



논문

Brute-Force Method를 이용한 국내외 PM_{2.5} 기여도 산정 방법에 대한 고찰

A Study on the Method of Calculation of Domestic and Foreign Contribution on PM_{2.5} using Brute-Force Method

남기표, 이한솔, 이진주, 박현주, 최진영, 이대균*

국립환경과학원 기후대기연구부 대기질통합예보센터

Ki-pyo Nam, Han-sol Lee, Jin-ju Lee, Hyun-ju Park, Jin-young Choi,
Dae-gyun Lee*

Air Quality Forecasting Center, Climate and Air Quality Research Department, NIER

접수일 2019년 1월 16일

수정일 2019년 2월 1일

채택일 2019년 2월 7일

Received 16 January 2019

Revised 1 February 2019

Accepted 7 February 2019

*Corresponding author

Tel : +82-(0)32-560-7721

E-mail : hileedg@korea.kr

Abstract In this study, we analyzed the variation of PM_{2.5} concentration and the range of domestic and foreign contribution according to the variation range of emission when calculating the contribution of BFM (Brute-Force Method) to the CMAQ model. As a result of modeling by reducing the domestic emissions by 20%, 40%, 60%, 80%, and 100% in high-concentration PM_{2.5} cases in January 2017, the simulated PM_{2.5} concentrations were decreased by 3.2 µg/m³, 6.5 µg/m³, 10.1 µg/m³, 14.1 µg/m³, 20.7 µg/m³, respectively, and these results show non-linear characteristics between emission and PM_{2.5} concentration. The non-linearity between these emissions and PM_{2.5} concentration also found to have an effect on the estimation results of the domestic and foreign contribution using BFM. In particular, the results of domestic and foreign contribution evaluation under the zero-out condition for the period covered by this study showed a difference of more than 6% from the contribution evaluation results calculated under the 20~80% emission variation condition. It was confirmed that the results of the contribution evaluation for PM_{2.5} could be slightly different according to the emission fluctuation condition when applying BFM to the air quality model.

Key words: PM_{2.5}, WRF, CMAQ, Contribution, Emission sensitivity

1. 서론

미세먼지 (Particulate Matter, PM)는 대기 중에 부유하고 있는 직경 10 µm 이하의 입자상 물질로 각종 호흡기 및 폐질환, 심혈관계 질환을 발생시킴과 동시에 조기 사망률에도 영향을 미치는 것으로 알려져 있으며 (Nishiwaki *et al.*, 2013; WHO, 2013; Zoran *et al.*, 2011; Zelikoff *et al.*, 2003; Katsouyanni *et al.*, 1997; Dockery and Pope, 1994; Dockery *et al.*, 1993), 세계보건기구 (World Health Organization: WHO) 산하 국제암연구소 (International Agency for Research on Cancer: IARC)는 2013년에 연구보고서를 통해 미세먼지

를 1급 발암물질로 지정하였다 (IARC, 2013). 특히, 최근 Di *et al.* (2017)은 낮은 농도수준에서도 PM_{2.5} 농도가 증가할 때 조기 사망률이 증가할 수 있음을 밝혀 고농도뿐만 아니라 저농도 PM_{2.5}에 대해서도 경각심을 고취시켰다.

우리나라의 경우 1995년부터 직경 10 µm 이하 크기의 PM₁₀에 대해 측정을 시작하였으며, 2015년부터는 직경 2.5 µm 이하의 PM_{2.5}에 대해서도 측정을 하여 국내 미세먼지의 수준을 파악하고자 하였다. 우리나라의 PM₁₀ 농도는 2007년부터 2012년까지 뚜렷하게 감소하는 경향을 나타내었지만 이후 PM₁₀ 농도의 증감 경향은 기간에 따라 상이하게 나타났으며, PM_{2.5}

의 측정을 시작한 2015년과 이후 2016년의 농도는 약 26 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 의 유사한 수준을 나타냈다(MOE, 2016). 이러한 상황에서 환경부는 미세먼지로부터 국민들의 건강을 보호하기 위해 2014년부터 정부차원에서의 대기질 예보를 시행하여 고농도 미세먼지에 대한 사전 회피기회를 제공하고 있지만, 근본적인 미세먼지에 대한 원인분석과 이를 통한 대책마련에 대한 필요성이 나날이 증가하고 있다.

하지만, 1차 대기오염물질의 특성과 2차 대기오염물질의 특성을 동시에 지니는 미세먼지는 배출원에서 직접 발생하는 양에 대기 중 화학반응을 통해 생성 및 소멸되는 영향이 더해져 현상에 대한 원인분석이 매우 복잡하며, 특히 우리나라의 경우 국내 배출원의 영향과 고배출원 지역인 중국 등을 비롯한 주변국들로부터의 영향도 함께 받으므로 미세먼지 현상에 대한 원인분석이 더욱 어려운 실정이다. 따라서 미세먼지 현상의 원인분석을 통한 효율적인 대기환경관리를 위해서는 배출, 반응, 이류 및 확산, 침적 등을 고려한 배출원과 수용지의 인과관계를 모사할 수 있는 대기질 예측을 통한 대기영향평가가 중요하다(MOE, 2007).

동북아시아의 대기오염물질 기여도와 관련한 국외 선행연구로 Lin *et al.* (2008)은 CMAQ v4.5 모델에 BFM (Brute-Force Method)을 적용하여 2001년의 동아시아 내 지역별 황산화물의 침적에 대한 기여도를 산정하였으며, Kajino *et al.* (2011)은 RAQM (Regional Air Quality Model)에 Zero-out 기반의 BFM을 이용하여 2002년 한국, 중국, 일본의 황 침적에 대한 기여도 분석을 수행하였다. 그리고 Itahashi *et al.* (2017)은 CAMx v6.0 모델을 기반으로 PSAT (Particulate Source Apportionment Technology) 방법을 적용하여 동아시아 황산염 에어로졸에 대한 기여도를 한국, 중국, 일본, 대만에 대하여 분석하였다.

그리고 우리나라를 중심으로 한 대기오염 물질의 배출량별 민감도 및 지역별 기여도에 대한 선행연구로 Kim *et al.* (2017)는 CMAQ 모델을 활용하여 2013년 CAPSS (Clean Air Policy Support System) 배출량 목록을 기반으로 수도권 지역에서 배출되는 PM_{2.5} 전

구물질이 해당지역 및 주변지역의 PM_{2.5} 농도에 미치는 기여도 평가를 수행하였으며, Bae *et al.* (2017)은 CMAQ 모델에 BFM을 적용하여 배출량 목록에 따른 국내외 기여도의 변동범위를 추정하였다. 특히, Kim *et al.* (2018)은 우리나라 PM_{2.5} 관리를 위한 기존 선행연구 결과 분석을 통해 BFM과 CAMx (Comprehensive Air quality Model with eXtension) (Ramboll-Environ, 2016)에서 제공하는 PSAT (Partial Source Apportionment Technique)의 한계점을 알림과 동시에 적용 방법의 차이에 따라 국내외 기여도 분석, 배출원-수용지 관계 분석, 배출량 저감효과 분석 등의 결과가 상이하게 나타날 수 있음을 알리며 분석기법에 대한 연구 및 검토의 필요성을 강조하였다.

하지만 PM_{2.5}에 대한 국내외 기여도 분석연구는 여전히 부족한 실정이며, 국내외의 배출량과 대기오염물질에 대한 민감도 및 기여도 분석에 많이 사용되고 있는 BFM의 경우 각각의 선행연구에서 분석 대상 배출량에 대해 zero-out, 25%, 또는 50% 등 상이한 배출량 저감율을 이용하여 민감도를 산정하고 있다. 그리고 이는 2차 대기오염물질의 특성이 큰 PM_{2.5}를 대상으로 한 국내외 기여도 산정 결과에 불확실성을 발생시킬 수 있을 것으로 판단된다. 따라서 본 연구에서는 2017년 1월 우리나라 수도권 지역에서 발생한 PM_{2.5} 고농도 사례기간을 대상으로 BFM 기법의 특성을 분석함과 동시에 BFM 적용시 배출량 감률에 따른 국내외 기여도 결과의 민감도분석을 수행하고자 한다. 본 연구수행을 통해 대기질 모델링을 활용한 배출량 민감도 및 국내외 기여도 산정에 활발히 사용되고 있는 BFM의 특성에 대한 이해를 증진함과 동시에 본 연구 결과는 국내 PM_{2.5} 농도의 국내외 기여도산정 방법론 수립을 위한 기초자료로 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

2. 연구방법 및 검증

2.1 분석 대상 기간 및 자료

본 연구의 분석 대상 기간은 2017년 1월 16일부터

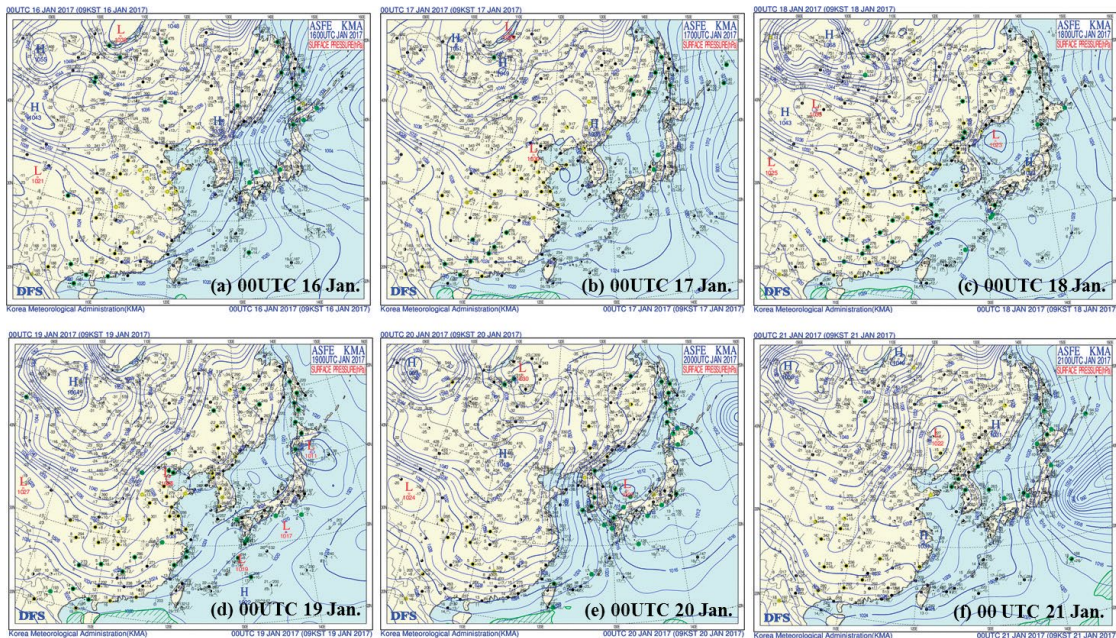


Fig. 1. Surface weather chart provided by Korean Meteorological Administration at 00 UTC on (a) 16 January; (b) 17 January; (c) 18 January; (d) 19 January; (e) 20 January; and (f) 21 January in 2017.

21일까지로 수도권에서 고농도 $PM_{2.5}$ 현상이 측정되었던 2017년 1월 18일과 19일을 중심으로 전후 2일씩을 포함하여 총 6일에 대한 국내외 기여도 분석을 수행하였다. 그림 1에 나타낸 바와 같이 분석 대상 기간 동안 우리나라의 종관기상특징을 분석한 결과, 1월 16일과 17일에 우리나라는 서해상에 위치한 고기압의 영향권에 들어 뚜렷한 풍계가 나타나지 않아 대기가 정체되었으며, 1월 18일에는 중국 중부지방에 위치한 고기압의 영향과 19일 북서쪽에서 다가오는 저기압의 영향으로 장거리 수송된 대기오염 물질이 국내로 수송되기에 유리한 기상조건이 형성되었다. 이후 1월 20일에는 북서쪽에서 확장하는 시베리아 고기압의 영향으로 강한 북풍계열의 바람이 형성되었으며, 1월 21일에는 만주지역에 위치한 저기압과 중국 상해지역 부근에 중심을 둔 고기압의 영향을 받아 서해상에 서풍계열이 형성되었다.

본 연구에서 사용된 모델의 기상모사 능력을 검증하기 위해 기상청의 종관기상관측장비(ASOS, Automated Synoptic Observing System)를 통해 관측된 서

울지점의 기온, 풍속 자료를 활용하였으며, 모델의 $PM_{2.5}$ 모사능력을 검증하기 위하여 국립환경과학원의 NAMIS (National Ambient air quality Monitoring Information System)를 통해 수집된 수도권 지역의 $PM_{2.5}$ 농도 자료를 이용하였다.

2.2 기상 및 대기질 모델

본 연구 분석 대상 기간에 대한 국내외 기여도를 산정하기 위하여 중규모 기상모델인 WRF (Weather Research and Forecast; Skamarock *et al.*, 2008) version 3.8.1과 중규모 대기 확산 모델인 CMAQ (Community Multiscale Air Quality; Byun and Ching, 1999) version 5.0.2에 BFM을 적용하여 모델링 분석을 수행하였다. 대기질 모델의 모사영역은 동북아시아역을 대상으로 $38.0^{\circ}N$ $126.0^{\circ}E$ 를 중심으로 한 27km의 수평격자 해상도를 지니며 모델 격자는 경도방향으로 174개, 위도 방향으로 128개, 그리고 연직방향으로 15개로 구성하였다. 그림 2에 본 연구에서 사용된 대기질 모사영역과 수도권 지역의 $PM_{2.5}$ 측정소 위치

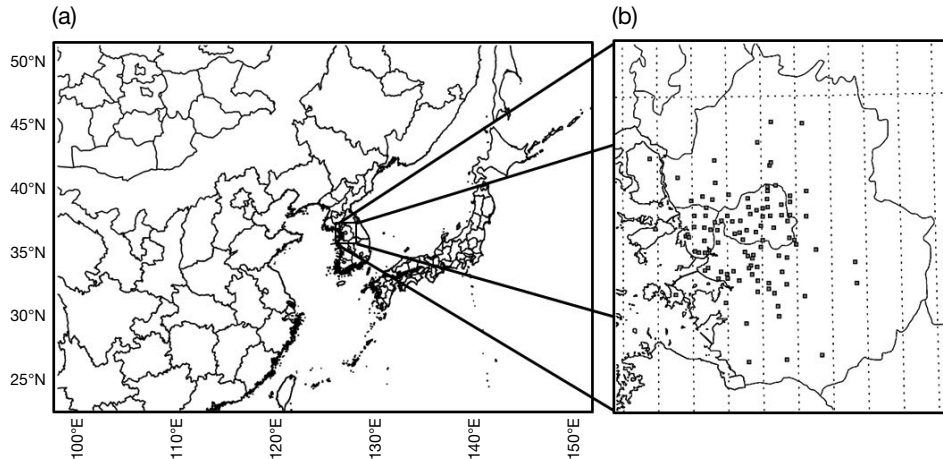


Fig. 2. Domain settings for the East-Asia (left) and location of air quality measurement stations in Seoul Metropolitan Area (right).

를 나타내었다.

중규모 기상 모델에 사용된 입력자료는 미국 NCEP (The National Center for Environmental Prediction) 의 FNL (Final Operational Global Analysis data, NCEP 2000) $1^\circ \times 1^\circ$ 자료를 이용하였으며, 대기질 모델에 사용된 배출량 목록은 국립환경과학원에서 미세먼지 예보에 활용하고 있는 배출량 자료 중 하나인 MIX 2010 (Li *et al.*, 2015) 동아시아 배출량 목록과 국립환경과학원에서 생산된 우리나라의 2010년 CAPSS 자료를 이용하였다. 대기질 모델에 사용하기 위한 배출량 전처리 과정으로 인위적 배출량은 SMOKE (Sparse Matrix Operator Kernel Emissions; Benjay *et al.*, 2001)를 이용하여 배출량의 화학 종분화 및 시공간 할당을 수행하였으며, 자연배출량은 MEGAN 2 (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature version 2; Guenther *et al.*, 2006) 모델을 이용하였다.

중규모 기상 모델 수행을 위해 사용된 주요 설정으로 미세 물리과정은 WRF Single Moment 3 class (WSM3; Hong *et al.*, 2004), 대기경계층에 대한 물리과정은 Yonsei University scheme (YSU; Hong *et al.*, 2006)을 이용하였으며, 구름 모수화 과정은 Kain-Fritsch scheme (Kain, 2004)을 이용하였다. 대기질 모사를 위해 사용된 주요 화학과정으로 에어로졸 메커니즘은

Table 1. WRF configurations used in this study.

Physical options	Scheme
Micro physics	WSM3 (Hong <i>et al.</i> , 2004)
Long wave radiation	RRTM (Mlawer <i>et al.</i> , 1997)
Short wave radiation	Goddard (Chou and Suarez, 1999, 2001)
Land-surface model	Noah LSM (Chen and Dudhia, 2001)
PBL physics	YSU (Hong <i>et al.</i> , 2006)
Cumulus option	Kain-Fritsch (Kain, 2004)

Table 2. CMAQ configurations used in this study.

Module	Options
Aerosol module	AERO5 (Binkowski and Roselle, 2003)
Chemical mechanism	SAPRC99 (Carter, 1999)
Advection scheme	YAMO (Yamartino, 1993)
Horizontal diffusion	Multiscale (Louis, 1979)
Vertical diffusion	ACM2 (Pleim, 2007a, b)

5th generation CMAQ Aerosol Module (AERO5; Binkowski and Roselle, 2003), 화학 메커니즘은 Statewide Air Pollution Research Center Version 99 (SAPRC 99; Carter, 1999)를 이용하였다. 기상 및 대기질 모델에 사용된 주요 물리·화학 설정을 각각 표 1과 표 2에 나타내었다.

2.3 Brute-Force Method

기여도 산정 방식에 따른 국내외 기여도 산정 결과

의 민감도를 분석하기 위해 본 연구에서 사용된 기여도 방법은 BFM 기법으로, BFM은 대기질 모델에 기본 배출량을 적용하였을 때 모의된 농도와 배출량을 증가 또는 감소하였을 때 재모의된 농도를 비교하여 민감도를 산출하는 방법이다 (Bartnicki, 1999). BFM은 광화학 모델에 기초한 전통적인 민감도 산정 방법임과 동시에 (Kim, 2011), 지역 또는 배출원 저감에 대한 효과를 가장 직관적으로 분석할 수 있는 방법으로 최근에도 활발히 활용되고 있는 분석 방법이다 (MOE, 2017). 아래 식 (1)에서 식 (3)에 본 연구에서 적용된 BFM을 활용한 국내 배출량 민감도에 따른 국내외 $PM_{2.5}$ 기여도 산정방법을 나타내었다.

$$C_{\text{Domestic}} (\mu\text{g}) = |C_{\text{Base}} - C_{\Delta\epsilon}| \times \frac{100}{|\Delta\epsilon|} \quad (1)$$

$$R_{\text{Domestic}} (\%) = \frac{C_{\text{Domestic}}}{C_{\text{Base}}} \times 100 \quad (2)$$

$$R_{\text{Foreign}} (\%) = \frac{C_{\text{Base}} - C_{\text{Domestic}}}{C_{\text{Base}}} \times 100 \quad (3)$$

위 식에서 C_{Domestic} 은 국내 배출량에 의해 생성된 $PM_{2.5}$ 양을 나타내며, C_{Base} 와 $C_{\Delta\epsilon}$ 는 각각 기본모사 및 변동된 배출량 적용시 모사된 $PM_{2.5}$ 농도, $\Delta\epsilon$ 는 배출량의 변동비율(%), R_{Domestic} 과 R_{Foreign} 은 각각 국내외

기여도를 나타낸다. 본 연구에서 적용한 배출량 민감도 실험 방법은 국내배출량을 각각 20%, 40%, 60%, 80%, 100% 삭감하였을 때 모사된 $PM_{2.5}$ 농도와 국내외 배출량을 모두 적용하였을 때 모사된 $PM_{2.5}$ 농도의 차이를 이용하여 국내외 기여도를 산출하였으며 (표 3), 이 과정에서 산출된 C_{Domestic} 은 국내 배출량에 의해 생성된 $PM_{2.5}$ 와 국내외 배출량이 화학반응하여 생성된 2차 $PM_{2.5}$ 양을 포함한다.

민감도 분석을 위한 배출량 변동 대상물질은 직접 배출되는 $PM_{2.5}$ 와 $PM_{2.5}$ 의 주요 전구물질을 비롯하여 국내에서 생성되는 모든 인위적 배출원을 포함하였다. 국립환경과학원의 보고서에 따르면, 본 연구에 사용된 2010년 국내 대기오염 물질별 배출량은 질소산화물(NO_x) 1,061,210톤, 휘발성유기화합물(VOCs) 866,358톤, 일산화탄소(CO) 766,269톤 순으로 높게 나타났으며, 이어 황산화물(SO_x) 401,741톤, 암모니

Table 3. Emission sensitivity test design using Brute-Force Method.

Experiment	Foreign emissions	Domestic emissions
Base	MIX 2010	CAPSS 2010
DM_R20	MIX 2010	20% reduced CAPSS 2010
DM_R40	MIX 2010	40% reduced CAPSS 2010
DM_R60	MIX 2010	60% reduced CAPSS 2010
DM_R80	MIX 2010	80% reduced CAPSS 2010
DM_R100	MIX 2010	100% reduced CAPSS 2010

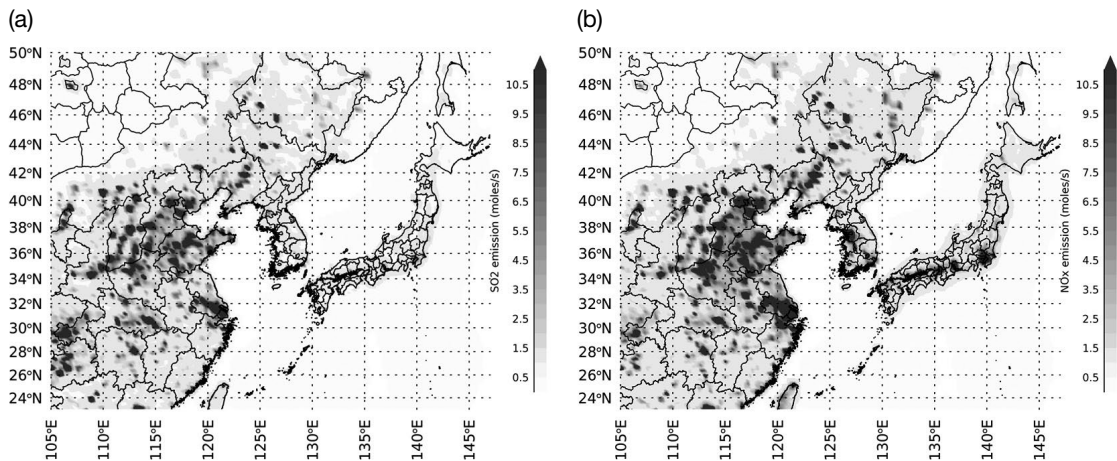


Fig. 3. SO_2 (a) and NO_x (b) emission in Northeast Asia estimated through SMOKE (unit: moles/s).

아(NH₃) 289,766톤, TSP (PM₁₀) 177,601톤이 발생된 것으로 보고되었다(NIER, 2012).

그리고 그림 3에 PM_{2.5}의 주요 전구물질 중 하나인 NO_x 및 SO₂에 대해 SMOKE를 통해 본 연구의 대상 기간 동안 시·공간적으로 할당된 배출량의 공간분포를 나타내었다. SMOKE를 통해 산정된 배출량 자료는 중국의 징진지 지역을 포함한 화북과 화동지역에서 높은 수준의 SO₂와 NO_x 배출량을 나타낸 반면, 우리나라에서는 수도권 지역을 중심으로 높은 수준의 NO_x 배출량을 나타내었지만 SO₂의 경우 우리나라와 일본 모두 상대적으로 낮은 수준의 배출량을 보이는 특징이 두드러졌다.

3. 결과 및 고찰

3.1 모델 검증

기상 및 대기질 모델의 모사정확도를 평가하기 위해 서울지역의 기상청 지상측정자료와 수도권 지역에 대한 국립환경과학원 도시대기측정망 자료를 활용하여 r (Correlation), MB (Mean Bias), RMSE (Root Mean Square Error), IOA (Index Of Agreement)을 이용한 통계검증을 수행하였으며, 기상 및 대기질 모델링을 통해 모사한 기온, 풍속, PM_{2.5}의 통계검증 결과를 표 4에 나타내었다.

모델에서 모사한 기온은 0.88의 r값과 0.93의 IOA

값을 보이며 실측값과 높은 상관성을 나타냄과 동시에 약 -0.4의 MB 값을 나타내며 실제보다 기온을 소폭 과소모사하는 것으로 나타났다. 하지만, 일평균 풍속의 경우 모델은 측정값과 0.72의 r값을 보이며 유의한 결과를 나타냈지만, IOA의 경우 0.48로 비교적 낮은 수치를 나타냄과 동시에 MB는 1.3으로 나타나 모델이 측정값보다 과대모사하는 것으로 나타났다. 이는 본 연구를 위해 사용된 기상 및 대기질 모델이 27 km 격자 해상도를 지남에 따라 지형의 영향을 충분히 반영하지 못함에 따른 것으로 판단된다.

수도권 지역을 대상으로 모사된 PM_{2.5} 농도는 1월 17일부터 18일 양일간 국외로부터 유입된 PM_{2.5} 및 전구물질의 영향을 실제보다 다소 약하게 예측하여 약 1.9 수준의 음의 MB (Mean Bias)값을 보였지만 전반적으로 측정값과 유사한 수준을 나타내었으며, 모델의 모사결과는 측정된 PM_{2.5}와 0.90의 r값을 보이며 높은 상관관계를 나타내 모델이 본 연구의 분석 대상 기간의 PM_{2.5} 일변화 경향을 전체적으로 잘 모사한 것으로 나타났다.

3.2 배출량 삭감량에 따른 PM_{2.5} 농도 변동 특성 분석

인위적 배출량 삭감량에 따른 우리나라 수도권 지역의 PM_{2.5} 모사농도 변동특성을 분석하기 위하여 국내배출량을 20%, 40%, 60%, 80%, 100% 줄였을 때 모사된 PM_{2.5} 농도와 표준편차를 표 5에 나타내었다. DM_R20, DM_R40, DM_R60, DM_R80, DM_R100의 국내 배출량 변동조건에 따라 모사된 수도권 지역 평균 PM_{2.5} 농도와 표준편차는 각각 45.9 (±5.3) µg/m³, 42.5 (±3.5) µg/m³, 39.0 (±2.7) µg/m³, 34.9 (±2.0) µg/m³, 28.4 (±2.2) µg/m³로 나타났다. 이는 기본모사에 적용된 국내외 배출량을 통해 모의된 수도권 지역 평

Table 4. Statistical verification results for model simulation in this study.

Variables	Obs.	Model	r	MB	RMSE	IOA
Temperature (°C)	-2.9	-3.2	0.88	-0.4	1.0	0.93
Wind speed (m/s)	1.7	3.1	0.72	1.3	1.9	0.48
PM _{2.5} (µg/m ³)	51.0	49.1	0.90	-1.9	9.0	0.94

Table 5. Simulated concentration and reduction of PM_{2.5} in Seoul Metropolitan Area due to variations in domestic anthropogenic emissions. (unit: µg/m³)

	DM_R20	DM_R40	DM_R60	DM_R80	DM_R100
PM _{2.5} conc.	45.9	42.5	39.0	34.9	28.4
Standard deviation	5.3	3.5	2.7	2.0	2.2

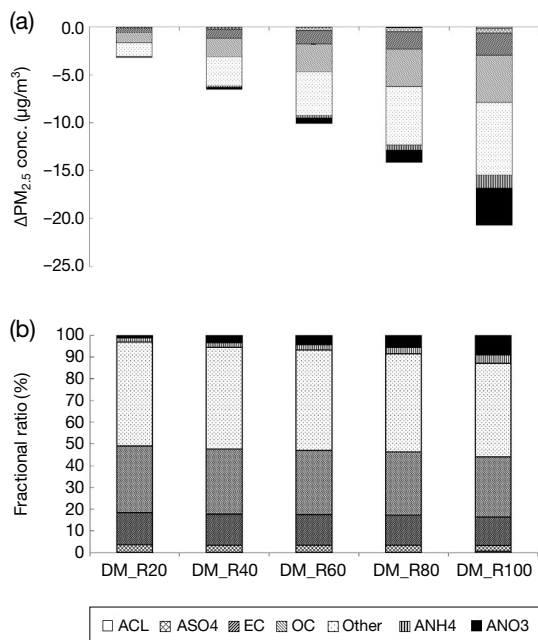


Fig. 4. Difference in concentration (a) and fractional ratio (b) of $PM_{2.5}$ major components according to domestic emissions change.

균 $PM_{2.5}$ 농도인 $49.1 (\pm 5.4) \mu g/m^3$ 에 비해 각각 $3.2 \mu g/m^3$, $6.5 \mu g/m^3$, $10.1 \mu g/m^3$, $14.1 \mu g/m^3$, $20.7 \mu g/m^3$ 감소한 것으로, 배출량 변동과 이에 따른 $PM_{2.5}$ 농도 변화는 비선형적인 특성을 보였다. 이와 동시에 국내 배출량이 감소함에 따라 $PM_{2.5}$ 농도의 표준편차의 크기도 전체적으로 감소하였지만, 국내 배출량을 zero-out 시킨 DM_R100의 실험조건에서의 $PM_{2.5}$ 표준편차는 오히려 증가하는 특징을 나타냈다.

배출량 변동에 따른 $PM_{2.5}$ 농도의 비선형적인 감소 특성을 분석하기 위해 대기질 모델에서 모사된 배출량 변동 실험조건에 따른 $PM_{2.5}$ 의 주요 성분별 농도 변화를 분석하였으며 그 결과를 그림 4a에 나타내었다. 모든 국내 배출량 성분을 동일한 비율로 감소하였을 때 배출원에서 직접 배출되는 $PM_{2.5}$ 가 배출량 감소에 따른 $PM_{2.5}$ 농도 감소에 가장 큰 비중을 차지하였으며, 그 외 $PM_{2.5}$ 의 주요 성분 중 유기탄소 (organic carbon, OC), 원소탄소 (elemental carbon,

EC), 질산염 (aerosol nitrate) 성분에서 기본모사 결과 대비 뚜렷한 농도차이를 보였다. 그리고 $PM_{2.5}$ 의 주요 성분 중 질산염과 암모늄 (ammonium) 성분이 배출량과 농도 사이에 비선형성이 뚜렷하게 나타났으며, 특히 낮은 수준의 배출량 조건(DM_R80, DM_R100)에서 비선형성을 크게 증가시키는 것으로 나타났다. 이는 국내 배출량 중 가장 큰 부분을 차지하고 있는 질소산화물 배출량이 대기 중에서 화학반응하여 생성하는 2차 $PM_{2.5}$ 의 영향에 기인한 것으로 판단된다. 그리고 이러한 결과는 선행연구인 ENVIRON (2010)에서 나타난 바와 같이 배출량 변동에 따라 비선형적인 농도변화를 보이는 2차 오염물질의 물질에 대한 BFM 방법적용은 배출량 변동 크기에 따라 상이한 결과를 나타낼 수 있는 제한점을 시사하는 것으로 보인다.

그리고 실험 조건에 따른 전체 $PM_{2.5}$ 농도 변화량 대비 $PM_{2.5}$ 의 주요 성분별 민감도를 fractional ratio (%) 형태로 산정하여 분석한 결과(그림 4b), 질산염과 암모늄은 국내 배출량의 감소가 커짐에 따라 기본 모사 결과 대비 $PM_{2.5}$ 농도 변화에 미치는 영향이 증가한 것으로 나타났으며, 이와 반대로 황산염, EC, OC, 직접 배출된 $PM_{2.5}$ 등 기타성분은 $PM_{2.5}$ 농도 변화에 미치는 민감도가 상대적으로 감소한 것으로 나타났다.

3.3 배출량 삭감량에 따른 기여도 결과 차이 분석

대기질 모델에 배출량 민감도 분석 방법인 BFM을 적용한 국내외 $PM_{2.5}$ 기여도 산정시 발생 가능한 불확실성 특성을 분석하기 위하여, 국내 배출량을 20%부터 100%까지 삭감하였을 때 모사된 수도권 지역의 $PM_{2.5}$ 농도를 기본 모사결과와 비교하여 분석 대상 기간 동안의 국내외 기여도분석을 수행하였다(그림 5).

본 연구에서 수행한 배출량 민감도 수행조건 중 'DM_R100'은 국외에서 직접 배출된 1차 $PM_{2.5}$ 와 국외에서 배출된 전구물질들이 대기 중에서 화학 반응하여 생성된 2차 $PM_{2.5}$ 의 장거리 수송 영향만을 고려

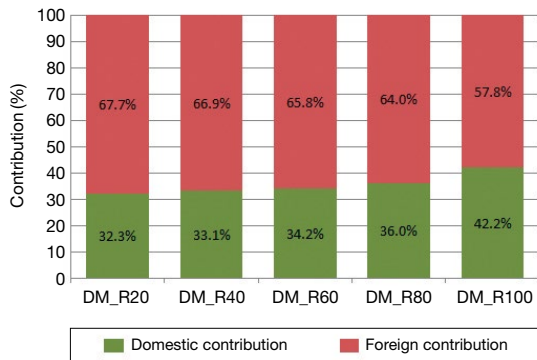


Fig. 5. Domestic and foreign contributions on PM_{2.5} due to variations in anthropogenic emissions.

하여 국내외 기여도를 산정한 방법이며, 'DM_R20'은 국내 배출량이 20% 감소함에 따라 국내에서 직접 배출한 PM_{2.5}와 국내 배출량의 반응으로 인해 2차 생성된 PM_{2.5}, 그리고 국내외 전구물질이 반응하여 생성되는 PM_{2.5}의 감소분을 이용하여 국내외 기여도를 산정하는 방법으로 풀이된다.

본 연구 대상 기간 동안 배출량 민감도 실험조건에 따른 수도권 PM_{2.5} 농도의 국내외 기여도 분석 결과, 국외 기여도는 국내 배출량을 20%, 40%, 60%, 80%, 100% 삭감하였을 때 각각 67.7%, 66.9%, 65.8%, 64.0%, 57.8%로 나타났으며, 국내 기여도는 각각 32.3%, 33.1%, 34.2%, 36.0%, 42.2%로 나타나 모든 배출량 민감도 실험 조건에서 분석 대상 기간의 수도권 PM_{2.5}에 대한 기여도가 50% 이상으로 나타났다. 이러한 결과는 본 연구의 분석 대상 기간인 2017년 1월의 수도권 PM_{2.5} 고농도 사례가 2.1절에서 제시한 동북아시아의 종관기상조건에 의해 중국으로부터 장거리 수송된 PM_{2.5} 및 그 전구물질의 영향에 주로 기인하였음을 의미한다.

다만, 배출량과 PM_{2.5}의 비선형성으로 인해 배출량 민감도에 따른 국내외 기여도는 정량적으로 상이한 값을 나타내, 일부 선행 연구에서 적용한 바와 같이 고정된 비율의 배출량 변동에 의한 배출량 민감도 및 기여도 분석 결과는 해석에 불확도를 발생시킬 수 있을 것으로 판단된다. 그리고 이와 동시에 본

연구의 분석 대상과 같이 대기오염물질이 장거리 수송되기에 유리한 기상조건에서 BFM을 적용한 PM_{2.5}의 국내외 기여도 분석 결과는 배출량 변동조건에 따라 뚜렷한 차이를 보일 수 있을 것으로 추정되며, 특히, Zero-out 조건에 따른 배출량 민감도 분석 결과는 부분적인 배출량 변동조건에 따른 기여도 분석에 따른 결과와 상당한 차이를 나타낼 수 있을 것으로 판단된다.

4. 결 론

본 연구에서는 미세먼지의 지역별 기여도 및 배출량 민감도 분석에 사용되고 있는 BFM 기법을 적용하여 우리나라 PM_{2.5} 농도의 국내외 기여도 산정시 배출량 변동범위에 따른 PM_{2.5} 농도 변동특성과 국내외 기여도 산정 결과의 변동범위를 분석하였다.

우리나라 수도권에서 고농도 PM_{2.5}가 관측되었던 2017년 1월 사례를 대상으로 국내에서 발생하는 인위적 배출량을 20%, 40%, 60%, 80%, 100% 삭감하여 모델링을 수행한 결과, 모사된 PM_{2.5} 농도는 기본 모사 결과 대비 각각 3.2 µg/m³, 6.5 µg/m³, 10.1 µg/m³, 14.1 µg/m³, 20.7 µg/m³ 감소하여 배출량과 PM_{2.5} 농도 변화량은 비선형적인 관계를 나타내었다. 성분별로는 국내 배출량 감소에 의해 배출원에서 직접 배출되는 PM_{2.5}와 OC, EC, 질산염의 변동이 총 PM_{2.5} 감소량 중 큰 비중을 차지하였으며, 질산염과 암모늄 성분은 낮은 수준의 배출량 조건에서 배출량과 PM_{2.5} 농도의 비선형성을 증가시키는 것으로 나타났다.

이러한 배출량과 PM_{2.5} 농도의 비선형성은 BFM 기법을 이용한 국내외 기여도 산정 결과에도 영향을 미치는 것으로 분석되었으며, 특히 본 연구 사례 기간 동안 Zero-out 조건하에서 산정된 국내외 기여도 평가 결과는 20~80% 배출량 변동조건에서 산정된 기여도 평가결과와 약 6% 이상의 차이를 보여 배출량 변동조건에 따라 PM_{2.5}의 국내외 기여도 평가 결과는 다소 차이를 나타낼 수 있음을 확인하였다.

따라서 향후 장기분석을 통해 BFM 기법을 적용한 국내외 기여도 산정시 발생 가능한 불확도 범위의 이해와 동시에 적절한 배출량 변동범위에 대한 가이드라인 수립이 필요할 것으로 판단되며, 국내와 국외에서 배출된 $PM_{2.5}$ 의 전구물질이 반응함에 따라 발생되는 $PM_{2.5}$ 의 기여도 분배에 대한 고려가 수반되어야 할 것으로 판단된다.

본 연구 결과를 통해 배출량 변동에 따라 비선형적인 농도 변화를 보이는 2차 대기오염 물질에 대한 배출량-민감도 분석시 BFM이 내포하고 있는 특성과 불확도 범위를 제시하였으며, 향후 2차 대기오염물질의 비선형성에 대한 이해를 바탕으로 국내외 기여도 산정에 대한 적절한 방법론이 수립이 필요함을 보였다. 다만, 본 연구는 수도권에서 고농도 현상이 발생한 겨울철 사례를 대상으로 분석을 수행함에 따라 BFM 적용시 발생 가능한 불확도 특성은 시기 및 지역에 따라 상이하게 나타날 수 있을 것으로 판단된다. 그리고 이와 동시에 이러한 모델을 활용한 민감도 분석은 모델의 모사 정확도에 직접적인 영향을 받으므로 향후 기상 및 대기질 모델의 지속적인 검증 및 개선을 통해 우리나라 $PM_{2.5}$ 의 원인분석과 이를 기반으로 한 대기질 대책 수립이 가능할 것으로 기대된다.

감사의 글

본 논문은 환경부의 재원으로 국립환경과학원의 지원을 받아 수행하였습니다(NIER-RP2017-149).

References

- Bae, C.H., Kim, E.H., Kim, B.U., Kim, H.C., Woo, J.H., Moon, K.J., Shin, H.J., Song, I.H., Kim, S.T. (2017) Impact of emission inventory choices on PM_{10} forecast accuracy and contributions in the Seoul metropolitan area, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(5), 497-514. (in Korean with English abstract)
- Bartnicki, J. (1999) Computing source-receptor matrices with the EMEP Eulerian Acid Deposition Model, EMEP MSC-W Note, 5 (99.3).
- Benjey, W., Houyoux, M., Susick, J. (2001) Implementation of the SMOKE emissions data processor and SMOKE tool input data processor in Models-3, U.S. EPA.
- Binkowski, F.S., Roselle, S.J. (2003) Models-3 Community Multi-scale Air Quality (CMAQ) model aerosol component 1. Model description, *Journal of Geophysical Research*, 108, 4183, <https://doi.org/10.1029/2001JD001409>.
- Byun, D.W., Ching, J.K.S. (1999) Science Algorithms of the EPA Models-3 Community Multi-scale Air Quality (CMAQ) Modeling System, EPA Report, EPA/600/R-99/030.
- Carter, W. (1999) Documentation of the SAPRC-99 Chemical Mechanism for VOC Reactivity Assessment, Report to California Air Resources Board, Contract, 92(329), 95-308.
- Chen, F., Dudhia, J. (2001) Coupling an advanced land surface hydrology model with the Penn State-NCAR MM5 modeling system. Part I: Model implementation and sensitivity, *Monthly Weather Review*, 129(4), 569-585.
- Chou, M.D., Suarez, M.J. (1999) A solar radiation parameterization for atmospheric studies, NASA Technical Report, NASA/TM-1999-104606, 15, 40 pp.
- Chou, M.D., Suarez, M.J., Liang, X.Z., Yan, M.M.H., Cote, C. (2001) A thermal infrared radiation parameterization for atmospheric studies, NASA Technical Report, NASA/TM-2001-104606, 19, 68 pp.
- Di, Q., Wang, Y., Zanobetti, A., Wang, Y., Koutrakis, P., Choirat, C., Dominici, F., Schwartz, J. (2017) Air pollution and mortality in the medicare population, *The New England Journal of Medicine*, 376(26), 2513-2522.
- Dockery, D.W., Pope, C.A. (1994) Acute respiratory effects of particulate air pollution, *Annual Review of Public Health*, 15(1), 107-132.
- Dockery, D.W., Pope, C.A., Xu, X., Spengler, J.D., Ware, J.H., Fay, M.E., Ferris, B.G., Speizer, F.E. (1993) An association between air pollution and mortality in six US cities, *New England Journal of Medicine*, 329(24), 1753-1759.
- ENVIRON (2010) User's guide to the Comprehensive Air Quality Model with Extension (CAMx) version 5.30, <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), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 3181-3210.
- Hong, S.Y., Dudhia, J., Chen, S.H. (2004) A revised approach to ice microphysical processes for the bulk parameter-

- ization of clouds and precipitation, *Monthly Weather Review*, 132(1), 103-120.
- Hong, S.Y., Noh, Y., Dudhia, J. (2006) A new vertical diffusion package with and explicit treatment of entrainment processes, *Monthly Weather Review*, 134(9), 2318-2341.
- International Agency for Research on Cancer (IARC) (2013) IARC Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans, Outdoor Air Pollution, 109, p. 443-444.
- Itahashi, S., Hayamo, H., Yumimoto, K., Uno, I. (2017) Chinese province-scale source apportionments for sulfate aerosol in 2005 evaluated by the tagged tracer method, *Environmental Pollution*, 220, 1366-1375.
- Kain, J.S. (2004) The Kain-Fritsch Convective Parameterization: An Update, *Journal of Applied Meteorology*, 43, 170-181.
- Kajino, M., Ueda, H., Sato, K., Sakurai, T. (2011) Spatial distribution of the source-receptor relationship of sulfur in Northeast Asia, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(13), 6475-6491.
- Katsouyanni, K., Touloumi, G., Spix, C., Schwartz, J., Balducci, F., Medina, S., Rossi, G., Wojtyniak, B., Sunyer, J., Bacharova, L., Schouten, J.P., Ponka, A. (1997) Short term effects of ambient sulphur dioxide and particulate matter on mortality in 12 European cities: results from time series data from the APHEA project, *Bmj*, 314(7095), 1658.
- Kim, B.U., Kim, H.C., Kim, S.T. (2018) Review of particulate matter management in United States, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(4), 588-609. (in Korean with English abstract)
- Kim, S.T. (2011) Ozone simulations over the Seoul Metropolitan Area for a 2007 June Episode, Part V: Application of CMAQ-HDDM to predict ozone response to emission change, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 27(6), 772-790. (in Korean with English abstract)
- Kim, S.T., Bae, C.H., Kim, B.U., Kim, H.C. (2017) 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)
- Li, M., Zhang, Q., Kurokawa, J., Woo, J.H., He, K.B., Lu, Z., Ohara, T., Song, Y., Streets, D.G., Carmichael, G.R., Cheng, Y.F., Hong, C.P., Huo, H., Jiang, X.J., Kang, S.C., Liu, F., Su, H., Zheng, B. (2015) MIX: a mosaic Asian anthropogenic emission inventory for the MICS-Asia and the HTAP projects, *Atmospheric Chemistry and Physics*, Discussion, 15(23), 34-813.
- Lin, M., Oki, T., Bengtsson, M., Kanae, S., Holloway, T., Streets, D.G. (2008) Long-range transport of acidifying substances in East Asia-Part II: Source-receptor relationships, *Atmospheric Environment*, 42(24), 5956-5967.
- Louis, J.F. (1979) A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere, *Boundary-Layer Meteorology*, 17(2), 187-202.
- 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(D14), 16663-16682.
- Ministry of Environment (MOE) (2007) Strengthening the the evaluation of air quality impacts in the Seoul Metropolitan Area (I), p. 33.
- Ministry of Environment (MOE) (2016) Annual report of air quality in Korea (2016), NIER-GP2017-078, p. 17.
- Ministry of Environment (MOE) (2017) Analysis on the effect of air quality improvement measures in the Seoul Metropolitan Area, 11-1480000-001478-01, p. 66.
- National Centers for Environmental Prediction (NCEP) (2000) NCEP FNL Operational Model Global Tropospheric Analysis, continuing from July, 1999, Research Data Archive at the National Center for Atmospheric Research, Computational and Information System Laboratory, <https://doi.org/10.5065/D6M043C6> (accessed on Sep. 27, 2018).
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2012) National Air Pollutants Emission 2010, NIER-GP2012-318.
- Nishiwaki, Y., Michikawa, T., Takebayashi, T., Nitta, H., Iso, H., Inoue, M., Tsugane, S. (2013) Long-term exposure to particulate matter in relation to mortality and incidence of cardiovascular disease: the JPHC Study, *Journal of Atherosclerosis and Thrombosis*, 30(3), 296-309.
- Pleim, J.E. (2007a) A combined local and nonlocal closure model for the atmospheric boundary layer. Part I: Model description and testing, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 46, 1383-1395.
- Pleim, J.E. (2007b) A combined local and nonlocal closure model for the atmospheric boundary layer. Part II: Application and evaluation in a mesoscale meteorological model, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 46, 1396-1408.
- Ramboll-Environ (2016) Comprehensive Air Quality Model with Extensions. <http://www.camx.com/> (accessed 2018).
- 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 Technical Note, NCAR/TN-475+STR, 113 pp.
- World Health Organization (WHO) (2013) Health Effects of Particulate Matter-Policy implications for countries in eastern Europe, Caucasus and Central Asia, pp. 6-7.
- Yamartino, R.J. (1993) Nonnegative, conserved scalar transport using grid-cell-centered, spectrally constrained Blackman cubics for applications on a variable-thickness mesh, *Monthly Weather Review*, 121(3), 753-763.
- Zelikoff, J.T., Chen, L.C., Cohen, M.D., Fang, K., Gordon, T., Li, Y., Nadziejko, C., Schlesinger, R.B. (2003) Effects of inhaled ambient particulate matter on pulmonary anti-microbial immune defense, *Inhalation Toxicology*, 15(2), 131-150.
- Zoran, D.R., Miljevic, B., Surawski, N.C., Morawska, L., Gong, K.M., Goh, F., Yang, I.A. (2012) Respiratory health effects of diesel particulate matter, *Respirology*, 17(2), 201-212.

Authors Information

남기표 (국립환경과학원 전문위원)
 이한솔 (국립환경과학원 전문위원)
 이진주 (국립환경과학원 전문위원)
 박현주 (국립환경과학원 환경연구사)
 최진영 (국립환경과학원 환경연구사)
 이대균 (국립환경과학원 환경연구관)