

논문

CMAQ 모델을 이용한 2016년 국가배출목록 기반 배출부문별 광역 지자체 PM_{2.5} 농도 영향

Source Sectoral Impacts on Provincial PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016 using the CMAQ Model

강윤희, 김은혜¹⁾, 유승희²⁾, 배민아²⁾, 손규원²⁾, 김병욱³⁾, 김현철^{4),5)}, 김순태^{1),*}

아주대학교 환경연구소, ¹⁾아주대학교 환경안전공학과, ²⁾아주대학교 환경공학과

³⁾미국조지아주환경청, ⁴⁾미국국립해양대기청, ⁵⁾메릴랜드대학 기후·위성 연구소

Yoon-Hee Kang, Eunhye Kim¹⁾, Seunghee You²⁾, Minah Bae²⁾, Kyuwon Son²⁾,
Byeong-Uk Kim³⁾, Hyun Cheol Kim^{4),5)}, Soontae Kim^{1),*}

Environmental Research Institute, Ajou University, Suwon, Republic of Korea

¹⁾Department of Environmental and Safety Engineering, Ajou University, Suwon,

Republic of Korea

²⁾Department of Environmental Engineering, Ajou University, Suwon, Republic of Korea

³⁾Georgia Environmental Protection Division, Atlanta, GA, 30354, USA

⁴⁾Air Resources Laboratory, National Oceanic and Atmospheric Administration, College Park, MD, 20740, USA

⁵⁾Cooperative Institute for Satellite Earth System Studies, University of Maryland, College Park, MD, 20740, USA

접수일 2020년 10월 29일

수정일 2020년 12월 14일

채택일 2020년 12월 30일

Received 29 October 2020

Revised 14 December 2020

Accepted 30 December 2020

*Corresponding author

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

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

Abstract Zero-Out Contributions (ZOCs; impact) of air pollutants emitted from the thirteen major source sectors in South Korea on PM_{2.5} were estimated with a set of the Community Multi-scale Air Quality - Brute Force Method simulations in which emissions of each source sectors were totally removed in turn during the study period of 2019. During the emission sensitivity simulations, the Clean Air Policy Support System 2016 emission inventory was processed at a horizontal grid resolution of 9 km. Among 13 source sectors, agriculture showed a high impact (5.0 µg/m³) on the nation-wide PM_{2.5} concentration, but NH₄⁺ converted from the agricultural NH₃ emissions explained only 25% of the total impact. It means that about 75% of agricultural impact is mainly attributed to SO₄²⁻ and NO₃⁻ converted from their precursors released from other source sectors. Except agriculture, on-road mobile showed the highest nation-wide PM_{2.5} impact of 1.4 µg/m³ (8.0%) followed by industrial combustion (1.3 µg/m³; 7.6%), and non-road mobile (0.9 µg/m³; 5.3%). However, industrial combustion was the highest contributor in Chungnam (impact 3.0 µg/m³) while non-road mobile, on-road mobile, and manufacturing process was the predominant contributor for Busan (2.0 µg/m³), Daegu (2.1 µg/m³), and Ulsan (2.3 µg/m³), respectively. When the total impacts of precursor emissions on the nation-wide PM_{2.5} were compared, NO_x (2.4 µg/m³) showed the highest impacts on the PM_{2.5} followed by Primary PM_{2.5} (PPM_{2.5}; 1.9 µg/m³), NH₃ (1.5 µg/m³), and SO₂ (0.6 µg/m³). However, PPM_{2.5} became the dominant precursor that showed the highest impact (4.6 µg/m³) to the PM_{2.5} in Seoul. The national emission-to-concentration conversion rate of PPM_{2.5} was approximately 5 and 10 times higher than that of NO_x (to NO₃⁻) and SO₂ (to SO₄²⁻), respectively. However, the emission sectoral impacts and the emission-to-concentration conversion rates changed a few times among provinces. Overall, when developing provincial air quality improvement plans, it is strongly recommended to figure out their own key source sectors and the target precursors to regulate.

Key words: PM_{2.5}, Community Multi-scale Air Quality, Zero-Out Contribution, Source Sector, Precursor, Emission-to-concentration conversion rate

1. 서 론

2018년 국내 초미세먼지 (particulate matters of which aerodynamic diameter is less than 2.5 μm , $\text{PM}_{2.5}$) 농도에 대한 대기환경기준 (연평균 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이하, 일평균 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이하) 달성률이 0%일뿐 아니라 (MOE, 2020a; Son *et al.*, 2020a), 빈번한 고농도 발생으로 인해 국민건강이 크게 위협받고 있다 (Han *et al.*, 2020; Jung *et al.*, 2020; Kim *et al.*, 2020a). 이러한 고농도 $\text{PM}_{2.5}$ 문제의 해결을 위해 정부에서는 전국 $\text{PM}_{2.5}$ 측정소 확대, 2016년 한미대기환경합동조사 (KORUS-AQ, <https://espo.nasa.gov/korus-aq>), 2020년 환경위성 천리안 2B호 발사와 같은 고농도 $\text{PM}_{2.5}$ 발생원인 규명을 위한 연구 지원뿐 아니라 노후 경유차 및 노후석탄발전소 운행제한, 행정·공공기관 차량2부제 의무 적용, 사업장 총량관리지역 확대 등과 같은 다양한 $\text{PM}_{2.5}$ 관련 배출원 규제 노력을 기울이고 있다 (MOE, 2020b). 특히, 2019년부터 고농도 $\text{PM}_{2.5}$ 발생이 빈번한 겨울철을 집중적으로 관리하기 위한 ‘미세먼지 계절관리제’가 운영되어 12월~3월에는 수도권 및 6개 광역시 소재 공공기관 차량 2부제, 석탄발전 가동중단 및 상한제약 등을 시행하였다 (MOE, 2020c).

배출 규제에 대한 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 개선 효과는 기상조건과 지역 및 시행 시기에 따라 달라질 수 있다. 미세먼지 관리를 위한 배출 규제는 국가의 대규모 예산이 투입되는 공공정책이므로, 사회경제적 편익 산정을 통한 타당성 검토가 필요하다. 이 때문에 미세먼지 개선 계획의 수립과 효과 분석에는 배출량 삭감과 그에 따른 농도 변화와 함께 투자 재원의 효율성 평가를 위한 비용편익분석 평가가 동반되며, 효율적인 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 개선을 위해서는 배출원 종류와 오염물질, 시기, 지역별 단위 배출량당 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 변화율을 의미하는 배출-농도 전환율을 고려한 대책이 필요하다 (Kim *et al.*, 2019; Ju *et al.*, 2018; Moon and Seo, 2018; Kim *et al.*, 2017c).

기존 국내 연구에서 다양한 배출 규제에 따른 지역

별 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 변화 연구는 해당 배출 삭감량을 예측하고, 이를 반영한 대기질 모사를 통해 수행되었다 (Kim *et al.*, 2019; Kim *et al.*, 2017b; Kim *et al.*, 2017c; Kim *et al.*, 2017d). Bae *et al.* (2020b)에서는 대기질 모사를 통해 노후석탄발전 (영동화력, 보령화력, 삼천포화력) 가동중단에 따른 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 개선 효과를 계절별로 분석한 바 있다. 또한, Son *et al.* (2020b)은 2019년 계절관리제 기간 동안 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 변화 원인을 기상과 배출량으로 구분하여 검토하였다. 이들 연구의 대부분은 특정 배출원 또는 특정 기간을 대상으로 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 영향을 논의하였는데, 국내 전지역에서 $\text{PM}_{2.5}$ 농도가 대기환경기준을 초과하고, 계절관리제 등에서는 전국을 대상으로 배출량 삭감을 유도하고 있는 바, 국내 배출부문별 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 영향을 전국 및 광역 지자체별로 구분하여 정량해볼 필요가 있다.

본 연구에서는 2016년 국가대기오염물질 배출량 (Clean Air Policy Support System; CAPSS)을 기반으로 13개 배출부문별 배출량이 국내 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 및 질산염 (Nitrate)과 황산염 (Sulfate) 등 주요 구성 성분에 미치는 영향을 분석한다. 이를 위해 2019년에 대해 대기질 민감도 모사를 수행하고, 배출부문별 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 영향을 정량적으로 산출한다. 또한, 도출된 배출 영향을 전국과 각 광역 지자체별로 살펴보고 주요한 배출 부문과 배출물질을 논의한다. 최종적으로 $\text{PM}_{2.5}$ 농도에 대한 영향이 상대적으로 높은 배출부문에 대해 광역 지자체별로 배출-농도 전환율을 산정한다.

2. 연구 방법

2.1 배출량 자료

연구에 사용된 국내 배출량 자료는 환경부에서 생산/배포한 CAPSS 2016년 배출량 자료이다. 모사에 활용된 대기오염물질은 CAPSS 배출목록의 7가지 (CO , NO_x , SO_x , PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$, VOC , NH_3)이며, 국내 배출부문은 배출원 분류코드 (Source Classification Code; SCC)에 따라 에너지산업연소 (이후 SCC1로

표기), 비산업연소 (SCC2), 제조업연소 (SCC3), 생산 공정 (SCC4), 에너지수송 및 저장 (SCC5), 유기용제 사용 (SCC6), 도로이동오염원 (SCC7), 비도로이동오염원 (SCC8), 폐기물처리 (SCC9), 농업 (SCC10), 기타 면오염원 (SCC11), 비산먼지 (SCC12), 생물성연소 (SCC13)인 총 13가지로 대부분별로 구분하였다.

2.2 대기질 모사

본 연구에서는 국내 PM_{2.5} 농도에 대한 13개의 배출부문별 영향을 분석하기 위하여 2019년에 대한 CMAQ 모사를 수행하여 대상물질인 PM_{2.5} 농도와 구성성분 농도(황산염, 질산염 등)를 계산하였다. 사용한 CMAQ 모델은 버전 4.7.1이며, 모사영역은 중심 위경도 126°E, 38°N의 Lambert Conformal Conic Project (LCP) 좌표계를 기반으로 27 km 수평해상도의 동북아 영역(D1, 174×128 격자)과 9 km 수평해상도의 한반도 영역(D2, 67×82 격자)으로 구성하였다. CMAQ 모델의 연직층은 22층이며, 동북아 영역에 대한 초기/경계값은 CMAQ 모델에서 제공하는 대기오염물질 프로파일 자료 (Stockwell *et al.*, 1990)를 사용하였고, 한반도 영역에 대해서는 동북아 영역 CMAQ 모사 결과를 이용함으로써 중국으로부터의 오염물질 장거리 수송을 고려할 수 있게 설계하였다. CMAQ 모사 시, 가스상물질 화학 메커니즘은 SAPRC99 (Cater, 2000)를, 에어로졸 모듈은 AERO5 (Carlton *et al.*, 2010)를 적용하였고, 그 외 모델의 세부 옵션은 표 1에 정리하여 수록하였다.

CMAQ 모사를 위한 기상 입력자료와 배출량 입력자료 생성을 위해 각각 WRF (Weather Research & Forecasting; Skamarock *et al.*, 2008)과 SMOKE (Sparse Matrix Operator Kerner Emissions; Benjey *et al.*, 2001) 모델링을 수행하였다. WRF 기상 모사는 WRF 모델 버전 3.9.1을 이용하였으며, 초기조건은 NCEP에서 제공하는 6시간 간격, 1° 수평해상도의 FNL (Final) Operational Global Analysis 자료 (<http://dss.ucar.edu/datasets/ds083.2/>)를 이용하였다. 미세물리과정 (Microphysics) 방안은 WSM6 (Lim and Hong,

Table 1. The configurations for CMAQ modeling in this study.

Module	Option
Horizontal advection (ModHadv)	Hyamo
Vertical advection (ModVadv)	YAMO
Horizontal diffusion (ModHdiff)	Multiscale
Vertical diffusion (ModVdiff)	Eddy
Aerosol module (ModAero)	AERO5
Gas-phase chemistry solver (ModChem)	EBI
Deposition velocity calculation (ModDepv)	m3dry
Cloud module (ModCloud)	RADM
Gas-phase chemistry mechanism (Mechanism)	SAPRC99

2010), 대류와 구름, 강수 등의 물리과정을 계산하기 위한 적운모수화(Cumulus) 방안은 동북아 영역에 대해서만 Kain-Fritsch 옵션 (Kain, 2004)을 적용하였다. 복사모수화 (Radiation) 방안은 장파에 대해서는 RRTM (Mlawer *et al.*, 1997), 단파에 대해서는 Goddard 옵션을 사용하였으며, 대기경계층 (PBL) 방안은 non-local closure scheme인 YSU (Hong *et al.*, 2006), 최하층 대기와 지면 사이의 물, 에너지, 운동량 교환을 계산하는 Noah Land Surface Model (Noah LSM, Tewari *et al.*, 2004)을 적용하였다. 이와 함께 모델의 오차를 최소화하기 위해 대기경계층 내 기온, 바람, 습도에 대해 Grid analysis nudging을 적용하였다 (nudging 계수는 $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$). WRF 모사를 통해 계산된 시간별 3차원 기상인자(기온, 풍향, 풍속, PBL 등)는 MCIP (the Meteorology-Chemistry Interface Processor) 전처리과정을 통해 CMAQ 모델의 기상입력자료로 최종 변환되었다. 이와 함께 배출량 입력자료에 필요한 배출목록은 국외의 경우 격자화된 KORUSv5 배출량 (Woo *et al.*, 2020)을 사용하였고, 국내에 대해서는 2.1절에서 설명한 CAPSS 2016년 배출량을 SMOKE 모델링 (ver.3.1)을 통해 시간, 공간, 종할당 과정을 거쳐 CMAQ 모델에 입력가능한 형태로 변환하였다.

2.3 배출부문별 PM_{2.5} 농도 영향 및 배출 - 농도 전환을 산정

PM_{2.5} 농도에 대한 배출부문별 영향 평가는 BFM

(Brute Force Method)를 이용하였다. BFM은 기본 배출량에 대한 모사 농도와 변화된 배출량에 대한 모사 농도의 차이를 계산한 것으로, 배출량의 영향 평가에 대한 다수의 선행연구에서 적용된 바 있다(Bae *et al.*, 2020b; Kim *et al.*, 2019; Kim *et al.*, 2018; Kim *et al.*, 2017d; Burr and Zhang, 2011; Lee and Lee, 2004). 각 배출량의 PM_{2.5} 농도 영향을 계산하기 위한 BFM 적용 시, 대상 배출원 *j*에 대하여 기본 배출량을 이용한 모사 농도(C_{base})와 삭감된 배출량을 이용한 모사 농도(C_j)의 차이를 배출량 삭감 비율(Ef_j , 본 연구에서는 100%)로 나누어 계산하며(식(1)), 이를 Zero-Out Contribution (ZOC, 이하 ‘농도 영향’)이라고 한다. 본 연구에서는 CPASS 2016 국가배출목록의 배출원 대분류를 기준으로 13개의 배출부문을 구분하고, 배출 부문별 배출량을 각각 100% 삭감한 모사 농도(C_j , $j=1, 13$)를 통해 아래와 같이 배출부문별 농도 영향($ZOC_1, ZOC_2, \dots, ZOC_{13}$ 등)을 계산하였다. 다만, 식(1)에서 배출부문별 농도 영향은 시도별 배출량 삭감에 따른 모사가 아닌, 전국 전체 배출량 삭감에 따른 농도 변화를 바탕으로 산정하였다.

$$ZOC_j = (C_{base} - C_j) / Ef_j \quad (1)$$

C_{base} : 배출목록상의 배출량을 이용한 기본 모사 농도

C_j : 배출부문 *j*의 배출량을 제외한 모사 농도

Ef_j : 배출부문 *j*의 배출량 삭감 비율(본 연구에서는 대상 배출량 전체 삭감, 100%)

ZOC_j : 배출부문 *j* 배출량에 의한 PM_{2.5} 및 구성성분 농도 영향

또한, 각 광역 지자체에 대한 배출부문별 단위 배출량 저감에 따른 PM_{2.5} 농도의 개선 효과를 예측하기 위하여 배출량의 농도 전환율(Emission-to-concentration conversion Rate; CR_j) (Kim *et al.*, 2017b)을 제시하였다. 식(2)에서 각 대상물질별 배출-농도 전환율은 식(1)에서 계산된 농도 영향(ZOC_j)을 삭감된 배출량(E_j)으로 나누어 계산되며, 단위 배출량당 PM_{2.5} 농도 변환 비율로 해석된다. 본 연구에서는

NO_x, SO₂, Primary PM_{2.5} (PPM_{2.5})의 국내 전체 배출량에 대한 PM_{2.5} 중량농도 또는 성분농도에 배출 전환율을 17개 시도로 구분하여 계산하였다.

$$CR_j = ZOC_j / E_j \quad (2)$$

CR_j : 배출부문 *j* 배출의 대기 중 PM_{2.5} 농도 전환율 ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{MTPY}$)

E_j : 삭감된 국내 배출부문 *j*의 배출량(MTPY)

3. 연구 결과

3.1 기본모사 재현성 평가

각 배출부문의 PM_{2.5} 농도 영향 분석에 앞서 기본 모사를 대상으로 WRF, CMAQ 모사 결과의 재현성을 평가하였다. 먼저 WRF 기상 모사의 경우, 계산된 일평균 2-m 기온, 10-m 풍속을 전국 ASOS (Automated Synoptic Observing System) 77지점에 대해 통계 검증을 수행하였다. 2019년 관측된 전국의 연평균 기온은 13.5°C, 모사된 연평균 기온은 12.5°C로, WRF 모델이 전국 평균 -0.9°C만큼 과소 모사하였다. 반면 풍속은 관측값이 1.9 ms⁻¹, 모사값 3.4 ms⁻¹이었고, 측정소 평균 MB (Mean Bias)는 +1.5 ms⁻¹, RMSE (Root Mean Square Error)는 1.8 ms⁻¹이었다. 풍속의 경우, Emery *et al.* (2001)에서 제시한 통계기준 (Bias ≤ ±0.5 ms⁻¹, RMSE < 2 ms⁻¹)보다는 MB값이 크게 계산되었는데, 특히 남해 연안지역에서 풍속 과대모사 경향이 크게 나타났다(보충자료의 그림 S1 참고). 이는 9 km 격자 해상도를 갖는 WRF 모사에서는 고려하기 어려운 복잡한 해안선 및 지형에 의한 오차로 해석될 수 있다(Jeong *et al.*, 2012; Hogrefe *et al.*, 2001). 기온과 풍속의 지점별 평균 상관관계수(R) 값은 각각 0.99, 0.74로 관측값과 높은 일치도를 보였고, 관측값에서 나타난 시간변화를 WRF 모델이 유사하게 재현하는 것으로 평가된다(그림 1(a), (b)).

CMAQ에서 계산된 PM_{2.5} 농도는 전국 도시대기측정망(406개소)에서 측정된 농도와의 통계검증을 통

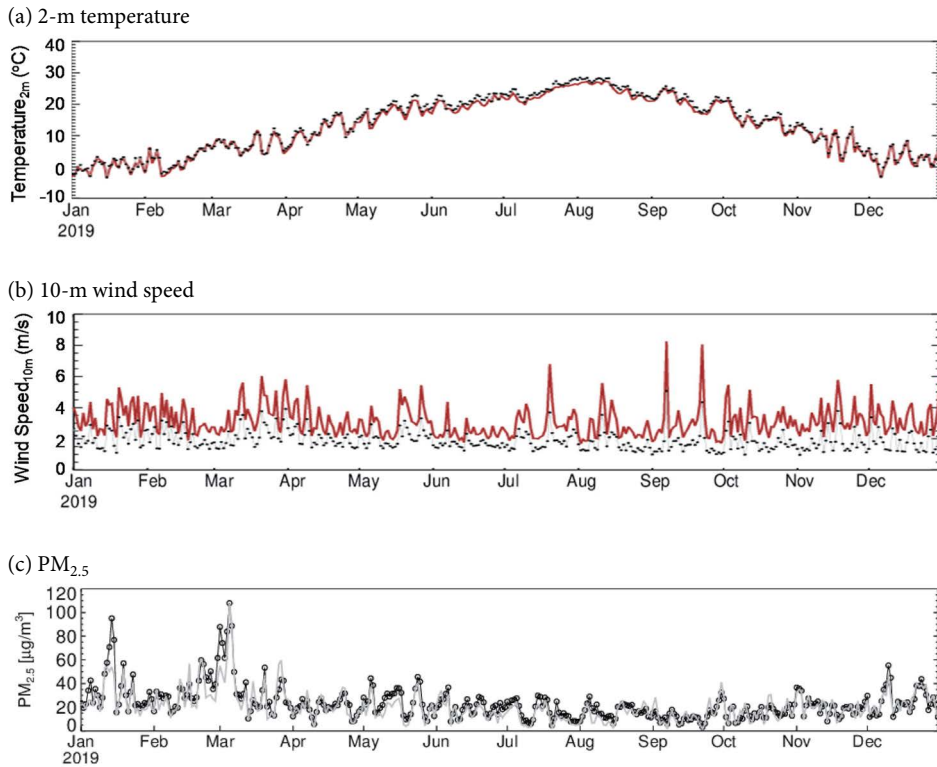


Fig. 1. Comparison of observed and simulated daily mean (a) 2-m temperature, (b) 10-m wind speed at 77 ASOS stations, and (c) PM_{2.5} concentrations at 406 urban air quality monitoring stations during 2019.

해 모사 재현성을 평가하였다. PM_{2.5}의 연평균 측정 농도는 20.6 µg/m³, 모사농도는 23.2 µg/m³로 CMAQ 모사결과가 측정농도와 비교하여 약 MB -2.6 µg/m³ 수준의 과소모의 경향을 보였으며, RMSE는 6.97 µg/m³, R 0.89의 일치도를 보였다. 겨울과 초봄의 PM_{2.5} 고농도와 이후 여름철 저농도와 같은 PM_{2.5} 측정농도의 시간변화를 모사 농도가 유사하게 재현하였다. 다만, 1월 중순(1월 11일~15일)과 3월 초순(2월 28일~3월 5일)에 발생한 PM_{2.5} 고농도 사례에서는 모사 농도가 측정값과 비교하여 다소 낮게 계산되었다.

전국에 위치한 6지점의 대기오염집중측정소(서울, 인천, 광주, 대전, 울산, 제주)에서 측정된 일평균 PM_{2.5} 및 구성성분 농도와 모사농도를 비교하였고(그림 2) 지점별 1시간 평균 농도에 대한 모사평가는 보충자료의 표 S1에 제시하였다. 대기오염 집중측정

소의 PM_{2.5} 이온성분은 AIM (Ambient Ion Monitor)에서 채취된 시료를 이온성분 분석법(Ion Chromatography)을, 탄소성분은 OC/EC 분석기(SOCEC)를 이용한 TOT (Thermal Optical Transmittance) 분석법을 이용하여 채취된 1시간 간격 자료이다(NIER, 2019; Hwang *et al.*, 2020).

질산염의 경우, 연평균 측정 및 모사 농도는 각각 4.4 µg/m³, 6.0 µg/m³로 모사농도가 약 1.5 µg/m³ 정도 과대 모사된 반면, 황산염은 측정 및 모사 농도가 각각 4.0 µg/m³, 3.0 µg/m³으로 약 1.0 µg/m³ 정도 과소 모사하였다. 암모늄은 측정농도가 3.0 µg/m³, 모사농도가 2.9 µg/m³로 유사한 수준이었다. 측정 및 모사농도의 상관계수는 질산염, 황산염, 암모늄 각각에 대해 0.84, 0.74, 0.86로 계산되었다. 유기탄소(Organic Carbon; OC)는 측정 및 모사 농도가 각각 3.0 µg/m³,

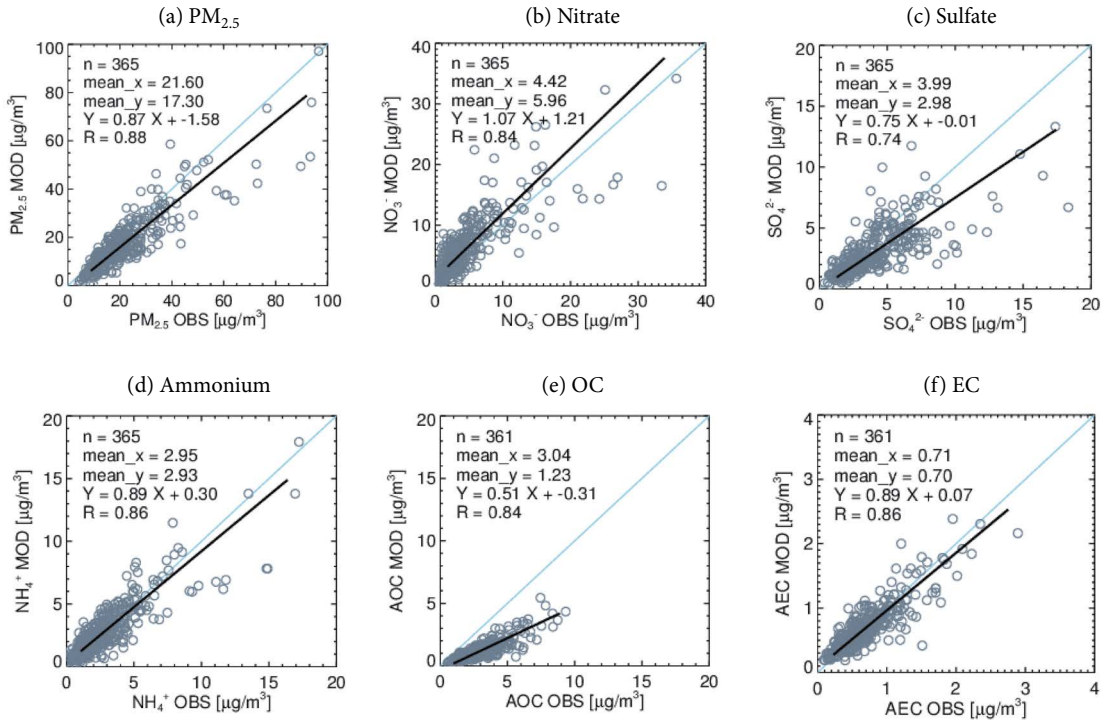


Fig. 2. Scatter plots of the observed and simulated daily mean concentrations of (a) $PM_{2.5}$, (b) nitrate, (c) sulfate, (d) ammonium, (e) OC, and (f) EC averaged over six super sites during 2019.

$1.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 물질 중 과소 모사 경향이 비교적 큰 반면, 원소탄소 (Elemental Carbon; EC)는 측정과 모사 농도가 비슷한 수준으로 상관계수는 OC와 EC 각각에 대해 0.84, 0.86 수준이었다. 제시된 대기질 모사 결과에서 OC의 과소 평가를 고려하여 지역별 농도 영향과 전환을 논의에서 제외하였으며, EC의 경우 $PPM_{2.5}$ 에 포함하여 논의하였다.

3.2 배출부문별 대기오염물질 배출량

2016년 국내 배출부문별 대기오염물질 배출량 통계 (표 2)에서 $PPM_{2.5}$ 연배출량은 100,247 TPY (Ton per Year)이며, 이 중 가장 큰 비중을 차지하는 배출원은 제조업연소로 36,785 TPY (36.7%)이고, 그 다음은 비도로이동오염원에서 14,354 TPY (14.3%)이다. 반면 $PM_{2.5}$ 의 전구물질로 작용할 수 있는 NO_x 와 SO_x 는 각각 1,248,309 TPY, 358,951 TPY이 전국에서 배출되었고, NO_x 는 자동차를 포함한 도로이동오염원에서

452,995 TPY (36.3%), SO_x 는 생산공정에서 112,734 TPY (31.4%)이 배출되어 가장 높은 비중을 차지하였다.

국내 지자체별 배출환경은 다양하므로, 배출부문별 대기오염물질 배출량의 공간분포는 다르게 나타난다 (그림 3). 예를 들어, 단위면적당 NO_x 배출량에서는 에너지산업연소, 제조업연소, 생산공정 부문에서는 울산이 각각 $8,920 \text{ kg}/\text{year}/\text{km}^2$, $11,728 \text{ kg}/\text{year}/\text{km}^2$, $2,576 \text{ kg}/\text{year}/\text{km}^2$ 로 광역지자체 중 가장 많았으나, 도로이동오염원과 비도로이동오염원 부문에서는 각각 서울 ($62,907 \text{ kg}/\text{year}/\text{km}^2$)과 부산 ($32,617 \text{ kg}/\text{year}/\text{km}^2$)의 배출밀도가 높았다. 또한 특징적으로 충남에서는 다른 배출부문보다 에너지산업연소의 NO_x 배출밀도가 $6,319 \text{ kg}/\text{year}/\text{km}^2$ 로 매우 높았다. 이러한 NO_x 배출량 분포와 유사하게 단위면적당 SO_x 배출량도 에너지산업연소, 제조업연소, 생산공정 부문은 울산에서 가장 높았다. 다만 도로이동오염원에서는

Table 2. Annual emission amounts of NO_x, SO_x, VOC, NH₃, and Primary PM_{2.5} (PPM_{2.5}) released from the major source sectors in the CAPSS 2016 over South Korea. (unit: TPY)

Source classification category	NO _x	SO _x	VOC	NH ₃	Primary PM _{2.5}
Combustion in energy industries (SCC1)	145,445 (11.7%) ¹⁾	91,696 (25.5%)	8,001 (0.8%)	1,559 (0.5%)	3,253 (3.2%)
Non-industrial combustion (SCC2)	85,824 (6.9%)	24,015 (6.7%)	2,740 (0.3%)	1,415 (0.5%)	978 (1.0%)
Combustion in manufacturing industries (SCC3)	175,332 (14.0%)	86,593 (24.1%)	3,342 (0.3%)	672 (0.2%)	36,785 (36.7%)
Production process (SCC4)	55,932 (4.5%)	112,734 (31.4%)	186,104 (18.2%)	42,489 (14.1%)	5,191 (5.2%)
Storage and distribution of fuels (SCC5)	-	-	30,160 (2.9%)	-	-
Solvent use (SCC6)	-	-	558,004 (54.5%)	-	-
On-road mobile (SCC7)	452,995 (36.3%)	231 (0.1%)	47,561 (4.6%)	5,071 (1.7%)	9,748 (9.7%)
Non-road mobile (SCC8)	309,986 (24.8%)	41,443 (11.5%)	40,816 (4.0%)	117 (0.0%)	14,354 (14.3%)
Waste treatment and disposal (SCC9)	13,570 (1.1%)	2,161 (0.6%)	58,988 (5.8%)	22 (0.0%)	252 (0.3%)
Agriculture (SCC10)	-	-	-	237,017 (78.7%)	-
Other sources & sinks (SCC11)	167 (0.0%)	-	624 (0.1%)	12,924 (4.3%)	275 (0.3%)
Fugitive dust (SCC12)	-	-	-	-	17,286 (17.2%)
Biomass burning (SCC13)	9,059 (0.7%)	78 (0.0%)	87,687 (8.6%)	15 (0.0%)	12,124 (12.1%)
Total	1,248,309 (100.0%)	358,951 (100.0%)	1,024,029 (100.0%)	301,301 (100.0%)	100,247 (100.0%)

¹⁾The values in parentheses denote the rates of emissions released from the major source sectors to total emissions (%)

타 배출부문과 비교하여 SO_x 배출밀도가 최대 37 kg/year/km² (서울)로 낮았다. PPM_{2.5} 배출량은 충남, 경북, 전남지역 제조업연소에서 500 kg/year/km²를 초과하는 배출밀도가 확인되었고, 생산공정 부문에서는 울산 (655 kg/year/km²)이, 도로이동오염원은 서울 (875 kg/year/km²), 비도로이동오염원은 부산 (1,590 kg/year/km²)과 서울 (1,021 kg/year/km²)에서 배출밀도가 가장 높았다.

3.3 배출부문별 PM_{2.5} 농도 영향

3.3.1 전국 평균 PM_{2.5} 및 구성성분

국내 각 배출부문별 배출량에 의한 PM_{2.5}와 구성성분의 농도 영향을 표 3에 제시하였다. 2019년 모사 기간에 대해 국내 연평균 PM_{2.5} 농도에 대해 가장 큰 농도 영향을 보인 배출원은 농업 부문으로 5.00 µg/m³ (29.0%) 농도 영향을 보였다. 다만, 농업부문은 배출물질 중 NH₃만을 배출한다. 하지만, 농업부문 배출량 삭감 전후의 민감도 모사에서는 암모늄에 의한 농도 영향만이 아니라, 그로 인한 질산염과 황산염의 농도 변화까지 포함된다. 이들은 다른 배출부문의 질소산화물과 황산화물로부터 기인된 것으로, 이러한 점을 고려하면 농업 부문에 대한 PM_{2.5} 농도 영향을 순수한 농업 배출에 의한 농도 영향으로 보기에는 다소 무리가 따른다. 본 연구에서는 이러한 점을 구별하기 위하여 농업 배출에 대한 PM_{2.5} 농도 영향 산정 시, 암모늄 농도 영향(이하 '농업 암모늄 영향')만을 별도로 구분하였다. 표 3에서 농업 암모늄 영향은 1.20 µg/m³으로 전체 농업 농도 영향의 25%가량을 차지하며, 이는 다른 연구와 유사한 수치이다(Kim *et al.*, 2020b).

농업 다음으로 PM_{2.5} 농도 영향이 큰 배출부문은 도로이동오염원과 제조업연소로 연평균 PM_{2.5}에 대한 농도 영향은 1.37 µg/m³ (8.0%), 1.31 µg/m³ (7.6%) 이었다. 뒤이어 비도로이동오염원과 생산공정, 에너지산업연소 부문에 대한 PM_{2.5} 농도 영향이 각각 0.91 µg/m³ (5.3%), 0.77 µg/m³ (4.5%), 0.65 µg/m³ (3.8%) 순으로 나타났다. 그 외 비산업연소, 폐기물처

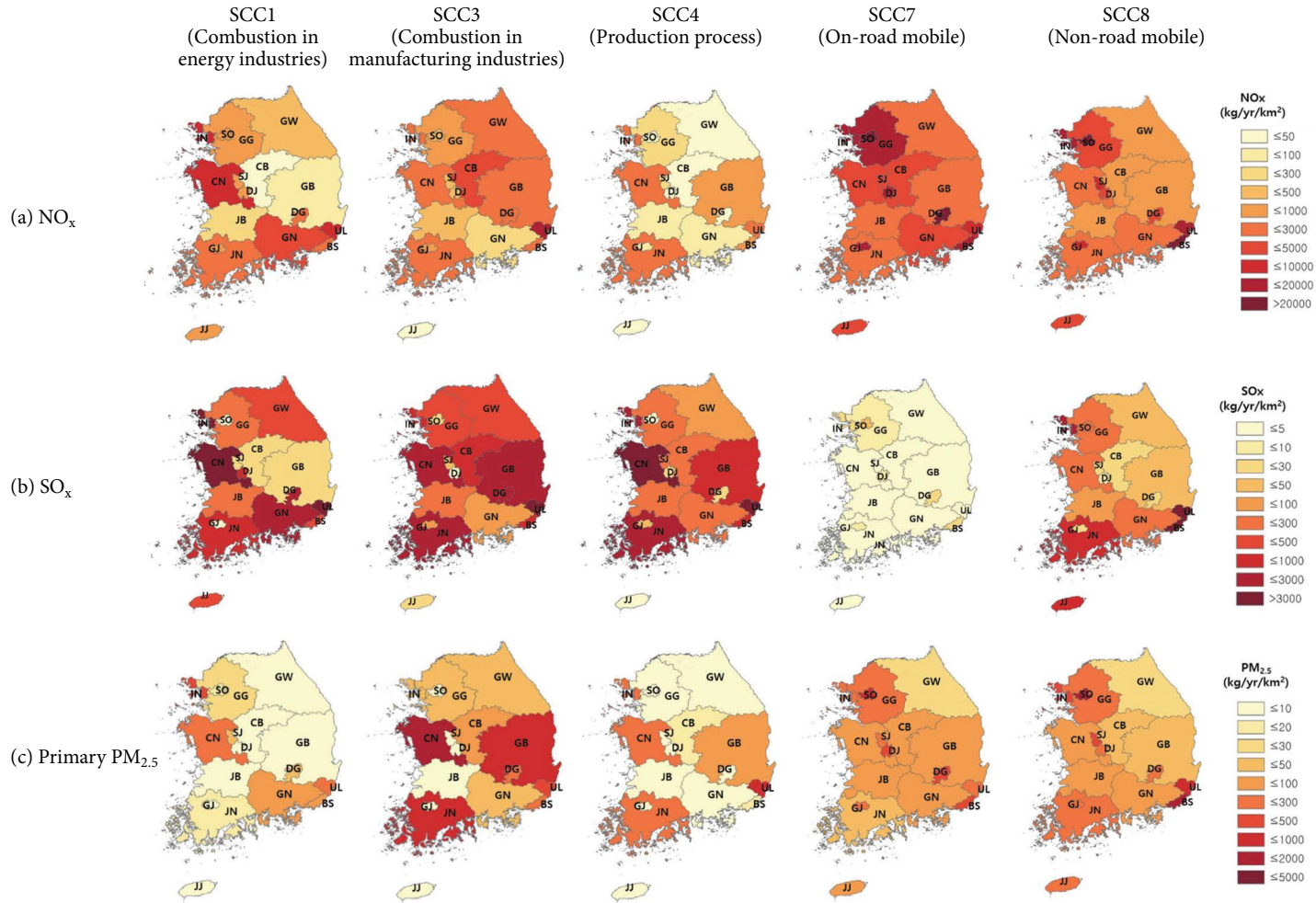


Fig. 3. Spatial distributions of the NO_x , SO_x and Primary $\text{PM}_{2.5}$ emission density (kg/yr/km^2) for the selected major five source sectors in the CAPSS 2016. Five source sectors include combustion in energy industries (SCC1), combustion in manufacturing industries (SCC3), production process (SCC4), on-road mobile (SCC7), and non-road mobile (SCC8). Acronyms for 17 provinces are as follows; SO: Seoul, BS: Busan, IN: Incheon, DG: Daegu, DJ: Deajeon, UL: Ulsan, GJ: Gwangju, SJ: Sejong, GG: Gyeonggi-do, GW: Gangwon-do, CN: Chungcheongnam-do, CB: Chungcheongbuk-do, GN: Gyeongsangnam-do, GB: Gyeongsangbuk-do, JN: Jeollanam-do, JB: Jeollabuk-do, JJ: Jeju.

Table 3. The impact¹⁾ of emissions from the individual source sectors to the nation-wide annual mean concentrations of PM_{2.5}, PPM_{2.5}, nitrate, sulfate, and ammonium. (unit: µg/m³)

Source sector	PM _{2.5}	PPM _{2.5}	Nitrate	Sulfate	Ammonium
Combustion in energy industries	0.65 (3.8%)	0.04 (0.9%)	0.37 (5.6%)	0.11 (3.8%)	0.15 (4.8%)
Non-industrial combustion	0.23 (1.3%)	0.02 (0.4%)	0.12 (1.9%)	0.04 (1.4%)	0.05 (1.7%)
Combustion in Manufacturing industries	1.31 (7.6%)	0.65 (14.8%)	0.31 (4.7%)	0.19 (6.7%)	0.16 (5.3%)
Production process	0.77 (4.5%)	0.06 (1.4%)	0.37 (5.6%)	0.17 (6.0%)	0.17 (5.7%)
Storage and distribution of fuels	0.01 (0.1%)	-0.00 (-0.0%)	0.01 (0.1%)	0.00 (0.0%)	0.00 (0.1%)
Solvent use	0.10 (0.6%)	-0.00 (-0.0%)	0.03 (0.5%)	-0.00 (-0.2%)	0.01 (0.2%)
On-road mobile	1.37 (8.0%)	0.21 (4.9%)	0.93 (14.2%)	-0.02 (-0.8%)	0.26 (8.7%)
Non-road mobile	0.91 (5.3%)	0.25 (5.6%)	0.47 (7.2%)	0.05 (1.7%)	0.16 (5.1%)
Waste treatment and disposal	0.04 (0.2%)	0.00 (0.1%)	0.02 (0.4%)	0.00 (0.1%)	0.01 (0.3%)
Agriculture	5.00 (29.0%) ²⁾	0.10 (2.3%)	3.63 (55.5%) ²⁾	0.08 (2.7%) ²⁾	1.20 (39.9%)
Other sources and Sinks	0.17 (1.0%)	0.01 (0.2%)	0.12 (1.8%)	0.01 (0.2%)	0.04 (1.3%)
Fugitive dust	0.43 (2.5%)	0.40 (9.2%)	0.01 (0.1%)	0.01 (0.2%)	0.00 (0.2%)
Biomass burning	0.29 (1.7%)	0.21 (4.9%)	0.04 (0.6%)	0.01 (0.2%)	0.01 (0.5%)

¹⁾The presented impacts in the table do not include the cross-terms among source sectors in this study.

²⁾Note that PPM_{2.5}, nitrate, and sulfate in the agricultural impacts are not originated from the source sector.

리, 유기용제 사용, 기타 먼오염원, 비산먼지, 생물성 연소에 의한 PM_{2.5} 농도 영향은 0.5 µg/m³ 미만이었으며, 에너지 수송 및 저장에 의한 PM_{2.5} 농도 영향은 0.01 µg/m³ (0.06%)로 가장 낮은 값을 보였다. 농업 암모늄 영향만을 고려할 경우 농업이 전국 PM_{2.5} 농도에 미치는 영향은 생산공정이나 도로이동오염원보다 낮아진다. 여기에서 주목할 점은 농업을 제외하면 배출부문별로 PM_{2.5} 농도 영향의 차이 (0.01~1.37 µg/m³; 0.1~8.0%)는 관찰되나, 영향이 큰 상위 5개 배출 부문은 약 1 µg/m³ 내외로 특정된 배출부문에 농도 영향이 집중되지 않았다. 이는 국내 PM_{2.5} 농도 개선을 위해서는 한 배출부문에 대한 관리보다는 배출 부문 전반에 걸친 관리가 필요함을 보인다.

질산염에 대한 농도 영향을 보면, PM_{2.5}와 마찬가지로 농업 영향 (3.63 µg/m³, 55.5%)이 가장 크며, 그 다음으로는 도로이동오염 부문에서 0.93 µg/m³ (14.2%)의 농도 영향을 보인다. 참고로 앞서 언급한 바와 같이 농업에 의한 질산염 농도 영향에서 농업의 암모니아 발생 변화는 대기 중 반응을 통한 질산암모늄의 생성에 영향을 미침을 의미하며, 질산염이 농업 배출에 의한 ‘기여’를 의미하지 않는다.

황산염에 대해서는 제조업연소와 생산공정 부문에서 각각 0.19 µg/m³ (6.7%), 0.17 µg/m³ (6.0%)의 상대

적으로 큰 농도 영향을 보였으며, 암모늄은 암모니아 배출량 비중이 높은 농업 부문 (전체 암모니아 배출량의 78.7% 차지)에서 국내 연평균 암모늄 모사 농도의 약 40%에 가까운 농도 영향을 보였다. 반면 표 3에 보이지는 않았으나 EC와 OC는 각각 비도로이동오염 부문에서 0.13 µg/m³ (25.9%), 생물성연소 부문에서 0.13 µg/m³ (10.3%)의 가장 큰 농도 영향이 계산되었다.

전국에 대해 배출부문별 PPM_{2.5}, NO_x, SO₂ 배출량과 이로부터 생성되는 대기 중 PPM_{2.5}, 질산염, 황산염 등 농도와의 상관성을 살펴보면 (그림 4), 배출량이 많을수록 농도 영향은 증가한다. PPM_{2.5} 농도 영향은 해당 배출량이 많은 제조업연소, 비산먼지, 도로 및 비도로이동오염원, 생물성 연소가, 질산염 농도 영향에는 도로 및 비도로이동오염원, 에너지산업연소, 생산공정 등이 중요하다. 황산염 농도 영향에는 주로 에너지산업연소와 생산공정, 제조업연소가 높은 비중을 차지한다. 이들 세 가지 물질의 대기 중 PM_{2.5} 농도에 대한 영향을 살펴보면, PPM_{2.5}와 질산염이 많은 부분을 차지하며, 황산염 영향은 상대적으로 작다. 그림 4에서 배출물질별 배출량과 농도 영향 사이의 선형회귀식에서 기울기는 국내 평균적인 단위 배출량당 PM_{2.5} 농도로의 전환율을 의미한다. 여기에 배

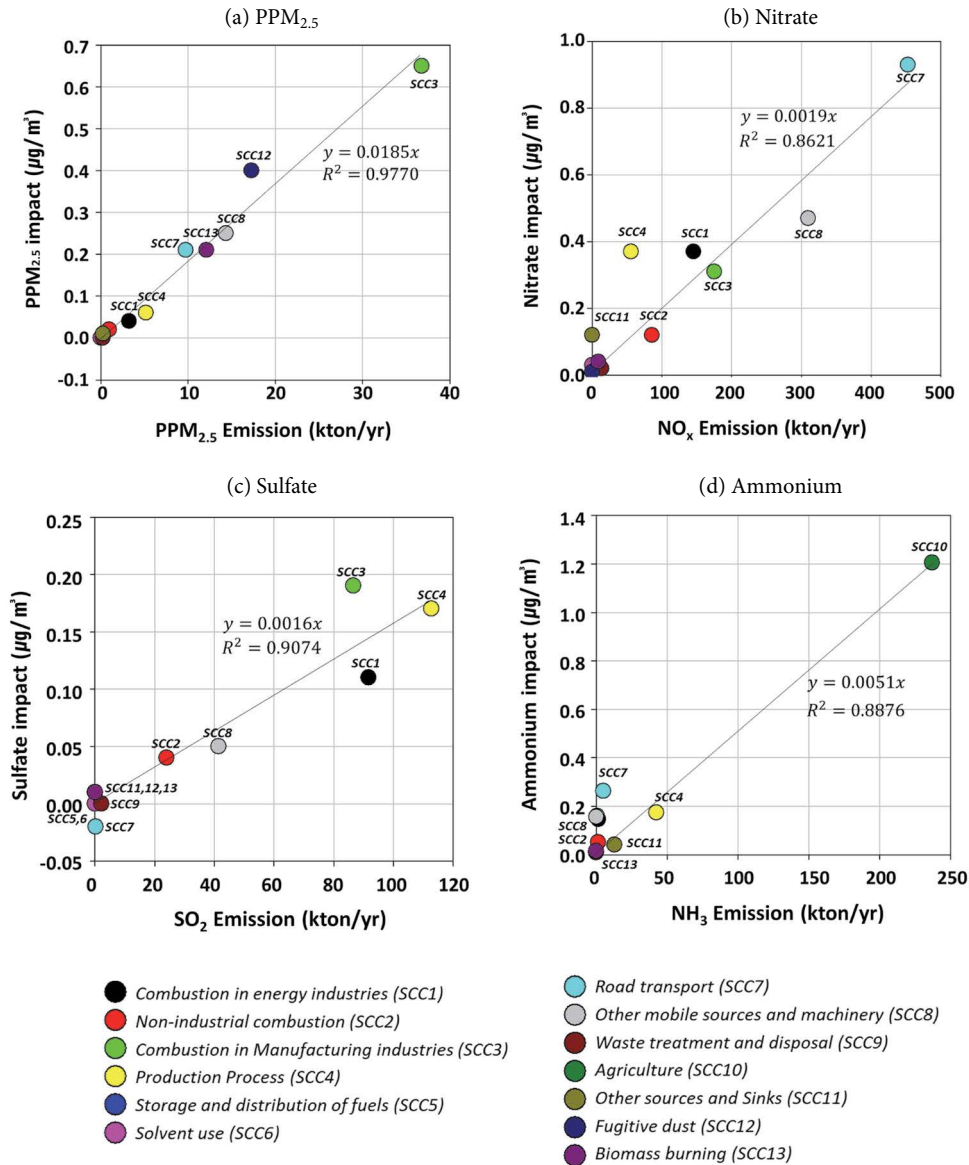


Fig. 4. Scatter plots between the nation-wide precursor emissions and impacts of (a) PPM_{2.5}, (b) nitrate, (c) sulfate and (d) ammonium for the individual source sectors during the simulation period of 2019.

출물질별 국내 배출량을 곱하면, 국내에 대한 평균적인 농도 영향을 추정할 수 있다. 이를 직접 산정해보면, 국내 배출물질별 평균적인 농도 영향은 NO_x (2.37 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) > PPM_{2.5} (1.85 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) > NH₃ (1.54 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) > SO₂ (0.57 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) 순이다. 다만, 국내 전 지역에

대한 배출물질별 농도 영향과는 달리, 국지적인 농도 영향은 지역별 주요 배출부문과 배출량에 따라 달라지므로(예로, 서울에서는 PPM_{2.5}의 농도 영향이 4.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 가장 큼) 다음 절에서는 광역 지자체별 PM_{2.5} 농도에 대해 살펴보았다.

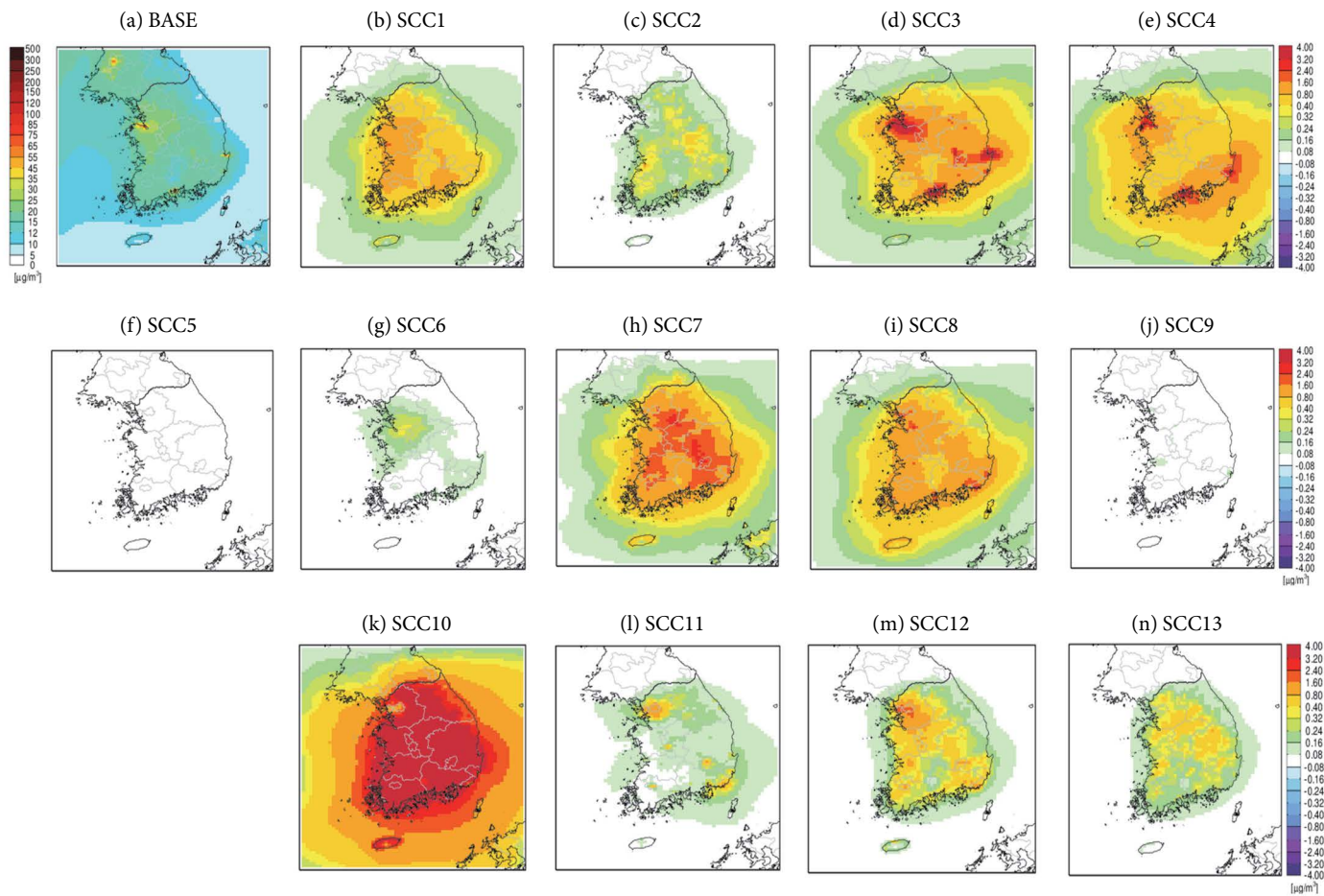


Fig. 5. Spatial plots of (a) the simulated annual mean $PM_{2.5}$ concentration, and (b)~(n) the impacts of the thirteen major source sectors on the $PM_{2.5}$ during the simulation period of 2019.

3.3.2 광역 지자체별 PM_{2.5}와 구성성분

13개 배출부문별 농도 영향을 공간적으로 살펴보면 PM_{2.5}의 경우(그림 5), 농업 부문을 제외하고는 제조업연소 부문에서 당진, 광양, 포항 등에서 4 µg/m³ 이상으로 농도 영향이 높게 나타난다. 생산공정은 포항, 울산, 광양으로 이어지는 남동 연안지역과, 아산만을 중심으로 0.8 µg/m³ 이상의 농도 영향이 두드러진다. 도로이동오염원의 경우, 교통량이 많은 서울~부산을 잇는 경부고속도로, 논산~춘천을 잇는 호남고속도로를 중심으로 PM_{2.5} 농도 영향이 크며, 그 중에서도 경기 남부와 경북 서부지역에서 농도 영향은 2.4 µg/m³ 이상으로 크다. 비도로이동오염원은 도로이동오염원과 비슷한 공간분포를 보이나, 부산 서부권에 위치한 국가산업단지와 부산항 인근, 평택시에서 3.2 µg/m³ 이상의 높은 농도 영향을 보인다. 반면 산불 및 화재, 동물 등으로 구성된 기타 면오염원은 서울과 부산, 대전, 대구, 광주, 울산 등 국내 주요 대도시에서 0.4~1.6 µg/m³의 높은 농도 영향을 보인다. 질산염은 PM_{2.5}의 배출부문별 농도 영향과 유사한 공간분포를 보인다(그림 6). 농업부문을 제외하면, 도로이동오염원과 비도로이동오염원의 농도 영향이 전국적으로 높다.

반면, 황산염은 SO₂ 배출이 많은 에너지산업연소와 제조업연소, 생산공정 배출에 의한 농도 영향이 전국에 걸쳐 0.04 µg/m³ 이상으로 나타난다(그림 7). 특히 제조업연소는 당진, 포항, 광양에서 4.0 µg/m³ 이상, 생산공정은 당진, 광양과 함께 울산지역에서 높은 농도 영향이 확인된다. 이들 지역은 기본 모사(그림 7(a))에서 황산염 농도가 높았던 곳으로 제조업연소와 생산공정 부문이 고농도 황산염 지역의 주요 배출원임을 알 수 있다. 비도로이동오염 부문은 선박에 의한 배출이 크게 기여하여 남해와 서해 연안에서 최대 0.24 µg/m³의 농도 영향이 보인다. 또한 농업부문에서 PM_{2.5}와 질산염이 전국적으로 높은 농도 영향을 보였던 것과 다르게 황산염은 아산만에서 시작되어 경남지역, 서해 연안지역에서 농도 영향이 상대적으로 높다. 마지막으로 암모늄의 농도 영향(그림 8)

은 농업 부문에서 서울 및 강원 영서, 일부 도시지역을 제외하고 전국적으로 높고, 도로이동오염 부문 또한 0.8 µg/m³ 미만의 전국적 농도 영향이 계산된다. 그 밖에 에너지산업연소, 제조업연소, 생산공정 부문에서 0.2 µg/m³ 이상의 암모늄 농도 영향이 일부지역에 나타나고, 그 중 제조업연소와 생산공정에서는 당진과 포항, 울산에서 0.8 µg/m³를 초과하는 높은 영향이 확인된다.

그림 9는 배출부문별 PM_{2.5}와 질산염, 황산염, PPM_{2.5} 농도 영향을 17개 광역 지자체별로 나누어 제시하였다. 가로축은 17개 시도, 세로축은 13개 배출 부문이며, 원의 크기와 색은 농도 영향을 나타낸다. 농업 암모늄 영향은 0.4(서울)~1.6 µg/m³(세종) 사이로, 이는 농업 부문 배출에 의한 PM_{2.5} 농도 전체 영향 중 약 23.5~25.2%를 차지한다(농업 부문의 검은 색 부분). 앞서 언급한 바와 같이 이러한 농업 암모늄 영향 대비 농업 전체 농도 영향의 비율은 국내에서 1:4정도이며, 이는 국내 대기가 암모니아 풍부 조건으로 조정가스비(Adjusted Gas Ratio, Pinder *et al.*, 2008; Sung *et al.*, 2020)는 대부분 1보다 크며, 대기질 모사에서 생성되는 질산염과 황산염과 결합할 수 있는 대기 중 암모니아가 충분히 많기 때문이다(Kim *et al.*, 2020b; Park & Cho, 2020; Kim *et al.*, 2017a). 다만, 대기질 모사에서 암모니아 풍부 또는 결핍 조건은 배출목록상의 배출량에 의해 결정되는 바, 실제 대기 조건과는 차이를 보일 수 있다(Kim *et al.*, 2020b).

농업 배출을 제외한 PM_{2.5} 농도 영향에서 충남의 경우 제조업연소(3.0 µg/m³), 부산의 경우 비도로이동오염원(2.5 µg/m³)이 다른 배출 부문에 비해 높은 농도 영향을 보인다. 이 밖에 대구에서는 도로이동오염원, 울산에서는 생산공정, 세종에서는 제조업연소 등이 주요 오염원으로 파악된다. 또한 도로이동오염원과 비도로이동오염원은 강원과 제주를 제외하고는 지역에 상관없이 0.5 µg/m³ 이상의 PM_{2.5} 농도 영향을 보이고, 전국 평균에서 가장 큰 PM_{2.5} 농도 영향을 보이는 제조업연소는 지역에 따른 편차가 비교적 크다. 농업 암모늄 영향만을 고려할 경우, 농업 배출 영

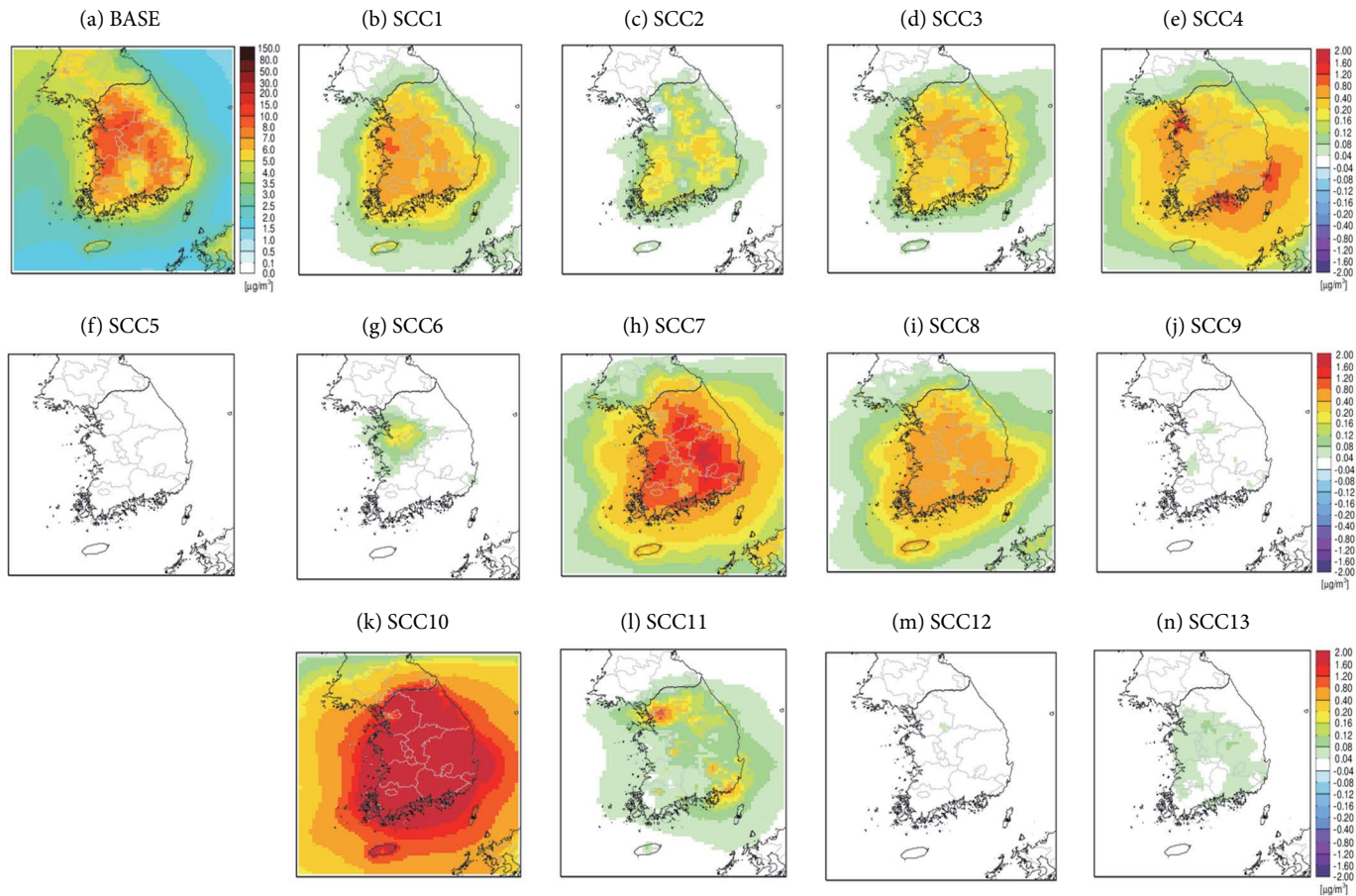


Fig. 6. Spatial plots of (a) the simulated annual mean nitrate concentration, and (b)~(n) the impacts of the thirteen major source sectors on the nitrate during the simulation period of 2019.

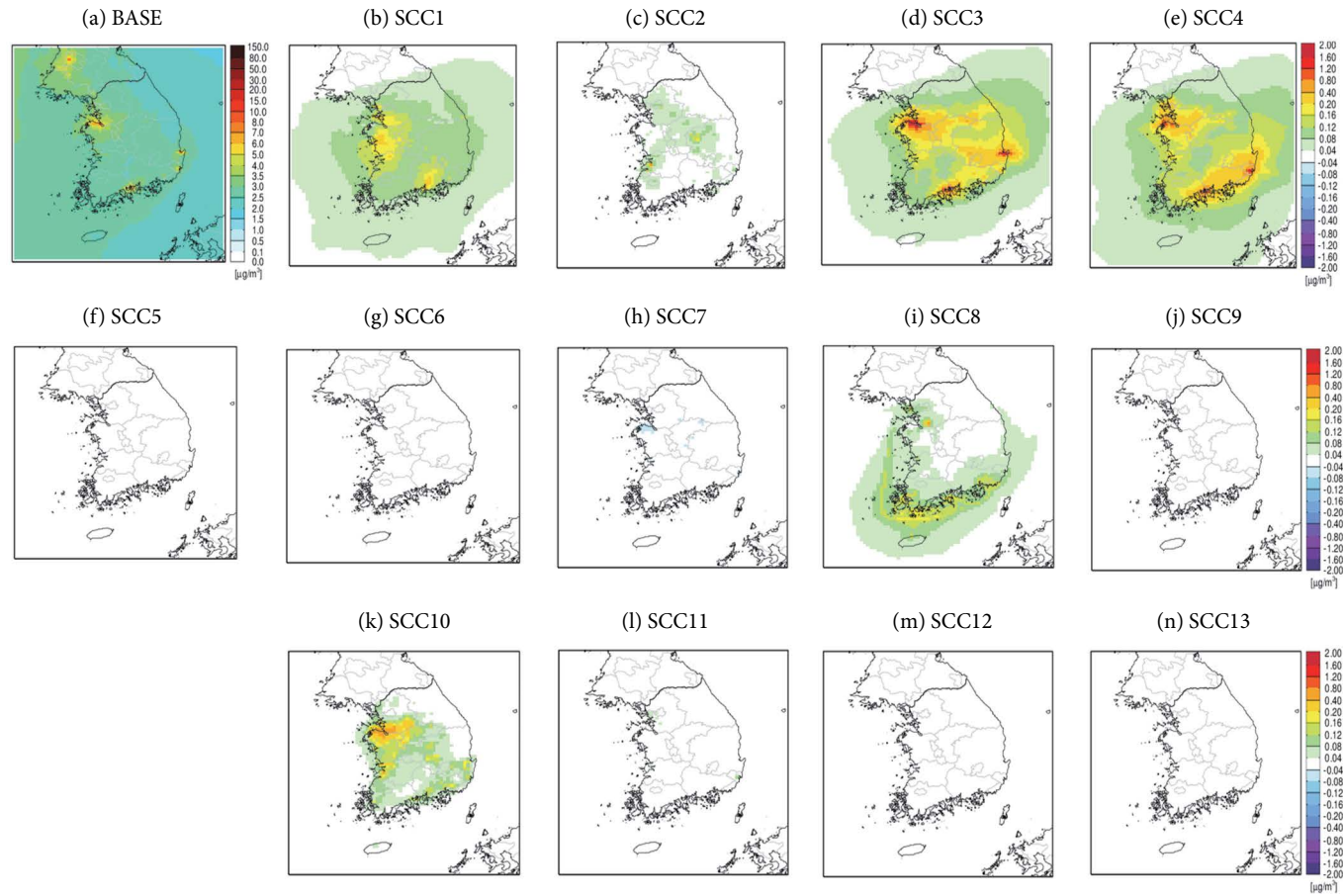


Fig. 7. Spatial plots of (a) the simulated annual mean sulfate concentration, and (b)~(n) the impacts of the thirteen major source sectors on the sulfate during the simulation period of 2019.

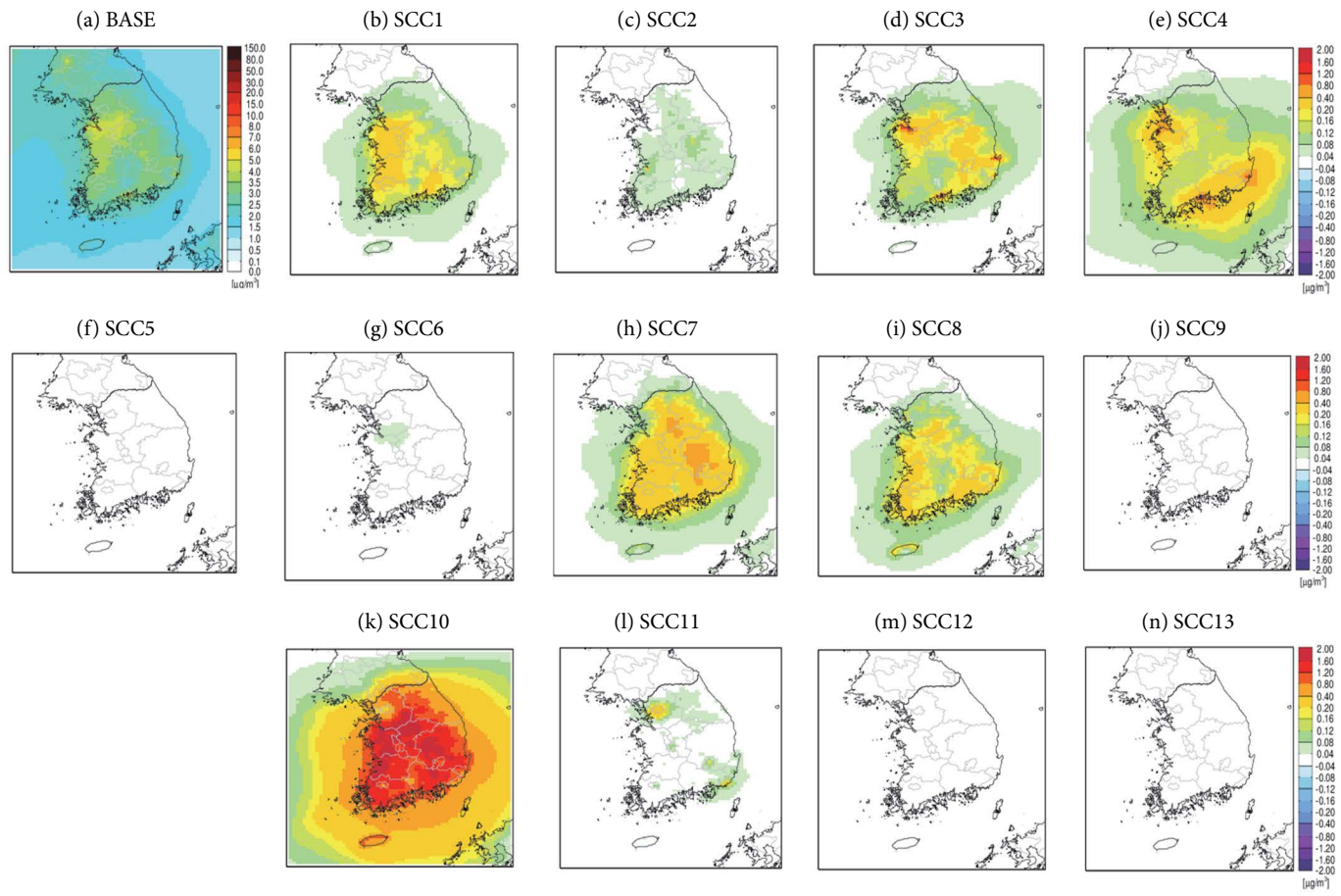


Fig. 8. Spatial plots of (a) the simulated annual mean ammonium concentration, and (b)~(n) the impacts of the thirteen major source sectors on the ammonium during the simulation period of 2019.

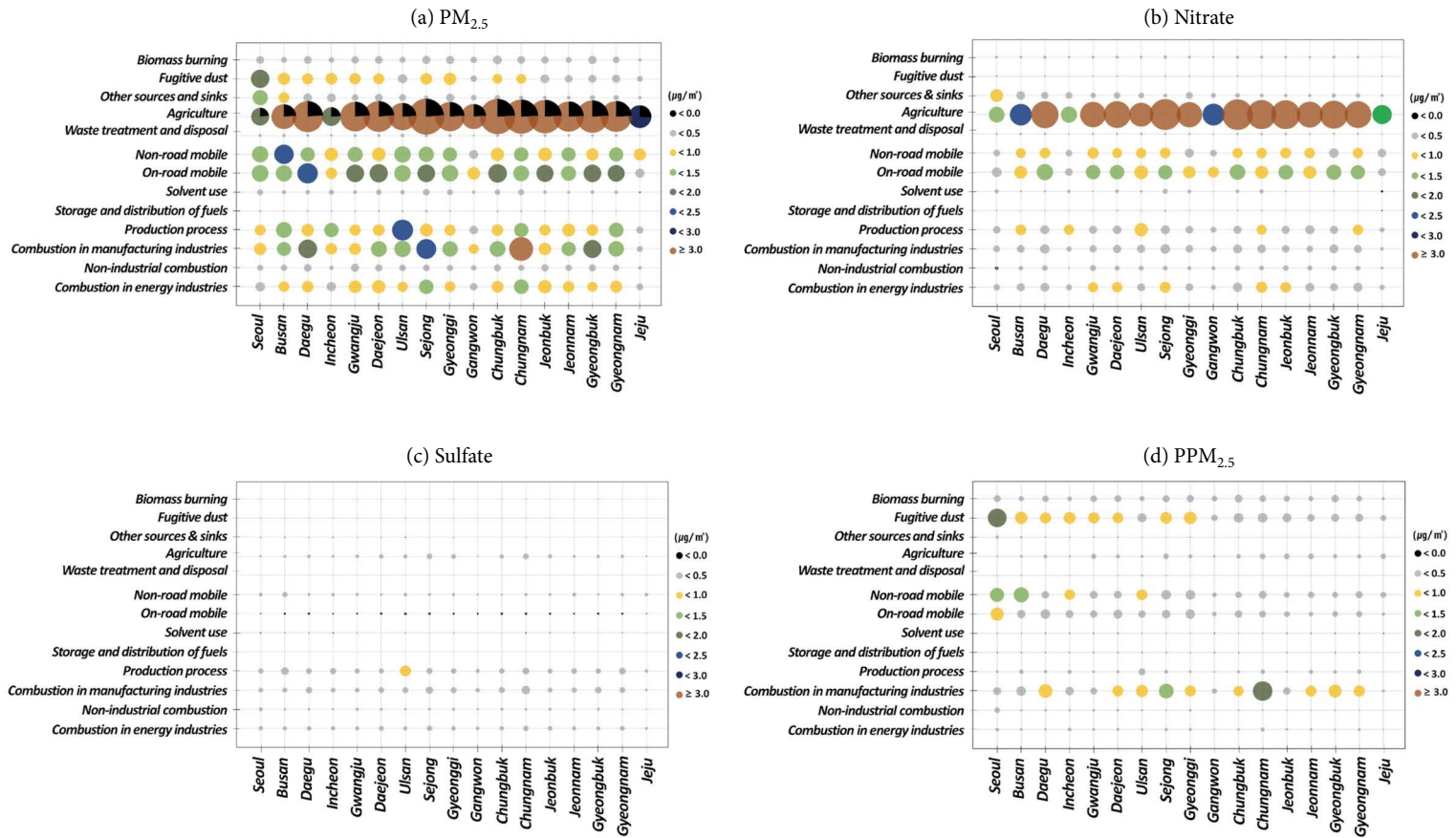


Fig. 9. The ZOCs for (a) $\text{PM}_{2.5}$, (b) Nitrate, and (c) Sulfate and (d) $\text{PPM}_{2.5}$ according to major source classification categories of CAPSS in major authorities. Black fan-shapes of agriculture sector in (a) $\text{PM}_{2.5}$ indicate the percentage of Ammonium in $\text{PM}_{2.5}$.

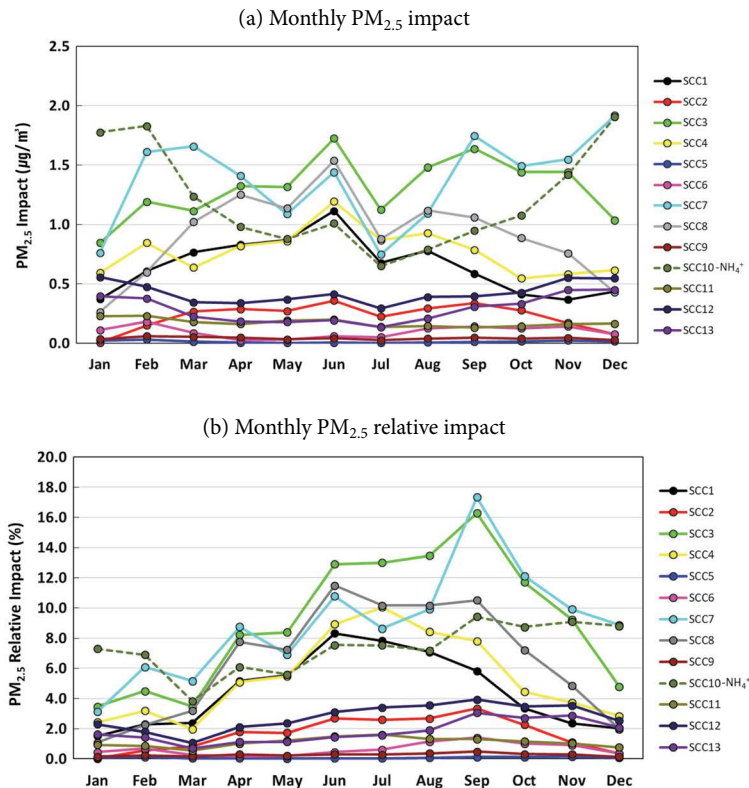


Fig. 10. Monthly (a) impacts, and (b) relative impacts of emissions released from 13 source sectors on the nation-wide PM_{2.5} concentrations during the simulation period of 2019. The agricultural impact includes ammonium only.

향은 에너지산업연소나 생산공정과 유사한 지역별 농도 영향을 보인다.

질산염에 대한 농업 부문의 농도 영향은 부산, 인천, 강원, 제주를 제외하고는 3.0 µg/m³ 이상으로 나타난다. 이는 국내 암모니아 배출의 약 79%를 차지하는 농업 부문 암모니아 배출량을 제외한 모사에서는 질산암모늄 생성이 제한되며, 이로 인한 농도 영향이 나타나기 때문이다. 도로이동오염과 비도로이동오염 부문에서 0.5~1.5 µg/m³의 상대적으로 높은 농도 영향을 보여 질산염에 대한 주요 배출원임을 확인할 수 있다.

황산염의 경우, 대부분의 지역에서 0.5 µg/m³ 이하의 농도 영향을 보이며, 울산에서는 생산공정의 배출에 의한 농도 영향이 0.5 µg/m³ 이상으로 높다. 질산

염과 비교하여 국내 배출에 의한 황산염 농도 영향은 25~61% 수준으로 낮다(NO_x 배출이 지배적인 수송 부문 제외). 이는 국내 배출에서 질산염과 황산염의 전구물질인 NO_x와 SO₂ 배출량이 3배 정도 차이를 보이는 점과, 생성 속도의 차이에서 기인하는 것으로 판단된다(Lachatre *et al.*, 2019). 또한, 최근 NO₂에 의한 황산염 생성 영향 등에 대한 연구가 많이 발표되고 있으나(Liu *et al.*, 2020; Gen *et al.*, 2019; Xue *et al.*, 2019; Zhao *et al.*, 2019; Xue *et al.*, 2016), 본 연구에 이용된 대기질 모사에는 이러한 기작들은 반영되지 않았다. 울산을 제외하면 모든 지역과 모든 배출 부문 별 영향에서 황산염에 대한 농도 영향보다 질산염에 대한 농도 영향이 현저히 높다.

PPM_{2.5} 농도 영향에서는 충남은 제조업연소에서

Table 4. Emission-to-concentration conversion rates of SO₂, NO_x, and PPM_{2.5} for each province during the simulation period of 2019. (unit: µg/m³/MTPY)[a] SO₂ to SO₄²⁻

	Combustion in energy industries (SCC1)	Combustion in manufacturing industries (SCC3)	Production process (SCC4)	On-road mobile (SCC7)	Non-road mobile (SCC8)
Seoul	1.1	1.5	1.3	-	2.6
Busan	1.0	1.5	2.7	-	4.6
Daegu	1.3	2.6	1.6	-	1.5
Incheon	1.2	1.4	1.9	-	2.4
Gwangju	1.1	1.3	1.2	-	2.1
Daejeon	1.5	2.1	1.2	-	1.1
Ulsan	1.1	2.2	5.7	-	2.4
Sejong	1.7	3.3	1.8	-	1.5
Gyeonggi	1.2	2.2	1.5	-	1.8
Gangwon	0.8	1.3	0.8	-	0.7
Chungbuk	1.2	2.4	1.4	-	0.9
Chungnam	1.7	4.4	2.1	-	1.6
Jeonbuk	1.4	1.5	1.1	-	1.5
Jeonnam	1.0	1.8	1.5	-	2.9
Gyeongbuk	1.1	2.7	1.4	-	1.1
Gyeongnam	1.4	2.0	2.2	-	2.3
Jeju	0.5	0.5	0.6	-	2.4
South Korea	1.2	2.2	1.5	-	1.6

[b] NO_x to NO₃⁻

	Combustion in energy industries (SCC1)	Combustion in manufacturing industries (SCC3)	Production process (SCC4)	Road transport (SCC7)	Other mobile sources and machinery (SCC8)
Seoul	1.5	1.4	5.3	1.1	1.1
Busan	2.3	1.7	11.0	1.9	2.3
Daegu	2.8	2.6	7.4	3.0	2.6
Incheon	1.3	0.8	9.6	0.7	1.0
Gwangju	3.7	1.5	6.2	2.4	3.0
Daejeon	3.8	2.0	6.8	2.4	2.3
Ulsan	2.2	1.9	16.4	2.2	2.6
Sejong	4.5	2.7	7.5	2.3	2.6
Gyeonggi	2.1	1.7	5.5	1.8	1.9
Gangwon	0.9	1.1	3.4	1.4	1.1
Chungbuk	3.0	2.3	6.1	2.7	2.5
Chungnam	4.6	2.2	9.1	1.9	2.6
Jeonbuk	4.0	1.7	6.2	2.5	2.6
Jeonnam	2.8	1.3	7.8	1.9	2.5
Gyeongbuk	2.1	2.4	6.0	2.6	2.2
Gyeongnam	3.0	1.8	10.0	2.3	2.6
Jeju	1.0	0.4	2.4	0.7	1.7
South Korea	2.5	1.8	6.6	2.1	2.1

Table 4. Continued.

[c] PPM_{2.5} to PPM_{2.5}

	Combustion in energy industries (SCC1)	Combustion in manufacturing industries (SCC3)	Production process (SCC4)	Road transport (SCC7)	Other mobile sources and machinery (SCC8)
Seoul	21.4	8.8	7.6	90.1	70.3
Busan	13.6	13.0	19.6	37.1	81.9
Daegu	10.7	26.7	10.5	48.7	19.5
Incheon	24.7	9.9	17.6	32.2	39.1
Gwangju	12.5	6.5	5.6	30.8	21.7
Daejeon	15.9	16.5	8.3	43.6	21.2
Ulsan	10.7	20.4	45.3	27.9	42.6
Sejong	20.7	29.7	14.6	37.5	32.5
Gyeonggi	17.4	16.5	8.0	46.5	33.1
Gangwon	4.8	4.0	3.4	10.8	7.2
Chungbuk	11.1	14.5	9.0	29.8	15.4
Chungnam	26.0	53.7	18.8	24.7	21.4
Jeonbuk	13.3	7.5	5.0	18.6	12.1
Jeonnam	12.2	16.0	18.1	11.6	15.4
Gyeongbuk	6.4	23.5	12.2	19.0	11.0
Gyeongnam	14.6	17.5	19.9	20.1	18.2
Jeju	3.5	1.5	2.2	6.6	12.9
South Korea	11.9	17.7	11.8	22.0	17.1

약 2.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 서울은 비산먼지 부문에서 1.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 상대적으로 높았고, 비산먼지 부문의 경우, 울산과 제주를 제외한 모든 시에서 0.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이상으로 나타났다. 세종과 부산은 각각 제조업연소(1.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), 비도로이동오염(1.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) 부문에서 농도 영향이 가장 크게 나타나 PPM_{2.5}의 주요 배출원으로 파악되었다.

3.3.3 월별 PM_{2.5} 농도 영향

앞서 살펴본 배출부문별 PM_{2.5} 농도 영향은 계절별 기상과 배출량 변화에 따라 월별 차이를 보일 수 있다. 월별 PM_{2.5} 농도 영향(그림 10(a))을 살펴보면, 13개 배출부문별 가장 높은 PM_{2.5} 농도 영향을 보인 농업의 영향은 추운 겨울철에 가장 높고, 더운 여름철에는 7월에 가장 낮다. 이러한 결과는 겨울철 동안에는 질산염 농도가 높아지고, 여름철 동안에는 황산염 농도 비중이 높아지는 국내 PM_{2.5} 농도 변화와 관련된 것으로 보인다(Bae *et al.*, 2020a; Bae *et al.*, 2019). 다만, 겨울철(1~2월, 12월) 동안 평균 7.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 수준

을 보이는 농업의 PM_{2.5} 농도 영향은 농업 암모늄 영향으로 산정 시에는 1.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 가량으로 낮아지며, 도로이동오염(1.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)과 제조업연소(1.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) 부문에 비해 20~40% 높은 수준이다.

도로이동오염원의 경우, 2월과 3월 동안 PM_{2.5} 농도 영향이 각각 1.6, 1.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 높다가 이후 7월까지 낮아지며, 다시 9~12월에 1.5~1.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 높아진다. 농업과 도로이동오염원을 제외한 나머지 배출부문에서는 일반적으로 겨울철에 낮고, 3~5월 동안 농도 영향이 증가하여 6월에 최고 값을 보이고, 7월 이후 낮아지는 월별 변화를 보인다. 대부분의 배출부문에서 보이는 7월의 PM_{2.5} 농도 영향 감소는 6월 말부터 시작되는 장마(6월 26일~7월 29일)로 인한 것으로 이해된다. 이러한 배출부문별 PM_{2.5} 농도 영향의 월 변화는 각 배출부문의 주요 전구물질이 상이하고, 배출부문별 월별 배출비가 다르기 때문으로 판단된다. 이와 관련해서는 후속연구에서 각 배출부문별 배출-농도 전환율을 월별로 구분하여 살펴볼 예정이다.

기본 모사의 월평균 $PM_{2.5}$ 농도 중 배출부문별 $PM_{2.5}$ 농도 영향이 차지하는 비율(이하 ‘영향률’)을 그림 10(b)에 제시하였으며, 배출부문별로 국내 $PM_{2.5}$ 농도 영향이 월별로 차이를 보인다. 예를 들어 도로이동오염원의 경우, $PM_{2.5}$ 농도 영향률이 1월부터 서서히 증가하기 시작하여 9월에 17.3%로 가장 높다. 농업은 3월에 16.5%로 가장 낮은 농도 영향률을, 11월에 38.4%의 가장 높은 농도 영향률을 보인다. 앞서 대부분의 배출부문에서 7월에 가장 낮은 $PM_{2.5}$ 농도 영향을 보였던 것에 반해, 농도 영향률에서는 높게 나타나는데, 이는 7월의 $PM_{2.5}$ 월평균 농도 자체가 낮기 때문으로 파악된다.

이를 종합하면, 고농도 $PM_{2.5}$ 가 발생하는 추운 계절 동안에는 농업 농도 영향이 가장 높게 산정된다. 그러나, 현재 뚜렷한 NH_3 배출관리 대책 마련의 어려움과 불확도를 고려하면, 겨울철 동안 국내 배출저감에 따른 $PM_{2.5}$ 농도 개선을 위해서는 다양한 배출부문에 걸친 삭감 노력이 필요하다. 또한, 각 배출부문별 농도 영향의 월별 변화를 고려한 대기질 목표 및 대책 수립이 합리적으로 보인다. 한 가지 언급할 만한 것으로 그림 10에서 1월과 2월 등 겨울철 동안 농업 암모늄 영향이 크게 증가하는 원인은 국외에서 유입되는 질산가스 등 질산염 생성이 국내에서 축진되는 것으로 설명될 수 있다(Kim *et al.*, 2020b).

3.4 주요 배출물질의 지역별 배출-농도 전환율 비교

앞서 제시된 연구결과를 토대로 $PM_{2.5}$ 농도 영향이 높은 상위 5개 배출부문을 선별해보면, 에너지산업연소, 제조업연소, 생산공정, 도로이동오염원, 비도로이동오염원이 포함된다. 이들 주요 배출부문의 국내 NO_x , SO_2 , $PPM_{2.5}$ 배출량이 대기 중 $PM_{2.5}$ 구성 성분 농도로의 전환율을 국내 전 지역과 광역 지자체별로 구분하여 표 4에 제시하였다. 표 4에서 제시된 배출-농도 전환율은 배출부문별 국내 연간 단위 배출량 변화에 의한 농도 변화 범위를 나타낸다. 계산의 간편성을 위해 SO_2 배출량은 황산염 농도, NO_x 배출량은

질산염 농도, $PPM_{2.5}$ 배출량은 $PPM_{2.5}$ 농도로의 전환율(이하 각 ‘ SO_2 배출-농도 전환율’, ‘ NO_x 배출-농도 전환율’, ‘ $PPM_{2.5}$ 배출-농도 전환율’)만을 산정하였다. 단, SO_2 배출 전환율에서 도로이동오염원은 SO_2 배출량(국내 전체의 0.1%)이 현저히 낮아, 분석에서 제외하였다.

우선 SO_2 배출-농도 전환율을 살펴보면, 배출부문 중 제조업연소가 가장 높은 전국 평균 전환율($2.2 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{MTPY}$)을 보인다. 그 다음으로는 비도로이동오염원 > 생산공정 > 에너지산업연소 순이며, 산업연소가 다른 배출부문에 비해 40~90% 이상 높은 전환율을 보인다(그림 4 참조). 이러한 SO_2 배출-농도 전환율에 있어 주요 배출부문의 우선 순위는 Kim *et al.* (2019)이 제시한 결과와 유사하다. 이러한 결과는 국내 배출에 의한 황산염 농도 저감을 위해서는 에너지산업연소 외에 제조업연소, 생산공정, 비도로이동오염원 등 전반적인 배출부문에 대한 관리가 필요함을 의미한다. 광역 지자체 중에서는 충청남도에서의 제조업연소 배출에 의한 SO_2 배출-농도 전환율이 $4.4 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{MTPY}$ 로 가장 높으며, 그 다음으로 세종, 경북 등에서 높다. 다만, 세종 등에서의 높은 SO_2 배출 전환율은 자체 배출에 의한 것이 아닌, 이웃한 지역 배출 영향이 더해질 수 있으므로, 향후 권역간 배출 영향 분석이 필요하다. 반면 생산공정 부문에서는 울산에서 SO_2 배출-농도 전환율이 $5.7 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{MTPY}$ 으로, 비도로이동오염원 부문의 경우, 부산에서 전환율이 $4.6 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{MTPY}$ 로 가장 높다. 광역 지자체별 SO_2 배출-농도 전환율은 5배 이상의 차이를 보인다. 이러한 지역별 SO_2 배출량에 의한 황산염 농도 전환율을 토대로 농도 저감에 있어 상대적으로 중요한 배출부문을 선정할 수 있다.

전국 평균 NO_x 배출-농도 전환율은 생산공정($6.6 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{MTPY}$), 에너지산업연소($2.5 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{MTPY}$), 비도로이동오염원($2.1 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{MTPY}$), 도로이동오염원($2.1 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{MTPY}$), 제조업연소($1.8 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{MTPY}$) 순으로 나타났다. 생산공정의 NO_x 배출-농도 전환율이 다른 배출부문에 비해 2배 이상 높다는 점은 주목

할 만하다. 광역 지자체별로는 울산의 생산공정에 의한 NO_x 배출-농도 전환율이 16.4 µg/m³/MTPY로 매우 높으며, 에너지산업연소에서는 세종시와 충청남도에서 각각 4.5 µg/m³/MTPY, 4.6 µg/m³/MTPY로 높다. 이러한 배출부문별 배출-농도 전환율의 차이는 주로 배출 고도 등 배출 형태와 배출원 위치에 의한 것으로 판단된다 (Ju *et al.*, 2019). 도로이동오염 부문은 대구에서, 비도로이동오염 부문은 광주에서의 NO_x 배출-농도 전환율이 3.0 µg/m³/MTPY으로 광역 지자체 중 가장 높으며, 서울과 인천에 비해서는 3배 이상이다. 이러한 결과는 도로이동오염 부문에 대한 전국적인 배출량 삭감 대책 적용 시, 광역 지자체별 PM_{2.5} 농도 감소의 차이가 크다는 점을 의미한다. 또한, 서울과 인천 등 수도권 지역에서 NO_x 배출 총량 감축 시, 도로 및 비도로이동오염 부문보다는 생산공정 등의 NO_x 단위 배출량당 감축 효과가 높을 수 있음을 나타낸다.

PPM_{2.5} 배출-농도 전환율은 SO₂ 및 NO_x와 비교하여 배출부문별로 각각 1.8~10.7배, 7.9~10.8배 정도 높다. 이는 PPM_{2.5} 배출량은 NO_x, SO₂ 배출량보다 훨씬 작으나, SO₂와 NO_x와 달리, 대기 중 화학반응에 의한 변환 과정이 생략되기 때문에 배출원 부근에서의 영향이 높게 나타나기 때문이다. Ju *et al.* (2019)은 PPM_{2.5} 배출 전환율이 다른 물질에 비해 높으며, 배출원 부근 지역에서 더욱 높아짐을 보였다. 배출부문별로 전국 평균 PPM_{2.5} 배출 전환율은 도로이동오염에서 22.0 µg/m³/MTPY으로 가장 높아, PPM_{2.5} 단위 배출량 저감당 농도 개선 효과가 가장 높은 것으로 평가되었다.

광역 지자체별 PPM_{2.5} 배출 전환율은 서울에서 도로이동오염원이 90 µg/m³/MTPY로, 다른 지역에 비해 2배 이상 높으며, 이는 많은 도로 교통량이 좁은 지역에 밀집된 영향으로 보인다. 또한 제조업연소와 비도로이동오염 부문에서는 각각 충청남도와 부산의 PPM_{2.5} 배출 전환율이 53.7 µg/m³/MTPY, 81.9 µg/m³/MTPY로 가장 높다. 이는 해당 지역에서 대상 배출부문에 대한 PPM_{2.5} 관리가 중요함을 보인다. 특히, 부

산의 경우 항만 등 비도로이동오염원의 PPM_{2.5} 배출 전환율이 전국 평균에 비해 4배 이상 높다.

4. 결 론

본 연구에서는 2016년 국가대기오염물질 배출량 자료를 기반으로 CMAQ을 이용한 대기질 민감도 모사를 통해 국내 13개 배출부문별 PM_{2.5} 및 구성성분의 농도 영향을 시·공간적으로 분석하였다. 2019년 국내 전역에 대한 연평균 PM_{2.5} 모사 농도 (17.2 µg/m³) 중, 농업 부문을 제외하고 도로이동오염 부문의 배출 영향이 1.4 µg/m³ (8.0%)로 가장 높았고, 그 다음으로는 제조업연소와 비도로이동오염 부문에서 각각 1.3 µg/m³ (7.6%), 0.9 µg/m³ (5.3%)의 PM_{2.5} 농도 영향을 보였다. 제시된 결과를 살펴보면, PM_{2.5}를 포함하여 국내 대기질 개선을 위해서는 특정 배출부문이 아닌, 다양한 배출부문에 대한 배출 저감이 필요하다. 국가배출목록을 토대로 배출물질별 국내 평균 PM_{2.5} 농도 영향에서는 NO_x와 PPM_{2.5}가 SO₂보다 높게 평가되었으나, 배출물질별, 배출부문별 농도 영향은 지역별로 큰 차이를 보였다.

광역 지자체별로 국내 배출 영향을 살펴보면, 지역의 배출특성에 따라 주요 배출부문이 달라진다. 예를 들어 충남의 경우, 제조업연소가 3.0 µg/m³ 이상의 PM_{2.5} 농도 영향을 보였고, 부산에서는 비도로이동오염 (2.0 µg/m³), 대구는 도로이동오염 (2.2 µg/m³), 울산은 생산공정 (2.3 µg/m³), 세종은 제조업연소 (2.1 µg/m³) 부문에서 PM_{2.5} 농도 영향이 높았다. 본 연구에서 제시된 농도 영향은 전국 전체 배출량에 대해 배출부문별로 산정된 것으로, 각 광역 지자체별 배출량의 상호 영향이 포함되나, 지역별 주요 배출원의 영향이 다르게 산정됨을 확인할 수 있다.

각 배출부문별 PM_{2.5} 농도 영향은 월별로도 다르게 변화하였다. 예를 들어 농업부문의 경우, 겨울철 동안 PM_{2.5} 농도 영향이 상대적으로 매우 높았으며, 도로이동오염원은 더운 계절보다는 봄과 가을에 PM_{2.5} 농

도 영향이 증가하였다. 이와는 다르게 제조업연소와 생산공정 등 산업활동과 관련된 배출의 경우, 추운 계절보다는 여름철 동안 $PM_{2.5}$ 농도 영향이 증가하였다. 이는 자동차 등 이동오염원의 주요 배출물질인 NO_x 의 경우 겨울철 동안 질산염으로의 전환이 유리하고, 생산공정의 경우 NO_x 외에 SO_2 배출에 의한 황산염 생성이 더운 계절 동안 증가하기 때문으로 보인다(Bae *et al.*, 2020a; Bae *et al.*, 2019; Kim *et al.*, 2019)

각 광역 지자체별 $PM_{2.5}$ 및 성분농도에 대한 배출-농도 전환율은 대상물질에 따라, 배출부문에 따라, 그리고 지역에 따라 차이를 보였다. 대상물질별 단위 배출량당 $PM_{2.5}$ 구성 성분으로의 농도 전환율은 국내 평균적으로 NO_x 가 SO_2 에 비해 2배 이상 높았으며, 생산공정의 경우 2~3배 이상 높았다. 또한, 1차 배출물질인 $PPM_{2.5}$ 의 농도 전환율은 가스상 오염물질에 비해 5~10배 정도 높았다. 이는 1차 $PM_{2.5}$ 배출량에 대한 관리 중요성과 향후 응축성 $PM_{2.5}$ 배출량 산정 및 관리 체계 구축이 필요함을 설명한다. 또한 지역별 배출-농도 전환율은 배출부문에 따라서도 수 배 이상 차이를 보였다. 이러한 결과를 종합하면, 배출형태와 배출지역에 따라 주변에 미치는 $PM_{2.5}$ 농도 영향과 전환율은 달라지며, 배출부문과 지역 여건을 고려하지 않은 삭감 배출 총량 산정만으로는 목표한 대기질 개선이 이뤄지지 못할 수 있다. 따라서, 향후 국내 $PM_{2.5}$ 농도 관리계획 수립 시에는 전반적인 삭감 배출량의 확보와 더불어, 지역별 주요 배출원에 대한 파악과 삭감 배출량의 $PM_{2.5}$ 농도로의 전환을 고려한 접근이 필요하다.

감사의 글

본 연구는 정부(과학기술정보통신부, 환경부, 보건복지부) 재원으로 한국연구재단-미세먼지 국가전략 프로젝트사업(2017M3D8A1092020), 환경부 기후변화특성화대학원사업 및 국가미세먼지정보센터의 지원을 받아 수행되었습니다.

References

- Bae, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Yoo, C., Kim, S. (2019) Long-Range Transport Influence on Key Chemical Components of $PM_{2.5}$ in the Seoul Metropolitan Area, South Korea, during the Years 2012-2016, *Atmosphere*, 11(1), 48. <https://doi.org/10.3390/atmos11010048>
- Bae, M., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2020a) A Multiscale Tiered Approach to Quantify Contributions: A Case Study of $PM_{2.5}$ in South Korea During 2010-2017, *Atmosphere*, 11(2), 141. <https://doi.org/10.3390/atmos11020141>
- Bae, M., Yoo, C., Kim, S. (2020b) Estimating the Shutdown Effect of the Old Coal-fired Power Plants on $PM_{2.5}$ and its Composition, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(1), 48-63, (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/kosae.2020.36.1.048>
- 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.
- Burr, M., Zhang, Y. (2011) Source apportionment of fine particulate matter over the Eastern U.S. Part I: source sensitivity simulations using CMAQ with the Brute Force Method, *Atmospheric Pollution Research*, 2, 300-317.
- Carlton, A.G., Bhave, P.V., Napelenok, S.L., Edney, E.O., Sarwar, G., Pinder, R.W., Pouliot, G.A., Houyoux, M. (2010) Model representation of secondary organic aerosol in CMAQv4.7, *Environmental Science and Technology*, 44 (22), 8553-8560.
- Cater, W.P.L. (2000) Documentation of the SAPRC-99 Chemical Mechanism for VOC Reactivity Assessment, Final Report to California Air Resources Board.
- Emery, C., Tai, E., Yarwood, G. (2001) Enhanced meteorological modeling and performance evaluation for two Texas ozone episodes, ENVIRON International Corporation, Final Report.
- Gen, M., Zhang, R., Huang, D.D., Li, Y., Chan, C.K. (2019) Heterogeneous SO_2 Oxidation in Sulfate Formation by Photolysis of Particulate Nitrate, *Environmental Science & Technology Letters*, 6(2), 86-91. <https://doi.org/10.1021/acs.estlett.8b00681>
- Han, C., Oh, J., Lim, Y.H., Kim, S., Hong, Y.C. (2020) Long-term exposure to fine particulate matter and development of chronic obstructive pulmonary disease in the elderly, *Environment International*, 143, 105895, <https://doi.org/10.1016/j.envint.2020.105895>

- Hogrefe, C., Rao, S.T., Kasibhatla, P., Kallos, G., Tremback, C.J., Hao, W., Olerud, D., Xiu, A., McHenry, J., Alapaty, K. (2001) Evaluating the performance of regional-scale photochemical modeling systems: Part I meteorological predictions, *Atmospheric Environment*, 35(24), 4159-4174.
- Hong, S.-Y., Noh, Y., Dudhia, J. (2006) A new vertical diffusion package with an explicit treatment of entrainment processes, *Monthly Weather Review*, 134, 2318-2341, <https://doi.org/10.1175/MWR3199.1>
- Hwang, I., Yi, S.-M., Park, J. (2020) Estimation of source apportionment for filter-based PM_{2.5} data using the EPA-PMF Model at Air Pollution Monitoring Supersites, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(5), 620-632, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/kosae.2020.36.5.620>
- Jeong, J.-H., Song, S.-K., Lee, H.W., Kim, Y.-K. (2012) Effects of High-Resolution Land Cover and Topography on Local Circulations in Two Different Coastal Regions of Korea: A Numerical Modeling Study. *Meteorology and Atmospheric Physics*, 118(1-2), 1-20. <https://doi.org/10.1007/s00703-012-0211-y>
- Ju, H., Bae, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Yoo, C., Kim, S. (2018) PM_{2.5} Source Apportionment Analysis to Investigate Contributions of the Major Source Areas in the South-eastern Region of South Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(4), 517-533, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/kosae.2018.34.4.517>
- Ju, H., Yoo, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2019) Impact of Stack Parameters on Modeled PM_{2.5} Conversion Rates: A Case Study of Chungnam during the KORUS-AQ 2016, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 35(5), 593-608, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/kosae.2019.35.5.593>
- Jung, E.M., Kim, K.N., Park, H., Shin, H.H., Kim, H.S., Cho, S.J., Kim, S.T., Ha, E.H. (2020) Association between prenatal exposure to PM_{2.5} and the increased risk of specified infant mortality in South Korea, *Environment International*, 144, 105997. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2020.105997>
- Kain, J.S. (2004) The Kain-Fritsch convective parameterization: An update, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 43, 170-181. [https://doi.org/10.1175/1520-0450\(2004\)043<0170:TKCPAU>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0450(2004)043<0170:TKCPAU>2.0.CO;2)
- Kim, B.-U., Bae, C., Kim, H.C., Kim, E., Kim, S. (2017a) Spatially and chemically resolved source apportionment analysis: Case study of high particulate matter event, *Atmospheric Environment*, 162, 55-70. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.05.006>
- Kim, E., Bae, C., Yoo, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2018) Evaluation of the Effectiveness of Emission Control Measures to Improve PM_{2.5} Concentration in South Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(3), 469-485, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/kosae.2018.34.3.469>
- Kim, E., Kim, H.C., Kim, B.-U., Kim, S. (2019) PM_{2.5} Simulations for the Seoul Metropolitan Area: (VI) Estimating Influence of Sectoral Emissions from Chungcheongnam-do, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 35(2), 226-248, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/kosae.2019.35.2.226>
- Kim, E., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2020b) Direct and cross impacts of upwind emission control on downwind PM_{2.5} under various NH₃ conditions in Northeast Asia, *Environmental Pollution*, 268, 115794. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2020.115794>
- Kim, K.N., Kim, S., Lim, Y.H., Song, I.G., Hong, Y.C. (2020a) Effects of short-term fine particulate matter exposure on acute respiratory infection in children, *International Journal of Hygiene and Environmental Health*, 229, 113571. <https://doi.org/10.1016/j.ijheh.2020.113571>
- Kim, S., Bae, C., Kim, B.-U., Kim, H.C. (2017b) PM_{2.5} Simulations for the Seoul Metropolitan Area: (I) Contributions of Precursor Emissions in the 2013 CAPSS Emissions Inventory, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(2), 139-158, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/kosae.2017.33.2.139>
- Kim, S., Bae, C., Yoo, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Moon, N. (2017c) PM_{2.5} Simulations for the Seoul Metropolitan Area: (II) Estimation of Self-Contributions and Emission-to-PM_{2.5} Conversion Rates for Each Source Category, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(4), 377-392, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/kosae.2017.33.4.377>
- Kim, S., Kim, O., Kim, B.-U., Kim, H.C. (2017d) Impact of Emissions from Major Point Sources in Chungcheongnam-do on Surface Fine Particulate Matter Concentration in the Surrounding Area, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(2), 159-173, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/kosae.2017.33.2.159>

- org/10.5572/kosae.2017.33.2.159
- Lachatre, M., Fortems-Cheiney, A., Foret, G., Siour, G., Dufour, G., Clarisse, L., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Van Damme, M., Beekmann, M. (2019) The unintended consequence of SO₂ and NO₂ regulations over China: increase of ammonia levels and impact on PM_{2.5} concentrations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(10), 6701-6716. <https://doi.org/10.5194/acp-19-6701-2019>
- Lee, J.-B., Lee, T.-Y. (2004) Impact of horizontal spatial resolution on the derivation of the source-receptor relationship—an extra-tropical cyclone case, *Tellus B: Chemical and Physical Meteorology*, 56(5), 413-425.
- Lim, K.-S., Hong, S.-Y. (2010) Development of an effective double-moment cloud microphysics scheme with prognostic cloud condensation nuclei (CCN) for weather and climate models, *Monthly Weather Review*, 138, 1587-1612. <https://doi.org/10.1175/2009MWR2968.1>
- Liu, T., Clegg, S.L., Abbatt, J.P.D. (2020) Fast oxidation of sulfur dioxide by hydrogen peroxide in deliquesced aerosol particles, *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 117(3), 1354-1359. <https://doi.org/10.1073/pnas.1916401117>
- Ministry Of Environment (MOE) (2020a) Annual report of air quality in Korea 2018 (in Korean).
- Ministry Of Environment (MOE) (2020b) <http://www.me.go.kr/cleanair/sub01.do> (Assessed in October 1, 2020).
- Ministry Of Environment (MOE) (2020c) <http://me.go.kr/home/web/board/> (Assessed in April 1, 2020).
- Mlawer, E.J., Taubman, S.J., Brown, P.D., Iacono, M.J., Clough, S.A. (1997) Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 102, 16663-16682. <https://doi.org/10.1029/97JD00237>
- Moon, N., Seo, J. (2018) Analysis System for Regional Environmental Status to Support Environmental Assessment: Estimation of PM_{2.5} Contribution and Conversion Rates by Source Category over Local Governments, *Korea Environment Institute* (in Korean with English abstract).
- National Air Emission Inventory and Research Center (NAIR) (2019) National Air Pollutants Emission, NIER-GP 2018-131 (in Korean).
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2019) 2018 Annual Report of Intensive Air Quality Monitoring Station, NIER-GP2019-210 (in Korean).
- Park, H., Cho, S. (2020) The Effects of NH₃ Emission Reduction on Secondary Inorganic Aerosols Evaluated by CMAQ, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(3), 375-387, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/kosae.2020.36.3.375>
- Pinder, R.W., Dennis, R.L., Bhawe, P.V. (2008). Observable indicators of the sensitivity of PM_{2.5} nitrate to emission reductions, part I: Derivation of the adjusted gas ratio and applicability at regulatory-relevant time scales, *Atmospheric Environment*, 42, 1274-1286.
- Skamarock, W.C., Klemp, J.B., Dudhia, J., Gill, D.O., Barker, D.M., Duda, M.G., Huang, X.-Y., Wang, W., Powers, J.G. (2008) A Description of the Advanced Research WRF Version 3, NCAR Tech. Note NCAR/TN-475+STR, 113pp.
- Son, K., You, S., Kim, H.C., Kim, B.-U., Kim, S. (2020a) Inter-comparisons of Spatially Interpolated Short-term and Long-term PM_{2.5} Concentrations of Local Authorities in South Korea 2015~2017, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(2), 185-197, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/kosae.2020.36.2.185>
- Son, K., Bae, M., You, S., Kim, E., Kang, Y.-H., Bae, C., Kim, Y., Kim, H.C., Kim, B.-U., Kim, S. (2020b) Meteorological and Emission Influences on PM_{2.5} Concentration in South Korea during the Seasonal Management: A Case of December 2019 to March 2020, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(4), 442-463, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/kosae.2020.36.4.442>
- Sung, M.Y., Park, J.S., Lim, J.H., Park, H.Y., Cho, S.Y. (2020) A Long Term Trend of Gaseous and Particulate Acid/Base Species and Effects of Ammonia Reduction on Nitrate Contained in PM_{2.5}, 2009~2018, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(2), 249-261, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/kosae.2020.36.2.249>
- Stockwell, W.R., Middleton, P., Chang, J.S., Tang, X. (1990) The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 95, 16343-16367.
- Tewari, M., Chen, F., Wang, W., Dudhia, J., LeMone, M.A., Mitchell, K., Ek, M., Gayno, G., Wegiel, J., Cuenca, R.H. (2004) Implementation and verification of the unified NOAA land surface model in the WRF model, 20th conference on weather analysis and forecasting/16th conference on numerical weather pre-

- diction, 11-15.
- Woo, J.-H., Kim, Y., Kim, J., Park, M., Jang, Y., Kim, J., Bu, C., Lee, Y., Park, R., Oak, Y., Emmons, L., Crawford, J. (2020) KORUS Emissions: A Comprehensive Asian Emissions Information in Support of the NASA/NIER KORUS-AQ mission. *Elementa Science of the Anthropocene*, in preparation.
- Xue, J., Yu, X., Yuan, Z., Griffith, S.M., Lau, A.K.H., Seinfeld, J.H., Yu, J.Z. (2019) Efficient control of atmospheric sulfate production based on three formation regimes, *Nature Geoscience*, 12(12), 977-982. <https://doi.org/10.1038/s41561-019-0485-5>
- Xue, J., Yuan, Z., Griffith, S.M., Yu, X., Lau, A.K., Yu, J.Z. (2016) Sulfate Formation Enhanced by a Cocktail of High NO_x, SO₂, Particulate Matter, and Droplet pH during Haze-Fog Events in Megacities in China: An Observation-Based Modeling Investigation, *Environmental Science & Technology*, 50(14), 7325-7334. <https://doi.org/10.1021/acs.est.6b00768>
- Zhao, J., Qiu, Y., Zhou, W., Xu, W., Wang, J., Zhang, Y., Li, L., Xie, C., Wang, Q., Du, W., Worsnop, D.R., Canagaratna, M. R., Zhou, L., Ge, X., Fu, P., Li, J., Wang, Z., Donahue, N. M., Sun, Y. (2019) Organic Aerosol Processing During Winter Severe Haze Episodes in Beijing, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 124(17-18), 10248-10263. <https://doi.org/10.1029/2019jd030832>

Authors Information

강윤희 (아주대학교 환경연구소 연구조교수)

김은혜 (아주대학교 환경안전공학과 강사)

유승희 (아주대학교 환경공학과 박사과정)

배민아 (아주대학교 환경공학과 박사과정)

손규원 (아주대학교 환경공학과 석사과정)

김병욱 (Program Manager 1, Georgia Environmental Protection Division, Atlanta, GA, USA)

김현철 (Research Scientist, Air Resources Laboratory, National Oceanic and Atmospheric Administration, College Park, MD, USA)

김순태 (아주대학교 환경안전공학과 교수)

Supplementary Materials

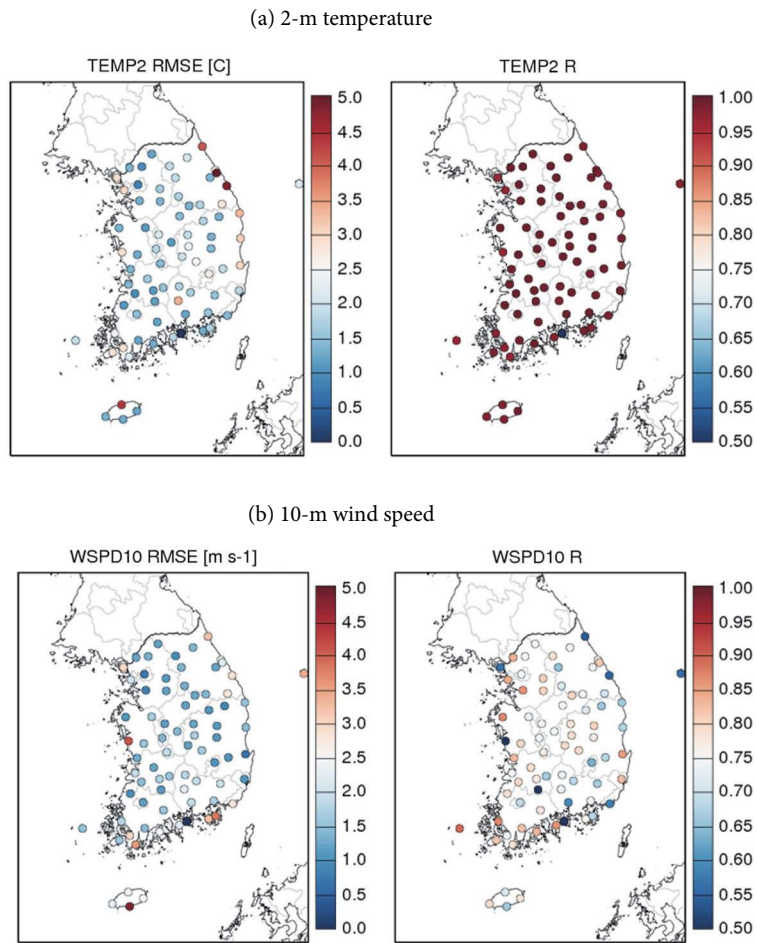


Fig. S1. The spatial distributions of the RMSE and R for the simulated (a) 2-m temperature and (b) 10-m wind speed during 2019.

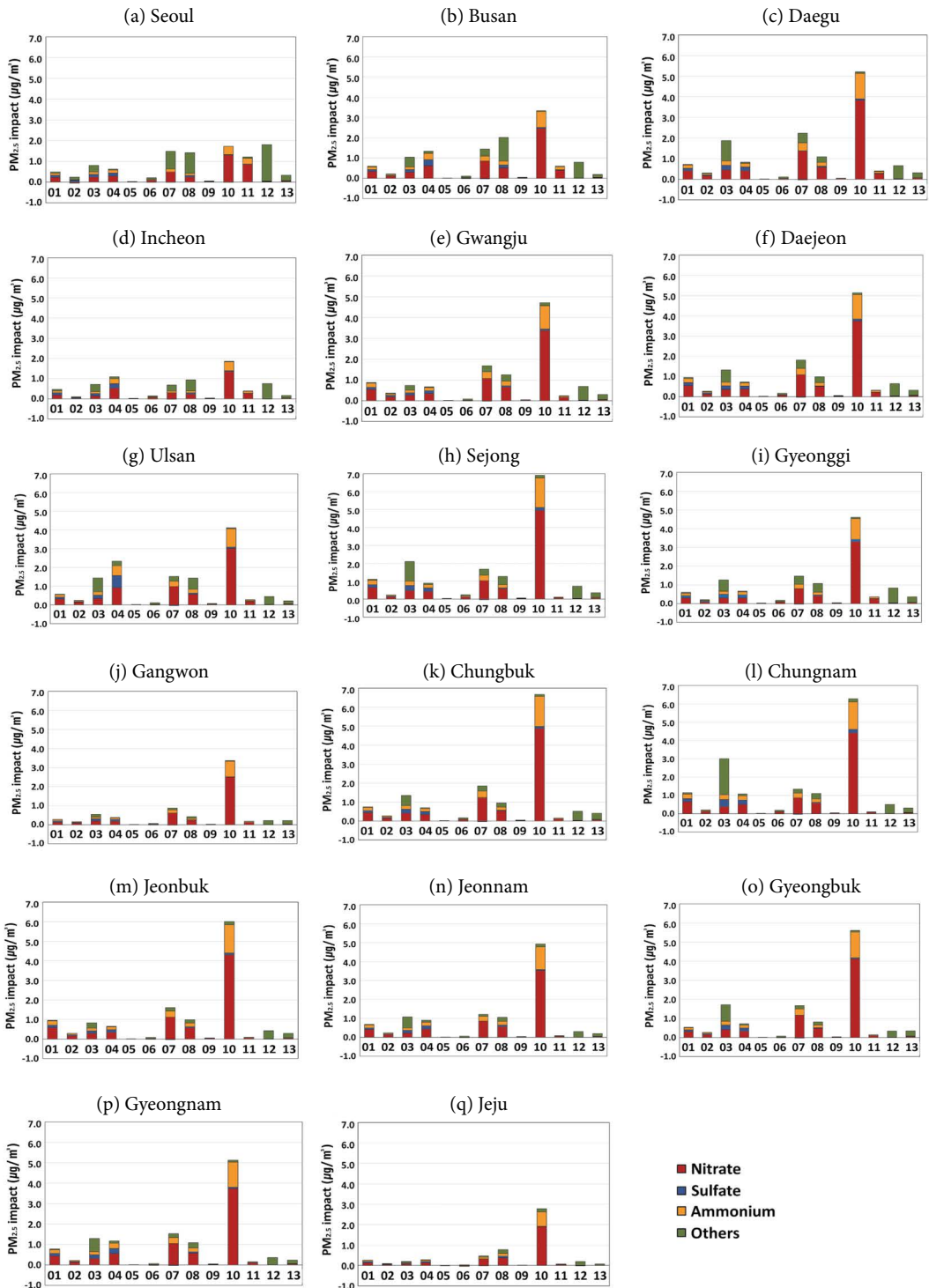


Fig. S2. The impacts of PM_{2.5} and its components (nitrate, sulfate, and ammonium) for the individual source sectors of CAPSS 2016 in major authorities.

Table S1. Statistical verification of simulated PM_{2.5}, nitrate, sulfate, ammonium, EC, and OC concentrations from the intensive air quality monitoring stations (IAQMS) during 2019.

[a] PM _{2.5}						
IAQMS	The number of data	Mean _{obs} (μg/m ³)	Mean _{cmaq} (μg/m ³)	Mean bias (μg/m ³)	RMSE (μg/m ³)	R
Baengnyeong	8351 (95%)	20.32	13.51	-6.80	16.47	0.68
Seoul	8611 (98%)	26.35	20.81	-5.54	16.12	0.69
Daejeon	8610 (98%)	25.92	19.20	-6.73	16.78	0.73
Gwangju	8439 (96%)	25.87	18.95	-6.92	15.66	0.75
Jeju	7593 (87%)	12.79	12.84	0.05	11.60	0.63
Ulsan	8683 (99%)	17.97	18.95	0.99	13.86	0.65
[b] Nitrate						
IAQMS	The number of data	Mean _{obs} (μg/m ³)	Mean _{cmaq} (μg/m ³)	Mean bias (μg/m ³)	RMSE (μg/m ³)	R
Baengnyeong	7208 (82%)	5.15	3.64	-1.51	8.65	0.54
Seoul	8049 (92%)	5.50	6.91	1.40	6.97	0.68
Daejeon	7339 (84%)	5.04	7.61	2.58	7.83	0.67
Gwangju	7941 (91%)	5.63	7.33	1.70	7.41	0.67
Jeju	6303 (72%)	2.43	4.32	1.88	5.68	0.54
Ulsan	8004 (91%)	3.69	6.87	3.19	7.51	0.63
[c] Sulfate						
IAQMS	The number of data	Mean _{obs} (μg/m ³)	Mean _{cmaq} (μg/m ³)	Mean bias (μg/m ³)	RMSE (μg/m ³)	R
Baengnyeong	7208 (82%)	5.14	2.89	-2.24	4.55	0.64
Seoul	8049 (92%)	3.65	3.02	-0.63	2.91	0.64
Daejeon	7341 (84%)	3.44	2.95	-0.48	2.65	0.60
Gwangju	7941 (91%)	4.43	2.93	-1.50	3.42	0.64
Jeju	6303 (72%)	3.96	2.79	-1.18	3.15	0.58
Ulsan	8004 (91%)	3.89	3.57	-0.33	5.65	0.35
[d] Ammonium						
IAQMS	The number of data	Mean _{obs} (μg/m ³)	Mean _{cmaq} (μg/m ³)	Mean bias (μg/m ³)	RMSE (μg/m ³)	R
Baengnyeong	7208 (82%)	3.41	2.14	-1.27	3.82	0.63
Seoul	7998 (91%)	3.07	3.23	0.16	2.72	0.71
Daejeon	7341 (84%)	2.83	3.41	0.57	2.73	0.69
Gwangju	7941 (91%)	3.68	3.37	-0.31	2.84	0.70
Jeju	6302 (72%)	2.11	2.44	0.33	2.32	0.62
Ulsan	8004 (91%)	3.07	3.42	0.34	3.00	0.60
[e] OC						
IAQMS	The number of data	Mean _{obs} (μg/m ³)	Mean _{cmaq} (μg/m ³)	Mean bias (μg/m ³)	RMSE (μg/m ³)	R
Baengnyeong	7346 (84%)	2.31	1.09	-1.21	2.00	0.68
Seoul	7894 (90%)	3.68	1.78	-1.91	2.61	0.65
Daejeon	7670 (88%)	3.79	1.33	-2.46	3.14	0.61
Gwangju	7659 (87%)	4.13	1.34	-2.79	3.61	0.60
Jeju	6845 (78%)	1.58	0.82	-0.77	1.23	0.67
Ulsan	7621 (87%)	2.72	1.13	-1.58	2.16	0.65
[f] EC						
IAQMS	The number of data	Mean _{obs} (μg/m ³)	Mean _{cmaq} (μg/m ³)	Mean bias (μg/m ³)	RMSE (μg/m ³)	R
Baengnyeong	7346 (84%)	0.51	0.48	-0.03	0.49	0.69
Seoul	7881 (90%)	0.93	1.24	0.31	0.85	0.52
Daejeon	7670 (88%)	1.07	0.70	-0.37	0.71	0.62
Gwangju	7659 (87%)	0.81	0.77	-0.03	0.55	0.64
Jeju	6845 (78%)	0.41	0.38	-0.02	0.29	0.69
Ulsan	7618 (87%)	0.51	0.65	0.14	0.40	0.58