Check for updates

Journal of Korean Society for Atmospheric Environment
Vol. 36, No. 4, August 2020, pp. 419-441
https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.4.419
p-ISSN 1598-7132, e-ISSN 2383-5346

총 설

국내 대류권 광화학 오존 연구의 현황과 방향

Current Status and Future Directions of Tropospheric Photochemical Ozone Studies in Korea

이강웅*, **박정후**[1)], **김대곤**[1)], **고명신**, **이미혜**[2)], **한진석**[3)], **김조천**[4)]
한국외국어대학교 환경학과, [1)]국립환경과학원 기후대기연구부 대기환경연구과,
[2)]고려대학교 지구환경과학과, [3)]안양대학교 환경에너지공학과,
[4)]건국대학교 사회환경공학부

접수일 2020년 7월 27일
수정일 2020년 8월 12일
채택일 2020년 8월 18일

Received 27 July 2020
Revised 12 August 2020
Accepted 18 August 2020

***Corresponding author**
Tel : +82-(0)31-330-4273
E-mail : gwlee@hufs.ac.kr

Gangwoong Lee*, **Jeong-Hoo Park**[1)], **Dai-Gon Kim**[1)], **Myeong Shin Koh**, **Meehye Lee**[2)], **Jin-Seok Han**[3)], **Jo-Chun Kim**[4)]
Department of Environmental Science, Hankuk University of Foreign Studies, Yongin, Republic of Korea

[1)]*Air Quality Research Division, National Institute of Environmental Research, Incheon, Republic of Korea*
[2)]*Department of Earth and Environmental Science, Korea University, Seoul, Republic of Korea*
[3)]*Department of Environmental and Energy Engineering, Anyang University, Anyang, Republic of Korea*
[4)]*Department of Civil Environmental Engineering, Konkuk University, Seoul, Republic of Korea*

Abstract Ozone is a critical chemical species for sustaining natural oxidizing power of atmosphere, as it is the most abundant oxidant species, as well as the precursor of most strong oxidants, such as OH and NO_3 radicals in the troposphere. Although it plays an important role in reducing lifetimes of various pollutants in troposphere, it is also regarded as a criteria pollutant due to its adverse impact on human and ecological health. Long-term observations showed significant and rapidly increasing tends of tropospheric ozone in Korea. Ozone is the fast-rising public concern in air quality next to traditional PM pollution. This review summarizes the studies from the past 20 years associated with photochemical ozone in Korea, covering issues of long-term ozone trends analysis, its precursor emission inventories, biogenic VOCs emission, impact on the ecosystem, background ozone and long-range transport, health impacts, climate feedback, aerosol surface effects for HO_2 heterogeneous reaction and radiation budget, radicals budgets and their implications. Considering the current status of scientific findings, advance of knowledge, and challenge of recent ozone studies, this review focuses on delivering future directions of ozone studies in Korea. Present recommendations for the future ozone R&D include: 1) continuous promotion of basic science for solving fundamental aspects of ozone productions and transport, 2) strengthening specifically the regional studies for ozone unattained areas, 3) developing collaborative implementation plan for multi-ministerial R&D platforms, 4) extension and outreach of international research collaboration, including long-term intensive field campaigns, 5) multi-pollutant approach and partnership with PM studies for practical and effective framework of R&D strategies and capabilities with limited resources.

Key words: Ozone, Status, Trends, R&D, Pollution

1. 서 론

대류권에서 오존은 가장 농도가 높은 산화제이면서도, OH, NO_3와 같은 강산화 반응기의 생성에 필수적인 전구물질이다. 인간의 영향이 지금과 비교하여 현저히 작았던 1850년대부터 1900년초까지 유럽에서 관측된 오존농도는 17~23 ppbv으로 현재와 비교하면 매우 낮은 수준이지만, 청정 해양지역을 제외하고는

1950년대 이후 배경지역의 오존 평균농도가 23~46 ppbv로 상당히 증가된 상태이다(Vingarzan, 2004). 대류권 오존의 대부분은 지표근처에서 질소산화물과 휘발성유기화합물이 관여하는 일련의 광화학적 반응을 통해 생성되기 때문에 인간활동이 많은 지역의 오존 농도는 배경지역보다 높은 수준으로 존재하며 건강 위해성이 높아서, 미국의 경우 1979년에 처음으로 1시간 평균농도가 120 ppbv를 넘지 않도록 하는 오존 대기질기준을 제정하고, 2015년에는 8시간 평균값의 연간 4번째 최고위 값이 3년 연속으로 70 ppbv를 넘지 않도록 하는 기준을 새로이 시행 중에 있다(Kim *et al.*, 2019; Mccarthy and Lattanzio, 2017). 유럽은 8시간 오존 평균의 하루 중 최대농도가 120 μg/m^3 (56 ppbv)를 3년 동안 연 평균 25일을 넘어서는 안되는 것을 기준으로 하고 있다(European Parliament, 2008). 우리나라 오존의 대기환경기준은 2015년 이후에 8시간 평균치가 60 ppbv 이하(99백분위수), 1시간 평균치는 100 ppbv 이하(999천분위수)를 만족해야 해서 미국, 유럽과 비교하여 가장 엄격한 기준을 가지고 있다(Park *et al.*, 2016).

이와 같이 엄격한 기준과 달리 우리나라는 대부분 지역에서 특히 봄과 여름철에 오존의 환경 기준을 초과하고 있으며 이에 대한 대책이 시급히 요구되는 상황이다. 더욱 우려되는 사실은 최근 전 세계적인 자료의 분석을 통해 미국과 유럽의 경우 오존의 농도가 1990년대 중반 이후에 대도시 지역을 포함한 대부분의 지역에서 꾸준히 감소하고 있는 경향이나, 국내 오존은 세계에서 가장 빠른 증가를 나타내고 있음이다(Chang *et al.*, 2017). 특히 국내 오존 증가의 기울기가 다른 지역보다 매우 높은 것뿐만 아니라, 증가 추이 분석 신뢰도가 다른 지역보다 높아서 오존의 증가 증거가 확실한 것이 특징이다. 이와 같은 국내 오존농도의 빠른 증가 추이는 일 평균보다 일중 8시간 최대 농도에서 더욱 뚜렷이 나타나고 있어 과학적 원인규명과 적절한 대응이 시급하다(Kim *et al.*, 2018b).

기준농도 이상의 오존에 짧은 시간 노출되어도 기관지에 급성악화를 유발하고, 심할 경우 사망에 이르러 오존농도 증가가 응급실 방문과 실제로 밀접한 상관성을 갖고 있음이 보고되고 있다(Turner *et al.*, 2016; Lee *et al.*, 1999). 미국의 경우, 적절한 오존 대책이 수반되고 농도를 60 ppbv 이하로 개선할 경우에 8000명 가까운 조기사망을 예방할 수 있을 것으로 추정하고 있다. 미세먼지와 비교하여 오존의 위해성이 상대적으로 작은 것으로 알려져 있지만, 중국 등 연구에서도 오존에 짧은 시간에 노출되어도 심혈관장애에 따른 사망률이 증가하는 것이 보고되고 있다(Yin *et al.*, 2017). 연구 결과와 위해성 관점에서 미세먼지보다 상대적으로 관심이 부족한 오존의 인체 위해성 분야와 다르게, 식생을 포함한 생태 피해는 매우 광범위하고 중국, 인도 한국 등 아시아 지역에서는 이미 한계치를 넘어 심각한 수준인 것으로 파악되고 있다(Agathokleous *et al.*, 2018; Fleming *et al.*, 2018).

오존은 식물의 기공을 통해 잎으로 확산되어 들어가 강력한 산화제로 작용하면서 광합성과 생리학적 기능을 감소시키며 식물의 영양물질 생산을 줄이고 성장을 저해하여, 특히 농작물의 품질을 현저히 저해하고 생산성을 떨어뜨리는 결정적인 영향을 준다(Mills *et al.*, 2018; Avnery *et al.*, 2011a). 오존이 곡물 등 식물의 생장에 심각한 위해성을 지시하는 지표로 유럽과 미국에서는 식물에 대한 영향 임계값 40 ppbv가 넘는 오존농도의 누적 시간(AOT40)과 60 ppb 이상 노출량의 합계인 SUM60 등을 사용하고 있다. 일반적으로 AOT 지표의 경우 농작물은 3 ppm-h, 산림은 5 ppm-h를 넘지 않는 것을 기준으로 하고 있다(Van Dingenen *et al.*, 2009). Avnery *et al.* (2011b)은 2000년 기준 2030년까지 다양한 기후변화 시나리오를 대입하여 전 세계적으로 오존의 영향으로, 보리는 4~26%, 콩은 9.5%~19%, 옥수수는 2.5~8.7%의 생산 감소가 발생할 것으로 추정하였다. 특히 아시아 지역은 식량 생산 변동에 대한 민감도가 크고 오존의 농도가 유럽, 북미 지역과 달리 계속 증가하고 있어서 오존에 따른 작물 감소 피해가 훨씬 확대될 것으로 추정되지만, 곡물 종과 환경 특성에 따른 장기적이고 정량

적인 노출-반응 연구가 미흡하다(Agathokleous *et al.*, 2018).

대류권 광화학 오존의 형성에는 햇빛과 함께 질소산화물(NO_x)과 휘발성유기화합물(VOCs)이 필수적이기 때문에, 단순하게 보면 이들 전구물질의 배출 변화에 따라 오존의 농도가 선형적으로 연계되어 변화해야 하지만, 다수의 연구에서 전구물질 배출변화와 오존농도 간에 비선형적 관계가 있으며 전구물질의 배출감소가 오존의 감소를 항상 수반하지는 않는 것으로 보고하고 있다(Itahashi *et al.*, 2015; Vellingiri *et al.*, 2015). 특히 NO 배출원이 풍부한 도심지역의 경우 NO의 배출감소는 오존 적정반응을 줄여서 오히려 오존의 증가를 유발한다(Han *et al.*, 2013; Cohan *et al.*, 2005; Mannschreck *et al.*, 2004). 이와 같은 이유로 일반적으로 도심에서는 오존의 농도가 VOCs에 민감하게 조정되어서 NO_x보다는 VOCs의 관리가 더 효과적인 것으로 알려져 있으나, 뉴욕과 서울과 같은 대도시 지역에서 점차 VOCs 제한조건의 환경이 확대되는 것으로 나타나, 이들 도시에서 오존관리의 최적화를 위해서는 NO_x의 제어가 현재보다 더욱 효과적이 될 것으로 전지구화학모형과 위성관측을 이용한 최근 연구에서 추정하고 있다(Jin *et al.*, 2017). 전지구적으로 인위적인 VOCs 배출원보다 발생량이 많은 생물성 휘발성유기화합물(BVOCs) 국내 배출현황의 정확한 파악도 국내 오존관리에 매우 중요한 요건이다(Sanderson *et al.*, 2003).

본 연구의 목적은 지금까지 국내외에서 발표된 연구논문을 기반으로 자연적 배출원을 포함한 오존 전구물질들과 오존의 국내 농도변화와 배출변화 추이를 분석하고, 이들의 배경농도 변화 또는 장거리 이동기여율, 오존이 미치는 인체 및 생태학적 영향, 미세먼지와 오존의 연관 관계, 기후변화와 상관성을 파악하고자 한다. 이를 통해 세계적으로 가장 높은 수준의 오존 증가율을 보이고 있는 국내 오존문제의 시급한 관리와 정책을 위해 필요한 과학적 연구의 방향을 제시하고자 한다.

2. 국내 오존연구 현황

Google Scholar와 Web of Science를 이용하여 국내 오존을 대상으로 지난 20년간 발표된 국내 및 해외(SCI, SCOPUS, KCI) 논문을 분석한 결과, 오존 연구는 2000년대 초반부터 본격적인 태동이 된 것으로 볼 수 있다. 2000년대 초반에 국내외를 모두 포함해서 연간 수 편에 불과하던 오존 연구논문이 2010년 초반까지 연 20편이 넘는 수준까지 증가하다가, 2010년 중반 이후 오히려 감소하거나 정체되는 경향이 뚜렷하다(그림 1-A). 2000년대 중반까지는 전체 편수에서 국내 발표 논문수가 다수를 차지하였으나 2013년부터 해외발표 논문의 수가 국내발표 논문보다 많아지는 추세를 알 수 있다. 같은 그림에서 2000년대 중반까지 국내외에서 발표된 오존 연구는 SCI와 SCOPUS에 등재된 저널에 발표된 입자상연구와 비슷한 수준을 유지했으나, 그 이후에는 해외발표 입자상물질의 연구가 국내외를 포함한 전체 오존 연구 결과보다 압도적으로 많아지게 되었다. 특히 2010년대 초반 국내에서 입자상오염물질에 대한 관심과 연구 지원이 두드러지게 많아지면서 입자상관련 발표논문이 기하급수적으로 증가한 것을 볼 수 있다. 해외 유력 저널에 실린 논문을 기준으로 국내 오존 연구는 입자상연구의 1/5 수준에 불과할 뿐만 아니라, 가까운 중국의 경우 2019년에만 해외저널에 출판된 논문의 수가 400여 편이 넘어 우리나라의 20배에 가까운 연구 결과를 도출하고 있는 것을 고려할 때, 오존 연구에 대한 연구자들의 관심과 국가적 지원이 시급히 확대될 필요가 있다.

2000년 이후 국내의 오존관련 논문을 분야별로 비교해 보면 오존의 현황 분석을 위한 측정 및 분석분야의 논문이 가장 많고(43.4%), 확산 및 반응(22.9%), 실태 및 관리(18.4%), 위해성(8%), 실내대기질(3.8%), 기후변화(2.4%), 방지기술분야(1.0%) 순이다(그림 1-B). 효율적인 오존저감 대책마련을 위해서는 과학적인 이해가 우선되어야 하기 때문에 관측과 모델을 이용한 연구가 많은 부분을 차지하는 것은 다행스러운 일이지만, 연구 내용과 도출 결과들을 보면 심

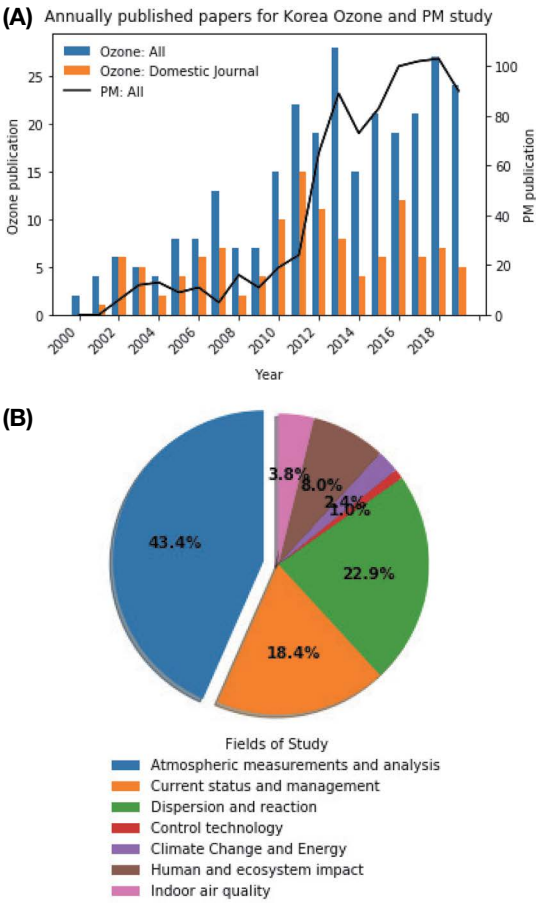

Fig. 1. Scientific publication statistics for Ozone study for Korean; (A) annual publication trends for Ozone and PM studies, (B) proportions of research fields and topics in Korea Ozone studies.

층적인 원인 분석보다는 단순한 현황분석 연구가 많은 것은 앞으로 개선될 여지가 많이 있다. 특히 위해성 및 기후변화와 관련된 연구가 전체의 오존 연구의 10.4%밖에 차지하지 않는 것은 우리나라 오존 연구의 편향성을 보여주는 단적인 예이며, 아직까지 기후변화와 국민 건강보호를 위한 기초연구가 부족한 상황을 잘 보여주고 있다.

2.1 추이 분석

국내 오존농도 변화 추이에 대한 분석은 상당히 지속적이고 다양하게 수행되었다(Jeong *et al.*, 2020; Kim *et al.*, 2018b; Shin *et al.*, 2017; An *et al.*, 2015; Kim and Yeo, 2013; Ghim and Kim, 2013; Park, 2010; Oh and Kim, 2002). 지난 20여 년간 국내의 오존은 2001~2008 인천지역을 제외하고는 거의 모든 지역에서 증가하는 것으로 나타나고 있다(표 1). 가장 많은 분석이 이루어진 서울의 오존 1시간 평균의 연 변화는 0.6~0.76 ppbv/yr로 다른 연구들에서도 비교적 균일한 결과를 보여주고 있다. 전반적으로 도심지역에서 1시간 오존농도의 연 평균 변화는 0.4~1.0 ppbv/yr 수준으로 나타났으나 8시간 평균 최대 농도의 연 평균 변화는 1.2~1.4 ppbv/yr로 높게 나타났다. 인체와 생태 위해성에 밀접한 관련이 있는 8시간 평균의 일 오존 최대 농도의 변화가 훨씬 빠르게 나타나고 있는 점은 오존관리에 있어서 시사하는 바가 매우 큰 것으로 이에 대한 집중적인 분석연구가 앞으로 수반되어야 할 것이다. 1950년대 이후에 2010년까지 북반구 여러 지역에서 관측한 오존 증가 양상은 0.1~0.5 ppbv/yr 수준으로 1950년 이후에 농도가 약 100% 증가하고, 1970년 이후에는 9~55% 증가한 것으로 분석되고 있다. 하지만 유럽의 경우 1990년대부터 오존의 증가가 더디어지고 2000년대부터 정체 후 이제는 거의 모든 지역에서 오존이 감소 추세이다(Cooper *et al.*, 2014). 미국 동부에서는 오존이 여름철에 감소하나 겨울철에 증가된 반면 서부에서는 봄철에 오존의 증가가 2010년대 나타났으나, 현재는 거의 모든 지역에서 오존감소가 관측되고 있다(Chang *et al.*, 2017). 최근 20년간 대부분의 선진국가에서는 오존이 감소하고 있는 상태이나, 국내에서 나타나는 오존 증가 추세가 세계적으로 가장 높은 수준일 뿐만 아니라 증가 기울기의 유의성이 가장 높은 수준이어서 국내 오존문제의 심각성과 시급성을 반영하고 있다.

국내 오존변화의 또 다른 특징은 2010년 이후 오존 증가 추이가 그 이전보다 훨씬 빨라져, 2010년 이후의 농도 증가는 그 전 10년 기간보다 증가폭이 50% 정도 높아진 것으로 나타났다(Jeong *et al.*, 2020). 오존 증가는 관측 지점과 시점에 따라 차이가 크게 나

Table 1. Long-term trends of yearly O_3 in Korea from the peer-reviewed literature since 2000.

Region	Yearly trends		Study period	Criteria	Reference	Location type
	ppb/yr	%/yr		Species		
Seoul	0.76	4.5	1993~2000	Hourly O_3	Oh and Kim, 2002	Urban
Seoul		3.3	2002~2010	Hourly O_3	Kim and Yeo, 2013	Urban
SMA	0.65		2000~2016	Hourly O_3	Kim *et al.*, 2018	Urban
	0.38			Hourly O_3		Road Side
	0.15			Hourly O_3		Rural
	0.70			Hourly O_3		Background
SMA	1.4		2003~2011	8-hr max O_3	Ghim and Kim, 2013	Urban
SMA	1.2		2000~2016	8-hr max O_3	Kim *et al.*, 2018	Urban
Busan	0.95	5.4	1993~2000	Hourly O_3	Oh and Kim, 2002	Urban
Daegu	0.54	7.2	1993~2000	Hourly O_3	Oh and Kim, 2002	Urban
Jinju	1.7	7.1	2004~2008	Hourly O_3	Park, 2010	Urban
Suwon	0.46		1991~2012	Hourly O_3	An *et al.*, 2015	Urban
Incheon	−0.04		2002~2012	Hourly O_3	Shin *et al.*, 2017	Urban
Chungcheong	0.6		2003~2011	8-hr max O_3	Ghim and Kim, 2013	Urban
Honam	0.4					Urban
Yeongnam	0.4					Urban
Gangwon	1.8					Urban
Jeju	1.6					Urban
Jeju	0.49		2000~2016	Hourly O_3	Kim *et al.*, 2018	Urban
	0.09		2000~2016	Hourly O_3		Background
Nationwide	0.03~1.55		2002~2012	Hourly O_3	Shin *et al.*, 2017	Urban
Nationwide	0.70		2001~2009	Hourly O_3	Jeong *et al.*, 2020	All sites
	1.13		2010~2017	Hourly O_3		
	0.76		2001~2017	Hourly O_3		

SMA: Seoul Metropolitan Area

타나고 있으며 전반적으로 도시지역이 농도 증가의 기울기가 가장 크고 배경이나 교외지역의 경우 증가 속도가 상대적으로 작게 나타났다(Kim *et al.*, 2018b; Kim and Kwon, 2004). 다양한 권역별, 관측망 특성별 오존변화는 관측 지점에 인접한 지역의 개발과 환경 변화 특성에 많이 좌우되지만, 오존의 직접적인 결정 인자로 오존 전구물질들(NO_x, VOCs)의 배출 변화가 가장 중요한 것으로 알려져 있다. 표 1에서 인천과 진주 지역 오존의 변화 양상이 주변 지역과 큰 차이를 주는 이유의 대부분이 오존 전구물질의 국소적인 배출 변화와 관측지점의 이동 등과 연관성이 있는 것으로 추정되지만, 추세선의 불확도가 커서 심층적인 분석이 어렵다(Shin *et al.*, 2017; Park, 2010). 흥미로운 것은 서울의 오존농도가 기상요소에 가장 크게 좌우되었으며, 기상요소를 배제할 경우 국지적인 전구물질의 배출 변화보다 장거리 수송에 의한 배경농도 증가에 의한 영향을 받을 것으로 분석되기도 하였다(Nguyen *et al.*, 2017; Kim and Yeo, 2013; Shin *et al.*, 2012). 하지만 이와 같은 지역별 추이와 기여도는 권역에 맞는 오존의 거동에 변화를 주는 다양한 요인들의 종합적이고 심층적 분석이 이루어진 후, 좀 더 정교하게 분석될 필요가 있다.

2.2 인위적 전구물질 배출

2차 생성 미세먼지의 전구물질이기도 하며 오존 전구물질인 NO_x와 VOCs는 최근의 국가적인 미세먼지 관리정책의 엄격한 시행에 따라 인위적 배출량과 대기 중 농도는 전반적으로 감소 추세에 있다(Kim *et*

al., 2018b). 특히 NO_x는 산업시설과 자동차 배출에 대한 광범위하고 강력한 규제관리를 통해 현저한 배출감소를 달성하였고, 실제로 대기 중 농도도 전국적으로 감소하고 있다(An *et al.*, 2015; Kim and Yeo, 2013). 하지만 NO_x와 달리 NO_2의 경우 뚜렷한 농도 감소가 아직 관측되어지지 않고 있다. NO_2의 경우 권역이나 지역에 따라 농도의 차이가 크고 오존($r^2 > 0.90$)과 달리 연간 NO_2 변화 기울기의 신뢰도도 크게 낮아($r^2 < 0.4$), 아직 유의성 있는 추이와 경향성을 판단하기는 이르다. NO_x의 농도 감소와 달리, NO_2 농도의 감소 정체 이유는 최근 경유자동차의 증가에 따른 NO_2/NO_x의 배출비 증가가 원인의 하나로 추정되며, 배경농도 오존의 증가 등에 따른 대기 산화력의 증가도 주요 이유가 될 수 있다. 또한 아직 파악되지 않은 NO_2 배출원이 존재할 가능성도 있다(Kim and Yeo, 2013). 지상관측과 유사하게 위성 관측된 우리나라의 NO_2의 컬럼농도는 지난 10년간 크게 변화하지 않았고 지역별 차이도 크게 나타났다. 특히 2005년부터 2014~15년까지 서울의 NO_2의 컬럼농도가 11~25% 감소하였지만, 2010에서 2014년 기간 동안에는 일부 지역(경기북부, 대산, 광양, 부산 등)에서 오히려 NO_2의 농도가 증가하는 것으로 관측되고 있다(Seo *et al.*, 2020; Souri *et al.*, 2017; Duncan *et al.*, 2016).

NO_2의 경우 광학 원격관측이 가능하기 때문에 우리나라를 포함한 동아시아의 광범위한 지역에 걸친 NO_2 배출 추적과 농도변화 추이 연구가 많이 보고되고 있다(Bae *et al.*, 2020a; Han *et al.*, 2020; Duncan *et al.*, 2016; Han *et al.*, 2015; Kim *et al.*, 2013a). 위성관측을 이용한 NO_x의 배출량추정 연구에서 2016년 이전 특히 수도권의 NO_x 국가배출이 40%까지 과소 산정된 것으로 다수의 연구에서 보고되고 있다(Miyazaki *et al.*, 2018; Han *et al.*, 2015; Kim *et al.*, 2013a). 하지만 최근 한 연구에서 2010년 기준 배출량을 수도권에 적용할 경우 오히려 기존 CAPSS 배출이 과다 산정된 것으로 보고된 바도 있다(Bae *et al.*, 2020a). 이와 같은 차이는 위성자료 해석 알고리즘, 기상조건(온도, 이류, PBL), 위성을 이용한 top-down 방식의 배출량 산정시 위성관측시점의 한계, NO_x 아닌 NO_2의 측정한계, 기존 배출량 시간분배방법 등에 기인할 수 있어서 국내 배출량 산정의 정확도 개선과 배출량 검증을 위해서도 이에 대한 심층연구가 추가적으로 필요한 부분이다.

NO_x와 비교하여 VOCs에 대한 연구가 상대적으로 제한적이라는 점이 현재 심층적인 국내 오존 연구에 가장 큰 걸림돌이다. VOCs의 개별 화학종이 다양하며 농도변화가 크고 반응성도 화학종에 따라 차이가 매우 클 뿐만 아니라 국지적인 배출원의 종류도 다양하다. 또한 도시지역에서는 오존생성의 대부분에 VOCs가 제한 요인으로 작용함에도 불구하고 VOCs의 일반대기 중 거동과 배출원특성을 대상으로 한 심층 연구가 매우 부족하다. Park *et al.* (2018a)은 전국 18개 광화학오염물질 측정소의 2006년부터 2016년까지 VOCs의 시공간특성, 장기 추이, 오존생성특성을 분석하여 대체적으로 VOCs가 감소 추세에 있는 것을 확인하였고, 수도권과 대구권에서는 toluene, m,p-xylene 순으로 오존생성기여도가 크게 나타남을 보고하였다. 하지만 오존생성기여도가 큰 화학종이 지역에 따라 차이가 커서 오존생성 저감을 위해서는 기여도가 높은 VOCs 화학종을 우선적으로 선별한 뒤에 배출량을 저감할 필요가 있음을 지적하였다. 비록 단기적인 관측자료를 활용하였지만 2005년부터 4년간 서울 불광동과 수도권의 배경지역인 석모도에서 관측한 연구에서도 VOCs 종 대부분들의 농도 감소가 보고되었다(Kim *et al.*, 2015). 서울 VOCs의 가장 큰 배출원은 자동차와 용매 사용이었고 LNG와 LPG 사용이 순이었으나, 석모도의 경우 LNG와 LPG 사용이 가장 큰 기여율을 보였다. 서울의 도로변에서 측정된 VOCS의 경우에도, 앞선 광화학측정망의 결과와 유사한 농도 수준과 toluene, m,p-xylene, ethylbenzene 순의 종별 오존생성기여율이 나타났다(Khan *et al.*, 2018). 수도권의 한 산업단지에서 2년에 걸쳐 관측된 방향족화합물의 경우 일반 도시지역과 비교하여 2~3배 높아 오존생성에 기여하는 것뿐만 아니

라 주변 지역의 주민 건강에 유해한 수준이어서 시급한 관리를 필요로 한다(Kim *et al.*, 2020).

배출원별 VOCs 구성성분비(source profile)를 확보하는 것은 배출원별 오존생성기여율을 평가하고 관리하는 데 필수적인 선행조건이다. 이들 구성성분비에 대한 연구는 외국에서 주기적으로 많이 이루어지고 있지만 우리나라에서는 연구가 극히 제한적이다. 2001년 자동차 종류와 용매 등에 따른 배출원별 VOCs 구성성분 연구가 수행된 뒤 아직 VOCs의 지역별 배출원별 평가를 위한 성분비 분석 연구가 전무한 실정이다(Kim *et al.*, 2001). 특히 배출원의 화학조성이 다양한 사회적 환경과 관리 목적에 따라 변화하기 때문에 주기적으로 배출원별 화학조성을 갱신해야 하지만 국내에서는 지속적인 연구가 수행되지 못하고 있어 아쉬움이 크다. 배출원의 화학조성에 대한 정보가 없어도 대기 중 VOCs의 성분 분석과 수용원 모델 등 통계적 분석을 통해 배출원 기여 특성을 유추하는 방법도 최근 많이 사용되고 있다(Jo *et al.*, 2012; Cheong and You, 2011; Na *et al.*, 2005; Baek *et al.*, 2002). 하지만 수용원 모델이나 통계모델이 기초하는 질량보전법을 충족하기에는 광화학반응에 따른 VOCs의 소멸속도가 크기 때문에 정확한 산정이 어렵다(Park *et al.*, 2018a). 결국 실질적인 VOCs의 관리와 배출원별 오존 기여율을 산정하기 위해서는 다양한 배출원의 VOCs 화학조성을 마련하는 것이 시급하다.

2.3 자연적 VOCs 배출

자연적으로 존재하는 VOCs (BVOCs)는 주로 육상식생에 의해 전지구적으로 약 1,150 TgC 정도 배출되어 인위적인 VOCs 배출 총량보다 10배 정도 큰 것으로 추정되고 있으며 isoprene (44%)과 terpene류(11%)가 전체의 반 이상을 차지하는 것으로 알려져 있다(Messina *et al.*, 2016; Guenther *et al.*, 1995). BVOCs는 인위적인 VOCs (AVOCS)가 제한적인 도시의 풍하 외곽지역에서 NO_x와 함께 오존의 형성에 매우 중요한 인자이다. 전지구적으로 육상지역은 isoprene에 의해서 오존의 농도가 약 8~12 ppbv 상승하는 것으로 추정되고 있다(Sanderson *et al.*, 2003; Wang and Shallcross, 2000). 우리나라 수도권에서 평가된 연구에서는 자연적인 VOCs 배출이 50% 줄어들 때 오존의 감소가 6~12 ppbv 정도로 나타나서 다른 지역보다 자연적 VOC의 영향이 큰 것으로 보인다(Park and Lee, 2007) (표 2). 특히 수도권의 풍하방향 산림에서 BVOCs가 오존생성에 5~20 ppbv까지 영향을 주는 것이 조사되었다(Kim *et al.*, 2013b; Kim *et al.*, 2013c). 또한 수도권 풍하방향으로 춘천까지 기류의 이동에 따라 최대 34 ppbv의 추가적인 오존이 BVOCs의 배출에 의해 발생할 수 있음이 보고되기도 하였다(Jeon *et al.*, 2014). 이에 반해 부산권역에서는 자연적인 VOCs 배출 영향이 2~4 ppbv 수준으로 조사되었다(Kim *et al.*, 2010).

이와 같은 지역별 자연적 VOCs 배출영향이 차이가 나는 것은 질소산화물의 수준과 기상 등 다양한 변수도 존재하지만 가장 큰 요인은 지역별, 수종별, 환경별로 BVOCs의 배출량이 달라지기 때문이다. 보통 BVOCs의 배출량 산정에는 BEIS (Biogenic Emission Inventory System)나 MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from nature) 모델을 이용하며 온도, 일사량, 잎면적지수, 식생 등의 생물학적,

Table 2. Ozone formation enhancement by BVOCs emissions in Korea.

Location	Ozone production enhancement	Location type	Reference
Seoul Metropolitan Area	6~12 ppbv (50%)	Urban	Park and Lee, 2007
Taehwa Forest	5~20 ppbv	Downwind forest	S. Kim *et al.*, 2013; S.Y. Kim *et al.*, 2013
Busan	2~4 ppbv	Urban	Kim *et al.*, 2010
Chuncheon	max 34.2 ppbv	Rural	Jeon *et al.*, 2014
Global	8~12 ppbv	Terrestrial	Wang and Shallcross, 2000

물리화학적 요소를 조절 인자로 활용한다(Bash *et al.*, 2016; Guenther *et al.*, 2006). 하지만 동일한 시기와 지역에서도 이들 입력 조절인자들의 오류에 따라 배출량 산정에 최종 불확도가 300%까지 확장되는 것으로 보고되고 있다(Guenther *et al.*, 1995). BVOCs에 의한 오존 및 2차생성 입자상 물질의 생성 기여율 산정은 이들의 배출량이 다양한 환경에서 정확하게 산정되어야 가능하기 때문에 미국과 유럽에서는 최근에도 지역과 환경에 따른 BVOCs의 배출량 산정연구가 상당히 활발하게 진행되고 있다(Tripathi and Sahu, 2020; Maki *et al.*, 2019; Bonn *et al.*, 2019; Rhew *et al.*, 2017; Potard *et al.*, 2017; Cappellin *et al.*, 2017; Vaughan *et al.*, 2017; Rantala *et al.*, 2016; Bachy *et al.*, 2016; Bahlmann *et al.*, 2015; Valach *et al.*, 2015). 우리나라의 경우 국토 면적의 65%가 산림인 점을 고려하면 BVOCs가 오존에 기여하는 바가 상당히 큰 것으로 추정되지만 이에 대한 연구가 아직은 충분하지 못하다.

Ji *et al.* (2002)은 8~10월 사이에 국내 소나무와 잣나무에서 배출되는 terpene류의 배출량이 대기 중의 온도 외에도 대상나무의 나이, 계절변화, 잎면적지수에 따른 생리학적 차이에 따라 달라짐을 확인하였다(표 3). 우리나라 낙엽송의 85% 이상을 차지하는 참나무과 수종에서 isoprene의 배출량을 겨울철을 제외한 전계절을 측정한 결과 여름>봄>가을의 순으로 나타났다(Son *et al.*, 2006). 동일지역과 환경에서 침엽수와 활엽수 간 BVOCs 배출속도를 비교한 결과 isoprene은 활엽수에서 침염수에 비해 10배 이상 배출된 반면, terpene은 침엽수에서 높게 측정되었다(Kim and Lee, 2012; Kim and Lee, 2010). 배출량의 직접적인 비교는 아니지만 전남과 경기 지역 산림에서 BVOCs/AVOCs의 비를 α-pinene/toluene로 추정한 결과가 0.31~0.47로 나타났다(Kim *et al.*, 2005). 외국의 산림에서 이 비는 적어도 0.71을 상회하고 대부분 1 이상을 보이는 것을 감안할 때 상당히 낮은 비이다. 이는 우리나라 식생의 BVOCs 배출속도가 낮은 것이 아니라 같은 지역에서 관측된 toluene의 농도가 다른 국가지역보다 높아서 나타난 결과로 해석된다.

BVOCs의 기존 외국 배출모형들을 활용하여 일부 앞서 국내에서 측정된 배출계수를 모형에 새롭게 적용하여 지역 및 국가 배출량의 정확도를 높이기 위한 노력이 시도되었다(Lee *et al.*, 2015; Kim *et al.*, 2008b; Cho *et al.*, 2006). 하지만 외국에서 산정한 배출요인과 계수, 민감도가 국내 상황에 맞지 않는다. 국내 산정 자료를 적용했음에도 대상지역이 극히 한정되어서 국내 BVOCs 배출 자료의 개선여지는 다른 연구분야보다 크다. 더욱이 기후변화에 따라 국내의 식생과 기후가 달라질 것이 명확함에도 불구하고 수종, 계절적, 지역적으로 매우 제한적인 자료를 활용해야만 하는 문제는 조속히 개선될 필요가 있다. Sanderson *et al.* (2003)은 우리나라 오존은 식생과 기후변화에 상당히 민감하게 변화하는데, 2090년까지 식생의 변화가 없고 기온만 변할 경우, 오존의 농도가 현재보다 20~30 ppb 높아지지만 식생의 변화를 고려할 때, 오존의 증가치는 오히려 10~20 ppb 정도만 높아질 것으로 추정하고 있어서 효율적 오존 관리와 대응을 위해서 BVOCs 발생변화의 기초연구가 필수적으로 선행되어야 할 것이다.

Table 3. BVOCs emission rates for various vegetation types in Korea.

BVOCs species	Emission rates μg/gdw/hr	Location	Season	Vegetation	Reference
Terpenes	4.61~40.9	Seoul	Summer, Fall	Pine, Korean Pine	Ji *et al.*, 2002
Isoprene	1.8~15.8	Chungcheong	Spring, Summer, Fall	White Oak	Son *et al.*, 2006
Isoprene	0.01~0.23	Jeju	Summer, Fall, Winter	Conifers	Kim and Lee, 2010
monoterpene	0.52~1.78				
Isoprene	1.03~29.45	Jeju	Spring, Summer, Fall	Broad-leaved Trees	Kim and Lee, 2012
Monoterpene	0.1~0.2				

2. 4 생태영향

오존의 식생에 대한 위해성을 평가하기 위해서 AOT40 (낮시간 동안 40 ppb가 넘는 시간대 농도의 3, 6, 7개월 누적 농도), M7 (09:00~15:59까지의 평균농도의 3, 6, 7, 12개월 평균농도), M12 (08:00~19:59까지의 평균농도의 3, 6, 7, 12개월 평균농도), 또는 W126 (08:00~19:59 시간대의 3, 6, 7, 12개월 누적 농도), SUM06 (낮시간 동안 60 ppb가 넘는 시간대 농도의 3, 6개월 누적 농도) 등의 지표가 있지만 전반적으로 유럽은 AOT-40을 미국은 W126을 많이 사용한다 (표 4) (Mills *et al.*, 2018). 유럽에서는 곡물의 경우 3개월 누적 AOT40이 3 ppm-h이 5% 생산량 감소를, 산림은 6개월 누적 AOT40이 5 ppm-h 이상일 때 5%의 생물량 감소가 나타나는 기준을 삼고 있다. 미국의 경우 나무가 영향을 받기 시작하는 임계기준으로 3개월 누적 W126을 7 ppm-h로 산정하고 있으며 10 ppm-h에서 잎에 피해가 발생하고, 17 ppm-h 이상에서 일반 식생과 생태계 피해가 발생하는 기준값으로 산정하고 있다. 곡물의 5% 생산감소 기준치는 3개월 누적 W126로 15 ppm-h이다.

최근 발표된 IGAC (international Global Atmospheric Chemistry)의 TOAR (Tropospheric Ozone Assessment Report) 연구에 따르면 2010~2014년 오존 관측치를 적용할 경우 한국을 포함한 동아시아의 AOT40은 16,023 ppb-h, W126은 18,572 ppb-h으로, 식생에 뚜렷한 영향을 줄 수 있는 수준으로 보인다 (Mills *et al.*, 2018). 국내에서 2000~2005년 오존 관측치를 이용하여 지역별 3개월 누적 AOT40을 산정한 결과에서도 유사하게 10,000 ppb-h을 초과하는 지역이 많이 발견되었다 (Cho, 2007). 하지만 AOT40만으로 지역의 식생에 미치는 피해를 단정적으로 평가할 수는 없으며, 산림에 대한 AOT40의 임계치가 5,000 ppb-h라는 것은 유럽에서 개발된 수치로서 우리나라 산림식생에 얼마나 유용할지 검증된 바가 없어 일본에서 새로운 평가 지수인 오존 기공누적치 (AFst0, accumulative stomatal ozone uptake)를 개발하고 시험한 것처럼 우리나라 식생에 적합한 새로운 지수나 AOT40의 임계치를 도출할 필요가 있다. 미국과 한국(수원)에서 동시 진행된 북미사시나무의 오존 민감성을 연구한 결과 수원의 SUM06 지수가 1200 ppb-h로 미국 뉴욕주 2100 ppb-h보다 현저하게 낮음에도 불구하고, 오히려 탄소동화 능력은 8% 작아지는 것으로 나타났다 (Yun *et al.*, 2001). 이외에도 도심 가로수의 오존 피해와 산림의 순일차 생산력이 오존에 의해서 현재 8.25% 감소하고 있으며 2090년에는 그 피해가 5,85~11.15%까지 증가될 것을 추정한 연구도 보고되어 있다 (Park *et al.*, 2018b).

작물생산의 경제사회적 중요성에 비하여 오존의 농작물에 대한 피해와 저항성에 대한 연구가 국내에서 부족하여 대부분 외국의 연구 사례를 활용하고 있다. 국내에서는 20년전에 콩과 벼에 대해서 오존의 영향을 평가한 연구가 보고된 이후에 주목할 만한 연구 진전이 이루어지지 않고 있다 (Lee and Sohn, 2000; Yun and Park, 2000; Sohn *et al.*, 1997). 특히 이들 연구에서 같은 작물에서도 품종, 생육시기별로 피해차이가 매우 큰 것으로 나타나 추가적이고 세부적인 연구가 필요하다. 국내에서도 외국사례와 유사하게 콩류가 오존에 가장 민감한 것으로 보고되었다. 국내 오존에 따른 작물의 경제적 피해연구가 한정적이어서 해외의 연구 결과들을 통해 국내 작물 피해에 따른

Table 4. Estimated economic impacts resulted from ozone damage to crops in Korea (reproduced and updated from Van Dingenen *et al.*, 2009).

Crops	Year	Economical Damage Million US$	Indices used	References
Maize, wheat, rice, soybeans	1990	239~308	M7/M12, SUM06, W126	Wang and Mauzerall, 2004
Maize, wheat, rice, soybeans	2000	639~1039	M7/M12, AOT40	Van Dingenen *et al.*, 2009
Soybean, maize, wheat	2011	50~100	M12, AOT40	Avnery *et al.*, 2011a
Soybean, maize, wheat	2030	100~200	M12, AOT40	Avnery *et al.*, 2011b

Table 5. Mortality risks due to ozone increment exposure in Korea (reproduced and updated from Bae and Kwon, 2019).

Locations	Outcome	Mortality effect	O_3 increment	References
Seoul	Non-accidental	RR: 1.015	50	Lee *et al.*, 1999
	Stroke	2.9%	IQR	Hong *et al.*, 2002
	Ischemic stroke	RR: 1.06	IQR	Hong *et al.*, 2002
	Infant	RR: 0.984		Son *et al.*, 2008
	Total	Positive/NS	IQR	Son *et al.*, 2012
	Total	OR: 1.010	IQR (20.5)	Kwon *et al.*, 2001
Ulsan	Non-accidental	RR: 1.020	50	Lee *et al.*, 1999
Incheon	Total	RR: 0.9951		Hong *et al.*, 1999
7 cities	Unintentional injury	NS	IQR (30 ppb)	Ha *et al.*, 2015
17 cities	Total	RR: 1.020	10	Huang *et al.*, 2019
Nationwide	Composite cardio-vascular events	HR: 0.63	IQR (15.9)	Kim *et al.*, 2017
	All cause	HR: 0.68	IQR (15.9)	
	Cardiovascular	HR: 0.59	IQR (15.9)	
Nationwide	Suicide	OR: 1.5%	IQR	Lee *et al.*, 2018

RR: Relative risk, OR: Odds ratio, HR: Hazard ratio

손실을 유추할 수 있는데, 표 5는 전지구적 규모에서 산정한 몇 연구 중 국내의 피해부분을 발췌한 것이다 (Avnery *et al.*, 2011a, b; Van Dingenen *et al.*, 2009; Wang and Mauzerall, 2004). 옥수수, 밀, 벼, 콩을 포함한 작물의 피해액은 1990년 기준으로 3억불 정도이고 2000년 기준으로 AOT40 지시를 활용한 산정 피해액은 10억불까지 이른다. 하지만 벼를 빼고 산정한 결과에서는 피해규모가 확연히 줄어들지만 2030년에는 2010년보다 피해액이 2배에 이르는 것으로 산정되었다(Avnery *et al.*, 2011b).

2.5 배경농도 및 장거리 이동

동아시아 자유대기층 오존의 배경농도는 GAW (Global Atmospheric Watch) 지구배경관측소의 하나로 중국서부 티벳고원지역에 위치한 Waliguan 관측소의 자료를 통해 추정이 가능하며, 연 평균은 약 50 ppb, 봄과 여름철에는 60 ppb 수준이다(Xu *et al.*, 2016). 이는 2016년 KORUS-AQ 한미 대기질 공동관측 기간 동안 항공기관측을 통해서 한반도 배경농도로 볼 수 있는 자유대기중의 오존농도가 상시 60 ppb를 넘게 측정된 것과 궤를 같이 하는 것이다(Schroeder *et al.*, 2020). 같은 기간 전국에 위치한 대기오염측정망에서 관측된 8시간 평균 최대 오존농도들이 상당부분 기준치를 넘는 것은 이미 우려할 만한 수준의 오존 배경농도가 국내 오존에 영향을 주는 것으로 보인다(Peterson *et al.*, 2019). 다양한 국지적 오염원들의 영향으로 국내에서는 자유대기가 아닌 지상관측을 통해 배경농도를 결정하는 것이 매우 어렵다. 다행이 국지적 영향을 온전히 배제할 수 있는 제주도 남방의 이어도 해양과학기지에서 2003~2005년간 오존의 관측이 이루어져서 단편적이지만 국내 오존 배경농도를 유추할 수 있는데 봄철의 경우 평균 56.7 ppb로 자유대기의 농도와 유사하다(Shin *et al.*, 2007). 여름철은 청정 태평양 기단의 영향으로 배경농도가 33.8 ppb로 낮아졌다. 이 결과가 시사하는 바는 전통적으로 온도가 가장 높은 여름철보다는 봄철, 특히 북태평양 기단의 영향이 유입되기전까지 증가하는 광화학반응과 높은 동아시아 배경농도의 영향을 받는 늦은 봄과 초여름에 오존관리를 집중할 필요가 있음을 시사한다.

국내 기준치에 이미 도달한 배경 오존의 우려가 더 심각해지는 이유는 동아시아 오존의 배경농도가 여전히 빠른 속도로 증가하고 있는 점이다. 1993년 이래로 Waliguan 관측소의 오존은 0.26 ppb/yr 수준으로 증가하고 있으며 2000년 이후에는 증가폭이 약간 감소하여 0.20 ppb/yr 수준이다(Xu *et al.*, 2020; Gaudel *et al.*,

2018). 자유대기가 아닌 해양경계층 내 일본 배경지역에서의 오존의 증가속도는 1998년부터 2011년까지 0.31±0.34 ppb로 보고되고 있다(Cooper *et al.*, 2014). 우리나라의 해양경계층 배경농도에 비교적 근접한다는 제주 고산의 경우 0.09 ppb/yr로 다른 배경지역보다 낮은 증가폭을 보여주고 있다(Kim *et al.*, 2018b). 배경지역과 달리 전국적으로 도시지역에서 오존은 한 시간 평균의 연 중간값 기준 0.6 ppbv/year, 여름철 8시간 일 중 최고농도 기준으로는 1.2 ppb/yr 정도의 매우 가파른 증가 속도를 보이고 있다. 이 증가속도는 우리와 유사하게 2000년 이후 큰 증가를 보이는 중국(0.2~0.5 ppbv/year)의 경우보다 크고 세계적으로도 가장 높은 수준의 증가폭이다(Kim *et al.*, 2018b; Verstraeten *et al.*, 2015). 2002~2006년 사이의 국내 오존 변화의 분석에 의하면 증가분의 75%가 배경농도 증가에 기인하고 나머지 25%만이 배출량 변화 요인으로 평가되었다(Shin *et al.*, 2012). 하지만 분석대상 기간이 짧고 상자형모델을 통해 얻어진 배출영향 이외의 변화 증가분을 모두 배경농도 증가영향으로 할당하였기 때문에 기후변화, 장거리 이동, 산화력 변화 등 다양한 다른 요인을 반영하지 못한 제약이 있을 수 있다.

이와 같이 국내 오존의 빠른 증가의 원인으로는 앞서 언급된 배경농도의 증가와 전구물질 배출 변화 이외에 오존과 전구물질의 장거리 이동 증가도 중요한 이유가 될 수 있다. 실제로 위성을 활용한 장기 NO_2 관측 연구(Duncan *et al.*, 2016)에서 중국으로부터의 영향으로 한국과 일본의 NO_2 배출저감정책의 효율성이 저해될 요소가 있음을 지적하고 있다. Nagashima *et al.* (2010)은 추적자모델을 적용하여 동북아시아에서 국가별 오존의 배출-수용관계를 분석한 결과, 중국은 한국에 약 20%의 영향을 주는 것으로 보고하기도 하였다. 2010년 가을 제주도에서 관측과 3차원 확산모델을 활용한 연구에서 오존농도 증가가 야간에도 몇 일간 지속적으로 유지되는 사례를 관측하였고, 이 시기에 중국내륙 도시의 직접적인 이동 영향을 받았음을 보고하였다(Han *et al.*, 2017). 수도권에서 오존존데와 3차원 확산모델을 활용한 연구에서도 중국으로부터 이동되는 자유대기층의 고농도 오존으로 인해 지표 오존 증가에 최대 25% 기인하고 있다고 연구되었다(Oh *et al.*, 2010). 국내에서 오존의 농도가 높은 지역 중 하나인 광양만에서도 중국의 NO_x와 VOCs의 배출을 15% 감소할 경우 오존주의보 발생 건수를 24% 줄일 수 있음을 밝히고 있어, 비교적 국지적 영향으로 오존문제가 인식되고 있는 지역에서도 중국의 이동 영향을 무시할 수 없음을 보여주고 있다(Bae *et al.*, 2018). 오존과 전구물질의 국외 장거리이동에 따른 영향을 무시할 수 없지만, 한 가지 조심스러운 접근이 필요한 부분으로 고농도 오존 발생에 있어서는 국내 기여가 절대적으로 큰 부분을 차지하고 있는 점을 잊어서는 안된다. 실제로 여름철 고농도 오존이 발생한 수도권의 사례 연구에서 장거리 이동 기상조건보다는 대기가 정체하고 종관 풍속이 약한 상태에서 해륙풍 등 국지순환이 활발한 조건에서 발생하고 있음을 보여주고 있다(Peterson *et al.*, 2019; Ghim *et al.*, 2001).

2.6 건강위해성

오존은 강산화제이기 때문에 호흡기의 염증과 산화자극을 초래하여 심하면 사망에 이르게 하는 등 다양한 건강 위해성이 이미 확인되고 있다. 고농도 오존 발생시기 우리가 흔히 경험하는 눈의 불편함 또는 따끔거림과 관련이 있는 안구건조증의 국내사례 대조연구에서, 건조한 조건에서는 오존이 단지 3 ppb만 증가해도 안구건조증이 발생할 확률이 대조군보다 상당히 높게(Odds ratios = 1.16~1.21) 나타나는 것을 보고하였다(Hwang *et al.*, 2016). 오존은 천식과 알레르기성 비염과도 연관이 높은데 전국 초등학생 1,340명을 대상으로 오존 노출에 따른 천식과 비염의 유발율을 추적한 결과 5 ppb의 오존 증가에 호기성천명(wheeze)의 Odds ratio가 1.372로 나타나, 호흡기질환과 관련성이 매우 높은 것을 확인하였다(Kim *et al.*, 2011). 같은 연구에서 공업지역의 아동에게는 알레르기 비염과의 연관성도 확인되었다. 대기오염에 의한 급성 천식악화 요인을 분석한 결과 오존은 미세먼지

등 다른 어떤 물질들보다 천식 유발효과가 크고 유아와 학령인구에서 가장 크게 나타났다(Lee *et al.*, 2019). 장기적인 국민건강보험 자료를 이용한 통계모형 연구에서 월 평균 오존농도 1 ppb 증가 시 전국적으로 약 4.0%의 호흡기질환 유병건수가 상승함을 확인하였다(Park and Hwang, 2017). 지역적으로 세분하면 수도권은 월 평균 오존농도 1 ppb 증가 시 3.0%, 전라권은 1.0%, 경상권은 2.5%의 상승하여 지역적 편차가 크게 나타났다. 국내 건강보험자료의 또 다른 분석 연구를 통해 아직 잘 알려지지 않았으나, 오존증가가 공항장애에 따른 응급실 방문 횟수를 증가시키는 것이 보고되었다(Cho *et al.*, 2015). 부산지역에서 실시된 오존농도와 인구분포 통계의 변화를 이용한 연구에서는 우리 사회의 고령화로 인해 민감계층의 수가 증가하고, 오존에 취약한 노출인구수가 급격히 증가되고 있어서, 고농도 오존에 노출되는 인구의 현황 파악과 함께, 보다 상세하고 정밀한 연구의 확대 필요성을 제시하였다(Kang *et al.*, 2014).

최근 국내에서 대기오염에 의한 질병과 사망자 발생 위험도에 관련한 지난 20년간 발표된 다양한 연구들을 종합적으로 정리한 리뷰 논문이 최근 발표되었다(Bae and Kwon, 2019). 이 논문에서 오존의 위해성 연구가 포함되어 있으며 사망률과 관련된 연구 결과들이 표 5에 정리되어 있다. 사망률의 위험도 평가지표로 RR (Relative risk), OR (Odds ratio), HR (Hazard ratio)을 이용하여 서로 다르게 산정되었으며, 적용된 오존 증가수준과 통계에 사용된 사망원인이 연구마다 차이가 있어 연구 간의 직접적인 비교가 어렵다. 전반적으로 오존과 사망률에 상관성과 위험도가 대조군 비교하여 2.9%까지 증가하는 비교적 높은 결과도 보여진다. 일부 연구에서는 오존 증가가 사망위험을 감소하는 것으로 나타난 결과도 있지만 통계적으로 유의성이 낮은 것으로 보인다(Kim *et al.*, 2017; Son *et al.*, 2012; Son *et al.*, 2008; Hong *et al.*, 1999). Huang *et al.* (2019)의 연구에 따르면 국내 17개 도시에서 관찰된 사망률 위험도는 오존이 10 ppb 증가할 때 약 2% 증가하는 것으로 나타나 대만과 일본보다 높지만, 한국에서만 오존농도 10~30 ppb 구간에서 RR이 1보다 작은 값을 갖는 것으로 보고하였다. 전반적으로 우리나라의 오존에 연관된 사망위험도는 다른 국가나 도시에 비교하면 낮은 수준이다(Ito *et al.*, 2005). 호주, 유럽과 북미의 건조지역은 우리나라보다 오존에 의한 사망위험도가 몇 배 높은 것으로 보고되고 있다. 하지만 국내 연구에서 나타난 사망 위험도의 범위가 넓고 통계적으로 유의성이 낮아, 더 정확한 비교를 위하여 계속 이를 보완하는 연구가 진행되어야 할 것이다. 최근에 수행된 연구에서는 오존의 사망률에 주는 영향이 임계점을 초과할 경우이거나 하루 중 오존농도의 특정구간에서만 선형적이고 양의 기울기를 갖는 것이 보고되어 있어서 이에 대한 정밀한 연구가 추진되어야 할 것이다(Bae *et al.*, 2020b; Bae *et al.*, 2015). 고농도 오존 사례를 더 적극적으로 확장하고, 오존 건강영향 임계농도의 정확한 산정을 포함하면서 현재 진행 중인 증가하는 오존에 따른 건강위해성 영향을 대비할 필요가 있다.

2. 7 기후, 에어로졸, 반응기화학

주요 기후변화 유발물질로 냉각효과를 일으키는 에어로졸과 달리 오존은 온난화 기체 중 하나이며, 기후변화에 영향에 따라 순환적으로 다시 오존농도 증가가 일반적으로 예상되고 있다(Monks *et al.*, 2015). IPCC의 배출변화 시나리오(SRES)를 적용하여 2000년 기준년으로 오존의 장기변동을 예측한 결과, 한국과 일본의 배출감소에도 불구하고 중국과 아시아의 급격한 배출 증가를 상정한 A2 사례에서만 2020년 이후 2090년까지 꾸준히 오존의 농도가 증가하고 다른 시나리오에서는 모두 2020년을 기준으로 오존농도가 감소할 것으로 추정한 바 있다(Lee *et al.*, 2015; Hong *et al.*, 2013). IPCC의 개선되고 좀 더 현실적인 중국의 오존 전구물질 배출변화(RCP8.5, 6.0, 4.5, 2.6)를 감안하여 장기적으로 국내 오존에 주는 영향을 평가한 결과에서, 2020년대에는 8시간 평균 최고 오존농도가 1.22~2,8 ppb 정도 증가하나 2050년대에는 RCP6.0에서만 오존이 3.10 ppb 증가하고 나머지

시나리오에서는 모두 감소하는 것으로 나타났다(Kim *et al.*, 2016a). 오존의 장기변동 예측연구들이 모두 배출변화를 동시에 고려하기 때문에 기후변화만의 요인에 따른 오존의 변화를 추정하는 연구가 국내에서는 수행되지 못하고 있다. 하지만 약 10년간의 관측 기록을 통해 오존과 기상요인에 대한 분석에서 오존농도가 기온과 직접적인 상관성이 있고, 일 중 최고 기온이 4°C 상승할 경우 8시간 평균 최고 오존농도 기준의 주의보 발생이 2배 증가할 수 있음이 나타나, 앞으로 기후변화만의 요인으로도 오존농도 증가와 함께 주의보 발생도 크게 증가할 수 있음을 보여주고 있다(Seo *et al.*, 2014)

입자상물질은 오존의 생성과 소멸에 깊이 관여하는데, 특히 오존생성에 직접적 연관이 있는 HO_2의 생성(González Palacios *et al.*, 2016)과 소멸(Macintyre and Evans, 2011)에 중요한 표면반응을 제공하는 것으로 알려져 있다. 아직은 HO_2의 에어로졸에 대한 소멸율(uptake coefficient)이 0.002~1.0에 이를 정도로 불확도가 크지만 생성보다는 소멸과정의 기여도가 좀 더 큰 것으로 나타나고 있어서, 국내의 에어로졸의 농도 감소는 오존의 증가를 유발할 가능성이 높다(Guo *et al.*, 2019; George *et al.*, 2013). 중국북부 지역에서 2013~2017년 기간 동안 $PM_{2.5}$의 농도가 약 40% 감소하였는데 3차원 광화학모형을 이용하여 분석한 결과, 입자상표면에서의 HO_2의 소멸반응 감소가 결국 이 지역의 오존증가에 가장 중요한 요인이라는 연구도 발표되었다(Li *et al.*, 2019). 하지만 2014년 중국북부 지역에서 HO_2와 RO_2를 포함한 다양한 반응기들의 현장 관측자료를 분석한 결과, 입자상물질의 감소가 실제로 HO_2와 RO_2 농도를 증가시키는 직접적인 증거를 실험을 통해 찾지 못해서 이 가설은 아직 추가적인 검증을 필요로 한다(Tan *et al.*, 2020).

에어로졸의 감소는 직, 간접적으로 일사량의 증가를 야기하여 광분해상수의 증가와 더불어 오존의 증가를 유발할 수 있다(Kim *et al.*, 2008a). 2004~2010년 기간 동안 서울에서 관측된 자외선량과 오존, AOD 및 기상요소를 분석한 결과 자외선량에 가장 큰 요인은 AOD로(Kim *et al.*, 2014), 이를 통해 현재 진행 중인 미세먼지대책의 성과에 따라 입자상물질의 저감과 자외선량과의 증가로 인해 오존의 증가가 예상된다. 하지만 국내 입자상물질의 저감 성과가 아직 AOD의 감소로 이어지지는 않은 것으로 추정된다. MODIS 위성을 활용한 AOD의 장기 관측결과와 지상 PM_{10}의 농도를 비교한 결과 PM_{10}의 농도가 꾸준히 줄어들어도 통계적으로 유의성이 없는 결과이기는 하지만 AOD가 오히려 증가하는 경향을 보여주고 있다(Nam *et al.*, 2015). 이 현상은 PM_{10}의 농도는 줄었지만 AOD에 직접적인 영향을 주는 작은 입자들의 농도는 같은 기간 동안 큰 변화가 없어서 나타난 것으로 추정되고 있다. 앞으로 AOD와 좀 더 상관성이 높은 $PM_{2.5}$의 자료를 이용하여 분석할 경우 좀 더 유의미한 결과를 도출할 수 있을 것으로 기대된다.

오존의 생성에 가장 중요한 반응기인 HO_2와 RO_2들이 어느정도 기여를 하는지 NO_2의 광분해상수와 NO_2의 곱을 NO와 오존의 농도와 그 반응상수로 나눈 Leighton 상수 계산으로 쉽게 간접적으로 평가가 가능하다(Griffin *et al.*, 2007). 전구물질 배출의 영향을 받고 광화학반응이 활발하면 오존생성에 HO_2, RO_2 등의 반응기 역할이 커지고, 이 Leighton 상수는 1을 초과하기 때문에 보통은 많은 연구에서 이 상수를 활용하거나 화학모델을 이용하여 이들 반응기의 기여도를 추정한다. Shon (2006)은 상자모형과 H_2O_2, CH_3O_2H 관측자료를 이용하여 서울시 오존생성속도에 가장 큰 기여를 하는 것이 HO_2와 CH_3O_2 반응기임을 확인하였고, 광양만지역에서도 유사한 이들 반응기들의 기여도를 산출하였다(Shon *et al.*, 2010). 또 다른 연구에서는 서울시에서 측정한 PAN의 소멸속도가 오후에 급격히 감소하는 것을 근거로 오후에 증가하는 PAN의 열분해와 분해 생성된 Peroxyacetyl 반응기가 같은 시간대에 증가되는 입자상물질의 표면에서 빠르게 반응하여 제거될 수 있음을 추정하기도 하였다(Lee *et al.*, 2008). 대기 중 OH 반응기의 농도를 직접 측정하는 것은 아니지만 화학이온화 질량분석법을 이용하여 OH reactivity를 산정한 연구가 수

도권에서 수행되었고, OH reactivity의 50%는 NO_x, 35%는 VOCs에 의한 것으로 밝혀졌다. 하지만 수도권 풍하방향의 산림에서 isoprene을 제외하고 OH reactivity의 70%가 아직 확인되지 않는 반응성 화합물에 의한 영향임이 나타나서 오존의 관리를 위해서 이들 물질의 추가적인 관측연구가 필요함을 지적하였다(Kim *et al.*, 2016b).

오존생성은 주간만이 아니고 야간의 반응기에 의해서도 상당한 영향을 받는 것으로 알려져 있으며 국내에서도 미국 연구진들과 공동연구를 통해 야간 반응기 연구가 조금씩 진전되고 있다. $ClNO_2$는 야간에 입자상물질 중의 염소와 N_2O_5가 반응하여 생성되고 축적되어, 오전시간 중에 염소반응기로 광분해되기 때문에 반응기저장소의 중요한 역할을 하는 것으로 알려져 있다. KORUS-AQ 기간 동안 수도권 지상측정과 항공기에서 관측한 결과, 오전 중 오존생성의 25% 정도가 $ClNO_2$를 포함한 염소반응기의 반응에 의하여 추가적으로 이루어졌음이 확인되었다(Jeong *et al.*, 2019). 야간에 도심에서 가장 농도가 높은 반응기는 NO_3인데 같은 기간 다른 연구진에서 야간의 NO_3에 의한 유기질산 화합물($RONO_2$)의 생성이 주간 OH 반응기에 의한 생성 속도에 유사하게 나타난 것으로 관측되어 야간 반응기화학반응의 중요성을 강조하였다(Kenagy *et al.*, 2020). 오존 연구에서 아쉬운 점은 기술적으로 OH, HO_2, RO_2, NO_3, Cl 등 주요 반응기 들의 농도를 직접 관측할 수 있는 국내 역량이 한정되어 이들에 대한 연구가 극히 제한적인 것이다. 다행한 것은 최근 국립환경과학원을 중심으로 이들 반응기의 관측을 위한 장비들이 구축되고 있어서 앞으로 이들을 활용할 경우 좀 더 기술 진보적이고 핵심적인 분석이 가능할 것으로 기대된다.

3. 추후 오존 연구 방향

점차 국민적 관심이 늘어나고 사회적 문제로 대두되고 있는 오존 오염의 가장 시급한 과제는 매우 복잡하고 비선형적인 오존생성의 정확한 발생기작 규명에 있다. 앞서 언급된 다양한 연구에서 이미 많은 과학적 시도가 있었고 일부 원인규명 분야에서 학술적으로 분명한 소득이 있었지만, 아직 명확하게 관리 방안이나 정책 수립에 활용할 수 있는 정보는 제한적이다. 오존 발생에 관련되는 주요 요인을 정리해 보면 기후변화, 전구물질(NO_x, VOCs)의 배출량 변화, VOCs의 배출 개별종의 변화, NO_x 배출종 구성비(NO_2/NO_x)의 변화, 미세먼지 감소에 따른 비균질 화학반응의 감소, 자연발생 VOCs 배출 기여, 오존과 전구물질의 배경농도와 장거리 이동영향, 야간반응기의 기여율 등이 있다. 이들의 각 부분별 현행 오존 발생 기여율뿐만 아니라 세계 최고 수준으로 나타난 국내 오존 증가에 각각 기여하는 바를 정량적으로 산정할 수 있어야 하며, 미래의 기후변화와 배출변화에 따라 오존농도 거동을 신뢰할 수 있는 수준에서 예측할 수 있어야 한다.

오존오염 연구는 미세먼지오염의 접근법과는 달리 지역적 특징과 변동성이 더 크게 나타나는 차이를 극복해야 한다. 결국 미세먼지 연구보다 좀 더 세부적(종별)이고 정밀한(시간 및 공간할당) 배출자료가 대상지역에 따라 확보되어야 하고 국내에서 아직은 기술적 축적이 미흡한 반응기 화학연구가 지역별로 본격적으로 도입되어야 가능하다. 동시에 발생된 오존이 식생과 건강에 주는 영향을 통계적인 유의성과 확장성을 가능한 담보할 수 있는 연구가 추진되어야 한다. 오존의 건강 및 식생 위해성이 앞서 조사된 바와 같이 미세먼지보다 지역적 차이가 커서 이들 연구도 지역별, 민감군별로 세분화되어 추진되어야 한다. 오존관리의 실행에서 가장 해결이 어려운 과제가 지자체 간 오존오염의 원인과 피해 주체가 다른 경우가 많다는 것이다. 오존오염의 합리적 관리와 시행을 위해서 지역적 오존오염의 주요 쟁점과 해결방안을 객관적이고 정확한 사실을 바탕으로 마련해야 하며, 이를 위해서는 지역별로 과학적 원인규명이 선행되어야 한다.

오존 연구의 또 다른 차별화된 방향성은 다수의 부처 연구개발 사업과 협업이 밀접하게 이루어져야 한

다는 점이다. 오존의 영향이 대기를 매개로 하여 주로 인간에 대한 위해성으로 발현되지만 경제적 효과와 식량자원 확보의 틀로 확대하면 농업생산력 저하에 대한 연구가 지금보다 훨씬 전문화, 고도화되어야 한다. 이를 위해서는 앞으로는 농업부분의 연구와 협업이 더욱 강화되고 확대되어야 한다. 국내에서는 일부 작물에 대해서만 오존 민감도와 영향분석이 수행되어 국내 전반의 작물에 대한 피해액을 산정할 수 있도록 지금보다 더 다양한 작물 종으로 연구가 확장되어야 한다. 작물뿐만 아니라 우리 국토의 대부분을 차지하고 있는 산림에 주는 피해를 산정해야 하며 이를 위해서 수종별 영향 평가를 위해 산림분야와 연구협력 및 새로운 과제 개발이 요구된다. 수종과 식생에서 배출되는 BVOCs의 정확한 산정이 오존 발생 잠재력을 평가하는 데 가장 기본적인 요인을 고려하면 식생에서 발생하는 BVOCs와 오존의 인체 건강위해성 평가는 다른 연구와 비교하여 범부처연구개발 필요성의 최우선순위에 있다.

오존문제의 물리화학적 복잡성과 지역적 변동특성 때문에 오존 연구는 대규모 집중적인 종합관측(campaign)을 통해 수행하는 것이 보통이며 최근에 국내에서도 KORUS-AQ 등의 프로그램을 통해 국내 연구자들의 참여가 확대되고 있다(Crawford, manuscript in preparation, https://espo.nasa.gov/home/korus-aq/content/KORUS-AQ). 현실적으로 미국을 제외하고는 한 국가의 연구 역량과 자원만을 가지고 오존문제의 종합적이고 심층적인 분석이 가능한 나라가 없는 실정이다. 최근 우리나라 대기오염 연구는 과거보다 매우 빠른 속도로 질적으로 양적으로 성장하고 있다. 2010년 이후 학술 연구 결과가 급격하게 증가하였고 해외 저명학술지에 개제되는 논문의 수도 같은 기간 크게 증가하며 국내 연구진의 연구 역량이 확장한 계기는 국제적인 대규모 종합관측에 적극적 참여를 통해 이루어진 것으로 평가된다. 2001년 ACE-Asia, 2005년 ABC-EAREX, 2015년 MAPS-Seoul, 2016년 KORUS-AQ 등 대규모 국제공동협력을 통해 국내 연구자들의 선진연구 기회가 확대되고, 나아가 국내 대기질 원인 규명에 크게 기여하였다. 계속적으로 반응기화학, 광화학생성 중간물질 분석 등 일부 국내 연구기반이 부족한 분야에서 해외연구자들과 협업을 꾸준히 보완할 필요가 있다. 지금까지 대부분 국내의 오존 연구는 개별 또는 제한적인 연구자들이 수행하면서 국소적이고 단편적인 문제의 현상규명으로 제한될 수밖에 없었는데 앞으로는 국내에서도 오존 연구는 대규모 종합관측을 지향하여 범연구자, 범부처, 범국가적 공동연구로의 확대를 통해 효율적이고 체계적인 연구 결과를 도출하려는 노력이 필요하다. 대규모 국제공동연구는 세계적 수준의 연구 결과를 단기간에 도출하고 이를 정책에 반영할 수 있는 동시에, 주변국의 참여와 오존문제 해결을 위한 국제적인 이해를 유도할 수 있다.

오존 연구는 미세먼지 연구분야에서 달성한 최근의 다양한 성과와 진전을 적극적으로 활용하고 최대한 연계할 필요가 있다. 미세먼지 원인규명에 적용한 과학적 접근방법, 원인규명 결과와 정책적 방안들은 오존문제와 많은 부분을 공유하기 때문에 앞서 확보된 연구 자원과 인프라의 활용을 최대화할 수 있는 연구방향을 마련할 필요가 있다. 특히 NO_x, VOCs 등 인위적 전구물질의 배출량부분에서 오존과 미세먼지연구는 연구수행방법과 결과를 대부분 공유할 수 있어서 우선적으로 연계 및 보완연구가 가능하다. 독자적인 오존의 연구개발을 추진하는 것보다 기존에 마련된 미세먼지 연구를 위한 장기 계획에 중복을 최소화하고 차별화된 부분을 집중적으로 보완함으로써 연구개발 예산과 자원을 효율화하는 지혜가 필요하다.

마지막으로 과학적으로 마련된 오존의 현상규명 결과와 관리방안을 바탕으로 수립된 오존관리 정책의 실행, 그리고 그 성과와 효율성을 중장기적 관점에서 중간에 평가하고, 필요시 개선된 보완 정책을 지원하는 정책점검(accountability)의 선순환 구조를 지원할 수 있는 과학연구개발이 계획되어야 한다. 이를 위해서는 일회성, 단기성 연구는 가능한 지양하고, 연차별 단계적 연구를 추진하여 장기적으로 성과를 증폭하고 정책적 활용성을 극대화해야 한다. 무엇보다도 우리

는 오존오염을 우리보다 훨씬 먼저 경험하고 있지만 아직까지 완전한 해결까지는 여전한 난제에 고민하고 있는 미국 등 외국의 사례를 참고하여, 장기적인 관점에서 오존오염을 최소화하는 방향으로 지속적 연구지원 체계를 마련하고 시행하는 노력이 필요하다.

감사의 글

이 연구는 국립환경과학원의 “도시지역 유해대기오염물질 모니터링 종합평가(NIER-2020-01-02-014)”와 한국연구재단-중견연구(2018R1A2B6005090)의 지원으로 수행되었습니다.

References

Agathokleous, E., Kitao, M., Kinose, Y. (2018) A review study on ozone phytotoxicity metrics for setting critical levels in Asia, Asian Journal of Atmospheric Environment, 12(1), 1-16. https://doi.org/10.5572/ajae.2018.12.1.001

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. https://doi.org/10.5572/kosae.2015.31.4.378

Avnery, S., Mauzerall, D.L., Liu, J., Horowitz, L.W. (2011a) Global crop yield reductions due to surface ozone exposure: 1. Year 2000 crop production losses and economic damage, Atmospheric Environment, 45(13), 2284-2296. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2010.11.045

Avnery, S., Mauzerall, D.L., Liu, J., Horowitz, L.W. (2011b) Global crop yield reductions due to surface ozone exposure: 2. Year 2030 potential crop production losses and economic damage under two scenarios of O_3 pollution, Atmospheric Environment, 45(13), 2297-2309. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.01.002

Bachy, A., Aubinet, M., Schoon, N., Amelynck, C., Bodson, B., Moureaux, C., Heinesch, B. (2016) Are BVOC exchanges in agricultural ecosystems overestimated? Insights from fluxes measured in a maize field over a whole growing season, Atmospheric Chemistry and Physics, 16(8), 5343-5356. https://doi.org/10.5194/acp-16-5343-2016

Bae, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2018) Quantitative Assessment on Contributions of Foreign NO_x and VOC Emission to Ozone Concentrations over Gwangyang Bay with CMAQ-HDDM Simulations, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 34(5), 708-726. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.5.708

Bae, S., Kwon, H. (2019) Current State of Research on the Risk of Morbidity and Mortality Associated with Air Pollution in Korea. Yonsei Medical Journal, 60(3), 243-256. https://doi.org/10.3349/ymj.2019.60.3.243

Bae, C., Kim, H.C., Kim, B.U., Kim, S. (2020a) Surface ozone response to satellite-constrained NO_x emission adjustments and its implications, Environmental Pollution, 258(2), 113469. https://doi.org/10.1016/j.envpol.2019.113469

Bae, S., Lim, Y.H., Hong, Y.C. (2020b) Causal association between ambient ozone concentration and mortality in Seoul, Korea, Environmental Research, 182. https://doi.org/10.1016/j.envres.2019.109098

Bae, S., Lim, Y.-H., Kashima, S., Yorifuji, T., Honda, Y., Kim, H., Hong, Y.-C. (2015) Non-Linear Concentration-Response Relationships between Ambient Ozone and Daily Mortality, PLOS ONE, 10(6). https://doi.org/10.1371/journal.pone.0129423

Baek, S.O., Kim, S.R., Kim, B.K. (2002) Variation of and Affecting Factors on the Atmospheric Concentrations of Volatile Organic Compounds in an Urban Area, Journal of Korean Society of Environmental Engineers, 24(8), 1391-1404.

Bahlmann, E., Weinberg, I., Lavric, J.V., Eckhardt, T., Michaelis, W., Santos, R., Seifert, R. (2015) Tidal controls on trace gas dynamics in a seagrass meadow of the Ria Formosa lagoon (southern Portugal), Biogeosciences, 12(6), 1683-1696. https://doi.org/10.5194/bg-12-1683-2015

Bash, J.O., Baker, K.R., Beaver, M.R. (2016) Evaluation of improved land use and canopy representation in BEIS v3.61 with biogenic VOC measurements in California, Geoscientific Model Development, 9(6), 2191-2207. https://doi.org/10.5194/gmd-9-2191-2016

Bonn, B., Magh, R.-K., Rombach, J., Kreuzwieser, J. (2019) Biogenic isoprenoid emissions under drought stress: different responses for isoprene and terpenes, Biogeosciences, 16(23), 4627-4645. https://doi.org/10.5194/bg-16-4627-2019

Cappellin, L., Alarcon, A.A., Herdlinger-Blatt, I., Sanchez, J., Biasioli, F., Martin, S.T., Loreto, F., McKinney, K.A. (2017) Field observations of volatile organic compound

(VOC) exchange in red oaks, Atmospheric Chemistry and Physics, 17(6), 4189-4207. https://doi.org/10.5194/acp-17-4189-2017

Chang, K.L., Petropavlovskikh, I., Cooper, O.R., Schultz, M.G., Wang, T. (2017) Regional trend analysis of surface ozone observations from monitoring networks in eastern North America, Europe and East Asia, Elementa, 5, 1-22. https://doi.org/10.1525/elementa.243

Cheong, J.-P., You, S.-J. (2011) Characteristics and Identification of Ambient VOCs Sources in Busan Industrial Area, Journal of Korean Society of Environmental Engineers, 33(9), 644-655. https://doi.org/10.4491/ksee.2011.33.9.644

Cho, J., Choi, Y.J., Sohn, J., Suh, M., Cho, S.-K., Ha, K.H., Kim, C., Shin, D.C. (2015) Ambient ozone concentration and emergency department visits for panic attacks, Journal of Psychiatric Research, 62, 130-135. https://doi.org/10.1016/j.jpsychires.2015.01.010

Cho, K.-T., Kim, J.-C., Hong, J.-H. (2006) A study on the comparison of biogenic VOC (BVOC) emissions estimates by BEIS and CORINAIR methodologies, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 22, 167-177.

Cho, S.-Y. (2007) Effect of Surface Ozone on Vegetation in Korea - Preliminary Study on Early Foliage of Robinia pseudo-acacia -, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 23(1), 29-38. https://doi.org/10.5572/kosae.2007.23.1.029

Cohan, D.S., Hakami, A., Hu, Y., Russell, A.G. (2005) Nonlinear response of ozone to emissions: Source apportionment and sensitivity analysis, Environmental Science and Technology, 39(17), 6739-6748. https://doi.org/10.1021/es048664m

Cooper, O.R., Parrish, D.D., Ziemke, J., Balashov, N.V., Cupeiro, M., Galbally, I.E., Gilge, S., Horowitz, L., Jensen, N.R., Lamarque, J.F., Naik, V., Oltmans, S.J., Schwab, J., Shindell, D.T., Thompson, A.M., Thouret, V., Wang, Y., Zbinden, R.M. (2014) Global distribution and trends of tropospheric ozone: An observation-based review, Elementa, 2, 1-28. https://doi.org/10.12952/journal.elementa.000029

Duncan, B.N., Lamsal, L.N., Thompson, A.M., Yoshida, Y., Lu, Z., Streets, D.G., Hurwitz, M.M., Pickering, K.E. (2016) A space-based, high-resolution view of notable changes in urban NO_x pollution around the world (2005-2014), Journal of Geophysical Research-Atmospheres, 121(2), 976-996. https://doi.org/10.1002/2015JD024121

European Parliament (2008) Directive 2008/50/EC of the European Parliament and of the Council of 21 May 2008 on ambient air quality and cleaner air for Europe, Official Journal of the European Union.

Fleming, Z.L., Doherty, R.M., Von Schneidemesser, E., Malley, C.S., Cooper, O.R., Pinto, J.P., Colette, A., Xu, X., Simpson, D., Schultz, M.G., Lefohn, A.S., Hamad, S., Moolla, R., Solberg, S., Feng, Z. (2018) Tropospheric Ozone Assessment Report: Present-day ozone distribution and trends relevant to human health, Elementa, 6. https://doi.org/10.1525/elementa.273

Gaudel, A., Cooper, O.R., Ancellet, G., Barret, B., Boynard, A., Burrows, J.P., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Cuesta, J., Cuevas, E., Doniki, S., Dufour, G., Ebojie, F., Foret, G., Garcia, O., Granados-Muñoz, M.J., Hannigan, J.W., Hase, F., Hassler, B., Huang, G., Hurtmans, D., Jaffe, D., Jones, N., Kalabokas, P., Kerridge, B., Kulawik, S., Latter, B., Leblanc, T., Le Flochmoën, E., Lin, W., Liu, J., Liu, X., Mahieu, E., McClure-Begley, A., Neu, J.L., Osman, M., Palm, M., Petetin, H., Petropavlovskikh, I., Querel, R., Rahpoe, N., Rozanov, A., Schultz, M.G., Schwab, J., Siddans, R., Smale, D., Steinbacher, M., Tanimoto, H., Tarasick, D.W., Thouret, V., Thompson, A.M., Trickl, T., Weatherhead, E., Wespes, C., Worden, H.M., Vigouroux, C., Xu, X., Zeng, G., Ziemke, J., Helmig, D., Lewis, A. (2018) Tropospheric Ozone Assessment Report: Present-day distribution and trends of tropospheric ozone relevant to climate and global atmospheric chemistry model evaluation, Elementa Science of the Anthropocene, 6. https://doi.org/10.1525/elementa.291

George, I.J., Matthews, P.S.J., Whalley, L.K., Brooks, B., Goddard, A., Baeza-Romero, M.T., Heard, D.E. (2013) Measurements of uptake coefficients for heterogeneous loss of HO_2 onto submicron inorganic salt aerosols, Physical Chemistry Chemical Physics, 15(31), 12829-12845. https://doi.org/10.1039/c3cp51831k

Ghim, Y.S., Kim, C.H. (2013) Regional Trends in Short-Term High Concentrations of Criteria Pollutants from National Air Monitoring Stations, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 29(5), 545-552. https://doi.org/10.5572/kosae.2013.29.5.545

Ghim, Y.S., Oh, H.S., Chang, Y.S. (2001) Meteorological effects on the evolution of high ozone episodes in the greater Seoul area, Journal of the Air and Waste Management Association, 51(2), 185-202. https://doi.org/10.1080/10473289.2001.10464269

González Palacios, L., Corral Arroyo, P., Aregahegn, K.Z., Steimer, S.S., Bartels-Rausch, T., Nozière, B., Volkamer, R. (2016) Heterogeneous photochemistry of imidazole-2-car-

boxaldehyde: HO_2 radical formation and aerosol growth, Atmospheric Chemistry and Physics, 16(18), 11823-11836. https://doi.org/10.5194/acp-16-11823-2016

Griffin, R.J., Beckman, P.J., Talbot, R.W., Sive, B.C., Varner, R.K. (2007) Deviations from ozone photostationary state during the International Consortium for Atmospheric Research on Transport and Transformation 2004 campaign: Use of measurements and photochemical modeling to assess potential causes, Journal of Geophysical Research Atmospheres, 112(10). https://doi.org/10.1029/2006JD007604

Guenther, A., Hewitt, C.N., Erickson, D., Fall, R., Geron, C., Graedel, T., Harley, P., Klinger, L., Lerdau, M., Mckay, W.A., Pierce, T., Scholes, B., Steinbrecher, R., Tallamraju, R., Taylor, J., Zimmerman, P. (1995) A global model of natural volatile organic compound emissions, Journal of Geophysical Research, 100, 8873-8892. https://doi.org/10.1029/94JD02950

Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P.I., Geron, C. (2006) Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), Atmospheric Chemistry and Physics, 6(11), 3181-3210. https://doi.org/10.5194/acp-6-3181-2006

Guo, J., Wang, Z., Wang, T., Zhang, X. (2019). Theoretical evaluation of different factors affecting the HO_2 uptake coefficient driven by aqueous-phase first-order loss reaction, Science of the Total Environment, 683, 146-153. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.05.237

Han, J., Kim, H., Lee, M., Kim, S., Kim, S. (2013) Photochemical Air Pollution of Seoul in the Last Three Decades, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 29(4), 390-406. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2013.29.4.390

Han, J., Lee, M., Shang, X., Lee, G., Emmons, L.K. (2017) Decoupling peroxyacetyl nitrate from ozone in Chinese outflows observed at Gosan Climate Observatory, Atmospheric Chemistry and Physics, 17(17), 10619-10631. https://doi.org/10.5194/acp-17-10619-2017

Han, K.M., Kim, H.S., Song, C.H. (2020) An estimation of top-down NO_x emissions from OMI sensor over East Asia, Remote Sensing, 12(12). https://doi.org/10.3390/rs12122004

Han, K.M., Lee, S., Chang, L.S., Song, C.H. (2015) A comparison study between CMAQ-simulated and OMI-retrieved NO_2 columns over East Asia for evaluation of NO_x emission fluxes of INTEX-B, CAPSS, and REAS inventories, Atmospheric Chemistry and Physics, 15(4), 1913-1938. https://doi.org/10.5194/acp-15-1913-2015

Hong, S.-C., Choi, J.-Y., Song, C.-K., Hong, Y.-D., Lee, S.-J., Lee, J.-B. (2013) Simulations of Summertime Surface Ozone Over the Korean Peninsula Under IPCC SRES A2 and B1 Scenarios, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 29(3), 251-263. https://doi.org/10.5572/kosae.2013.29.3.251

Hong, Y.-C., Leem, J.-H., Ha, E.-H., Christiani, D.C. (1999) PM_{10} Exposure, Gaseous Pollutants, and Daily Mortality in Inchon, South Korea, Environmental Health Perspectives, 107(11), 873. https://doi.org/10.2307/3454474

Huang, W.H., Chen, B.Y., Kim, H., Honda, Y., Guo, Y.L. (2019) Significant effects of exposure to relatively low level ozone on daily mortality in 17 cities from three Eastern Asian Countries, Environmental Research, 168, 80-84. https://doi.org/10.1016/j.envres.2018.09.017

Hwang, S.H., Choi, Y.H., Paik, H.J., RyangWee, W., Kim, M.K., Kim, D.H. (2016) Potential importance of ozone in the association between outdoor air pollution and dry eye disease in South Korea, JAMA Ophthalmology, 134(5), 503-510. https://doi.org/10.1001/jamaophthalmol.2016.0139

Itahashi, S., Hayami, H., Uno, I. (2015) Comprehensive study of emission source contributions for tropospheric ozone formation over East Asia, Journal of Geophysical Research, 120(1), 331-358. https://doi.org/10.1002/2014JD022117

Ito, K., De Leon, S.F., Lippmann, M. (2005) Associations between ozone and daily mortality: Analysis and meta-analysis, Epidemiology, 16(4), 446-457. https://doi.org/10.1097/01.ede.0000165821.90114.7f

Jeon, W.B., Lee, S.H., Lee, H., Park, C., Kim, D.H., Park, S.Y. (2014) A study on high ozone formation mechanism associated with change of NO_x/VOCs ratio at a rural area in the Korean Peninsula, Atmospheric Environment, 89(x), 10-21. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.02.005

Jeong, D., Seco, R., Gu, D., Lee, Y., Nault, B.A., Knote, C.J., Mcgee, T., Sullivan, J.T., Jimenez, J.L., Campuzano-Jost, P., Blake, D.R., Sanchez, D., Guenther, A.B., Tanner, D., Huey, L.G., Long, R., Anderson, B.E., Hall, S.R., Ullmann, K. Shin, H.-J., Herndon, S.C., Lee, Y., Kim, D., Ahn, J., Kim, S. (2019) Integration of Airborne and Ground Observations of Nitryl Chloride in the Seoul Metropolitan Area and the Implications on Regional Oxidation Capacity During KORUS-AQ 2016, Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 1-25. https://doi.org/10.5194/acp-2018-1216

Jeong, Y., Lee, H.W., Jeon, W. (2020) Regional differences of pri-

mary meteorological factors impacting O_3 variability in South Korea, Atmosphere, 11(1). https://doi.org/10.3390/ATMOS11010074

Ji, D.Y., Kim, S.Y., Han, J.S. (2002) A study on the comparison to source profile of the major terpenes from pine tree and korean pine tree, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 18(6), 515-525.

Jin, X., Fiore, A.M., Murray, L.T., Valin, L.C., Lamsal, L.N., Duncan, B., Folkert Boersma, K., De Smedt, I., Abad, G.G., Chance, K., Tonnesen, G.S. (2017) Evaluating a Space-Based Indicator of Surface Ozone-NO_x-VOC Sensitivity Over Midlatitude Source Regions and Application to Decadal Trends, Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 122(19), 10439-10461. https://doi.org/10.1002/2017JD026720

Jo, W.K., Chun, H.H., Lee, S.O. (2012) Evaluation of atmospheric volatile organic compound characteristics in specific areas in Korea using long-term monitoring data, Environmental Engineering Research, 17(2), 103-110. https://doi.org/10.4491/eer.2012.17.2.103

Kang, J.-E., Bang, J.-H., Oh, I.-B., Kim, Y.-K. (2014) Estimation and Variation of an Exposed Population of a Vulnerable Group to High Ozone Episodes, Journal of Environmental Science International, 23(4), 697-705. https://doi.org/10.5322/JESI.2014.4.697

Kenagy, H.S., Sparks, T.L., Wooldridge, P.J., Weinheimer, A.J., Ryerson, T.B., Blake, D.R., Hornbrook, R.S., Apel, E.C., Cohen, R.C. (2020) Evidence of Nighttime Production of Organic Nitrates During SEAC4RS, FRAPPÉ, and KORUS-AQ, Geophysical Research Letters, 47(11), 1-9. https://doi.org/10.1029/2020GL087860

Khan, A., Szulejko, J.E., Kim, K.H., Brown, R.J.C. (2018) Airborne volatile aromatic hydrocarbons at an urban monitoring station in Korea from 2013 to 2015, Journal of Environmental Management, 209, 525-538. https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2017.12.055

Kim, B.J., Kwon, J.W., Seo, J.H., Kim, H.B., Lee, S.Y., Park, K.S., Yu, J., Kim, H.C., Leem, J.H., Sakong, J., Kim, S.Y., Lee, C.G., Kang, D.M., Ha, M., Hong, Y.C., Kwon, H.J., Hong, S.J. (2011) Association of ozone exposure with asthma, allergic rhinitis, and allergic sensitization, Annals of Allergy, Asthma and Immunology, 107(3), 214-219. e1. https://doi.org/10.1016/j.anai.2011.05.025

Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2019) Review on Ozone Management in US and Recommendations for Domestic Ozone Control, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 35(3), 370-394. https://doi.org/10.5572/kosae.2019.35.3.370

Kim, H.-C., Lee, K.-H. (2012) A Study on Emission Rate of BVOCs from Broad-leaved Trees at Jeju Island, Journal of Environmental Science International, 21(6), 713-724. https://doi.org/10.5322/JES.2012.21.6.713

Kim, H.-K., Lyu, Y., Woo, J.-H., Hong, S.-C., Kim, D.-R., Seo, J., Kim, S.-K. (2016a) Impact of Future Chinese Emissions on Ozone Air Quality and Human Health in Northeast Asia, Journal of Climate Change Research, 7(4), 451-463.

Kim, S., Sanchez, D., Wang, M., Seco, R., Jeong, D., Hughes, S., Barletta, B., Blake, D.R., Jung, J., Kim, D., Lee, G., Lee, M., Ahn, J., Lee, S.-D., Cho, G., Sung, M.-Y., Lee, Y.-H., Kim, D.B., Kim, Y., Woo, J.-H., Jo, D., Park, R., Park, J.-H., Hong, Y.-D., Hong, J.-H. (2016b). OH reactivity in urban and suburban regions in Seoul, South Korea-an East Asian megacity in a rapid transition, Faraday Discussions, 189. https://doi.org/10.1039/c5fd00230c

Kim, H., Kim, J., Kim, S., Kang, S.H., Kim, H.J., Kim, H., Heo, J., Yi, S. M., Kim, K., Youn, T.J. Chae, I.H. (2017) Cardiovascular effects of long-term exposure to air pollution: A population-based study with 900 845 person-years of follow-up, Journal of the American Heart Association, 6(11). https://doi.org/10.1161/JAHA.117.007170

Kim, H., Lee, K. (2010) A study on Emission Rates of VOCs from Conifers at Jeju Island, Journal of Environmental Sciences, 19(5), 627-637.

Kim, H., Zhang, Q., Heo, J. (2018a) Influence of intense secondary aerosol formation and long-range transport on aerosol chemistry and properties in the Seoul Metropolitan Area during spring time: Results from KORUS-AQ, Atmospheric Chemistry and Physics, 18(10), 7149-7168. https://doi.org/10.5194/acp-18-7149-2018

Kim, J., Ghim, Y.S., Han, J.-S., Park, S.-M., Shin, H.-J., Lee, S.-B., Kim, J., Lee, G. (2018b) Long-term Trend Analysis of Korean Air Quality and Its Implication to Current Air Quality Policy on Ozone and PM_{10}, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 34(1), 1-15. https://doi.org/10.5572/kosae.2018.34.1.001

Kim, J.E., Ryu, S.Y., Kim, Y.J. (2008a) Determination of radiation amplification factor of atmospheric aerosol from the surface UV irradiance measurement at Gwangju, Korea, Theoretical and Applied Climatology, 91(1-4), 217-228. https://doi.org/10.1007/s00704-006-0285-x

Kim, S.-T., Moon, N.-K., Cho, K.-T., Byun, D.-W., Song, E.-Y. (2008b) Estimation of Biogenic Emissions over South Korea and Its Evaluation Using Air Quality Simulations, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 24, 423-438. https://doi.org/10.5572/kosae.2008.24.4.423

Kim, K., Kim, J., Lim, J. (2005) Comparison of Anthropogenic and

Natural VOC Concentrations in the Forest Ambient Air, Journal of the Korean Society for Environmental Analysis, 8(3), 11-13.

Kim, K., Kwon, W. (2004) A study on ozone formation factors in Rural and urban Region, Journal of Korea Society of Environmental Administration, 10(3), 143-149.

Kim, K.H., Chun, H.-H., Jo, W.K. (2015) Multi-year evaluation of ambient volatile organic compounds: temporal variation, ozone formation, meteorological parameters, and sources, Environmental Monitoring and Assessment, 187(2). https://doi.org/10.1007/s10661-015-4312-1

Kim, M.-J., Seo, Y.-K., Kim, J.-H., Baek, S.-O. (2020). Impact of industrial activities on atmospheric volatile organic compounds in Sihwa-Banwol, the largest industrial area in South Korea, Environmental Science and Pollution Research. https://doi.org/10.1007/s11356-020-09217-x

Kim, S.Y., Han, J.S., Kim, H.K. (2001) A Study on the Source Profile of Volatile Organic Compounds from Major Emission Sources, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 17(3), 233-240.

Kim, N.K., Kim, Y.P., Morino, Y., Kurokawa, J., Ohara, T. (2013a) Verification of NO_x emission inventory over South Korea using sectoral activity data and satellite observation of NO_2 vertical column densities, Atmospheric Environment, 77(x), 496-508. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.05.042

Kim, S., Kim, S., Lee, M., Kim, S., Choi, S., Seok, S. (2013b). Photochemical characteristics of high and low ozone episodes observed in the Taehwa Forest observatory (TFO) in June 2011 near Seoul South Korea, Asia-Pacific Journal of Atmospheric Sciences, 49(3), 325-331. https://doi.org/10.1007/s13143-013-0031-0

Kim, S.Y., Jiang, X., Lee, M., Turnipseed, A., Guenther, A., Kim, J.C., Kim, S. (2013c) Impact of biogenic volatile organic compounds on ozone production at the Taehwa Research Forest near Seoul, South Korea, Atmospheric Environment, 70(3), 447-453. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.11.005

Kim, W., Kim, J., Park, S.S., Cho, H.K. (2014) UV sensitivity to changes in ozone, aerosols, and clouds in Seoul, South Korea, Journal of Applied Meteorology and Climatology, 53(2), 310-322. https://doi.org/10.1175/JAMC-D-13-052.1

Kim, Y.-K., Jo, Y.-S., Song, S.-K., Kang, Y.-H., Oh, I.-B. (2010) Influence of Isoprene Emissions on Ozone Concentrations in the Greater Busan Area during a High Ozone Episode in 2006, Journal of Environmental Science International, 19(7), 829-841. https://doi.org/10.5322/jes.2010.19.7.829

Kim, Y.P., Yeo, M.J. (2013) The Trend of the Concentrations of the Criteria Pollutants over Seoul, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 29(4), 369-377. https://doi.org/10.5572/kosae.2013.29.4.369

Lee, G., Jang, Y., Lee, H., Han, J.S., Kim, K.R., Lee, M. (2008). Characteristic behavior of peroxyacetyl nitrate (PAN) in Seoul megacity, Korea, Chemosphere, 73(4), 619-628. https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2008.05.060

Lee, J.B., Cha, J.S., Hong, S.C., Choi, J.Y., Myoung, J.S., Park, R.J., Song, C.K. (2015a) Projections of summertime ozone concentration over East Asia under multiple IPCC SRES emission scenarios, Atmospheric Environment, 106, 335-346. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.02.019

Lee, K.-H., Kim, H.-C., Hu, C.-G. (2015b) A Study on the Estimation of BVOCs Emission in Jeju Island (2): Emission Characteristic and Situation, Journal of Environmental Science International, 24(2), 207-219. https://doi.org/10.5322/jesi.2015.24.2.207

Lee, J.-T., Dockery, D.W., Kim, C.B., Jee, S., Chung, Y. (1999) A Meta-analysis of Ambient Air Pollution in Relation to Daily Mortality in Seoul, 1991-1995, Korean Journal of Preventive Medicine, 32(2), 177-182.

Lee, J.-T., Sohn, J.-K. (2000). Symptom of Leaf Injury and Varietal Difference to Ozone in Rice and Soybean Plant, Korean Journal of Environmental Agriculture, 19(2), 154-159.

Lee, S.W., Yon, D.K., James, C.C., Lee, S., Koh, H.Y., Sheen, Y.H., Sugihara, G. (2019) Short-term effects of multiple outdoor environmental factors on risk of asthma exacerbations: Age-stratified time-series analysis, Journal of Allergy and Clinical Immunology, 144(6), 1542-1550. https://doi.org/10.1016/j.jaci.2019.08.037

Li, K., Jacob, D.J., Liao, H., Shen, L., Zhang, Q., Bates, K.H. (2019) Anthropogenic drivers of 2013-2017 trends in summer surface ozone in China. Proceedings of the National Academy of Sciences, 116(2), 422-427. https://doi.org/10.1073/pnas.1812168116

Macintyre, H.L., Evans, M.J. (2011) Parameterisation and impact of aerosol uptake of HO_2 on a global tropospheric model, Atmospheric Chemistry and Physics, 11(21), 10965-10974. https://doi.org/10.5194/acp-11-10965-2011

Maki, M., Krasnov, D., Hellen, H., Noe, S.M., Back, J. (2019) Stand type affects fluxes of volatile organic compounds from the forest floor in hemiboreal and boreal climates, Plant and Soil, 441(1-2), 363-381. https://doi.

org/10.1007/s11104-019-04129-3

Mannschreck, K., Gilge, S., Plass-Duelmer, C., Fricke, W., Berresheim, H. (2004) Assessment of the NO-NO_2-O_3 photostationary state applicability on long-term measurements at the GAW global station Hohenpeissenberg, Germany, Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 4(2), 2003-2036. https://doi.org/10.5194/acpd-4-2003-2004

Mccarthy, J.E., Lattanzio, R.K. (2017) EPA's 2015 Ozone Air Quality Standards. Retrieved from https://fas.org/sgp/crs/misc/R43092.pdf

Messina, P., Lathière, J., Sindelarova, K., Vuichard, N., Granier, C., Ghattas, J., Cozic, A., Hauglustaine, D.A. (2016) Global biogenic volatile organic compound emissions in the ORCHIDEE and MEGAN models and sensitivity to key parameters, Atmospheric Chemistry and Physics, 16(22), 14169-14202. https://doi.org/10.5194/acp-16-14169-2016

Mills, G., Pleijel, H., Malley, C.S., Sinha, B., Cooper, O.R., Schultz, M.G., Neufeld, H.S., Simpson, D., Sharps, K., Feng, Z., Gerosa, G., Harmens, H., Kobayashi, K., Saxena, P., Paoletti, E., Sinha, V., Xu, X. (2018) Tropospheric Ozone Assessment Report: Present-day tropospheric ozone distribution and trends relevant to vegetation, Elementa-Science of the Anthropocene, 6. https://doi.org/10.1525/elementa.302

Miyazaki, K., Sekiya, T., Fu, D., Bowman, K.W., Kulawik, S.S., Sudo, K., Walker, T., Kanaya, Y., Takigawa, M., Ogochi, K., Eskes, H., Boersma, K.F., Thompson, A.M., Gaubert, B., Barre, J., Emmons, L.K. (2018). Balance of Emission and Dynamical Controls on Ozone During the Korea-United States Air Quality Campaign From Multiconstituent Satellite Data Assimilation, Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 387-413. https://doi.org/10.1029/2018JD028912

Monks, P.S., Archibald, A.T., Colette, A., Cooper, O., Coyle, M., Derwent, R., Fowler, D., Granier, C., Law, K.S., Mills, G.E., Stevenson, D.S., Tarasova, O., Thouret, V., Von Schneidemesser, E., Sommariva, R., Wild, O., Williams, M.L. (2015) Tropospheric ozone and its precursors from the urban to the global scale from air quality to short-lived climate forcer, Atmospheric Chemistry and Physics, 15(15), 8889-8973. https://doi.org/10.5194/acp-15-8889-2015

Na, K., Moon, K.C., Yong, P.K. (2005) Source contribution to aromatic VOC concentration and ozone formation potential in the atmosphere of Seoul, Atmospheric Environment, 39(30), 5517-5524. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.06.005

Nagashima, T., Ohara, T., Sudo, K., Akimoto, H. (2010) The relative importance of various source regions on East Asian surface ozone, Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 10(4), 9077-9120. https://doi.org/10.5194/acpd-10-9077-2010

Nam, J. (2015) Changes in ground-level PM mass concentration and column aerosol optical depthnover East Asia during 2004-2014. Seoul National University.

Nguyen, H.T., Kwon, E.E., Kim, K.H., Pandey, S.K., Chambers, S., Kumar, P., Kang, C.H., Cho, S.J., Oh, J.M., Brown, R.J.C. (2017) Factors regulating the distribution of O_3 and NO_x at two mountainous sites in Seoul, Korea, Atmospheric Pollution Research, 8(2), 328-337. https://doi.org/10.1016/j.apr.2016.10.003

Oh, I.-B., Kim, Y.-K. (2002) Surface Ozone in The Major Cities of Korea: Trends, Diurnal and Seasonal Variations, and Horizontal Distributions, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 18(4), 253-264.

Oh, I.B., Kim, Y.K., Hwang, M.K., Kim, C.H., Kim, S., Song, S.K. (2010) Elevated ozone layers over the seoul metropolitan region in Korea: Evidence for long-range ozone transport from Eastern China and its contribution to surface concentrations, Journal of Applied Meteorology and Climatology, 49(2), 203-220. https://doi.org/10.1175/2009JAMC2213.1

Park, J.-H. (2010) Temporal Trends and Spatial Comparisons of Ozone Concentrations in Jinju, Journal of Environmental Science International, 19(6), 761-769. https://doi.org/10.5322/jes.2010.19.6.761

Park, J.H., Kang, S., Song, I.-H., Lee, D.-W., Cho, S. (2018a) Characteristics of long-term behavior of VOC species in Korea: PAMS data analysis, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 34(1), 56-75. https://doi.org/10.5572/kosae.2018.34.1.056

Park, J.H., Lee, D.K., Gan, J., Park, C., Kim, S., Sung, S., Hong, S.C. (2018b) Effects of climate change and ozone concentration on the net primary productivity of forests in South Korea, Forests, 9(3), 1-18. https://doi.org/10.3390/f9030112

Park, J.-W., Hwang, B.-D. (2017) Analysis of Effects of Regional Air Pollutants (PM_{10}, O_3, CO) on Respiratory Disease, Journal of the Korean Public Health Research, 43(3), 53-66.

Park, M.-B., Lee, T.-J., Lee, E.-S., Kim, D.-S. (2016) A Comparative Study on the Ambient Air Quality Standard Strength among Korea, the U.S.A. and the EU, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 32(6), 559-574. https://doi.org/10.5572/kosae.2016.32.6.559

Park, S., Lee, C.B. (2007) Sensitivity Analysis of Tropospheric

Ozone to Biogenic Emissions Using Photochemical Model, Journal of the Korean Society of Environmental Engineers, 607-611.

Peterson, D.A., Hyer, E.J., Han, S.-O., Crawford, J.H., Park, R.J., Holz, R., Kuehn, R.E., Eloranta, E., Knote, C., Jordan, C.E., Lefer, B.L. (2019) Meteorology influencing springtime air quality, pollution transport, and visibility in Korea, Elementa-Science of the Anthropocene, 7. https://doi.org/10.1525/elementa.395

Potard, K., Monard, C., Le Garrec, J.-L., Caudal, J.-P., Le Bris, N., Binet, F. (2017) Organic amendment practices as possible drivers of biogenic Volatile Organic Compounds emitted by soils in agrosystems, Agriculture Ecosystems & Environment, 250, 25-36. https://doi.org/10.1016/j.agee.2017.09.007

Rantala, P., Jarvi, L., Taipale, R., Laurila, T.K., Patokoski, J., Kajos, M.K., Kurppa, M., Haapanala, S., Siivola, E., Petaja, T., Ruuskanen, T.M., Rinne, J. (2016) Anthropogenic and biogenic influence on VOC fluxes at an urban background site in Helsinki, Finland, Atmospheric Chemistry and Physics, 16(12), 7981-8007. https://doi.org/10.5194/acp-16-7981-2016

Rhew, R.C., Deventer, M.J., Turnipseed, A.A., Warneke, C., Ortega, J., Shen, S., Martinez, L., Koss, A., Lerner, B.M., Gilman, J.B., Smith, J.N., Guenther, A.B., de Gouw, J.A. (2017) Ethene, propene, butene and isoprene emissions from a ponderosa pine forest measured by relaxed eddy accumulation, Atmospheric Chemistry and Physics, 17(21), 13417-13438. https://doi.org/10.5194/acp-17-13417-2017

Sanderson, M.G., Jones, C.D., Collins, W.J., Johnson, C.E., Derwent, R.G. (2003) Effect of climate change on isoprene emissions and surface ozone levels, Geophysical Research Letters, 30(18), 10-13. https://doi.org/10.1029/2003GL017642

Schroeder, J.R., Crawford, J.H., Ahn, J.Y., Chang, L., Fried, A., Walega, J., Weinheimer, A., Montzka, D.D., Hall, S.R., Ullmann, K., Wisthaler, A., Mikoviny, T., Chen, G., Blake, D.R., Blake, N.J., Hughes, S.C., Meinardi, S., Diskin, G., Digangi, J.P., Choi, Y., Pusede, S.E., Huey, G.L., Tanner, D.J., Kim, M., Wennberg, P. (2020) Observation-based modeling of ozone chemistry in the Seoul metropolitan area during the Korea-United States Air Quality Study (KORUS-AQ), Elementa, 8(1), 0-21. https://doi.org/10.1525/elementa.400

Seo, J., Youn, D., Kim, J.Y., Lee, H. (2014) Extensive spatiotemporal analyses of surface ozone and related meteorological variables in South Korea for the period 1999-2010, Atmospheric Chemistry and Physics, 14(12), 6395-6415. https://doi.org/10.5194/acp-14-6395-2014

Seo, J., Yoon, J., Choo, G.-H., Kim, D., Lee, D.-W. (2020) Long-term Trend Analysis of NO_x and SO_x over in East Asia Using OMI Satellite Data and National Emission Inventories (2005-2015), Korean Journal of Remote Sensing, 36(2), 121-137. https://doi.org/10.7780/kjrs.2020.36.2.1.3

Shin, B.-C., Lee, M.-H., Lee, J.-H., Shim, J.-S. (2007) Seasonal and Diurnal Variations of Surface Ozone at Ieodo in the East China Sea, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 23(6), 631-639. https://doi.org/10.5572/kosae.2007.23.6.631

Shin, H.J., Cho, K.M., Han, J.S., Kim, J.S., Kim, Y.P. (2012) The Effects of Precursor Emission and Background Concentration Changes on the Surface Ozone Concentration over Korea, Aerosol and Air Quality Research, 12(1), 93-103. https://doi.org/10.4209/aaqr.2011.09.0141

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(4), 235-253. https://doi.org/10.5572/ajae.2017.11.4.235

Shon, Z.-H., Song, S.-K., Lee, G.-W. (2010) Photochemical Analysis of Ozone Levels in the Gulf of Gwangyang in the Spring and Summer of 2009, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 26(2), 161-176. https://doi.org/10.5572/kosae.2010.26.2.161

Sohn, J.K., Lee, S.C. (1997) Varietal Difference of Resistance to Ozone Injury in Rice Plant, Journal of Crop Science, 42(3), 338-343.

Son, J.-Y., Cho, Y.-S., Lee, J.-T. (2008) Effects of Air Pollution on Postneonatal Infant Mortality Among Firstborn Infants in Seoul, Korea: Case-Crossover and Time-Series Analyses, Archives of Environmental & Occupational Health, 63(3), 108-113. https://doi.org/10.3200/AEOH.63.3.108-113

Son, J.-Y., Lee, J.-T., Kim, H., Yi, O., Bell, M.L. (2012) Susceptibility to air pollution effects on mortality in Seoul, Korea: A case-crossover analysis of individual-level effect modifiers, Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology, 22(3), 227-234. https://doi.org/10.1038/jes.2012.6

Son, Y.S., Kim, J.-C., Kim, K.-J., Lim, Y.J., SunWoo, Y., Hong, J.H. (2006) A Comparison Study on Isoprene Emission Rates from White Oak, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 22(6), 791-798.

Souri, A.H., Choi, Y., Jeon, W., Woo, J.H., Zhang, Q., Kurokawa, J.I. (2017) Remote sensing evidence of decadal changes in major tropospheric ozone precursors over East

Asia, Journal of Geophysical Research, 122(4), 2474-2492. https://doi.org/10.1002/2016JD025663

Tan, Z., Hofzumahaus, A., Lu, K., Brown, S.S., Holland, F., Huey, L.G., Kiendler-Scharr, A., Li, X., Liu, X., Ma, N., Min, K.E., Rohrer, F., Shao, M., Wahner, A., Wang, Y., Wiedensohler, A., Wu, Y., Wu, Z., Zeng, L., Zhang, Y., Fuchs, H. (2020) No Evidence for a Significant Impact of Heterogeneous Chemistry on Radical Concentrations in the North China Plain in Summer 2014, Environmental Science and Technology, 54(10), 5973-5979. https://doi.org/10.1021/acs.est.0c00525

Tripathi, N., Sahu, L.K. (2020). Emissions and atmospheric concentrations of alpha-pinene at an urban site of India: Role of changes in meteorology, Chemosphere, 256. https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.127071

Turner, M.C., Jerrett, M., Pope, C.A., Krewski, D., Gapstur, S.M., Diver, W.R., … Burnett, R.T. (2016). Long-Term Ozone Exposure and Mortality in a Large Prospective Study, American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine, 193(10), 1134-1142. https://doi.org/10.1164/rccm.201508-1633OC

Valach, A.C., Langford, B., Nemitz, E., MacKenzie, A.R., Hewitt, C.N. (2015) Seasonal and diurnal trends in concentrations and fluxes of volatile organic compounds in central London, Atmospheric Chemistry and Physics, 15(14), 7777-7796. https://doi.org/10.5194/acp-15-7777-2015

Van Dingenen, R., Dentener, F.J., Raes, F., Krol, M.C., Emberson, L., Cofala, J. (2009) The global impact of ozone on agricultural crop yields under current and future air quality legislation, Atmospheric Environment, 43(3), 604-618. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2008.10.033

Vaughan, A.R., Lee, J.D., Shaw, M.D., Misztal, P.K., Metzger, S., Vieno, M., Davison, B., Karl, T.G., Carpenter, L.J., Lewis, A.C., Purvis, R.M., Goldstein, A.H., Hewitt, C.N. (2017) VOC emission rates over London and South East England obtained by airborne eddy covariance, Faraday Discussions, 200, 599-620. https://doi.org/10.1039/c7fd00002b

Vellingiri, K., Kim, K.H., Jeon, J.Y., Brown, R.J.C., Jung, M.C. (2015) Changes in NO_x and O_3 concentrations over a decade at a central urban area of Seoul, Korea, Atmospheric Environment, 112(x), 116-125. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.04.032

Verstraeten, W., Neu, J., Williams, J., Bowman, K., Worden, J., Boersma, K. (2015) Rapid increases in tropospheric ozone production and export from China, Nature Geoscience. https://doi.org/10.1038/ngeo2493

Vingarzan, R. (2004) A review of surface ozone background levels and trends, In Atmospheric Environment (Vol. 38). https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2004.03.030

Wang, K.Y., Shallcross, D.E. (2000) Modelling terrestrial biogenic isoprene fluxes and their potential impact on global chemical species using a coupled LSM-CTM model, Atmospheric Environment, 34(18), 2909-2925. https://doi.org/10.1016/S1352-2310(99)00525-7

Wang, X., Mauzerall, D.L. (2004) Characterizing distributions of surface ozone and its impact on grain production in China, Japan and South Korea: 1990 and 2020, Atmospheric Environment, 38(26), 4383-4402. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2004.03.067

Xu, W., Xu, X., Lin, M., Lin, W., Tarasick, D., Tang, J., … Zheng, X. (2018) Long-term trends of surface ozone and its influencing factors at the Mt Waliguan GAW station, China - Part 2: The roles of anthropogenic emissions and climate variability, Atmospheric Chemistry and Physics, 18(2), 773-798. https://doi.org/10.5194/acp-18-773-2018

Xu, X., Lin, W., Xu, W., Jin, J., Wang, Y., Zhang, G., … Zhao, H. (2020). Long-term changes of regional ozone in China: implications for human health and ecosystem impacts, Elementa-Science of the Anthropocene, 8. https://doi.org/10.1525/elementa.409

Yin, P., Chen, R., Wang, L., Meng, X., Liu, C., Niu, Y., … Kan, H. (2017) Ambient Ozone Pollution and Daily Mortality: A Nationwide Study in 272 Chinese Cities, Environmental Health Perspectives, 125(11), 117006. https://doi.org/10.1289/EHP1849

Yun, S.-C., Park, E.-W. (2000) The Visible Injury and Physiological Responses of Two Varieties of Glycine max to Ozone, Korean Journal of Agricultural and Forest Meteorology, 2(4), 167-174.

Yun, S.C., Park, E.W., Laurence, J.A. (2001) Simulation of 1-year-old Populus tremuloides response to ozone stress at Ithaca, USA, and Suwon, Republic of Korea, Environmental Pollution, 112(2), 253-260. https://doi.org/10.1016/S0269-7491(00)00108-1

Authors Information

이강웅 (한국외국어대학교 환경학과 교수)
박정후 (국립환경과학원 기후대기연구부 대기환경연구과 연구관)
김대곤 (국립환경과학원 기후대기연구부 대기환경연구과 과장)
고명신 (한국외국어대학교 환경학과 학부생)
이미혜 (고려대학교 지구환경과학과 교수)
한진석 (안양대학교 환경에너지공학과 교수)
김조천 (건국대학교 사회환경공학부 교수)