



논문

CMAQ-HDDM을 이용한 광양만 오존 농도의 국외 기여도 분석

Quantitative Assessment on Contributions of Foreign NO_x and VOC Emission to Ozone Concentrations over Gwangyang Bay with CMAQ-HDDM Simulations

배창한, 김병욱¹⁾, 김현철^{2),3)}, 김순태*

아주대학교 환경공학과, ¹⁾미국 조지아주 환경청, ²⁾미국 국립해양대기청
³⁾매릴랜드 대학 기후·위성 연구소

Changhan Bae, Byeong-Uk Kim¹⁾, Hyun Cheol Kim^{2),3)}, Soontae Kim*

Department of Environmental & Safety Engineering, Ajou University

¹⁾Georgia Environmental Protection Division

²⁾Air Resources Laboratory, National Oceanic and Atmospheric Administration

³⁾Cooperative Institute for Climate and Satellites, University of Maryland

접수일 2018년 1월 23일
 수정일 2018년 9월 28일
 채택일 2018년 10월 19일

Received 23 January 2018
 Revised 28 September 2018
 Accepted 19 October 2018

*Corresponding author

Tel : +82-(0)31-219-2511

E-mail : soontae.kim@ajou.ac.kr

Abstract In this study, we examined the contribution of nitrogen oxides and volatile organic compounds emitted from China and Japan to ozone concentrations over Gwangyang-bay, South Korea. We used a chemical transport model, Community Multi-scale Air Quality model, and its instrumented sensitivity tool, High-order Decoupled Direct Method. Intercontinental Chemical Transport Experiment-Phase B 2006 for East Asia and Clean Air Policy Support System 2007 emissions inventories for South Korea were used for the ozone simulation. During the study period, May 2007, the modeled maximum daily 8-hr average ozone concentration among seven air quality monitors in Gwangyang-bay was 68.8 ppb. The contribution of NO_x emissions from China was 19.5 ppb (28%). The highest modeled ozone concentrations and Chinese contributions appeared when air parcels were originated from Shanghai area. The observed 8-hr average ozone concentrations in Gwangyang Bay exceeded the national ambient air quality standard (60 ppb) 203 times by daytime and 56 times by nighttime during the period. It was noticed that many exceedances happened when contribution of Chinese emissions to ozone concentrations over the area increased. Sensitivity analysis shows that a reduction in Chinese NO_x and VOC emissions by 15% could lessen the total exceedance hours by 24%. This result indicates that high ozone concentrations over Gwangyang-bay are strongly enhanced by Chinese emissions.

Key words: Ozone sensitivity, High-order decoupled direct method, Long-range transport, Gwangyang bay

1. 서론

지표면에 존재하는 오존(Ozone)은 인체 및 자연 환경에 유해한 영향을 미치는 대기오염물질로 알려져 있으며(U.S. EPA, 2013; Amann, 2008), 국내에서도 대기환경기준물질로 지정되어 관리되고 있다. 그러나 국내에서 8시간 평균 오존 농도의 대기환경기준 달성율은 2013년 이후 전국 도시대기측정망 중

1% 이하이며, 효과적인 오존 관리대책 마련이 필요하다(NIER, 2016; 부록 1참조).

특히 광양만의 경우 매년 오존 주의보가 발령될 만큼(Airkorea, 2018) 오존에 대한 관리가 필요한 지역이다. 환경부에서는 이 지역을 ‘대기환경규제지역’으로, 광양만 지역 내의 여수 국가산업단지는 ‘대기보전특별대책지역’으로 지정하고 있다. 광양만 지역에는 오존의 전구물질인 NO_x(nitrogen oxides)와 VOCs

(volatile organic compounds)를 대규모로 배출하는 사업장과 산업단지가 위치하고 있으며, 복잡한 해안선 등으로 인한 기상학적 요인까지 더해져 오존 농도 개선이 쉽지 않다(NIER, 2011).

광양만 지역 고농도 오존 발생 원인에 대한 선행 연구를 살펴보면 Kim and Lee (2011)는 대기질 모델링을 이용하여 광양만 지역의 VOC 배출이 해당 지역의 오존 농도를 증가시키며, NO_x 배출량은 인접한 풍하 지역 오존 농도에 영향을 미치는 것으로 보고하였다. Ha *et al.* (2006)은 대기질 자동측정망 자료와 기상 관측자료를 이용하여 주로 고기압이 서쪽으로부터 이동되는 5월과 6월 중에 고농도 오존발현 빈도가 높으며, 야간 시간(19~21시)에도 고농도가 나타나는 특징을 보고하였다.

이러한 선행 연구들은 주로 인접 지역의 배출원, 복잡한 지형, 국지 기상에 의한 영향 검토가 이뤄졌다. 그러나 대기 중 오존 농도는 인접 배출원에 의한 영향뿐 아니라 장거리 수송에 의한 영향을 받을 수 있다(Hong *et al.*, 2008; An *et al.*, 2002). Itahashi *et al.* (2015, 2013, 2012)는 대기질 모사를 통해 동아시아 영역에서 중국에서 배출된 대기오염물질이 장거리 수송되어 일본의 오존 농도 상승에 영향을 미치는 것으로 분석하였다. Choi *et al.* (2014)은 다양한 모델링 기법을 적용하여 오존의 배출원-수용지 관계를 분석하고, 중국 중부지역의 인위적 배출량이 동아시아 지역의 오존 생성에 중요함을 보였다.

이런 점을 감안하면 국내 오존 농도 또한 풍상 지역에서 배출된 전구물질의 장거리 수송 영향을 받을 수 있다. 이와 관련된 선행 연구로 Oh *et al.* (2010)은 수도권 지역의 봄철 야간 오존 농도 상승 원인 중 하나로 장거리 수송을 들었으며, Kim *et al.* (2017c)은 2014년 여름철 수도권 일 최고 1시간 오존 농도가 중국의 NO_x 배출량에 의해 최대 50 ppb 이상 상승이 가능함을 보였다. 광양만 지역 또한 여름철 오존 농도 상승이 자체 배출량에 의한 영향보다 장거리 수송에 의한 효과가 높을 수 있음이 언급된 바(NIER, 2011), 광양만 지역 고농도 오존의 원인분석과 대책수립을

위해서는 국외 배출량에 의한 기여도 분석이 중요하다.

본 연구에서는 광양만 지역 오존에 대한 국외 배출량 영향을 정량적으로 검토함을 목적으로, 대기 중 오존 관련 전구물질의 배출, 화학 반응, 이송 및 제거 과정을 모의할 수 있는 3차원 광화학 모델인 CMAQ (Community Multi-scale Air Quality; Byun and Schere, 2006)과 진단 기법인 HDDM (High-order Decoupled Direct Method; Hakami *et al.*, 2003)을 활용하였다. 이를 통해 광양만 지역의 고농도 오존에 대한 주요 유입경로와 유입시간에 따른 국외 기여도 변화 특성을 제시하였다.

2. 연구 방법

2.1 모사기간 및 대상 지역

본 연구의 모사영역은 대기오염물질의 장거리 이동을 고려할 수 있도록 한반도, 중국 및 일본 지역을 포함한 동북아시아 영역을 대상으로 설정하였으며, 한 격자의 수평 해상도는 27km이다(그림 1).

격자의 수평 해상도의 경우 오존 농도 모사에 차이

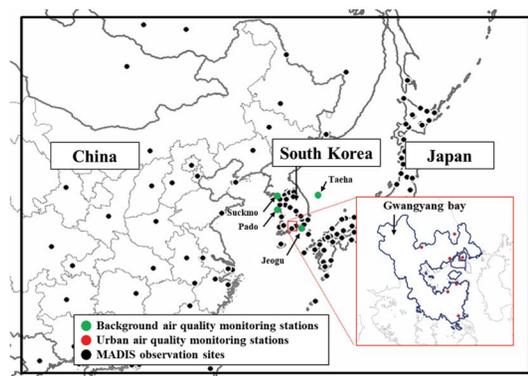


Fig. 1. 27 km CMAQ modeling domain used in the study. The red box shows the Gwangyang bay. Green dots represent background air quality monitoring stations, red dots represent urban air quality monitoring stations near by the Gwangyang bay and Black dots represent MAIDS observation site.

를 미칠 수 있으며, 이로 인해 모사 농도뿐 아니라 기여도 분석에도 중요한 요소이다(Cohan *et al.*, 2006). 미 환경청(U.S. EPA, 2007)은 오존 모사 시 격자의 수평 해상도를 4 km 이하로 권장하고 있다. 특히 광양만 지역과 같이 복잡한 해안선을 가지며, 동시에 NO_x, VOC 배출량이 많은 지역에서 오존 농도와 원인분석을 위한 대기질 모사 시에는 지역 특성을 고려할 수 있는 격자 체계 구성이 요구된다. 단, 오존 등 대기오염물질의 장거리 이동 현상에 대한 분석 시에는 중국과 일본 등을 포함한 동북아 영역을 대상으로 대기질 모사가 필요하며, 해당 영역을 4 km 격자 체계로 구성하는 것은 현재의 컴퓨팅 자원 등을 고려하면 계산시간, 자료 저장 및 활용면에서 제한점이 존재한다. 일반적으로 대기질 모사에서 동지 격자화를 통해 분석 대상 지역에서는 수평 해상도를 높이는 방법을 이용하나, 본 연구에서 이용된 진단 방법인 HDDM의 경우 다중 동지 격자화를 적용하는 것은 보편적이지 않으며, 결과에 대한 신뢰도 평가가 미흡하다.

동북아 지역에서 오존 장거리 영향을 분석한 최근 연구에서는 80 km, 60 km, 27 km의 수평 해상도가 이용되었으며(Kim *et al.*, 2017a; Choi *et al.*, 2014; Itahashi *et al.*, 2013), 선행 연구와 현재 국립환경과학원의 대기질 예보 시스템(MOE, 2012), 수도권 기본계획(MOE, 2013) 등의 대기질 모사 접근 방법에 기초하여 본 연구에서는 27 km의 수평 해상도의 오존 모사를 통해 장거리 이동 영향을 분석하였다.

대기환경연보(NIER, 2004~2017)를 참고하면 최근 14년 동안의 광양만 지역(광양, 순천, 여수)의 고농도 오존 주의보 발생빈도는 2007년 22회로 가장 높았으며, 2012년 1회로 가장 낮았다. 2012년 이후 2013년 6회, 2014년 10회, 2015년 7회, 2016년 22회로 최근 다시 증가를 보이고 있다. 앞서 언급하였듯이 고농도 오존의 발현은 국지적 배출과 장거리 이동 등 다양한 원인에 기인하며, 장소, 발생 시기, 기상 조건 등에 따라 그 원인이 서로 달라질 수 있다(Kim and Lee, 2011; Ha *et al.*, 2006; Jaffe *et al.*, 2003; Lam *et al.*,

Table 1. The configuration of the WRF modeling used in this study.

	Description
WRF	Version 3.2
Micro physics	WSM3-class simple ice
Cumulus scheme	Kain-Fritsch
Long wave radiation	RRTM
Short wave radiation	Goddard shortwave radiation
PBL scheme	YSU
LSM scheme	Unified NOAA land-surface model

2001). 따라서 고농도 오존 대책 마련을 위해서는 무엇보다도 정확한 원인 분석이 중요하다. 본 연구에서는 우선적으로 가장 많은 오존 주의보가 발생하였던 2007년 5월을 대상으로 광양만 지역의 오존에 대한 국외 기여도 분석을 수행하였으며, 다른 고농도 사례에 대한 분석은 후속 연구를 통해 다룰 예정이다.

2.2 기상 입력자료

기상 입력자료는 WRF (Weather Research and Forecasting; Skamarock and Klemp, 2008) version 3.2 모델을 이용하여 생산하였다. WRF 모델에 이용된 초기장과 경계장의 경우 NCEP (National Centers for Environmental Prediction)에서 제공되는 FNL (Final Analysis) 자료를 이용하였다. 수직 격자 구조는 17층으로 최하층의 높이는 32m로 구성하였다. WRF에서 생산된 기상자료는 MCIP (Meteorology-Chemistry Interface Processor)을 이용하여 배출량 산정과 대기질 모델링을 위한 입력자료 형태로 변환하였다. WRF 모델 구동에 이용된 세부적인 물리 옵션은 표 1에 제시하였다.

2.3 배출량 입력자료

배출량 입력자료는 인위적 배출량과 자연적 배출량을 구분하여 마련하였다. 인위적 배출량은, 국외의 경우 INTEX-B 2006 (Intercontinental Chemical Transport Experiment-Phase B 2006; Zhang *et al.*, 2009) 배출량 목록을, 국내에 대하여는 CAPSS (Clean Air Policy Support System; NIER, 2015) 2007 배출량

목록을 이용하였다. 이용된 배출량 목록은 본 연구의 모사 기간에 가장 인접한 연도를 대상으로 산정된 자료이다. 배출량 목록은 SMOKE (Sparse Matrix Operator Kernel Emissions; Benjey *et al.*, 2001) version 2.1을 이용하여 대기질 모델에 이용 가능한 배출량 입력 자료로 변환하였으며, Kim *et al.* (2008)에서 제시된 배출원(SCC; Source Classification Code)별 시간 및 공간 분배계수를 이용하였다.

자연적 배출량의 경우 식생 입력자료의 제한으로 인하여 국내와 국외에 서로 다른 자연배출량 산정 모델을 이용하였다. 국내의 경우 Cho *et al.* (2006)에서 제시된 식생 자료를 바탕으로 BEIS (Biogenic Emissions Inventory System) version 3.12를 이용하였고, 국외(중국, 북한 등)의 경우 120초 해상도로 준비되어 있는 전지구 식생 자료를 바탕으로 MEGAN (The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature; Guenther *et al.*, 2006) version 2.0.4를 이용하였다. 자연배출량의 경우 오존의 생성에 중요한 전구 물질 중 하나인 아이소프린(Isoprene)을 배출하며 자연배출량 산정 모델에 따라 아이소프린 배출량은 일 평균 2배 가량 차이를 보인다(Carlton and Baker, 2011). 그러므로 자연배출량 산정 모델의 선택은 오존의 모사 및 기여도 분석에서 있어 결과값의 차이를 유발할 가능성이 있다(Kim *et al.*, 2017b). 화학종 분배는 SAPRC99 (Statewide Air Pollution Research Center Version 99; Carter *et al.*, 1999) 메커니즘을 기준으로 하였다. 생성된 인위적, 자연적 배출량을 하나로 병합하여 대기질 모사에 이용하였다.

2.4 대기질 모사 & 기여도 분석 방법

대기질 모사는 광화학 모델 CMAQ version 4.7.1을 이용하였다. 에어로졸 모듈은 AERO5 (Aerosol module version 5)로 선택하였고, 대기질 모델의 세부 사항은 표 2에 정리하였다. 경계조건의 경우 CMAQ의 기본 프로파일(profile)을 이용하였으며, 따라서 모사 영역(동북아시아) 외에서 유입되는 오존의 영향을 모사함에 있어 제한적일 수 있다. Hong *et al.* (2012)

Table 2. The configuration of the CMAQ modeling used in this study.

Option	Description
CMAQ	Version 4.7.1 w/ HDDM
Chemical mechanism	SAPRC99
Chemical solver	EBI
Aerosol module	AERO5
Boundary condition	Default profile
Advection scheme	YAMO
Horizontal diffusion	Multiscale
Vertical diffusion	Eddy
Cloud scheme	ACM

의 연구에 따르면 전 지구 규모에서 수행된 모사 결과를 동북아 지역에 대한 경계조건으로 이용한 모사 결과에서, 서울지역의 지표 오존 모사농도는 여름철(5월, 8월) 평균 1.7 ppb 가량 증가하였다.

대기질 모사와 함께 기여도 분석을 수행하였다. 대기질 모델을 이용한 기여도 분석방법은 크게 민감도(Sensitivity) 방법과 표식자(Tagging) 방법으로 구분할 수 있다. 표식자 방법의 경우 배출 단계에서 대상이 되는 배출원에 표식을 붙여 이동 및 생성에 따른 농도 변화를 추적한다. 대기질 모델에서 오존을 분석하기 위해 이용 가능한 진단 도구로는 OSAT (Ozone source apportionment technology; Dunker *et al.*, 2002; Yarwood *et al.*, 1996)이 있다. 표식자 방법의 경우 배출량과 농도가 음의 상관성을 보이는 경우를 고려하지 못하는 제한점이 있다(Koo *et al.*, 2009).

민감도 분석 방법은 배출량 변화에 따른 농도 변화를 토대로 기여도를 유추한다. 대표적으로 BFM (Brute Force Method; Yarwood *et al.*, 2004; Blanchard, 1999), HDDM이 있다. HDDM은 CMAQ 모델에 이용되는 입력 변수와 결과 사이의 관계를(지역 민감도, local sensitivity) 민감도 계수(sensitivity coefficient)로 제시한다(Hakami *et al.*, 2003). 배출량-농도 사이의 민감도 계수를 이용하면, 배출량 변화에 대한 농도 변화를 계산을 통해 추정할 수 있다. 그러나 지역 민감도를 이용하므로 배출량 변화가 증가할수록 농도 추정에 대한 오차 항 역시 증가하는 단점이 있다(Hakami *et al.*, 2003).

본 연구에서는 중국과 일본지역의 NO_x , VOC 배출량과 오존 모사농도 사이의 관계를 HDDM을 통해 계산하였다. HDDM 결과는 NO_x , VOC 배출량 변화에 따른 오존 농도의 변화 방향을 나타내는 1차 민감도 계수 (First-order sensitivity coefficient; $S_{\text{NO}_x}^{(1)}$, $S_{\text{VOC}}^{(1)}$)와 비선형적 변화를 고려할 수 있는 2차 민감도 계수 (Second-order sensitivity coefficient; $S_{\text{NO}_x}^{(2)}$, $S_{\text{VOC}}^{(2)}$)가 산정된다. 산정된 민감도 계수는 Taylor expansion에 대입하여 식(1)과 같이 NO_x , VOC의 배출량 변화($\Delta\epsilon$)에 따른 오존 농도 변화를 추정할 수 있다(Cohan *et al.*, 2005).

$$C_{\Delta\epsilon_i} \approx C_0 + \Delta\epsilon_i S_i^{(1)} + \frac{1}{2} \Delta\epsilon_i^2 S_i^{(2)} \quad (1)$$

여기에서 $C_{\Delta\epsilon_i}$ 는 추정된 오존 농도 변화, C_0 는 기본 모사농도, $\Delta\epsilon_i$ 는 배출량 i (NO_x 또는 VOC)의 변화율, $S_i^{(1)}$, $S_i^{(2)}$ 는 배출량 i 의 1차 민감도 계수와 2차 민감도 계수이다.

전구물질 배출량의 삭감률을 100%로 가정할 때의 농도 변화는 ZOC (Zero-Out Contribution; Cohan *et al.*, 2005)라 하며, 식(2)와 같이 계산할 수 있다. 본 연구에서는 ZOC _{i} 를 배출량-농도 비선형성을 고려한 기여도로 이용하였다.

$$\text{ZOC}_i = C_0 - C_{\Delta\epsilon_i} = -S_i^{(1)} + \frac{1}{2} S_i^{(2)} \quad (2)$$

3. 결 과

3.1 기상 및 대기질 모사 수행 평가

대기화학 모델을 이용하여 대기오염 현상을 분석하기 위해서는 기본적으로 이용된 기상 입력자료 및 대기 모사농도의 재현성 검토가 필요하다. 기상 모사 결과의 정합도를 평가하기 위해 MADIS (Meteorological Assimilation Data Ingest System; 그림 2 참조) 관측자료를 이용하였다. 그림 2와 표 3은 중국과 국내를 구분하여 2m 온도 및 10m 풍속에 대한 시계열 및 통계치를 제시하였으며, 풍향의 경우 $0^\circ \sim 180^\circ$,

$180^\circ \sim 360^\circ$ 가 서로 대칭을 이루고 있기 때문에, Jimenez and Dudhia (2013)의 방법을 따라 식(3)과 같이 관측과 모사된 풍향의 차이(Δd)를 계산하고 Relative RMSE (root mean square error)를 제시하였다.

$$\Delta d = \begin{cases} d_{\text{WRF}} - d_{\text{obs}} & \text{if } d_{\text{WRF}} - d_{\text{obs}} \leq |180| \\ d_{\text{WRF}} - d_{\text{obs}} - 360 & \text{if } d_{\text{WRF}} - d_{\text{obs}} > 180 \\ d_{\text{WRF}} - d_{\text{obs}} + 360 & \text{if } d_{\text{WRF}} - d_{\text{obs}} < -180 \end{cases} \quad (3)$$

모사기간 동안 평균적인 통계 분석 결과를 보면 2m 온도에 대한 상관계수(R)은 0.96~0.98, 오차(RMSE)는 $0.8^\circ\text{C} \sim 1.6^\circ\text{C}$, 10m 풍속에 대한 R값은 ~0.8, RMSE는 0.6~0.8 m/s의 정합도를 보였다. 풍향의 경우 $19^\circ \sim 27^\circ$ 사이의 Relative RMSE를 보였다. 본 연구에 이용된 기상 모사 자료는 Emery *et al.* (2001)에서 제안한 통계값의 기준치 (2m 온도: Gross error ≤ 2 K, Bias $\leq \pm 0.5$ K; 10m 풍속: RMSE ≤ 2 m/s, Bias $\leq \pm 0.5$ m/s)와 비교하였다. 온도의 경우 중국 지역에 대해서는 기준치 이내의 편차를 보였으며, 국내 지역에 대해서는 기준치보다 약 1K 가량 편차가 크게 모사되었다. 풍속의 경우 중국과 국내 모든 지역에 대해 제시된 기준치를 만족하였다.

그림 3은 광양만 지역의 도시대기측정망 7개소(부록 2 참조)를 기준으로 오존과 질소산화물의 1시간 평균 모사농도와 관측농도를 비교한 것이다. 오존은 5월 8일, 15일, 22일에 100 ppb 이상이 관측되었으며, 특히 5월 27일 중동 측정소에서 148 ppb의 최대 농도가 관측되었다. 모사결과는 100 ppb 이상의 고농도 오존이 관측된 경우 -13%~10% 가량의 편차를 보였다. 모사기간 동안 1시간 평균 오존에 대한 관측농도와 모사농도의 상관계수는 0.74였으며, 평균 편차는 2.5 ppb를 보였다. NO_2 의 경우 약 20% 과대 모사를 보이나, 상관계수 0.53, 기간 평균 편차는 5 ppb 수준을 보였다.

모사농도에 대한 수행평가는 Emery *et al.* (2017)이 제시된 광화학 모델을 이용한 오존 모사의 최소기준 (Normalized Mean Bias; NMB + - < 15%, Normalized Mean Error; NME + - < 25%, 상관계수; R > 0.5)과 목표기준 (NMB + - < 5%, NME + - < 15%,

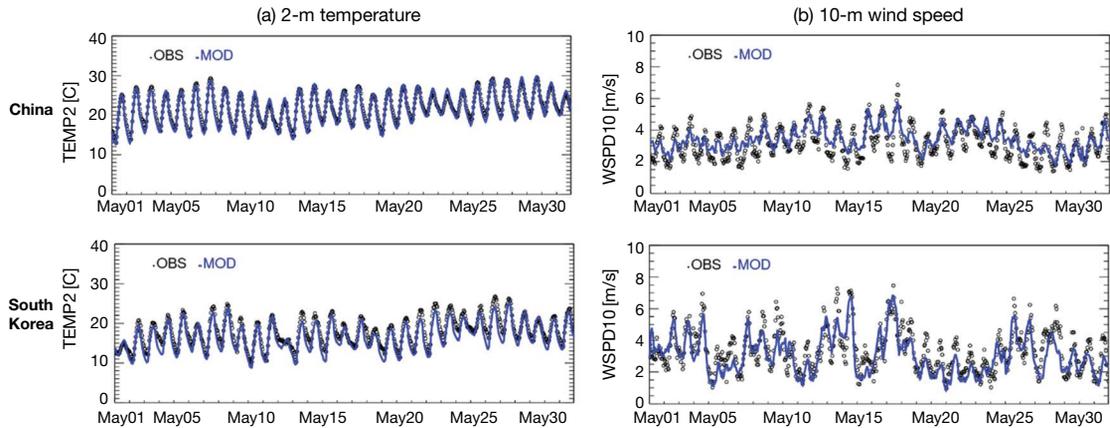


Fig. 2. Time series of observed and predicted 2 m temperatures and 10 m wind speeds in China and South Korea.

Table 3. Performance statistics of the WRF simulation for 2 m temperatures, 10 m wind speeds, 10 m wind directions.

Variables	Statistics	China (30 sites)	South Korea (14 sites)
2 m temperature (°C)	Mean (observed)	21.9	17.8
	Mean (predicted)	21.6	16.5
	R ¹⁾	0.98	0.96
	RMSE ²⁾	0.8	1.6
10 m wind speed (m/s)	Bias	-0.4	-1.3
	Mean (observed)	3.2	3.3
	Mean (predicted)	3.4	3.1
	R	0.80	0.82
10 m wind direction (degree)	RMSE	0.6	0.8
	Bias	0.2	-0.3
	Relative RMSE ³⁾	27.7	19.2

¹⁾R: Correlation coefficient; ²⁾RMSE: Root Mean Square Error; ³⁾Relative RMSE: Jimenez and Dudhia (2013)

R>0.75)을 기준으로 비교하였다. 본 연구에서 도출된 광양만 지역의 오존 모사 결과는 NMB 1.97%, NME 21.3%로 각각의 목표기준과 최소기준을 만족하며, R값은 0.74로 목표기준에 가까운 값을 보였다.

오존의 장거리 이동 영향 분석을 위해서는 풍상에 해당하는 국외 및 국내 지역에 대한 모사 재현성 검토 역시 필요하다. 다만, 본 연구의 모사기간에 대하여 중국, 일본 등 국외 대기질 관측농도 확보가 어려운 점을 보완하기 위해 국내 배출 영향이 상대적으로

낮은 국가 배경농도 관측소(석모, 저구, 태화, 파도; NIER, 2016)를 대상으로 모사 재현성을 평가하였다(그림 4). 해당 관측소에서 모사농도와 관측농도의 비교결과를 보면 앞서 보인 광양만 지역과 유사하게 과대 모사가 나타나나(평균 15%), 상관계수는 0.69~0.76 수준으로 제시되었다. 배경 측정소에 대한 통계 또한 Emery *et al.* (2017)에서 제시된 최소기준에 부합되었다. 향후 동북아 지역에서 대기오염물질 장거리 이동에 의한 국가간 영향 분석 시에는 수평 해상도를 비롯한 모사 구성, 이용되는 입력자료 등에 대한 면밀한 평가가 중요할 것으로 판단된다.

3.2 중국과 일본 배출량에 대한 오존 민감도

그림 5는 모사기간 중 주간 동안(8시~17시) 광양만 8시간 평균 오존 농도의 중국 NO_x 및 VOC 배출량에 대한 1차 및 2차 민감도 계수를 보인 것이다. 본 연구에서 민감도는 배출량 변화율에 따른 농도 변화를 의미하며, 앞서 제시한 식(1)을 이용하여 추정된다.

중국 NO_x 배출량에 대한 오존 농도의 1차 민감도는 베이징, 상하이와 같은 대도시에서는 음의 값을 보인다. 이는 NO_x 배출량이 감소할 경우 해당 지역의 오존 농도는 증가함을 의미한다. 중국 대도시의 경우 이동 오염원 등의 영향으로 NO_x 배출량이 높으며, VOC-limited 조건으로 알려져 있다(Xing *et al.*, 2011;

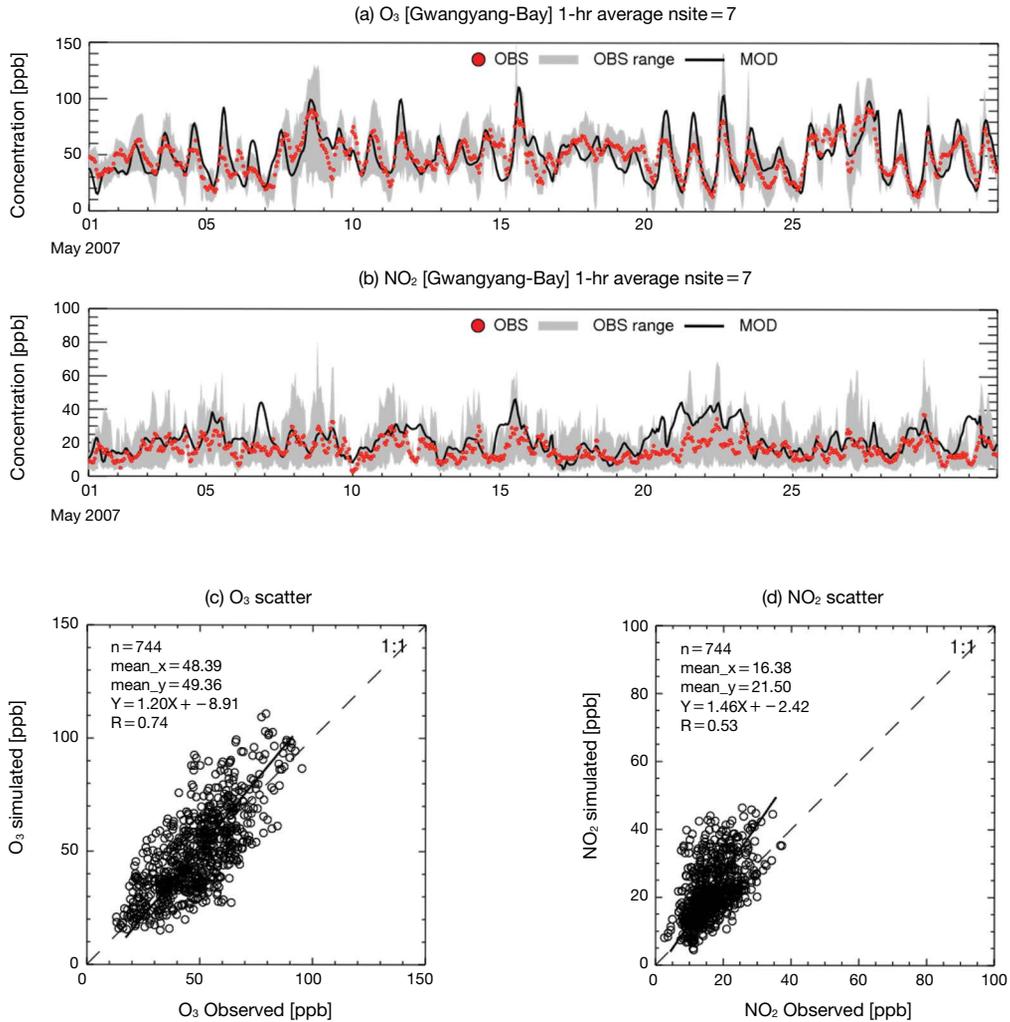


Fig. 3. Hourly variations of (a) O₃ and (b) NO₂ over Gwangyang bay during the simulation period of May in 2007.

Liu *et al.*, 2010). VOC-limited 조건에서 NO_x 배출량이 높을 경우 NO 적정에 의한 오존 감소 효과가 나타날 수 있다(Seinfeld and Pandis, 1998). 따라서 이러한 지역에서의 NO_x 배출량 감소는 NO 적정효과 감소로 이어지며, 이로 인해 해당지역의 오존 농도는 증가하게 된다.

반면, 풍하 지역인 한반도 지역에서 중국 NO_x 배출량에 대한 1차 오존 민감도 계수는 5~10 ppb로 모사되었다. 평균적인 민감도 계수임을 고려하면, 중국의

NO_x 배출량이 한반도와 광양만 지역의 오존 농도에 미치는 영향은 작지 않게 모사된다(그림 5(a)). 중국 VOC 배출량의 오존 농도에 대한 1차 민감도 계수는 NO_x와는 반대로 배출량이 많은 지역에서 높은 양의 값을 보인다. NO_x와 VOC 배출량의 오존에 대한 1차 민감도 계수의 절대값을 비교하면, NO_x 배출량에 대한 민감도 계수가 상대적으로 크며(그림 5(c)), 이는 대기 중 오존 농도 변화가 NO_x 배출량 변화에 더욱 민감한 것으로 해석할 수 있다.

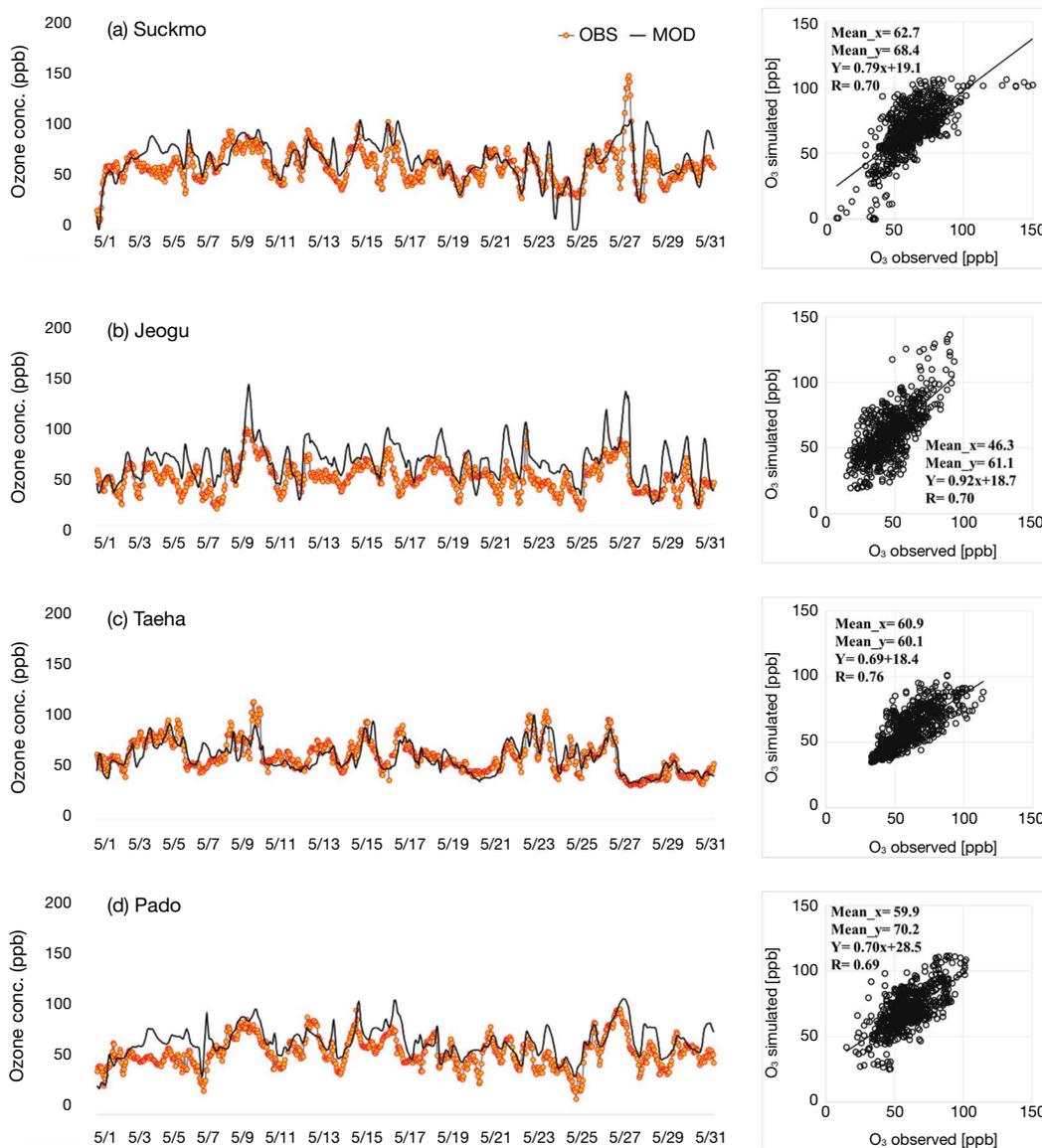


Fig. 4. Hourly variations of background monitoring sites ozone concentration during the simulation period of May in 2007: (a) Suckmo, (b) Jeogu, (c) Taeha, and (d) Pado.

비선형성 정도를 보이는 2차 민감도 계수의 경우 NO_x , VOC 배출량 모두에 대해 풍하 지역에서 음의 값을 보인다(그림 5 (b) & (d)). 본 연구 결과와 같이 1차 민감도 계수가 음의 값이고, 2차 민감도 계수 역시 음의 값인 경우 전구물질 배출량의 감소폭이 커질수

록 오존 농도의 감소폭이 더욱 증가함을 의미한다. 또한, 2차 민감도 계수가 증가할수록 식(2)를 통해 도출되는 배출량-농도 사이의 비선형성이 증가된다. 이러한 비선형성은 배출량-농도 관계에 대한 해석 시 오차를 유발하며, 배출량 변화폭이 50% 이상일 경우

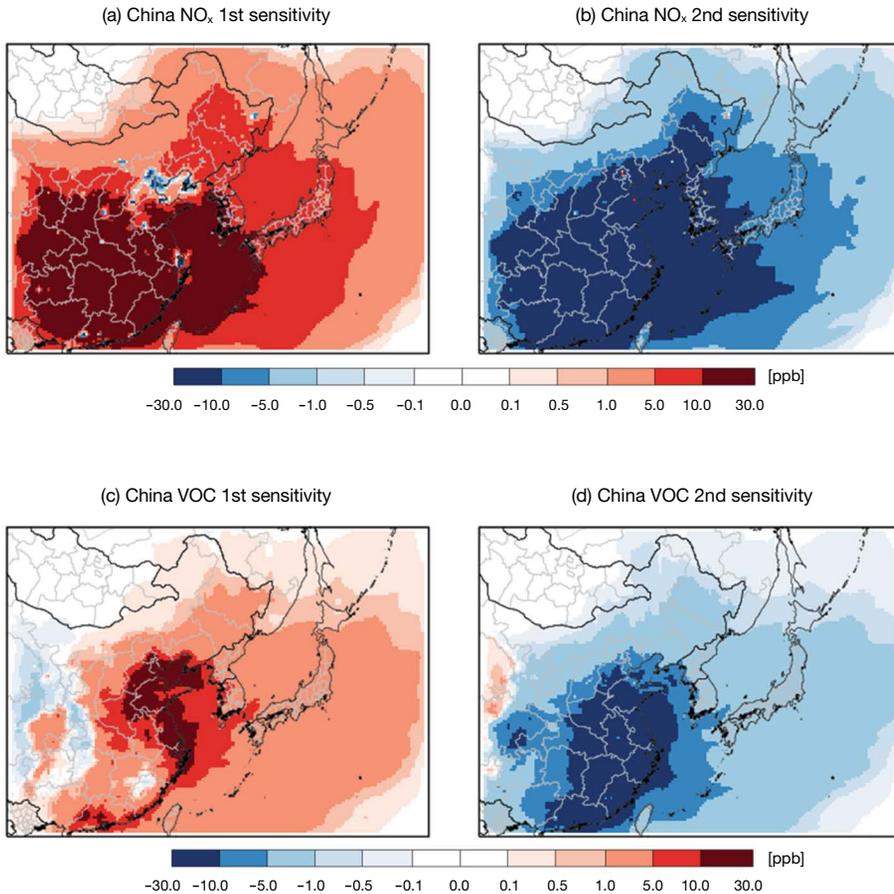


Fig. 5. Spatial plots of the first- and second-order sensitivity coefficients of daytime 8 hr ozone to Chinese NO_x and VOC emissions during the simulation period. Sensitivity coefficients between 8~17 KST were selected to calculate the daytime mean values.

HDDM을 통해 추정된 오염물질 농도 변화는 비선형성의 영향을 결과 분석에 감안해야 한다(Kim, 2011; Cohan *et al.*, 2005). 따라서 상대적으로 높은 2차 민감도 계수를 가지고 있는 중국 NO_x 배출량의 기여도는 추후 BFM 또는 OSAT 등 다양한 방법론을 이용한 교차 검토가 필요할 것으로 판단된다.

그림 6은 일본 NO_x 와 VOC 배출량에 대한 오존의 민감도 계수를 보인다. NO_x 배출량에 대한 오존의 1차 민감도 계수는 중국 경우와 유사하게 NO_x 배출량이 많은 도심 지역에서 음의 값을, 풍하 지역에서는 양의 값을 보였다. 계절풍의 영향으로 민감도 계수는

주로 배출원의 동쪽 풍하 지역에서 나타났으며, 모사 기간 평균적으로 일본 NO_x , VOC 배출량에 대한 국내 오존 농도의 1차 민감도 계수는 1 ppb 이하로 모사되었다.

3.3 중국 및 일본 배출량의 오존 기여도

그림 7은 광양만 지역의 7개 측정소에서 8시간 평균 오존 농도에 대한 중국과 일본 배출량의 추정 기여도(ZOC)를 시간별로 보인 것이다. 대상기간 평균 중국 배출량에 의한 기여도는 26.8 ppb로 광양만 지역 8시간 평균 오존 농도의 50% 정도에 해당한다. 중

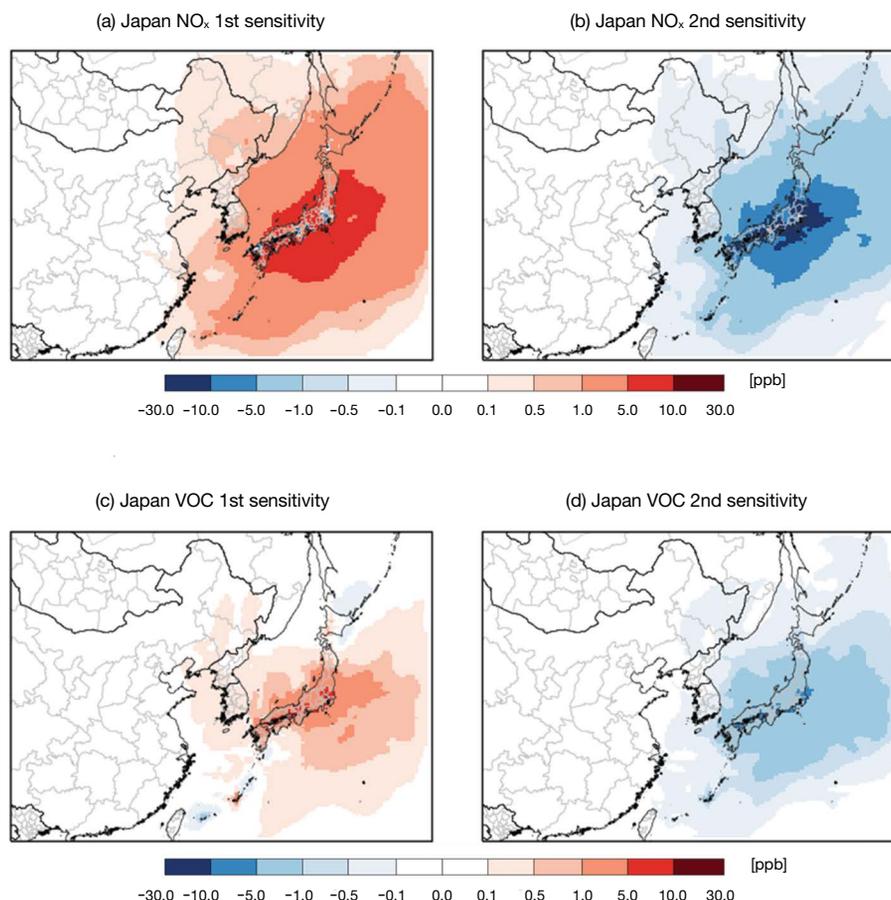


Fig. 6. Spatial plots of the first- and second-order sensitivity coefficients of daytime 8 hr ozone to Japanese NO_x and VOC emissions during the simulation period. Sensitivity coefficients between 8~17 KST were selected to calculate the daytime mean values.

국 배출량 기여도 중 NO_x 배출량이 19.2 ppb (38%), VOC 배출량이 7.6 ppb (15%)를 보여, 광양만 지역 8시간 평균 오존 농도에 대한 기여도에서 중국 NO_x 배출량이 중국 VOC 배출량보다 2.5배 가량 높게 모사되었다. 중국 배출량의 기여도는 광양만 지역 8시간 평균 오존 농도가 고농도로 (60 ppb 이상) 모사된 경우와 60 ppb 이하로 모사된 경우 각각 35.6 ppb (50%), 23.4 ppb (54%)로 상대적인 기여도는 유사하게 나타났다. 중국 배출량이 광양만 지역의 8시간 평균 오존 농도에 미치는 최대 기여도는 79.2 ppb (5월 27일)로 모사되었으며, 일부 시간에 대해서는 광양만 지역에

서 발생하는 고농도 오존 농도에 대한 중국 배출량 기여도가 매우 높게 증가하였다.

일본 NO_x 배출량이 광양만 지역의 8시간 평균 오존 농도에 미치는 기여도는 대시간 평균 1.7 ppb, VOC 배출량의 기여도는 0.4 ppb 수준으로 모사되었다. 단, 일본 NO_x 배출량의 광양만 오존 농도에 대한 영향은 빈번하게 나타나지 않으나, 최대 기여도는 23.9 ppb까지 상승하는 경우도 모사되었다. 일본 배출량의 기여도는 전체 모사일 중 일부 기간(5월 1일, 6일, 20일~25일, 28일~30일)에만 한정되어 나타나는데, 이는 모사기간 동안 이 지역에서 서풍 계열의

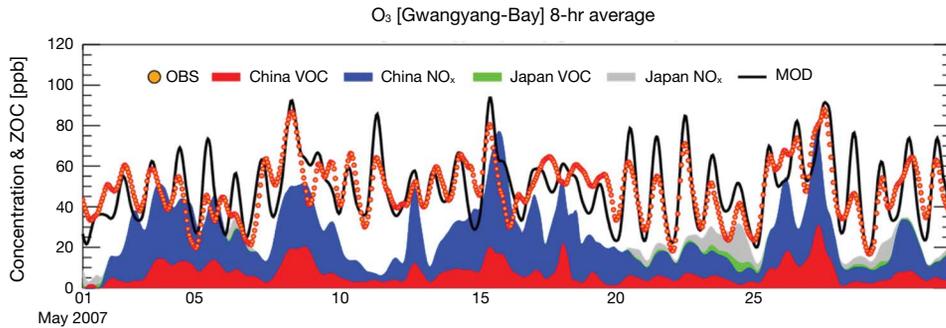


Fig. 7. Hourly variations of observed and simulated 8 hr ozone concentrations and ZOCs of Chinese and Japanese NO_x and VOC emissions to 8hr ozone over the Gwangyang bay during the simulation period.

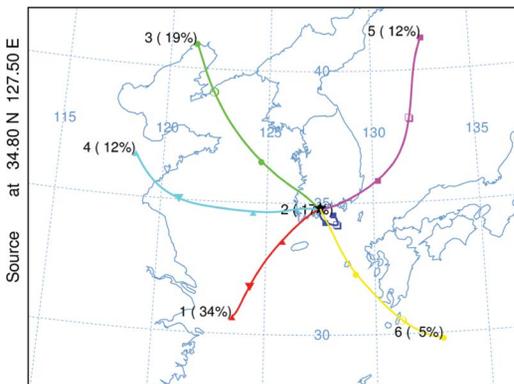


Fig. 8. HYSPLIT clustering of trajectories during modeling period at Gwangyang bay from 100 m altitude.

주풍향으로 인해 일본으로부터의 오존 및 전구물질 유입은 제한적이기 때문에 보인다. 이와 같은 결과는 광양만 지역에 대하여 오존에 대한 국내외 기여도를 검토한 국립환경과학원 보고서(NIER, 2011)와 유사하다.

그림 8은 대상기간 동안 광양만 지역으로 이동하는 대기의 유입 경로를 분석한 것으로, HYSPLIT (Draxler and Hess, 2004)을 이용하여 36시간 동안의 역궤적 분석을 수행하였으며, 역궤적 시작 고도는 100m로 설정하였다. 역궤적 분석 시, 적절한 고도 설정을 위해 선행 연구를 참고하였으며, 대기오염물질의 장거리 이동과 관련된 다수의 연구에서 역궤적 분석을 위해 100 m 고도를 이용하였다(Byčenkienė et

al., 2014; Liu et al., 2013; Riuttanen et al., 2013; Sogacheva et al., 2007). 다만, 역궤적 분석 시 시작 고도가 낮을 경우 지표 및 지형에 의한 영향을 받을 수 있다(NOAA, 2015). 본문에 보이지는 않았으나 100 m 이외에도 500 m와 1000 m에 대한 역궤적 분석 또한 수행하였으며, 100 m에 대한 분석 결과와 유사한 유입 경로가 나타났다. 그림 8은 매 시간별 역궤적 분석을 수행하고, 그 결과를 여섯 개의 군집(Cluster)으로 나누는 것으로 각 유적선은 군집의 대표적인 대기 이동 경로를 보인다. 군집의 구분은 total spatial variance (Stein et al., 2015a, b)를 고려하여 6개로 구분하였다.

군집 분석 결과에 따르면 모사기간 동안 광양만 지역에 유입된 대기는 65%가 중국에서 기원하였다. 이 중 34%는 상하이 지역에서(군집 1), 12%는 산둥 지역(군집 4), 그리고 19%는 대련과 산둥 인근 해역을 거쳐 유입되었다(군집 3). 일본 남부 지역에서 유입은 5% 정도이며(군집 6), 국내 정체는 17% 가량으로 조사되었다(군집 2). 대상 기간이었던 2007년 5월의 경우 해당 지역에서는 서풍 계열의 풍향이 자주 나타났으며, 이로 인해 다른 지역에 비해 중국 배출량이 광양만 오존 농도에 높은 영향을 미친 것으로 보인다. 특히, 유적선 분석 결과에서 모사기간 동안 남서풍이 가장 우세하였는데, 이는 상하이 인근의 대기가 광양만 지역으로 이동하였을 가능성이 높았던 기간으로 판단할 수 있다.

Table 4. 8 hr average ozone concentration and foreign contribution of each cluster on Gwangyang bay.

(Unit: ppb)

	N Data (hr)	8 hr O ₃ (ppb)	Contribution			
			China NO _x emission	China VOC emission	Japan NO _x emission	Japan VOC emission
Cluster 1	253	55.5	27.8 (50%)	11.6 (21%)	0.5 (1%)	0.1 (<1%)
Cluster 2	130	49.5	10.3 (21%)	4.9 (10%)	2.7 (5%)	0.6 (1%)
Cluster 3	143	47.2	18.4 (39%)	5.9 (13%)	1.0 (2%)	0.2 (<1%)
Cluster 4	91	52.6	20.7 (39%)	7.2 (14%)	0.0 (<1%)	0.0 (<1%)
Cluster 5	92	45.4	11.1 (24%)	4.6 (10%)	2.6 (6%)	0.6 (1%)
Cluster 6	39	47.9	9.3 (19%)	4.0 (8%)	11.8 (25%)	3.1 (6%)

표 4는 유적선 분석에 따른 유입경로별 광양만 지역의 지표 오존 농도와 국외 기여도를 구분하여 보인 것이다. 가장 높은 오존 농도가 모사되는 유입 유형은 상하이 인근에서 대기가 유입되는 군집 1로, 국외 기여도(40 ppb, 72%) 역시 가장 높게 모사되었다. 특히 중국 NO_x 배출에 의한 기여도가 전체 오존 농도의 50% (27.8 ppb) 정도의 높은 기여율을 보였다. 그 다음으로 높은 오존 농도 모사는 산둥 지역에서 대기가 유입되는 군집 4에서 나타났다. 군집 4는 중국 중부 지역을 통해 대기가 유입되며, 군집 1과 비교할 때 오존 모사농도는 3 ppb (5%) 가량의 비교적 작은 차이를 보이거나 중국 배출량의 기여도는 11.5 ppb의 차이를 보였다. 즉 중국에서 대기가 유입되더라도 이동 경로에 따라 중국 배출량 기여도가 평균적으로 20% 가량 차이를 보일 수 있음이 관찰되었다. 이러한 군집 4와 군집 1의 중국 기여도의 차이는 발원지역의 배출 특성과 군집 4의 경우 유입 경로상에 위치한 남한 배출량의 상호 영향이 작용했을 것으로 추정된다. 이에 대한 상세한 분석은 본 연구의 범위에서 다루기 어려우며, 후속 연구를 통해 대기 유입 과정에서의 모사농도 및 기여도 변화에 대한 검토가 필요하다. 주로 대기가 국내에서 정체한 군집 2의 경우, 국외 기여도가 38%로 다른 군집에 비해 상대적으로 낮게 나타났다.

그림 9는 광양만 지역의 8시간 오존 모사농도와 국외 기여도를 시간대별로 평균하여 보인 것이다. 표 4를 기준으로 중국 상하이 및 중부 지역을 통해 대기가 유입되는 군집(그림 8; Clusters 1 and 4)과 국내 정체 군집(그림 8; Cluster 2)을 비교하였다.

중국 지역을 통해 대기가 유입된 경우, 광양만 지역의 8시간 오존 모사농도는 최대 67 ppb (11시), 최소 45 ppb (2시)로, 20 ppb 가량의 농도 차이를 보였다. 중국 배출량의 기여도는 낮 시간에 소폭 낮아지나 변동성은 10% 내외로 시간에 따른 차이는 크지 않다(그림 9(a)). 반면, 국내 정체로 구분된 군집의 경우 시간에 따른 8시간 오존 농도는 최대 77 ppb (12시), 최소 28 ppb (2시) 수준으로 50 ppb 가량의 뚜렷한 차이를 보였다. 국외 기여도의 경우 일간 시간에 관계없이 20 ppb 수준의 기여도가 일정하게 모사되었다(그림 9(b)). 오존 모사농도와 국외 기여도의 차를 국내 배출에 의한 기여도로 가정할 경우, 국내 정체 시 국내 배출량의 기여도는 50 ppb 수준으로 국내 배출의 영향이 지배적으로 나타났다. 중국 지역을 통한 대기 유입 시에도, 낮 시간 국내 기여도는 20 ppb 가량이 국내 배출에 의한 것으로 구분되었다.

일반적으로 광화학 반응에 의해 생성되는 오존은 온도와 일사량이 높은 오후에 주로 농도가 증가하며, 야간에는 농도가 낮아진다(Oltmans and Levy, 1994). 그러나 국외 기여도는 시간에 따른 변동성이 거의 나타나지 않았으며, 이로 미루어 광양만 지역 오존에 대한 국외 배출량의 기여도는 유입 시점에 따라 결정되는 것으로 추정된다.

본 연구는 장거리 수송의 관점에서 지표 100 m 상공에서 공기괴의 유적선 분석을 수행하였기에 관측 농도에 영향을 미친 실제 공기괴의 이동과는 차이를 보일 수 있다. 다만 이러한 유적선 분석은 이동 경로를 추정하기 위한 것으로 실제 3차원 광화학 모델 분석에서는 고도별 풍향, 풍속 차이와 수직 혼합 과정

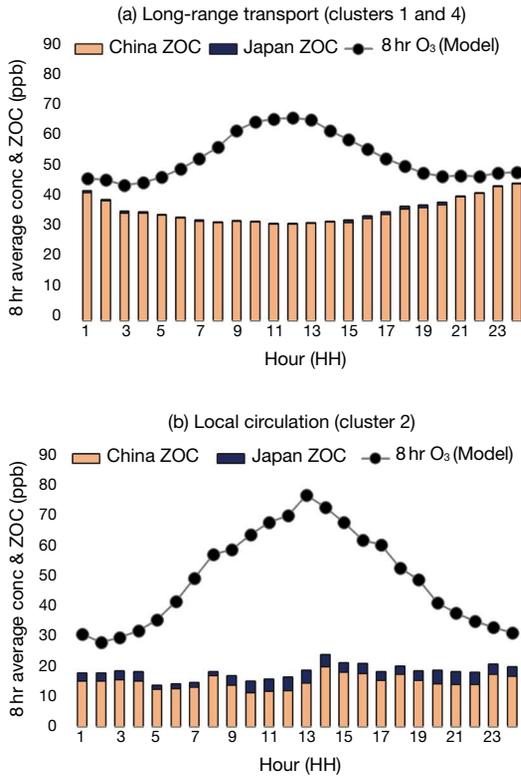


Fig. 9. Diurnal variation for simulated O₃ concentration and foreign contribution of O₃ on Gwangyang bay ((a) Long-range transport; (b) Local circulation).

이 반영된 결과가 수치로 제시되었다.

본 연구의 기여도 분석에 이용된 HDDM 방법은 배출량 변화에 따른 농도 변화를 예측할 수 있는 민감도 기법이다. 따라서 식(1)을 이용하면 최근 보고되고 있는 중국의 배출량 변화 추세를 감안한 광양만 지역의 농도 변화를 추정해 볼 수 있다. Wang *et al.* (2014)은 중국의 배출량 관리 계획을 고려하여 NO_x 배출량 28%, VOC 배출량 15% 감소를 전망하였다. 위와 같은 배출량 저감을 가정할 경우, 대상 모사기간 동안 광양만 지역의 고농도 8시간 오존 발현 빈도수는 68회(35%) 감소되는 것으로 모사되었다.

3.4 배출량 산정 불확실성을 고려한

모사농도 및 민감도 검토

대기질 모사에서 추정된 배출량 - 농도 민감도를

분석하면 배출량 입력자료의 불확실성에 의한 모사농도의 불확도 범위를 유추할 수 있다(Kim *et al.*, 2017c). 특히 휘발성유기화합물의 경우 배출량뿐 아니라 구성 물질의 성분비에 따라 오존 농도가 영향을 받을 수 있다(Ran *et al.*, 2011). 광양만 지역은 다량의 VOC 배출 지역으로, 국지적 VOC 배출량의 불확실성이 본 연구에서 모사한 오존 농도 및 국외 배출량과 광양만 지역 오존 농도 사이의 민감도 계수에 미치는 영향을 추가적으로 검토하였다. 이를 위해 광양만 지역의 고농도 오존 현상을 분석한 선행연구 결과를 참고하여 VOC 구성비를 조정한 민감도 실험을 수행하였다. Kim and Lee (2011)는 본 연구와 유사한 배출 목록을 이용하여 광양만 지역의 Ethene 농도의 과대 모사와 방향족(Aromatic)과 올레핀(Olefin) 계열 농도의 과소 모사를 보고하였다. 본 연구에서는 광양만 및 인근 지역의 Ethene 배출량은 50% 수준으로 삭감하고, ARO2와 OLE1 배출량은 200% 수준으로 증가시킨 후, 재 모사하였다.

그림 10은 광양만 지역 도시대기측정망이 위치한 개별 지점에서의 VOC 배출량 수정 전/후 O₃과 NO₂의 1시간 평균 농도를 보인 것이다. 모사기간 동안 O₃ 농도는 시간 최대 4.0 ppb (4.0%), 기간 평균 0.1~0.2 ppb (0.2~0.5%) 차이를 보였으며, NO₂ 농도는 시간 최대 0.5 ppb (0.8%), 기간 평균 0.01~0.04 ppb (~0.2%) 차이를 보였다. 광양만 지역 1시간 오존에 대한 1차 민감도 계수는 중국 NO_x 배출량에 대하여 최대 1.2 ppb, 중국 VOC 배출량에 대하여 최대 1.6 ppb 차이를 보였다. 이와 같은 민감도 계수 차이가 발생한 시각의 광양만 1시간 오존 모사농도는 101.4 ppb로, 광양만 VOC 배출량 변화에 따른 중국 기여도 변화를 식(2)를 이용하여 추정된 결과는 3% 가량 차이를 보였다.

VOC 배출량 조정 시 고려한 ETHENE, ARO2, OLE1은 오존 생성도가 높은 VOC로 알려져 있으나(Altenstedt and Pleijel, 2000), 광양만 지역 VOC 배출량 변화에 따라 산정된 중국 기여도에서 3 ppb 정도의 변화를 보였는데, 그 이유는 크게 세 가지로 추정

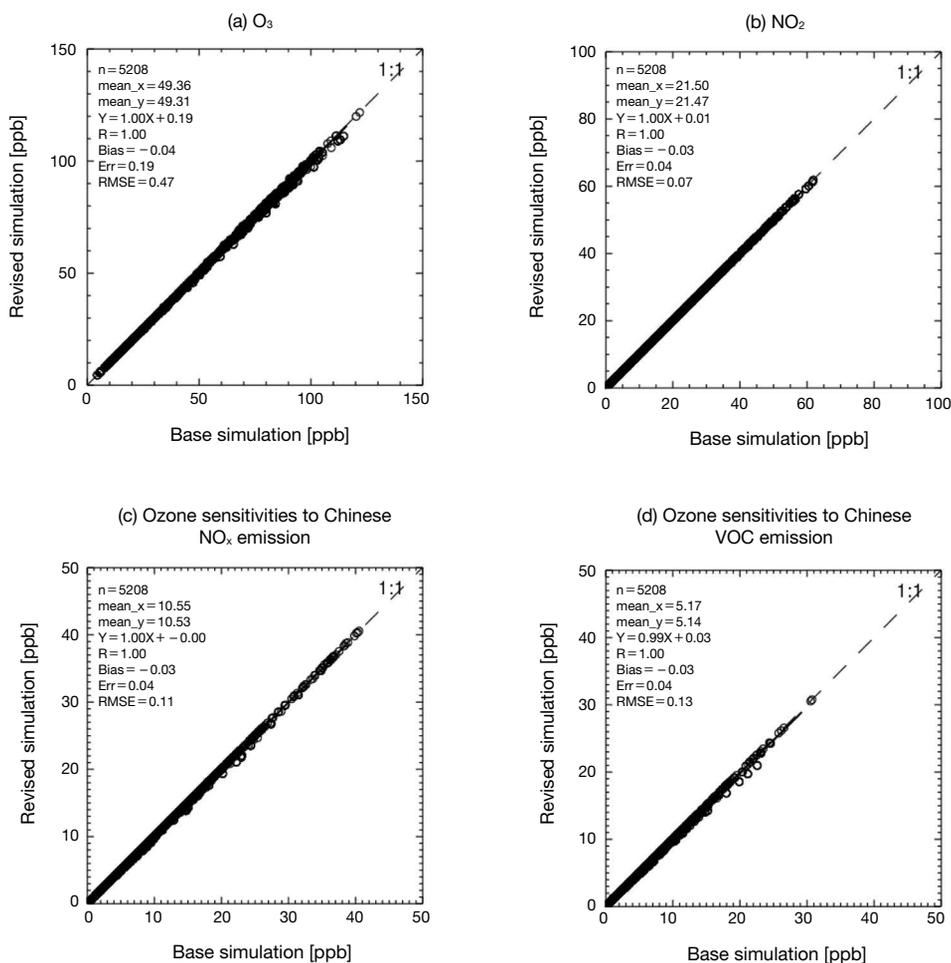


Fig. 10. Comparison of simulated concentration (a: O₃, b: NO₂) and ozone sensitivity to Chinese emission (c: NO_x, d: VOC) by emission revision on Gwangyang bay during the simulation period of May in 2007.

할 수 있다. 첫째, 대상 모사기간은 국외 배출의 영향이 크게 나타난 사례로 국내 배출량 변화에 의한 오존 민감도가 크지 않은 것으로 추정된다. 둘째, Kim and Lee (2011)에 따르면 국내에서 배출되는 Ethene, ARO1, OLE1 성분은 광양만 오존 농도에 모두 양의 민감도 계수를 가진다. 즉, Ethane 배출량 감소에 의한 오존 농도 감소, ARO1과 OLE1 배출량 증가에 의한 오존 농도 증가가 나타나 그 효과가 서로 상쇄되어 오존 농도 변화가 작게 나타난 것으로 판단된다. Kim and Lee (2011)에서도 VOC 배출량 조절 시 광양

만 지역의 일 최대 오존 농도 변화는 2ppb 정도로, 본 연구와 유사한 결과를 보였다. 셋째, 광양만 지역의 배출량 조절은 광양만 자체의 오존 농도보다는 인접한 풍하 지역에서 그 효과가 나타났다. 광양만에 인접한 동쪽 지역에서 시간 최대 4ppb의 오존 농도 차이가 모사되었다. 이러한 결과는 본 연구에서 제시한 중국 기여도의 불확도 범위가 작다는 의미보다는, 현재 도출된 기여도는 국내 휘발성유기물질 배출량 및 구성비 변화에 의해 크게 변화하지 않음을 뜻한다. 보다 상세한 오존 모사농도 및 기여도 분석은 향후

지속적인 모사 시스템 개선을 통해 보완이 필요할 것으로 예상된다.

4. 결 론

본 연구에서는 고농도 오존이 자주 발생하는 광양만 지역의 효과적인 오존 관리에 앞서, 장거리 수송에 의한 국외 배출량이 광양만 오존 농도에 미치는 기여도를 정량적으로 분석하였으며, 공기괴의 유입 경로에 따른 기여도 차이를 제시하였다.

최근 14년 동안 오존 주의보가 가장 많았던 2007년 5월을 대상으로 모사기간 동안 광양만 지역의 일 최대 8시간 평균 오존 농도는 68.8 ppb이었으며, 국외 배출량 기여도 가운데 중국 NO_x 기여도가 19.5 ppb (28%)로 가장 크게 나타났다. 그 다음으로는 중국의 VOC (8.8 ppb, 13%), 일본의 NO_x (1.9 ppb, 3%)와 VOC (0.6 ppb, 1%) 순서로 높은 기여도를 보였다. 이를 종합하면 본 연구에서 도출된 광양만 지역 일 최대 8시간 오존 농도에 대한 국외 배출량의 기여도는 45% 정도로, 기존연구에서 검토된 수도권 지역 오존 농도에 대한 국외 기여도 44%~52% (Kim *et al.*, 2017c)와 유사한 수준이다. 또한, 장거리 이동 시 NO_x 배출량 기여도가 VOC 배출량에 의한 기여도에 비해 높게 제시된 점 역시 유사하다.

역계적 근집 분석 결과를 살펴보면, 광양만 지역은 중국 상하이 인근 지역에서 대기가 유입되는 경우 가장 높은 오존 모사농도(55.5 ppb)와 국외 기여도(40 ppb, 72%)를 보였다. 상하이 인근에서 대기가 유입될 시, 산둥지역 대기 유입 시에 비해 국외 기여도가 20% 가량 높게 모사되었으며, 이는 발원지의 배출 및 기상 특성, 광양만 지역으로 대기가 유입되는 과정에서 국내 내륙지역의 경유 여부가 국외 배출량의 기여도에 영향을 미치는 것으로 판단된다.

대상 기간 동안 광양만 지역의 8시간 평균 오존 농도에 대한 국외 기여도는 일간 변동성은 작았으며, 이는 광양만 지역으로 유입되는 시점에 따라 국외 기

여도가 변화하기 때문에 판단된다. 중국의 배출량 저감 계획(NO_x: 28%, VOC: 15% 삭감)을 고려할 경우 대상 기간의 광양만 지역 고농도 오존 발현 빈도는 35% 가량 감소할 것으로 모사되었다. 다만, 제시된 수치는 대기질 모사 결과이며, 모사에 이용한 입력자료(기상, 배출량 등), 모델의 구성(격자 해상도, 물리화학 옵션 등), 기여도 분석 방법론 등 다양한 불확실성을 포함한다. 본 연구는 국외 배출량에 대한 광양만 지역 오존의 민감도를 분석한 것으로, 향후 오염물질의 수송 중 화학과정과 오존, PAN, NO_z 등 유입 형태에 따른 구분과 영향 검토가 필요하다.

References

- Airkorea (2018) <https://www.airkorea.or.kr/> (accessed on Jan. 12, 2018).
- Altenstedt, J., Pleijel, K. (2000) An alternative approach to photochemical ozone creation potentials applied under European conditions, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 50(6), 1023-1036.
- Amann, M. (2008) Health risks of ozone from long-range transboundary air pollution, WHO Regional Office Europe, http://www.euro.who.int/__data/assets/pdf_file/0005/78647/E91843.pdf (accessed on Oct. 22, 2018).
- An, J., Ueda, H., Wang, Z., Matsuda, K., Kajino, M., Cheng, X. (2002) Simulations of monthly mean nitrate concentrations in precipitation over East Asia, *Atmospheric Environment*, 36(26), 4159-71.
- Benjey, W., Houyoux, M., Susick, J. (2001) Implementation of the SMOKE emission data processor and SMOKE tool input data processor in Models-3, US EPA, <https://nepis.epa.gov/Exe/ZyPDF.cgi/P100P6M5.PDF?Dockkey=P100P6M5.PDF> (accessed on Oct. 22, 2018).
- Blanchard, C.L. (1999) Methods for attributing ambient air pollutants to emission sources, *Annual Review of Energy and the Environment*, 24(1), 329-365.
- Byćenkienė, S., Dudoitis, V., Ulevicius, V. (2014) The use of trajectory cluster analysis to evaluate the long-range transport of black carbon aerosol in the south-eastern Baltic region, *Advances in Meteorology*, 2014(11).

- Byun, D., Schere, K.L. (2006) Review of the governing equations, computational algorithms, and other components of the Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system, *Applied Mechanics Reviews*, 59(2), 51-77.
- Carlton, A.G., Baker, K.R. (2011) Photochemical Modeling of the Ozark Isoprene Volcano: MEGAN, BEIS, and Their Impacts on Air Quality Predictions, *Environmental Science and Technology*, 45(10), 4438-4445.
- Carter, W.P.L. (1999) Documentation of the SAPRC-99 chemical mechanism for VOC reactivity assessment, Report to California Air Resources Board, Contracts 92-329, 95-308, <http://www.engr.ucr.edu/~carter/pubs/s99doc.pdf> (accessed on Oct. 22, 2018).
- 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(2), 167-177. (in Korean with English abstract)
- Choi, K.-C., Lee, J.-J., Bae, C., Kim, C.-H., Kim, S., Chang, L.-S., Ban, S.-J., Lee, S.-J., Kim, J., Woo, J.-H. (2014) Assessment of transboundary ozone contribution toward South Korea using multiple source-receptor modeling techniques, *Atmospheric Environment*, 92, 118-129.
- 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.
- Cohan, D.S., Hu, Y., Russell, A.G. (2006) Dependence of ozone sensitivity analysis on grid resolution, *Atmospheric Environment*, 40(1), 126-135.
- Draxler, R.R., Hess, G.D. (2004) Description of the HYSPLIT 4 Modeling System, NOAA Technical Memorandum ERL ARL-224, <https://www.arl.noaa.gov/documents/reports/arl-224.pdf> (accessed on Oct. 22, 2018).
- Dunker, A.M., Yarwood, G., Ortmann, J.P., Wilson, G.M. (2002) Comparison of source apportionment and source sensitivity of ozone in a three-dimensional air quality model, *Environmental science and technology*, 36(13), 2953-2964.
- Emery, C., Tai, E., Yarwood, G. (2001) Enhanced meteorological modeling and performance evaluation for two Texas ozone episodes. Prepared for the Texas Natural Resource Conservation Commission, by ENVIRON International Corporation, 161, <https://www.tceq.texas.gov/assets/public/implementation/air/am/contracts/reports/mm/EnhancedMetModelingAndPerformanceEvaluation.pdf> (accessed on Oct. 22, 2018).
- Emery, C., Liu, Z., Russell, A.G., Odman, M.T., Yarwood, G., Kumar, N. (2017) Recommendations on statistics and benchmarks to assess photochemical model performance, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 67(5), 582-598.
- 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(1), 107-173.
- Ha, H., Lee, S.-D., Lee, J.-K., Park, C.-O., Mun, T.-R. (2006) On Characteristics of Surface Ozone Concentration and Temporal. Spatial Distribution in Kwangyang-Bay, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 22(5), 642-652. (in Korean with English abstract)
- Hakami, A., Odman, M.T., Russell, A.G. (2003) High-order, direct sensitivity analysis of multidimensional air quality models, *Environmental Science and Technology*, 37(11), 2442-2452.
- Hong, S.-C., Mun, G.-J., Lee, J.-B., Song, C.-G., Kim, S.-Y., Kim, S.-G. (2008) Analysis of Seasonal Characteristics of Long-range Transboundary Air Pollutants in Northeast Asia, *Proceeding of the 46st Meeting of KOSAE*, 657-659. (in Korean)
- Hong, S.-C., Lee, J.-B., Choi, J.Y., Moon, K.J., Lee, H.J., Hong, Y.D., Lee, S.J., Song, C.K. (2012) The Effect of the Chemical Lateral Boundary Conditions on CMAQ Simulations of Tropospheric Ozone for East Asia, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 28(5), 581-594. (in Korean with English abstract)
- Itahashi, S., Uno, I., Kim, S. (2012) Application of HDDM sensitivity analysis technique for the source-receptor analysis over East Asia, *Journal of Japan Society for Atmospheric Environment*, 47(5), 205-216.
- Itahashi, S., Uno, I., Kim, S. (2013) Seasonal source contributions of tropospheric ozone over East Asia based on CMAQ-HDDM, *Atmospheric environment*, 70, 204-217.
- Itahashi, S., Hayami, H., Uno, I. (2015) Comprehensive study of emission source contributions for tropospheric ozone formation over East Asia, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 120(1), 331-358.
- Jaffe, D., McKendry, I., Anderson, T., Price, H. (2003) Six 'new' episodes of trans-Pacific transport of air pollutants, *Atmospheric Environment*, 37(3), 391-404.
- Jiménez, P.A., Dudhia, J. (2013) On the ability of the WRF mod-

- el to reproduce the surface wind direction over complex terrain, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 52(7), 1610-1617.
- Kim, B.-U., You, S., Kim, H.C., Lim, Y., Suh, I., Lee, J.-B., Woo, J.-H., Kim, S. (2017a) Influence of Different Foreign Emissions Inventories on Simulated, Ground-Level Ozone in the Seoul Metropolitan Area during May 2014, *Aerosol and Air Quality Research*, 17(12), 3179-3193.
- Kim, E., Kim, B.-U., Kim, H.C. (2017b) The Variability of Ozone Sensitivity to Anthropogenic Emissions with Biogenic Emissions Modeled by MEGAN and BEIS3, *Atmosphere*, 8(10), 187.
- Kim, S., Moon, N., Byun, D. (2008) Korea emissions inventory processing using the US EPA's SMOKE system, *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 2(1), 34-46.
- Kim, S., Lee, C.-B. (2011) Estimating influence of local and neighborhood emissions on ozone concentrations over the Kwang-Yang bay based on air quality simulations for a 2010 June episode, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 27(5), 504-522. (in Korean with English abstract)
- Kim, S. (2011) Estimating Ozone Sensitivity Coefficients to NO_x and VOC Emissions Using BFM and HDDM for A 2007 June Episode, *Journal of the Environmental Sciences*, 20(11), 1465-1481. (in Korean with English abstract)
- Kim, S., Bae, C.H., Kim, E.H., You, S.H., Bae, M.A., Lee, J.B., Seo, I.S., Jae, L.Y., Kim, B.-U., Kim, H.C., Woo, J.H. (2017c) Domestic Ozone Sensitivity to Chinese Emissions Inventories: A Comparison between MICS-Asia 2010 and INTEX-B 2006, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(5), 480-496. (in Korean with English abstract)
- Koo, B., Wilson, G.M., Morris, R.E., Dunker, A.M., Yarwood, G. (2009) Comparison of source apportionment and sensitivity analysis in a particulate matter air quality model, *Environmental Science and Technology*, 43(17), 6669-6675.
- Lam, K.S., Wang, T.J., Chan, L.Y., Wang, T., Harris, J. (2001) Flow patterns influencing the seasonal behavior of surface ozone and carbon monoxide at a coastal site near Hong Kong, *Atmospheric Environment*, 35(18), 3121-3135.
- Liu, N., Yu, Y., He, J., Zhao, S. (2013) Integrated modeling of urban-scale pollutant transport: application in a semi-arid urban valley, Northwestern China, *Atmospheric Pollution Research*, 4(3), 306-314.
- Liu, X.-H., Zhang, Y., Xing, J., Zhang, Q., Wang, K., Streets, D.G., Jang, C., Wang, W.-X., Hao, J.-M. (2010) Understanding of regional air pollution over China using CMAQ, part II. Process analysis and sensitivity of ozone and particulate matter to precursor emissions, *Atmospheric Environment*, 44(30), 3719-3727.
- Ministry of Environment (MOE) (2012) A Study on Improvement and Expansion of Urban Scale PM_{2.5} Forecasting System. (in Korean)
- Ministry of Environment (MOE) (2013) The 2nd stage of air quality management plan over the Seoul Metropolitan Area. (in Korean)
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2004~2017) Annual Report of Ambient Air Quality in Korea (in Korean), <https://www.airkorea.or.kr/detail-ViewDown> (accessed on Oct. 22, 2018).
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2011) Investigation to analysis of high ozone concentration (III). (in Korean)
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2015) Clean air policy support system, <http://airemiss.nier.go.kr/main.jsp/> (accessed on Jan. 12, 2018). (in Korean)
- National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) (2015) Introduction to the HYSPLIT Trajectory Model, WMO GURME Regional Training Workshop on urban air quality modelling for ASEAN Countries, Petaling Jaya
- Oltmans, S.J., Levy, H. (1994) Surface ozone measurements from a global network, *Atmospheric Environment*, 28(1), 9-24.
- 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.
- Ran, L., Zhao, C.S., Xu, W.Y., Lu, X.Q., Han, M., Lin, W.L., Liu, P. F. (2011) VOC reactivity and its effect on ozone production during the HaChi summer campaign, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(10), 4657-4667.
- Riuttanen, L., Hulkkonen, M., Maso, M.D., Junninen, H., Kulmala, M. (2013) Trajectory analysis of atmospheric transport of fine particles, SO₂, NO_x and O₃ to the SMEAR II station in Finland in 1996-2008, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(4), 2153-2164.
- Seinfeld, J.H., S.N. Pandis (1998) *Atmospheric chemistry and physics from air pollution to climate change*, Wiley, New York.

- Skamarock, W.C., Klemp, J.B. (2008) A time-split nonhydrostatic atmospheric model for weather research and forecasting applications, *Journal of Computational Physics*, 227(7), 3465-3485.
- Sogacheva, L., Hamed, A., Facchini, M.C., Kulmala, M., Laaksonen, A. (2007) Relation of air mass history to nucleation events in Po Valley, Italy, using back trajectories analysis, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(3), 839-853.
- Stein, A.F., Draxler, R.R., Rolph, G.D., Stunder, B.J., Cohen, M.D., Ngan, F. (2015a) NOAA's HYSPLIT atmospheric transport and dispersion modeling system, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 96(12), 2059-2077.
- Stein, A.F., Ngan, F., Draxler, R.R., Chai, T. (2015b) Potential use of transport and dispersion model ensembles for forecasting applications, *Weather and Forecasting*, 30(3), 639-655.
- U.S. Environmental Protection Agency (US EPA) (2007) Guidance on the Use of Models and Other Analyses for Demonstrating Attainment of Air Quality Goals for Ozone, PM_{2.5}, and Regional Haze, <https://www3.epa.gov/scram001/guidance/guide/final-03-pm-rh-guidance.pdf> (accessed on Oct. 22, 2018).
- U.S. Environmental Protection Agency (US EPA) (2013) Integrated Science Assessment for Ozone and Related Photochemical Oxidants, EPA 600/R-10, http://ofm-pub.epa.gov/eims/eimscomm.getfile?p_download_id=511347 (accessed on Oct. 22, 2018).
- Wang, S.X., Zhao, B., Cai, S.Y., Klimont, Z., Nielsen, C.P., Morikawa, T., Woo, J.H., Kim, Y., Fu, X., Xu, J.Y., Hao, J.M., He, K.B. (2014) Emission trends and mitigation options for air pollutants in East Asia, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(13), 6571-6603.
- Xing, J., Wang, S.X., Jang, C., Zhu, Y., Hao, J.M. (2011) Nonlinear response of ozone to precursor emission changes in China: a modeling study using response surface methodology, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(10), 5027-5044.
- Yarwood, G., Morris, R.E., Yocke, M.A., Hogo, H., Chico, T. (1996) Development of a Methodology for Source Apportionment of Ozone Concentration Estimates from a Photochemical Grid Model, Presented at the 89th AWMA Annual Meeting, Nashville TN, June 23-28.
- Yarwood, G., Morris, R.E., Wilson, G.M. (2004) Particulate Matter Source Apportionment Technology (PSAT) in the CAMx Photochemical Grid Model, Proceedings of the 27th NATO/CCMS International Technical Meeting on Air Pollution Modeling and Application, Springer Verlag, Heidelberg.
- Zhang, Q., Streets, D.G., Carmichael, G.R., He, K.B., Huo, H., Kanari, A., Klimont, Z., Park, I.S., Reddy, S., Fu, J.S. (2009) Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(14), 5131-5153.

Authors Information

배창한 (아주대학교 환경공학과)

김병욱 (미국 조지아주 환경청)

김현철 (미국 국립해양대기청, 매릴랜드 대학 기후·위성 연구소)

김순태 (아주대학교 환경공학과)

Appendix 1. The number of valid sites and attainment rates of air quality standards for 8 hr average ozone concentrations (NIER, 2016).

	2011	2012	2013	2014	2015	2016
The number of valid sites	239	247	253	256	256	261
Attainment rates of air quality standards (%)	2.5	2.0	0.8	0.0	0.4	0.0

Appendix 2. Location of airquality monitors stations near by the Gwangyang bay.

Province	City	Site code	Site name	Location	Latitude (*DMS)	Longitude (DMS)
		336121	Gwangmu-dong	Gwangmu-dong 42-4	127 43 48.565	34 44 37.297
	Yeosu	336122	Samil-dong	Jungheung-dong 600	127 41 18.631	34 49 29.307
		336124	Wollae-dong	Wollae-dong 1392	127 43 28.712	34 51 00.689
Jeollanam-do		336352	Jung-dong	Jung-dong 1312-3	127 41 57.704	34 56 13.147
	Gwangyang	336353	Taein-dong	Taein-dong 1649	127 45 06.823	34 56 21.853
		336354	Jinsang-myeon	Jinsang-myeon Seomgeo-ri 292	127 43 14.296	35 01 06.017
		336355	Chilseong-ri	Gwangyang-eup Chilseong-ri -70	127 35 04.077	34 58 36.113

*DMS: Degrees (°), Minutes (′), Seconds (″)