

ORIGINAL ARTICLE

부산지역 오존농도의 시·공간 분포 변화

강윤희·김유근^{1)*}·황미경·정주희·김현수²⁾·강민성³⁾

부산대학교 환경연구원, ¹⁾부산대학교 대기환경과학과, ²⁾한국전력거래소 수요예측팀, ³⁾동의대학교 휴먼환경예지연구소

Spatial-temporal variations in surface ozone concentrations in Busan metropolitan area

Yoon-Hee Kang, Yoo-Keun Kim^{1)*}, Mi-Kyeong Hwang, Ju-Hee Jeong, Hyunsu Kim²⁾,
Min-Seong Kang³⁾

The Institute of Environmental Studies, Pusan National University, Busan 46241, Korea

¹⁾*Department of Atmospheric Sciences, Pusan National University, Busan 46241, Korea*

²⁾*Short-term Demand Forecast Team, Korea Power Exchange, Naju 58322, Korea*

³⁾*Institute of Human Environment and Prognosis, Dong-Eui University, Busan 46241, Korea*

Abstract

Temporal and spatial variations in surface ozone concentrations in Busan were investigated by using observation data from urban air quality sites during 2001-2016. The annual ozone concentrations showed a significant increasing trend of +0.40 ppb yr⁻¹ in this period, with a more rapid increase of +0.81 ppb yr⁻¹ since 2010. For the monthly analysis, the increase in ozone concentration was the greatest in August (+0.68 ppb yr⁻¹). These ozone trends were due mainly to rising temperature (+0.05°C yr⁻¹) and weak decreasing precipitation (-6.42 mm yr⁻¹). However, the extreme weather events (heat wave, localized heavy rain, etc.) lead to an increase in short-term variability of ozone since 2010. The relatively low ozone concentrations in the downtown area were caused by high NO_x emissions from mobile sources. The increases in ozone concentrations were observed at most of the air quality monitoring sites due to the reductions in anthropogenic emissions of NO_x during 2001-2015. However, in the southern coastal area, lower rates of increase in ozone concentrations were observed by -0.10~0.25 ppb yr⁻¹ due to the significant NO_x emitted by ships in the Busan port and Busan new port.

Key words : Surface ozone, Temperature, Precipitation, Anthropogenic emission, NO_x

1. 서론

지표 오존(Ozone, O₃)은 인위적 배출원에서 대기 중으로 직접적으로 배출되지는 않으나, 질소산화물(NO_x)

과 휘발성 유기화합물(VOCs)이 햇빛에 의한 광화학반응을 일으켜 2차적으로 생성된다. 오존에 노출되면 다양한 건강문제가 유발될 수 있고 특히, 기도 내 근육을 경직시켜 영·유아와 노약자, 천식과 같은 호흡기 질환자에게

Received 5 November, 2018; Revised 15 January, 2019;
Accepted 22 January, 2019

*Corresponding author: Yoo-Keun Kim, Department of Atmospheric Sciences, Pusan National University, Busan 46241, Korea
Phone : +82-51-510-2282
E-mail : kimyk@pusan.ac.kr

The Korean Environmental Sciences Society. All rights reserved.
© This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

위협적인 것으로 알려져 있다(U.S. EPA, 2006). 오존에 장기간 지속적으로 노출되면 천식 발병과 악화 뿐 아니라 영구적인 폐 손상이 발생할 수 있다.

최근 환경부의 발표에 따르면 주요 7대 도시(서울, 부산, 대구, 인천, 광주, 대전, 울산)를 포함한 우리나라의 오존농도는 1990년대 이후 현재까지 지속적으로 증가하는 추세를 보였다(MOE, 2017). 2016년 기준 전국 대기 오염측정소(264개소) 가운데 오존농도의 8시간 환경기준(60 ppb/8 hr)을 달성한 측정소는 한 곳도 없었으며, 1시간 환경기준(100 ppb/1 hr)의 달성률도 26.8%로 대기 환경기준이 설정된 관리대상 대기오염물질 가운데 가장 낮은 수준이었다. 이처럼 오존생성에 관여하는 전구물질의 배출정보와 화학 메커니즘에 대한 정보 부족 등으로 고농도 오존오염 발생의 원인규명과 오존저감을 위한 대기환경정책 수립은 어려움을 겪고 있으며, 최근에는 미세먼지에 사회적 관심이 집중되면서 제대로 주목조차 받지 못하고 있다. 오존을 발생시키는 광화학반응은 기온이 높을수록 유리한 만큼 앞으로 지구온난화, 도시열섬 현상이 진행되면서 고농도 오존발생 가능성은 더욱 높아질 것으로 예측되었고(KEI, 2010) 이에 대한 대책이 시급하다.

국내 대도시 중에서도 부산은 가장 높은 연평균 오존농도를 기록하며(0.030 ppm, 2016년 기준), 가파른 오존농도 증가추세에 있다(MOE, 2017). 특히, 2015년과 2016년은 연이은 높은 기온과 폭염으로 인하여 기준치를 초과하는 도심 오존오염이 발생하였다. 연안도시인 부산은 해륙풍/산곡풍 등의 부산의 지리·지형이 반영된 국지기상과 함께 선박 등 대규모 NO_x 배출이 해양에서 이루어지는 환경으로 인해 고유의 오존농도 특성이 나타날 수 있다. 부산의 높은 오존농도 수준과 지속적인 증가 추세에도 불구하고, 과거 오존과 관계된 연구는 고농도 오존 사례나 특정기간을 중심으로 수행되어 왔다(Kim et al., 2003a; Jeon and Oh, 2011; Kim et al., 2012; Jeon, 2014). Kim et al.(2003b)에서 1990년대 대기질측정망 자료를 사용하여 부산 오존농도의 장기추세를 분석한 바 있으나, 2000년대 이후 급속히 진행된 서부산권 개발, 해운대 인근 센텀시티/마린시티 개발 등의 도시변화에 대한 영향은 파악하기 어렵다.

이에 본 연구에서는 2001년 이후부터 2016년까지에 대한 부산지역 오존농도의 시·공간적 변화를 제시하고,

오존농도에 영향을 줄 수 있는 부산지역의 국지기상조건, 배출환경 변화와의 상관성을 분석하여 오존농도 변화추세의 원인을 파악하고자 한다.

2. 대상지역 및 자료

부산은 한반도 남동단에 위치하는 연안도시이며, 2016년 기준으로 총면적 769.92 km²에 약 355만명의 인구가 거주하고 있다(Busan Metropolitan City, 2017). 낙동강이 부산을 남북으로 가로지르며, 낙동강을 기준으로 서부는 평야지대이며 동부는 고도 500 m 내외의 구릉성 산지가 분포하고 있다. 서부지역은 각종 국가 및 민간 산업단지가 위치하고 있으며 남동연안에 부산항이 위치하여 선박 및 컨테이너 운반 화물차에서 배출된 오염물질이 적지 않다(Song et al., 2010). 2000년 이후, 해운대를 중심으로 센텀시티와 마린시티가 조성되었고, 광안대로 개통, 신항 건설, 북항 재개발 사업 등으로 인한 교통량 증가 및 도시변화가 진행되었다(Busan Metropolitan City, 2014).

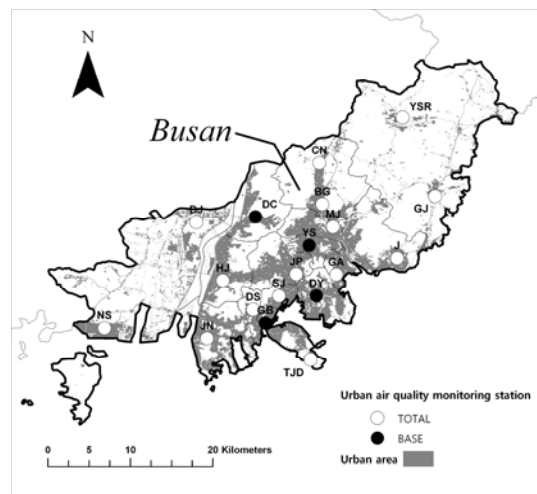


Fig. 1. Geographical location of the urban air quality monitoring sites and urban areas in Busan (GB: Gwangbok, DC: Deokcheon, DY: Daeyeon, YS: Yeonsan, GJ: Gijang, TJD: Taejongdae, JP: Jeonpo, HJ: Hakjang, CN: Cheongnyong, JN: Jangnim, DJ: Daejeo, BG: Bugok, GA: Gwangan, NS: Noksan, MJ: Myeongjang, YSR: Yongsuri, J: Jwa, SJ: Sujeong, DS: Daesin).

Table 1. Information on urban air quality monitoring sites in Busan

Stations	Period	Location	Type ^a	Unmeasured rate
Gwangbok (GB)	1985-	129°01 ' 49.92 " E, 35°05 ' 59.75 " N	BASE	3.1%
Deokcheon (DC)	1988-	129°01 ' 10.74 " E, 35°12 ' 57.78 " N	BASE	9.3%
Daeyeon (DY)	1983-	129°05 ' 10.62 " E, 35°07 ' 46.38 " N	BASE	3.2%
Yeonsan (YS)	1996-	129°04 ' 41.94 " E, 35°11 ' 04.86 " N	BASE	4.0%
Gijang (GJ)	1999-	129°12 ' 56.94 " E, 35°14 ' 19.46 " N	TOTAL	5.3%
Taejongdae (TJD)	1996-	129°04 ' 47.52 " E, 35°03 ' 35.22 " N	TOTAL	4.0%
Jeonpo (JP)	1980-	129°03 ' 50.55 " E, 35°09 ' 11.30 " N	TOTAL	4.4%
Hakjang (HJ)	1979-	128°59 ' 03.16 " E, 35°08 ' 46.14 " N	TOTAL	4.0%
Cheongnyong (CN)	1997-	129°05 ' 22.26 " E, 35°16 ' 31.74 " N	TOTAL	2.9%
Jangnim (JN)	1979-	128°58 ' 00.75 " E, 35°04 ' 58.77 " N	TOTAL	4.4%
Daejeo (DJ)	1999-	128°57 ' 18.72 " E, 35°12 ' 36.06 " N	TOTAL	3.3%
Bugok (BG)	2000-	129°05 ' 33.54 " E, 35°13 ' 47.16 " N	TOTAL	3.2%
Gwangan (GA)	2001-	129°06 ' 28.11 " E, 35°09 ' 09.73 " N	TOTAL	2.5%
Noksan (NS)	2003-	128°51 ' 18.06 " E, 35°05 ' 39.60 " N	TOTAL	2.8%
Myeongjang (MJ)	2002-	129°06 ' 15.58 " E, 35°12 ' 17.52 " N	TOTAL	3.2%
Yongsuri (YSR)	2004-	129°10 ' 48.84 " E, 35°19 ' 32.22 " N	TOTAL	2.4%
Jwa (J)	2005-	129°10 ' 26.94 " E, 35°10 ' 14.28 " N	TOTAL	3.3%
Sujeong (SJ)	2011-	129°02 ' 43.74 " E, 35°07 ' 45.83 " N	TOTAL	1.5%
Daesin (DS)	2012-	129°01 ' 01.98 " E, 35°06 ' 52.09 " N	TOTAL	2.6%

^aBASE and TOTAL indicate the sites measured continuously without changing locations from 2001 to 2016 and the additional sites established since 2001, respectively.

본 연구에서는 부산 내 위치한 도시대기측정망에서 수집된 1시간 평균 오존농도를 사용하였다. 최근 16년간의 오존농도 장기추세를 보다 명확히 파악하기 위해 부산의 도시대기측정망을 BASE(2001년 이후 2016년까지 위치 변경 없이 연속 측정된 측정망)와 TOTAL(BASE 측정망과 2001년 이후 추가 설치된 측정망)로 구분하여 분석하였다. BASE와 TOTAL 측정망의 위치는 Fig. 1에 제시하였으며, 측정소별 측정시작 연도와 측정망의 위·경도, 결측률 정보를 Table 1에 나타내었다. 2016년 기준으로 부산 내 설치된 도시대기측정망은 총 19지점이었고, BASE 지점은 광복(GB), 덕천(DC), 대연(DY), 연산(YS) 측정망으로 4지점, 2001년 이후 2016년까지 추가 설치된 지점은 15지점이다. 기장(GJ), 태종대(TJD), 전포(JP), 학장(HJ), 청룡(CN), 장림(JN), 대저(DJ), 부곡(BG) 측정망의 경우, 대기오염물질의 측

정은 2001년 이전부터 시작되었으나 측정소의 위치변경으로 오존농도의 장기간의 시간변화를 파악하기에 적절하지 않았다. 4곳의 BASE 측정망은 인구와 교통량이 밀집된 주거 및 상업 지역에 위치하고 있어 대기오염도가 지속적으로 심각한 부산 도심을 대표하고 있으며, 최근까지 추가 확대된 TOTAL 측정망은 외곽지역 및 도시변화로 인해 새롭게 조성된 도심에서의 오존농도 변화가 파악가능하다. 대기질 측정이 시작된 이후 가장 높은 결측률을 나타낸 측정망은 덕천(DC), 가장 낮은 측정망은 수정(SJ) 이었고, 대부분의 측정소에서 5% 미만의 결측률을 보여 오존농도 분석에 적합함을 확인하였다.

오존농도에 대한 통계처리하는 환경부에서 제시한 대기환경연보 통계처리 방법(MOE, 2017)을 적용하여 연평균 농도는 1시간 평균자료의 유효측정율이 75%를 초과한 지점에 대해서 연평균하였고, 8시간 평균값은 하루를 기준

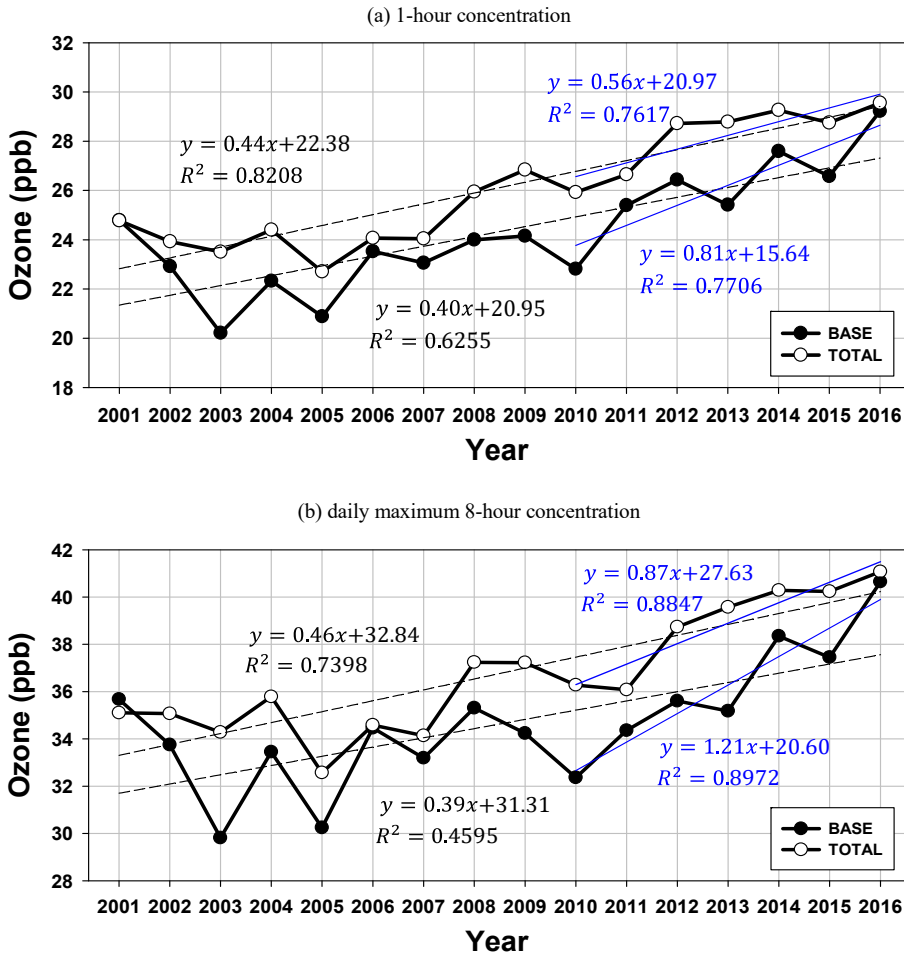


Fig. 2. Annual variations of (a) 1-hour ozone and (b) daily maximum 8-hour ozone during 2001~2016 at BASE and TOTAL sites in Busan.

으로 01 LST부터 24 LST까지 8시간 이동평균한 17개 농도 중 자료 개수가 6개 이상인 것을 구하고 이 중 최대 값을 해당일의 8시간 평균값으로 제시하였다.

3. 2001~2016년 부산 오존농도 변화추세

3.1 오존농도의 시간 변화 추세

지난 16년간 부산지역 오존농도의 변화추세를 파악하기 위하여 평균적인 농도 수준을 파악할 수 있는 1시간 평균 및 8시간 평균농도에 대한 연평균값을 Fig. 2에 제시하였다. BASE와 TOTAL 지점을 분리하여 분석하였으며, 각각에 대해 단회귀분석(Simple linear regression)

을 수행하였다. 먼저 BASE 측정망의 연평균 오존농도의 경우, 연도별로 증감을 반복하고 있으나, 2001년 24.8 ppb에서 2016년에는 BASE가 29.2 ppb로 약 4.4 ppb 증가하였다. 16년동안 오존농도는 $+0.40 \text{ ppb yr}^{-1}$ ($R^2=0.626$)의 증가율이 계산되었고, 특히 2010년 이후 전체 기간 증가율의 약 2배로 매우 가파른 농도상승이 확인되었다(증가율 $+0.81 \text{ ppb yr}^{-1}$). 부산 내 모든 대기질 측정망이 포함된 TOTAL의 경우, 오존농도의 증가율이 $+0.44 \text{ ppb yr}^{-1}$ ($R^2=0.8208$)로 BASE 측정망의 증가추세보다 연간 0.04 ppb 높은 경향을 보였으며, 대부분의 기간에서 BASE 측정망보다 오존농도가 높게 나타났다

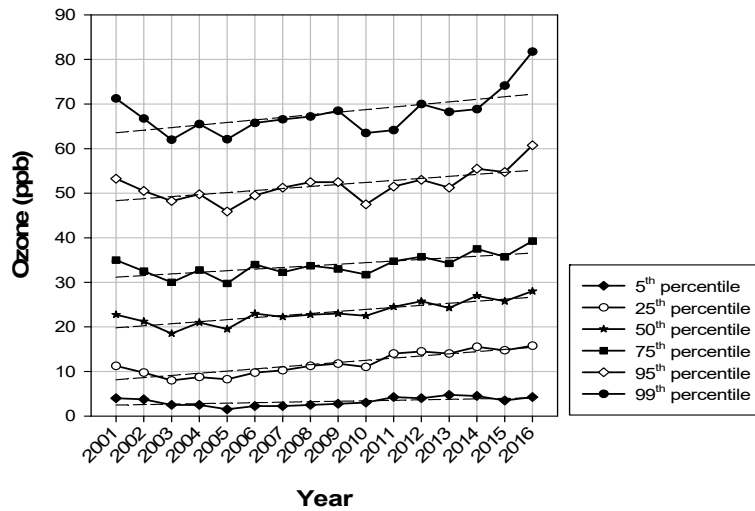


Fig. 3. Annual variations of 5th, 25th, 50th, 75th, 95th and 99th percentile concentrations of ozone during 2001~2016 at BASE sites in Busan.

(16년 평균 1.8 ppb 높음).

8시간 평균 오존농도에서도 유사한 경향을 보였다. BASE 측정망에서 2001년 35.7 ppb의 오존농도는 2016년 40.6 ppb로 약 4.9 ppb 증가하였고, 1시간 평균 농도와 비슷하게 2010년 이전에는 연도별 오존농도의 증가와 감소가 반복되었으나 2010년 이후 +0.87 ppb yr⁻¹의 뚜렷한 증가추세가 확인되었다. 기간 전체로는 BASE 측정망에서 +0.39 ppb yr⁻¹ (R²=0.4595)의 증가율이 계산되었고 TOTAL 측정망에서는 약 0.07 ppb 높음은 +0.46 ppb yr⁻¹ (R²=0.7398)으로 보다 가파른 증가율을 보였다. 1시간 평균 및 8시간 평균 오존농도에서 보여진 BASE와 비교해 TOTAL 측정망에서의 큰 오존상승률은 고농도지역의 대기질측정망 추가설치와 그 측정망들의 급격한 오존증가율이 원인이 될 수 있다. 실제로 대기질측정소가 추가설치되었던 2002~2005년과 2011년, 2013년 중 2003년을 제외하고, 기존에 존재하였던 측정망의 평균농도 보다 추가설치된 측정망의 연평균 오존농도가 더 높은 것으로 확인되었다. 이는 이후 제시된 오존농도의 공간변화를 통해 보다 상세히 설명할 수 있다.

Fig. 3은 BASE 측정망 오존농도의 5th, 25th, 50th, 75th, 95th, 99th 백분위수 농도의 연도별 변화를 나타낸 것이다. 가장 큰 증가를 보이는 구간은 99th 백분위수 농도로 연간 +0.58 ppb yr⁻¹의 오존농도 증가가 확인되었

고, 그 다음은 25th 백분위수 (증가율 +0.49 ppb yr⁻¹), 50th과 95th 백분위수 농도가 비슷한 증가율을 보였다 (50th 백분위수 +0.46 ppb yr⁻¹, 95th 백분위수 +0.45 ppb yr⁻¹). 이러한 결과는 최고농도의 증가가 가장 가파르다는 것과 함께 하위 5th 백분위수 값을 제외한 대부분의 구간에서 오존농도의 증가가 이루어짐을 보여준다. 부산지역 오존농도 증가율은 최근 국내연구에서 제시된 전국의 오존농도의 증가추세인 0.6 ppb yr⁻¹ (2000~2016년, 도시대기측정망 오존 중간값 기준, Kim et al., 2018)와 -0.16~0.95 ppb yr⁻¹ (2002~2012년, 주요 대도시 기준 오존 중간값, Shin et al., 2017)와 비교하면 평균적인 수준으로 보여지나, 세계 다른 도시와 비교했을 때는 매우 높은 수치이다. 예로 미국의 경우, 전 지역 평균적으로 0.16 ppb yr⁻¹의 아주 약한 증가가 관측되었고 (1990~2014년 미국 대기질측정망 오존농도, Yan et al., 2018), 우리나라와 인접한 중국 동부 리난지역의 배경농도 측정소에서는 -0.56 ppb yr⁻¹로 오히려 약한 감소가 나타나는 것으로 보고되었다(1991~2006년 오존 중간값, Xu et al., 2008).

오존의 경우, 일반적으로 기온이 높은 4월부터 10월 까지 농도 수준이 높고, 겨울에 농도가 낮은 뚜렷한 계절적 특징이 있다. 이에 BASE 측정망에 대해서 1월부터 12월의 월별 1시간 평균 오존농도 추세를 분석하고자

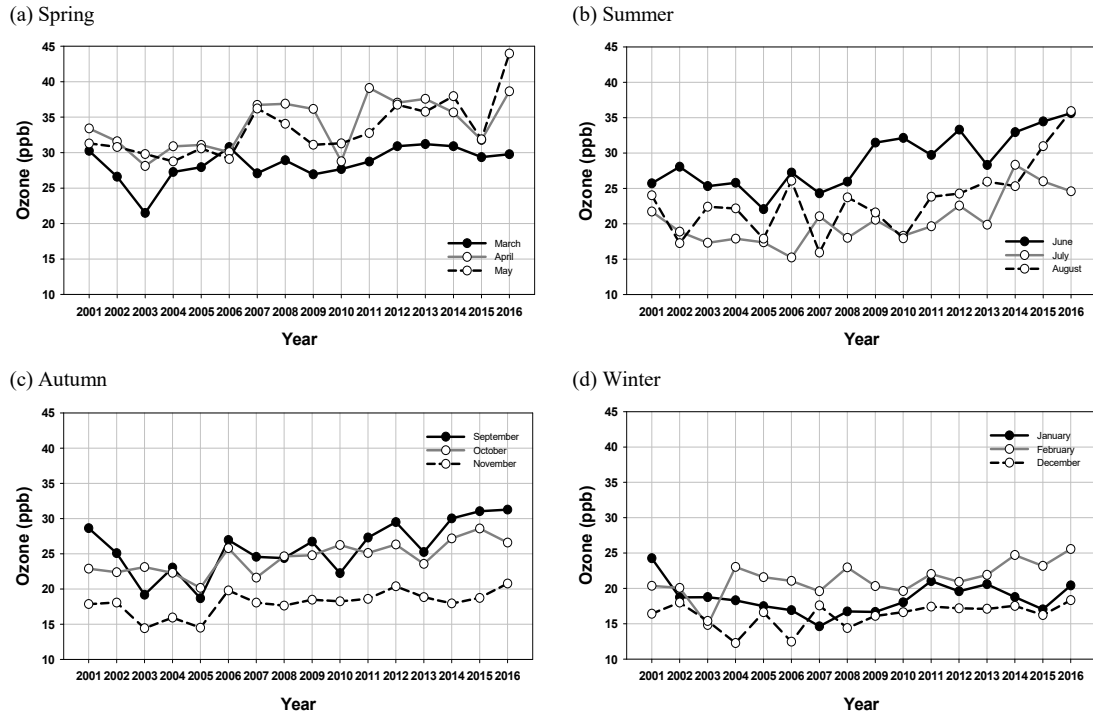


Fig. 4. Annual variations of monthly average ozone in the (a) spring, (b) summer, (c) autumn and (d) winter during 2001~2016 at BASE sites in Busan.

Fig. 4를 제시하였다. 16년 기간 전체로는 4월과 5월의 월평균 오존농도가 각각 34.0 ppb, 33.3 ppb로 가장 높았고, 그 다음으로 6월과 3월의 평균농도가 28.9 ppb와 28.5 ppb로 높았다. 6월의 높았던 오존농도는 7월과 8월의 장마전선과 관련된 강수 증가로 낮아졌다(7월과 8월 평균오존농도: 20.5 ppb, 23.5 ppb), 9월과 10월 다시 상승하는 분포(9월과 10월 평균오존농도: 25.9 ppb, 24.5 ppb)를 보였고, 11월 이후에는 2월까지 약 20 ppb 이하의 저농도가 유지되었다. 국내 타 도시의 경우, 일반적으로 5월 혹은 6월에 월평균 오존농도가 가장 높은 것으로 보고되는데(Lim and Lee, 2011; An et al., 2015) 부산의 월평균 오존농도의 최고값이 4~5월로 비교적 빠르게 나타나는 이유는 부산의 지리적 특성으로 인해 해양기원의 오존 배경농도가 높고, 장마전선의 영향을 상대적으로 일찍 받기 때문으로 판단된다.

16년 동안 오존농도의 증가추세가 가장 크게 나타난 월은 8월로 2001년 24.0 ppb 였으나, 2016년 현재 35.9 ppb로 약 11.9 ppb 증가하였고, 연간 $+0.68 \text{ ppb yr}^{-1}$ 의

증가율이 계산되었다. 그 다음으로는 5월과 6월의 오존농도 증가율이 각각 $+0.67 \text{ ppb yr}^{-1}$, $+0.59 \text{ ppb yr}^{-1}$ 로 높았다. 특히 8월의 월평균 오존농도는 2010년 이후 매우 가파르고 지속적인 증가 추세를 보여 2010년 17.9 ppb에서 2015년 이후 30 ppb를 초과하였다. 최근 월평균 오존농도가 30 ppb를 초과하는 사례가 6월(2009년 이후)과 9월(2014년 이후)에서도 확인되어 과거 15년 전에는 4월과 5월의 오존농도가 타 기간과 비교해 월등히 높았다면, 최근에는 전반적인 월평균 오존농도의 상승과 함께 고농도 시기도 4~6월, 8~9월로 확대됨을 알 수 있었다. 겨울의 경우, 1월은 $-0.02 \text{ ppb yr}^{-1}$ 로 약하게 감소하는 경향을, 12월은 $+0.15 \text{ ppb yr}^{-1}$ 로 약하게 증가하는 추세를 보였으나 결정계수(R^2)가 낮아 의미를 부여하기 어려웠다.

3.2 오존농도의 공간 변화 추세

부산 오존농도의 공간분포와 변화추세를 파악하기 위해 2001, 2005, 2010, 2015년의 오존농도의 공간분포를

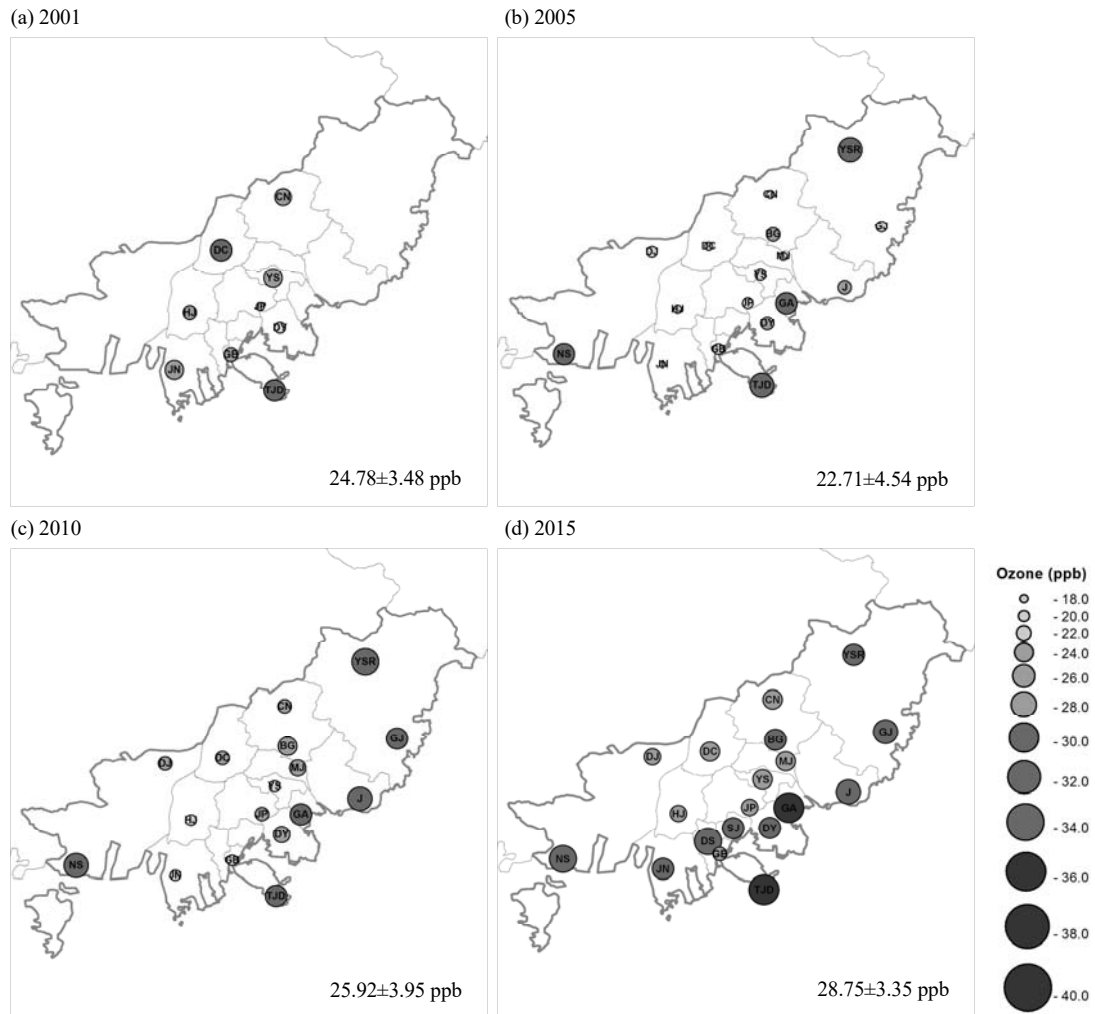


Fig. 5. Spatial distribution of yearly average of ozone concentrations at (a) 2001, (b) 2005, (c) 2010 and (d) 2015 in Busan.

Fig. 5에 나타내었다. 연도별로 사용가능한 대기질 측정망이 다르기 때문에 과거 측정망이 존재하지 않는 지역에서의 오존농도 공간분포는 확인하기 어려우나 (2001년 9개 지점, 2005년과 2010년 17개 지점, 2015년 19개 지점), 2001년 부산지역의 평균 오존농도는 24.78±3.48 ppb, 2005년에는 22.71±4.54 ppb, 2010년 25.92±3.95 ppb, 2015년 28.75±3.35 ppb로 2005년을 제외하고는 시간 변화추세에서 확인한 바와 같이 대부분의 측정망에서 농도 증가가 확인된다. 오존농도의 공간적 분포에서는 기존 선행연구에서 다수 밝혀진 바와 같이 교통량에

의한 다량의 NOx 배출이 예상되는 도심 측정망에서의 저농도를, 도시 외곽지역 및 연안 측정망에서 상대적 고농도 분포가 나타난다(Sillman, 1999; Ghim and Chang, 2000). 2005년에 30 ppb를 초과한 측정망은 태종대(TJD, 30.2 ppb)와 용수리(YSR, 31.2 ppb)로 2지점이었으나, 2010년에는 녹산(NS, 30.2 ppb), 용수리(YSR, 33.9 ppb), 좌동(J, 30.7 ppb) 이렇게 3지점으로 확대되었고 2015년에는 기장읍(GJ, 31.6 ppb), 태종대(TJD, 34.2 ppb), 광안동(GA, 34.7 ppb), 녹산동(NS, 32.5 ppb), 좌동(J, 30.7 ppb), 대신동(DS, 32.8 ppb)로

Table 2. Correlation coefficient between the yearly averaged ozone concentrations for the BASE and TOTAL sites and meteorological variables during 2001~2016 in Busan

Meteorological variables ^a	1-hr ozone		daily max. 8-hr ozone	
	BASE ^b	TOTAL ^c	BASE ^b	TOTAL ^c
Temperature	0.66	0.59	0.74	0.65
Daily max. temperature	0.60	0.48	0.70	0.55
The number of days which experienced temperatures exceeding 30 °C	0.27	0.22	0.20	0.15
Wind speed	-0.05	-0.14	-0.05	-0.15
Total precipitation amount	-0.09	-0.02	-0.13	0.00
The number of precipitation days	-0.12	-0.34	0.02	-0.25
Relative humidity	0.25	0.11	0.39	0.23
Cloud amount	0.32	0.31	0.22	0.25

^a The meteorological variables were observed from the Busan ASOS site.

^b BASE sites includes GB, DC, DY and YS.

^c TOTAL sites includes four BASE sites, GJ, TJD, JP, HJ, CN, JN, DJ, BG, GA, NS, MJ, YSR, J, SJ and DS.

연안에 위치한 대부분의 측정망에서 연평균 농도가 30 ppb를 넘는 고농도 오존 분포를 보였다.

2001년부터 2016년까지 대기질 측정망 중 오존농도의 상승추세가 가장 큰 측정망은 대연동(DY)으로 연간 +0.62 ppb yr⁻¹의 증가율(R²=0.756)이 확인되었고, 그 다음으로는 기장읍(GJ, +0.59 ppb yr⁻¹), 명장동(MJ, +0.56 ppb yr⁻¹), 부곡동(BG, +0.55 ppb yr⁻¹), 좌동(J, +0.55 ppb yr⁻¹)순으로 나타났다. 측정 시작연도부터 오존농도 수준이 높았던 용수리(YSR), 덕천동(DC), 대신동(DS)의 경우는 오존농도의 변화가 거의 없는 것으로 평가되었다.

4. 기상조건 및 배출환경 변화와의 상관관계

4.1 기상조건 변화와 오존농도 변화추세와의 상관

기상조건은 오존의 생성 및 수송, 소멸에 관여하기 때문에 오존농도의 시·공간 분포의 변화에 중요한 영향을 미친다(Dueñas et al., 2002; Tu et al., 2007). 선행연구에서는 일반적으로 약한 풍속, 높은 기온과 일사량의 조건일 때 오존의 생성과 축적으로 고농도가 발생한다고 제시되었다(Pugliese et al., 2014; Wang et al., 2017). 본 연구에서는 부산의 오존농도 변화에 관여하는 기상조건 중 가장 영향력이 큰 기상요소를 파악하기 위해 부산 ASOS (Automated Synoptic Observing System) 측정소(부산 중구 대청동 위치)에서 2001년부터 2016년까지

관측된 연평균 기상요소들과 오존농도와의 상관성을 분석하였다.

Table 2는 각 기상요소들(기온, 일최고 기온, 일최고기온이 30 °C를 초과한 일수, 풍속, 강수량, 강수일수, 상대습도, 운량)과 오존농도와의 상관분석 결과를 제시한 것으로, 피어슨 상관계수(Pearson's correlation coefficient)를 계산하였다. 오존의 농도 추세와 가장 상관성이 큰 기상요인은 연평균 기온이었고, 그 다음으로 영향을 미치는 요인은 일최고 기온이었다. 특히, BASE의 8시간 평균된 오존농도의 연변화 추세는 연평균 기온과 0.74 이상의 높은 상관을 보였다. 반면 강수의 경우 오존농도와 음의 상관을 보였으나, 강수량 보다는 강수일수에 더 큰 영향을 받음을 확인하였고, 운량의 경우는 0.22~0.32 정도의 상관관계를 보였다. 풍속의 경우, 약한 음의 상관을 보였는데 지표 풍속이 커질수록 오존 및 전구물질의 확산에 유리하기 때문으로 판단된다. 강수일수와 운량을 제외한 대부분의 기상요소에서 BASE 측정망의 오존농도 보다 TOTAL 측정망의 오존농도와의 상관성이 낮게 나타난 것은 본 연구에서 사용된 기상자료가 ASOS 한 지점에서 측정된 값으로, TOTAL 측정망의 경우 부산전역에 흩어져 있어 기상자료와의 상관성이 낮아지는 것으로 판단된다. 강수일수와 운량의 경우, 다른 기상요소와 비교해 ASOS 지점의 대표성이 큰 요소로 BASE와 TOTAL 측정망 사이의 상관성에 차이가 크지 않았다.

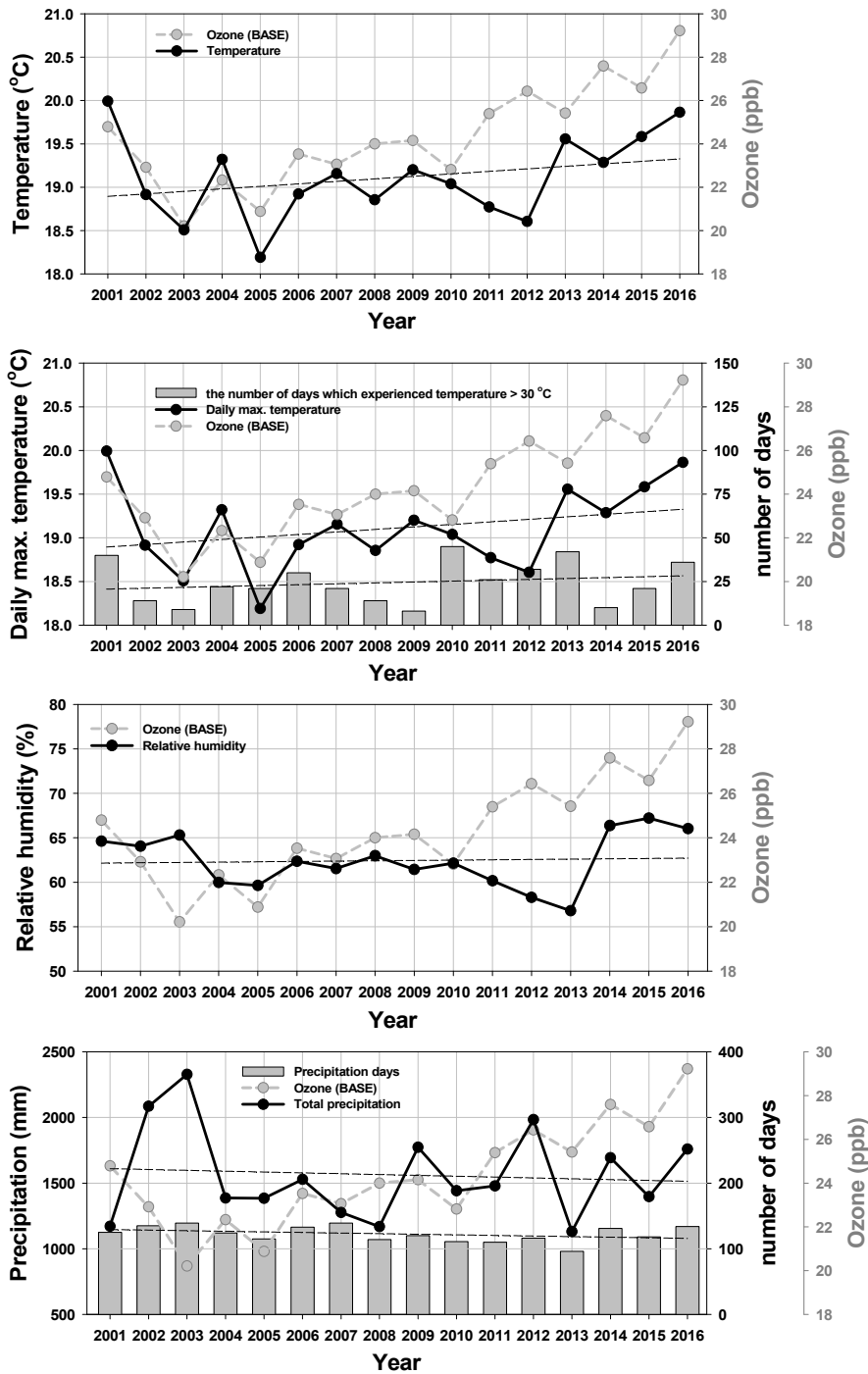


Fig. 6. Annual variations of temperature, daily maximum temperature, precipitation and relative humidity observed from the Busan ASOS during 2001-2016. Grey lines indicate the annual variations of ozone concentrations for the BASE sites.

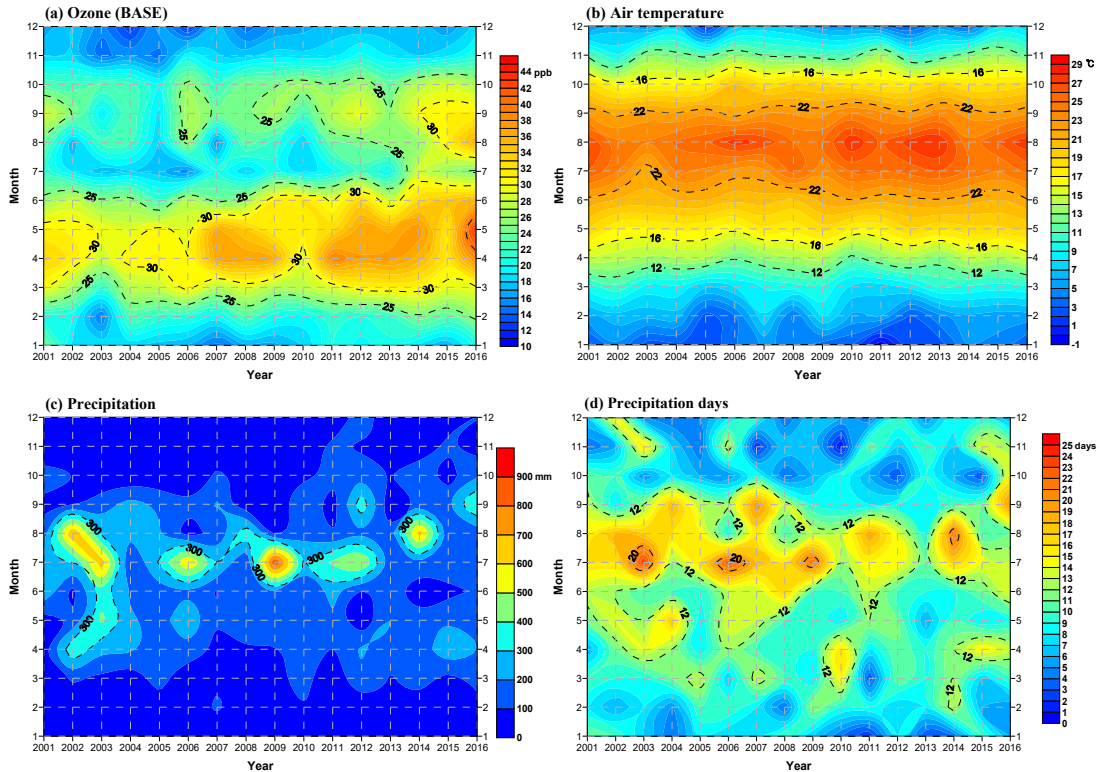


Fig. 7. Monthly variations of (a) mean ozone concentrations for the BASE sites, (b) air temperature, (c) precipitation and (d) precipitation days observed from the Busan ASOS from 2001 to 2016.

Fig. 6은 기상요소별(연평균 기온과 일최고 기온, 상대습도 및 강수량) 연 변화추세를 제시한 것으로 부산에서는 지난 16년간 연평균 및 일최고 기온은 증가추세가 뚜렷하고(연평균 기온: $+0.05 \text{ }^\circ\text{C yr}^{-1}$, 일최고 기온: $+0.03 \text{ }^\circ\text{C yr}^{-1}$), 강수량은 약한 감소추세(-6.42 mm yr^{-1})를 보였다. 오존의 변화추세(Fig. 6의 회색 점선)와 함께 살펴보면 16년 동안 전반적으로 나타난 부산지역 오존의 증가추세는 지역의 기온 상승과 강수량 감소로 설명될 수 있으나, 2010년을 기준으로 다소 다른 양상을 보인다. 즉, 2001년부터 2010년까지의 오존농도는 일반적으로 알려진 것과 유사하게 기온이 높을수록, 강수량이 적을수록 농도가 높아지는데 반해 2010년 이후에는 반대의 경향이 나타나 연평균된 기상요소만으로는 오존의 변화를 설명하기 어려웠다. 그 원인을 파악하기 위해 2001년부터 2016년까지의 월평균 오존농도와 월평균 기온, 월누적 강수량과 강수일수를 Fig. 7에 나타내었다. 월평균

오존농도의 변화(Fig. 7a)에서는 2007년 이후 4월과 5월의 뚜렷한 오존농도 증가 및 오존계절의 확대와 함께 2014년 이후로는 30 ppb를 초과하는 8월과 9월의 고농도 현상이 확인된다. 2001년부터 2013년까지 나타났던 7월과 8월의 상대적 저농도의 원인은 여름철 장마로 인한 강수량 및 강수일수의 증가였다(Fig. 7c와 7d). 하지만 일반적으로 6월부터 8월 사이에 존재하던 장마가 점차 약해지는 모습이며, 2015년과 2016년의 경우 6월 중순부터 시작된 약한 장마의 영향이 7월 중순으로 평년보다 일찍 종료되어(KMA, 2016; KMA, 2017) 8월에는 $26 \text{ }^\circ\text{C}$ 이상의 높은 월평균 기온과 함께 월평균 오존농도도 상대적으로 높은 31.0 ppb, 35.9 ppb를 기록하였다.

2010년 이후 나타났던 연평균 오존농도와 주요 기상인자(기온, 강수)와의 반대경향은 기상의 월변동이 복잡해지고 평년과 다른 이상기상현상의 발생빈도가 높아져 오존농도에 영향을 주었기 때문으로 사료된다. 예로

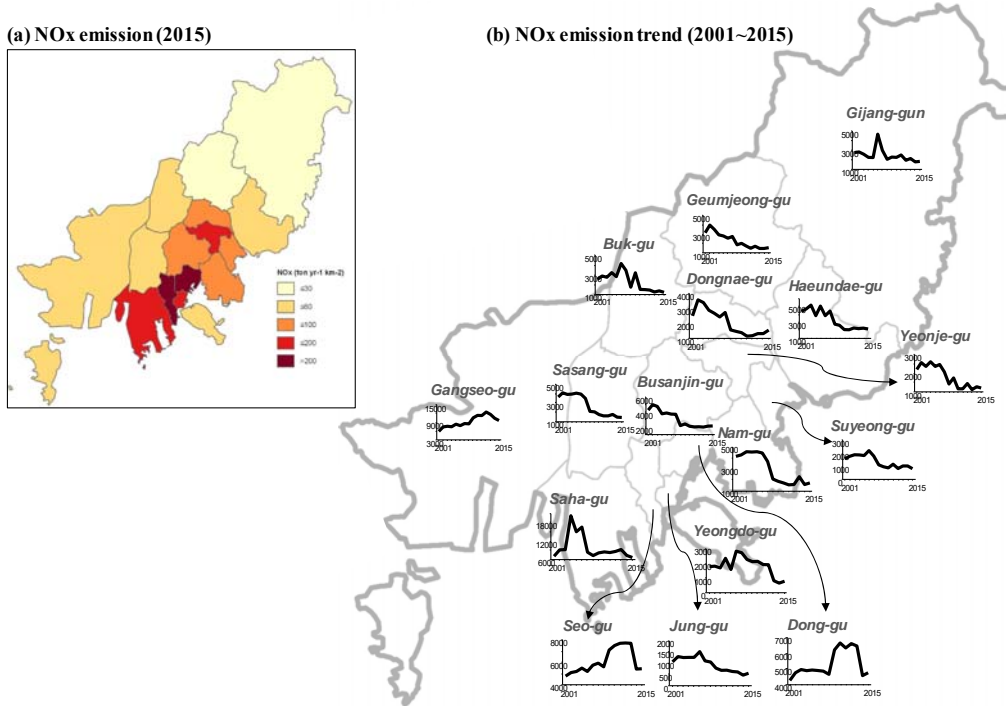


Fig. 8. (a) Spatial distribution of NOx emissions per unit area ($\text{ton yr}^{-1} \text{km}^2$) in 2005 and (b) NOx emission trends during 2001~2015 in Busan.

2009년과 비교해 기온 증가, 강수량 감소에도 불구하고 오존농도가 감소하였던 2010년의 경우, 4월의 오존농도가 28.8 ppb로 특히 낮았는데(16년 4월 평균 오존농도 34.0 ppb) 강수량은 적었으나 16일에 달하는 강수일수의 증가가 원인이었다. 또한 9월에는 높은 기온에도 불구하고(2010년 9월 평균 기온 24.1°C, 16년 9월 평균기온 22.7°C), 상대적으로 많은 강수량으로 인해 월평균 오존농도가 16년 평균농도보다 약 3.6 ppb나 낮은 22.3 ppb로 측정되었다. 반면 2011년과 2012년의 경우, 연평균 기온은 2010년과 비교하여 감소하였으나 오존농도는 상승하는 추세를 보였다. 특징적으로 2011년과 2012년 4월의 기온이 각각 13.1°C, 14.0°C로 2010년과 비교하여 1.6~2.5°C 정도 더 높았고, 이에 4월의 오존농도도 39.1 ppb, 37.0 ppb로 2010년보다 약 10 ppb나 더 높았다. 이처럼 봄에서 가을까지 최근 빈번해지는 이상고온, 폭염, 국지성 집중호우 등과 같은 기상이변 현상은 부산지역의 오존농도에 큰 영향을 미치고 있으며, 이로 인해 지난 16년간 오존농도는 기온증가와 함께 평균적으로는 증

가하는 추세이나 단기적 변동성도 커지고 있음을 알 수 있었다(월평균 오존농도의 표준편차, 2001년: ± 5.3 ppb, 2016년: ± 8.0 ppb).

4.2 배출환경 변화와 오존농도 변화추세와의 상관

지난 16년간 부산지역 오존농도의 시-공간 변화에 영향을 줄 수 있는 배출환경을 분석하기 위하여 2001년부터 2015년까지의 국립환경과학원 국가대기오염물질 배출량(Clean Air Policy Support System, 이하 CAPSS) 구별 자료를 사용하였다. 배출량 자료를 토대로 부산지역의 오염원별 배출량 변화 추세를 파악하고자 하였으나 해마다 배출원의 추가, 산정방식의 개선 등으로 산정방법이 변화되어(NIER, 2018) 정량적인 배출량 변화추세와 오존과의 상관성을 직접적으로 제시하기에는 어려움이 있었다. 본 연구에서는 이러한 배출량 자료의 한계를 고려하여 분석하고자 하였다.

Fig. 8은 2001년부터 2015년까지의 구별 NOx 배출량 변화와 2015년의 단위면적당(km^2) NOx 배출량의

공간분포를 제시한 것이다. Fig. 8a에서 보여지듯이 2015년 CAPSS 배출량에서 단위면적당 NO_x 배출량이 가장 큰 지역은 동구로 484.6 ton yr⁻¹ km⁻²이었고, 그 다음으로는 인접한 서구에서 388.6 ton yr⁻¹ km⁻²로 높게 나타났다. 동구와 서구 뿐 아니라 연안에 위치한 중구, 사하구와 도심인 연제구, 동래구를 중심으로 NO_x 배출량이 많았고, 부산의 북쪽 외곽이면서 산지가 많은 면적을 차지하는 금정구와 기장군의 NO_x 배출량이 30 ton yr⁻¹ km⁻² 미만으로 구별 배출량의 차이가 크게 났다. 동구, 중구, 서구를 포함한 부산 남쪽 연안지역의 경우, 부산항과 부산남항이 위치하고 있어 선박을 포함한 비도로이동 오염 배출량의 비중이 매우 높았고 (전체 NO_x 배출량에 대한 비도로이동오염 배출량의 비중, 동구: 89%, 서구: 91%), 도심인 동래구와 연제구의 경우, 자동차 기원의 도로이동오염 배출량의 비중이 높았다(전체 NO_x 배출량에 대한 도로이동오염 배출량의 비율, 동래구: 45%, 연제구: 52%).

대부분의 부산지역에서 NO_x 배출량이 2007년과 2008년을 기점으로 급격히 감소하는데 반해 강서구와 동구, 서구에서는 오히려 배출량이 증가하는 추세를 보였다(Fig. 8b). 2007년 나타난 배출량의 급격한 변화는 배출 관련 자료의 보완 및 배출계수의 변경 등에 의한 것으로 실질적인 배출량 감소라고 보기 어렵다(NIER, 2018). 하지만 이를 감안한다 하더라도 2009년 이후 동구와 서구의 배출량 증가가 뚜렷한데 이는 2008년부터 시작된 부산북항 재개발 사업에 그 원인이 있다고 판단된다. 2014년 이후 동구와 서구의 배출량은 예전 수준으로 급감하였으나, 2014년부터 선박부문 배출량 개선과 일부 선박 배출량이 '바다'로 구분되어 이전 자료와의 연속적 분석이 어렵고 2016년 이후로는 배출량 자료가 없어 최근의 배출량 추세는 파악할 수 없었다.

부산 동래구, 연제구 등과 같이 교통량이 많은 지역에서 NO_x 배출량의 지속적 감소는 명장(MJ), 연산(YS), 전포(JP)와 같은 도심 내륙 측정망에서의 오존농도 증가에 영향을 줄 수 있다. 이들 측정망은 공간적으로는 부산 외곽지역과 비교하여 NO_x의 적정작용(NO_x titration)으로 인한 상대적 저농도가 나타났으나(Fig. 5 참고), 지속적으로 오존농도가 증가하고 있었다(오존증가율 0.22~0.56 ppb yr⁻¹). 또한 부산항이 위치한 동구와 서구의 수정(SJ), 대신(DS) 측정망의 경우, 각각 2011년,

2013년부터 측정이 시작되어 장기간의 뚜렷한 추세를 파악하기는 어려우나, 부산의 평균 오존증가율(0.44 ppb yr⁻¹, TOTAL 측정망 기준) 보다 훨씬 낮은 0.25 ppb yr⁻¹, -0.10 ppb yr⁻¹의 오존증가율을 보였다. 또한 이들과 인접한 연안 측정소인 대연(DY)과 광안(GA) 측정소에서는 각각 0.62 ppb yr⁻¹, 0.47 ppb yr⁻¹로 큰 폭으로 오존농도가 증가하고 있어 수정(SJ)과 대신(DY) 측정소의 경우, 항만 선박에서 다량 배출되는 NO_x의 영향이 있음을 확인하였다. 강서구의 NO_x 배출량도 지속적으로 증가하고 있었는데 2010년에 완공된 부산신항 북컨테이너 부두의 영향으로 보여지며, 이로 인해 인접한 녹산(NS) 측정소에서도 0.25 ppb yr⁻¹의 낮은 오존증가율을 보였다.

5. 요약 및 결론

본 연구에서는 2001년부터 2016년까지의 부산 내 위치한 도시대기측정망(19지점)에서 측정된 오존농도 자료를 토대로 지난 16년간 오존농도의 시·공간적인 변화와 원인을 분석하였다. 오존농도의 연 변화추세를 계산하기 위해 2001년부터 측정망의 위치변화 없이 연속 측정된 4지점을 BASE, BASE 측정망과 매년 추가 설치된 측정망을 TOTAL로 구분하여 분석하였다. 그 결과 2001년 이후 부산의 오존농도는 BASE 측정망을 기준으로 연간 +0.40 ppb yr⁻¹의 증가율이 계산되었고 2010년 이후로는 약 2배인 +0.81 ppb yr⁻¹로 더욱 가파르게 증가하고 있음이 확인되었다. TOTAL 측정망의 오존 연 변화에서는 BASE 보다 조금 더 높은 +0.46 ppb yr⁻¹가 나타났는데, 이는 부산전역에서 오존농도 상승이 이루어지고 있음을 의미한다.

부산지역 월평균 오존농도 분석에서는 국내 타 도시와 비교하여 조금 이른 4월과 5월의 월평균 오존농도가 가장 높았고, 8월(+0.68 ppb yr⁻¹), 5월(+0.65 ppb yr⁻¹), 6월(+0.59 ppb yr⁻¹) 순으로 7월을 제외한 여름철의 오존농도 증가율이 컸다. 이와 함께 고농도오존 시기도 확장되어 2009년 이후로는 4월과 9월에도 30 ppb가 넘는 월평균 오존농도가 관측되었다. 이러한 부산지역 오존농도의 변화는 기온상승(연평균 기온: +0.05 °C yr⁻¹, 일최고 기온: +0.03 °C yr⁻¹)과 강수량의 약한 감소추세(-6.42 mm yr⁻¹)에 일차적 원인이 있다고 판단되었으나, 2010

년 이후에는 봄부터 가을까지 빈번해진 기상이변 현상(이상고온, 폭염, 집중호우 등)으로 기상요소와 오존농도의 단기적 변동성이 커지고 있어 앞으로도 이에 대한 지속적인 관심이 필요하다.

부산은 교통량에 의한 NO_x 배출이 많은 내륙 도심을 중심으로 저농도, 외곽지역 및 연안지역에서 상대적으로 고농도 오존 분포를 보였다. 하지만 남쪽 연안지역(동구와 서구, 강서구)을 제외하고는 부산의 NO_x 배출량이 점차 감소하고 있는 추세였고, 이는 지난 16년간 기온상승과 함께 부산지역의 평균적인 오존농도를 상승시키는 원인으로 작용될 수 있다. 동구와 서구, 강서구의 경우 부산항과 부산신항이 위치하고 있어 선박에서 배출되는 다량의 NO_x 영향이 존재하며 이들 항만과 인접한 수정(SJ)과 대신(DS), 녹산(NS) 측정소에서는 부산의 평균 오존 증가율(0.44 ppb yr⁻¹)보다 훨씬 낮은 증가율(-0.10~0.25 ppb yr⁻¹)을 보였다.

본 연구는 지난 20년간 항만 재개발 및 도시개발로 인해 도시변화가 컸던 부산지역 오존농도의 시·공간적 변화를 정량적으로 분석하였으며, 기상과 배출환경 변화를 함께 고려하여 오존농도 변화의 원인을 제시하였다는데 의의가 있다. 하지만 본 연구에서 제시한 원인 이외에도 도심에서의 인공열 증가, 한반도를 둘러싼 해양 배경농도의 증가와 중국으로부터의 오존 전구물질 장거리수송 등의 영향을 배제할 수 없고, 보다 정확한 원인을 분석하기 위해서는 다규모(Multi-scale)에서의 다양한 기상/배출 환경변화에 대한 추가적인 연구가 필요할 것으로 판단된다. 본 연구의 결과는 향후 부산의 대기환경정책 및 오존저감정책 수립시 의미 있는 근거자료로 활용되기를 기대한다.

감사의 글

이 과제는 부산대학교 기본연구지원사업(2년)에 의하여 연구되었음.

REFERENCES

- An, H., Han, J., Lee, M., Kang, E., 2015, The long-term variations of ozone and nitrogen oxides in Suwon city during 1991~2012, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 31(4), 378-384.
- Busan Metropolitan City, 2014, *Busan government II (2003~2012)*.
- Busan Metropolitan City, 2017, *The 56th Busan statistical yearbook*.
- Dueñas, C., Fernández, M. C., Cañete, S., Carretero, J., Liger, E., 2002, Assessment of ozone variations and meteorological effects in an urban area in the Mediterranean Coast, *The Science of the Total Environment*, 299, 97-113.
- Ghim, Y. S., Chang, Y. S., 2000, Characteristics of ground-level ozone distributions in Korea for the period of 1990-1995, *J. Geophys. Res.*, 105, 8877-8890.
- Jeon, B. I., 2014, Characteristics of ozone concentration weekend effect in Busan area, *Journal of Environmental Science International*, 23(5), 861-871.
- Jeon, B. I., Oh, I. B., 2011, Characteristics on variation of temperature and ozone concentration during the partial solar eclipse event of 22 July 2009 at Busan, *Journal of Environmental Science International*, 20(8), 1049-1059.
- Kim, J., Ghim, Y. S., Han, J. S., Park, S. M., Shin, H. J., Lee, S. B., Kim, J., Lee, G., 2018, Long-term trend analysis of Korean air quality and its implication to current air quality policy on ozone and PM₁₀, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34, 1-15.
- Kim, M. K., Lee, H. W., Jung, W. S., Do, W. G., 2012, Analysis on the effect of meteorological factors related to difference of ozone concentration at the neighboring areas in Gijang Busan, *Journal of the Environmental Sciences*, 21(9), 1097-1113.
- Kim, Y. K., Oh, I. B., Hwang, M. K., 2003a, Numerical simulation of ozone using UAM-V on summer episode in the coastal urban area, Busan, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 19(1), 1-11.
- Kim, Y. K., Oh, I. B., Hwang, M. K., 2003b, Meteorologically adjusted ozone trends in the Seoul and Busan metropolitan areas, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 19(5), 561-568.
- Korea Environment Institute (KEI), 2010, Climate change and air pollution effects on environmentally related disease - Interactive effects of temperature and ozone on environmentally related disease - RE 2010-06.
- Korea Meteorological Agency (KMA), 2016, *Annual*

- report 2015.
- Korea Meteorological Agency (KMA), 2017, Annual report 2016.
- Lim, H. J., Lee, Y. J., 2011, Characterization of ozone distributions in Pohang: measurement data during 2002~2006, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 27(1), 50-62.
- Ministry Of Environment (MOE), 2017, Annual report of air quality in Korea, 2016.
- National Institute of Environmental Research (NIER), 2018, National Air Pollutants Emission 2015, NIER-GP2017-210.
- Pugliese, S. C., Murphy, J. G., Geddes, J. A., Wang, J. M., 2014, The impacts of precursor reduction and meteorology on ground-level ozone in the Greater Toronto Area, 2014, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 8197-8207.
- Shin, H. J., Park, J. H., Park, J. S., Song, I. H., Park, S. M., Roh, S. A., Son, J. S., Hong, Y. D., 2017, The long term trends of tropospheric ozone in major regions in Korea, *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 11, 235-253.
- Sillman, S., 1999, The relation between ozone, NO_x and hydrocarbons in urban and polluted rural environments, *Atmospheric Environment*, 33, 1821-1845.
- Song, S. K., Shon, Z. H., Kim, Y. K., Kang, Y. H., Oh, I. B., Jung, C. H., 2010, Influence of ship emissions on ozone concentrations around coastal areas during summer season, *Atmospheric Environment*, 44(5), 713-723.
- Tu, J., Xia, Z. G., Wang, H., Li, W., 2007, Temporal variations in surface ozone and its precursors and meteorological effects at an urban site in China, *Atmospheric Research*, 85, 310-337.
- U.S. EPA (2006) Air quality criteria for ozone and related photochemical oxidants, volume I, EPA 600/R-05/004aF Wang, T., Xue, L., Brimblecombe, P., Lam, Y.F., Li, L., Zhang, L., 2017, Ozone pollution in China: A review of concentrations, meteorological influences, chemical precursors, and effects, *Science of the Total Environment*, 575, 1582-1596.
- Xu, X., Lin, W., Wang, T., Yan, P., Tang, J., Meng, Z., Wang, Y., 2008, Long-term trend of surface ozone at a regional background station in eastern China 1991-2006: enhanced variability, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8, 2595-2607.
- Yan, Y., Lin, J., He, C., 2018, Ozone trends over the United States at different times of day, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18, 1185-1202.

-
- 강윤희, 부산대학교 환경연구원 연수연구원
yhkang@pusan.ac.kr
 - 김유근, 부산대학교 대기환경과학과 교수
kimyk@pusan.ac.kr
 - 황미경, 부산대학교 환경연구원 연수연구원
hmk1001@naver.com
 - 정주희, 부산대학교 환경연구원 연구교수
jeongjuhee@pusan.ac.kr
 - 김현수, 한국전력거래소 기상전문가
hyunsu@kpx.or.kr
 - 강민성, 동의대학교 휴먼환경예지연구소 연구원
minsungkang@deu.ac.kr