

Journal of Korean Society for Atmospheric Environment

Vol. 37, No. 3, June 2021, pp. 429-455 https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.3.429 p-ISSN 1598-7132, e-ISSN 2383-5346



논 문

2016년 국가배출목록 기반 지자체별 초미세먼지 기여도 분석: (VI) 충청북도

Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (VI) Chungcheongbuk-do

손규원, 강윤희¹⁾, 유승희, 김은혜¹⁾, 배민아, 김순태^{2),*}

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

Kyuwon Son, Yoon-Hee Kang¹⁾, Seunghee You, Eunhye Kim¹⁾, Minah Bae, Soontae Kim^{2),*}

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

접수일 2021년 3월 20일 수정일 2021년 4월 26일 채택일 2021년 5월 10일

Received 20 March 2021 Revised 26 April 2021 Accepted 10 May 2021

*Corresponding author Tel: +82-(0)31-219-2511 E-mail: soontaekim@ajou.ac.kr

Abstract The CAMx-PSAT (Comprehensive Air Quality Model with eXtensions-Particulate Source Apportionment Technology) simulation was applied to examine the inter- and intra-contributions to the concentrations of $PM_{2.5}$ and its components in eleven local authorities in Chungbuk during 2016. The domestic contribution to the annual mean $PM_{2.5}$ in the local authorities in Chungbuk ranged from 7.4 μ g/m³ (Danyang-gun) to 12.9 μ g/m³ (Eumseong-gun). The Chungbuk's self-contribution (2.6 μ g/m³) to the annual $PM_{2.5}$ mean concentration was higher than those of the individual neighboring provinces; Chungnam 2.5 μ g/m³, Gyeonggi 1.9 μ g/m³, and Gyeongbuk 0.9 μ g/m³. Note that the contribution of Chungnam became larger than Chungbuk's for the high $PM_{2.5}$ days (>35 μ g/m³), especially in local authorities in the vicinity of the upwind provinces. The combined inter- and intra-contributions also increased during the high $PM_{2.5}$ days (6.2 μ g/m³ for the daily mean \leq 35 μ g/m³ \rightarrow 12.3 μ g/m³ for the daily mean \geq 35 μ g/m³). Among $PM_{2.5}$ components, the self-contribution was important for ammonium and primary $PM_{2.5}$ in Chungbuk. Chungnam was, however, the main nitrate and sulfate contributor for the province. It implies that the cooperation with the neighboring provinces is helpful to alleviate the annual mean $PM_{2.5}$ concentration and to reduce the occurrence of the high $PM_{2.5}$ days in Chungbuk.

Key words: PM_{2.5}, Chungbuk, Foreign contribution, Self-contribution, Neighbor contributions

1. 서 론

우리나라는 국민 건강 보호를 위해 초미세먼지 (PM_{2.5}; Particulate Matters of which diameter is equal to or less than 2.5 µm) 농도의 대기환경기준을 연평균 15 µg/m³, 24시간 평균 35 µg/m³로 설정하여 관리하고 있다. 그러나 최근 5년간(2015~2019년) 국내 연평균 PM_{2.5} 농도는 23~26 µg/m³으로, 연평균 대기환경기준을 달성하지 못하였다(NIER, 2020). 특히, 국내에

서 전라북도와 함께 $PM_{2.5}$ 농도가 가장 높은 것으로 알려진 충청북도(이하, 충북)는 최근 5년 평균 $PM_{2.5}$ 농도가 약 $28\,\mu g/m^3$ 이며(NIER, 2020), 일평균 '매우나 쁨 $(PM_{2.5}>76\,\mu g/m^3)$ '의 발생일수가 0일 (2016년)에서 13일(2019년)로 크게 증가하였다.

충북은 국내 내륙 중앙에 위치하며 지리적으로 7개 광역 지자체에 둘러싸여 있으므로, 충북의 PM_{2.5} 농도 는 자체 배출뿐 아니라 타 지역 배출 영향이 크게 작용할 수 있다. 선행 연구에서 Kang and Lee (2015)는

¹⁾Environmental Research Institute, Ajou University, Suwon, Republic of Korea

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

수도권 등 국내 타 지역과 중국의 배출이 충북 충주의 $PM_{2.5}$ 농도에 영향을 끼치는 것으로 분석하였으며, Kim et~al. (2012)은 MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectrometer) AOD (Aerosol Optical Depth)와 AE (Ångström Exponent)를 이용하여 충북의 대기질이 중국에서 배출되는 대기오염물질의 장거리 이동영향을 받는 것으로 분석하였다. 이처럼 충북의 대기질은 다양한 배출 지역의 영향을 받으므로, 충북의 효과적인 대기질 관리를 위해서는 배출 지역별 기여도 파악이 우선되어야 한다.

기존 연구들에서는 배출 지역별 기여도 분석 시 수용지를 주로 국내 또는 광역 지자체와 같이 넓은 영역으로 설정한 대기질 모사를 수행하였다(Choi et al., 2019; Lee et al., 2019; Heo et al., 2009). 하지만, 최근 정부에서 추진 중인 대기관리권역 및 지역 맞춤형 미세먼지 대책은 보다 상세한 기초 지자체 수준의 대기질분석을 요구한다(MOE, 2020). 이와 관련하여 Bae et al. (2020)은 모사 농도장을 이용하여 국내 기초 지자체별 PM_{2.5} 농도에 대한 국외 기여율을 살펴보았고, Son et al. (2020)은 관측 농도장을 내삽하여 국내 기초지차계별 PM_{2.5} 농도 수준을 분석한 바 있다. 다만, 충북을 중심으로 충북 기초 지자체별 국내외 기여도와 충북 자체 배출 및 국내 시도간 배출 상호 영향 등에 대해 살펴본 연구는 제한적이다.

본 연구에서는 충북의 기초 지자체별 자체 및 주변 지역의 배출에 의한 $PM_{2.5}$ 기여도를 제시하고, 배출량 저감 노력에 따른 $PM_{2.5}$ 농도 개선 폭을 추정하여 충북의 $PM_{2.5}$ 농도 개선을 위한 대기관리권역 설정의 중요성을 살펴보고자 하였다. 이를 위해 미세먼지 관리 종합계획, 계절관리제 등 국가 대기질 개선 정책의 수립 및 효과 분석에 활용되었던 2016년 국가배출목록(MOE, 2020, 2019)을 기반으로 대기질 모사를 수행하여 충북 기초 지자체별 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 배출지역 및 배출 물질별 기여도를 정량적으로 분석하였다. 또한, 모사평가를 바탕으로 모사에 이용된 국가 배출목록인 CAPSS (Clean Air Policy Support System) 자료의 불확도를 검토하고, 발생원인을 분석하였다.

제시된 기여도 분석을 통해 충북 및 주변 지역의 배출 량 저감 노력에 따른 기초 지자체별 $PM_{2.5}$ 농도 개선 폭 추정과 충북의 $PM_{2.5}$ 농도 개선을 위한 대기관리 권역 설정의 중요성을 살펴보고자 한다.

2. 연구 방법

2.1 대상 지역 및 배출 특성

본 연구의 대상지역인 충북은 2020년 11월 기준 인구가 약 160만 명으로 남한 전체 인구의 3%에 해당한다. 기초 지자체별로는 3만명(단양군)~85만명(청주시)의 인구 분포를 보인다(KOSIS, 2020). 충북의 면적은 7407.7 km²이며, 인구 밀도는 약 216명/km²이다. 충북의 기초 지자체는 2014년 이전에는 12개였으나, 2014년 이후에는 행정구역 개편을 통해 청원군이 청주시에 통합되며 총 11개로 변경되었다(MOIS, 2020). 본 연구에서는 2014년 이후 변경된 행정구역의 지리정보를 반영하였다. 그림 1은 분석 대상 영역과 충북의 11개 기초 지자체의 위치 및 행정구역 구분을 보인다. 그림 1(b)에 보인 충북에 대한 3개 지역 구분은 충북 보건환경연구원에서 충북의 효율적 대기질 관리를위해 나눈 북부, 중부, 그리고 남부 지역이다.

충북의 연간 NO_x, SO_x, NH₃ 배출량은 CAPSS 2016 (NIER, 2019) 기준 각각 73,029톤, 9,067톤, 16,673톤으로, 국내 배출량의 6%, 3%, 6%를 차지한다 (그림 S1). 한편, 충북은 배출량이 상대적으로 많은 경기 및 충남과 인접해 있다. 경기의 경우 연간 NO_x 배출량이 203,655톤으로 국내 광역 지자체 중에서 가장 많으며, 충남의 경우 NO_x, SO_x, NH₃ 배출량이 충북 배출량에 비해 각각 2배, 9배, 3배 크다. 따라서, 경기와 충남의 배출이 충북 대기질에 미치는 영향이 적지 않을 것으로 예상된다.

2.2 대기질 모사 수행 방법

충북 기초 지자체별 PM_{2.5} 농도에 대한 배출 지역 별 기여도 분석을 위한 대기질 모사는 CAPSS 2016 배

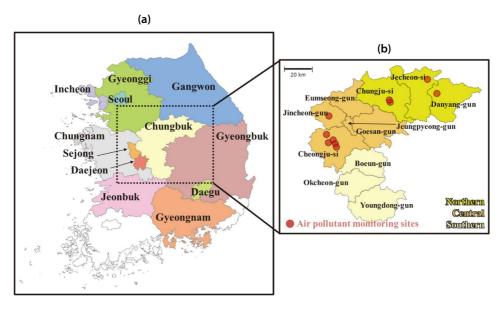


Fig. 1. A modeling domain of (a) a 3-km horizontal grid resolution, and (b) eleven local authorities in Chungbuk. Pink circles show the locations of the urban air quality monitoring sites. Mustard, orange, and light yellow areas represent the northern, central, and southern Chungbuk, respectively.

출량을 이용하는 점을 고려하여 2016년(1년)을 대상으로 27, 9, 3 km 수평해상도 격자의 모사 영역에 대해수행하였다. 27 km (174×128 격자) 모사 영역은 중국등 국외 배출 영향 분석을 위해, 9 km (71×89 격자)모사 영역은 3 km (119×173 격자)모사 영역의 경계조건을 마련을 위해 사용되었다.

대기질 모사 수행을 위해 필요한 기상 입력자료는 WRF (Weather Research and Forecasting; Skamarock et al., 2008) version 3.9.1을 이용하였다. 또한, 대기질 모사에 필요한 형태의 배출량 입력자료 마련을 위해 SMOKE (Sparse Matrix Operator Kernel Emissions; Benjey et al., 2001) version 3.1를 이용하였다. SMOKE 구동 시 이용된 국외와 국내 배출량 목록은 각각 CREATE 2015 (Comprehensive Regional Emissions inventory for Atmospheric Transport Experiment)와 CAPSS 2016이다. 대기질 모사는 CAMx (Comprehensive Air Quality Model with eXtensions) version 6.1를 이용하였으며, 기여도 분석에는 PSAT (Particulate Source Apportionment Technology) 도구를 활용하였

다. 기여도 분석에 대한 자세한 설명은 2.3절에 기술하였다. 또한, CAMx, WRF, SMOKE 모사의 자세한 옵션은 동일한 모사 자료를 이용한 동반 논문인 You *et al.* (2020)과 Kim *et al.* (2021a)을 참고할 수 있다.

2.3 PM25 및 구성성분별 기여도 분석 방법

CAMx 모델의 PSAT은 배출 지역 및 물질에 표식 (tagging)한 후, 이를 추적 (tracking)하는 방법으로 선행연구들(i.e. Kim et al., 2017a; Wei et al., 2015; Bove et al., 2014)에서도 기여도 분석을 위해 쓰인 바 있다. PSAT 결과를 통해 도출된 각 배출 지역에 대한 물질별 기여농도는 표식 지역의 배출로 인해 생성된 1차및 2차 오염물질 농도를 모두 포함한다. 본 연구에서는 PSAT 이용 시 표식 지역은 국내 160개 기초 지자체, 표식 물질은 SO_x , NO_x , NH_3 , VOC (Volatile Organic Compounds)와 1차 $PM_{2.5}$ (Primary $PM_{2.5}$)로 설정하였다. 1차 $PM_{2.5}$ 의 경우 EC (Elemental Carbon)와 POC (Primary Organic Carbon) 등을 포함하여 분석하였다. 다만, 대기질 모사 결과 분석 시 160개

모든 배출 지역의 기여도를 제시하는 것은 용이치 않아, 배출 지역은 편의상 광역 지자체 수준에서 재구분하였다. 또한, 배출 지역별 기여도는 관측 농도와의 비교를 통해 검증된 모사자료를 이용하여 선행 연구들(i.e. Kim et al., 2021a; You et al., 2020)과 같이 수용지의 행정자치 구역의 면적을 고려하여 분석하였다.

충북에 대한 배출 지역별 기여농도는 다음과 같이 4가지로 나누어 살펴보았다. 우선, 충북 자체 배출에 의한 기여농도는 '자체 기여농도(Self-contribution)' 로, 경기, 충남, 전북 등 충북의 11개 근접 지역 기여농 도는 '주변 지역 기여농도(Neighbor contribution)'로 정의하였다. 또한, 주변 지역 기여도에 포함되지 않은 국내 광역 지자체들(광주, 전남, 부산, 울산)의 기여농 도는 '그 외 국내 기여농도(Rest of South Korea contribution)'로 구분하였다. 본 연구에서 '국외 기여농도 (Foreign contribution)'는 국외 배출로 생성되는 1차 및 2차 오염물질의 농도를 뜻하며, 동반 논문들(i.e. Kim et al., 2021a; Kim et al., 2021b; You et al., 2020)과 같이 각 물질의 기본 모사 농도와 국내 모든 지자체들 의 기여농도의 차이로 산정하였다. 이에 따라 국외 기 여도는 모사 영역의 경계조건에 의한 기여농도를 포 함한다.

3. 결 과

3.1 기본 모사 수행 평가

본 절에서는 충북에 대한 대기오염물질별 모사 농도를 관측 농도와 비교하여 모사 재현성을 검토하였다. 그림 2는 대상기간 동안 충북에 위치하는 10개 도시대기측정소 평균 $PM_{2.5}$, NO_2 , SO_2 의 일평균 관측 농도와 모사 농도의 비교를 보인다. 대상 기간 평균 충북도시대기측정소 기준 $PM_{2.5}$ 관측 농도는 $26.4\,\mu\text{g/m}^3$ 이고, 모사 농도는 $28.0\,\mu\text{g/m}^3$ 으로 $1.6\,\mu\text{g/m}^3$ 가량 과대평가하였다. 한편, 일평균 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 도시대기측정망 평균 관측 농도와 모사 농도의 $PM_{2.5}$ 용도에 대한 도시대기측정망 평균 관측 농도와 모사 농도의 $PM_{2.5}$ 용도에 대한 도시대기측정망 평균 관측 농도와 모사 농도의 $PM_{2.5}$ 용도에 대한 도시대기측정망 평균 관측 농도와 모사 농도의 $PM_{2.5}$

는 각각 $12.3 \, \mu g/m^3$, 34%였다. 본 연구에서 수행한 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 수행 평가 결과는 Emery et~al. (2017)에서 제시하는 목표치를 만족하는 수준이다.

NO₂의 경우 관측 농도(20.1 ppb)에 비해 모사 농도 가 10%가량 낮았고, SO_2 는 관측 농도(3.6 ppb) 대비 30%가량 과대 모사하였다. 계절별로 살펴보면, 겨울 철에는 NO_2 과소 모사, 가을철에는 SO_2 과대 모사가두드러진다. 이러한 대기오염물질 모사 농도의 과대혹은 과소 평가는 모사에 이용된 입력 자료의 영향을받을 수 있다(Bae et al., 2017). 한편, 모사 수행 평가에 이용된 도시대기측정소 10곳은 충북 북부와 중부지역에 집중되어 있으며, 남부 지역에는 측정소가 부재하였다(그림 1). 충북 도시대기측정소별 SO_2 , NO_2 에 대한 모사 수행 평가는 그림 SO_2 , SO_3 에 대한 모사 수행 평가는 그림 SO_3 , SO_3 의 대한 결과를 이용하여 SO_3 의 지절에서는 SO_2 와 SO_2 모사 불확도를 상세히 논의하였다.

또한, 본 연구에서는 충북 내 $PM_{2.5}$ 성분 관측농도 자료가 부재하기 때문에 충북과 인접한 대전 대기환 경연구소의 관측자료를 이용하여 $PM_{2.5}$ 성분 농도에 대한 모사 수행 평가를 수행하였다(그림 S2). 다만, 대전의 성분 관측자료는 충북에 대한 기여도 분석 시에는 활용되지 않았다. 대전 대기환경연구소에서 황산염, 질산염, 암모늄 모사 농도는 관측 농도에 비해 각각 36% (1.6 μ g/m³), 76% (3.1 μ g/m³), 30% (0.9 μ g/m³) 과대 평가하였으며, 상관계수 R은 0.7이었다. 또한, 황산염, 질산염, 암모늄에 대한 NME는 각각 48.3%, 91.8%, 49.8%로 Emery et~al. (2017)에서 제시하는 각물질별 모사 수행 평가 기준을 만족하였다.

한편, Kang and Lee (2015)는 2013년 충주시 칠금동 사무소의 $PM_{2.5}$ 질량 농도 중 황산염과 질산염의 비율이 각각 21%, 20%로 나타났으나, 본 연구에서는 2016년 평균 충주시의 황산염과 질산염 비율이 21%, 31%로 나타났다. 이러한 차이는 분석 대상 기간과 지점 등에서 기인할 수 있다. 따라서, 추후 보다 정확한 충북의 $PM_{2.5}$ 구성성분별 분석을 위해서는 해당 지역에 대한 관측 자료의 확보가 필요하다.

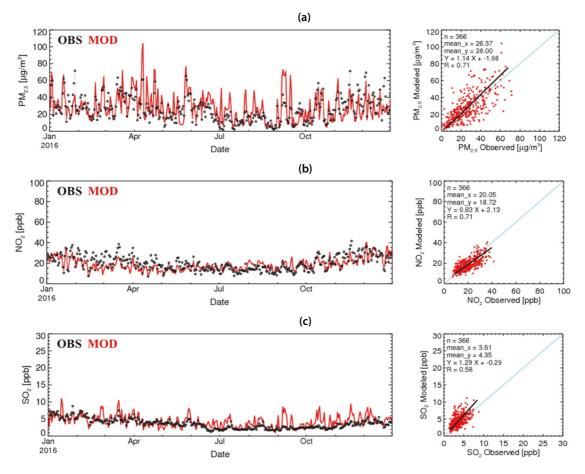


Fig. 2. Comparisons of the observed and simulated daily mean concentrations of (a) $PM_{2.5}$, (b) NO_2 , and (c) SO_2 at ten urban air quality monitoring stations in Chungbuk during the simulation period of 2016. The black dots and red lines represent the observed and simulated daily mean concentrations, respectively.

3.2 국외 및 국내 PM₂₅ 기여농도

충북의 연평균 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 국외 기여농도는 $15.3~\mu g/m^3$ 로 모사되었다. 이는 동일 조건의 모사에서 인천에 대한 국외 기여농도($20.0~\mu g/m^3$)보다는 낮고 (Kim~et~al., 2021a), 울산에 대한 국외 기여농도($11.6~\mu g/m^3$)에 비해서는 높은 수치이다. $PM_{2.5}$ 국외 기여농도를 충북 기초 지자체별로 살펴보면, 영동군에서 최소 $13.9~\mu g/m^3$, 진천군에서 최대 $16.9~\mu g/m^3$ 이었으며, 주로 중부 지역이 다른 지역에 비해 높게 나타났다(그림 3(a)와 3(c)). 충북 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 기초 지자체별 국외 기여농도의 편차는 $3.0~\mu g/m^3$ 정도였다.

충북의 연평균 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 국내 기여농도는 $10.0~\mu g/m^3$ 로 (단양군 $7.4~\mu g/m^3$ ~음성군 $12.9~\mu g/m^3$) 분석되었다. 국외 기여농도와 마찬가지로 충북 중부지역이 다른 지역에 비해 국내 기여농도 역시 $3~\mu g/m^3$ 가량 높게 나타났다(그림 3(b)와 3(c)). 충북의 경우주풍향이 서풍 계열이며(그림 S3), 배출량이 많은 충남과 수도권의 풍하 지역에 가깝기 때문에, 충북 중북지역이 다른 충북지역에 비해 국내 배출 영향을 많이받은 것으로 보인다. 주변 광역 지자체별 $PM_{2.5}$ 기여농도는 3.3절에서 논의하였다.

충북 PM25 농도에 대한 월별 국내 기여농도는 2월

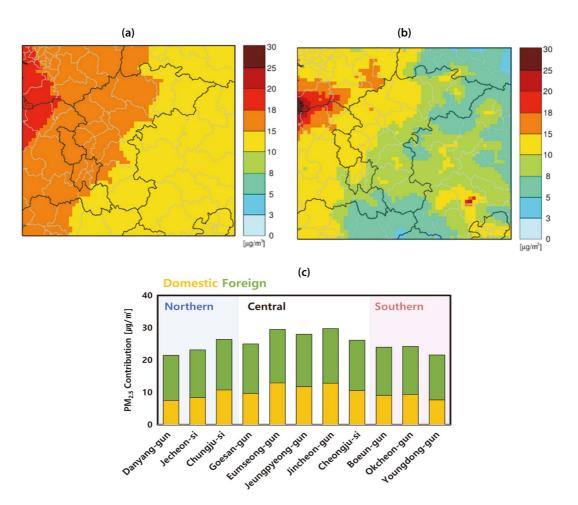


Fig. 3. Spatial distribution of the simulated annual mean $PM_{2.5}$ contributions from (a) foreign, and (b) domestic emissions. Also, (c) annual mean $PM_{2.5}$ contributions from foreign and domestic emissions in eleven local authorities in Chungbuk during the simulation period of 2016.

에 $7.9 \, \mu g/m^3$ 로 가장 낮았고 6월에 $12.7 \, \mu g/m^3$ 로 가장 높았다. 이러한 결과에서 국내 배출량의 50% 삭감을 가정할 경우, 충북의 $PM_{2.5}$ 농도는 약 $4.0 \, \mu g/m^3$ (2월) $\sim 6.8 \, \mu g/m^3$ (6월) 감소할 것으로 예상된다. 특히, 국내에서 $PM_{2.5}$ 고농도 현상이 빈번히 발생하는 겨울철 ($12\sim 2$ 월)에는 충북 $PM_{2.5}$ 농도 중 국내 기여농도가 $8.8 \, \mu g/m^3$ 으로 다른 계절에 비해 낮았다. 또한, 충북 기초 지자체별 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 국내 기여농도의 월별 편차는 11월에 $3.4 \, \mu g/m^3$ 로 가장 작았고, 4월에 $9.6 \, \mu g/m^3$ 으로 가장 컸다(그림 4).

3.3 자체 및 주변 지역 PM_{2.5} 기여농도

충북 자체 배출은 충북 전 지역의 연평균 $PM_{2.5}$ 농도를 약 $2.6~\mu g/m^3$ (연평균 대기환경기준 $15~\mu g/m^3$ 의 17%에 해당) 상승시켰으며, 이는 주변 광역 지자체의 기여농도보다 크다. 기초 지자체별로는 음성군 $(3.7~\mu g/m^3)$, 증평군 $(3.7~\mu g/m^3)$, 진천군 $(3.3~\mu g/m^3)$ 순으로 높은 자체 $PM_{2.5}$ 기여농도를 보였다. 다만, 국내 배출에 의한 충북 연평균 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 기여농도가 $10.0~\mu g/m^3$ 인 점을 감안하면, 국내 기여농도 중 타 광역 지자체의 영향이 75%가량으로 높은 것을 알 수 있다.

충북 연평균 PM25 농도에 대한 수도권 지역의 기

여농도를 살펴보면, 경기의 기여농도는 $1.9 \, \mu g/m^3$ 로, 인천 $(0.3 \, \mu g/m^3)$ 과 서울 $(0.3 \, \mu g/m^3)$ 에 비해 6배 정도 높았다. 특히, 경기의 기여농도는 충북 자체 기여농도 $(2.6 \, \mu g/m^3)$ 의 $2/3 \,$ 수준이며, 충북 북부와 중부 지역 $(i.e.\ 음성군, 충주시)$ 에서 높게 나타났다. 충북 서쪽과 서남쪽에 위치한 충남과 전북의 기여농도는 $2.5 \, \mu g/m^3$ 와 $0.3 \, \mu g/m^3$ 이었으며, 각각 이들 지역과 인접한 충북 중부와 남부 지역에서 높은 기여농도를 보였다. 특히, 충남의 $PM_{2.5}$ 기여농도는 충북 자체 기여농도와 유사한 수준으로 중요하게 작용하였으며, 기초 지자 체별로는 $1.2 \, \mu g/m^3$ (단양군)~ $4.0 \, \mu g/m^3$ (진천군) 범위

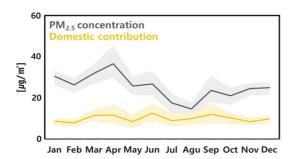


Fig. 4. Monthly variations of $PM_{2.5}$ concentrations in Chungbuk and the domestic contributions during the target period. Dark gray- and yellow-colored lines mean the average of the local authorities in Chungbuk, while light gray- and yellow-colored areas represent the minimum to the maximum range.

를 보였다. 충북 동쪽에 위치한 경북의 $PM_{2.5}$ 기여농도는 충북 평균 $0.9 \, \mu g/m^3$ 이며, 주로 충북 남부 지역에 영향을 주었다(그림 5와 6).

이를 정리하면, 충북 연평균 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 국내 광역 지자체별 기여농도는 충북(자체), 충남, 경기, 경북 순으로 높았다. 또한, 충북에 대한 충남, 경기, 경북의 $PM_{2.5}$ 기여농도의 합은 $5.3~\mu g/m^3$ 로, 이는 연평균 대기환경기준($15~\mu g/m^3$)의 35%, 자체 기여농도의 2배 이상 높았다. 따라서, 충남, 경기, 경북을 충북의 $PM_{2.5}$ 농도에 많은 영향을 미치는 주요 주변 지역 (Major neighboring province)로 볼 수 있다.

그림 6은 충북 자체 및 주변 시도의 배출에 의한 연평균 $PM_{2.5}$ 기여농도의 공간적인 분포를 보인다. 충북 자체 $PM_{2.5}$ 기여농도의 경우, 고속도로와 중소 산업단지가 위치하고 있는 것으로 알려진 한 음성군을 위주로 높게 나타났다(그림 6(a)). 증평군은 충북 기초 지자체 중 SO_x , NO_x , NH_3 , 1차 $PM_{2.5}$ 의 배출량이 가장적지만, 지리적으로 배출량이 많은 기초 지자체들에 둘러싸여 있어 진천군, 괴산군, 청주시로부터 각각0.7, 0.6, 0.3 μ g/m³의 영향을 받아 충북 전체 기여농도는 3.7 μ g/m³로 높았다(표 S1). 따라서, 충북의 $PM_{2.5}$ 농도 저감을 위해서는 광역 지자체간 기여농도뿐 아니라 지역 내 배출원~수용지 간의 상호 기여농도를함께 고려한 대기질 개선 정책 마련이 필요하다.

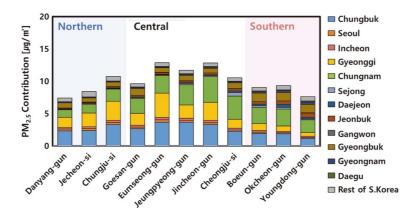


Fig. 5. The self- and inter-provincial contributions to the annual mean PM_{2.5} concentrations in eleven local authorities in Chungbuk during the simulation period of 2016.

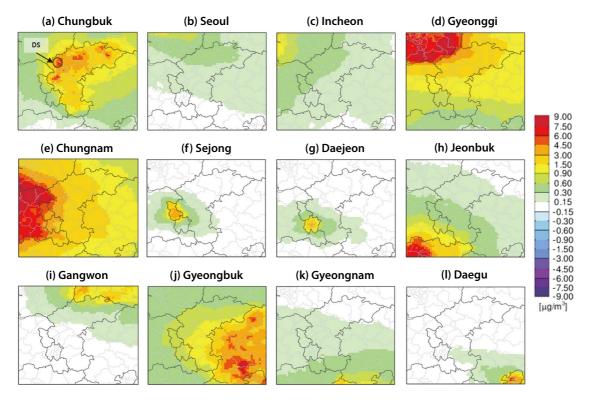


Fig. 6. The contributions of (a) Chungbuk, (b) Seoul, (c) Incheon, (d) Gyeonggi, (e) Chungnam, (f) Sejong, (g) Daejeon, (h) Jeonbuk, (i) Gangwon, (j) Gyeongbuk, (k) Gyeongnam, and (l) Daegu to the annual mean PM_{2.5} in Chungbuk during the period of 2016. Also, the acronym DS stands for Daeso-myeon, Eumseonng-gun.

3.4 PM₂₅ 고농도일 기여도

본 절에서는 충북 기초 지자체별로 일평균 PM_{2.5} 농도 수준별 자체 및 주요 주변 지역(충남, 경기, 경북)의 기여농도를 분석하기 위해 '일평균 PM_{2.5} 농도 35 μg/m³'을 기준으로 살펴보았다. 일평균 PM_{2.5} 농도 가 35 μg/m³을 초과하는 날을 'PM_{2.5} 고농도일'로 정의할 경우, 충북 PM_{2.5} 고농도일 동안 기여농도는 충남(4.6 μg/m³)>충북(3.8 μg/m³)>경기(3.1 μg/m³)> 경북(0.8 μg/m³) 순으로 나타났다(그림 7). 특히, 충남, 자체, 그리고 경기의 기여농도는 일평균 PM_{2.5} 농도가 35 μg/m³ 이하인 기간에 비해 고농도일 동안 각각 3.0 μg/m³ (1.7배), 1.7 μg/m³ (1.1배), 1.6 μg/m³ (0.8배) 증가하였다. 충북과 충남, 경기의 기여농도 증가는 음성 군, 증평군과 같이 고농도일 발생이 빈번한 기초 지자체에서 두드러졌다. 반면, PM_{2.5} 고농도 발생 시 경북

의 기여농도는 일평균 $PM_{2.5}$ 농도가 $35 \mu g/m^3$ 이하인 기간에 비해 $0.2 \mu g/m^3$ 감소하였다. 이에 따라, 충북 $PM_{2.5}$ 고농도일에는 자체 및 주요 주변 지역 중 경북을 제외한 충북, 충남, 경기 배출 관리의 중요성이 증가하는 것을 알 수 있다.

충북 $PM_{2.5}$ 농도 구간별 자체와 경기의 기여농도는 $PM_{2.5}$ 농도 구간에 따라 각각 국내 기여농도의 27~29%, $13\sim17\%를$ 차지하며, 일정한 비율을 유지하였다 (그림 8). 이처럼 국내 기여농도 중 충북과 경기의 기여농도 비율의 변화가 적은 것은 충북과 경기의 배출 관리를 통한 충북의 대기질 개선 효과는 $PM_{2.5}$ 농도 수준에 구애받지 않고 꾸준히 나타날 것을 의미한다. 반면, 충북에 대한 국내 기여농도 중 경북의 기여농도는 충북의 일평균 $PM_{2.5}$ 농도가 높아질수록 감소하였고 $(35 \mu g/m^3 \circ)$ 하인 경우: 13%, $75 \mu g/m^3 \circ)$ 하인 경우:

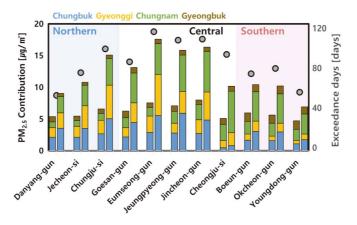


Fig. 7. Self- and major neighboring provincial contributions on the annual mean $PM_{2.5}$ concentrations in eleven local authorities in Chungbuk during the simulation period of 2016. Paired stacked bars per each local authority represent the self- and major neighboring provincial $PM_{2.5}$ contributions when the daily average $PM_{2.5}$ concentration is lower or equal (left) and higher (right) than 35 μ g/m³. Gray circles are the number of exceedance days (daily mean $PM_{2.5}$ concentrations > 35 μ g/m³).

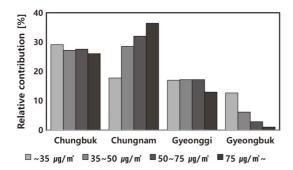


Fig. 8. The relative domestic contributions of emissions from Chungbuk, Chungnam, Gyeonggi, and Gyeongbuk to the daily mean $PM_{2.5}$ concentrations in Chungbuk during the simulaiton period of 2016. The relative contributions were separately estimated for four groups divided with the daily mean $PM_{2.5}$ concentrations of less than 35, 35 \sim 50, 50 \sim 75, and over 75 µg/m³, respectively.

1%), 충남의 기여농도는 일평균 $PM_{2.5}$ 농도가 35 $\mu g/m^3$ 이하인 경우 18%이고, 75 $\mu g/m^3$ 을 초과하는 경우에는 2배 이상 증가하였다. 이와 같이 충북 $PM_{2.5}$ 고 농도일에는 국내 배출 지역 중 자체와 경기, 충남의기여농도가 유의미하게 작용하기 때문에, 충북의 단기적인 대기질 개선을 위해서는 자체뿐 아니라 경기, 충남과 협력 체계 마련이 필요해 보인다.

그림 9는 위에서 언급된 내용을 정리한 것이다. 충

북 PM_{2.5} 농도에 대한 자체 및 주요 주변 지역 기여농 도의 합은 PM₂₅ 고농도일 동안 12.3 μg/m³으로 연평 균 기여농도 7.9 μg/m³에 비해 1.5배가량 높아졌고, 일 평균 PM25 농도가 35 µg/m3 이하인 날에 대한 기여농 도(6.2 µg/m³)보다 2배 정도 높았다. 충북 기초 지자 체별 연평균 PM_{2.5} 농도에 대해 기여농도가 가장 높 은 광역 지자체를 살펴보면, 충북 북부 지역과 괴산군, 증평군은 자체, 그리고 충북 남부 지역과 청주시와 진 천군의 경우 충남으로 분석되었다. 또한, 음성군은 국 내 광역 지자체 중 경기의 기여농도가 가장 컸다(그 림 9(a)). 충북의 일평균 PM₂₅ 농도가 35 μg/m³ 이하 인 경우, 음성군과 진천군에 대해 충북이 가장 높은 기여농도를 보이는 점을 제외하면, 다른 기초 지자체 에서는 연평균적으로 높은 기여농도를 보인 지역과 동일하였다(그림 9(b)). PM2.5 고농도일 동안에는 청 주시와 제천시에서도 경기의 기여농도가 가장 높았으 며, 충남의 기여농도는 괴산군에서도 가장 높게 나타 났다(그림 9(c)). 이처럼, 충북 PM_{2.5} 고농도 시기에는 평상시보다 자체 기여농도에 비해 충남과 경기의 기 여농도가 더욱 중요하게 작용한 기초 지자체가 증가 하였다.

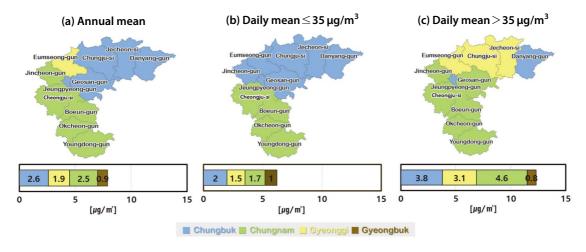


Fig. 9. The primary provinces that show the highest $PM_{2.5}$ contributions during (a) the year, (b) low or equal $PM_{2.5}$ days (\leq 35 μ g/m³), and (c) high $PM_{2.5}$ days (\geq 35 μ g/m³) for each local authority in Chungbuk during the simulation period of 2016. Bar plots represent the averaged annual mean $PM_{2.5}$ contributions of Chungbuk and three major neighboring provinces, respectively.

3.5 PM_{2.5} 구성성분별 기여농도

효과적인 $PM_{2.5}$ 농도 관리를 위해서는 $PM_{2.5}$ 의 주요 구성성분인 황산염, 질산염, 암모늄, 1차 $PM_{2.5}$ 등에 대한 이해가 선행되어야 한다. 이에 본 절에서는 충북의 $PM_{2.5}$ 주요 구성성분에 대한 국내 광역 지자체별기여농도를 분석하였다. 2차 유기 탄소의 경우 $PM_{2.5}$ 농도 계산 시에는 고려하였으나, 모사 재현성이 낮아배출 지역별 상세 기여도 분석에서는 제외하였다. 추후 2차 유기 탄소의 모사 재현성 향상을 위해서는 VBS (Volatile Basis Set) 이용 및 국내외 VOC 배출량고도화 등에 대한 고려가 필요하다(Zhao $et\ al.$, 2015; Koo $et\ al.$, 2014).

충북 황산염에 대한 국내 기여농도는 약 $1.0 \, \mu g/m^3$ 이었으며, 이 중 충남의 기여농도가 $0.4 \, \mu g/m^3$ 로 가장 높았다. 특히, 충북 기초 지자체별 충남의 황산염 기여 농도는 $0.3 \, \mu g/m^3$ (단양군)~ $0.5 \, \mu g/m^3$ (진천군)로, 주로 중부 지역에서 높았다(그림 10). 충북 질산염에 대한 국내 기여농도는 $3.8 \, \mu g/m^3$ 이며, 이 중 충남의 기여 농도가 $1.0 \, \mu g/m^3$ 로 가장 높았다. 다만, 충북 북부 지역에 대해서는 충남보다 경기의 질산염 기여농도가 $0.5 \, \mu g/m^3$ 가량 더 높았다. 충북 암모늄 농도에 대한 국

내 기여농도는 $3.3 \mu g/m^3$ 이고, 자체 기여농도가 $1.5 \mu g/m^3$ 로 가장 높았다. 또한, 충북 암모늄에 대한 자체 기여농도는 주로 중부 권역에서 높았다. 충북 1차 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 국내 기여농도는 $1.9 \mu g/m^3$ 이었으며, $PM_{2.5}$ 구성성분 중 자체 기여율이 $32\% (0.6 \mu g/m^3)$ 로 가장 높았다. 1차 $PM_{2.5}$ 의 기여농도가 자체 지역에서 가장 높게 나타나는 것은 1차 대기오염물질의 특성으로, 동반 논문(Kim et al., 2021b; You et al., 2020)과 기존 연구(Kang et al., 2021; Kim et al., 2017a, b)에서도 확인가능하다. 또한, 충북의 황산염, 질산염, 암모늄, 1차 $PM_{2.5}$ 에 대한 국내 광역 지자체별 공간적인기여농도 분포는 그림 $S4\sim S7$ 을 참고할 수 있다.

그림 11은 충북 기초 지자체에 대한 월별 각 배출 지역의 물질별 최대, 최소 기여농도의 범위와 평균 값을 나타낸다. 충북 황산염에 대한 배출 지역별 기여농도는 여름(6~8월)에 증가하였으며, 이는 여름철 광화학 반응 증가로 인해 액상 및 기체상 산화에 의한 황산염의 생성이 증가한 탓으로 사료된다(Choi et al., 2012; Song et al., 2001). 충북 질산염에 대한 배출 지역별 기여농도는 온/습도 등 기상 조건으로 인해 봄(3~5월)과 가을(9~11월)에 주로 증가하였다(Seinfeld

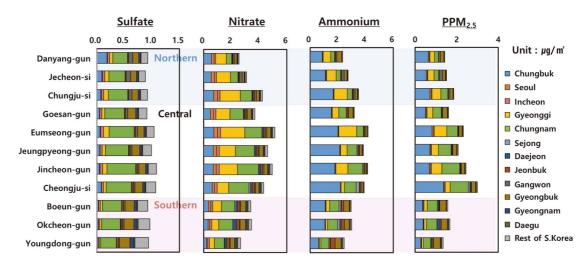


Fig. 10. The self- and inter-privincial contributions to the annual mean sulfate, nitrate, ammonium, and primary PM_{2.5} concentrations in the local authorities in Chungbuk during the simulation period of 2016.

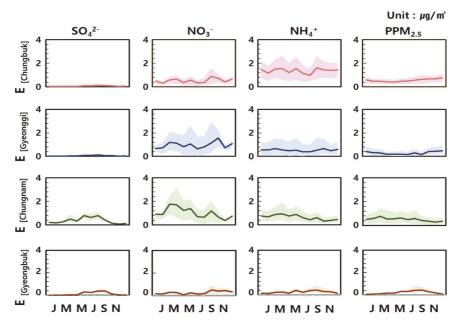


Fig. 11. Monthly contributions of emissions released from Chungbuk (top), Gyeonggi (upper middle), Chungnam (lower middle), and Gyeongbuk (bottom) to sulfate, nitrate, ammonium, and primary $PM_{2.5}$ concentrations of Chungbuk for 2016.

and Pandis, 1998). 이러한 황산염과 질산염 농도의 계절 변동성은 기존 연구들에서도 보고된 바 있다(Kim *et al.*, 2021b; Heo *et al.*, 2009).

충북의 황산염, 질산염, 1차 PM_{2.5}에 대한 자체 기여

농도는 각각 여름 $(0.1 \, \mu g/m^3)$, 가을 $(0.7 \, \mu g/m^3)$, 겨울 $(0.6 \, \mu g/m^3)$ 에 가장 높게 모사되었다. 경기의 황산염, 질산염, 1차 $PM_{2.5}$ 기여농도 또한 여름 $(0.1 \, \mu g/m^3)$, 가을 $(1.2 \, \mu g/m^3)$, 겨울 $(0.4 \, \mu g/m^3)$ 에 가장 높았다. 반면,

충남의 기여농도는 황산염을 제외하면 서풍이 주풍향인 봄철에 가장 높았고, 경북의 기여농도는 상대적으로 동풍의 빈도가 증가하는 가을철에 가장 높았다(그림 S8). 이처럼, 충북으로 유입되는 배출 지역별 기여농도는 계절별 주풍향에 따라 달라질 수 있다. 한편, 최근 발표된 CAPSS 2017은 CAPSS 2016에 비해 충북의 NO_x와 SO_x 배출량이 각각 7% (5,400톤), 6% (535톤)가량 감소하는 등 배출목록에 따라 배출량에 차이가 존재하였다. 따라서, 대기질 모사에 이용되는 배출 량목록에 따라 배출 지역별, 물질별 기여농도는 본 연구에서 제시하는 수치와 차이를 보일 수 있다.

3.6 충북 배출량 평가

본 연구에서 제시한 배출 지역별 기여농도는 대기 질 모사를 기반으로 산정되었으며, 이에 본 절에서는 모사 결과의 불확도를 평가하기 위하여 관측 농도와 비교 및 분석하였다. 다만, 충북 기초 지자체 중 대기 질 측정소가 위치하고 있는 5곳에 한해 수행하였다. 그림 $12(a)\sim(c)$ 는 각각 $PM_{2.5}$, NO_2 , SO_2 의 Normalized Mean Bias (= $\frac{\text{모사 농도-관측 ks}}{\text{관측 ks}}$ × 100%, 이 관측 농도

하 NMB)을 나타낸다. 양(+)의 값은 과대 모사, 음 (-)의 값은 과소 모사를 의미하며, NMB가 0에 수렴할 수록 관측과 모사 농도가 유사한 것으로 해석할 수 있 다.

충북 PM_{2.5} 농도에 대한 NMB는 2% (청주시)~19%

(단양군) 수준으로 분석되었다. 이에 따라 본 연구에 서 제시한 충북에 대한 배출 지역별 PM25 기여농도 는 실제보다 과대 산정되었을 가능성이 있다. 향후 더 나은 PM, 5의 모사 재현성 확보를 위해서는 PM, 5가 2차 대기오염물질인 점을 고려하여, 국내 전구물질의 불확도뿐 아니라 국외 유입 영향에 대한 평가가 필요 해 보인다. 국외 기여농도의 불확도는 백령도 대기환 경연구소 지점의 대기오염 농도가 상당 부분 국외 영 향을 받는다는 점 (Nam et al., 2019; Ban et al., 2018) 을 고려하여, 해당 지점의 모사 재현성 검토를 평가하 였다. 대상 기간 동안 백령도 대기환경연구소의 PM25 연평균 관측 농도는 24.4 µg/m³이었으나, 모사 농도는 이보다 11% (2.8 μg/m³) 낮았다. 다만, 국내 동남쪽에 위치한 지자체일수록 국외 기여농도가 낮아지는 점을 감안하면(Bae et al., 2020), 충북에 대한 국외 유입 영 향과 불확도는 이보다 낮을 것으로 예상된다. 또한, 본 연구에서 제시된 국외 기여농도 불확도에 대한 자세 한 내용은 동반 논문인 Kim et al. (2021a)을 참고할 수 있다.

한편, NO_2 와 SO_2 는 1차 대기오염물질로, 해당 물질에 대한 모사 불확도는 국외보다는 국내 배출량으로부터 기인했을 가능성이 높다. 충북 기초 지자체별 NO_2 농도에 대한 NMB는 단양군에서 112%로 가장크게 나타났다. 단양군에는 시멘트 제조관련 배출원으로 인해 NO_x 배출이 많은 것으로 알려져 있으나 (Kim $et\ al.$, 2020), 해당 지역에서 과대 모사하는 점을

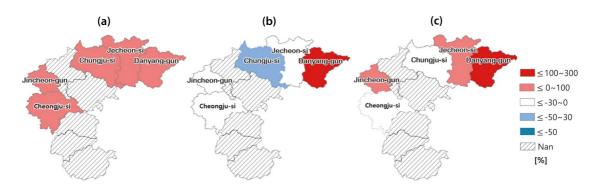


Fig. 12. The spatial distributions of NMB (%) for the annual mean (a) $PM_{2.5}$, (b) NO_{2} , and (c) SO_{2} concentrations simulated with the CAPSS 2016. Only local authorities with available observation data were represented.

고려하면 CAPSS 2016에서 단양군의 배출량이 실제 배출량에 비해 과대 평가된 것으로 보인다. 특히, 단양 군에서는 여름철 동안 3배 이상 과대모사를 보였다 (그림 S9). 이에 반해, 충주시에서는 NO_2 의 NMB가 -44%로 과소 모사되고 있어, 누락 배출량 존재 가능성이 있다.

 SO_2 농도에 대한 NMB는 단양군에서 202%로 가장 크게 나타나, 해당 지역에 대한 배출량 과대 평가가 의심된다. 특히, 단양군은 충북 SO_2 배출량의 63%를 차지하는 주요 배출 지역으로, 단양군 SO_2 배출량의 불확도는 해당 지역뿐 아니라 충북 전체 배출량에 대한 기여도의 불확도로 이어질 수 있다. 또한, 단양군과 같이 SO_2 농도에 대한 NMB가 양의 값을 보이는 제천시, 진천군에 대해서도 배출량 과대 산정 가능성에 대한 검토가 필요하다. 반면, SO_2 모사 농도가 과소 평가되고 있는 청주시와 충주시에 대해서는 누락 배출량에 대한 검토가 필요하다.

특히, 충북에서는 CAPSS 2016 기준 생물성 연소 부문이 충북 전체 배출량의 약 19%가량을 차지하며, 충주시의 경우 PM_{2.5} 배출원 중 생물성 연소 부문이 가장 많은 비율을 차지하는 것으로 알려져 있다(Chungju, 2020). 그러나, 선행 연구들(i.e. Park et al., 2015a, b; Jung and Kwon., 2015; Jung et al., 2012)에서 생물성 연소 부문에 대한 배출 계수와 누락 배출량에 대한 재산정 필요성이 보고되고 있다. 이를 고려하면 충북의 해당 배출 부문에 대한 배출량 검증 또한 필수적인 것으로 보인다. 또한, 충북 면적의 약 15%가 농경지이므로 농업 활동으로 인한 배출량이 상당할 것으로 예상되는 바, 추후 NH₃ 관측 자료 확보를 통한 NH₃ 배출량 검토 또한 필요해 보인다.

한편, 모사된 NO_2 와 SO_2 의 불확도는 배출량뿐 아니라 물질이 배출되는 고도와 배출 오염원(점, 선, 면) 구분에서 기인할 수도 있다(Ju et~al., 2019; Kim et~al., 2017b). 이를 고려하면 충북은 현재 NO_2 배출량의 18%, SO_2 배출량의 29%가 점 오염원으로 할당되어 있으나, 점과 면 형태의 배출량 비율과 점 오염원의 배출 고도 등에 대한 전반적인 검토가 필요하다.

이에 따라, 향후 대기질 모사를 활용한 국가배출목록 기반의 배출량 저감 정책 수립 및 평가에 앞서 기초 지자체 단위의 정확한 배출량과 배출 형태 등에 대한 이해와 검토가 요구된다. 또한, 2016년에는 한 지역 내에서 다수의 측정소가 위치한 곳은 청주시와 충주시뿐이나 최근 충북 내 측정소가 확충된 점(2021년 3월 기준 29개)을 고려하면, 최근 연도에 대해 분석할경우 모든 충북 기초 지자체에 대한 NMB 분석과 특정 기초 지자체 내 NMB 편차에 대해서도 분석이 가능할 것으로 보인다.

4. 결 론

본 연구에서는 충북 11개 기초 지자체의 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 국내외 및 국내 광역 지자체 배출의 기여농도를 2016년을 대상으로 분석하였다. 이를 위해 CAPSS 2016을 기반으로 표식 방법을 이용하여 대기질 모사를 수행하였다. 충북 전 지역에 대한 국외 $PM_{2.5}$ 기여농도는 연평균 15.3 $\mu g/m^3$ 로 모사되었으며, 기초 지자체별로는 영동군에서 13.9 $\mu g/m^3$ 로 가장 낮았고, 진천군에서 16.9 $\mu g/m^3$ 로 가장 높았다. 충북에 대한 국내 $PM_{2.5}$ 기여농도의 경우 연평균 10.0 $\mu g/m^3$ (7.9 $\mu g/m^3$, 2월~12.7 $\mu g/m^3$, 6월)로 분석되었고, 기초지차별로는 최대 5 $\mu g/m^3$ 차이를 보였다. 이처럼, 국내 대기오염 배출량 삭감에 의한 $PM_{2.5}$ 저감 농도는 해당 기간의 기상 조건과 지역별 배출 및 지리적 특성에 따라 차이를 보일 수 있다.

국내 광역 지자체별 기여농도는 충북 자체 기여농도가 충북 전 지역 평균 $2.6\,\mu g/m^3$ 이었으며, 기초 지자체별로는 $1.2\,\mu g/m^3$ (영동군)~ $3.7\,\mu g/m^3$ (음성군)의 범위를 보였다. 충북 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 주요 주변 지역들의 연평균 기여농도는 충남 $(2.5\,\mu g/m^3)$ > 경기 $(1.9\,\mu g/m^3)$ > 경북 $(0.9\,\mu g/m^3)$ 순으로 컸으며, 충남의 기여농도는 자체 기여농도와 유사한 수준이었다. 특히, $PM_{2.5}$ 고농도 시기일수록 자체 및 주요 주변 지역의기여농도의 합이 증가하였으나(일평균 $35\,\mu g/m^3$ 이

하, $6.2 \, \mu g/m^3 \rightarrow 9 \, \forall 35 \, \mu g/m^3 \, \dot{z}$ 과, $12.3 \, \mu g/m^3$), 경북의 기여농도는 오히려 감소하였다. 또한, 일평균 $PM_{2.5}$ 농도가 증가할수록 충북 자체 기여농도보다는 경기와 충남의 기여농도가 가장 큰 충북 기초 지자체가 4곳에서 9곳으로 증가하였다. 이를 고려하면, 충북의 장기적인 대기질 관리를 위해서는 자체와 주요 주변 지역의 협력이 필요하며, 특히 고농도 관리 시에는 경북을 제외한 자체와 주요 주변 지역의 배출 관리가 중요하다.

 $PM_{2.5}$ 성분 중 암모늄, 1차 $PM_{2.5}$ 의 경우에는 국내 광역 지자체 중 자체 기여농도가 가장 높았으나, 질산 염과 황산염의 경우에는 충남의 기여농도가 가장 높았다. 다만, 계절별 주풍향에 따라 충북에 대해 물질별로 기여농도가 가장 큰 배출 지역이 변하기도 하였다. 따라서, 미국에서 청정대기법(Clean Air Act)의 선린조항(Good neighbor provision)을 통해 상호 대기질 영향을 미치는 지방 정부들이 협력을 도모하는 것과 같이, 충북의 대기질 관리를 위해서는 주변 광역 지자체간 통합 관리 제도의 시행이 필요해 보인다.

한편, 모사결과의 불확도는 이용된 모델 및 여러 입 력자료로부터 기인될 수 있다. 이에 본 연구에서는 기 상 요소에 대한 모사수행평가를 진행하였으며, 모사 와 관측 농도의 비교를 통해 배출량 입력자료의 불확 도를 평가하여 지역 배출 특성을 반영할 수 있는 배출 입력자료의 필요성을 설명하였다. 분석 결과 충북 기 초 지자체별 NO2와 SO2의 NMB 값은 각각 -45% (충 주시)~112% (단양군), -1% (청주시)~202% (단양군) 로, 모사 불확도를 보였다. 이에 따라 본 연구에서 도 출한 충북 $PM_{2.5}$ 및 $PM_{2.5}$ 구성 물질에 대한 지역별 기여농도는 실제 수치와 차이를 보일 수 있다. 향후 보다 정확한 대기오염물질 농도에 대한 이해와 기여 도 분석을 위해서는 충북 및 주요 주변 지역에 대한 배출량 및 배출 형태에 대한 검토와 개선이 요구된다. 다만, 본 연구는 2016년에 대해 대기질 모사를 수행하 여 분석하였으나, 대상 기간 동안 충북 내 성분 관측 소의 부재와 일부 지자체에 도시대기측정망이 한정되 어 모사자료의 검증과 해석이 제한적이었다. 최근 충

북 내 측정소가 확충되고 있는 점과 국내외 배출 저감 노력으로 인해 국내 $PM_{2.5}$ 농도가 변화하고 있는 점을 고려하면 추후 최근 연도에 대한 분석 또한 필요해보인다.

감사의 글

본 연구는 국가미세먼지정보센터 및 환경부 「기후 변화특성화대학원사업」의 지원으로 수행되었으며, 이 에 감사를 드립니다.

References

- Bae, C.H., Kim, E., Kim, B.-U., Kim, H.C., Woo, J.-H., Moon, K., Shin, H.-J., Song, I.H., Kim, S. (2017) Impact of Emission Inventory Choices on PM₁₀ 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). https://doi.org/10.5572/KOSAE.2017.33.5.497
- Bae, M., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2020) 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
- Ban, J., Park, T., Park, S.M., Shin, H.-J., Lim, Y.-J., Choi, J., Lee, M.-D., Lee, S.-B., Kim, J., Lee, T. (2018) The lonic Composition and Acidity of PM_{2.5} at Baengnyeong Island during the High Concentration Episodes (2013-2014), Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 34(6), 780-791, (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.6.780
- 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.
- Bove, M.C., Brotto, P., Cassola, F., Cuccia, E., Massabò, D., Mazzino, A., Piazzalunga, A., Prati, P. (2014) An integrated PM_{2.5} source apportionment study: Positive Matrix Factorisation vs. the chemical transport model CAMx, Atmospheric Environment, 94, 274-286. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.05.039
- Choi, J., Park, R.J., Lee, H.-M., Lee, S., Jo, D.S., Jeong, J.I., Henze, D.K., Woo, J.-H., Ban, S.-J., Lee, M.-D., Lim, C.-S., Park,

- M.-K., Shin, H.J., Cho, S., Peterson, D., Song, C.-K. (2019) Impacts of local vs. trans-boundary emissions from different sectors on PM_{2.5} exposure in South Korea during the KORUS-AQ campaign, Atmospheric Environment, 203, 196-205. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.02.008
- Choi, J.-K., Heo, J.-B., Ban, S.-J., Yi, S.-M., Zoh, K.-D. (2012) Chemical characteristics of PM_{2.5} aerosol in Incheon, Korea, Atmospheric Environment, 60, 583-592. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.06.078
- Chungju, https://www.chungju.go.kr/www/selectBbsNttView. do?key=3011&bbsNo=240&nttNo=247798 (Accessed on 12, Mar, 2021).
- Emery, C., Liu, Z., Russell, A.G., Odman, M.T., Yarwood, G., Kumar, N. (2017) Recommendations on statistics and benchmarks to assess photochemical model performance, Journal of the Air and Waste Management Association, 67(5), 582-598. https://doi.org/10.1080/1096224 7.2016.1265027
- Heo, J.-B., Hopke, P.K., Yi, S.-M. (2009) Source apportionment of PM_{2.5} in Seoul, Korea, Atmospheric Chemistry and Physic, 9(14), 4957-4971. https://doi.org/10.5194/acp-9-4957-2009
- Ju, H., Yoo, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2019) Impact of Stack Parameters on Modeled PM_{2.5} Conversion Rates: A Case Study of Chungnam during the KORUS-AQ 2016, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 35(5), 593-608, (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.5572/KOSAE.2019.35.5. 593
- Jung, J., Kwon, O.-Y. (2015) GHG-AP Integrated Emission Inventories and Per Unit Emission in Biomass Burning Sector of Seoul, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 31(1), 83-91, (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.5572/KOSAE.2015.31.1.
- Jung, N.-E., Jo, M.-R., Heo, S.-H., Kim, H.-C., Park, J.-M., Lee, D.-G., Hong, J.-H., Lee, S.-J., Lee, Y.-J. (2012) Estimation of Particulate Matter Emission Factors from Open Burning, Korean Society for Atmospheric Environment, 28(3), 348-356, (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.5572/KOSAE.2012.28.3.348
- Kang, B.-W., Lee, H.S. (2015) Source Apportionment of Fine Particulate Matter (PM_{2.5}) in the Chungju City, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 31(5), (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.5572/KOSAE.2015.31.5.437
- 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, (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.5572/KOSAE. 2021.37.1.017
- Kim, H.C., Bae, C., Bae, M., Kim, O., Kim, B.-U., Yoo, C., Park, J., Choi, J., Lee, J., Lefer, B., Stein, A., Kim, S. (2020) Space-Borne Monitoring of NO_x Emissions from Cement Kilns in South Korea, Atmosphere, 11, 881. https://doi.org/10.3390/atmos11080881
- Kim, H.-S., Kim, J.-M., Sohn, J.-J. (2012) An Analysis of MODIS Aerosol Optical Properties and Ground-based Mass Concentrations in Central Korea in 2009, Journal of the Korean earth science society, 33, 269-279, (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.5467/JKESS. 2012.33.3.269
- Kim, S., Bae, C., Kim, B.-U., Kim, H.C. (2017a) PM_{2.5} Simulations for the Seoul Metropolitan Area: (I) Contributions of Precursor Emissions in the 2013 CAPSS Emissions Inventory, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 33(2), 139-158, (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.5572/kosae.2017.33.2.139
- Kim, S., Bae, C., Yoo, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Moon, N. (2017b) PM_{2.5} Simulations for the Seoul Metropolitan Area: (II) Estimation of Self-Contributions and Emission-to-PM_{2.5} Conversion Rates for Each Source Category, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 33(4), 377-392, (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.5572/kosae.2017.33.4.377
- Kim, S., 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, 37(2), 144-168, (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.1.144
- Kim, E., You, S., Bae, M., Kang, Y.-H., Son, K., Kim, S. (2021b). Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (IV) Jeolla-buk-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.
- Koo, B., Knipping, E., Yarwood, G. (2014). 1.5-Dimensional volatility basis set approach for modeling organic aerosol in CAMx and CMAQ, Atmospheric Environment, 95, 158-164. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.06.
- Korea Meteorological Administration (KMA) (2021) https://data.

- kma.go.kr/climate/ObsValSearch/selectObsValSearchWindRose.do?pgmNo=161 (Accessed on, 9 June, 2021).
- Korean Statistical Information Service (KOSIS) (2020) Statistics of Residence Registration Population (in Korean).
- Lee, D., Choi, J.-Y., Myoung, J., Kim, O., Park, J., Shin, H.-J., Ban, S.-J.,
 Park, H.-J., Nam, K.-P. (2019) Analysis of a Severe PM_{2.5}
 Episode in the Seoul Metropolitan Area in SouthKorea
 from 27 February to 7 March 2019: Focused on Estimation of Domestic and Foreign Contribution, Atmosphere, 10, 756. https://doi.org/10.3390/atmos1012
- Ministry Of Environment (MOE) (2019) https://www.me.go.kr/cleanair/cleanair/read.do?boardId=1376900&board MasterId=747 (Accessed on 13, April, 2021).
- Ministry Of Environment (MOE) (2020) https://www.me.go.kr/cleanair/sub03.do (Accessed on 13, April, 2021).
- Ministry of the Interior and Safety (MOIS) (2020) Administrative districts and populations of local governments.
- Nam, K.-P., Lee, D.-G., Jang, L.-S. (2019) Analysis of PM_{2.5} Concentration and Contribution Characteristics in South Korea according to Seasonal Weather Patterns in East Asia: Focusing on the Intensive Measurement Periods in 2015, Journal of Environmental Impact Assessment, 28, 183-200. (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.14249/eia.2019.28.3.183
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2019) https://airemiss.nier.go.kr/module/statistics/materialStatistics.
 do?siteId=airemiss&id=airemiss_030200000000
 (Accessed on 10, May, 2021).
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2020) Annual Report of Ambient Air Quality in Korea (in Korean).
- Park, S.K., Choi, S.J., Kim, D., Kim, D.Y., Jang, Y.K., Jeon, E.C. (2015a) Emission Characteristics of Air Pollutants and Black Carbon from Wood Stove and Boiler, Journal of Climate Change Research, 6(1), 41-47, (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.15531/KSCCR. 2015.6.1.41
- Park, S.K., Lyu, K.J., Choi, S.J., Kim, D.K., Kim, D.Y., Jang, Y.K. (2015b) Emission of Airbone Pollutants from Traditional Korean Fireplace, Journal of Climate Change Research, 6(2), 113-119, (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.15531/KSCCR.2015.6.2.113
- Seinfeld, J.H., Pandis, S.N. (1998) Atmospheric Chemistry and Physics. John Wiley and Sons, New York.
- Skamarock, W.C., Klemp, J.B., Dudhia, J., Gill, D.O., Barker, D.M.,

- Duda, M.G., Huang, X., Wang, W., Powers, J.G. (2008) A description of the advanced research WRF version 3. NCAR Tech, Note NCAR/TN-475+STR, National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO, 125.
- Son, K., You, S., Kim, H.C., Kim, B.-U., Kim, S. (2020) Inter-comparisons of Spatially Interpolated Short-term and Long-term PM_{2.5} Concentrations of Local Authorities in South Korea 2015-2017, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 36(2), 185-197, (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.5572/KOSAE. 2020.36.2.185
- Song, X.-H., Polissar, A.V., Hopke, P.K. (2001) Sources of fine particle composition in the northeastern US, Atmospheric Environment, 35(31), 5277-5286. https://doi.org/10. 1016/S1352-2310(01)00338-7
- Wei, W., Peng, W., Xin, M. (2015) A Study of High Spatial Resolution Source Apportionment by Using CAMx-PSAT, International Proceedings of Chemical, Biological and Environmental Engineering, 84(1). 10.7763/IPCBEE. 2015.V84.1
- You, S.H., Bae, C.H., Kim, H.C., Yoo, C., Kim, S.T. (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, (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.6.
- Zhao, B., Wang, S., Donahue, N.M., Chuang, W., Hildebrandt Ruiz, L., Ng, N.L., Wang, Y., Hao, J. (2015). Evaluation of onedimensional and two-dimensional volatility basis sets in simulating the aging of secondary organic aerosol with smog-chamber experiments, Environmental Science and Technology, 49(4), 2245-2254. https:// doi.org/10.1021/es5048914

Authors Information

손규원(아주대학교 환경공학과 석사과정) 강윤희(아주대학교 환경연구소 연구조교수) 유승희(아주대학교 환경공학과 박사과정) 김은혜(아주대학교 환경연구소 연구원) 배민아(아주대학교 환경공학과 박사과정) 김순태(아주대학교 환경양학과 박사과정)

Supplementary Materials

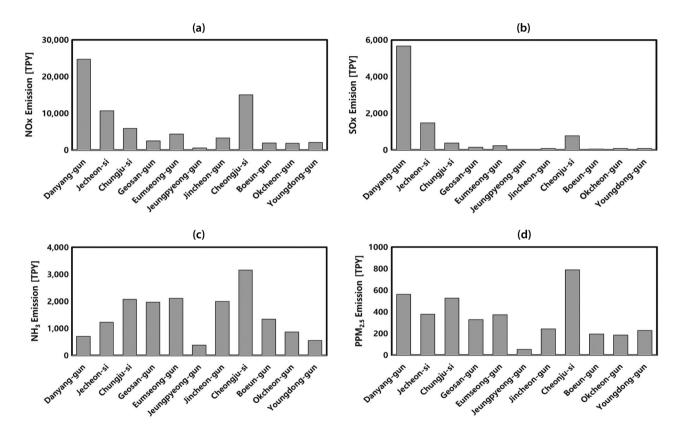


Fig. S1. Annual emissions of (a) NO_x (b) SO_x (c) NH₃, and (d) PPM_{2.5} from the eleven local authorities in Chungbuk based on the CAPSS 2016.

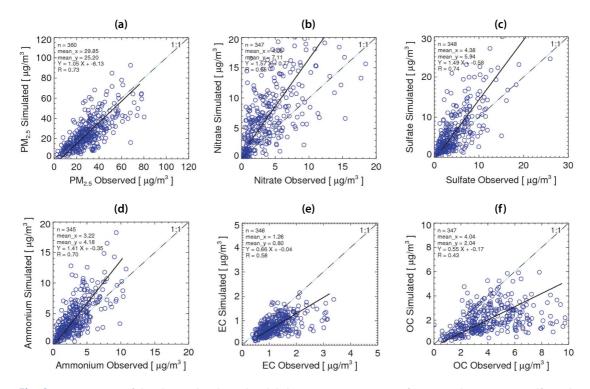


Fig. S2. Comparisons of the observed and simulated daily mean concentrations of (a) PM_{2.5}, (b) Nitrate, (c) Sulfate, (d) Ammonium, (e) EC, and (f) OC at the Daejeon supersite in Daejeon for 2016.

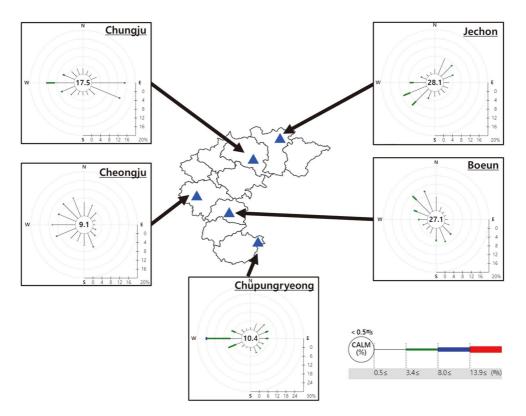


Fig. S3. Wind roses with the observed winds at the five ASOS (Automated Synoptic Observing System) sites in Chungbuk during 2016 (KMA, 2021).

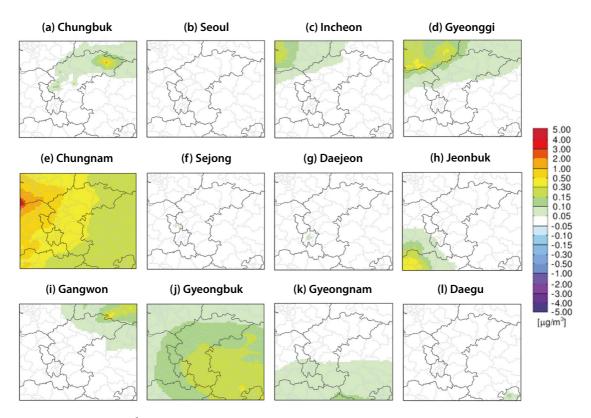


Fig. S4. Annual mean SO_4^{2-} contributions from (a) Chungbuk, (b) Seoul, (c) Incheon, (d) Gyeonggi, (e) Chungnam, (f) Sejong, (g) Daejeon, (h) Jeonbuk, (i) Gangwon, (j) Gyeongbuk, (k) Gyeongnam, and (l) Daegu to Chungbuk during the target period.

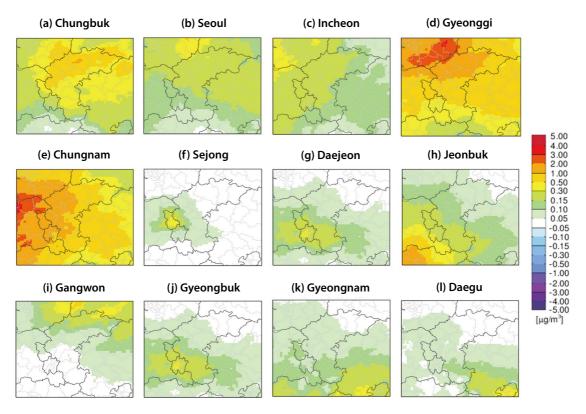


Fig. S5. Annual mean NO_3^- contributions from (a) Chungbuk, (b) Seoul, (c) Incheon, (d) Gyeonggi, (e) Chungnam, (f) Sejong, (g) Daejeon, (h) Jeonbuk, (i) Gangwon, (j) Gyeongbuk, (k) Gyeongnam, and (l) Daegu to Chungbuk during the target period.

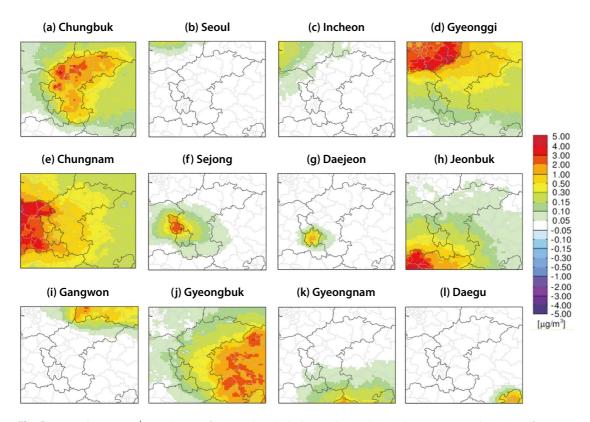


Fig. S6. Annual mean NH₄⁺ contributions from (a) Chungbuk, (b) Seoul, (c) Incheon, (d) Gyeonggi, (e) Chungnam, (f) Sejong, (g) Daejeon, (h) Jeonbuk, (i) Gangwon, (j) Gyeongbuk, (k) Gyeongnam, and (l) Daegu to Chungbuk during the target period.

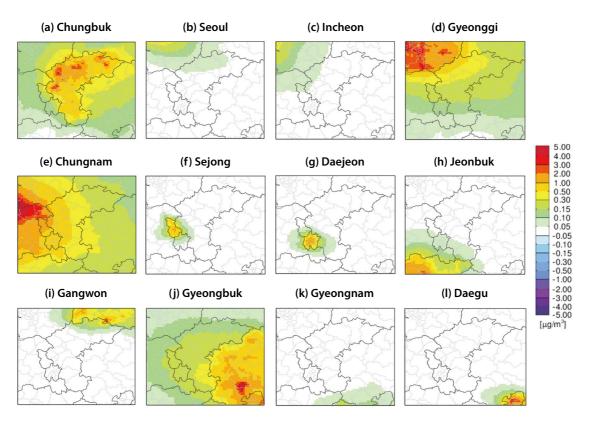


Fig. S7. Annual mean PPM_{2.5} contributions from (a) Chungbuk, (b) Seoul, (c) Incheon, (d) Gyeonggi, (e) Chungnam, (f) Sejong, (g) Daejeon, (h) Jeonbuk, (i) Gangwon, (j) Gyeongbuk, (k) Gyeongnam, and (l) Daegu to Chungbuk during the target period.

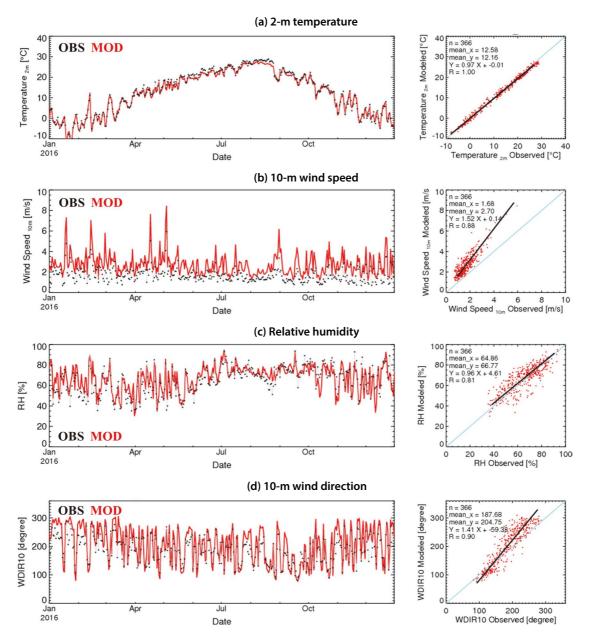


Fig. S8. Comparisons of the observed and simulated daily mean (a) 2-m temperatures, (b) 10-m wind speeds, (c) relative humidity, and (d) 10-m wind directions in Chungbuk ASOS sites during 2016. The black dots and red lines represent the observed and simulated data, respectively.

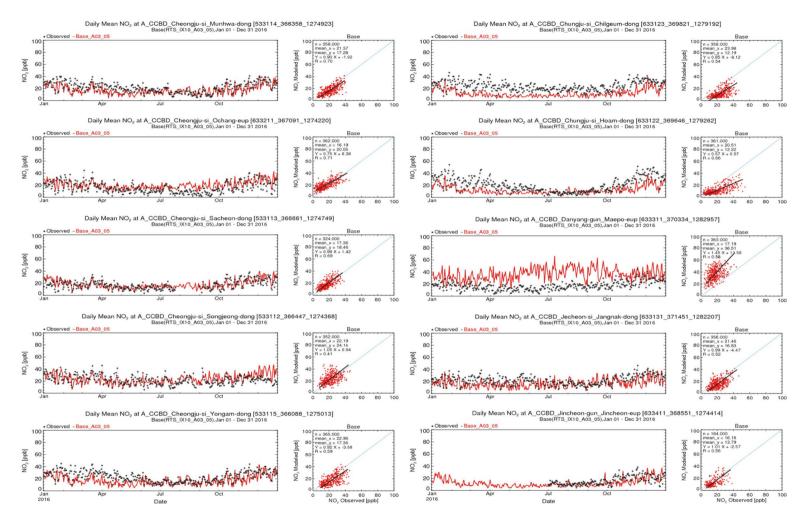


Fig. S9. Comparisons of the observed and simulated daily mean concentrations of NO₂ at ten urban air quality monitoring stations in Chungbuk for 2016. The black dots and red lines represent the observed and simulated daily mean concentrations, respectively.

J. Korean Soc. Atmos. Environ., Vol. 37, No. 3, June 2021, pp. 429-455

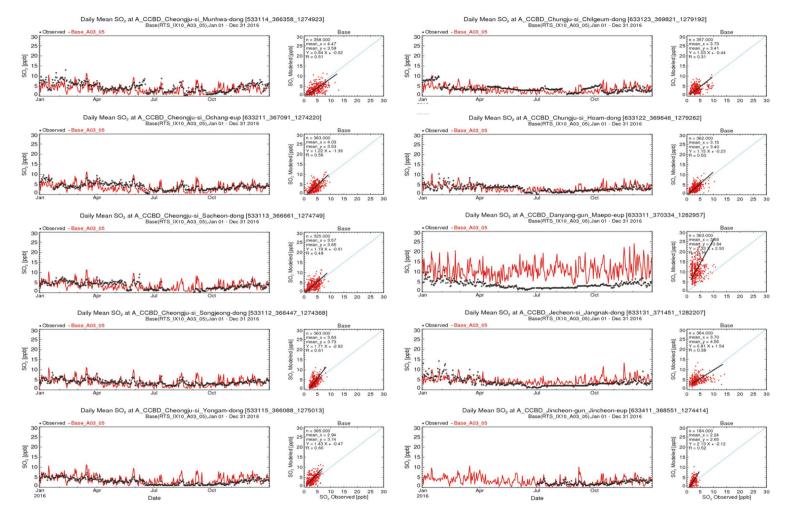


Fig. S10. Comparisons of the observed and simulated daily mean concentrations of SO₂ at ten urban air quality monitoring stations in Chungbuk for 2016. The black dots and red lines represent the observed and simulated daily mean concentrations, respectively.

os. Environ., Vol. 37, No. 3, June 2021, pp. 4

 $\textbf{Table S1.} \ \text{The mutual contributions to the annual mean PM}_{2.5} \ \text{concentrations among eleven local authorities in Chungbuk during the simulation period of 2016.} \qquad \text{(Unit: $\mu g/m^3$)}$

| Receptor | Source | | | | | | | | | | |
|----------------|-----------------|----------------|----------------|----------------|------------------|--------------------|------------------|-----------------|---------------|-----------------|-------------------|
| | Danyang- gun | Jecheon- si | Chungju- si | Geosan- gun | Eumseong- gun | Jeungpyeon- gun | Jincheon- gun | Cheongju- si | Boeun- gun | Okcheon- gun | Youngdong- gun |
| Danyang-gun | 1.43 | 0.27 | 0.27 | 0.08 | 0.12 | 0.01 | 0.06 | 0.02 | 0.01 | 0.01 | 0.01 |
| Jecheon-si | 0.44 | 1.03 | 0.43 | 0.12 | 0.16 | 0.01 | 0.08 | 0.03 | 0.01 | 0.01 | 0.01 |
| Chungju-si | 0.28 | 0.23 | 1.76 | 0.28 | 0.41 | 0.02 | 0.14 | 0.04 | 0.02 | 0.01 | 0.01 |
| Geosan-gun | 0.09 | 0.04 | 0.20 | 1.35 | 0.27 | 0.11 | 0.25 | 0.10 | 0.06 | 0.02 | 0.02 |
| Eumseong-gun | 0.14 | 0.07 | 0.38 | 0.26 | 1.91 | 0.07 | 0.59 | 0.08 | 0.03 | 0.02 | 0.01 |
| Jeungpyeon-gun | 0.08 | 0.03 | 0.10 | 0.59 | 0.25 | 1.24 | 0.70 | 0.26 | 0.06 | 0.02 | 0.02 |
| Jincheon-gun | 0.09 | 0.04 | 0.10 | 0.13 | 0.34 | 0.12 | 2.00 | 0.16 | 0.04 | 0.02 | 0.02 |
| Cheongju-si | 0.05 | 0.02 | 0.04 | 0.12 | 0.08 | 0.07 | 0.21 | 1.43 | 0.18 | 0.07 | 0.03 |
| Boeun-gun | 0.04 | 0.02 | 0.03 | 0.08 | 0.05 | 0.02 | 0.10 | 0.12 | 1.01 | 0.15 | 0.05 |
| Okcheon-gun | 0.03 | 0.01 | 0.02 | 0.03 | 0.03 | 0.01 | 0.05 | 0.08 | 0.19 | 1.06 | 0.24 |
| Youngdong-gun | 0.02 | 0.01 | 0.01 | 0.02 | 0.02 | 0.00 | 0.03 | 0.04 | 0.05 | 0.19 | 0.71 |