

논문

2016년 국가배출목록 기반 지자체별 초미세먼지 기여도 분석: (V) 울산

Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (V) Ulsan

강윤희, 유승희¹, 손규원¹, 김은혜, 배민아¹, 김순태²,*

아주대학교 환경연구소, ¹아주대학교 환경공학과, ²아주대학교 환경안전공학과

Yoon-Hee Kang, Seunghee You¹, Kyuwon Son¹, Eunhye Kim,
Minah Bae¹, Soontae Kim²,*

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

¹Department of Environmental Engineering, Ajou University, Suwon, Republic of Korea

²Department of Environmental and Safety Engineering, Ajou University,

Suwon, Republic of Korea

접수일 2021년 3월 7일
수정일 2021년 5월 18일
채택일 2021년 5월 20일

Received 7 March 2021
Revised 18 May 2021
Accepted 20 May 2021

*Corresponding author

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

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

Abstract The annual mean PM_{2.5} concentration in Ulsan, the largest industrial city in South Korea, still does not meet the national ambient air quality standard (15 µg/m³) while the PM_{2.5} concentrations have recently shown a decreasing trend. In this study, we identified the major contributors to PM_{2.5} concentrations in Ulsan for the year of 2016 using the Comprehensive Air quality Model with eXtensions with Particulate Source Apportionment Technology (CAMx-PSAT). The foreign and domestic contributions to the annual PM_{2.5} concentration in Ulsan were 11.3 µg/m³, 11.6 µg/m³, respectively. The average of self-contribution was 6.8 µg/m³ in Ulsan, while Nam-gu where the Ulsan·Mipo national industrial complex are located had the highest self-contribution (13.0 µg/m³, 75% of domestic contributions) among five local authorities in Ulsan. The contributions of Gyeongbuk, one of the neighboring provinces, to the annual mean PM_{2.5} in Ulsan was the highest (1.4 µg/m³) for the year, followed by Gyeongnam (0.6 µg/m³), Chungnam (0.5 µg/m³), Busan (0.4 µg/m³), and Daegu (0.2 µg/m³). It was confirmed that the contributions were affected by prevailing winds in and around Ulsan. During the warm season (April to July), the self-contribution was 2.5 times higher than the neighboring provincial contribution even though the PM_{2.5} contributions of Busan and Gyeongnam, locating in the south and west of Ulsan, have increased during the warm season. For the rest of the year, the self- and neighboring provincial contributions were similar to 5.1 and 4.8 µg/m³, respectively. Note that uncertainties in the emissions inventory used in this study (i.e., Clean Air Policy Support System 2016) have clearly led to the over-predictions of the PM_{2.5} and SO₂ in Nam-gu, Ulsan. It is, therefore, a prerequisite to have the local emissions that can explain the current air pollution in the area prior to developing a comprehensive air quality improvement plan.

Key words: PM_{2.5}, Ulsan, Industrial city, Self-contribution, Local winds

1. 서 론

울산은 1962년 이후 울산항을 중심으로 울산·미포, 온산 국가산업단지가 형성되면서 우리나라 대표적인 산업도시가 되었으나, 이로 인한 지속적인 대기질 악화 심각한 환경문제가 발생하면서 1986년 대기특

별대책지역으로 지정되었다(UMC, 2020a). 이후 울산시는 대기오염 도시의 이미지를 벗어나기 위해 사업장에 대한 엄격한 배출허용기준 적용, 선박 배출원 관리, 저유황과 청정연료 사용 등 다양한 대기환경 정책을 지속적으로 시행하였다(UMC, 2020b; Lee *et al.*, 2011). 그 결과 2018년 이후 초미세먼지를 제외한 대

기오염물질(SO₂, NO₂, PM₁₀)에 대해 연평균 대기환경기준을 만족하고 있다(MOE, 2020).

울산의 연평균 초미세먼지(PM_{2.5}; Particulate matter of which diameter is less than 2.5 μm) 농도는 측정이 시작된 2015년에 25 μg/m³이었고, 이후 23~25 μg/m³의 농도 범위를 보이다가 2019년에는 20 μg/m³로 국내 주요 대도시 중 가장 낮은 농도를 기록하였다(MOE, 2020). 하지만 여전히 울산의 PM_{2.5} 농도는 연평균 대기환경기준(15 μg/m³)을 5 μg/m³이나 초과하고 있어 울산과 주변지역의 PM_{2.5}와 전구물질에 대한 체계적이고 효율적인 배출관리가 필요하다. 더욱이 울산은 배출원이 밀집된 산업단지가 거주지역과 인접하여 PM_{2.5} 노출에 따른 시민들의 건강영향에 대한 우려가 높고 이에 대한 대책마련이 시급하다(Oh *et al.*, 2018; Choi *et al.*, 2006).

울산은 지리적으로 한반도 동쪽 연안에 위치하고, 울산만을 제외하고는 산으로 둘러싸여 수도권이나 국내 주변 시도와는 다른 대기오염 농도 특성을 가질 수 있다(Lee *et al.*, 2014; Lee *et al.*, 2013). Nguyen *et al.* (2018)은 울산에서 측정된 PAHs (Polycyclic Aromatic Hydrocarbons) 농도 분석 결과, 외부 유입에 의한 PM_{2.5} 고농도 발생 외에도 연중 산업단지에서 배출된 독성물질의 영향을 받고 있으므로, 울산 자체 배출관리의 중요성을 언급하였다. Oh *et al.* (2016)에서는 대기질 모사와 측정 농도를 토대로 울산 대기오염물질 공간분포를 계절별로 분석하였는데, 산업단지를 중심으로 고농도 분포가 뚜렷하고 여름을 제외하고는 연중 우세한 북서풍으로 산단 배출에 의한 대기오염이 내륙 일부지역으로 제한되었음을 보여주었다. 이처럼 좁은 지역에 밀집된 대규모 산업단지로 인해 울산의 PM_{2.5} 농도는 자체 배출의 기여가 가장 클 것으로 예상되나, 이에 대해 정량적 평가는 부족하다. Ju *et al.* (2018)에서 2014년 울산을 포함한 동남권역 PM_{2.5} 농도에 대한 주요 지자체의 자체 기여도와 상호 기여도를 분석한 바 있으나, 최근 국가배출목록의 업데이트와 전국 3 km 수평해상도의 고해상도 대기질 모사가 가능해진 만큼 울산 PM_{2.5} 농도에 대한 자체 및 외부

지역 배출에 의한 기여도를 보다 세밀하게 파악할 필요가 있다.

본 연구에서는 2016년을 대상으로 CAMx (Comprehensive Air Quality Model with eXtension) - PSAT (Particulate Source Apportionment Technology) 모사를 이용하여 울산의 PM_{2.5} 및 구성성분 농도에 대한 지역별 배출 기여도를 정량적으로 제시하였다. 먼저 국외와 국내 배출에 의한 기여농도를 구분하여 살펴 보았고, 국내 배출에 대해서는 울산의 자체 배출에 의한 기여농도와 주변 시도(부산, 경남, 경북 등) 배출에 의한 기여농도를 비교·분석하였다. 이를 통해 향후 울산에서 주변 지역 및 국내 배출량 저감에 따라 가능한 PM_{2.5} 농도 개선 정도를 추정하였으며, 관측-모사 농도 비교를 통해 현재 울산지역 국가배출목록의 불확도와 향후 정확한 대기질 관리를 위해 우선적으로 개선이 필요한 배출 부문에 대해 논의하였다.

2. 연구 방법

2.1 대상지역

한반도 동남 연안에 위치한 울산은 총 인구 1,157,864명, 면적은 1,062.04 km²로 서쪽으로는 경남 밀양과 경북 청도군, 남쪽으로는 부산과 양산, 북쪽으로는 경주와 접하고 있다(UMC, 2021) (그림 1). 행정구역은 4개의 구(중구, 남구, 동구, 북구)와 1개의 군(울주군)으로 구분되어 있다. 이 중 울주군이 전체 면적의 약 71.4%로 가장 넓으나, 6.9%의 면적을 차지하는 남구에 울산 전체 인구의 약 28% (32.6만 명)가 집중되어 높은 인구밀도를 보인다.

울산은 태백산맥의 남단부에 자리잡고 있어 서쪽과 북쪽으로는 해발고도 1,000 m 이상의 높은 산들이 많고, 동쪽 연안으로 갈수록 지형고도가 낮아지는 특징을 보인다. 이 때문에 울산만을 중심으로 울산항과 대규모 산업단지들이 조성되어 있는데, 대표적 산업단지는 울산·미포 국가산업단지와 온산 국가산업단지이다. 울산·미포 국가산업단지는 화학제품 관련 산업

이 전체의 34%로 가장 높은 비중을 차지하고, 운송장비 19%, 석유정제와 자동차 산업이 각각 15%를 차지한다(UMC, 2021). 반면 온산 국가산업단지는 석유화학 및 금속 관련 사업장이 주로 분포한다(석유정제 31%, 1차금속 21%, 화학제품 19% 차지).

본 연구에서 사용된 CAPSS 2016년 배출량을 기반으로 울산과 인접 지자체의 배출량 분포를 살펴보면 울산의 NO_x와 SO_x 배출량은 각각 51,233 TPY (ton per year), 49,214 TPY로, 부산, 대구와 비교하면 NO_x는 각각 1.0배, 1.7배로 유사한 수준이나 SO_x의 경우 각각 4.6배, 11.8배로 매우 많다. 특히 SO_x 배출량은

경남과 경북보다 많으며, 충남과 비교하면 약 60% 수준이다. 뿐만 아니라, 울산의 연간 VOC 배출량은 96,801 TPY로 상당히 많은데 이는 경남 및 경북의 VOC 배출량과 비슷한 수준이고, 단위면적당 배출량인 배출밀도(91.6 TPY/km²) 기준으로는 서울(104.26 TPY/km²) 다음으로 전국에서 두 번째로 높다.

울산의 기초 지자체 중에서 남구의 NO_x, SO_x, VOC, NH₃, PPM_{2.5} 배출량은 울산 전체 배출량의 각각 52.7%, 61.2%, 51.5%, 51.4%, 49.8%로 높은 비중을 차지한다. 남구의 경우, 그림 1에서 제시하였듯이 대규모 국가산업단지에 석유정제 및 화학업종이 다수 위치하고 있어 대기오염물질 배출이 많은 것으로 파악된다. 남구 다음으로는 울주군의 NO_x, SO_x 배출량이 각각 31%, 37%로 높는데 울주군 동쪽 해안에는 온산 국가산업단지가 위치한다.

2016년 울산의 연평균 풍속은 2.1 m/s로, 여름철(6~8월)과 겨울철(12~2월)의 평균 풍속은 각각 1.8 m/s, 2.3 m/s 수준이었다(울산 기상대 기준, 관측지점 위치는 그림 1 참고). 대기오염물질의 확산 방향과 관련이 있는 울산의 풍계는 연중 북북서풍(17.8%)과 북서풍(14.9%)의 빈도가 가장 높았고, 모든 계절별 풍향 역시 북북서풍 또는 북서풍의 빈도가 가장 높았다(그림 2, 부록 그림 S1 참고). 하지만 4~7월에는 여름계절풍의 영향으로 인해 남동계절의 바람 빈도가 다른 계절에 비해 상대적으로 높아지는 특징을 보인다.

본 연구에서 울산의 PM_{2.5} 농도 분석 및 대기질 모

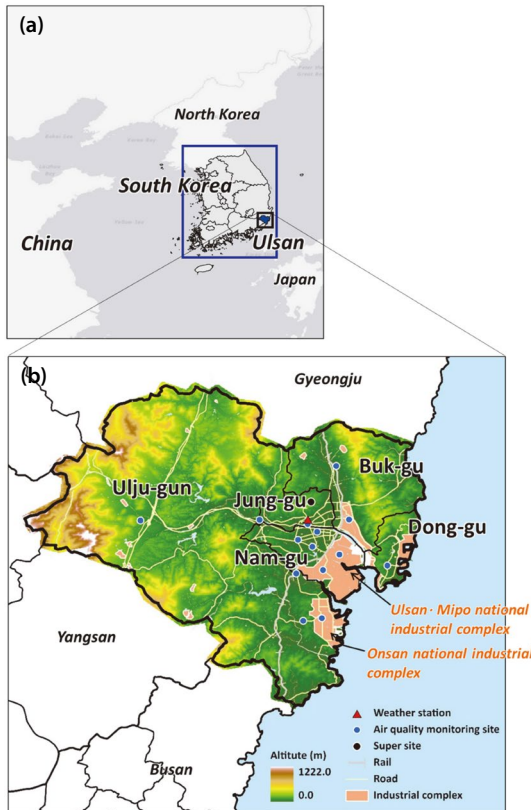


Fig. 1. (a) The location of Ulsan, and (b) a precise topography, industrial areas, main roads, and five local authorities (Jung-gu, Nam-gu, Dong-gu, Buk-gu, and Ulju-gun) in Ulsan. The blue square in (a) indicates the modeling domain at a horizontal grid resolution of 3-km. The blue and black circles in (b) indicate the urban air quality monitoring sites and the Young-nam super site in Ulsan, respectively. The red triangle is the Ulsan weather station.

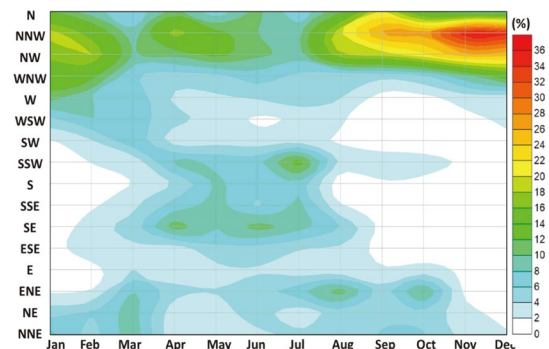


Fig. 2. Monthly variations of frequency of wind directions observed at the Ulsan weather station during 2016.

Table 1. Annual emission rates of NO_x, SO_x, VOC, NH₃, and Primary PM_{2.5} (PPM_{2.5}) in Ulsan and the surrounding regions estimated in the CAPSS 2016. (unit: TPY)

Local authority	NO _x	SO _x	VOC	NH ₃	PPM _{2.5}
Ulsan	51,223	49,214	96,801	15,134	2,502
Dong-gu	3,227 (6%)	903 (2%)	13,804 (14%)	67 (0%)	140 (6%)
Nam-gu	27,008 (53%)	30,110 (61%)	49,836 (51%)	7,785 (51%)	1,246 (50%)
Jung-gu	1,883 (4%)	11 (0%)	1,904 (2%)	123 (1%)	91 (4%)
Buk-gu	3,001 (6%)	23 (0%)	7,889 (8%)	164 (1%)	141 (6%)
Ulju-gun	16,104 (31%)	18,166 (37%)	23,368 (24%)	6,994 (46%)	883 (35%)
Busan	49,468	10,777	40,899	1,744	2,544
Daegu	30,110	4,187	31,264	1,780	1,409
Gyeongnam	102,053	30,914	107,783	25,389	5,548
Gyeongbuk	109,746	39,361	85,068	34,252	22,670
Chungnam	134,889	81,843	73,310	49,585	18,822

사의 결과 검증을 위해 사용된 도시대기측정소는 총 14지점이고, 울주군에 4지점, 북구 2지점, 동구 1지점, 남구 6지점, 중구 1지점이 위치하고 있었다(2016년 기준, 그림 1 참고). 이 중 PM_{2.5} 농도가 유효한 측정지점은 총 6지점이었다. 이와 함께 PM_{2.5} 성분농도는 울산 중구에 위치한 영남권 대기환경연구소에서 수집된 값을 이용하였다.

2.2 대기질 모사 및 기여도 분석 방법

본 연구에 사용된 CAMx 모델은 미국 Ramboll사에서 개발한 모델(Ramboll-Environ, 2021)이며, 버전은 6.1이다. CAMx 모델은 CMAQ (The Community Multi-scale Air Quality) 모델과 함께 전 세계적으로 가장 널리 사용되는 광화학 대기질 모델로, 1, 2차 가스상 및 입자상 대기오염물질, 수은, 독성물질에 대한 모사가 가능하고 대기정책 평가에 유용한 다양한 기여도 분석 및 진단 도구들을 제공하고 있다. CAMx 모사 시 설정한 옵션의 경우, gas-phase chemistry는 SAPRC99 (Statewide Air Pollution Research Center, Version 99; Carter, 1999)을 사용하였고, 수평이류는 Piece-wise Parabolic Method (Colella and Woodward, 1984), Aerosol Chemistry는 SOAP (Strader *et al.*, 1999)와 Static 2-mode (Coarse-Fine Scheme) for size distri-

bution (ENVIRON International Corporation, 2014)을 적용하였다.

CAMx 모사영역은 국외 지역에서 배출되는 대기오염물질을 고려하기 위해 동북아 영역(174×128 격자, 27 km 수평해상도)과 한반도 영역(71×89 격자, 9 km 수평해상도), 그리고 울산을 포함한 국내 기초 지자체별 배출량에 대한 기여도를 분석하기 위한 남한 영역(119×173 격자, 3 km 수평해상도)으로 구성하였다. 모사연도는 ‘미세먼지 관리 종합계획’과 ‘권역별 대기환경관리 기본 계획’ 수립시 분석된 국가배출목록 기준연도 및 대기질 모사의 대상연도와 동일한 2016년으로 설정하였다. CAMx 모델의 배출량 입력자료의 경우, 국외지역은 CREATE 2015 (Comprehensive Regional Emissions inventory for Atmospheric Transport Experiment 2015), 남한에 대해서는 Clean Air Policy Support System 2016 (NAIR, 2019)을 Sparse Matrix Operator Kernel Emissions (SMOKE; Benjey *et al.*, 2001) 모델 버전 3.1을 이용하여 생성하였다. 자연 배출량의 경우, 식생정보를 입력한 Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN; Guenther *et al.*, 2006) 버전 2.04를 이용하여 산정하였다.

기상 입력자료는 Weather Research and Forecasting (WRF) 버전 3.9.1 (Skamarock *et al.*, 2008)을 이용하

였으며, WRF 모델의 초기/경계조건은 National Centers for Environmental Prediction (NCEP)에서 제공하는 $1.0^{\circ} \times 1.0^{\circ}$ 격자, 6시간 간격의 FNL Operational Global Analyses 자료를 사용하였다. 미세물리방안은 WSM6 (Lim and Hong, 2010), PBL 방안은 YSU (Hong *et al.*, 2006)를 적용하였다. 보다 상세한 대기질 모사 수행 방법은 동반논문 (You *et al.*, 2020)을 참고할 수 있다.

울산의 $PM_{2.5}$ 기여도 분석은 CAMx 모델에서 제공하는 PSAT (Yarwood *et al.*, 2007) 방법을 이용하였다. 울산을 포함하여 울산의 $PM_{2.5}$ 농도에 영향을 주는 국내 지자체별 기여도를 산출하기 위하여 모사영역 중 남한 영역(3 km 수평해상도)에서 각 시군별(160개 지자체) 대기오염물질 배출량(1차 $PM_{2.5}$, NO_x , SO_x , NH_3 , VOC 등)을 표식하고 추적하였다. 울산의 $PM_{2.5}$ 기여도는 국외로부터의 대기오염물질 장거리 수송에 의한 $PM_{2.5}$ 기여농도(‘국외 기여농도’)와 국내 배출에 의한 $PM_{2.5}$ 기여농도(‘국내 기여농도’)를 우선적으로 구분하였다. 국외 기여농도는 모사된 $PM_{2.5}$ 농도에서 표식된 국내 배출에 의한 기여농도를 제외한 값으로 산출하였다. 국내 기여농도에 대해서는 울산에서 배출된 대기오염물질에 의한 $PM_{2.5}$ 기여농도로 정의된 ‘자체 기여농도’와 울산이 아닌 주변 시도에 의한 $PM_{2.5}$ 기여농도를 의미하는 ‘주변 시도 기여농도’로 구분하였다. 이때 주변 시도 기여농도의 경우, 국내 17개 광역 지자체 중 울산 $PM_{2.5}$ 농도에 상대적으로 영

향을 크게 준 것으로 파악된 부산, 대구, 경상남도(경남), 경상북도(경북), 충청남도(충남)에 대해 제시하였다.

$PM_{2.5}$ 구성성분은 1차 $PM_{2.5}$ (Primary $PM_{2.5}$; $PPM_{2.5}$), 질산염(NO_3^-), 황산염(SO_4^{2-}), 암모늄(NH_4^+)에 대해 분석하였고, $PM_{2.5}$ 전구물질의 단위 배출량당 기여농도로의 전환 정도를 의미하는 배출-농도 전환율(Emission-to-concentration conversion rate) (Kang *et al.*, 2021; Kim *et al.*, 2017a)을 함께 제시하여 울산의 단위 배출량 저감에 따른 $PM_{2.5}$ 농도의 개선효과 정도를 추정하였다.

3. 연구 결과

3.1 국외 및 국내 배출에 의한 $PM_{2.5}$ 기여농도

울산의 2016년 연평균 $PM_{2.5}$ 모사 농도는 $24.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (연평균 관측 농도 $23.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$)이었고, 지역별로는 울산항과 울산·미포 국가산업단지가 위치한 남구 연안 지역을 중심으로 $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이상의 고농도가 모사되었다(그림 3(a)). 모사된 $PM_{2.5}$ 농도는 포항지역을 제외 하곤 인근 지자체 중 울산에서 가장 높았고, 울산 기초 지자체 중에서는 울주군($19.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$)에서 가장 낮고, 남구($29.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$)에서 가장 높았다.

울산의 연평균 $PM_{2.5}$ 모사 농도 중 국내와 국외 배출에 의한 $PM_{2.5}$ 기여농도는 각각 $11.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 과 11.6

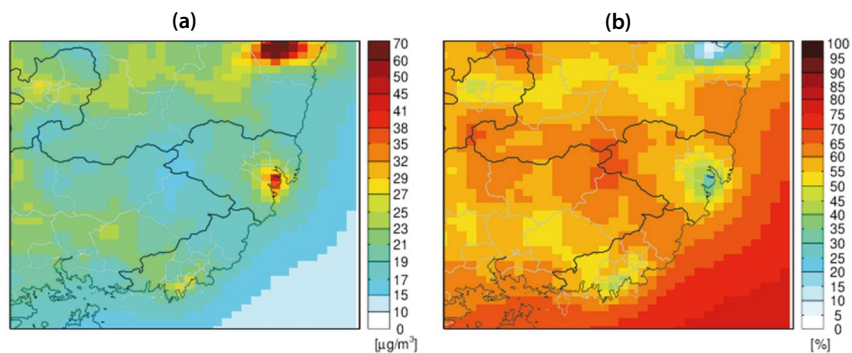


Fig. 3. Spatial plots of (a) the simulated annual mean $PM_{2.5}$ concentrations, and (b) the relative foreign contributions in and around Ulsan during the simulation period of 2016.

$\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이었다. 국외 배출에 의한 $\text{PM}_{2.5}$ 기여농도는 동반논문에서 제시한 인천($19.0\sim 21.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, Kim *et al.*, 2021a), 서울($18.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$, Bae *et al.*, 2021), 전북($13.1\sim 17.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$, Kim *et al.*, 2021b), 충북($15.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$, Son *et al.*, 2021)과 비교하면 낮은 수준이었다. 이는 한반도 동쪽에 위치한 울산의 지리적 특성으로 인해 중국에서 장거리 수송되는 오염물질의 영향을 상대적으로 덜 받기 때문으로 판단된다(Bae *et al.*, 2020b). 또한 $\text{PM}_{2.5}$ 농도의 공간분포와는 상반되게 울산 $\text{PM}_{2.5}$ 모사 농도에 대한 국외 배출 기여율(그림 3(b))은 남구에서 25%로 가장 낮았는데, 이는 남구에서 배출되는 다량의 대기오염물질로 인해 국내 배출 기여가 상대적으로 높았기 때문이다. 반면 울산 외곽지역인 울주군과 북구로 갈수록 국외 기여율은 점차 높아져, 울주군 서쪽에서는 $\text{PM}_{2.5}$ 모사 농도의 70%에 해당하는 국외 기여율이 확인된다.

그림 4(a)에서 울산 행정구역별 국외 및 국내 배출에 의한 $\text{PM}_{2.5}$ 기여농도를 살펴보면, 국외 기여농도는 $11.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (울주군) $\sim 11.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (남구)로 비슷한 반면, 국내 기여농도는 남구에서 $17.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 가장 높고, 중구와 동구가 각각 $11.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $11.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 북구와 울주군에서 $8.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $8.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 지역 간 편차가 크게 나타났다. 그림 4(b)에서 월별 국외의 $\text{PM}_{2.5}$ 기여농도는 1월부터 5월까지 약 $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이상으로

높게 유지되다가 6월부터 급격히 감소하기 시작하여 7월에 $3.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 가장 낮았고 이후 서서히 높아진다. 이와 관련하여 한반도 서쪽에 위치한 중국으로부터의 대기오염물질 수송 영향이 서풍 또는 북서풍 계열의 계절풍이 빈번한 겨울철/봄철에 커지는 것으로 분석되었다(Bae *et al.*, 2020a; Kim *et al.*, 2017b). 반면 6월과 7월은 앞서 울산의 월별 풍향 빈도(그림 2)에서 제시한 것처럼 남풍/남동풍의 빈도가 높아지면서 상대적으로 깨끗한 공기가 유입되고 국외 기여농도가 줄어든 것으로 해석된다.

울산 $\text{PM}_{2.5}$ 농도에 대한 국내 기여농도는 3월부터 8월까지 $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이상으로 높게 유지되고 가을과 겨울철에 낮았는데, 국내 기여농도가 가장 높은 달은 6월($15.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$)이었고 9월($7.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$)에 가장 낮았다. 울산 기초 지자체별 국내 기여농도에서는 7월 남구에서 $25.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 최고값을 보였는데, 같은 시기의 울주군은 $9.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 나타나 울산 내에서도 지역 간 차이가 상당히 컸다. 이는 국내 동일한 배출량 저감정책 시행 시에도 $\text{PM}_{2.5}$ 농도의 개선 효과는 울산 내 기초 지자체별로 차이가 클 수 있음을 의미한다. 또한, 다른 기초 지자체에 비해 유난히 높게 산정된 남구의 국내 기여농도는 대기질 모사에 이용된 배출목록의 불확도가 반영된 결과일 수 있으며, 이와 관련된 논의는 3.4절에 제시하였다.

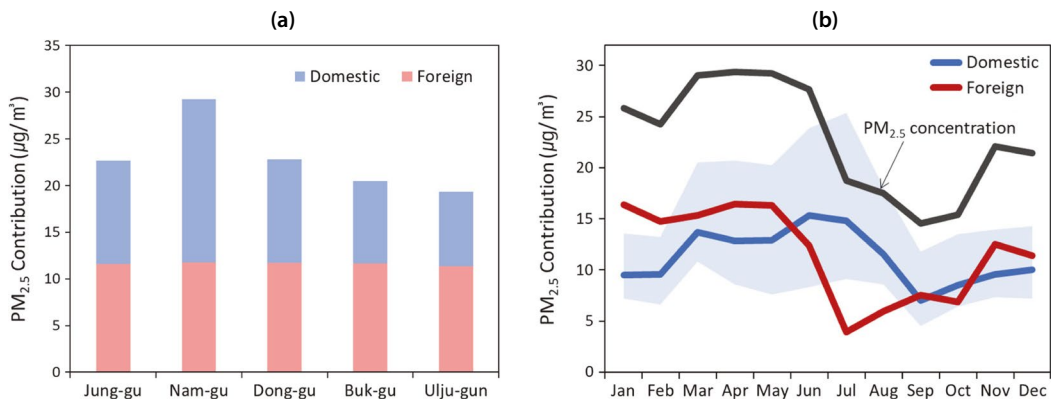


Fig. 4. (a) Domestic and foreign contributions for $\text{PM}_{2.5}$ concentrations, and (b) monthly variations of domestic and foreign contributions in Ulsan during the simulation period of 2016. Blue shaded area indicates the range of minimum and maximum domestic $\text{PM}_{2.5}$ contributions.

울산은 2016년 3월부터 6월까지 PM_{2.5} 모사 농도가 높게 유지되는데 (27.7~29.3 µg/m³), 이때는 국내와 국외 PM_{2.5} 기여농도가 모두 높은 시기였다. 특히, 5~6월 동안 다른 월에 비해 상대적으로 높은 PM_{2.5} 농도는 관측에서도 확인되었다. 울산의 2016~2019년 5월과 6월 평균 PM_{2.5} 관측 농도는 각각 27.5 µg/m³, 26.0 µg/m³으로 울산을 제외한 국내 주요 대도시(서울, 부산, 대구, 인천, 광주, 대전, 세종)의 평균 농도보다 약 12%, 15% 높은 수치였다. 미세먼지 계절관리제를 포함한 국내 미세먼지 관리대책이 겨울철인 12~3월에 집중됨을 감안하면, 울산지역에 대해서는 늦은 봄과 초여름까지(4~6월) 높게 유지되는 월평균 PM_{2.5} 농도에 대한 추가적인 국내 배출 관리대책이 필요하다.

3.2 PM_{2.5}와 구성성분의 자체 및 주변 시도 기여농도

울산 PM_{2.5} 농도에 대한 울산의 배출 기여농도(자체 기여농도)와 울산 PM_{2.5} 농도에 대해 기여가 큰 5개 광역 지자체(부산, 대구, 경남, 경북, 충남)의 배출 기여농도(주변 시도 기여농도)를 분석하였다. 울산 자체 기여농도(그림 5(a))는 울산 내 5개 행정구역 평균 6.8 µg/m³이었다. 만약 PM_{2.5} 생성 과정의 비선형성을 고려하지 않을 경우, 울산 전체 배출량의 50% 삭감은 울산의 PM_{2.5} 농도를 3.4 µg/m³ 낮출 수 있다. 본 연구에서 울산 자체 기여농도는 연평균 PM_{2.5} 모사 농도의 28.1%를 차지하였는데, 이는 Ju *et al.* (2018)와 NIER (2017)에서 각각 제시한 8.5% (2014년 대상, CAPSS 2013년 적용), 15% (2015년 대상, CAPSS 2015년 적용)와 비교하면 다소 높은 수치이다. 이는 모사 격자의 해상도 차이(Bae *et al.*, 2020b)와 함께 모사연도 및 배출목록의 차이에 따른 것으로 해석된다. 울산 중 배출량이 가장 많았던 남구의 자체 기여농도는 13.0 µg/m³로 매우 높았는데, 이는 3.1절에서 분석된 국내 기여농도(17.5 µg/m³) 중 약 74%에 해당하는 수치이다. 반면 중구와 동구의 자체 기여농도는 각각 6.8 µg/m³, 6.5 µg/m³이었고, 상대적으로 배출량이 적은 북구와 울주군의 자체 기여농도는 4.2 µg/m³, 3.3

µg/m³로, 국내 기여농도의 약 41~62% 수준이었다.

울산 PM_{2.5} 농도에 대한 주변 시도 기여농도는 해당 지자체의 위치와 배출량에 따라 다른 공간분포를 보였고(그림 5(b)~(f)), 이를 울산 기초 지자체별로 평균하여 비교하였다(그림 6). 주변 시도 중 가장 큰 PM_{2.5} 기여농도를 보인 지역은 경북이었고 1.1 µg/m³(동구)~1.6 µg/m³(북구)의 기여농도가 확인되었다. 다음으로는 경남의 기여농도가 0.5 µg/m³(북구)~0.8 µg/m³(울주군)로 높았다. 울산의 남쪽에 위치한 부산의 PM_{2.5} 기여농도는 동쪽 연안에 위치한 남구와 동구에서 0.5 µg/m³의 기여농도를 보였고, 상대적으로 내륙인 울주군에서는 0.3 µg/m³로 낮았다. 반면, 울산 서쪽에 위치한 대구의 기여농도는 울산 전역에 걸쳐 0.2 µg/m³로 낮았다. 특징적으로 지리적으로 울산과 더 인접한 충북(0.1 µg/m³)보다 충남의 PM_{2.5} 기여농도(0.5 µg/m³)가 높았는데, 이는 표 1에서 제시한 것처럼 충남의 배출량이 충북의 배출량보다 많기 때문으로 보인다.

이상을 정리하여 울산 기초 지자체별 주변 시도와 자체 배출에 의한 PM_{2.5} 기여농도를 비교해 보면, 울산 남구와 중구, 동구에서는 주변 시도 기여농도(각각 4.4 µg/m³, 4.6 µg/m³, 4.2 µg/m³)보다는 울산 배출에 의한 자체 기여농도(각각 13.0 µg/m³, 6.5 µg/m³, 6.8 µg/m³)가 높았다. 하지만 북구와 울주군에서는 주변 시도 기여농도가 4.7 µg/m³으로, 자체 기여농도와 비슷하거나 높았다. 효과적인 울산의 PM_{2.5} 농도 개선을 위해서는 이러한 기초 지자체 특성을 고려한 지역 맞춤형 배출저감정책과 함께 주변 지자체와의 협력이 필요해 보인다.

그림 7은 울산의 PM_{2.5} 구성성분(질산염, 황산염, 암모늄, 1차 PM_{2.5})에 대한 자체 기여농도와 주변 시도 기여농도의 분석 결과를 정리한 것이다. 질산염의 울산 자체 기여농도는 약 18% (0.47 µg/m³) 수준으로 낮았고, 울산이 아닌 타 지자체의 기여농도가 82% (2.07 µg/m³)를 차지하였다. 주변 시도 중에서는 경북의 기여농도가 0.35 µg/m³로 가장 높았는데, 이는 울산 자체 기여농도의 약 74%에 해당하는 농도이다. 반면, 황산

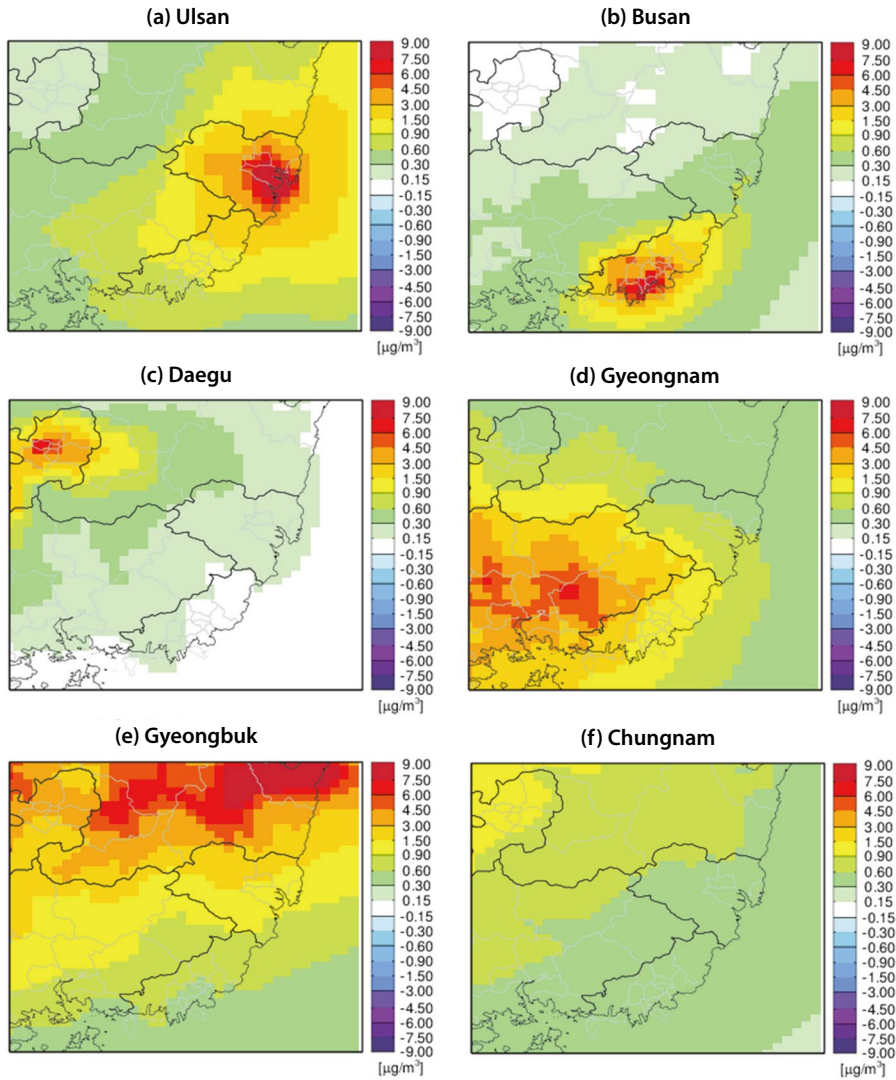


Fig. 5. Contributions of emissions released from (a) Ulsan, (b) Busan, (c) Daegu, (d) Gyeongnam, (e) Gyeongbuk, and (f) Chungnam to annual mean $PM_{2.5}$ concentrations in Ulsan during the simulation period of 2016.

염과 암모늄의 자체 기여농도는 각각 $1.46 \mu g/m^3$, $2.03 \mu g/m^3$ 으로, 국내 기여농도의 71%, 67%로 높은 비중을 차지하였다. 이는 울산의 높은 SO_x , NH_3 배출량에서 기인한 것으로 인근 지역인 부산과 비교하면 NO_x 배출량은 비슷하나 SO_x 와 NH_3 배출량은 각각 4.6배, 8.7배 많다. 울산의 SO_x 와 NH_3 배출량은 울산 전체 배출량의 65%와 87%를 차지하는 생산공정에서

많이 배출되며, 해당 배출원 관리는 울산의 황산염과 암모늄 농도 개선에 중요할 것으로 판단된다. 황산염에 대한 주변 시도 기여농도는 경북이 $0.11 \mu g/m^3$ 로 가장 높고, 충남이 $0.10 \mu g/m^3$, 경남과 부산이 각각 $0.07 \mu g/m^3$ 수준을 보였다.

암모늄의 주변 시도 기여농도 또한 경북의 기여농도가 $0.40 \mu g/m^3$ 로 다른 지역과 비교하여 월등히 높았

고, 나머지 지역에 대해서는 $0.02 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (대구)~ $0.14 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (경남) 수준이었다. 기초 지자체별로 살펴보면

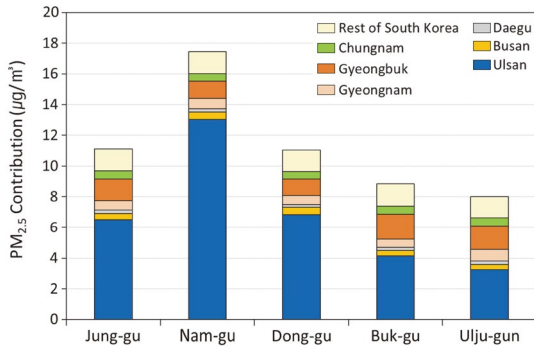


Fig. 6. Self- and neighboring provincial contributions to annual mean PM_{2.5} concentrations in five local authorities (Jung-gu, Nam-gu, Dong-gu, Buk-gu, and Ulju-gun) in Ulsan during the simulation period of 2016.

암모늄의 경우, 북구에 대한 경북의 기여농도 ($0.62 \mu\text{g}/\text{m}^3$)가 높고, 울주군의 경우, 경남의 기여농도 ($0.28 \mu\text{g}/\text{m}^3$)가 상대적으로 높게 나타났으며, 이는 지리적으로 인접해 있는 경북과 경남의 암모니아 배출량이 적지 않기 때문으로 판단된다(표 1 참고).

PM_{2.5} 구성성분에 대한 울산 자체 기여농도를 이용하여 울산의 PM_{2.5} 농도에 대한 배출-농도 전환율을 추정하였다. 전환율은 PM_{2.5} 전구물질의 단위 배출량 당 농도로의 전환되는 정도를 의미하는 것으로, 산정된 배출량이 일정 부분 변화하더라도 전환율을 이용할 경우 배출 영향을 산출할 수 있으며, 배출물질의 배출량 삭감에 따른 대책효과를 추정할 수 있다. 울산에서 배출된 연간 SO₂, NO_x, NH₃, 1차 PM_{2.5}의 단위 배출량이 각각 대기 중 황산염(SO₄²⁻), 질산염(NO₃⁻), 암모늄(NH₄⁺), 1차 PM_{2.5}(PPM_{2.5})로 변환되는 것

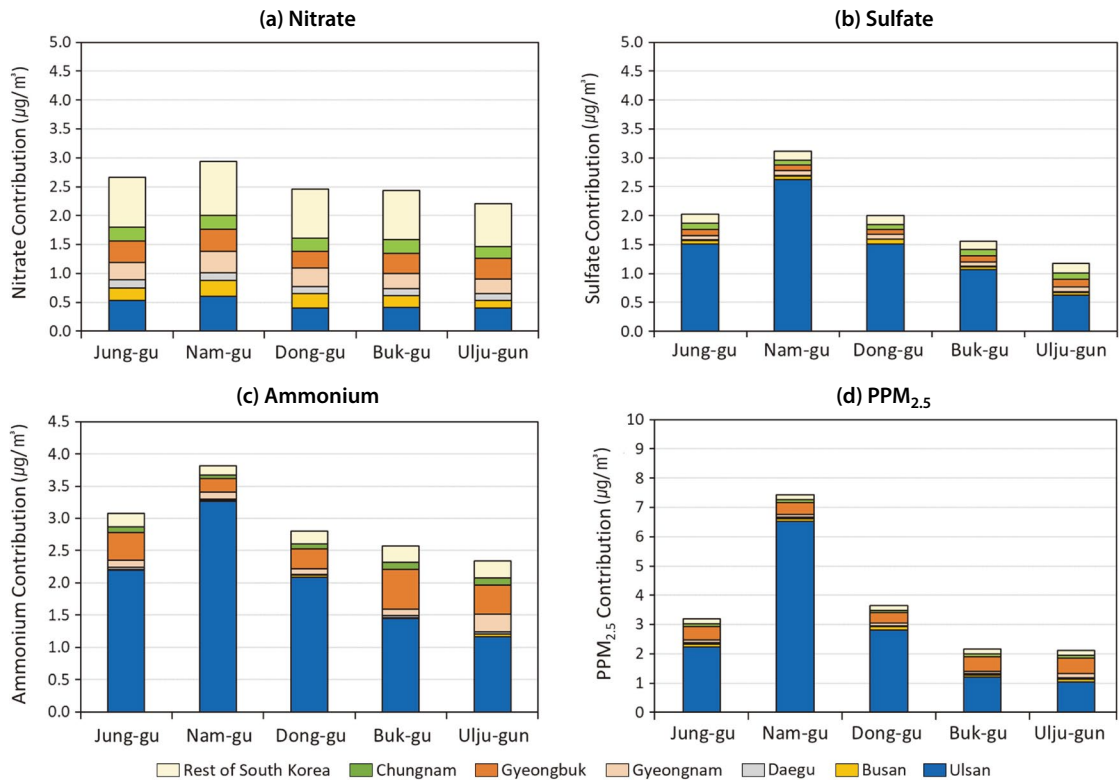


Fig. 7. Self- and neighboring provincial contributions to annual mean (a) Nitrate, (b) Sulfate, (c) Ammonium, and (d) PPM_{2.5} concentrations in five local authorities in Ulsan during the simulation period of 2016.

으로 가정하였다. 계산된 울산지역의 $\text{SO}_2 \rightarrow \text{SO}_4^{2-}$, $\text{NO}_x \rightarrow \text{NO}_3^-$, $\text{NH}_4^+ \rightarrow \text{NH}_3$ 의 전환율은 각각 0.030, 0.009, $0.134 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{kton}/\text{yr}$ 이었고, $\text{PPM}_{2.5} \rightarrow \text{PPM}_{2.5}$ 의 전환율은 $1.103 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{kton}/\text{yr}$ 으로 $\text{PM}_{2.5}$ 구성성분 중에서는 가장 크게 산정되었다. 1차 $\text{PM}_{2.5}$ 의 높은 전환율은 울산의 1차 $\text{PM}_{2.5}$ 연간 배출량이 $2.5 \text{kton}/\text{yr}$ 으로 다른 물질에 비해 작으나, 기여농도는 $2.76 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 높기 때문이다 (Kim *et al.*, 2017c; Kim *et al.*, 2017d). 이를 고려하면 울산의 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 개선을 위해서는 1차 $\text{PM}_{2.5}$ 배출 관리대책이 함께 강구되어야 한다.

3.3 자체 및 주변 시도 기여농도의 월변화

그림 8(a)에서 $\text{PM}_{2.5}$ 농도에 대한 자체 기여농도는 1월부터 높아지기 시작하여 6월 ($11.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$)과 7월 ($11.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$)에 가장 높았다. 국내 빈번한 $\text{PM}_{2.5}$ 고농도 발생으로 인하여 미세먼지 계절관리제가 시행되는 12월과 1~3월에 대한 울산의 자체 기여농도는 평균 $5.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ($3.9 \sim 7.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$)로, 이 기간 울산 전체 배출량 50% 삭감을 가정하면 $\text{PM}_{2.5}$ 농도는 $2.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 가량 감소할 것으로 예상된다. 한편, 울산 $\text{PM}_{2.5}$ 농도에 대한 부산과 경남의 기여농도는 여름철에 해당하는 6~7월 동안 각각 $0.93 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $0.88 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 높았고, 나머지 기간에 대해서는 경북의 기여농도가 높았다. 특히, 10월 경북의 기여농도 ($1.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$)는 울산의 자체 기여농도 ($4.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$)가 낮은 상황에서 연평균 $\text{PM}_{2.5}$ 대기환경기준의 12.6%를 차지하였다. 따라서 해당 기간 동안 경북의 배출 관리가 울산의 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 관리에 있어 중요할 것으로 판단된다.

이와 같은 계절별 $\text{PM}_{2.5}$ 기여농도의 변화는 주변 지자체의 위치와 2.1절에서 언급한 연중 울산지역 바람 등 기상 조건의 영향을 받는다. 예를 들어, 울산의 북서쪽에 위치한 충남의 기여농도는 1월과 2월 평균 $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 에 가까운데, 부산, 경남의 동기간 $\text{PM}_{2.5}$ 기여농도보다 각각 8배, 2배 높은 수치이다. 겨울철 풍속이 강한 북서 계절풍의 영향을 받아 상대적으로 원거리에서 위치한 충남에서 배출된 오염물질이 울산의 $\text{PM}_{2.5}$ 농도에 기여하는 것으로, 대상기간 지역의 바람

(풍향과 풍속)에 따라 주변 지역의 기여도가 달라짐을 보인다. $\text{PM}_{2.5}$ 기여농도에 대한 지역바람의 영향은 보충자료 그림 S2에 제시한 5~6월과 11~12월의 울산 자체 기여농도의 공간분포 차이에서도 나타난다. 5~6월의 경우, 울산 도심과 울산의 북동지역을 중심으로 $4.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이상의 자체 기여농도가 보이고, 11~12월에는 울산 남구와 남동쪽 해상으로 상대적으로 높은 자체 기여농도가 확인된다.

질산염의 울산 자체 기여농도는 월별 $0.16 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (1월)~ $0.75 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (8월)의 수준이었다. 주변 시도의 질산염 기여농도는 $\text{PM}_{2.5}$ 와 마찬가지로 여름철에는 부산과 경남의 기여농도가 높았고, 그 외 기간에 대해서는 충남과 경북의 기여농도가 높았다. 1월의 경우, 울산의 질산염 자체 기여농도 ($0.16 \mu\text{g}/\text{m}^3$)보다 경북 ($0.55 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 충남 ($0.49 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 대구 ($0.26 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 경남 ($0.24 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 배출에 의한 기여농도가 높게 나타났고, 10~12월에도 경북 배출에 의한 기여농도 ($0.48 \sim 0.55 \mu\text{g}/\text{m}^3$)가 울산 자체 배출의 기여농도 ($0.26 \sim 0.28 \mu\text{g}/\text{m}^3$)보다 높았다. 이는 겨울철 울산지역의 질산염 농도를 낮추기 위해서는 울산뿐만 아니라 주변 지자체 간 협력을 통한 NO_x 배출관리가 필요함을 시사한다.

암모늄의 경우, 봄부터 초여름까지 $5.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이상의 상대적 고농도가 모사되었고, 6월 이후 모사 농도가 감소하였다. 이는 봄에는 질산염이, 그리고 초여름에는 황산염의 영향이 높아지는 월별 변화의 결과로 보인다. 암모늄 농도의 월변화와 울산 자체 기여농도의 월변화는 유사한 변화를 보이나, 6~7월을 제외한 대부분의 계절 동안 경북의 암모늄 기여농도가 타 지자체(부산, 대구, 경남, 충남)보다 훨씬 높았다.

마지막으로 울산의 1차 $\text{PM}_{2.5}$ 농도는 1~5월에 $8.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이상의 고농도를 보였고, 8월에 $4.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 가장 낮았으나, 이에 대한 울산 자체 기여농도는 $2.2 \sim 3.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 월변화가 크지 않았다. 다만 1차 $\text{PM}_{2.5}$ 모사 농도는 EC와 POC (Primary Organic Carbon)을 포함하고 있으며, 앞서 언급한 것처럼 누락된 배출량으로 인해 모사 결과에 오차가 존재할 수 있다.

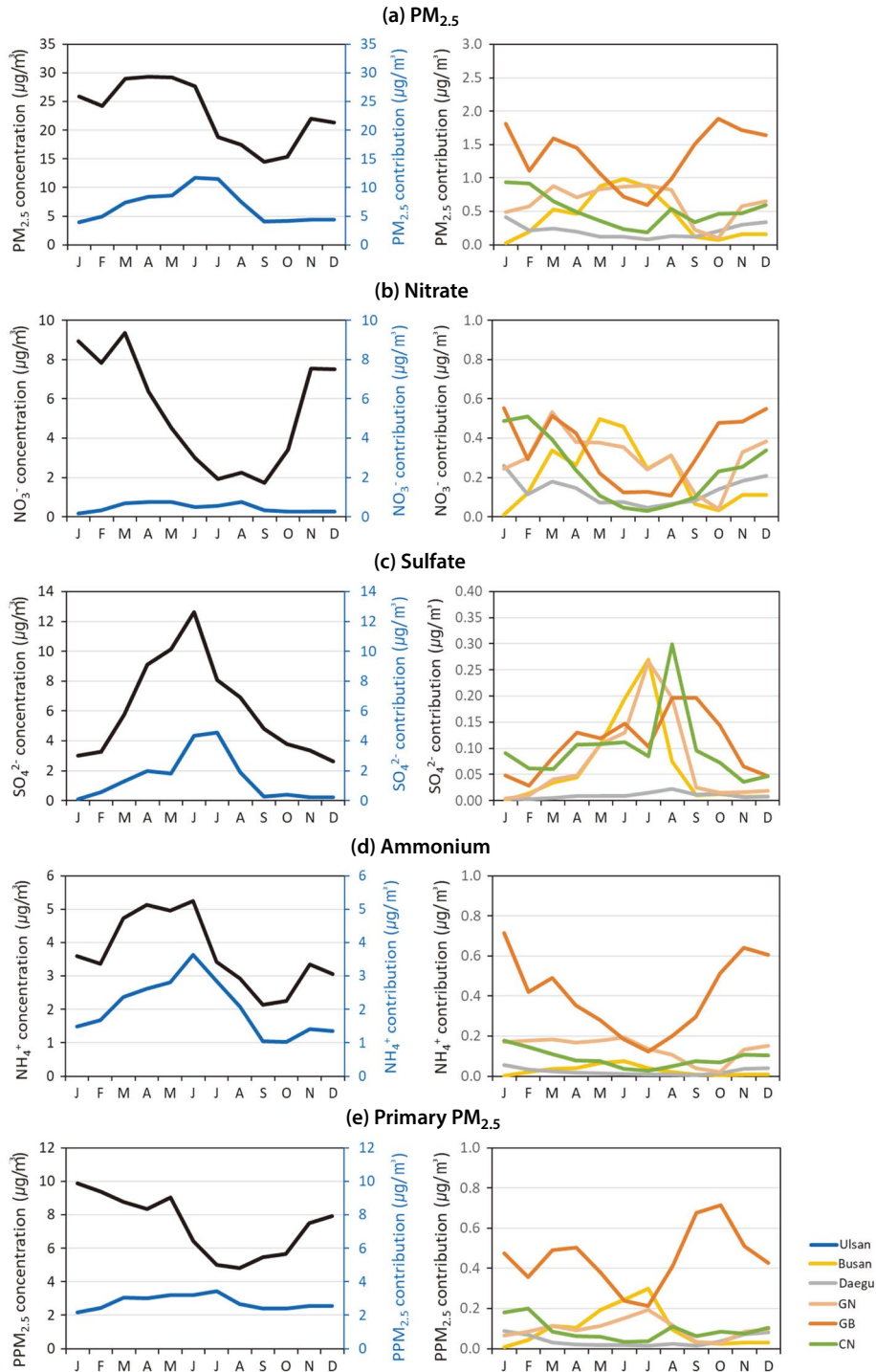


Fig. 8. Monthly variations of (a) PM_{2.5}, (b) Nitrate, (c) Sulfate, (d) Ammonium, and (e) Primary PM_{2.5} concentrations (black lines) and self- and neighboring provincial contributions in and around Ulsan during 2016. GN, GB, CN indicate Gyeongnam, Gyeongbuk, and Chungnam, respectively.

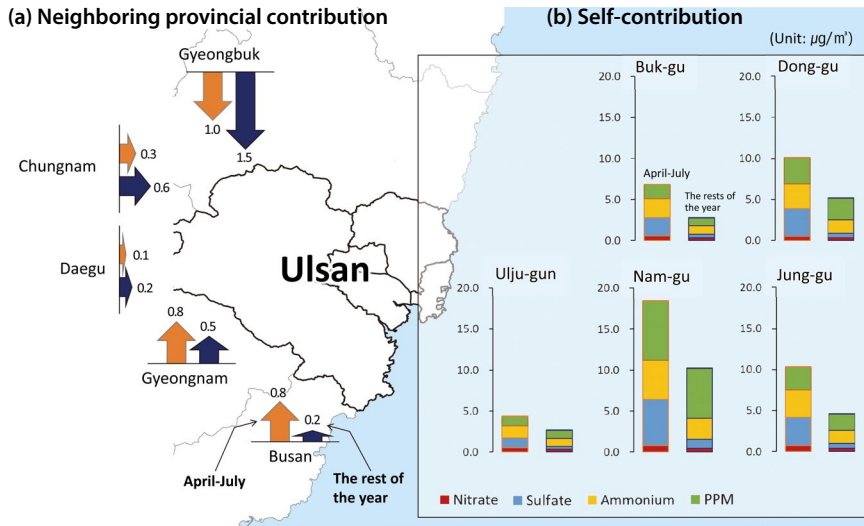


Fig. 9. Summary of (a) Neighboring provincial contributions of $\text{PM}_{2.5}$ concentrations in Ulsan, and (b) Self-contribution to nitrate, sulfate, ammonium, and Primary $\text{PM}_{2.5}$ concentrations in five local authorities of Ulsan during April-July 2016 and the rest of the year.

이상을 종합하여 울산의 $\text{PM}_{2.5}$ 농도에 대한 주변 시도 기여농도(그림 9(a))와 울산 자체 배출에 의한 $\text{PM}_{2.5}$ 및 $\text{PM}_{2.5}$ 구성성분에 대한 기여농도(그림 9(b))의 특징을 정리하면 다음과 같다. 앞서 언급한 것처럼 울산의 월별 풍계에 따라 자체 및 주변 시도 기여농도의 차이를 보이며, 여름철을 포함한 4~7월과 나머지 기간(1~3월, 8~12월)으로 구분할 수 있다. 울산의 $\text{PM}_{2.5}$ 농도는 4~7월의 경우, 울산 자체 및 주변 시도 기여농도가 각각 $10.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $3.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 울산의 자체 기여농도가 주변 시도보다 2.5배가량 높았으나, 나머지 기간에 대해서는 울산 자체 기여농도와 주변 시도 기여농도가 비슷하였다(각 $5.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $4.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$). 주변 시도 기여농도에서는 4~7월 울산의 남쪽에 위치한 부산과 경남 배출에 의한 기여농도가 $0.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이었고, 나머지 기간에 대해서는 각각 0.2 , $0.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 감소하였다(그림 9(a)). 이와는 반대로 경북과 대구, 충남의 배출에 의한 울산 $\text{PM}_{2.5}$ 기여농도는 4~7월을 제외한 나머지 기간(1~3월, 8~12월 평균)에 각각 1.5 , 0.2 , $0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로, 4~7월 평균 기여농도와 비교하여 1.5배, 2배, 2배 높아졌다.

울산 자체 기여농도(그림 9(b))에서는 기초 지자체 중 남구의 $\text{PM}_{2.5}$ 기여농도가 가장 높았고(4~7월: $18.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 나머지 기간: $10.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 남구 외 지자체들의 평균 $\text{PM}_{2.5}$ 기여농도는 4~7월에는 $7.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 나머지 기간에는 $3.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이었다. 울산 평균적으로 4~7월 동안의 자체 기여농도가 나머지 기간보다 약 2배가량 높았다(기초 지자체별 1.6~2.5배). 이를 $\text{PM}_{2.5}$ 구성성분별로 살펴보면 울산은 질산염과 비교하여 황산염, 1차 $\text{PM}_{2.5}$, 그리고 암모늄의 자체 기여농도가 월등히 높게 분석되었다. 울산의 경우, 황산염의 자체 기여농도가 질산염보다 높았는데, 이는 동반논문과 비교해볼 때 황산염보다 질산염의 자체 기여농도가 높게 제시된 인천(Kim *et al.*, 2021a), 경기(Yoo *et al.*, 2020) 및 서울(Bae *et al.*, 2021), 암모늄의 높은 자체 기여농도를 보인 전북(Kim *et al.*, 2021b)과는 차이를 보인다. 이는 다른 시도에 비해 울산에서 상대적으로 높은 SO_2 배출량에 의한 것으로 판단된다.

3.4 기본모사 평가와 배출목록의 불확도

본 절에서는 울산 내에 위치한 대기질측정망(울산

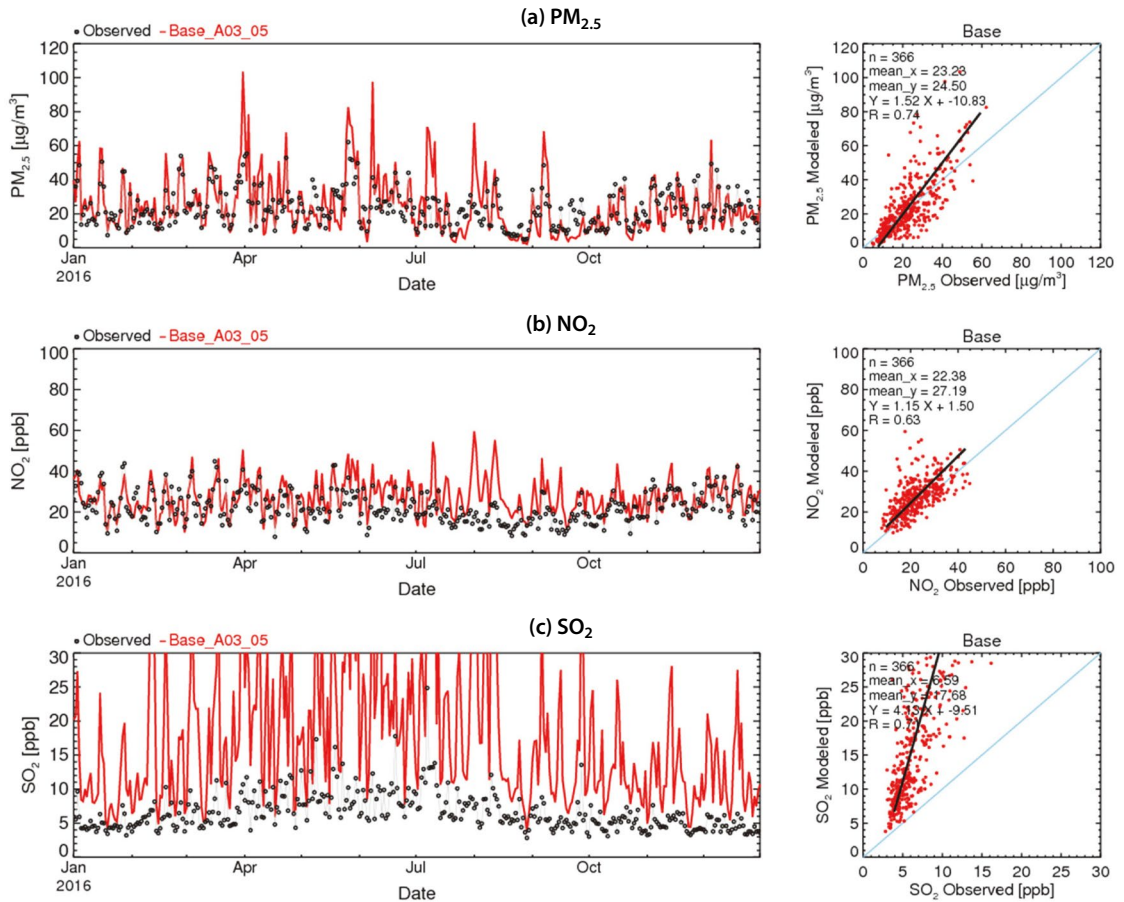


Fig. 10. Comparison of observed and simulated daily mean (a) $PM_{2.5}$, (b) NO_2 , and (c) SO_2 concentrations at 14 urban air quality monitoring stations in Ulsan during 2016.

도시대기측정소 및 영남 대기환경연구소)의 관측자료와의 비교를 통해 울산의 $PM_{2.5}$ 를 포함한 대기오염물질의 모사 농도를 평가하고, 이를 기반으로 국가배출목록의 불확도에 대해 논의하였다. 먼저 $PM_{2.5}$ 의 경우, 2016년 평균 관측 및 모사 농도는 각각 $23.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $24.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로, 평균적으로는 CAMx 모델이 $1.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 가량 과대 모사하였다(그림 10(a)). 관측-모사 농도의 상관계수는 0.74였고, $PM_{2.5}$ 관측 농도의 계절 및 월 변화를 유사하게 재현하는 것으로 평가된다. NO_2 의 경우, 관측 농도가 23.4 ppb, 모사 농도가 27.2 ppb였고 (Mean bias: +3.8 ppb), 7월 하순~8월 중순에 확인되는 과대 모사 기간을 제외하고는 $PM_{2.5}$ 와 마찬가지로

관측 농도와 유사한 시간변화를 예측하였다(상관계수 0.63).

반면, SO_2 에 대해서는 평균 관측 농도는 6.6 ppb였으나, 모사 농도는 17.7 ppb로 계산되어 모사 농도가 관측 농도의 약 3배 수준으로 매우 높았다(그림 10(c)). 그림 11에서 제시된 것처럼 울산의 모든 도시대기측정망에서 양의 Mean bias를 보여 전체 지역에서 SO_2 모사 농도가 과대평가됨을 확인하였고, 이러한 과대 모사 경향은 남구와 울주군 동쪽 연안의 산업단지 인근에 위치한 도시대기측정망에서 더욱 컸다. 특히, 울산 남구에 위치한 야음동 측정소(YU 표기)에서는 모사된 SO_2 의 Mean bias가 27.2 ppb (관측 농도 5.8 ppb,

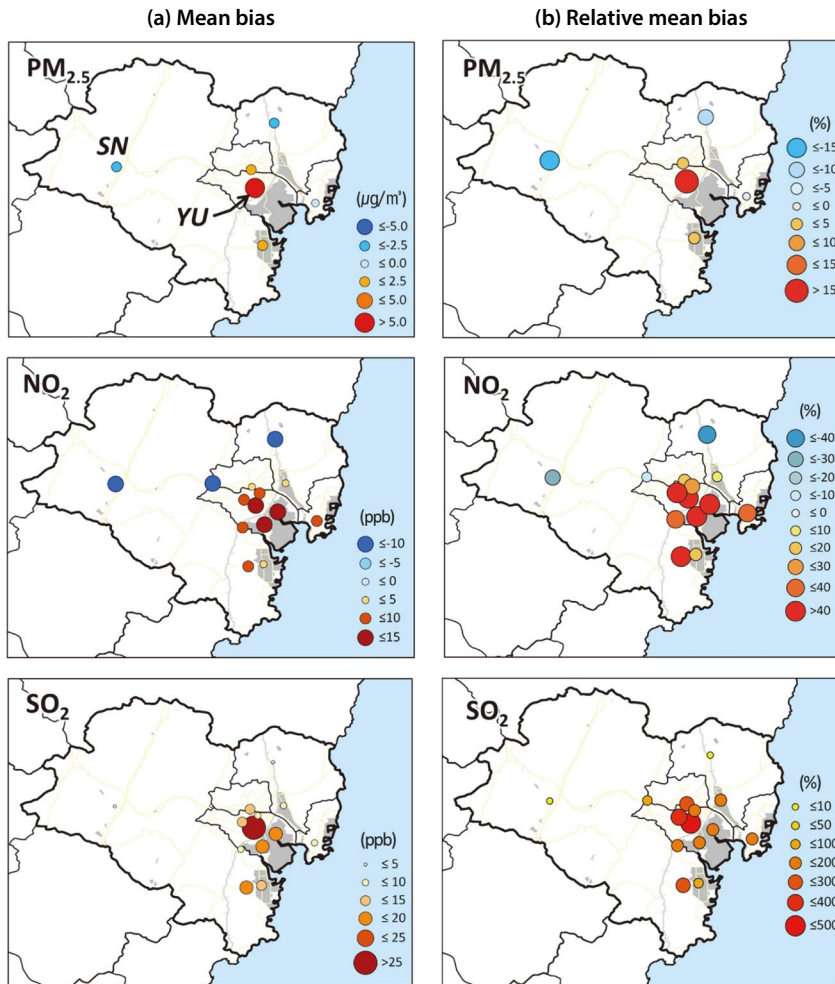


Fig. 11. The mean bias and relative mean bias for PM_{2.5} (upper), NO₂ (middle), and SO₂ (lower) concentrations at the urban air quality monitoring stations in Ulsan during 2016. YU and SN indicate Yaum and Samnam air quality monitoring stations, respectively.

모사 농도 33.0 ppb)로 최대값을 보였는데, 이는 나머지 측정소의 평균 Mean bias (9.8 ppb)와 비교하면 약 3배 높은 수준이다. 야음동 측정소와 삼남면 측정소 (SN 표기)에서 수집된 SO₂ 관측 농도의 차이가 약 2.5 ppb 수준인 데 반해, 모사 농도의 차이가 29.5 ppb로 크게 계산된 것은 CAMx 모델에 입력된 야음동 측정소 인근 산업단지의 SO_x 배출량 과대산정을 짐작할 수 있다(보충자료 그림 S3과 S4 참고).

산단지역을 중심으로 한 모사-관측 농도의 상대적

으로 큰 차이는 PM_{2.5}와 NO₂에서도 확인된다. PM_{2.5}의 경우, 북구와 동구 측정소와 울주군 삼남면 측정소에서는 음의 Mean bias (과소 모사)가, 남구와 울주군 산단 인접 측정소에서는 양의 Mean bias (과대 모사)가 확인된다. SO₂ 과대 모사 경향이 가장 크게 나타난 야음동 측정소의 PM_{2.5} 관측 및 모사 농도는 각각 22.0 μg/m³과 28.3 μg/m³이었고 약 6.3 μg/m³ (Relative mean bias: 28.7%)의 Mean bias로 울산 측정소 중 관측-모사 농도 차이가 가장 컸다. NO₂의 경우, 북구와

삼남면 측정소, 남구이지만 비교적 산업단지에서 떨어진 무거동 측정소에서 $-9.3 \text{ ppb} \sim -5.1 \text{ ppb}$ 의 음의 Mean bias를 보였고, 나머지 측정소에 대해서는 양의 Mean bias를 보여 과대 모사하였다.

울산 산업지역과 인접한 도시대기측정소에서의 CAMx 모델의 과대 모사 경향은 모델의 기상 및 배출량 입력자료의 오차에서 비롯된 것으로, 가장 우선적으로 생각할 수 있는 부분은 앞서 언급한 것처럼 해당 지역에 대한 국가배출목록의 배출량 과대산정이 원인일 수 있다. 배출량 양적인 측면 외에도 배출고도와 같은 배출형태에 의해서도 모사 재현성과 기여농도가 달라질 수 있다. Ju *et al.* (2019)에서는 지표에서 배출되는 면오염원 배출량이 점오염원 형태로 상층고도에 배출될 경우 지표의 대기오염물질 농도가 변화될 수 있음을 CMAQ 모사를 통해 제시한 바 있다. 이러한 배출량의 불확도는 대기관리권역에 대한 대기질 개선 대책 마련에 앞서 선결되어야 할 문제이다. 따라서, 주요 배출원과 배출량에 대한 평가와 개선 작업이 시급

히 진행되어야 한다.

배출량뿐만 아니라 WRF 기상모델을 통해 생성된 기상 입력자료의 오차 또한 대기질 모사 농도의 정확도에 영향을 줄 수 있다. 울산 기상대 지점에 대해 기온, 풍속, 상대습도의 관측-모사값을 비교한 결과(보충자료 그림 S5 참고), 모사된 풍속은 관측값과 비교하여 약 0.4 m/s 가량 높았고 상대습도의 경우, 6~10월(여름과 가을) 관측된 높은 상대습도를 WRF 모델에서는 과소 모사하였다. 특히 여름철 과소 모사된 상대습도는 질산염의 모사 농도에 영향을 줄 수 있다. 이처럼 연안에 대규모 산업단지가 위치한 울산의 정확한 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 예측과 기여농도 평가를 위해서는 기상모사 개선과 함께 지역의 배출환경이 정확히 반영된 국가배출목록 확보가 선행되어야 한다.

그림 12는 울산의 $\text{PM}_{2.5}$ 구성성분에 대한 관측과 모사 농도를 비교한 것으로 질산염, 황산염, 암모늄의 경우, CAMx 모델이 과대 모사함을 확인할 수 있다. 질산염의 경우, 관측 농도와 모사 농도가 각각 $2.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$,

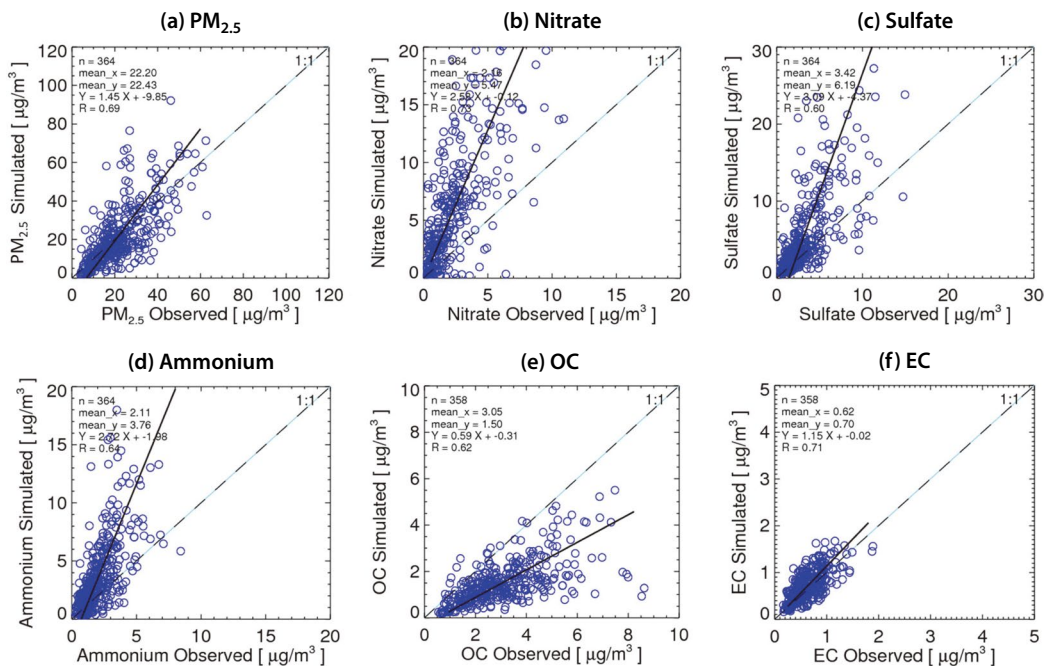


Fig. 12. Scatter plots of the observed and simulated daily mean concentrations of (a) $\text{PM}_{2.5}$, (b) Nitrate, (c) Sulfate, (d) Ammonium, (e) OC, and (f) EC at the Yeong-Nam super site during 2016.

5.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 관측 농도와 비교하여 모사 농도가 약 2배가량 높게 계산되었다. 이러한 과대 모사 경향은 황산염에서도 유사하게 나타나 관측 농도와 모사 농도는 각각 3.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 6.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 수준이었다. 질산염과 황산염의 상관계수는 각각 0.73, 0.60으로 황산염보다는 질산염의 관측-모사 상관이 다소 높았다. 암모늄은 관측 농도가 2.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 모사 농도가 3.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 약 1.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 의 농도 차이를 보였다. 이러한 관측 농도 (C_{obs}) - 모사 농도 (C_{mod})의 비를 활용하여 Bae *et al.* (2017)에서 제시한 기여도 보정계수 (Contribution Correction Factor; CCF = $\text{CCF} = \frac{C_{obs}}{C_{mod}}$)로 본 연구의

울산 자체 기여농도를 재평가할 경우, $\text{PM}_{2.5}$ 는 6.75 → 6.68 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 비슷하나, 질산염은 0.47 → 0.19 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 황산염은 1.46 → 0.81 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 암모늄은 2.03 → 1.14 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 낮아진다.

반면 울산의 유기탄소(Organic Carbon; OC)는 무기성 이온과는 다르게 관측 농도가 3.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 모사 농도가 1.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 약 50%가량 과소 모사되었고, 원소탄소(Elemental Carbon; EC)는 측정과 모사 농도가 비슷한 수준이었다. 이처럼 $\text{PM}_{2.5}$ 구성성분별로도 관측-모사 결과에 차이를 보이는데, 배출량 저감 정책 수립 시 대기질 모사 결과가 적극적으로 활용되는 만큼, 지역의 배출량 과대/과소 산정과 대기질 모사 결과의 오차를 사전에 검토하여 정책효과에 대한 정확한 평가가 수반되어야 할 것이다.

4. 결 론

본 연구에서는 2016년 CAPSS 배출량을 입력한 CAMx-PSAT 모사결과를 이용하여 울산지역 $\text{PM}_{2.5}$ 와 구성성분에 대한 국외 및 국내 배출에 의한 기여농도, 울산 자체 기여농도와 주변 시도 기여농도를 분석하였다.

울산의 연평균 $\text{PM}_{2.5}$ 농도에 대한 국외와 국내 배출의 기여농도는 각각 11.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 11.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 비슷

한 수준이었고, 특징적으로 울산은 3월부터 6월까지 국내와 국외 배출에 의한 기여농도가 모두 높아 주변 시도와는 다르게 초여름까지 $\text{PM}_{2.5}$ 고농도가 발생하였다. 울산 자체 배출에 의한 평균적인 기여농도는 6.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 울산 내 5개 행정구역 중 배출량 비중이 가장 높았던 남구의 자체 기여농도가 13.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (국내 배출 기여 중 75% 차지)로 매우 높았다. 하지만 본 연구에서 사용된 CAPSS 2016년 배출목록에서 남구의 산업단지 SO_2 배출량의 과대산정이 모사 결과에서 확인하였고, 이에 대한 배출목록의 개선 및 보완이 시급하다고 판단된다.

$\text{PM}_{2.5}$ 구성성분별 울산 자체 기여농도에서는 질산염, 황산염, 암모늄, 1차 $\text{PM}_{2.5}$ 에 각각 0.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 1.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 1차 $\text{PM}_{2.5}$ 에 대한 기여농도가 가장 크게 평가되었고, 배출-농도 전환율 또한 1차 $\text{PM}_{2.5}$ 에서 가장 높게 산정되어 1차 $\text{PM}_{2.5}$ 에 대한 배출관리가 울산의 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 개선에 효과적일 수 있음을 확인하였다. 울산 $\text{PM}_{2.5}$ 농도에 대한 주변 시도 기여농도는 경북(1.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) > 경남(0.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) > 충남(0.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) > 부산(0.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) > 대구(0.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) 순으로 높았고, 이는 지역규모 바람 영향과 지자체의 위치, 배출되는 대기오염물질의 양에 따른 결과로 해석된다. 특히, 4~7월을 제외한 나머지 기간에 대한 울산 자체 기여농도와 주변 시도 기여농도는 각각 5.1, 4.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 비슷하였다. 이 때문에 울산의 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 감소를 위해서는 동남권뿐 아니라 시기별 바람을 고려한 배출 기여도 권역을 설정하여 해당 지자체의 긴밀한 협조가 필요할 것으로 사료된다.

울산의 $\text{PM}_{2.5}$ 와 성분 농도에 대한 지역별 기여도는 동일한 모사방법으로 수행된 다른 지자체(Bae *et al.*, 2021; Kim *et al.*, 2021a; Kim *et al.*, 2021b; Kim *et al.*, 2021c; Son *et al.*, 2021; You *et al.*, 2020)의 연구 결과와도 차이를 보였다. 동반논문들을 참고하면, 서울과 인천, 경기, 전북과 전남, 충북 모두 다른 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 특성을 보이며, 각 지역의 지리적 위치, 기상조건과 배출 환경에 따른 주요한 $\text{PM}_{2.5}$ 구성성분과 월별 변화, 국내외 및 지역별 기여도가 제시되었다. 예를 들어 울산

과 비슷한 연안도시 인천의 경우만 보더라도, 서해안에 위치하여 중국을 포함한 국외 기여농도가 울산과 비교하여 약 1.6~1.8배 높은 것으로 확인되었으며, 배출물질별로는 1차 PM_{2.5}의 기여도가 가장 높고 암모늄, 질산염, 황산염 순으로 나타나 산단지역에서의 다량의 SO₂ 배출로 인해 황산염의 기여농도가 높았던 울산과 차이가 있었다. 모사 불확도 평가에서도 PM_{2.5}에 대해 인천은 연평균 모사 농도가 관측 농도보다 6.6 µg/m³가량 과대하였으나, 울산은 1.3 µg/m³ 수준이었다. 반면 연평균 SO₂는 인천에서 관측과 모사 농도의 차이(Mean bias)가 1.2 ppb 정도인 반면, 울산에서는 인천의 약 9배에 달하는 11.1 ppb로 계산되어 관측과 모사 농도의 차이가 매우 큰 특징을 보였다.

본 논문에서 제시한 울산의 PM_{2.5} 기여도는 대상연도의 기상조건과 국내외 배출목록의 차이에 따라 달라질 수 있으며, PM_{2.5} 전구물질 및 구성성분에 대한 모사 불확도와 연결된다. 보다 정확한 기여농도 산정을 위해서는 본문에서 언급한 배출량 등의 모델 입력 자료의 평가 및 개선을 통해 모사 불확도를 최소화하여야 한다. 이러한 과정에는 상당한 노력과 시간이 필요할 것으로 사료된다. 다만, PM_{2.5}의 전구물질과 구성성분의 과대, 과소 모사는 울산의 배출량에 국한되지 않고 국외 및 국내 타 지역 배출량의 불확도를 포함하므로, 본 연구에서는 국가 배출목록상의 개별 배출량을 표식하고, 대기 중 이류 및 확산, 반응 과정에 의해 농도 형성 과정의 해석에 집중하였다. 연구 결과를 토대로 울산지역 국가배출목록의 불확도를 줄이고 대기질 모사 개선이 이루어 진다면, 지역 및 국지적 대기질 현황 이해를 통한 울산지역 PM_{2.5} 농도에 대한 정확한 원인규명과 효과적인 미세먼지 저감정책 수립이 가능할 것이다.

감사의 글

본 연구는 국가미세먼지정보센터 및 삼성전자 종합기술원의 지원으로 수행되었습니다.

References

- Bae, C., Yoo, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2017) PM_{2.5} Simulations for the Seoul Metropolitan Area: (III) Application of the Modeled and Observed PM_{2.5} Ratio on the Contribution Estimation, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(5), 445-457. <https://doi.org/10.5572/kosae.2017.33.5.445>
- Bae, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Yoo, C., Kim, S. (2020a) 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.
- Bae, M., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2020b) 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., Kim, E., You, S., Son, K., Kang, Y.-H., Kim, S. (2021) Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (VII) Seoul, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, (in Korean with English abstract) (In press).
- 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.
- Carter, W. (1999) Development and Evaluation of the SAPRC-99 Chemical Mechanism.
- Choi, B.-W., Jung, J.-H., Choi, W.-J., Shon, B.-H., Oh, K.-J. (2006) Characteristics of the distribution of high ambient air pollutants with sources and weather condition in Ulsan, *Journal of Environmental Health Sciences*, 32(4), 324-335.
- Colella, P., Woodward, P.R. (1984) The piecewise parabolic method (PPM) for gas-dynamical simulations, *Journal of Computational Physics*, 54, 174-201.
- ENVIRON International Corporation (2014) User's Guide: Comprehensive Air Quality Model with Extensions Version 6.1, <http://www.camx.com>.
- 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).
- 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.
- 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. <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. <https://doi.org/10.5572/kosae.2019.35.5.593>
- Kang, Y.-H., Kim, E., You, S., Bae, M., Son, K., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2021) Source sectoral impacts on provincial PM_{2.5} concentrations based on the CAPSS 2016 using the CMAQ model, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 37(1), 17-44. <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.1.017>
- Kim, S., Bae, C., Yoo, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Moon, N. (2017a) 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. <https://doi.org/10.5572/kosae.2017.33.4.377>
- Kim, H.C., Kim, E., Bae, C., Cho, J.H., Kim, B.-U., Kim, S. (2017b) Regional contributions to particulate matter concentration in the Seoul metropolitan area, South Korea: seasonal variation and sensitivity to meteorology and emissions inventory, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(17), 10315-10332. <https://doi.org/10.5194/acp-17-10315-2017>
- Kim, S., Bae, C., Kim, B.-U., Kim, H.C. (2017c) 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. <https://doi.org/10.5572/kosae.2017.33.2.139>
- 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>
- Kim, S., You, S., Kang, Y.-H., Kim, E., Bae, M., Son, K., Kim, Y., Kim, B.-U., Kim, H.-C. (2021a) Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (II) Incheon, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(1), 144-168, (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/kosae.2021.37.1.144>
- Kim, S., You, S., Kim, E., Kang, Y.-H., Bae, M., Son, K. (2021b) Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (III) Jeollanam-do, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 37(2), 206-230, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/kosae.2021.37.2.206>
- Kim, E., You, S., Bae, M., Kang, Y.-H., Son, K., Kim, S. (2021c) Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (IV) Jeollabuk-do, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 37(2), 292-309, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/kosae.2021.37.2.292>
- Lee, Y.S., Choi, S.D., Kwon, H.O., Kim, C.S., Son, H.S., Ye, J. (2011) Temporal and Spatial Distribution of Sulfur Dioxide in Ulsan, Korea, *Journal of Environmental Analysis, Health and Toxicology*, 14(4), 249-256.
- Lee, H.-D., Lee, G.-H., Kim, I.-D., Kang, J.-S., Oh, K.-J. (2013) The Influences of Concentration Distribution and Movement of Air Pollutants by Sea Breeze and Mist around Onsan Industrial Complex, *Clean Technology*, 19(2), 95-104. <https://doi.org/10.7464/ksct.2013.19.2.095>
- Lee, H.D., Yoo, J.W., Kang, M.K., Kang, J.S., Jung, J.H., Oh, K.J. (2014) Evaluation of concentrations and source contribution of PM₁₀ and SO₂ emitted from industrial complexes in Ulsan, Korea: Interfacing of the WRF-CALPUFF modeling tools, *Atmospheric Pollution Research*, 5(4), 664-676.
- 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>
- Ministry of Environment (MOE) (2020) Annual report of air quality in Korea 2018, (in Korean).
- National Air Emission Inventory and Research Center (NAIR) (2019) National Air Pollutants Emission, NIER-GP2018-131, (in Korean).
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2017) A Study on Quantitative Estimation of Emission Sources and Regional Contributions to Air Quality on Forecasting Areas (I), NIER-RP2017-149, (in Korean with English abstract).
- Nguyen, T.N.T., Jung, K.S., Son, J.M., Kwon, H.O., Choi, S.D. (2018) Seasonal variation, phase distribution, and source identification of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons at a semi-rural site in Ulsan, South Korea, *Environmental Pollution*, 236, 529-539. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2018.01.080>
- Oh, I., Bang, J.-H., Kim, S., Kim, E., Hwang, M.-K., Kim, Y. (2016) Spa-

- tial Distribution of Air Pollution in the Ulsan Metropolitan Region, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 32(4), 394-407. <https://doi.org/10.5572/kosae.2016.32.4.394>
- Oh, I., Lee, J., Ahn, K., Kim, J., Kim, Y.-M., Sim, C.S., Kim, Y. (2018) Association between particulate matter concentration and symptoms of atopic dermatitis in children living in an industrial urban area of South Korea, *Environmental Research*, 160, 462-468.
- Ramboll-Environ (2021) Comprehensive Air Quality Model with Extensions. <http://www.camx.com/> (Accessed in February 10, 2021).
- 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, 113 pp.
- Son, K., Kang, Y.-H., You, S., Kim, E., Bae, M., Kim, S. (2021) Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (VI) Chungcheongbuk-do, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, (in Korean with English abstract) (In press).
- Strader, R., Lurmann, F., Pandis, S.N. (1999) Evaluation of secondary organic aerosol formation in winter, *Atmospheric Environment*, 33(29), 4849-4863.
- Ulsan Metropolitan City (UMC) (2020a) 2020 White Paper of Environment, (in Korean).
- Ulsan Metropolitan City (UMC) (2020b) 2020 White Paper of Ulsan Metropolitan City, (in Korean).
- Ulsan Metropolitan City (UMC) (2021) <https://www.ulsan.go.kr/u/rep/contents.ulsan?mId=001005002002001000> (Assessed in February 10, 2021).
- Yarwood, G., Morris, R.E., Wilson, G.M. (2007) Particulate matter source apportionment technology (PSAT) in the CAMx photochemical grid model Air Pollution Modeling and Its Application XVII (pp. 478-492): Springer.
- You, S., Bae, C., Kim, H., Yoo, C., Kim, S. (2020) Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (I) Gyeonggi Province. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(6), 785-805. <https://doi.org/10.5572/kosae.2020.36.6.785>

Authors Information

- 강윤희 (아주대학교 환경연구소 연구조교수)
 유승희 (아주대학교 환경공학과 박사과정)
 손규원 (아주대학교 환경공학과 석사과정)
 김은혜 (아주대학교 환경연구소 연구원)
 배민아 (아주대학교 환경공학과 박사과정)
 김순태 (아주대학교 환경안전공학과 교수)

Supplementary Materials

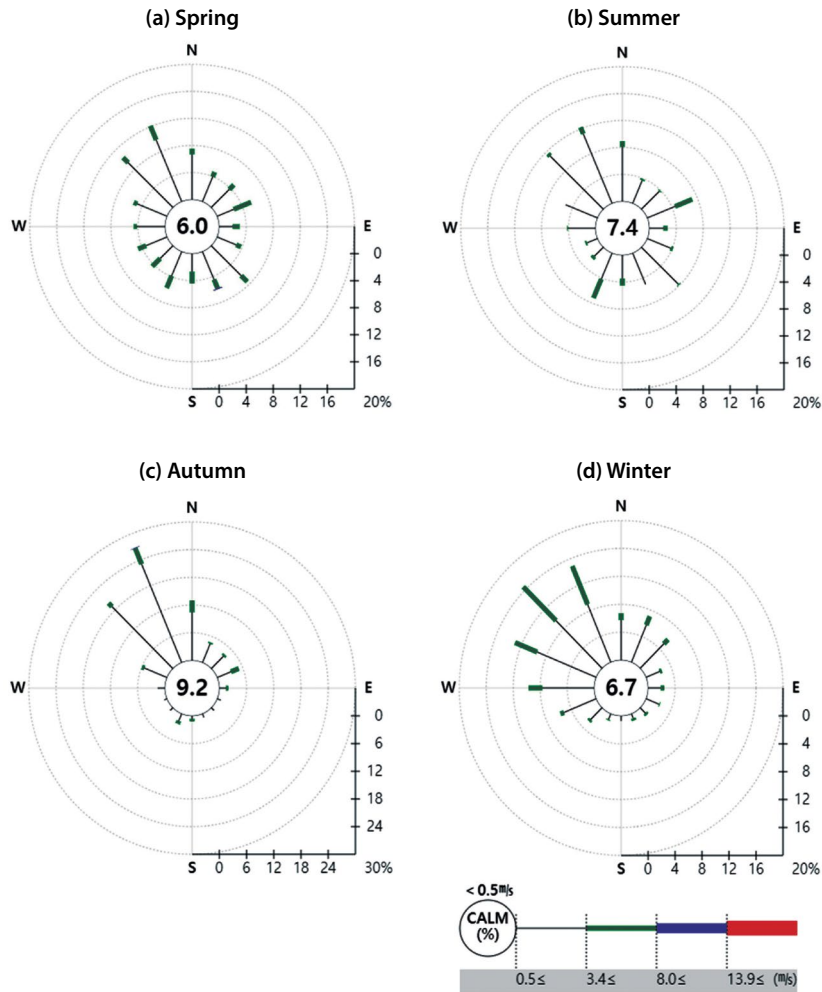


Fig. S1. Seasonal wind roses in the Ulsan weather station during 2016.

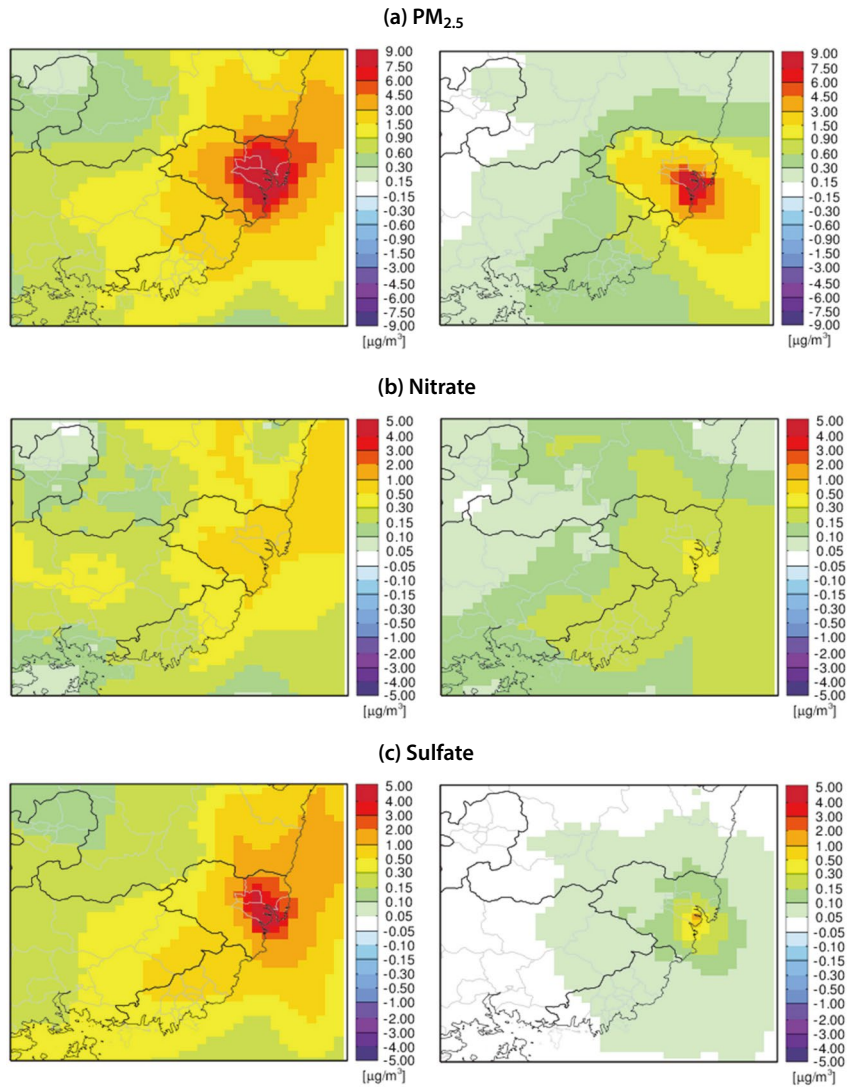


Fig. S2. Self-contributions of the period-mean (a) $PM_{2.5}$, (b) Nitrate, (c) Sulfate, (d) Ammonium, and (e) $PPM_{2.5}$ concentrations during April to July (left) and the rest of months (right) in and around Ulsan.

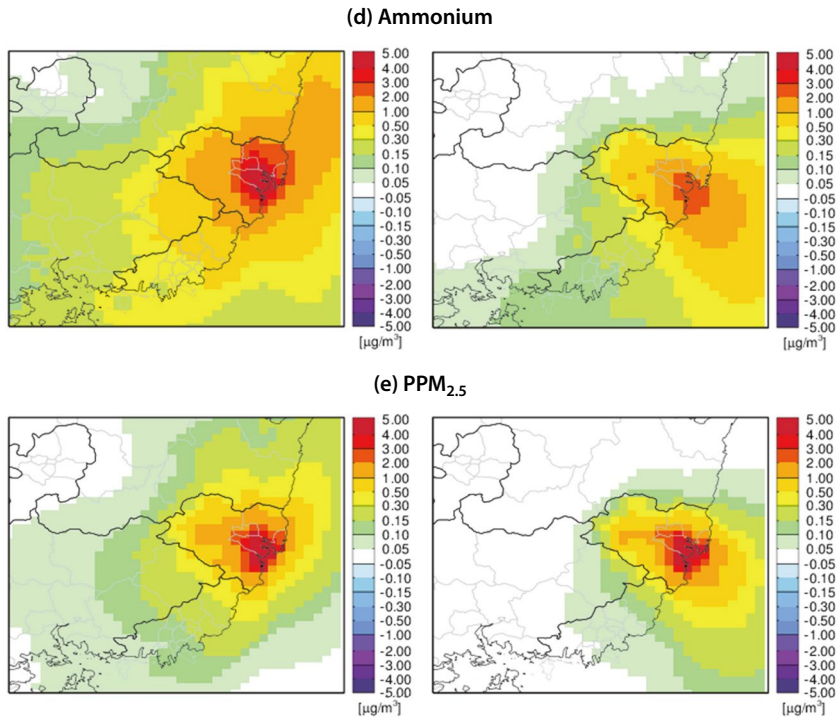


Fig. S2. Continued.

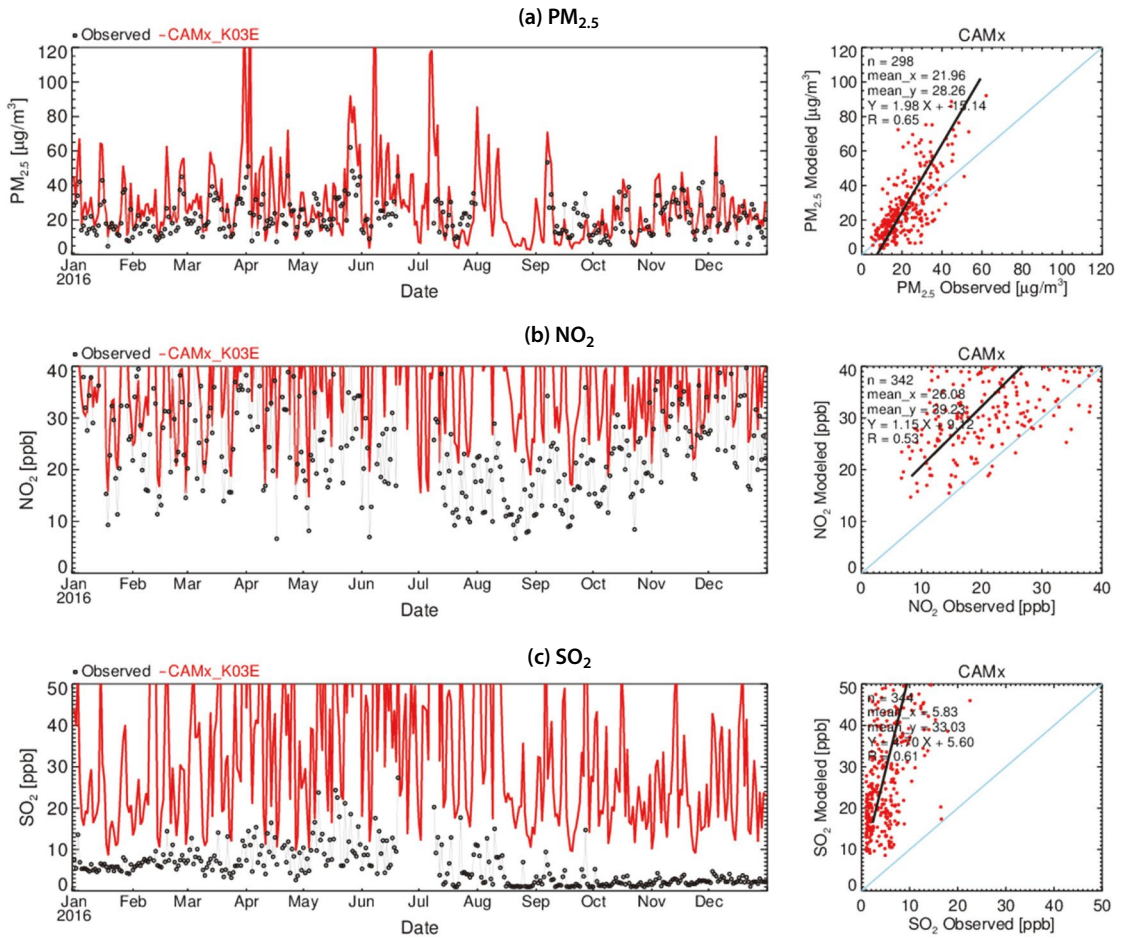


Fig. S3. Comparison of observed and simulated daily mean (a) PM_{2.5}, (b) NO₂, and (c) SO₂ concentrations at Yaum-dong air quality monitoring station in Ulsan during 2016.

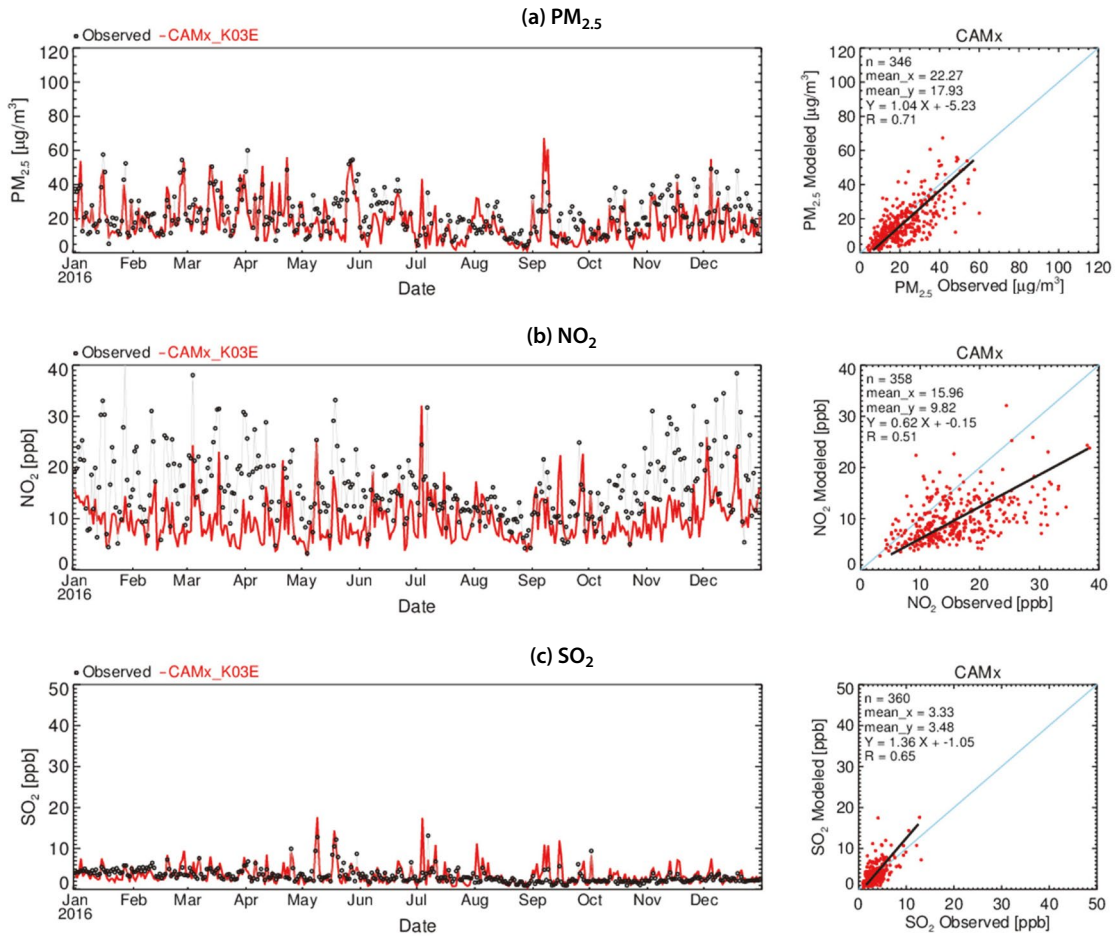


Fig. S4. Comparison of observed and simulated daily mean (a) $PM_{2.5}$, (b) NO_2 , and (c) SO_2 concentrations at Samnam-myeon air quality monitoring station in Ulsan during 2016.

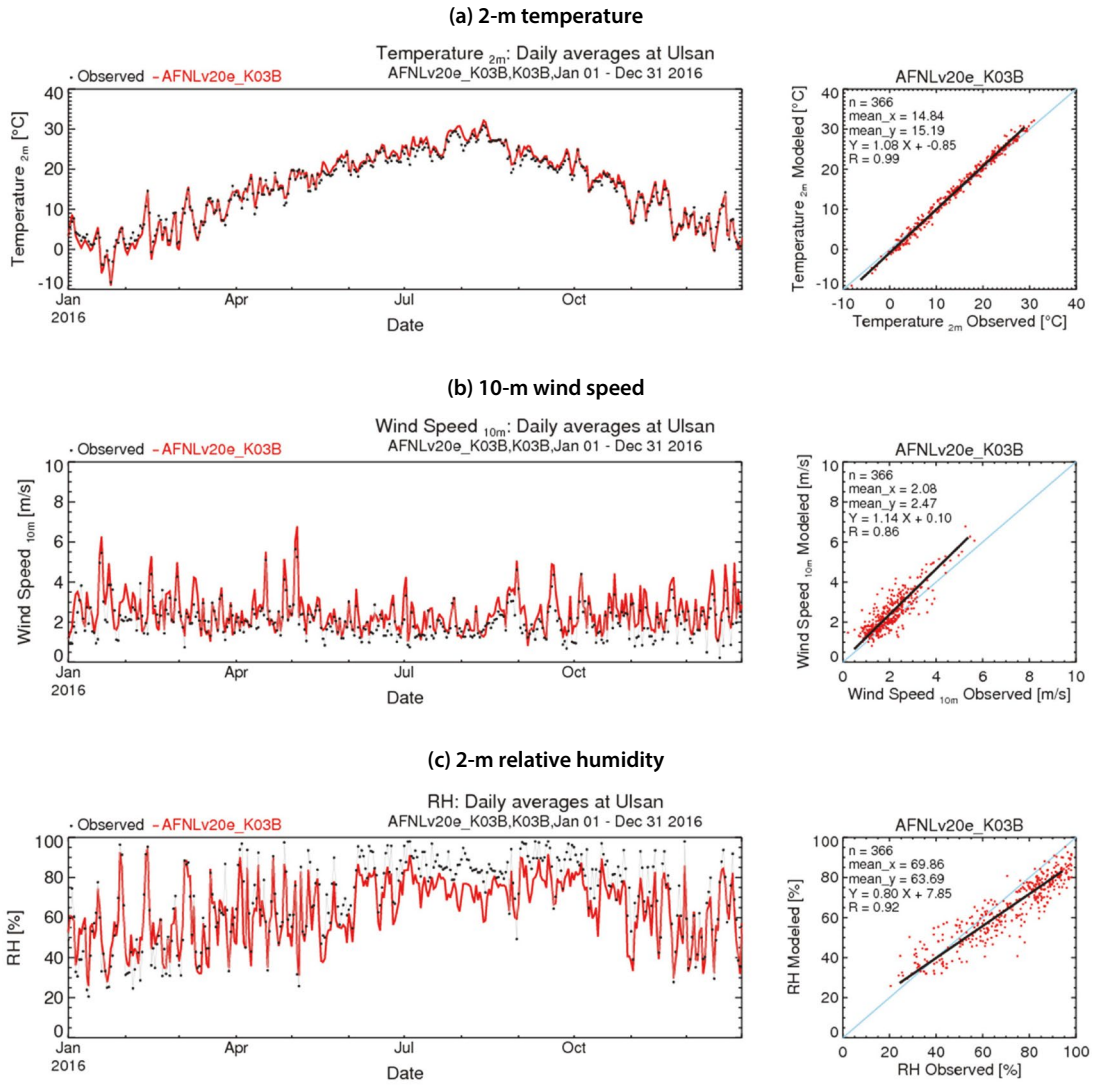


Fig. S5. Comparison of observed and simulated daily mean (a) 2-m temperature, (b) 10-m wind speed, and (c) 2-m relative humidity at the Ulsan weather station during 2016.