

2021년 서울과 광주 지역 PM_{1.0}과 PM_{2.5}의 화학적 특성 비교 분석 연구

김주영¹⁾ · 오승미¹⁾ · 신혜정²⁾ · 장유운²⁾ · 이용환²⁾ · 권수진³⁾ · 최성득⁴⁾ · 이상진⁴⁾ · 이지이^{1)*}

¹⁾이화여자대학교 환경공학과, ²⁾국립환경과학원 대기환경연구과, ³⁾서울대학교 보건대학원 환경보건학과,
⁴⁾울산과학기술원 도시환경공학

(투고 2023년 8월 1일, 수정 2023년 9월 18일, 게재확정 2023년 9월 18일)

Comparison of chemical compositions and source apportionment of PM_{1.0} and PM_{2.5} in Seoul and Gwangju in 2021

Ju Young Kim¹⁾, Seung Mee Oh¹⁾, Hye Jung Shin²⁾, Yu Woon Chang²⁾, Yong Hwan Lee²⁾,
Su Jin Kwon³⁾, Sung Deuk Choi⁴⁾, Sang Jin Lee⁴⁾, Ji Yi Lee^{1)*}

¹⁾Department of Environmental Science & Engineerig, EWHA Womans University,

²⁾Department of Air Quality Research, National Institute of Environmental Research,

³⁾Department of Environmental Health Sciences, Seoul National University,

⁴⁾Department of Urban and Environmental Engineering, Ulsan National Institute of Science and Technology

(Received August 1 2023; Revised September 18 2023; Accepted September 18 2023)

Abstract

The PM_{1.0} and PM_{2.5} samples were collected synchronously using a single channel particulate sampler equipped with PM_{1.0} and PM_{2.5} cyclones, respectively, and seasonal mass concentration and chemical composition of PM_{1.0} and PM_{2.5} were quantified in Seoul and Gwangju in 2021-2022. The mass concentrations of PM_{1.0} and PM_{2.5} were 17±11 and 22±14 μg/m³ in Seoul, and 16±9 and 19±12 μg/m³ in Gwangju, respectively. The average ratios of PM_{1.0}/PM_{2.5} were 83±16% in Seoul and 83±7% in Gwangju. The chemical compositions of PM_{1.0} and PM_{2.5} were similar at both sites with OC component being the most dominant, and NO₃⁻ increasing from summer to winter, while, the difference of chemical distribution at the two sites was most distinct in the autumn. Gwangju showed a higher proportion of OC and a lower proportion of NO₃⁻ compared to Seoul during the autumn. Both sites appear to reflect their urban characteristics, with Gwangju also reflecting the impact of biomass combustion as a part of rural activities.

Keywords: PM_{1.0}, PM_{2.5}, chemical composition, Seoul, Gwangju

* Corresponding author.

Tel : +82-2-3277-5945, Fax : +82-2-3277-3275

E-mail : yijiyi@ewha.ac.kr

1. 서론

미세먼지는 대기질과 대기 가시도, 인체 건강, 기후변화에 큰 영향을 미치는 주요 대기오염물질로 알려져 있다 (Tai et al., 2010; Strak et al., 2012; Zhang et al., 2015). 미세먼지의 발생원은 꽃가루, 해염 입자, 지각 입자 등의 자연적 발생원과 화석연료 연소, 자동차 매연, 소각 등의 인위적 발생원으로 나뉠 수 있으며, 발생원과 생성 기작에 따라 미세먼지의 화학적 특성은 다양하게 나타난다(Zhang et al., 2018; Liang et al., 2016).

국내 도시대기측정망 자료에 의하면 서울을 포함한 16개의 시·도 지역에서 PM₁₀과 PM_{2.5} 농도는 2000년대 초반부터 2017년까지 계속해서 감소하는 추세를 보여 왔다(Yeo and Kim, 2019). 그러나 2003-2018년 동안 연평균 PM_{2.5} 농도는 강화된 PM_{2.5} 연평균 대기 환경기준(15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)을 적용했을 때 계속해서 초과해 왔으며, 여전히 도심지역에서는 고농도 PM_{2.5}에 의한 연무 현상이 꾸준히 발견되고 있다. 특히, 도심지역은 교통, 주거 및 상업지역, 산업 시설 등의 인위적 오염원이 집중적으로 분포하는 지역으로서, 인위적 오염원으로 인한 직접 배출과 대기 중 2차 에어로졸 생성이 연무 발생에 복합적으로 영향을 미친다(Yang et al., 2015; Guo et al., 2014). 이로 인해 도심지역의 고농도 미세먼지 오염현상의 원인을 정확히 파악하는 것은 매우 어려우며, 도심지역 내에서 실효성 있는 저감 대책을 마련하기 위해서는 인위적 오염원과 대기 중 2차 에어로졸 생성에 대한 이해가 반드시 필요하다.

미세먼지는 입경에 따라 공기역학적 직경이 10 μm 이하인 PM₁₀, 2.5 μm 이하인 PM_{2.5}, 1.0 μm 이하인 PM_{1.0}으로 구분되는데, PM₁₀은 주로 황사, 산불, 꽃가루, 해염 등의 자연적 발생원으로부터 직접 배출되는 1차 에어로졸로 구성되는 반면, PM_{2.5}는 자연적 발생원에 의한 1차 에어로졸뿐 아니라 인위적 발생원에 의한 1차 에어로졸 및 2차 에어로졸을 모두 포함한다. 한편, PM_{1.0}은 인위적 오염원의 영향을 집중적으로 반영하는 것으로 알려져 있으나(Lundgren et al., 1996), 작은 크기로 인한 인체 위해성(Wang et al., 2021; Rattanavaraha et al., 2017) 외의 화학적 특성 및 생성 메커니즘에 대해서는 여전히 국내 연구가 부족한

실정이다. 미세먼지는 입경이 작을수록 대기 중 체류 시간이 길고 표면적이 커, 대기오염물질의 흡착과 같은 이차생성반응의 영향이 증가한다고 보고되고 있다 (Zhang et al., 2016; Lee et al., 2012). 이에 따라 미세먼지의 입경 별 특성을 심층적으로 이해하고, 도심 지역과 같이 인위적 발생원에 의한 고농도 미세먼지 오염현상이 빈번한 지역의 미세먼지 발생 특성을 파악하기 위해서는 PM_{1.0}과 PM_{2.5}의 특성을 비교하는 연구가 이루어져야 한다. 나아가, PM_{1.0}에 대한 추가적인 정책적 관리의 필요성 논의를 위해 PM_{1.0} 관리에 대한 기초 자료를 마련하기 위해서도 PM_{2.5}와의 비교 연구가 반드시 필요할 것으로 사료된다.

본 연구에서는 국내 도심지역인 서울과 광주에서 여름, 가을, 겨울 동안 채취한 PM_{1.0}과 PM_{2.5} 시료에 대해 질량농도를 측정하고 화학적 조성을 비교 분석하였다. 또한, 대기 중 기체상 전구물질(CO, SO₂, NO₂)의 농도, 기상 조건(기온, 상대습도, 풍향, 풍속), 그리고 역궤적 군집분석을 바탕으로 한 Potential source contribution function(PSCF) 모델 분석 결과를 활용하여 지역적·계절적 특성에 따른 미세먼지의 생성 원인을 규명하고자 하였다.

서울은 국내 최대 인구 보유 지역으로서, 많은 주거 및 상업 시설과 교통이 분포하여 도시 중에서도 인위적 배출원에 의한 미세먼지 배출량이 많다. 광주는 도심지역을 중심으로 북쪽에는 대규모 눈·밭이, 남서쪽에는 산업단지가 위치하여 도심지역과 농촌지역의 특성이 함께 나타난다(Yu et al., 2018). 서로 다른 특성을 지닌 두 도심지역에서 계절적 변화에 따라 변화하는 PM_{1.0}과 PM_{2.5}의 화학 조성 비교를 통해, 두 입경의 화학적 특성 차이를 파악하고 도심지역의 미세먼지 발생 특성을 이해하고자 한다.

2. 방법

2.1 시료 채취

PM_{1.0}과 PM_{2.5} 시료의 채취는 2021년~2022년 여름(2021년 8월 4일~8월 19일), 가을(2021년 10월 28일~11월 11일), 겨울(2022년 1월 17일~2월 1일) 동안 서울특별시와 광주광역시에 각각 위치한 국립환경

Table 1 Number of collected samples of PM_{1.0} and PM_{2.5} by seasons.

Seasons	Seoul				Gwangju			
	Teflon filter		Quartz filter		Teflon filter		Quartz filter	
	PM _{1.0}	PM _{2.5}	PM _{1.0}	PM _{2.5}	PM _{1.0}	PM _{2.5}	PM _{1.0}	PM _{2.5}
Summer	16	15	16	16	16	16	16	16
Fall	14	14	14	14	15	15	15	15
Winter	16	15	15	16	15	15	15	15
Total	46	44	45	46	46	46	46	46

과학원 수도권 대기환경연구소(37.61°N, 126.93°E)와 호남권 대기환경연구소(35.23°N, 126.85°E)에서 시행되었다. US EPA의 대기 중 PM_{2.5}의 측정 방법(US EPA Compendium Method IO-4.2)에 준하여 옥상에 PM_{1.0}과 PM_{2.5} 사이클론이 장착된 저용량 사이클론 채취기(E-FRM-230, Met One, USA)를 설치하여 포집을 진행하였고, 채취기에 질량유량조절기(Mass Flow Controller: MFC)를 장착하여 정확한 유량을 확보하고자 하였다.

오전 11시부터 익일 오전 10시까지 총 23시간 포집하였으며, 이온 성분 분석을 위한 직경 47 mm 테플론 필터(MTL)와 탄소 성분 분석을 위한 직경 47 mm 석영 필터(Pall Corp.)에 각각 PM_{1.0}과 PM_{2.5}를 1개씩 포집하여 하루에 총 4개의 시료를 채취하였다. 포집된 테플론 필터와 석영 필터는 시료 채취 이후 즉시 각각 냉장(4°C), 냉동(-20°C) 보관하였다. 계절별 포집한 총 시료 개수는 표 1에 나타내었다.

2.2 질량농도 측정 및 화학성분 분석 방법

질량농도는 대기오염공정시험법에 준하여 시료 포집 전후로 24시간 동안 데시게이터에서 건조한 테플론 필터의 무게를 측정하여 산정하였으며, 칭량 시 XP2U (Mettler toledo, USA)와 AH500E system (MTL, USA)의 자동 필터칭량시스템을 이용하였다.

이온 성분으로는 양이온 5종(Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺)과 음이온 3종(Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻)을 분석하였다. 시료가 포집된 테플론 필터의 1/2 면적을 10 mL의 증류수에 2시간 초음파 추출한 후 공극 크기가 0.2 μm인 H-PTFE 재질의 실린저 필터로 정제하여 전처리하였다.

분석 시 이온 크로마토그래프(Ion Chromatograph: IC, 925 Eco IC, Metrohm, Switzerland)를 이용하였으며, 컬럼(column)은 양이온과 음이온을 각각 Metrosep C 4 - 150/4.0과 Metrosep A Supp 5 - 150/4.0을, 엘루언트(eluent)는 각각 Nitric acid 34 mM/Dipicolinic acid 14 mM과 Sodium bicarbonate 64 mM/Sodium carbonate 20 mM을 증류수에 희석하여 사용하였다. 실험 분석 대상 성분에 대한 혼합 표준용액을 단계적으로 희석하여 작성한 검량선은 개별 성분에 대해 r²이 0.99 이상임을 확인하였다.

탄소 성분으로는 유기탄소(Organic carbon, OC)와 원소탄소(Elemental carbon, EC)를 분석하였다. 석영 필터를 1.5 cm²으로 천공하여 사용했으며, National Institute of Occupational Safety and Health (NIOSH 5040) 방법에 의한 열-광학 탄소분석법에 따라 탄소분석기(OC-EC aerosol analyzer, Sunset, USA)를 이용하여 분석하였다. 기기 분석의 정확성 및 정밀성 평가를 위해 15개 시료마다 분석 직전에 sucrose 표준물질을 이용하여 5% 이내의 분석 오차범위를 확인하였다.

보조 자료로 활용한 기체상 전구물질(CO, SO₂, NO₂)과 기상(기온, 상대습도, 풍향, 풍속) 자료는 각각 에어코리아(www.airkorea.or.kr)와 기상자료개방포털(data.kma.go.kr) 사이트에서 수집하였다.

2.3 PSCF 모델

PSCF 모델은 역궤적 정보에 수용점(receptor)의 오염물질 농도자료를 결합하여, 수용점 오염물질의 증장 거리 이동에 의한 오염원 위치를 확률적으로 추정하는

Table 2 Average concentration of components of PM_{1.0} and PM_{2.5} (units: $\mu\text{g}/\text{m}^3$).

Species	Seoul			Gwangju		
	PM _{1.0}	PM _{2.5}	PM _{1.0} /PM _{2.5}	PM _{1.0}	PM _{2.5}	PM _{1.0} /PM _{2.5}
Summer	9±5	11±6	81±7	10±3	12±4	85±6
Fall	16±9	22±14	79±14	15±9	19±11	80±8
Winter	27±10	33±13	84±7	22±10	27±14	83±8
Annual	17±11	22±14	83±16	16±9	19±12	83±7

고차원 수용 모델이다(Zeng and Hopke, 1989; Zhang et al., 2018). 역궤적 계산 시 미국 해양대기청(National Oceanic and Atmospheric Administration, NOAA)의 HYSPLIT 모델을 모듈로 사용한다. PSCF 수치는 조건부 확률 분석으로서 격자(cell) 지역을 지나는 궤적(trajectory)이 수용점에서 기준치 이상의 높은 농도를 가질 확률을 나타낸다(Ham et al., 2017). 식 1에서 m_{ij} 는 (i, j) 격자를 지나는 궤적점 중에서 수용점의 오염물질이 기준치(본 연구에서 농도 평균값) 이상의 높은 농도를 가지는 궤적점 수이며, n_{ij} 는 (i, j) 격자를 지나는 모든 궤적점의 수를 의미한다. 따라서 PSCF 수치는 0에서 1사이의 값을 가지게 되며, 1에 가까운 값을 갖는 격자가 영향 배출원일 가능성이 높다. 그러나 기상 조건에 따라 측정 기간 동안의 궤적이 실제로 존재하는 고농도 배출원을 지나지 않을 경우 해당 고농도 배출원을 PSCF 모델 결과에서 확인 불가능하며, PSCF 수치가 높더라도 해당 격자 지역을 지나가는 총 궤적수가 작은 경우 불확실도가 높다는 한계점이 있다(Kang et al., 2008). 이와 같은 불확실도를 저감하기 위해 경험 가중치 W_{ij} 가 널리 사용된다(Lucey et al., 2001). W_{ij} 는 모든 격자에 대한 평균 궤적점의 수를 기준으로 PSCF 수치에 곱하여 사용하며, 본 연구에서 적용한 W_{ij} 조건은 식(2)에 나타내었다.

$$PSCF_{ij} = \frac{m_{ij}}{n_{ij}} \quad (1)$$

$$W_{ij} = \begin{cases} 1.0 & 3n_{avg} < n_{ij} \\ 0.7 & 1.5n_{avg} < n_{ij} \leq 3n_{avg} \\ 0.4 & n_{avg} < n_{ij} \leq 1.5n_{avg} \\ 0.2 & n_{ij} \leq n_{avg} \end{cases} \quad (2)$$

본 연구에서는 농도가 평균값 이상인 시기에 서울과 광주 대기에서 PM_{2.5} 형성에 영향을 준 기류 및 배출원을 비교하기 위해 각 지역의 전체 시료 채취 기간의 PM_{2.5} 질량농도에 대해 PSCF 분석을 실시하였다. PSCF 모델 기초자료로는 NOAA의 HYSPLIT 모델에서 제공되는 공간 해상도 1°×1°의 NCEP(National Centers for Environmental Prediction) GDAS(Global Data Assimilation System) 기상장 자료를 사용하였다. 서울과 광주의 수용점은 각각 수도권 대기환경연구소와 호남권 대기환경연구소로 지정하였으며, 각 수용 지점에 대해 500 m, 1000 m, 1500 m 세 고도에서 계산한 72시간 역궤적의 평균을 계산하여 PSCF 값을 산출하였다.

3. 연구결과

3.1 PM_{1.0}과 PM_{2.5}의 계절별 농도 특성

일별 농도의 경우 서울 PM_{1.0}은 4.0~46.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, PM_{2.5}는 5.0~55.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 의 농도 범위 내에, 광주 PM_{1.0}은 4.1~46.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, PM_{2.5}는 5.9~59.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 의 농도 범위 내에 분포하였다. 전체 포집 기간에 대한 평균 질량농도는 서울에서 PM_{1.0}이 16.7±11.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, PM_{2.5}가 21.2±14.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로, 광주에서 PM_{1.0}이 15.8±9.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, PM_{2.5}가 19.4±12.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 두 지역에서 유사한 수준이나 서울에서 조금 더 높게 측정되었고, 두 지역의 전 계절 평균 질량농도는 모두 PM_{2.5} 연평균 대기환경기준인 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 를 초과하였다(표 2). 계절별 평균 농도는 서울과 광주의 PM_{1.0}과 PM_{2.5} 모두 겨울, 가을, 여름 순으로 높게 나타났으며,

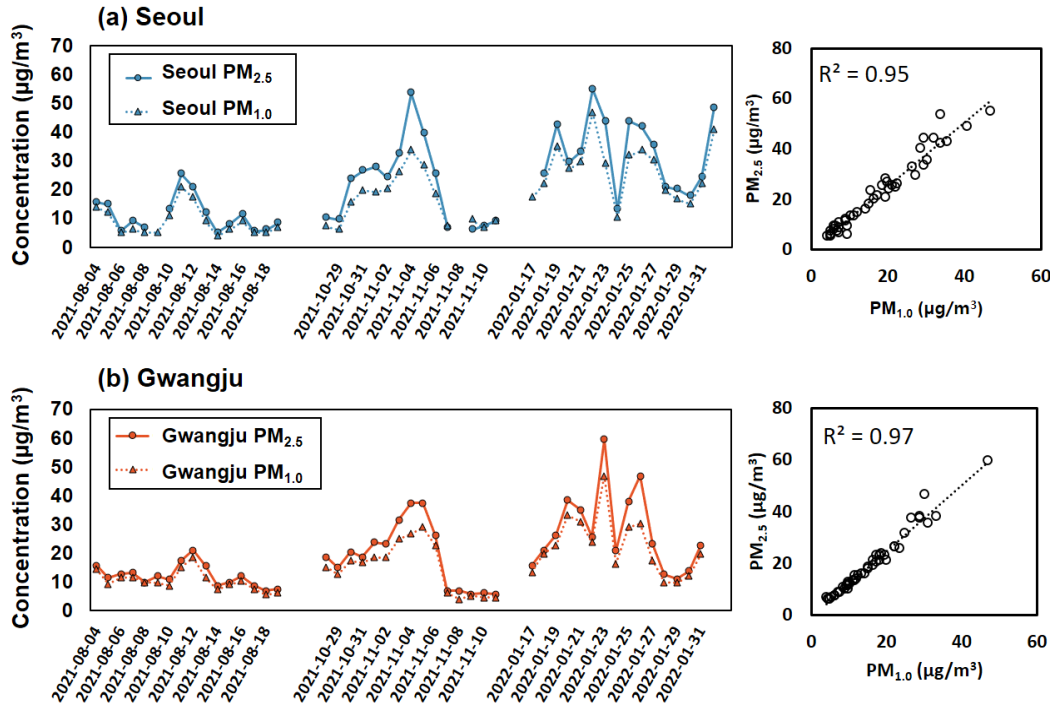


Figure 1. Diurnal pattern and correlation of PM_{1.0} and PM_{2.5} in (a) Seoul and (b) Gwangju.

PM_{2.5} 일평균 대기환경기준인 35 µg/m³를 초과하는 날은 가을과 겨울에만 발생하였다.

PM_{1.0}과 PM_{2.5} 간의 일별 농도 변화 추이는 유사하게 나타났고, 전체기간 동안 PM_{1.0}과 PM_{2.5} 간의 상관성은 두 지역에서 모두 0.95 이상으로 높았다(그림 1). PM_{1.0}/PM_{2.5} 비율의 계절별 평균은 서울과 광주에서 모든 계절에서 80%에 근접하거나 그 이상이었으며, 전기간 동안의 평균은 두 지역에서 각각 83±16%, 83±7%로 나타나 두 지역에서 PM_{1.0}이 PM_{2.5}의 대부분에 기여하는 것을 확인하였다. 이는 밀집한 인위적 발생원에 의한 2차 에어로졸 생성이 집중적으로 이루어짐에 따라 입경이 작은 먼지가 지배적으로 분포하는 도심지역의 특징이 나타난 것으로 보인다(Park and Kim, 2004; Perez et al., 2008; Li et al., 2015; Yu et al., 2017).

3.2 PM_{1.0}과 PM_{2.5}의 계절별 화학조성 특성

PM_{1.0}과 PM_{2.5}의 일별 화학적 조성 추이와 계절별 평

균 조성 비율은 매우 유사하게 나타났다(그림 2). 서울과 광주의 PM_{1.0}과 PM_{2.5} 모두 이차무기이온(NO₃⁻, SO₄²⁻, NH₄⁺)과 OC가 질량의 대부분을 차지했다. 계절별 화학적 조성의 경우, 서울과 광주가 여름과 겨울에 유사하게 나타났다.

서울의 경우, PM_{1.0}과 PM_{2.5} 모두 여름에는 OC가 전체 질량농도의 50%에 기여하며 가장 높은 비율을 차지했고, 다음으로 황산염의 비율이 가장 높았다. 반면 여름철 평균 질산염의 비율은 서울과 광주에서 모두 3% 미만으로 다른 계절에 비해 거의 검출되지 않았다. 이러한 특성은 여름철 높은 기온과 광화학 반응에 기인한 것으로 예측되는데, 황산염의 경우 여름철 대기 중 산화제의 생성과 광산화 반응이 활발해짐에 따라 생성이 증가했으며, 질산염의 경우 높은 기온에서 휘발 손실률이 높아져 필터 포집 분석 시 낮은 비율로 나타난 것으로 판단할 수 있다(Russell et al., 1983; Kouyoumdjian and Saliba, 2006; Kim et al., 2008). 서울의 가을과 겨울에는 질산염의 비율이 증가

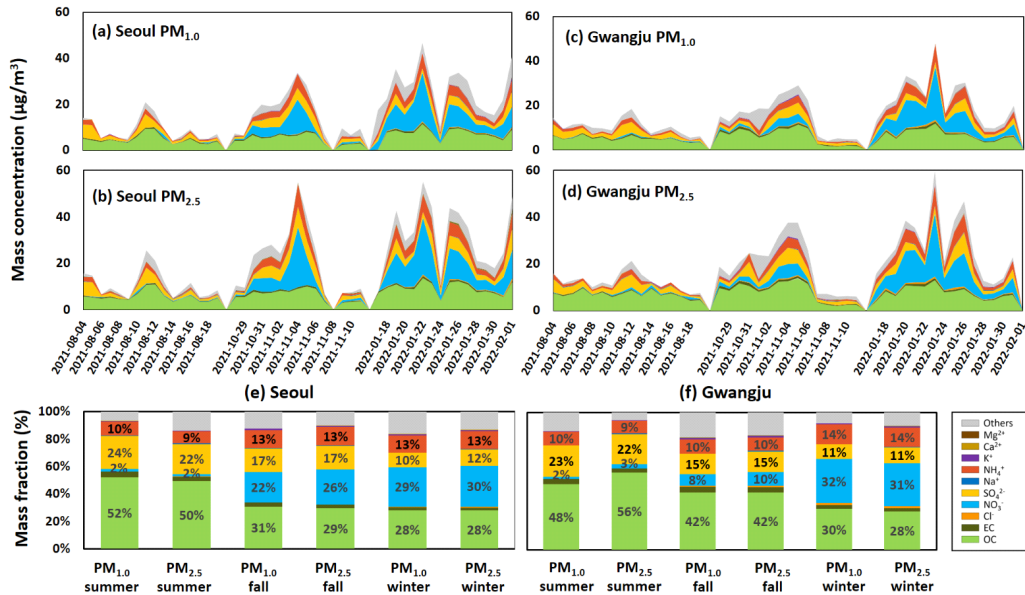


Figure 2. Daily variation of chemical composition and seasonal chemical composition ratios of PM_{1.0} and PM_{2.5} at Seoul and Gwangju.

하여 겨울에는 PM_{1.0}과 PM_{2.5} 모두 전체 성분 중 가장 높은 비율을 차지하였다. 질산염의 농도 및 비율이 증가하는 이유는 인구 밀집 지역에서 겨울철 난방 연소를 비롯한 인위적 연소 오염원의 영향이 커짐과 더불어, 기온이 낮아지고 대기 정체 현상이 증가함에 따라 대기 중 질산염의 2차 생성이 촉진되었기 때문으로 해석하였다 (Moon et al., 2011; Park et al., 2013a). 광주의 여름과 겨울 PM_{1.0}과 PM_{2.5}의 화학조성은 서울과 유사하게 나타났지만, 가을에는 OC의 비율이 PM_{1.0}과 PM_{2.5}에서 모두 42%를 차지하며 서울의 PM_{1.0}(31%) 및 PM_{2.5}(29%)보다 크게 나타났으며, 이차무기이온의 비율은 광주의 PM_{1.0}(33%)과 PM_{2.5}(35%)에서 모두 서울의 PM_{1.0}(52%)과 PM_{2.5}(56%)에 비해 매우 작게 나타났다.

3.2.1 탄소 성분(OC, EC) 특성 분석

OC는 자연적 발생원 및 인위적 발생원에서 직접 배출되거나, 인위적 발생원으로부터 배출되는 VOCs 화합물이 대기 중의 O₃와 같은 산화제와 광·화학 반응을 거치면서 이차적으로 생성된다. EC는 대부분 화석연료 연소 및 생물성 연소와 같은 연소과정을 통해 직접 배

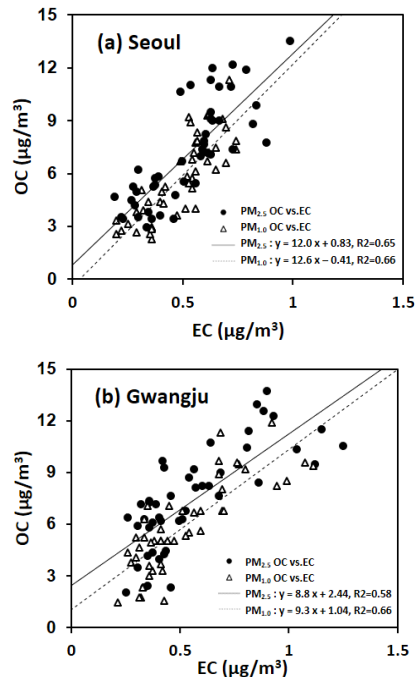


Figure 3. Linear regression of OC and EC in PM_{1.0} and PM_{2.5} at Seoul and Gwangju.

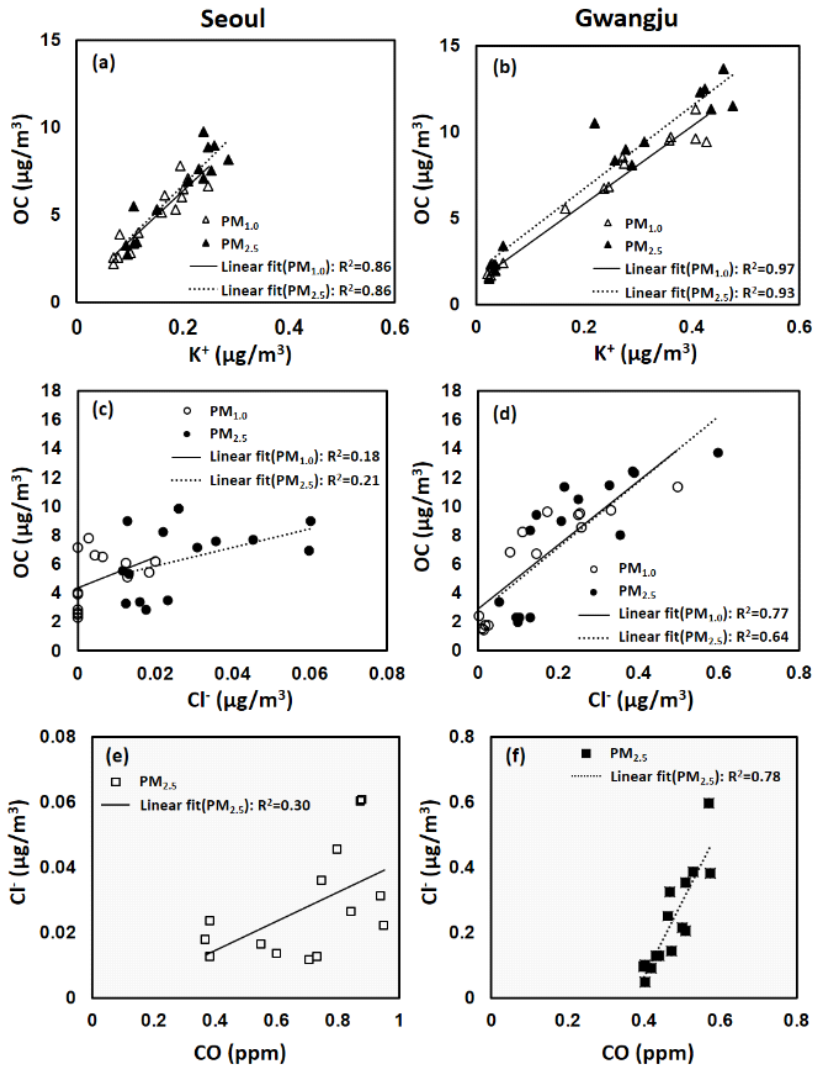


Figure 4. Correlation plot of OC, EC with Cl⁻, K⁺, and Cl⁻ in Seoul and Gwangju in the fall.

출되는 대표적 1차오염물질로서, 인위적 직접 배출에 대한 주요한 지표로 사용되고 있다(Cooke and Wilson, 1996; Streets et al., 2001; He et al., 2004). 이러한 특성에 따라 OC와 EC 사이의 상관관계는 입자 내 탄소성 성분의 발생원 및 생성 원인을 추정하는 지표로 사용된다(Park et al., 2002; Saylor et al., 2006). OC 성분이 1차 배출원에서 주로 배출되는 경우 OC의 주요 생성 원인은 EC와 동일한 인위적 연

소 배출원에 기인한다고 판단할 수 있으며, 이때 OC와 EC의 선형회귀 상관성이 좋게 나타난다. 반면 대기 중 화학반응에 의해 2차적으로 생성되는 OC의 농도가 높을수록 OC와 EC의 상관성은 감소한다.

서울과 광주의 PM_{1.0}과 PM_{2.5} 내 OC와 EC의 관계를 그림 3에 나타내었다. 서울의 PM_{1.0}과 PM_{2.5} 내 OC와 EC의 선형회귀식 기울기는 각각 12.6과 12.0으로, 결정계수는 각각 0.66과 0.65로 나타났다. 광주의 경우

기울기는 각각 9.3과 8.8로, 결정계수는 0.66과 0.58로 나타났다. OC와 EC 사이의 상관성은 서울과 광주에서 모두 좋게 나타났으며, 선형회귀식 기울기는 서울이 광주보다 두드러지게 높았다. 따라서 서울과 광주 모두 OC와 EC의 배출원이 유사하며, 서울에서 광주보다 EC 대비 OC의 비중이 큼을 알 수 있었다. 또한, 두 지역에서 모두 결정계수가 PM_{2.5} 보다 PM_{1.0}에서 높게 나타나 더 작은 입경에서 OC와 EC의 배출원이 유사한 것으로 추정하였다(Lim et al., 2010).

광주에서 가을철 탄소 성분의 농도가 증가한 원인에 광주 내 농촌지역의 영향이 있는지를 확인하기 위해 OC, EC와 K⁺, Cl⁻ 성분 간의 상관성을 확인하였다(그림 4). 일반적으로 K⁺는 생물성 연소, Cl⁻는 농작물 폐기물 혹은 난방으로 인한 석탄 연소의 영향을 주로 반영하는 지표로 사용된다(Andreae, 1983; Park et al., 2013b; Cheng et al., 2014; Ji et al., 2014; Yu et al., 2017). 가을철에 대한 PM_{1.0}과 PM_{2.5} 내

OC와 K⁺의 상관성은 서울의 PM_{1.0}과 PM_{2.5}에서 각각 결정계수가 0.86과 0.86이었고, 광주의 PM_{1.0}과 PM_{2.5}에서는 0.97과 0.93으로 두 지역에서 모두 높았으나 광주에서 더욱 뚜렷한 상관관계를 보였다. OC와 Cl⁻ 간의 상관성은 서울의 PM_{1.0}과 PM_{2.5}에 대하여 각각 결정계수는 0.18과 0.21인 반면에 광주의 PM_{1.0}과 PM_{2.5}에서는 0.77과 0.64로, 서울에 비해 광주에서는 확연히 높은 상관성을 보였다. 또한, 서울과 광주에서 가장 뚜렷하게 차이를 보이는 Cl⁻ 성분에 대하여 불완전 연소의 대표적 추적자인 CO와의 상관성 분석을 시행하였다. 그 결과, 광주에서 CO와 Cl⁻ 간의 상관성이 결정계수 0.78로 서울에 비해 뚜렷하게 나타난 반면, 서울에서는 0.30으로 매우 낮은 상관성을 보였다. 따라서, 본 연구에서 가을철 광주의 PM_{2.5}와 PM_{1.0}에서 OC의 농도가 서울에 비해 크게 나타난 주요 요인은 농촌에서 발생한 바이오매스 및 농작 폐기물 연소로 추정하였다.

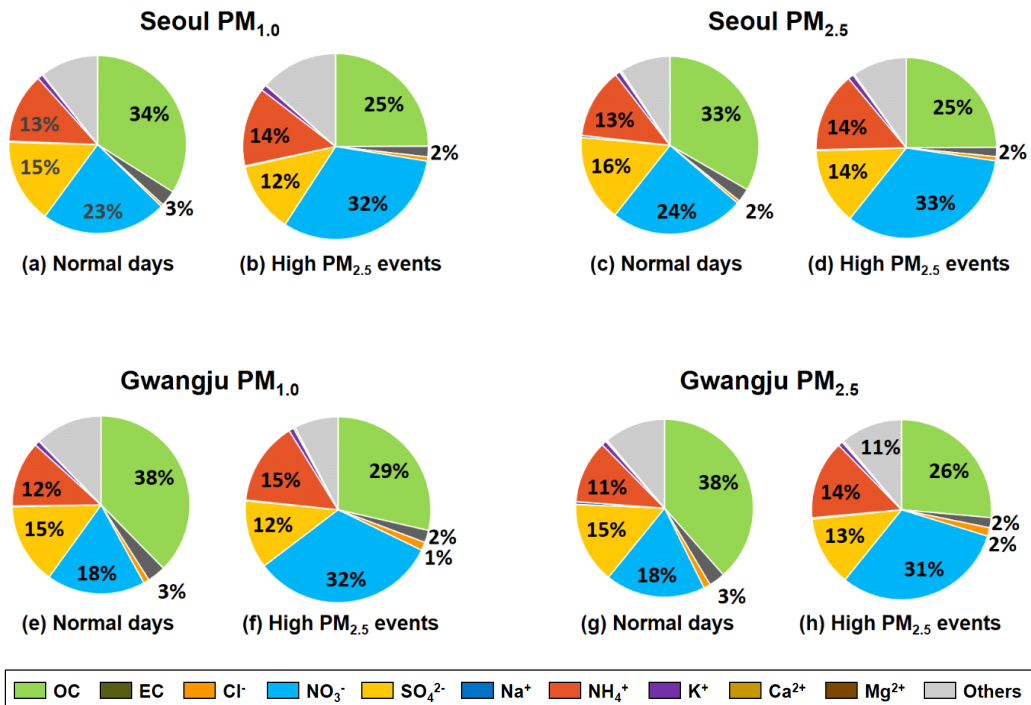


Figure 5. Chemical composition ratios for normal days and high PM_{2.5} Events.

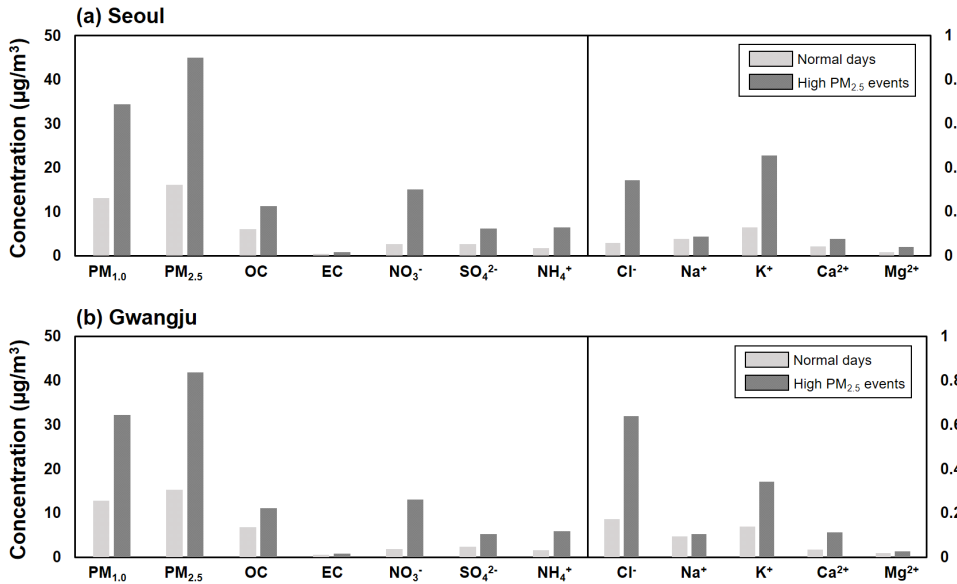


Figure 6. Average concentrations of chemical components for normal days and high PM_{2.5} events.

3.3 PM_{1.0}과 PM_{2.5}의 고농도 사례 특성

3.3.1 고농도 사례 시 화학조성 특성

PM_{2.5}가 일평균 PM_{2.5} 대기환경기준인 35 µg/m³를 초과하는 날을 고농도 사례 발생일로 구분하여 고농도 사례 시 화학적 조성의 특성을 분석하였다. 고농도 사례는 서울에서 가을철 중 2일(11월 4-5일), 겨울철 중 7일(1월 19일, 22-23일, 25-27일, 2월 1일)로 시료 채취 기간 46일 중 9일 발생했고, 광주에서 가을철 중 2일(11월 4-5일), 겨울철 중 5일(1월 20-21일, 23일, 25-26일)로 46일 중 7일 발생하였다. 두 지역의 고농도 사례 발생일은 유사했으며, 고농도 사례 발생 시 PM_{1.0}과 PM_{2.5}의 증가 경향이 함께 나타나는 것을 확인하였다. 서울과 광주에서 고농도 시 화학 조성 분율이 가장 뚜렷하게 증가한 성분은 질산염으로 나타났다. 고농도 시 화학 조성 특성 변화는 PM_{1.0}과 PM_{2.5}에서 매우 유사하게 나타났다(그림 5).

서울에서 고농도 사례 시 증가율이 가장 높은 성분은 Cl⁻과 질산염으로 나타났다(그림 6). Cl⁻는 고농도 시 PM_{1.0}과 PM_{2.5} 내에서 각각 평상시보다 약 7배, 6배 높아졌고, 질산염은 각각 5배, 6배 높아졌다. 광주에서도 고농도 사례 시 질산염과 Cl⁻이 두드러지게 증가했

으나, Cl⁻의 증가율은 PM_{1.0}과 PM_{2.5}에서 각각 평상시에 비해 4배이고, 질산염은 각각 7배로 나타나 서울과는 다른 양상을 보였다. 따라서 3.2.1절에서 제시한 바와 같이 광주의 경우 바이오매스 및 화석연료 연소에 의한 Cl⁻의 배출량이 서울에 비해 높아 평상시 PM_{2.5}의 형성의 주요 발생원으로 작용하는 반면, 고농도 사례 발생 시 주요하게 기여하는 원인은 대기 중 화학반응에 의한 질산염 생성인 것으로 파악된다. 한편, 서울의 경우 광주에 비해 평상시 질산염의 PM_{2.5} 내 분율이 높은 반면, 고농도 사례 발생 시 바이오매스 및 화석연료 연소에 의한 Cl⁻의 배출이 주요하게 작용하는 것으로 판단된다.

3.3.2 기상조건 분석

그림 7에 서울과 광주의 기체상 전구물질(CO, SO₂, NO₂) 농도와 기상 조건(기온, 상대습도, 풍속, 풍향)을 나타냈다. 두 지역에서 모두 CO, NO₂와 PM_{1.0}, PM_{2.5}의 추이가 유사하게 나타났다. PM_{2.5} 질량농도와 NO₂ 간의 상관계수는 서울에서 0.80과 광주에서 0.75로, CO와의 상관계수는 서울에서 0.81로 광주에서 0.64로 높았다. 상대습도와 PM_{1.0} 및 PM_{2.5} 농도와의 상관

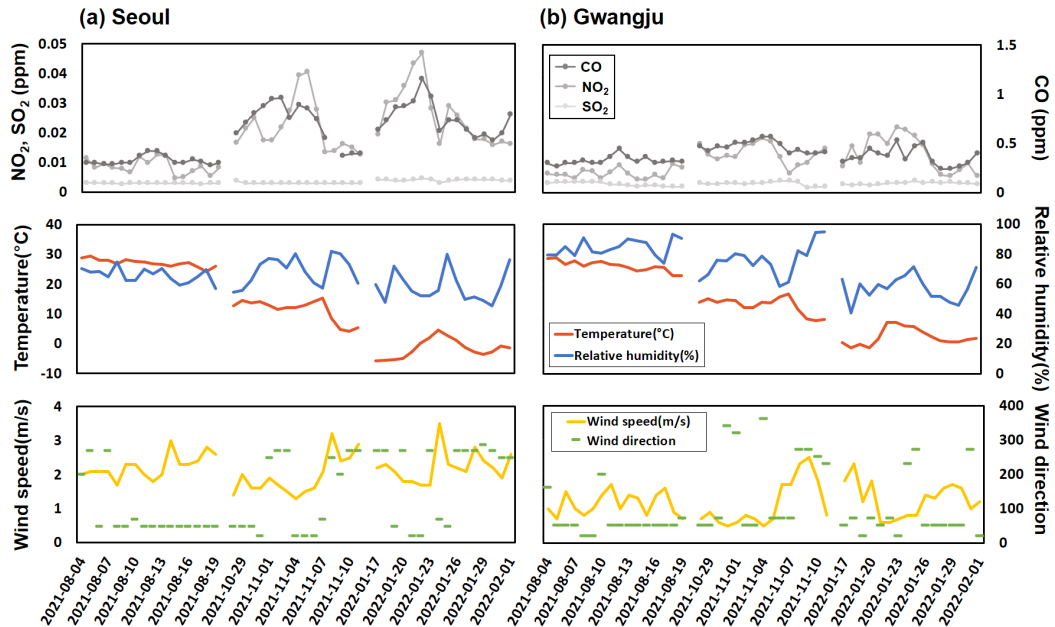


Figure 7. Diurnal pattern of gaseous precursors and weather condition of (a) Seoul and (b) Gwangju.

관계는 계절에 따라 상이하게 나타났는데, 서울의 경우 가을철과 겨울철에, 광주의 경우 겨울철에 상대적으로 높은 양의 상관관계를 보였다. 대기오염물질의 확산이 저해되는 지면 풍속은 2 m/s 이하일 경우인 것으로 알려져 있다(Yu et al., 2018; Sun et al., 2016). 가을철 고농도 발생일에 서울과 광주의 풍속은 각각 1.3과 0.5 m/s로 가을철 측정 기간 중 최저값을 보였다. 겨울철 고농도 발생일에는 서울은 풍속이 다양하고 광주는 낮은 풍속을 보였다. 특히 광주의 고농도 사례 중 가장 높은 농도가 나타난 1월 23일 풍속은 0.7로 겨울철 중 가장 낮게 나타났다. 또한, 광주에서 가을철 고농도 사례 발생 전후 1일 사이의 기간(11월 3일-6일) 동안 일평균 풍향이 50°-360°로 시로 채취 지점의 북-북동쪽에 위치한 농촌지역의 영향을 받은 것으로 파악되며, 가을철 광주의 집중적인 바이오매스 연소 활동은 농촌지역 내 추수 시기 동안의 농작 폐기물 등 농업 관련 연소의 영향이 지배적이었을 것으로 추정된다. 연무 발생에 관한 선행 연구결과에 따르면 연무 발생 시 안정한 기상조건(낮은 풍속, 높은 상대습도, 역전층 형성)에 의한 대기 정체와 2차 생성 반응의 촉진이 주요

한 원인으로 알려져 있다. 또한 안정한 대기 조건에 따른 연무 발생은 대기 정체가 잦고 난방 연소로 인한 1차 배출의 영향이 증가하는 겨울철에 더 두드러진다. 따라서 두 지역 모두 자동차 배출 및 석탄연료 연소 등 연소 활동의 증가에 따른 기체상 전구물질의 배출량 증가가 PM_{2.5} 질량농도에 영향을 미쳤으며, 특히 광주의 경우 농촌 지역에서의 바이오매스 연소와 겨울철 대기 정체 현상으로 인한 PM_{2.5}의 활발한 2차 생성이 고농도 사례 발생의 원인이 되었을 것으로 판단된다.

3.3.3 PSCF 분석

서울과 광주에서의 공기계 이동에 따른 PM_{1.0}과 PM_{2.5} 농도분포 특성을 이해하기 위하여 PM_{1.0}과 PM_{2.5} 질량농도에 대한 계절별 PSCF 분석 결과를 각각 그림 8에 나타내었다. 서울과 광주에 영향을 미치는 궤적은 공통적으로 중국 동북부와 내몽골, 몽골로부터의 장거리 이동 궤적이 주요함을 확인하였다. 반면, PSCF 수치가 높게 나타나는 영역(PSCF value > 0.3)은 서울과 광주에서 다소 차이를 보였다. 서울의 경우 서해와 산동반도 부근에서 가장 높은 수치가 나타났다.

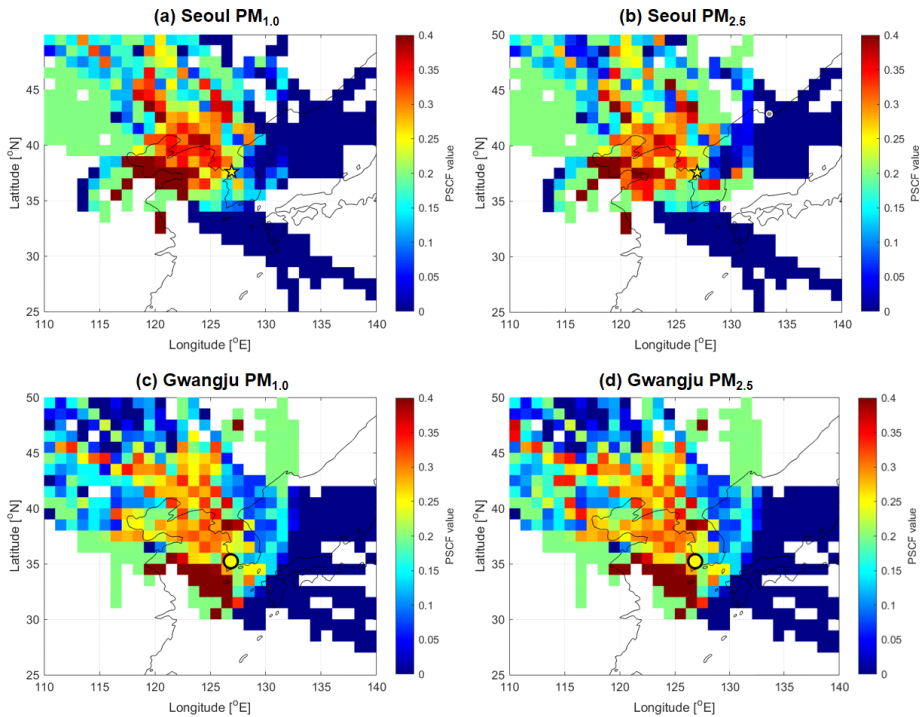


Figure 8 PSCF analysis of PM_{1.0} and PM_{2.5} in Seoul and Gwangju.

광주에서도 서해 부근에서 0.3 이상의 높은 수치가 나타났으나, 가장 높은 수치를 보이는 곳은 중국보다 한반도에 가까운 황해 남쪽 부근인 것으로 분석되었다. 두 지역에서 모두 PM_{1.0}과 PM_{2.5}의 PSCF 결과는 유사하게 나타나, 고농도 PM_{1.0}과 PM_{2.5}를 발생시키는 궤적의 영향에 차이가 없음을 파악하였다.

4. 결론

본 연구에서는 PM_{2.5}와 PM_{1.0}의 발생 특성을 비교하여 파악하기 위해 서울과 광주에서 대기 중 PM_{1.0}과 PM_{2.5}의 시료를 채취하여 화학조성 분석을 실시하였다. 또한, 미세먼지 내 성분 간의 상관관계 분석과 기체상 전구물질 및 이차 무기이온 분석, 역궤적 군집분석을 통해 PM_{1.0}과 PM_{2.5} 발생의 지역 및 계절적 특성을 파악하였다.

PM_{1.0}과 PM_{2.5} 농도는 유사한 범위로 나타났으며, 계절적 추이 역시 유사했다. 서울과 광주의 PM_{1.0}은 각각

PM_{2.5}의 83±16%와 83±7%를 차지하며 매우 높은 기여도를 나타냈으며, PM_{1.0}과 PM_{2.5} 사이의 상관성은 각각 0.95, 0.97로 매우 높았다. 이는 교통, 주거 및 상업 시설, 산업 시설 등의 인위적 오염원이 집중적으로 분포하여 2차 에어로졸 생성이 활발하게 이루어짐에 따라 PM_{2.5}의 농도를 결정하는 요인이 PM_{1.0}인 도심지역의 특성이 나타난 것으로 보인다.

화학적 조성 분석 결과, 서울과 광주에서 공통적으로 OC와 이차 무기이온의 비율이 지배적이고, 고농도 시 질산염의 비율이 가장 두드러지게 증가하였다. 한편, 가을철에는 고농도 사례 시 화학조성이 두 지역에서 다르게 나타났는데, 광주에서 질산염의 증가율이 상대적으로 적고 OC, EC, Cl⁻의 증가율이 두드러졌다. 이와 같은 가을철 OC 농도에 대한 두 지역의 차이를 파악하고자 OC와 K⁺, Cl⁻ 간의 상관분석을 실시한 결과, 가을철 광주에서 농업 활동에 의한 생물성 연소로 인한 1차 배출과 2차 생성이 고농도 OC의 생성에 복합적으로 기여한 것으로 파악되었다.

결론적으로, 서울과 광주에서는 $PM_{1.0}$ 과 $PM_{2.5}$ 모두 공통적으로 인위적 발생원에 의한 2차 생성 오염물질의 영향을 주로 받는 도심지역으로서의 특성을 반영하고 있지만, 광주 지역에서 가을철 농촌활동에 의한 바이오매스 및 폐기물 소각 등의 농촌지역에서 발생하는 야외 연소의 영향을 추가적으로 반영하는 것으로 판단된다. 더불어, 서울과 광주 두 지역에서 모두 $PM_{1.0}$ 과 $PM_{2.5}$ 의 오염 특성이 유사하며, $PM_{2.5}$ 에 대한 $PM_{1.0}$ 의 비율이 80% 이상으로 높게 나타났다. 이는 추가적인 $PM_{1.0}$ 관리 대책 수립 없이도 $PM_{2.5}$ 관리 방안을 개선함으로써 효율적인 $PM_{1.0}$ 의 관리가 가능할 것을 시사한다.

감사의 글

이 연구는 국립환경과학원의 수도권지역 PM1 특성 및 관리방안Ⅲ(NIER-SP2021-336) 과제의 지원을 받아 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

References

- Andreae, M. O. (1983). Soot carbon and excess fine potassium: Long-range transport of combustion-derived aerosols. *Science*, *220* (4602), 1148-1151.
<https://doi.org/10.1126/science.220.4602.1148>
- Cheng, Y., Engling, G., He, K.-b., Duan, F.-k., Du, Z.-y., Ma, Y.-l., Liang, L.-l., Lu, Z.-f., Liu, J.-m., & Zheng, M. (2014). The characteristics of Beijing aerosol during two distinct episodes: Impacts of biomass burning and fireworks. *Environmental Pollution*, *185*, 149-157.
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2013.10.037>
- Cooke, W. F., & Wilson, J. J. (1996). A global black carbon aerosol model. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, *101* (D14), 19395-19409.
<https://doi.org/10.1029/96JD00671>
- Guo, S., Hu, M., Zamora, M. L., Peng, J., Shang, D., Zheng, J., Du, Z., Wu, Z., Shao, M., Zeng, L., Molina, M. J., & Zhang, R. (2014). Elucidating severe urban haze formation in China. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, *111*(49), 17373-17378.
<https://doi.org/doi:10.1073/pnas.1419604111>
- Ham, J., Lee, H. J., Cha, J. W., & Ryoo, S.-B. (2017). Potential source of PM 10, PM 2.5, and OC and EC in Seoul during spring 2016. *Atmosphere*, *27*(1), 41-54.
<https://doi.org/10.14191/Atmos.2017.27.1.041>
- He, Z., Kim, Y. J., Ogunjobi, K. O., Kim, J. E., & Ryu, S. Y. (2004). Carbonaceous aerosol characteristics of PM_{2.5} particles in Northeastern Asia in summer 2002. *Atmospheric Environment*, *38*(12), 1795-1800.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2003.12.023>
- Ji, D., Li, L., Wang, Y., Zhang, J., Cheng, M., Sun, Y., Liu, Z., Wang, L., Tang, G., Hu, B., Chao, N., Wen, T., & Miao, H. (2014). The heaviest particulate air-pollution episodes occurred in northern China in January, 2013: Insights gained from observation. *Atmospheric Environment*, *92*, 546-556.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.04.048>
- Kang, B.-W., Kang, C.-M., Lee, H.-S., & SunWoo, Y. (2008). Identification of potential source locations of PM 2.5 in Seoul using hybrid-receptor models. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, *24*(6), 662-673.
- Kim, Y.-J., Jung, S.-W., Kang, C.-M., Ma, Y.-I., Kim, S.-H., Woo, J.-H., & SunWoo, Y. (2008). Characteristics of Nitrate (NO₃-) Volatilization from Fine Particles (PM 2.5) at 4 Measurement Sites in Seoul. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, *24*(5), 613-621.
- Kouyoumdjian, H., & Saliba, N. A. (2006). Mass concentration and ion composition of coarse and fine particles in an urban area in Beirut: effect of calcium carbonate on the absorption of nitric and sulfuric acids and the depletion of chloride. *Atmos. Chem. Phys.*, *6*(7), 1865-1877.
<https://doi.org/10.5194/acp-6-1865-2006>
- Lee, Y.-K., Lee, K.-J., Lee, J.-S., & Shin, E.-S. (2012). Regional Characteristics of Particle Size Distribution of PM 10. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, *28*(6), 666-674.

- Li, Y., Zhao, H., & Wu, Y. (2015). Characteristics of Particulate Matter during Haze and Fog (Pollution) Episodes over Northeast China, Autumn 2013. *Aerosol and Air Quality Research*, *15*(3), 853-864.
<https://doi.org/10.4209/aaqr.2014.08.0158>
- Liang, C.-S., Duan, F.-K., He, K.-B., & Ma, Y.-L. (2016). Review on recent progress in observations, source identifications and countermeasures of PM_{2.5}. *Environment International*, *86*, 150-170.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.envint.2015.10.016>
- Lim, S.-H., Lee, M.-H., & Kang, K.-S. (2010). Seasonal Variations of OC and EC in PM₁₀, PM_{2.5} and PM_{1.0} at Gosan Superstation on Jeju Island. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, *26*(5), 567-580.
- Lucey, D., Hadjiiski, L., Hopke, P. K., Scudlark, J. R., & Church, T. (2001). Identification of sources of pollutants in precipitation measured at the mid-Atlantic US coast using potential source contribution function (PSCF). *Atmospheric Environment*, *35*(23), 3979-3986.
[https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(01\)00185-6](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S1352-2310(01)00185-6)
- Lundgren, D. A., Hlaing, D. N., Rich, T. A., & Marple, V. A. (1996). PM₁₀/PM_{2.5}/PM₁ Data from a Trichotomous Sampler. *Aerosol Science and Technology*, *25*(3), 353-357.
<https://doi.org/10.1080/02786829608965401>
- Moon, K.-J., Park, S.-M., Park, J.-S., Song, I.-H., Jang, S.-K., Kim, J.-C., & Lee, S.-J. (2011). Chemical Characteristics and Source Apportionment of PM_{2.5} in Seoul Metropolitan Area in 2010. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, *27*(6), 711-722.
- Park, S.-S., Jung, S.-A., Gong, B.-J., Cho, S.-Y., & Lee, S.-J. (2013a). Characteristics of PM_{2.5} haze episodes revealed by highly time-resolved measurements at an air pollution monitoring Supersite in Korea. *Aerosol and Air Quality Research*, *13*(3), 957-976.
<https://doi.org/10.4209/aaqr.2012.07.0184>
- Park, S.-S., Sim, S. Y., Bae, M.-S., & Schauer, J. J. (2013b). Size distribution of water-soluble components in particulate matter emitted from biomass burning. *Atmospheric Environment*, *73*, 62-72.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.03.025>
- Park, S. S., & Kim, Y. J. (2004). PM_{2.5} particles and size-segregated ionic species measured during fall season in three urban sites in Korea. *Atmospheric Environment*, *38*(10), 1459-1471.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2003.12.004>
- Park, S. S., Kim, Y. J., & Fung, K. (2002). PM_{2.5} carbon measurements in two urban areas: Seoul and Kwangju, Korea. *Atmospheric Environment*, *36*(8), 1287-1297.
[https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(01\)00552-0](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S1352-2310(01)00552-0)
- Pérez, N., Pey, J., Querol, X., Alastuey, A., López, J. M., & Viana, M. (2008). Partitioning of major and trace components in PM₁₀-PM_{2.5}-PM₁ at an urban site in Southern Europe. *Atmospheric Environment*, *42*(8), 1677-1691.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2007.11.034>
- Rattanavaraha, W., Canagaratna, M. R.,

- Budisulistiorini, S. H., Croteau, P. L., Baumann, K., Canonaco, F., Prevot, A. S. H., Edgerton, E. S., Zhang, Z., Jayne, J. T., Worsnop, D. R., Gold, A., Shaw, S. L., & Surratt, J. D. (2017). Source apportionment of submicron organic aerosol collected from Atlanta, Georgia, during 2014–2015 using the aerosol chemical speciation monitor (ACSM). *Atmospheric Environment*, *167*, 389–402.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.07.055>
- Russell, A. G., McRae, G. J., & Cass, G. R. (1983). Mathematical modeling of the formation and transport of ammonium nitrate aerosol. *Atmospheric Environment* (1967), *17*(5), 949–964.
[https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0004-6981\(83\)90247-0](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0004-6981(83)90247-0)
- Saylor, R. D., Edgerton, E. S., & Hartsell, B. E. (2006). Linear regression techniques for use in the EC tracer method of secondary organic aerosol estimation. *Atmospheric Environment*, *40*(39), 7546–7556.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2006.07.018>
- Strak, M., Janssen, N. A., Godri, K. J., Gosens, I., Mudway, I. S., Cassee, F. R., Lebret, E., Kelly, F. J., Harrison, R. M., & Brunekreef, B. (2012). Respiratory health effects of airborne particulate matter: the role of particle size, composition, and oxidative potential—the RAPTES project. *Environmental health perspectives*, *120*(8), 1183–1189.
<https://doi.org/10.1289/ehp.1104389>
- Streets, D. G., Gupta, S., Waldhoff, S. T., Wang, M. Q., Bond, T. C., & Yiyun, B. (2001). Black carbon emissions in China. *Atmospheric Environment*, *35*(25), 4281–4296.
[https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(01\)00179-0](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S1352-2310(01)00179-0)
- Tai, A. P. K., Mickley, L. J., & Jacob, D. J. (2010). Correlations between fine particulate matter (PM_{2.5}) and meteorological variables in the United States: Implications for the sensitivity of PM_{2.5} to climate change. *Atmospheric Environment*, *44*(32), 3976–3984.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2010.06.060>
- Wang, G., Xu, Y., Huang, L., Wang, K., Shen, H., & Li, Z. (2021). Pollution characteristics and toxic effects of PM_{1.0} and PM_{2.5} in Harbin, China. *Environmental Science and Pollution Research*, *28*(11), 13229–13242.
<https://doi.org/10.1007/s11356-020-11510-8>
- Yang, Y., Liu, X., Qu, Y., Wang, J., An, J., Zhang, Y., & Zhang, F. (2015). Formation mechanism of continuous extreme haze episodes in the megacity Beijing, China, in January 2013. *Atmospheric Research*, *155*, 192–203.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2014.11.023>
- Yeo, M. J., & Kim, Y. P. (2019). Trends of the PM₁₀ concentrations and high PM₁₀ concentration cases in Korea. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, *35*(2), 249–264.
<https://doi.org/10.5572/KOSAE.2019.35.2.249>
- Yu, G.-H., Park, S.-S., Jung, S. A., Jo, M. R., Lim, Y. J., Shin, H. J., Lee, S. B., & Ghim, Y. S. (2018). Investigation on characteristics of high PM_{2.5} pollution occurred during October 2015 in Gwangju. *Journal of Korean Society for Atmospheric*

- Environment*, 34(4), 567-587.
- Yu, G.-H., Zhang, Y., Cho, S.-Y., & Park, S. (2017). Influence of haze pollution on water-soluble chemical species in PM_{2.5} and size-resolved particles at an urban site during fall. *Journal of Environmental Sciences*, 57, 370-382.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jes.2016.10.018>
- Zeng, Y., & Hopke, P. K. (1989). A study of the sources of acid precipitation in Ontario, Canada. *Atmospheric Environment* (1967), 23(7), 1499-1509.
[https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0004-6981\(89\)90409-5](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0004-6981(89)90409-5)
- Zhang, J., Yang, L., Mellouki, A., Wen, L., Yang, Y., Gao, Y., Jiang, P., Li, Y., & Wang, W. (2016). Chemical characteristics and influence of continental outflow on PM_{1.0}, PM_{2.5} and PM₁₀ measured at Tuoji island in the Bohai Sea. *Science of The Total Environment*, 573, 699-706.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.08.146>
- Zhang, R., Wang, G., Guo, S., Zamora, M. L., Ying, Q., Lin, Y., Wang, W., Hu, M., & Wang, Y. (2015). Formation of urban fine particulate matter. *Chemical reviews*, 115(10), 3803-3855.
<https://doi.org/10.1021/acs.chemrev.5b00067>
- Zhang, Y., Lang, J., Cheng, S., Li, S., Zhou, Y., Chen, D., Zhang, H., & Wang, H. (2018). Chemical composition and sources of PM₁ and PM_{2.5} in Beijing in autumn. *Science of The Total Environment*, 630, 72-82.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.02.151>