도는 1 ppb 이하, CO 농도는 0.4 ppm 이하, NO_x 농도는 10 ppb 이하이었다.

인천-청도 직선 항로상의 평균 SO₂와 NO_x 농도는 제주도 고산의 연평균 농도와 비슷하였지만, 평균 CO 농도는 2배 가량 높은 수준이었다. PM₁₀ 질량농도의 경우 장거리 이동 측정소인 강화와 태안의 연평균 농도보다 낮았지만, 고산보다는 약간 높았다. 황해상 미세입자 분율(PM_{2.5}/PM₁₀)은 0.7 이상으로 강화와 태안에 비해 2배 이상 높았는데, 이것으로부터 황해상 대기 에어로졸은 대부분 장거리 이동의 영향을 받는 미세입자임을 확인하였다.

측정기간이 비슷한 시료를 대상으로 사례별로 인천-청도 직선 항로상 농도와 덕적도의 농도를 비교한 결과에 의하면, 대체로 입자상 물질의 농도는 황해상에서 높았고 가스상 물질의 농도는 덕적도에서 높았다. 황해에 인접한 국내 측정소의 자료와 비교하여도 이와 비슷한 경향이 발견되었다. 따라서, 우리나라 황해 연안보다 오염이 더 심한 지역에서 대기오염물질이 황해로 자주 유입되어 황해 직선 항로상 입자상 물질의 농도는 우리나라 황해 연안보다 높고, 가스상 물질의 농도는 국소 오염원의 영향을 상대적으로 더 많이 받는 우리나라 황해 연안보다 대체로 낮은 것으로 판단된다.

감사의 글

이 연구는 과학기술부에서 지원한 황해종합조사사업의 세부과제인 “해양-대기 조사 연구(과제번호: 98-LO-01-01-A-03)”로 수행되었다. 선박 측정을 원활히 수행할 수 있도록 협조하여 준 위동항운과 진천항운 관계자에게 감사를 드린다.

참 고 문 헌

- 김기현, 김지영, 송기범, 김나영, 이강웅, 배귀남(2000) 한국 황해지역의 DMS 분포특성에 대한 연구-덕적도를 중심으로, 한국지구과학회지, 21(1), 51-58.
- 김용표, 김진영, 박세욱, 김성주, 심상규, 문길주, 박경운, 허철구(1996) 고산에서의 1994년 3월~4월 측정연구: (II) 기체상 대기오염물질의 특성, 한국대기환경학회지, 12(1), 91-99.
- 김용표, 이승복, 나광삼, 진현철, 윤용석, 배귀남, 문길주(2000) 선박을 이용한 1999년 황해에서의 휘발성 유기화합물 측정 자료, 한국대기환경학회지, 16(5), 553-560.
- 김영성, 이승복, 김진영, 배귀남, 문길주, 원재광, 윤순창(2003) 1999년 4월부터 2000년 6월까지 황해 덕적도에서 관찰된 대기오염물질 변화 특성, 한국대기환경학회지, 19(4), 347-361.
- 김진영, 김영성, 이승복, 문길주(2003) 황해 지역의 질소와 황 침적 추정, 한국대기환경학회지, 19(2), 217-229.
- 문길주, 윤순창, 김기현 등(2001) 해양-대기 조사 연구, 한국과학기술연구원 보고서 2000-A-LO-01-A-02(UCN2220-6980-3), 과학기술부.
- 문길주 등(2002) 해양-대기 조사 연구, 한국과학기술연구원 보고서 M1-9894-01-0001(UCN2375-7252-3), 과학기술부.
- 문길주, 후 민 등(2000) 선박을 이용한 서해상 장거리이동 오염물질 집중 조사, 한국과학기술연구원 보고서 BSG0572-6766-6, 국립환경연구원.
- 윤용석, 배귀남, 김동술, 황인조, 이승복, 문길주(2002) 황해상 덕적도 PM_{2.5} 오염원의 확인, 한국대기환경학회지, 18(4), 317-325.
- 이승복, 배귀남, 김용표, 진현철, 윤용석, 문길주(2002) 황해상 덕적도의 대기 에어로졸 특성, 한국대기환경학회지, 18(4), 305-316.
- 최만식, 박은주(1999) 제주도 대기 분진 중 미량금속의 농도 특성, 한국대기환경학회지, 15(6), 727-738.

- 홍기훈, 김석현, 정창수 (1997) 황해본역의 환경오염, 해양연구, 19(1), 55-62.
- 환경부 (2000) 대기환경연보 (1999), 국립환경연구원.
- Baumgardner, Jr, R.E., S.S. Isil, J.J. Bower, and K.M. Fitzgerald (1999) Measurements of rural sulfur dioxide and particle sulfate: Analysis of CASTNet Data, 1987 through 1996, J. Air & Waste Manage. Assoc., 49, 1266-1279.
- Chow, J.C., J.G. Watson, E.M. Fujita, Z. Lu, and D.R. Lawson (1994) Temporal and spatial variations of PM_{2.5} and PM₁₀ aerosol in the Southern California Air Quality Study, Atmos. Environ., 28, 2061-2080.
- Gao, Y., R. Arimoto, R.A. Duce, L.Q. Chen, M.Y. Zhou, and D.Y. Gu (1996) Atmospheric non-sea-salt sulfate, nitrate and methanesulfonate over the China Sea, Journal of Geophysical Research, 101(D7), 12601-12611.
- Gao, Y., R. Arimoto, R.A. Duce, X.Y. Zhang, G.Y. Zhang, Z.S. An, L.Q. Chen, M.Y. Zhou, and D.Y. Gu (1997) Temporal and spatial distributions of dust and its deposition to the China Sea, Tellus, 49B, 172-189.
- Harrison, R.M., J.D. Peak, and M.I. Msibi (1996) Measurements of airborne particulate and gaseous sulphur and nitrogen species in the area of the Azores, Atlantic Ocean, Atmos. Environ., 30, 133-143.
- Hu, M., L.-Y. He, Y.-H. Zhang, M. Wang, Y.P. Kim, and K.C. Moon (2002) Seasonal variation of ionic species in fine particles at Qingdao, China, Atmos. Environ., 36, 5853-5859.
- Kim, B.-G., J.-S. Han, and S.-U. Park (2001) Transport of SO₂ and aerosol over the Yellow Sea, Atmos. Environ., 35, 727-737.
- Lee, J.H., Y.P. Kim, K.C. Moon, H.K. Kim, and C.B. Lee (2001) Fine particle measurements at two background sites in Korea between 1996 and 1997, Atmos. Environ., 35, 635-643.
- Seinfeld, J.H. and S.N. Pandis (1998) *Atmospheric Chemistry and Physics-From Air Pollution to Climate Change*, Wiley Interscience, New York, U.S.A., 41pp, 1113-1183 pp.
- Winer, A.M., J.W. Peters, J.P. Smith, and J.N. Pitts, Jr. (1974) Response of commercial chemiluminescent NO-NO₂ analyzers to other nitrogen-containing compounds, Environmental Science and Technology, 8 (13), 1118-1121.
- Zhang, J., Y. Wu, C.L. Liu, Z.B. Shen, Z.G. Yu, and Y. Zhang (2001) Aerosol characters from the desert region of Northwest China and the Yellow Sea in spring and summer: Observations at Minqin, Qingdao, and Qianliyan in 1995-1996, Atmos. Environ., 35, 5007-5018.
- Zhuang, H., C.K. Chan, M. Fang, and A.S. Wexler (1999) Size distributions of particulate sulfate, nitrate, and ammonium at a coastal site in Hong Kong, Atmos. Environ., 33, 843-853.