

논문

암모니아 배출 실험 자료를 이용한 농업분야 암모니아 배출 모델 적용성 평가

Evaluation of Ammonia Emission Model Using Laboratory Emission Data

이권호, 송명기¹⁾, 오세호¹⁾, 임용재²⁾, 신혜정²⁾, 정해진²⁾, 김민욱³⁾,
이태형⁴⁾, 배민석¹⁾.*

강릉원주대학교 복사위성연구소, 대기환경과학과,

¹⁾목포대학교 환경공학과, ²⁾국립환경과학원 기후대기연구부 대기환경연구과,

³⁾국립농업과학원 농업환경부 기후변화평가과, ⁴⁾한국외국어대학교 환경학과

접수일 2022년 1월 5일
수정일 2022년 1월 17일
채택일 2022년 1월 24일

Received 5 January 2022
Revised 17 January 2022
Accepted 24 January 2022

*Corresponding author
Tel : +82-(0)61-4500-2485
E-mail : minsbae@mnu.ac.kr

Kwon-Ho Lee, Myoungki Song¹⁾, Sea-Ho Oh¹⁾, Yong-Jae Lim²⁾, Hye-Jung Shin²⁾,
Hae-Jin Jung²⁾, Minwook Kim³⁾, Taehyoung Lee⁴⁾, Min-Suk Bae¹⁾.*

Department of Atmospheric & Environmental Sciences, Research Institute of Radiation-Satellite (RIRS), Gangneung-Wonju National University (GWNU), Gangneung, Republic of Korea

¹⁾Department of Environmental Engineering, Mokpo National University, Muan, Republic of Korea

²⁾Climate and Air Quality Research Department, Air Quality Research Division, National Institute of Environmental Research, Incheon, Republic of Korea

³⁾National Institute of Agricultural Science, Climate & Change & Agro-ecology Division, Department of Agricultural Environment, Wanju, Republic of Korea

⁴⁾Department of Environmental Science, Hankook University of Foreign Studies, Yongin, Republic of Korea

Abstract Emissions of ammonia (NH₃) from human activities is of importance a contributing factor as an aspect of the generation of particulate matter (PM) and may contribute to air quality degradation on a regional and continental scale. Due to the diversity of emission sources and environmental conditions, quantifying ammonia emissions from soil origin is not fully understood. The objective of this study is to evaluate the regional emission of ammonia using the Ammonia Emission Estimation System (AEES) for determining the emissions from agricultural areas, where one of the major sources of ammonia emission. Using the national land cover map and laboratory-based emission factors, ammonia emissions were calculated for each administrative region and verified through comparative analysis with the Clean Air Policy Support System (CAPSS) ammonia emission data. The national ammonia emission was analyzed to be 38470.2 ton/year, which is higher than the CAPSS total emission of 19566.1 ton/year. As a result of comparing the two data by different provinces, it was found that the Pearson correlation coefficients (r) were 0.85 and 0.91, respectively, indicating a relatively high correlation. The results of this study can be used as basic data to support the management of ammonia emission and the implementation of long-term air quality-related policies in the future.

Key words: Ammonia, PM, Emission, Air quality, Land cover

1. 서론

1900년대 초반까지 암모니아(NH₃)는 질소가 풍부

한 특정 식물성 폐기물과 함께 동물성 폐기물의 건식 증류를 통해 대부분 생산되었으나, 최근에는 질소 분자와 수소 분자 사이의 기체상 반응을 포함하는

Haber-Bosch 공정을 통해 산업적으로 생산되었다 (Behera *et al.*, 2013). 그리고 암모니아의 가장 중요한 용도 중 하나는 농업 분야에서 비료의 사용과 축산 분야에서 발생하는 부산물이다 (Aneja *et al.*, 2009; Sutton *et al.*, 2008). 무수 형태의 암모니아는 토양의 질소 함량을 증가시키며 더 높은 수확량과 더 나은 작물 품질을 동반하기 때문에 전 세계적으로 널리 사용되고 있으며, 농업 활동으로 인한 암모니아의 사용은 대기 오염물질 배출의 중요한 기여요인으로서 지역규모 및 대륙 규모의 대기질 악화에 기여할 수 있음이 알려져 있다 (Shephard *et al.*, 2020; Dammers *et al.*, 2019; Van Damme *et al.*, 2018). 예를 들어, 미국 동부에서 암모니아 농도의 배출량은 연간 12% 증가하고 있으며 (Yu *et al.*, 2018), 캐나다 토론토 지역의 경우 연간 3.34%로 증가 추세를 나타내는 것으로 보고되었다 (Yamanouch *et al.*, 2021). 또한, 인공 위성을 이용한 암모니아 관측결과는 미국 (2.61%/year), 유럽 연합 (EU) (1.83%/year) 및 중국 (2.27%/year)에서 상당한 수준의 암모니아 농도 증가 추세가 나타남을 확인할 수 있다 (Warner *et al.*, 2017).

대류권에서 암모니아는 황산(H_2SO_4), 질산(HNO_3)과 같은 산과 빠르게 반응하여 암모늄 염의 성분 ($(NH_4)_2SO_4$, NH_4HSO_4 , NH_4NO_3 등)을 가지는 입자상 물질 (PM_{2.5})을 형성한다 (Sutton *et al.*, 2008; Malm *et al.*, 2004). 암모니아로 인한 입자상 물질의 생성 기여도는 총 PM 농도의 약 3~20%로 추정되고 있다 (Hodan and Barnard, 2004). 그러나 이러한 암모니아의 영향은 유동적이며 큰 시간적(계절 및 연간) 변동성이 있다 (Behera *et al.*, 2013; Sutton *et al.*, 2013). 이러한 이유로, 연간 평균은 암모니아의 배출이 대기질에 미치는 영향의 중요성을 과소평가할 수도 있다. 따라서, 암모니아가 대기질에 미치는 기여도를 정량적으로 평가하기 위하여 암모니아 배출의 시간적 변화에 대한 정보와 배출원의 공간적 정보도 고려되어야 한다. 배출원의 공간적 위치의 가변성은 배출 특성을 통해 대기로의 이동과정에 영향을 미칠 수 있으며, 배출원의 위치 정보는 대기질 예측 모델 또는 의사 결정

지원 시스템의 배출원 입력자료로 필수적이다.

현재까지, 국내에서 개발된 대기정책지원시스템 (Clean Air Policy Support System, CAPSS)은 암모니아 배출량에 대한 시공간적 통계 정보를 제공하고 있으나, 농업분야에서 상세한 배출원별 특성(농업 형태, 규모, 기간 등)에 의하여 분류된 자료는 제시되고 있지 않다. 그럼에도 불구하고, CAPSS 암모니아 배출량 자료는 행정 구역별 농업활동에 관한 전반적인 암모니아 배출 현황을 제공하고 있으므로, 토지 피복 기반의 암모니아 배출량에 관한 평가결과와 비교 검토가 가능할 것으로 판단된다. 따라서, 본 연구에서는 전국 시도 단위 또는 시군구 단위로 구분된 농업지역을 대상으로 토양 시료별 암모니아 배출 실험에 근거한 배출 계수값을 이용하여 암모니아 배출량을 평가하고 CAPSS 통계자료와 비교하여 모형의 적용성을 평가하고자 한다.

2. 자료 및 방법

2.1 암모니아 배출량평가시스템 (Ammonia Emission Estimation System, AEES)

농업 분야에서 발생하는 암모니아의 배출량을 평가하기 위한 목적으로 Ammonia Emission Estimation System (AEES)를 설계하였다. AEES는 오픈소스 지리 정보시스템인 QGIS (<https://www.osgeo.org/projects/qgis/>) 및 공개 도메인을 사용하며, 필요에 따라 쉽게 업데이트되거나 사용자 정의되는 도구로 기능하도록 고안되었다. 기본적으로, AEES는 환경부 환경공간정보서비스 (<https://egis.me.go.kr/main.do>)에서 제공하는 토지피복도 및 행정경계 자료를 사용하여 지리적 위치에 해당하는 암모니아 배출에 관한 추정 프로세스를 자동화하였으며, 다음과 같은 속성을 갖도록 설계하였다.

- 쉽게 수정하거나 업데이트할 수 있는 적응형 아키텍처
- 시군구 단위 또는 시도 단위 행정경계를 포함하여

공간적으로 할당된 입력

- 표준 암모니아 배출계수를 사용한 수치적 계산 모델의 적용
- 공간적으로 할당된 테이블 및 맵으로 출력
- 사용자의 요구에 맞게 사용자 정의할 수 있는 유연한 인터페이스

이러한 목표를 충족하는 시스템을 만들기 위해 모둠식 접근 방식을 사용하였다. 이를 통해 다양한 입력 자료, 인터페이스, 모델링 및 기타 시스템 구성요소를 테스트할 수 있으며, 최소한의 시스템 수정으로 입력 자료, 배출 계수, 배출량 모델 또는 사용자 인터페이스를 전환하는 기능을 보존하기 위해 시스템을 유연하게 설계하였다. 그림 1은 AEES의 각 모듈별 자료처리 과정을 묘사하고 있다. 각 모듈에서는 데이터 및 매개변수 입력을 용이하게 하는 대화식 사용자 인터페이스, 토지피복도 및 행정경계 자료 입력, 토지피복별 배출계수, 공간단위의 총 배출량 추정 계산식 적용을 포함하고 있다. 모델의 결과는 벡터 형태의 지도와 속성 테이블로 출력됨에 따라, 본 연구에서는 QGIS의 공간 분석툴을 이용하여 토지피복별 암모니아 배출량 결과를 산정하여 비교하였다. 또한 2.3절에서 언급한 바와

같이, CAPSS에서 제공하는 암모니아 배출량 통계자료를 이용하여 표준단위 영역별로 제공되므로, 본 연구에서 산정된 암모니아 배출량 자료와의 상관분석을 하였다.

2.2 실험실 기반 암모니아 배출계수 측정

암모니아의 정확한 배출량 산정은 대류권 오존 생성 및 2차 에어러솔 형성, 질소 순환을 이해하는 데 매우 중요하다. 특히, 교외지역에서 토양으로부터 기인된 질소성분은 토양 아질산염과의 화학적 평형, 표면 산성도, 반응성 흡수 및 치환, 암모니아 산화 박테리아에 의한 배출 등의 과정을 통하여 지역 대기질에 기여하는 것으로 알려져 있다(Firestone *et al.*, 1989). 그러나, 토양으로부터의 암모니아 배출특성은 토질, 주변 기상조건, 대기상태 등에 영향을 받으므로, 대기중에서 생성과 제거과정을 정량적으로 이해하기엔 한계가 있다. 이러한 암모니아 배출량은 토양 내 비료 함유량, 토양 수분과 조직, 무기 질소 가용성, 탄소 대 질소 비율 등 복잡하게 작용하며, 온도 및 강수와 같은 기상 요소와 연관되어 있다(Firestone *et al.*, 1989). 따라서, 본 연구에서는 토양 종류에 따른 단위면적당 암모니아 배출량을 산정하기 위하여 토양 챔버 시스템을 이

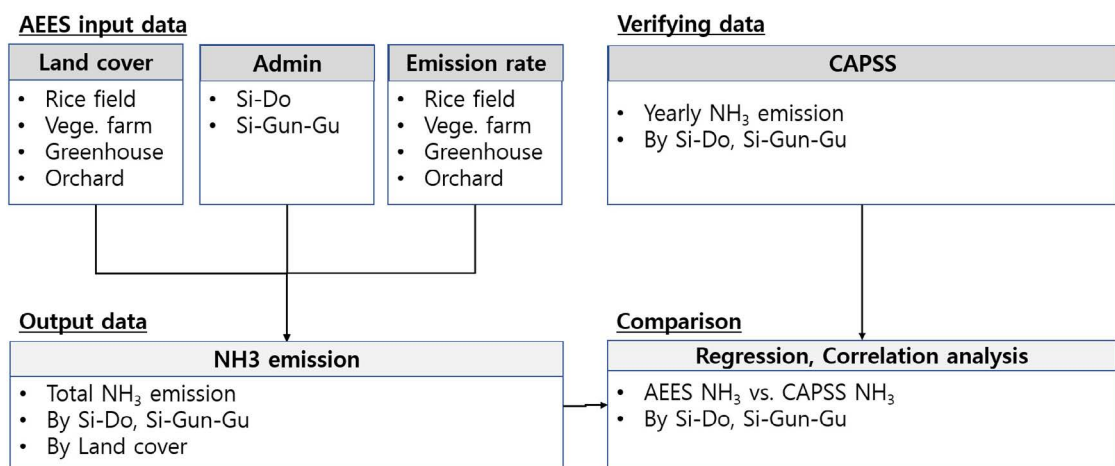


Fig. 1. Flowchart explaining the interaction of the AEES modules. The spatial information including land cover input, administrative boundary data, and laboratory based NH₃ emission rate data are upper left, and total emissions estimation scripts at bottom, CAPSS NH₃ emission data for verification is upper right.

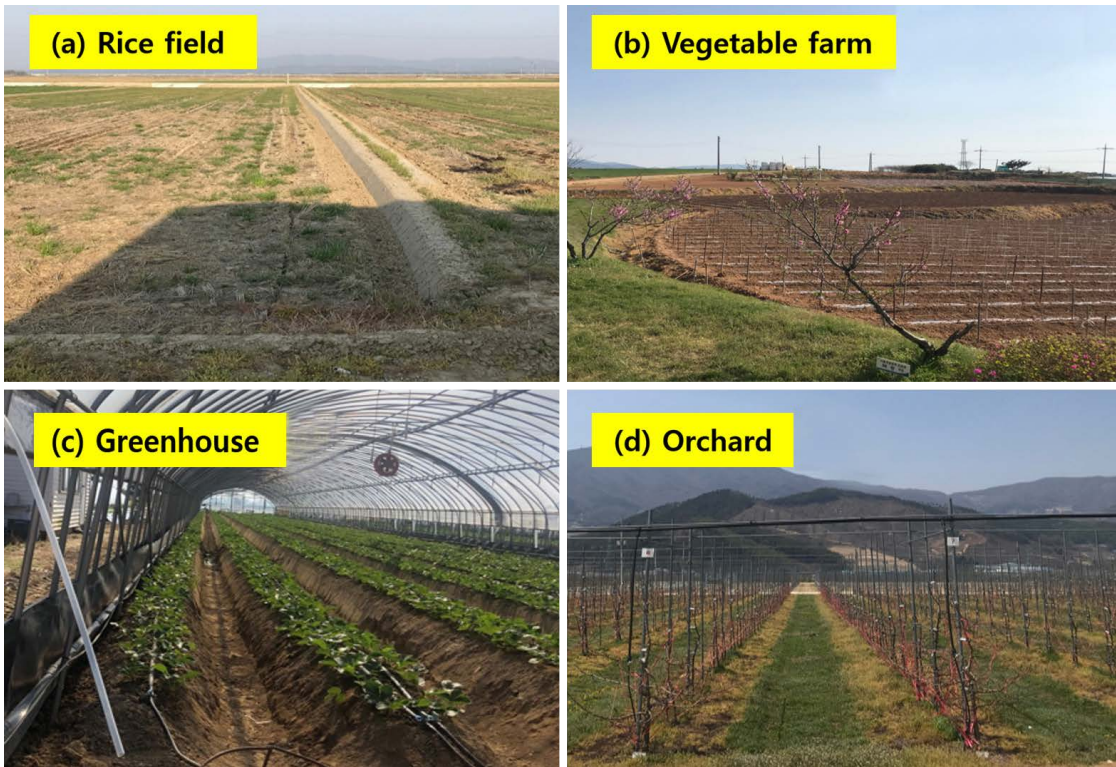


Fig. 2. Photos of soil sampling locations from (a) rice field, (b) vegetable farm, (c) greenhouse, and (d) orchard, respectively.

용하였다.

농업용지의 주요 종류(과수원, 밭, 비닐하우스, 논)에 따른 단위면적당 암모니아 배출량을 산정하기 위하여 논(전라북도 정읍시 감곡면 용곡리 1470-16), 밭(전라북도 고창군 대산면 칠거리로 70 고창 기상관측소), 비닐하우스(전라북도 완주군 삼례읍 삼례리 65-10), 과수원(전라북도 장수군 장수읍 와동길 56)을 선정하여, 2021년 5월에 각 지점에서 토양 시료를 채취하였다(그림 2). 한편, 암모니아 배출량은 비료의 투여 시기에 따른 토양 내 비료 함유량 등에 변이가 클 것으로 예상되므로, 향후 추가 연구를 통해서 비료 투여 시기 및 기후조건 등 여러 조건에 따른 배출량을 산정할 예정이다.

본 연구에서는 논, 밭, 비닐하우스, 과수원에서 직접 채취한 토양을 이용하여, 암모니아 배출량을 산정하고자 토양배출시스템을 자체 제작하여 운영하였다

(그림 3 참조). 정상상태(steady state)를 유지하기 위하여 N₂ 발생기를 이용하여 질량유량계로 조절된 5 L/min의 N₂를 토양챔버로 주입하였다. 토양챔버는 온도 조절 기능이 있는 오븐으로 구성되어 있으며, 암모니아 배출 실험은 45°C 항온조건에서 진행하였다. 이후, 가스분배기를 통해, NH₃(1.5 L/min) 측정장비에 의해 암모니아 농도를 실시간으로 관측하였다. 잉여유량의 경우, 분배기에 의하여 외부로 배출하였으며, 정상상태에 따른 정확한 유량조건에서 암모니아 농도는 수식 (1)에 의하여 배출계수값으로 산정하였다.

$$ER = Q \times C \times t / A \tag{1}$$

여기서, ER은 단위 토양면적(m²) 또는 질량(kg)당 암모니아 배출량(mg/m² or mg/kg)이며, Q는 정상상태 유량(5 L/min), C는 NH₃ 관측농도(ppb), t는 시간(min), A는 본 연구에 사용한 토양시료의 표면적(m²)

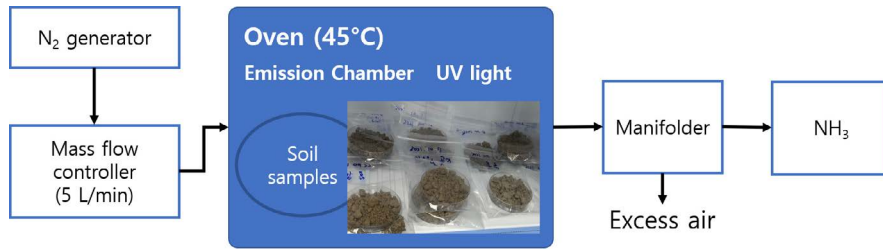


Fig. 3. Schematic diagram of NH₃ soil-emission system.

또는 질량(kg)을 의미한다.

대기 중 암모니아 농도를 실시간으로 측정하기 위하여 공동광자 감쇠 분광법을 바탕으로 한 실시간 측정장비(Los Gatos Research (LGR), ABB Inc., Quebec, Canada)를 이용하였다. 즉 유입 암모니아에 대한 특정 파장을 조사하여 흡수강도의 감쇄율에 의해 농도를 산출할 수 있다. 주입된 암모니아는 측정기기 내 공동(cavity) 안에서 지속적인 왕복운동(ring-down)에 따른 흡수강도 변이에 의해 농도를 산출하기 때문에 매우 낮은 농도 범위(<1 ppb)까지 측정할 수 있다. 본 연구에서는 자체 제작한 전해 연마(electronic polishing, EP) 처리에 의하여 특수 제작된 두 개의 mass flow controller (MFC) 및 혼합관(mixing chamber)을 이용하여 암모니아측정기를 검교정하였으며, 그 결과 암모니아 측정값의 정확도는 $100 \pm 3\%$ 범위 내에서 목적농도를 유지하였다.

2.3 암모니아 배출량 비교

AES 모델 결과의 상대적 비교 평가를 위해 환경부에서 제공하고 있는 대기정책지원시스템(CAPSS)에서 제공하고 있는 암모니아 배출량 자료와 비교하였다. CAPSS 자료는 전국의 점, 선, 면 오염원에서 배출되는 9가지 주요 대기오염물질(TSP, PM-2.5, PM-10, SO_x, NO_x, VOCs, NH₃, CO, BC)의 배출량을 매년 산정하여, 국가 대기오염물질 배출량 서비스를 통해 오염물질별, 배출원별, 지역별 통계자료로 제공되고 있다(<https://www.air.go.kr/jbmd/sub37.do?tabPage=0>). CAPSS에서 사용되고 있는 배출원은 13개 대분류로

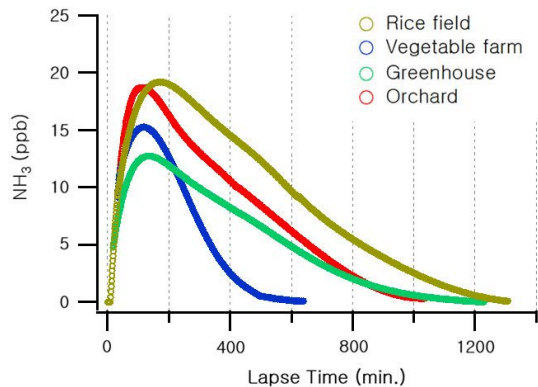


Fig. 4. NH₃ concentrations (ppb) of four types of soil from rice field, vegetable farm, greenhouse, and orchard using soil-emission system.

구분하며, 이 중 암모니아는 에너지산업 연소, 비산업 연소, 제조업 연소, 생산공정, 도로이동오염원, 비도로 이동오염원, 폐기물처리, 농업, 기타 면오염원, 그리고 생물성 연소의 10개 부문에서 배출되는 것으로 가정하고 있다(NIER, 2008). 여기서 농업부문의 암모니아 배출원은 2개의 중분류(비료사용 농경지, 축산분뇨 관리)로 구분하고 있으며, 본 연구에서는 2018년 비료 사용 농경지 부문만을 연구범위로 한정하였다.

3. 결 과

3.1 토양시료 분석을 통한 암모니아 배출계수

그림 4는 토양 배출 시스템을 이용하여, 측정한 토양시료별 암모니아 농도를 나타낸 것이다. 암모니아

농도측정 실험은 45°C 항온조건에서 N₂ 주입으로 시작하였으며, 농도 증가 후 바탕값으로 떨어지는 시점을 기준으로 종료하였다. 이때, 최소 3회의 반복실험을 통하여 최적의 실험조건을 만족한 경우에 대하여 대표 실험으로 선정하였다. 측정시간은 논, 밭, 비닐하우스, 과수원에서 각각 1,307분, 600분, 1,212분, 1,092분으로 결정되었으며, N₂ 주입 후 약 100분대에서 최대값을 나타내었다. 이는 토양에 대한 암모니아의 고착 및 활성상태 등에 의해 결정되는 것으로 보인다. 암모니아농도의 평균값은 논, 밭, 비닐하우스, 과수원에서 각각 8.61 ± 2.46 ppb, 6.47 ± 2.14 ppb, 5.21 ± 1.89 ppb, 7.65 ± 2.28 ppb이었다. 이 측정값들은 식 (1)의 C에 적용하여 암모니아 배출계수를 산정에 최종 사용하였다.

표 1은 토양 배출 시스템에 의한 토지 피복별 암모니아 배출계수를 나타낸 것이다. 4가지 토양시료(논, 밭, 비닐하우스, 과수원)에 대한 암모니아 배출량은 각각 5.020, 1.573, 2.820, 3.388 mg/m²이었다. 본 연구에서 사용된 토양 시료로부터 측정된 암모니아 배출농도는 토질의 두께, 수분함량, 대기질 상태 등에 변이가 클 수 있다(Sutton *et al.*, 2013). 그러나, 여러 변수를 고정한 토양 배출 시스템으로부터 실험한 결과, 논에서 채취한 토양에서 암모니아 모두 다른 토양과 비교하여 가장 높은 값을 나타냈으며, 논 면적이 큰 우리나라의 경우 배출에 대한 대표성을 나타낼 수 있을 것으로 판단된다. 이는 우리나라 전체 면적에 적용된다면 매우 많은 양이 배출될 수 있음을 의미한다.

3.2 AEES 모델을 이용한 농업지역 암모니아 배출량

기존의 암모니아 배출량 선정은 원격탐지기법 (Shephard *et al.*, 2020; Dammers *et al.*, 2019; Van Damme *et al.*, 2018), 항공관측 (Leen *et al.*, 2013; Nowak *et al.*, 2010, 2007), 지상관측 Fourier transform infrared (FTIR) (Dammers *et al.*, 2015)을 사용하여 이루어졌으며, 형태기반 활동기록으로부터 추정하기도 하였다(Fu *et al.*, 2015). 그러나, 암모니아 배출량의 정량화 및 인벤토리는 매우 복잡한 과정일 수 있으며, 시공간적인 다양성을 반영하는 데 어려움이 있다. 따라서, AEES 모델에서는 시공간적인 다양성을 반영하기 위하여 지리정보시스템에서 널리 사용되고 있는 래스터 (raster) 형태의 토지피복도, 토지피복별 암모니아 배출량 자료를 필수 입력자료로 사용하였다. 본 연구에서 사용한 토지피복도는 환경부 환경공간정보 (<https://egis.me.go.kr/main.do>)에서 제공하는 중분류 자료를 이용하였으며, 이 중 농업용지에 해당하는 4개 항목(논, 밭, 시설재배지, 과수원)으로 분류된 자료(그림 5)를 추출하여 암모니아의 배출량 산정을 위한 모델에 입력값으로 사용하였다. 표 2는 해당 토지피복에 대한 각 행정지역별 면적을 나타낸 것이다. 각 농지 지역의 면적은 식 (3)에 의하여 암모니아 배출총량에 기여하게 되므로 각 지역별 농지 지역면적의 순위별 분석 결과, 면적이 큰 상위 4개 지역은 논인 경우 전라남도 2,190.9 km² > 경상북도 2,024.6 km² > 충청남도 1,944.2 km² > 전라북도 1,627.1 km² 순이며, 밭의 경우 경상북도 1,496.9 km² > 전라남도 1,472.5 km² > 충청

Table 1. Ammonia emissions for different soil samples determined from the laboratory. Experimental conditions are 45°C constant temperature, flow rate of 5 L/min.

Soil samples	Sample mass (kg)	Sample area (m ²)	Analytical lapse time (min)	NH ₃ (ppb)	NH ₃ (mg/m ³)	ER-NH ₃ (mg/m ²)	ER-NH ₃ (mg/kg)
Rice field	0.102	0.0073	1,307	8.61 ± 2.46	0.0056 ± 0.0016	5.020 ± 1.435	0.361 ± 0.103
Vegetable farm	0.057	0.0080	600	6.47 ± 2.14	0.0042 ± 0.0014	1.573 ± 0.521	0.223 ± 0.074
Green house	0.130	0.0073	1,212	5.21 ± 1.89	0.0034 ± 0.0012	2.820 ± 1.022	0.159 ± 0.058
Orchard	0.080	0.0080	1,092	7.65 ± 2.28	0.0050 ± 0.0015	3.388 ± 1.009	0.340 ± 0.101

남도 1,067.7 km² > 강원도 933 km² 순이고, 비닐하우스의 경우 경상남도 83.5 km² > 충청남도 72.9 km² > 경기도 70.4 km² > 전라남도 57 km², 과수원 지역은 경

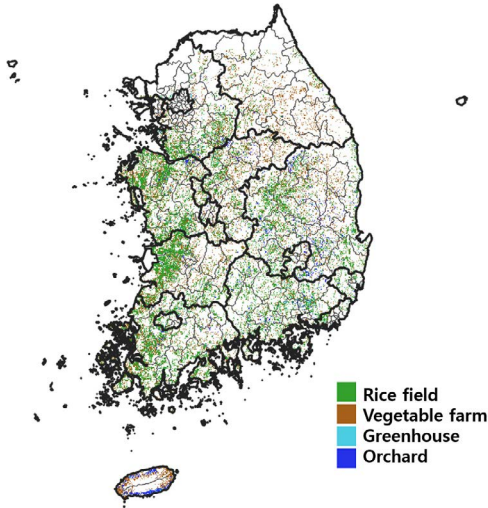


Fig. 5. 30 m resolution land cover map for agricultural areas including rice field (green), vegetable farm (brown), greenhouse (sky blue), and orchards (blue) in Korea. Administrative boundaries are overlaid (thick black lines: Si-Do units, thin grey lines: Si-Gun-Gu units).

상북도 496.7 km² > 제주도 253.6 km² > 경상남도 160.5 km² > 전라남도 115.5 km² 순으로 나타났다.

AEES 모델에서는 대표적인 농업활동 지역을 논, 밭, 비닐하우스, 과수원으로 분류하고 각 지점에서 채취한 시료에 대하여 실험실에서 암모니아 배출량을 정량적으로 분석하였다. 3.1장에서 설명한 바와 같이, 실험실에서 분석한 토양시료별 배출계수는 공간적인 배출량 추정을 위하여 다음과 같은 농업분야별 배출량 계산식을 사용하였다.

$$M_i = EF_i \times AF_i \quad (2)$$

$$M = \sum_i M_i \cdot \varepsilon_i \quad (3)$$

위 식에서 M_i , EF_i 와 AF_i 는 각각 해당 토지피복 (i)별 암모니아 배출량 (kg), 단위 면적당 암모니아 배출량 (kg/m²), 암모니아 배출지역의 총 면적 (m²)이다. 그리고 각 지역별 총 암모니아 배출량 (M)은 토지피복별 기여도 (ε_i)가 고려된 총합으로 표현된다. 일반적으로, 이 계산식은 배출계수값의 단위 및 토지피복 유형에 따라 약간의 변형이 가능할 것이다.

농업지역에서 각 토지피복 유형에 따른 암모니아

Table 2. Agricultural land covered area by administrative region in Korea

(unit: km²)

Administrative region	Rice field	Vegetable farm	Greenhouse	Orchard
Seoul	3.1	9.0	2.9	0.5
Busan	78.4	39.1	5.4	1.9
Daegu	79.9	70.6	2.5	8.5
Incheon	33.7	35.9	2.9	1.8
Gwangju	78.3	49.7	10.4	2.7
Daejeon	24.7	43.9	3.2	3.0
Ulsan	112.5	50.2	2.0	19.3
Sejong-si	72.3	54.1	2.0	6.9
Gyeonggi-do	920.5	674.0	70.4	85.1
Gangwon-do	306.7	933.0	16.6	18.8
Chungcheongbuk-do	640.1	832.8	31.5	102.8
Chungcheongnam-do	1,944.2	1,067.7	72.9	90.2
Jeollabuk-do	1,627.1	875.7	45.0	57.5
Jellanam-do	2,190.9	1,472.5	57.0	115.5
Gyeongsangbuk-do	2,024.6	1,496.9	40.6	496.7
Gyeongsangnam-do	1,393.1	731.2	83.5	160.5
Jeju-do	0.7	466.9	41.6	253.6
Total area	11,530.8	8,903.3	490.4	1,425.1

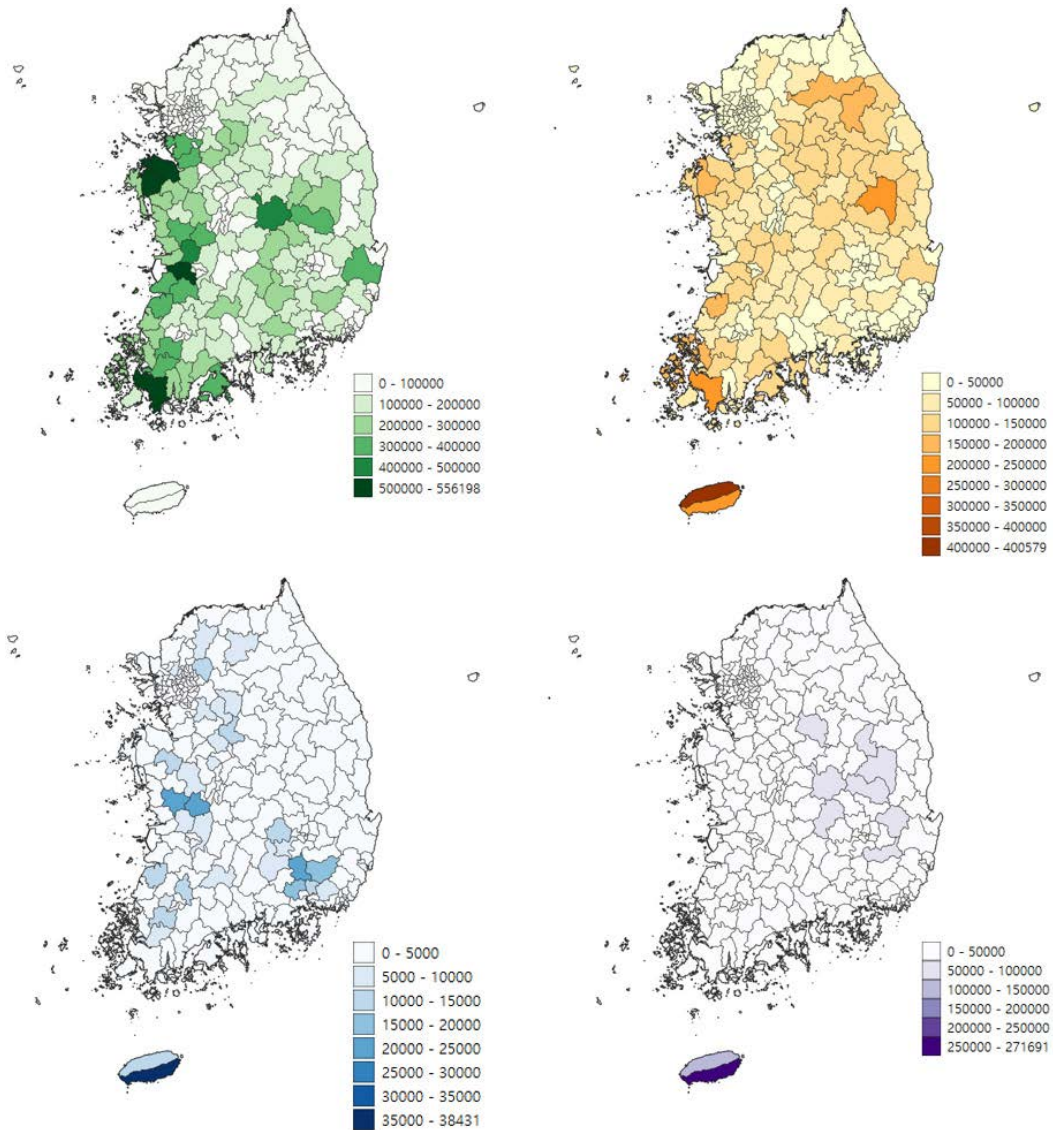


Fig. 6. NH₃ emission (unit=kg/year) map for agricultural areas including rice field (green), vegetable farm (brown), greenhouse (blue), and orchards (purple) in Korea.

배출량에 대한 기술통계 자료를 살펴보면 논 (총 23,276.4 ton/year, 지역 평균 93.1 ± 119.5 ton/year), 밭 (총 12,269.8 ton/year, 지역 평균 49.1 ± 56.5 ton/year), 비닐하우스 (총 599.8 ton/year, 지역 평균 4.49 ton/year), 과수원 (총 2,323.9 ton/year, 지역 평균 9.3 ± 24.0 ton/year)이다. 농업지역 중 논에서 배출되는 암모니아

의 총량이 농업지역 전체 대비 약 60.5%를 차지하였으며, 밭 31.9%, 과수원 6.0%, 비닐하우스 1.6%의 순으로 나타났다. 이는 AEES 모델에 입력된 토지피복도의 해당 토지피복의 면적과 배출계수값이 절대적인 영향에 따른 것으로 분석된다.

AEES 모델에 의하여 산정된 전국 시군구 단위 암모

니아 배출량에 대한 공간적 분포 범위는 농업용지의 분포 및 토지피복별 암모니아 배출계수의 함수이므로, 국내 암모니아 배출량이 상대적으로 높은 지역을 알아보기 위하여 전국 251개 시군구 단위의 행정구역 중 암모니아 배출량이 상위 20% 지역을 선정한 결과는 다음과 같다. 논(전남 해남군 556.2 ton/year > 충남 당진시 536.2 ton/year > 충남 서산시 507.1 ton/year > 전북 김제시 507.1 ton/year > 전북 익산시 468.8 ton/year), 밭(제주시 400.6 ton/year > 서귀포시 242.9 ton/year > 전남 해남군 237.8 ton/year > 경북 안동시 207.6 ton/year > 강원 평창군 194.2 ton/year), 비닐하우스(서귀포시 38.4 ton/year > 충남 논산시 25.0 ton/year > 충남 부여군 23.2 ton/year > 경남 창원군 23.1 ton/year > 경남 밀양시 16.6 ton/year), 과수원(서귀포시 271.7 ton/year > 제주시 141.8 ton/year > 청도군 96.5 ton/year > 영천시 89.4 ton/year > 의성군 70.1 ton/year). 본 연구의 결과는 암모니아 배출량이 농경지와 배출계수에 영향을 받으며, 특히 국내 농업지역의 지역적 다양성은 보다 정확한 암모니아 배출량의 정량화를 저해하는 주요한 원인으로 평가되므로, 정밀한

암모니아 배출계수의 확보와 지역별 배출량 산정을 고려해야 함을 확인하였다.

3.3 AEES 모델과 CAPSS 암모니아 배출량 비교

AEES 모델의 암모니아 배출량은 농업지역의 토지 피복별 배출량에 근거한 단위면적당 총량 배출 산정 기법을 이용하여 결정하였으며, 기존의 CAPSS 농업 지역 암모니아 배출량 자료와 비교를 통해 모델의 신뢰성을 확보하고자 하였다. 표 3은 시도 단위의 농업 용지별 암모니아 배출량 자료와 CAPSS 자료를 비교한 것이다. AEES 모델로부터 산출된 농업 용지별 암모니아 총 배출량은 논 23,276.5 ton/year, 밭 12,269.9 ton/year, 비닐하우스 599.8 ton/year, 과수원 2324.0 ton/year으로 전체 합계 38,470.2 ton/year로 산정되었다. 이 결과는 2018년 CAPSS 농업용지에 대한 암모니아 배출량이 19,566.1 ton/year인 것과 비교하면, AEES 모델로부터의 산출된 배출량이 18,904 ton/year으로서 약 1.97배 높게 나타난다.

그림 7은 각각 전국 시군구 단위 및 시도 단위 암모니아 배출량에 대한 비교 결과를 나타낸 산점도이다.

Table 3. Agricultural NH₃ emission by administrative region in Korea

(unit: ton/year)

Administrative region	Rice field	Vegetable farm	Greenhouse	Orchard	AEES, Total NH ₃	CAPSS, Agricultural NH ₃	AEES-CAPSS
Seoul	6.2	12.3	3.6	0.8	22.9	32.4	-9.5
Busan	158.3	53.9	6.6	3.0	221.9	100.1	121.8
Daegu	161.3	97.3	3.0	13.8	275.5	127.2	148.3
Incheon	68.0	49.4	3.6	2.9	123.9	173.0	-49.1
Gwangju	158.0	68.5	12.7	4.5	243.8	188.5	55.3
Daejeon	49.8	60.4	3.9	5.0	119.1	62.5	56.6
Ulsan	227.1	69.2	2.5	31.4	330.2	117.7	212.5
Sejong-si	145.9	74.6	2.4	11.2	234.1	79.9	154.2
Gyeonggi-do	1,858.1	928.9	86.2	138.8	3,012.0	1,546.8	1,465.2
Gangwon-do	619.2	1,285.8	20.3	30.6	1,955.9	1,368.4	587.5
Chungcheongbuk-do	1,292.1	1,147.8	38.5	167.7	2,646.0	1,036.9	1,609.1
Chungcheongnam-do	3,924.6	1,471.4	89.1	147.1	5,632.1	2,347.5	3,284.6
Jeollabuk-do	3,284.6	1,206.9	55.0	93.7	4,640.2	3,052.1	1,588.1
Jellanam-do	4,422.6	2,029.3	69.7	188.4	6,710.0	4,465.6	2,244.4
Gyeongsangbuk-do	4,087.0	2,063.0	49.6	81.0	7,009.6	2,104.5	4,905.1
Gyeongsangnam-do	2,812.2	1,007.6	102.1	261.7	4,183.7	1,792.0	2,391.6
Jeju-do	1.4	643.5	50.9	413.5	1,109.3	971.0	138.3
Total	23,276.5	12,269.9	599.8	2,324.0	38,470.2	19,566.1	18,904.0

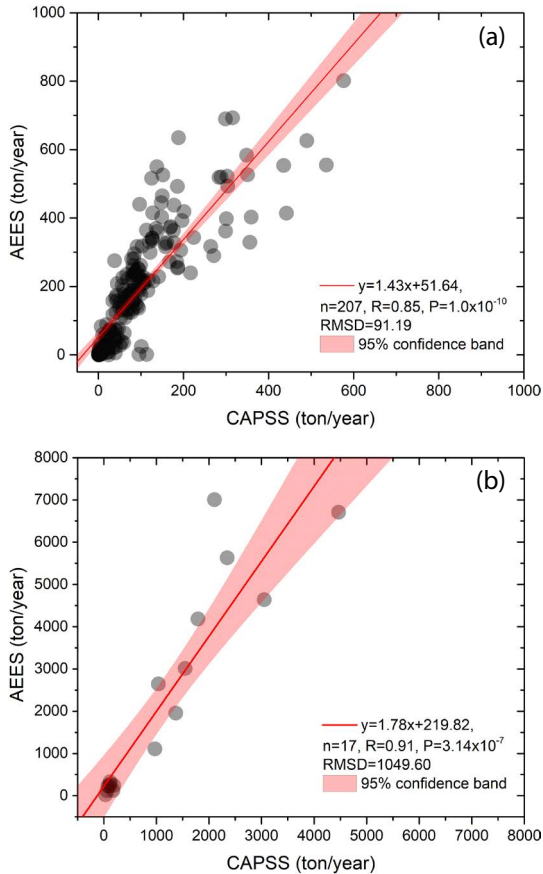


Fig. 7. Scatterplots between regional total NH₃ emission from CAPSS and this study for (a) Si-Gun-Gu and (b) Si-Do provincial administrative units.

Pearson 상관분석을 위한 입력자료의 개수는 각각 17개, 207개이며, 두 경우 모두 p 값이 3.0×10^{-7} 보다 작은 값을 나타냄으로 인하여 95% 유의 수준에서 통계적으로 유의미한 결과를 확인하였다. 그리고, 시군구별 암모니아 배출량의 회귀 직선의 기울기와 Pearson 상관계수(R)은 각각 1.43과 0.85로 상관성이 높은 것으로 나타났으며, AEES 배출량 산정 결과가 조금 더 높은 배출량을 보였다. 시도별 암모니아 배출량 비교 결과는 회귀직선의 기울기와 상관계수(R)은 각각 1.77과 0.91로서, AEES의 시도별 배출량 산정결과가 CAPSS보다 높게 나타났는데, 이것은 시군구별 차이 값이 누적된 결과에 기인한 것으로 보인다.

4. 결 론

본 연구는 실험실 기반의 암모니아 배출계수와 토지피복도를 이용한 AEES 모델을 통해 전국 농업지역의 암모니아 배출량을 산정하고 CAPSS 결과와의 비교를 통해 모델의 적용 가능성을 평가하였다. 환경부의 중분류 토지피복도를 이용하여 농업지역의 4개 항목(논, 밭, 시설재배지, 과수원)을 추출하여 기본 입력 자료로 활용하였고, 토지 피복별 암모니아 배출계수는 해당 토양시료에 대해 실험실에서 정량적으로 분석한 값을 적용하였다. 본 연구에서 설계한 암모니아 배출계수 측정을 위한 토양채버를 이용하여 분석한 암모니아 배출량은 각각 논 5.020 mg/m², 밭 1.573 mg/m², 비닐하우스 2.820 mg/m², 과수원 3.388 mg/m²이었다.

CAPSS가 국내에 처음 도입된 이래로 암모니아 배출량의 비교·검증을 위한 공간 데이터에 관련한 연구가 충분히 이뤄지지 않았으며, 배출량 산정을 위한 입력 매개변수에 대한 한계점도 제시되었다(Choi *et al.*, 2019). 본 연구에서 제시된 AEES는 농업용지에 대한 공간정보뿐만 아니라 실험실에서 정량적으로 측정된 토양별 암모니아 배출계수 자료를 통해 전국단위 암모니아 배출량 산정결과를 제시하였다. AEES로 산정된 전국 암모니아 배출량은 농업용지(또는 농업형태)의 지역별 총 면적에 비례하여 주요 배출원의 공간적 위치를 제시하였다. 또한, AEES와 CAPSS의 암모니아 배출량 비교 분석결과는 AEES가 상대적으로 높은 값을 나타내었으며, Pearson 상관성 분석계수는 시군구와 시도 단위에서 각각 0.85, 0.91로 분석되어 통계적으로 유의한 수준인 것으로 나타났다.

본 연구의 한계점은 암모니아 배출계수 결정을 위하여 사용된 토양시료의 대표성과 시공간적 변화에 관한 것으로서 실제와 차이가 발생할 수 있을 것으로 판단된다. 향후, 암모니아 배출조건에 대한 요인분석 및 민감도에 관련된 연구가 충분히 수행되어야 할 것이며, 이에 근거하여 우리나라 실정에 맞는 배출계수가 제안된다면 AEES 모델의 신뢰성은 향상될 것으로 기대된다. 더욱이, 암모니아 배출량 모델의 신뢰성을

객관적으로 확보하기 위하여 토지피복 해상도, 토지 이용 변화 등을 고려하여 암모니아 배출량을 평가한다면 대기질 관리에 대한 의사결정 자료로서의 활용도가 매우 높을 것으로 판단된다.

감사의 글

본 연구는 농촌진흥청 국립농업과학원 농업과학기술 연구개발사업의 지원으로 토양별 암모니아 배출량 실험 및 국립환경과학원 (NIER 번호: NIER-2020-04-02-041) 지원으로 AEEES 모델에 따른 전국 농업지역의 암모니아 배출량을 산정하였습니다. 공간분석 기법 및 가시화 부분은 2019년도 정부(교육부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업 (NRF-2019R11A3A01062804)으로 수행되었습니다. 본 연구에서 사용된 CAPSS 데이터 구축, 유지 관리 및 자료를 제공해주신 관계자분들께 감사드립니다.

References

- Aneja, V.P., Schlesinger, W.H., Erisman, J.W. (2009) Effects of agriculture upon the air quality and climate: research, policy, and regulations, *Environmental Science & Technology*, 43, 4234-4240. <https://doi.org/10.1021/es8024403>
- Behera, S.N., Sharma, M., Aneja, V.P., Balasubramanian, R. (2013) Ammonia in the atmosphere: a review on emission sources, atmospheric chemistry and deposition on terrestrial bodies, *Environmental Science and Pollution Research*, 20(11), 8092-8131. <https://doi.org/10.1007/s11356-013-2051-9>
- Choi, H., Hyun, J., Kim, Y.J., Yoo, G. (2019) Improvement of ammonia emission inventory estimation methodology for fertilizer application in the agricultural sector, *Journal of Climate Change Research*, 10(3), 237-242. <https://doi.org/10.15531/KSCCR.2019.10.3.237>
- Dammers, E., McLinden, C.A., Griffin, D., Shephard, M.W., Van Der Graaf, S., Lutsch, E., Schaap, M., Gainairu-Matz, Y., Fioletov, V., Van Damme, M., Whitburn, S., Clarisse, L., Cady-Pereira, K., Clerbaux, C., Coheur, P.F., Erisman, J.W. (2019) NH₃ emissions from large point sources derived from CrIS and IASI satellite observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19, 12261-12293. <https://doi.org/10.5194/acp-19-12261-2019>
- Dammers, E., Vigouroux, C., Palm, M., Mahieu, E., Warneke, T., Smale, D., Langerock, B., Franco, B., Van Damme, M., Schaap, M., Notholt, J., Erisman, J.W. (2015) Retrieval of ammonia from ground-based FTIR solar spectra, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 12789-12803. <https://doi.org/10.5194/acp-15-12789-2015>
- Firestone, M.K., Davidson, E.A. (1989) Microbiological basis of NO and N₂O production and consumption in soil. In: Andreae M.O. and Schimel D.S. (eds) *Exchange of Trace Gases between Terrestrial Ecosystems and the Atmosphere*. Dahlem Konferenzen, pp. 7-21. John Wiley and Sons Ltd., Chichester, New York, U.S.A.
- Fu, X., Wang, S.X., Ran, L.M., Pleim, J.E., Cooter, E., Bash, J.O., Benson, V., Hao, J.M. (2015) Estimating NH₃-emissions from agricultural fertilizer application in China using the bi-directional CMAQ model coupled to an agroecosystem model, *Atmospheric Chemistry & Physics*, 15, 6637-6649. <https://doi.org/10.5194/acp-15-6637-2015>
- Hodan, W.B., Barnard, W.R. (2004) Evaluating the contribution of PM_{2.5} precursor gases and re-entrained road emissions to mobile source PM_{2.5} particulate matter emissions. MACTEC Federal Programs, Research Triangle Park, NC.
- Leen, J.B., Yu, X.-Y., Gupta, M., Baer, D.S., Hubbe, J.M., Kluzek, C.D., Tomlinson, J.M., Hubbell, M.R. (2013) Fast In situ airborne measurement of ammonia using a mid-infrared off-axis ICOS spectrometer, *Environmental Science & Technology*, 47, 10446-10453. <https://doi.org/10.1021/es401134u>
- Malm, W.C., Schichtel, B.A., Pitchford, M.L., Ashbaugh, L.L., Eldred, R.A. (2004) Spatial and monthly trends in speciated fine particle concentration in the United States, *Journal of Geophysical Research*, 109, D03306. <https://doi.org/10.1029/2003JD003739>
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2008) National air pollutant emission estimation manual (III), National Institute of Environmental Research. Incheon, Korea.
- Nowak, J.B., Neuman, J.A., Bahreini, R., Brock, C.A., Middlebrook, A.M., Wollny, A.G., Holloway, J.S., Peischl, J., Ryerson, T.B., Fehsenfeld, F.C. (2010) Airborne observations of ammonia and ammonium nitrate formation over Houston, Texas, *Journal of Geophysical Research*, 115, D22304. <https://doi.org/10.1029/2010JD014195>

- Nowak, J.B., Neuman, J.A., Kozai, K., Huey, L.G., Tanner, D.J., Holloway, J.S., Ryerson, T.B., Frost, G.J., McKeen, S.A., Fehsenfeld, F.C. (2007) A chemical ionization mass spectrometry technique for airborne measurements of ammonia, *Journal of Geophysical Research*, 112, D10S02. <https://doi.org/10.1029/2006JD007589>
- Shephard, M.W., Dammers, E., Cady-Pereira, K.E., Kharol, S.K., Thompson, J., Gainariu-Matz, Y., Zhang, J., McLinden, C.A., Kovachik, A., Moran, M., Bittman, S., Sioris, C.E., Griffin, D., Alvarado, M.J., Lonsdale, C., Savic-Jovic, V., Zheng, Q. (2020) Ammonia measurements from space with the Cross-track Infrared Sounder: characteristics and applications, *Atmospheric Chemistry & Physics*, 20, 2277-2302. <https://doi.org/10.5194/acp-20-2277-2020>, 2020
- Sutton, M.A., Bleeker, A., Howard, C., Bekunda, M., Grizzetti, B., de Vries, W., van Grinsven, H., Abrol, Y., Adhya, T., Billen, G., Davidson, E., Datta, A., Diaz, R., Erisman, J., Liu, X., Oenema, O., Palm, C., Raghuram, N., Reis, S., Scholz, R., Sims, T., Westhoek, H., Zhang, F., with contributions from Ayyappan, S., Bouwman, A., Bustamante, M., Fowler, D., Galloway, J., Gavito, M., Garnier, J., Greenwood, S., Hellums, D., Holland, M., Hoysall, C., Jaramillo, V., Klimont, Z., Ometto, J., Pathak, H., Plocq Fichet, V., Powlson, D., Ramakrishna, K., Roy, A., Sanders, K., Sharma, C., Singh, B., Singh, U., Yan, X., Zhang, Y. (2013) Our nutrient world: The challenge to produce more food and energy with less pollution, *Global Overview of Nutrient Management*, Centre for Ecology & Hydrology on behalf of the Global Partnership on Nutrient Management and the International Nitrogen Initiative, 114 pp.
- Sutton, M.A., Erisman, J.W., Dentener, F., Möller, D. (2008) Ammonia in the environment: From ancient times to the present, *Environmental Pollution*, 156, 583-604. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2008.03.013>
- Van Damme, M., Clarisse, L., Whitburn, S., Hadji-Lazaro, J., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Coheur, P.-F. (2018) Industrial and agricultural ammonia point sources exposed, *Nature*, 564, 99-103. <https://doi.org/10.1038/s41586-018-0747-1>
- Warner, J.X., Dickerson, R.R., Wei, Z., Strow, L.L., Wang, Y., Liang, Q. (2017) Increased atmospheric ammonia over the world's major agricultural areas detected from space, *Geophysical Research Letters*, 44, 2875-2884. <https://doi.org/10.1002/2016GL072305>
- Yamanouchi, S., Viatte, C., Strong, K., Lutsch, E., Jones, D.B.A., Clerbaux, C., Van Damme, M., Clarisse, L., Coheur, P.-F. (2021) Multiscale observations of NH₃-around Toronto, Canada, *Atmospheric Measurement Techniques*, 14, 905-921. <https://doi.org/10.5194/amt-14-905-2021>
- Yu, F., Nair, A.A., Luo, G. (2018) Long-term trend of gaseous ammonia over the United States: modeling and comparison with observations, *Journal of Geophysical Research Atmosphere*, 123, 8315-8325. <https://doi.org/10.1029/2018JD028412>

Authors Information

이권호 (강릉원주대학교 복사위성연구소, 대기환경과학과 교수) (kwonho.lee@gmail.com)

송명기 (목포대학교 환경공학과 연구교수) (msong@mnu.ac.kr)

오세호 (목포대학교 환경공학과 박사과정) (osh9119mnudk@mnu.ac.kr)

임용재 (국립환경과학원 기후대기 연구부 대기환경연구과 연구사) (limyongjae@korea.kr)

신혜정 (국립환경과학원 기후대기 연구부 대기환경연구과 연구관) (shjoung@korea.kr)

정해진 (국립환경과학원 기후대기 연구부 대기환경연구과 연구사) (haejin13@korea.kr)

김민욱 (국립농업과학원 농업환경부 기후변화생태과 연구사) (minuk09@korea.kr)

이태형 (한국외국어대학교 환경학과 교수) (thlee@hufs.ac.kr)

배민석 (목포대학교 환경공학과 교수) (minsbae@mnu.ac.kr)