

논문

우리나라 지역별 황산화물 배출량이 아황산가스 농도에 미치는 영향 평가

Effects of SO_x Emission on SO₂ Concentration by District in Korea

여민주*, 김용표¹⁾, 정창훈²⁾

이화여자대학교 환경공학과, ¹⁾이화여자대학교 화공신소재공학과,

²⁾경인여자대학교 보건의료행정과

Min Ju Yeo*, Yong Pyo Kim¹⁾, Chang Hoon Jung²⁾

Department of Environmental Science and Engineering, Ewha Womans University,
Seoul, Republic of Korea

¹⁾Department of Chemical Engineering and Materials Science, Ewha Womans University,
Seoul, Republic of Korea

²⁾Department of Health Administration, Kyungin Women's College, Incheon, Republic of Korea

접수일 2021년 8월 17일

수정일 2022년 2월 18일

채택일 2022년 3월 28일

Received 17 August 2021

Revised 18 February 2022

Accepted 28 March 2022

*Corresponding author

Tel : +82-(0)2-3277-2902

E-mail : intminz@ewha.ac.kr

Abstract In this study, the relationship between sulphur oxides (SO_x) emissions and sulfur dioxide (SO₂) concentration was intensively analyzed using a simple Eulerian box model based on hourly data by district in Korea. There was little difference in the conversion rate of local SO_x emission to the concentration of SO₂ in all districts. However, sensitivity of SO_x emission to the calculated concentration of SO₂ was different significantly district by district. SO_x emission was the most contributable factor in Ulsan, Chungnam, Busan, and Incheon, but the reaction term was more contributable factor in many other districts. For example, in districts where emission is the most sensitive factor additional emission management is required for managing the concentration of SO₂. And it was found that differences between the monitored and the estimated SO₂ concentrations in Korea was the smallest in summer and the largest in winter. There is a possibility that the difference in seasonal external effects had an effect on these seasonal differences.

Key words: Eulerian box model, Emission rate, Dry deposition, Mixing height, Retention time

1. 서론

아황산가스(sulfur dioxide, SO₂)는 우리나라 대기 관리 정책의 성공적인 사례로 언급되는 대표적인 물질의 하나이다. 지난 40여 년간 농도가 지속적으로 감소하였고(Kim and Lee, 2018), 2002년부터 우리나라 16개 시도에서 지역평균 연평균 농도가 10 ppb 미만을 유지하고 있다(Yeo and Kim, 2020). 하지만 우리나라 대부분 지역의 아황산가스 연평균 농도는 영국 런던, 일본 도쿄, 프랑스 파리 등과 비교하면 높은 편으로 2017년 우리나라 16개 지역 중 연평균 농도가 가장 낮았던 제주 역시 2 ppb로 이들 지역보다 높았

다(Yeo and Kim, 2020).

우리나라는 전반적으로 단위 면적당 황산화물(sulphur oxides, SO_x) 배출량이 영국, 프랑스, 일본 등보다 많고, 황산화물 배출량당 아황산가스 농도 역시 높은 편으로 알려져 있다. 따라서, 추가적인 황산화물 배출원과 아황산가스 농도 관리 전략이 필요할 것으로 판단되는데, 이를 위해서는 지역별 황산화물 배출원 분포와 황산화물 배출이 아황산가스 농도로 전환되는 비율과 조건 등에 대한 면밀한 분석이 필요하다. 이전 연구(Yeo and Kim, 2020)에서 장기간 지역 내 아황산가스 농도에 국지적인 황산화물 배출이 미치는 영향 정도를 파악하기 위하여 지역별 단위 면적

당 황산화물 배출량 대비 아황산가스 농도 (이하 ‘[SO₂ conc./SO_x emis./area]’)를 살펴보았다. 이 결과로 지역별로 국지 배출 기여 정도의 상대적인 차이를 파악하고, 연도별 변화를 통해 지역 내 아황산가스 농도에 국지 배출 기여의 변화 추이를 파악할 수 있었다. 하지만 지역 내 아황산가스 농도에 국지적인 배출이 얼마나 영향을 주었는지를 정량적으로 파악하기는 어렵다는 한계가 있었다.

최근 기초 지자체 단위로 황산화물, 질소산화물 등 물질의 초미세먼지 농도 기여도 분석 연구 (Kang *et al.*, 2021; Kim *et al.*, 2021; Moon *et al.*, 2021; You *et al.*, 2020)가 활발히 진행되고 있는데, 본 연구에서는 황산화물 배출이 아황산가스 농도에 미치는 영향에 대해서 파악하고자 하였다. 이전 연구의 한계를 보완하여 황산화물 배출과 아황산가스 농도와의 관계를 집중적으로 설명하기 위해 간략한 Eulerian 상자 모델 (Seinfeld and Pandis, 2016)을 이용하여 이들의 관계 및 민감도를 살펴보았다. 특히, 장기간 시간별로 제공되는 아황산가스 농도 자료 (KECO, 2019)를 최대한 촘촘하게 활용하여 시간별로 황산화물 배출이 아황산가스 농도를 형성하는데 반응, 건식 침적, 체류 시간 등 다른 영향 요인에 비해 얼마나 민감하게 영향을 주는지를 살펴보았다. 또한 지역별로 아황산가스 농도에 영향을 미치는 주요 요인을 살펴보고, 측정값과 계산값의 차이를 이용하여 외부 영향 가능성에 대해서도 논의하였다.

2. 연구 방법

본 연구에서는 식 (1)과 같이 물질의 배출량, 반응에 의한 생성 또는 제거, 침적에 의한 제거, 외부 영향, 체류시간 등으로 표현되는, 부피가 $H\Delta x\Delta y$ 인 간략한 Eulerian 상자 모델 (Seinfeld and Pandis, 2016)의 물질수지식을 활용하였다.

$$\frac{dC_{SO_2}}{dt} = \frac{q_{SO_2}}{H} + R_{SO_2} - \frac{v_{dSO_2}}{H} C_{SO_2} + \frac{u}{\Delta x} (C_{SO_2}^0 - C_{SO_2}) \quad (1)$$

여기서 좌변은 시간에 따른 물질 농도의 변화를 나타낸다. 우변의 첫 번째 항은 배출을 나타내어 q 는 배출률 ($\mu\text{g m}^{-2} \text{hr}^{-1}$), H 는 혼합고 (m)를 의미한다. 두 번째 항은 반응을 나타내는데, 본 연구에서 살펴보고자 한 SO₂에 대해 $\text{SO}_2 + 2\text{OH} \rightarrow \text{sulfate}$ 와 같은 걸보기 반응을 주반응으로 고려하였다. 이 반응에서 아황산가스는 소멸하므로 $R_{SO_2} = -k[\text{OH}]C_{SO_2}$ 와 같다. 세 번째 항은 건식 침적을 나타내어 v_d 는 건식 침적속도 (cm s^{-1})를 의미한다. C 는 물질의 농도를, C^0 는 물질의 초기농도를 의미한다. 네 번째 항은 이류를 나타내는데, u 는 풍속 (m s^{-1})을 의미하고, $\frac{u}{\Delta x}$ 는 체류시간의 역수 τ_r^{-1} (hour^{-1})와 동일하다.

본 연구에서는 그림 1에서 정리한 것과 같이 매시간 식 (1)의 분석해 (C')를 식 (2)와 같이 구하여 아황산가스 농도 측정값 (C_c)과 비교하여 차이에 대해 고찰 (3.1절)하였고, 식 (3)과 같이 영향요인별로 해당 항목이 없는 경우 (no effect case) 농도 추정값을 각각 기본 경우 (base case) 추정값과 비교하여 민감도 (3.2절)를 살펴보았다. 또한, 식 (4)와 같이 단위 배출량당 농도 변화량을 계산하여 배출에 의한 전환율 (3.3절)을 살펴보았다.

$$C(t) = C(0)e^{-\left(\frac{v_{dSO_2}}{H} + \frac{1}{\tau_r} + k[\text{OH}]\right)t} + \frac{\left(\frac{q_{SO_2}}{H} + \frac{C_{SO_2}^0}{\tau_r}\right)}{\left(\frac{v_{dSO_2}}{H} + \frac{1}{\tau_r} + k[\text{OH}]\right)} \left(1 - e^{-\left(\frac{v_{dSO_2}}{H} + \frac{1}{\tau_r} + k[\text{OH}]\right)t}\right) \quad (2)$$

여기서 $C(t)$ 는 적용한 시점에서의 물질의 농도를, $C(0)$ 는 초기농도를 의미한다. 본 연구에서 t 는 1시간을 적용하였고, 매시간 한시간 이전의 측정값을 초기농도로 적용하였다. 시간별 아황산가스 농도 측정값은 Yeo and Kim (2020)과 동일하게 2012년까지 우리나라 전역에 설치된 252개 도시대기측정소의 최종확정 자료 (KECO, 2019)를 활용하였다. 각 항목별로 본 연구에서 기본 경우에 대해 적용한 값과 근거는 Table 1에 정리하였다. 혼합고 (H), 체류시간 (τ_r), 건식 침적률 (v_d)은 모든 지역에 동일한 값을 적용하였고,

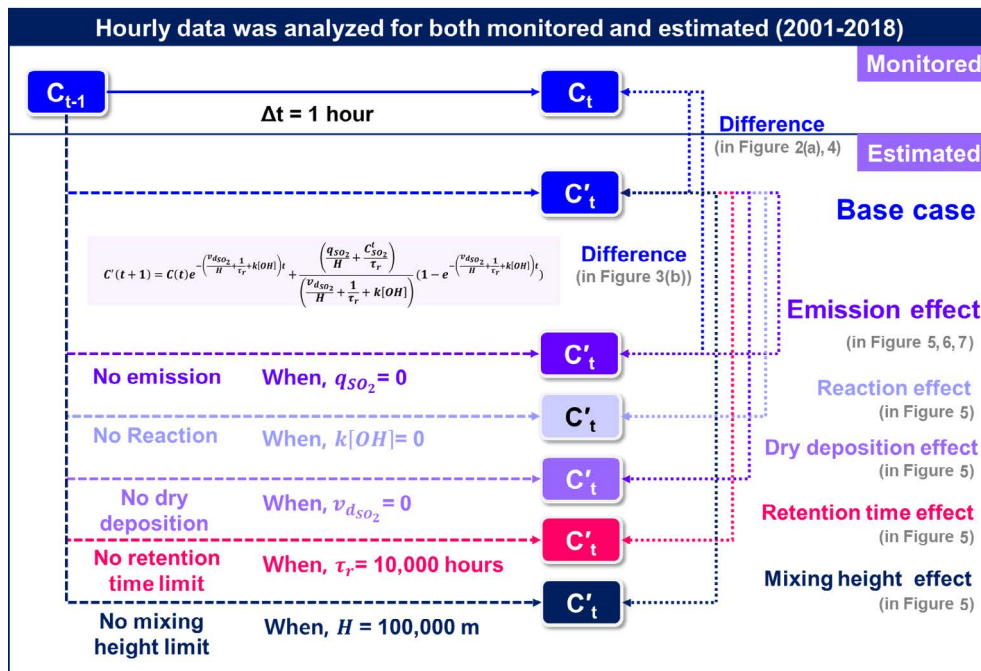


Fig. 1. Overview of this study.

배출률(q)은 지역별로 상이한 값을 적용하였다.

혼합고는 일변화가 있는 것으로 알려져 있어 낮과 밤을 다르게 적용하였고, 오전 6시와 저녁 6시를 혼합고가 변하는 시간으로 간주하고 이 두 시간에는 낮과 밤의 혼합고의 평균값을 적용하였다. 혼합고는 낮 1000 m, 밤 300 m를 적용하였고, 혼합고 내에서 대기 오염물질은 균일하게 완전 혼합된다는 가정을 하였다. 건식 침적률은 Hertel *et al.* (1994)에 제시된 값을 적용하였다.

아황산가스의 체류시간은 기존 문헌에서 1~2 days로 제시된다. 예를 들어, Lee *et al.* (2011)에 의하면, GEOS-Chem 모델을 이용하여 계산한 결과 아황산가스의 체류시간은 여름에는 13 hours, 겨울에는 48 hours이다. Fioletov *et al.* (2015)는 OMI 자료를 이용하여 연간 아황산가스 배출량이 30 kt 이하일 때 아황산가스의 체류시간이 4~12 hours 사이라 제시하였다. He *et al.* (2016)은 아황산가스와 같은 물질은 단일 상태의 이동시간과 유사한 체류시간(~1 day)을 가진

다고 보고하였다. 본 연구에서는 24 hours를 적용하였다.

반응상수 k 는 Stockwell (1997)에 제시된 방법과 계수, 지역별 시간당 기온값(측정소별 값(KMA, 2019))을 이용하여 지역별 평균값 도출)을 활용하여 매시간 계산하였다(Table 1). OH 농도는 낮시간 동안 $10^6 \text{ molecule cm}^{-3}$ order 수준으로, 전지구 평균값이 $1.5 \times 10^6 \text{ molecule cm}^{-3}$ 이라고 알려져 있지만(Seinfeld and Pandis, 2016), 일변화가 뚜렷한 편이므로 낮시간에는 $[OH] = [OH]_{\max} \cdot \sin[(t-6)/12]$ 과 같이(Seinfeld and Pandis, 2016) 계산하였고, 아침 6시 이전과 저녁 6시 이후인 밤 시간대에는 OH 농도를 0으로 적용하였다.

배출률은 단위 면적당 지역별 연간 황산화물 배출량(NIER, 2020)을 시간($365 \times 24 \text{ hr yr}^{-1}$) 배출량으로 환산하여 적용하였다. 지역별 연간 황산화물 배출량은 대기정책지원시스템(Clean Air Policy Support System, CAPSS)(NIER, 2020)에서 제공하는 자료를 활용하였고, 통계청(KOSTAT, 2019)의 면적 자료를

Table 1. Used data in this study.

Unit		Value		Source
c_{SO_2}	$\mu\text{g m}^{-3}$	Monitored	Hourly data ^{d)}	KECO, 2019
		Estimated	Estimated with values presented in Table 1	Calculated
$c_{SO_2}^0$	$\mu\text{g m}^{-3}$	I-hour ex-monitored	Hourly data ^{d)}	KECO, 2019
q	$\mu\text{g m}^{-2} \text{ hr}^{-1}$	Base	Hourly data ^{e)}	NIER, 2020
τ_{rSO_2}	hr	Base	24	Lee <i>et al.</i> , 2011; Fioletov <i>et al.</i> , 2015; and He <i>et al.</i> , 2016
v_{dSO_2}	cm s^{-1}	Base	0.365 ^{c)}	Hertel <i>et al.</i> , 1994
$H_{day}^a)$	m	Base	300	Seinfeld and Pandis, 2016
$H_6 \& H_{18}$	m	Base	$(H_{day} + H_{night})/2$	Calculated
$H_{night}^a)$	m	Base	1000	Seinfeld and Pandis, 2016
$k^b)$	$\text{cm}^3 \text{ molecule}^{-1} \text{ s}^{-1}$	Base	$f(T)$	Calculated
k_0^{300}	$\text{cm}^6 \text{ s}^{-1}$	All	$3.00 * 10^{-31}$	Stockwell <i>et al.</i> , 1997
n	–	All	3.3	Stockwell <i>et al.</i> , 1997
k_∞^{300}	$\text{cm}^3 \text{ s}^{-1}$	All	$1.50 * 10^{-12}$	Stockwell <i>et al.</i> , 1997
m	–	All	0	Stockwell <i>et al.</i> , 1997
T	K	Monitored	Hourly data ^{d)}	KMA, 2019
M	molecule cm^{-3}	All	$2.46 * 10^{19}$	Seinfeld and Pandis, 2016
$[\text{OH}]_{\max}$	molecule cm^{-3}	Base ^{f)}	10^7	Seinfeld and Pandis, 2016
$[\text{OH}]_{day}^a)$	molecule cm^{-3}	All	$[\text{OH}]_{\max} * \sin[(t-6)/12]$	Calculated
$[\text{OH}]_{night}^a)$	molecule cm^{-3}	All	0	–

^{a)} daytime: 6~18, nighttime: 0~6, 18~24

$$^b) k = \left\{ k_0(T)[M] / \left(\frac{1 + k_0(T)[M]}{k_\infty(T)} \right) \right\} 0.6 \left\{ 1 + \left[\log_{10} \left(\frac{1 + k_0(T)[M]}{K_\infty(T)} \right) \right]^2 \right\}^{-1} \text{ where: } k_0(T) = k_0^{300}(T/300)^{-n};$$

$k_\infty(T) = k_\infty^{300}(T/300)^{-m}$; and $[M]$; and $[M]$ is the concentration of air (Stockwell *et al.*, 1997)

^{c)} Average value of land (0.48 cm s^{-1}) and sea (0.25 cm s^{-1})

^{d)} Average value by district

^{e)} Calculated by district: Hourly emissions per area = Annual emissions per area/(365 days/year * 24 hours/day)

^{f)} Tan *et al.* (2019) reported less values: $7 * 10^6 \text{ molecule cm}^{-3}$ in Beijing and Shanghai, $4 * 10^6 \text{ molecule cm}^{-3}$ in Chongqing, and $2 * 10^6 \text{ molecule cm}^{-3}$ Guangzhou.

활용하였다.

본 연구에서는 우리나라 17개 시·도 가운데 세종시를 제외한 16개 시·도 지역(서울(SU), 인천(IC), 경기(GG), 부산(BS), 대구(DG), 광주(GJ), 대전(DJ),

울산(US), 강원(GW), 충북(CB), 충남(CN), 전북(JB), 전남(JN), 경북(GB), 경남(GN), 제주(JJ))에 대해 결과를 살펴보았는데, 16개 지역을 각각 하나의 상자로 가정하였다. 상자 외부에서의 배출과 이동에

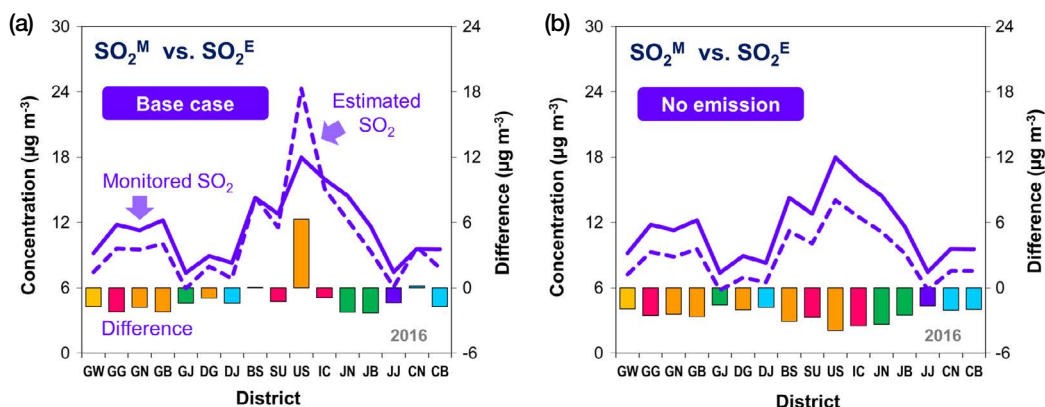


Fig. 2. Monitored vs. estimated concentrations of sulfur dioxide (SO_2) on (a) base case and (b) no emission case by district in Korea in 2016 (raw data for monitored SO_2 : KECO, 2019).

대해서는 직접적으로 계산하지 않고, 매시간 이전시간 측정농도를 초기농도로 대입함으로써 고려했다. 즉, $C_{\text{SO}_2}^0$ 에 한시간 이전까지의 외부 유입 영향이 내포되어 있는 것이라고 할 수 있다.

변수별 민감도는 식 (3)과 같이 기본 경우와 변수별 영향이 없는 경우(no effect) 농도 차이를 이용하여 계산하였다. 배출, 반응, 건식 침적은 영향이 없는 경우로 각각의 과정이 없다고 가정하여 해당 변수값으로 0을, 체류시간과 혼합고는 충분히 큰 값(체류시간은 1만 시간, 혼합고는 낮과 밤 모두 10만 m)을 변수값으로 적용하여 아황산가스 농도를 계산하였다. 이후, 기본 경우와 변수별 영향이 없는 경우 농도 차이를 기본 경우 농도 값으로 나누어 계산하였다.

$$\text{Sensitivity}_{i,j}^t = \frac{C_{i,j}^{t,\text{base}} - C_{i,j}^{t,\text{no effect}}}{C_{i,j}^{t,\text{base}}} = \frac{\Delta C_{i,j}^t}{C_{i,j}^{t,\text{base}}} \quad (3)$$

여기서 i 는 영향요인, j 는 지역을 의미한다. 지역별로 배출이 농도에 기여하는 비율(전환율)은 식 (4)와 같이 계산하였다.

$$\begin{aligned} \text{Emission to concentration rate}_{e,j}^t \\ = \frac{C_{e,j}^{t,\text{base}} - C_{e,j}^{t,\text{no emission}}}{q_j^t} = \frac{\Delta C_{e,j}^t}{q_j^t} \end{aligned} \quad (4)$$

여기서 e 는 배출을 의미한다.

지역별로 기본 경우에서 배출, 반응, 건식 침적, 체류시간이 각각 농도에 미치는 영향 정도를 변수별 불확도로 간주하고, 식 (5)와 같이 합과 차에서의 불확실성(Taylor, 1997)을 계산하여 지역별로 최종 불확도를 추정하였다.

$$\text{Uncertainty}_j = \sqrt{\sum_{i=1}^n (C_{i,j}^{\text{avg,base}} - C_{i,j}^{\text{avg,no effect}})^2} \quad (5)$$

여기서 n 은 변수의 개수를 의미한다.

3. 결과 및 고찰

3.1 아황산가스 농도 측정값과 계산값 비교

우리나라 16개 지역에서의 아황산가스 농도 측정값과 Eulerian 상자 모델을 이용하여 식 (2)와 같이 매시간 계산한 결과를 2016년 평균값으로 기본 경우와 배출이 없는 경우에 대해 그림 2에 제시하였다. 지역별, 연도별 결과는 그림 S1에 상세히 제시하였다. 아황산가스의 측정단위는 ppm이고, 소수점 4째자리에서 반올림하여 최종 유효자리수는 0.001 ppm (1 ppb)이다(MOEK and NIER, 2019). 따라서 1 ppb 이하 값을 나타내는 경우 다른 농도 범위에 비해 결과값의

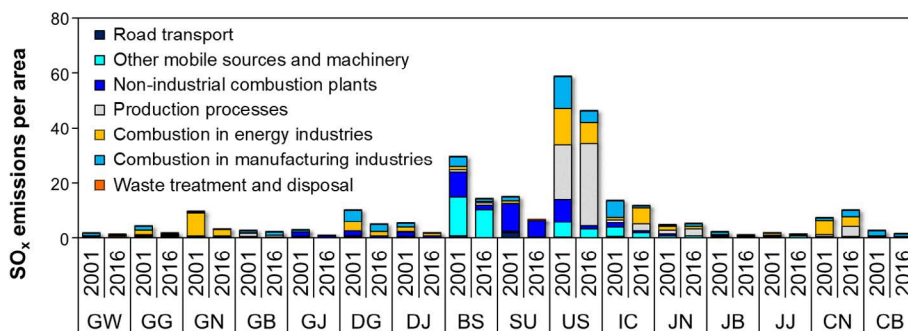


Fig. 3. Sulphur oxides (SO_x) emissions per area by sector and district in Korea in 2001 and 2016 (SO_x emissions raw data: NIER, 2020; Area raw data: KOSTAT, 2020).

불확도가 높을 것으로 예상되어 아황산가스 측정농도가 1 ppb를 초과하는 경우에 대해서만 결과를 살펴 보았는데(그림 S2), 그림 2의 결과와의 차이가 거의 없었으므로 본 연구에서는 가용한 전체 아황산가스 측정값을 활용하여 결과를 정리하였다.

그림 2(a)를 보면, 기본 경우에 울산을 제외한 대부분의 지역에서 계산값이 측정값보다 낮은 값을 나타냈다. 울산은 단위 면적당 배출량이 가장 많은 지역(그림 3)으로 CAPSS 2016 배출목록을 이용하여 지역별 아황산가스와 농도의 측정값과 계산값을 비교한 선행연구에서도(Kim *et al.*, 2020a) 동일한 결과를 나타냈다. 울산은 아황산가스 농도 측정값도 가장 컸다.

본 연구에서는 한시간 전에 배출된 황산화물이 현재 시점에 영향을 주는 것으로 계산하였는데, 실제로는 한시간보다 더 짧은 시간 안에 울산에서 배출된 황산화물이 인근 다른 지역으로 이동하거나 동해안으로 빠져나갔을 것이라고 예상할 수 있다. 더 빠른 속도로 침적되었거나 입자상 물질로 전환되어 제거되었을 것이라고 추정할 수도 있다. 또는, 울산의 배출량이 실제보다 과다하게 산정되었기 때문일 수도 있다. 반대로 울산을 제외한 지역들(충남은 계산값이 매우 근소하게 측정값보다 높아서 제외)은 계산 결과가 측정값보다 낮은 농도를 나타내어 실제로는 한시간보다 더 짧은 시간 안에 외부로부터 이동해 왔거나 침적 또는 입자상 물질로의 전환이 예상보다 느리게 일어났을 것이라고 추정할 수 있다. 배출이 없는 경

우에는 울산을 포함한 모든 지역에서 측정값보다 계산값이 낮은 값을 나타내어(그림 2(b)), 배출이 아황산가스 농도 증가에 기여한다는 것을 확인할 수 있다. 본 연구에서는 체류시간, 건식 침적 속도 등 영향 요인에 대한 지역별 차이를 반영하지 못했다는 한계가 있는데, 지역별로 여러 요인을 고려하여 결과를 해석하기 위해서는 추가적인 연구가 필요하다.

그림 4에서는 2008년부터 2016년까지의 우리나라 전체에서 아황산가스 농도 계산값과 측정값의 차이를 제시하였다. 지역별로 농도의 측정값과 계산값 차이에 지역 면적을 곱한 총량을 우리나라 전체 면적으로 나누어 우리나라 전체 평균 결과를 나타냈다. 이 결과 역시 대부분의 지역처럼 음의 값을 나타내어 우리나라 전체를 하나의 상자로 가정할 경우에도 아황산가스 농도 계산 결과가 측정값보다 낮은 것을 알 수 있다. 우리나라 국가 단위 결과는 지역 간 이동을 상쇄한 결과로 볼 수 있으므로, 외부 영향은 주로 장거리 이동에 의한 영향으로 판단할 수 있다. 아황산가스는 기체상 물질이므로 비교적 체류시간이 짧지만 장거리 이동하는 것으로 알려져 있어 우리나라 외부 인접 국가의 영향이 있을 것으로 판단된다. 그림 4(b)는 동일한 기간에 대한 월변화를 나타낸 결과인데, 여름철인 7, 8, 9월에 우리나라 전체 측정값과 계산값 차이가 가장 작고 겨울철인 12, 1, 2월에 가장 크다. NIER (2011)에 의하면, 중국을 비롯한 동북아시아에서 배출되는 대기오염물질이 주로 봄, 가을 및

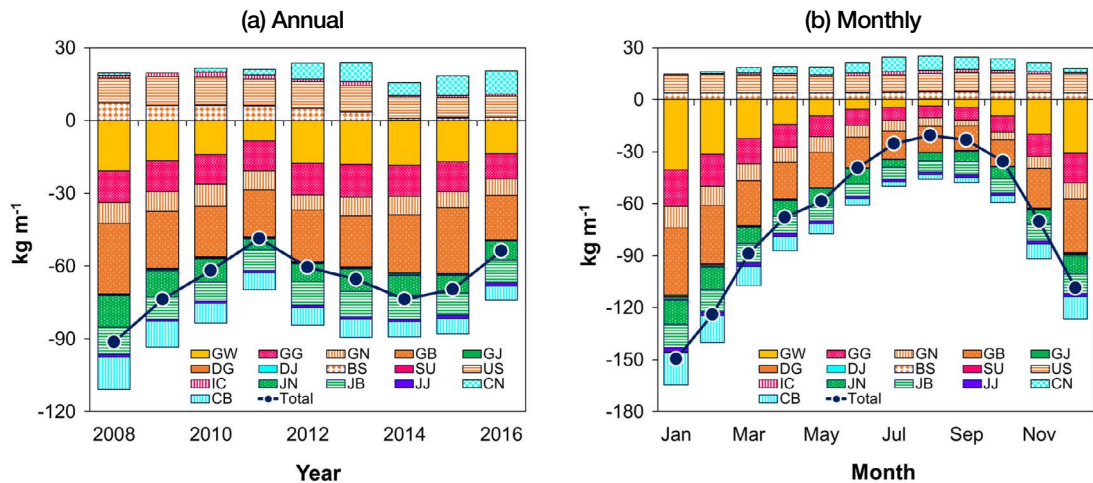


Fig. 4. (a) Annual trend and (b) monthly variation of difference between the monitored and the estimated concentrations of sulfur dioxide (SO_2) by district and sum of each of them with consideration of area between 2008 and 2016 (raw data of monitored SO_2 : KECO, 2019; Area raw data: KOSTAT, 2020).

겨울에 서풍을 타고 우리나라로 장거리 이동되어 오므로 계절별 장거리 이동 영향의 차이가 여름철에 전체 측정값과 계산값 차이가 가장 작고 겨울철에 반대인 계절별 경향에 주요하게 영향을 주었을 수 있다. 하지만 이러한 계절적 차이에는 반응, 체류시간, 건식 침적 속도, 배출량의 월변화 등 여러 요인이 영향을 주었을 것으로 예상되므로 각각의 요인에 대한 추가적인 분석이 필요하다. 그 밖에도 기상요인을 포함한 변수에 의한 오차, 배출량 과소 추정 등이 영향을 주었을 것으로 추정된다. 배출량과 관련하여 항공측정 등을 통해 대형 점오염원에서 우리나라 황산화물 배출량이 과소 추정되고 있다는 결과가 제시되고 있지만 (Kim *et al.*, 2020b), 결과의 신뢰도와 전체 배출량에 기여하는 정도가 아직 제시되지 않은 상황이다.

3.2 변수별 민감도 및 불확도 총합

그림 2, 4의 결과에 영향을 주었을 것으로 판단되는 변수 오차와 관련하여 식 (5)를 이용하여 지역별 배출, 반응, 건식 침적, 체류시간에 의한 불확도의 총합을 계산하였다. 각 요인별 영향 정도는 아황산가스 농도 계산값에 대한 각각의 요인의 영향을 백분율로

나타낸 것으로 그림 5에 제시하였다. 혼합고의 영향에 대해서도 그림 5에 제시하였으나 혼합고는 배출 및 건식 침적과 독립된 변수가 아니므로 불확도 총합을 계산할 때는 제외하였다.

반응, 건식 침적, 체류시간의 민감도는 지역별로 큰 차이가 없고, 배출량과 혼합고의 차이가 큰 것을 확인할 수 있다. 혼합고는 단위 면적당 배출량이 많은 지역, 예를 들어, 울산, 부산, 충남에서 영향을 많이 주는데, 이는 식 (1), (2)에서 볼 수 있듯이 농도를 계산할 때, 혼합고가 배출량(q_{SO_2}/H)에 함께 고려되기 때문이다. 혼합고가 무한대로 커지면, 배출된 황산화물은 무한대의 높이만큼 균일하게 퍼진다는 가정이 적용되므로 혼합고가 커질수록 배출에 의한 영향이 희석된다. 따라서, 혼합고와 배출량의 민감도는 유사한 경향을 보인다. 건식 침적 또한 혼합고를 고려(v_{ASO_2}/H)하여 적용하지만, 건식 침적의 자체 민감도가 낮아 혼합고의 크기가 결과에 큰 영향을 주지 않는 것으로 판단된다. 하지만 최근 배출 지점에 따라 지표에서의 단위 배출량당 농도 전환율이 다르다는 연구 결과 (Ju *et al.*, 2019)가 제시되어 혼합고 내 완전 혼합 가정에는 한계가 있다는 점에 주의가 필요하다.

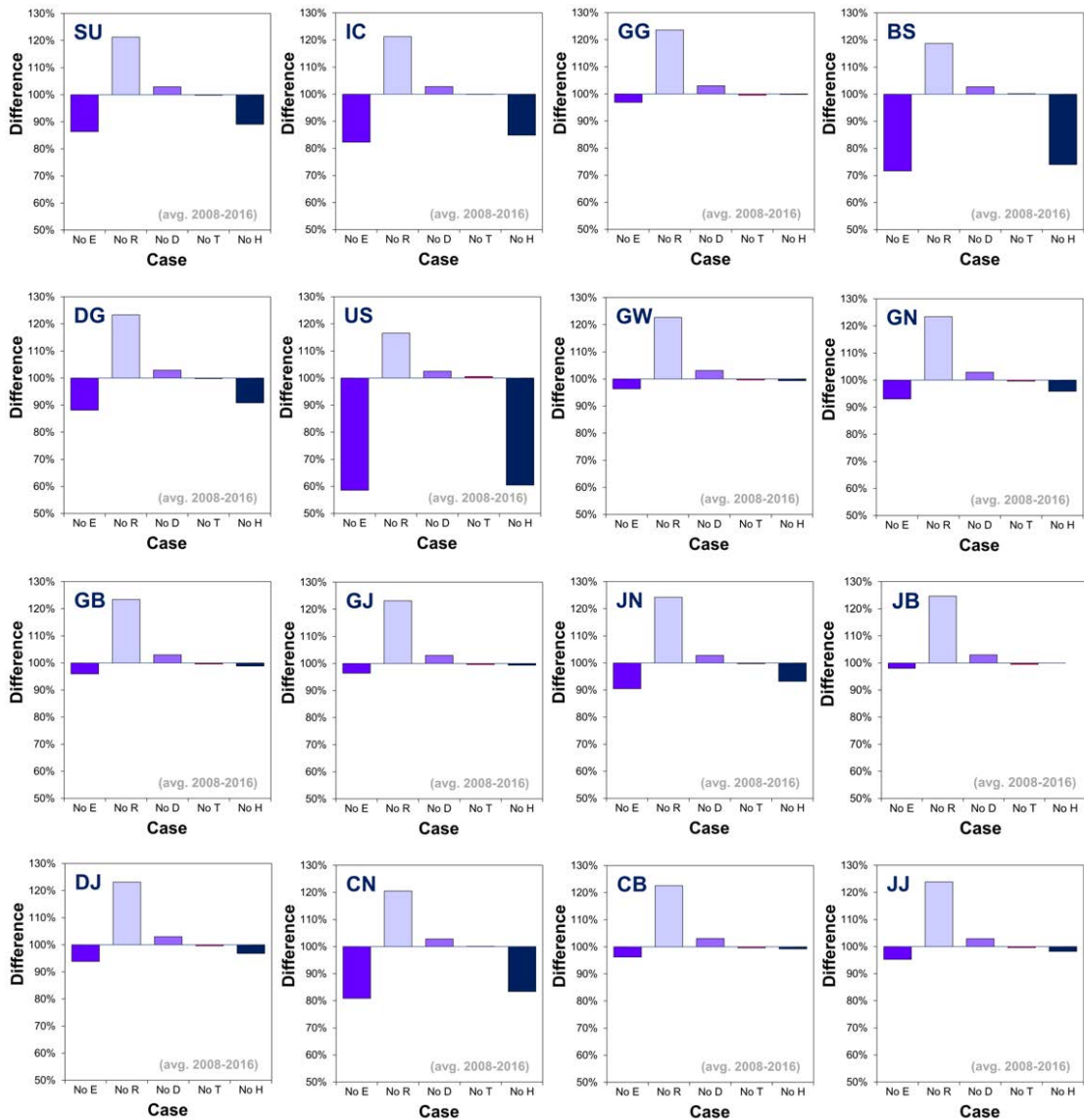


Fig. 5. Sensitivity by factor and district on the estimated concentration of sulfur dioxide (SO_2) (average value between 2008 and 2016). E, R, D, T, and H denote emission, reaction, dry deposition, retention time, and mixing height, respectively.

불확도의 총합은 대체로 25% 내외를 나타냈는데, 울산이 45%, 부산이 34%로 30%를 넘었으며, 강원, 제주가 23%로 가장 낮은 값을 나타냈다. 배출에 의한 기여를 제외한 불확도의 총합을 살펴보면, 모든 지역에서 20% 내외의 값을 나타냈다. 배출 민감도가 가장 높은 부산, 울산은 단위 면적당 배출량 수준이, 배출

과 반응 두 요인의 민감도가 유사한 수준인 충남과 인천은 두 요인이, 배출과 건식 침적에 의한 민감도가 1% 이내로 차이 나는 경기, 강원, 경북, 광주, 전남, 충북의 경우 세 요인이 모두, 반응에 의한 민감도가 가장 높지만 배출 민감도가 건식 침적에 의한 민감도 보다는 높은 경남, 경북, 대구, 전남, 제주는 배출과 반

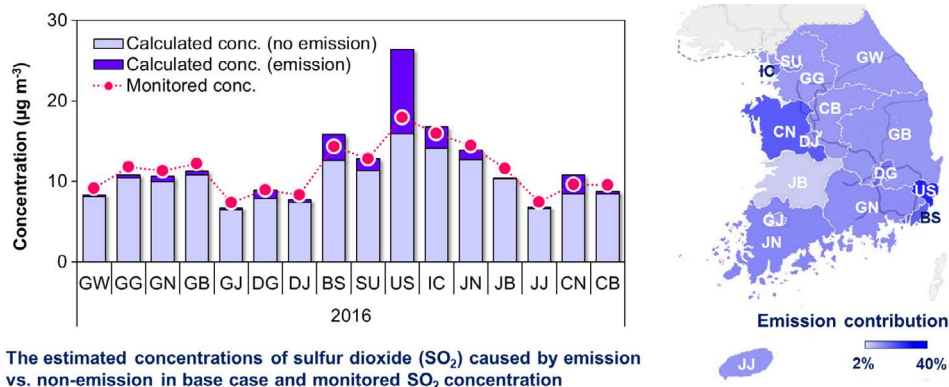


Fig. 6. The estimated concentrations of sulfur dioxide (SO₂) caused by emission and non-emission in base case, monitored SO₂ concentration, and distribution of emission contribution by district in 2008 and 2016 (raw data of monitored SO₂: KECO, 2019).

응 두 요인이 지역 내 아황산가스 농도를 형성하는데 민감한 요인이라는 것을 알 수 있다.

아황산가스 농도를 줄이기 위해서 배출이 중요한 지역에서는 배출원 관리에 우선순위를 두어야 하며, 반응이 중요한 지역에서는 OH 농도 관리가 중요하다. 중국의 경우 [OH]_{max} (Tan *et al.*, 2019)로 4×10^6 등 본 연구에서 제시한 값의 약 절반에 해당하는 값을 적용하였는데, 이 값을 적용하면 반응항에 의한 민감도가 줄어들게 되고, 불확도의 총합도 줄어든다. 따라서 OH 농도와 OH 농도에 영향을 주는 다른 대기오염물질, 예를 들어, 오존과 휘발성유기화합물에 대한 관리도 필요하다. 반응항에 영향을 줄 수 있는 또 다른 변수는 반응상수를 계산하는 과정에 고려되는 기온과 반응에 대한 high and low pressure limit 값이다. 기온은 지역별, 시간별 실측값을 적용한 것이므로 주어지는 값이며, pressure limits 값은 본 연구에서 적용한 값을 많이 활용하므로 변화를 주기 어렵다.

3.3 배출에 의한 전환율

그림 5에서 지역별로 단위 면적당 배출량의 차이가 주로 아황산가스 농도 차이를 야기하였다는 것을 알 수 있었다. 그림 6은 기본 경우 지역 내 황산화물 배출이 해당 지역 아황산가스 농도 계산값에 기여하는 정도를 시간별로 계산하여 2016년 연평균으로 제

시한 결과이다. 배출에 의해 형성된 농도 (emission)와 아닌 농도 (no emission)로 구분하여 측정 결과와 함께 제시하였다. 배출이 아닌 요인에 의한 농도는 그림 6에서 연한 색으로 표시된 막대 부분에 해당한다.

울산은 시간당 아황산가스 농도에 황산화물 배출의 기여가 40%가 넘을 만큼 높았고, 그다음으로는 단위 면적당 배출량이 많은 충남, 부산, 인천이 각각 22%, 20%, 16%로 높았다. 반면, 전북이 2% 내외를 차지하여 가장 낮았고, 광주, 강원이 모두 3%, 충북이 4%로 낮았다. 지역 내 자체 배출의 영향이 다른 지역에 비해 낮은 전북과 광주는 우리나라 서해안에 위치하여 중국 영향을 받을 가능성이 높은 지역으로 판단된다. 충북과 강원 두 지역은 수도권 풍하 지역으로 지역 간 이동의 영향을 받을 가능성이 높은 지역이다. Yeo and Kim (2020)에서도 2000년대 중반 이후 [SO₂ conc./SO_x emis./area] 값이 우리나라 16개 지역 가운데 울산에서 가장 낮은 값을, 전북에서 가장 높은 값을 나타내어 아황산가스 농도에 국지적인 배출의 영향을 가장 많이 받는 지역은 울산이고, 반대는 전북이라고 논의한 바 있다.

지금까지의 논의에서 지역별로 단위 면적당 배출량의 차이가 지역별 아황산가스 농도 차이를 주로 야기하였다는 것을 알 수 있다. 하지만 그림 7을 보면,

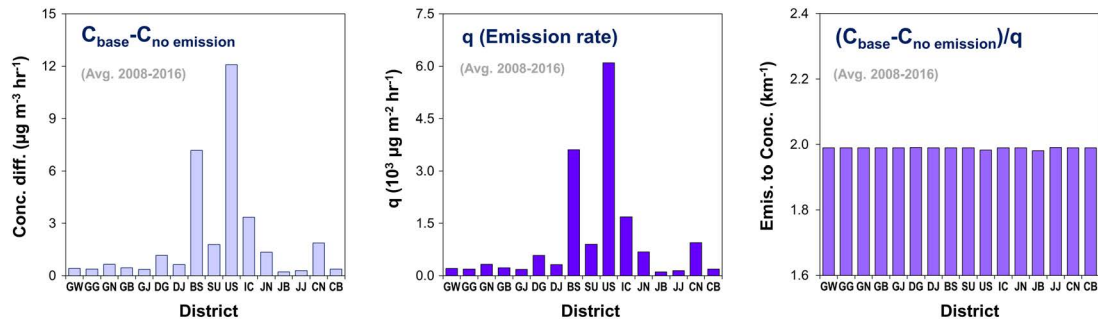


Fig. 7. Difference of concentrations of sulfur dioxide (SO_2) between base and no emission cases, sulphur oxides (SO_x) emission rate, and conversion rate of SO_x emissions to the estimated concentrations of SO_2 by district (average value between 2008 and 2016).

황산화물 배출량이 아황산가스 농도로 전환되는 비율은 지역별로 큰 차이가 없는 것을 확인할 수 있다.

4. 결 론

간략한 Eulerian 상자 모델을 이용하여 2008년부터 2017년까지 우리나라 지역별 아황산가스 농도를 시간 단위로 계산하고, 지역별로 황산화물 배출량이 지역 아황산가스 농도를 형성하는데 반응, 건식 침적, 체류시간 등 다른 영향 요인에 비해 얼마나 민감하게 영향을 주는지와 전환율을 추정해 보았다.

지역별로 황산화물 배출량이 아황산가스 농도로 전환되는 비율에는 큰 차이가 없었음에도 불구하고 지역별 단위 면적당 배출량의 차이가 지역별로 아황산가스 농도 계산 결과 차이에 크게 기여했다. 단위 면적당 배출량이 많은 지역은 배출량이, 그 이외에는 대부분 반응항이 민감한 요인이었다. 건식 침적은 농도에 미치는 영향이 매우 낮았음에도 불구하고 배출량이 적은 지역에서는 상대적으로 민감도가 높았다. 예를 들어, 매시간 황산화물 배출량이 지역 아황산가스 농도에 자체적으로 기여하는 정도는 울산이 40%를 초과하여 가장 높았고, 전북이 2% 내외를 차지하여 가장 낮았는데, 전북의 경우 건식 침적에 의한 영향이 배출에 의한 영향보다 컸다. 또한 측정값과 계산값 농도 차이로 배출이 많은 지역, 예를 들어, 울산,

충남, 부산, 인천에서는 지역 내 배출이 주변 지역에 영향을 줄 것이라는 점과 반대로 적은 지역, 예를 들어, 전북, 강원, 충북 등에서는 외부 영향을 받을 것이라는 점을 예상할 수 있었다. 지역 간 이동을 상세한 결과로 볼 수 있는 전국 단위 측정값과 계산값 차이의 월변화를 살펴보면, 여름철에 가장 작고 겨울철에 가장 큰 것을 알 수 있다. 이런 계절별 차이에는 계절별 장거리 이동 영향의 차이가 영향을 주었을 가능성이 존재한다.

하지만 지역별 황산화물 배출량이 과소 또는 과다 추정되었을 가능성에 대해 주의가 필요하다. 또한 본 연구는 체류시간, 건식 침적 속도 등에 대해 지역별 차이를 반영하지 못했다는 한계를 지닌다. 이런 한계가 있음에도 불구하고 본 연구에서는 분석해를 계산하여 비교적 참값에 가까운 결과를 제시하였다고 판단되며, 장기간에 대해 연도별, 월별 결과를 제시할 수 있었다는 점에서 의미를 찾을 수 있다. 추후 지역별 차이와 배출량의 계절 변화 등 여러 특성을 고려한 값을 활용하는 것이 결과의 신뢰성 제고에 도움을 줄 것으로 기대된다.

감사의 글

이 논문은 2021년도 정부(미래창조과학부; 교육부)의 재원으로 한국연구재단의 지원(NRF-2019

M1A2A2103953; NRF-2020R1I1A1A01054651)을 받아 수행된 연구입니다.

References

- Fioletov, V.E., McLinden, C.A., Krotkov, N., Li, C. (2015) Lifetimes and emissions of SO₂ from point sources estimated from OMI, *Geophysical Research Letters*, 42, 1969-1976. <https://doi.org/10.1002/2015GL063148>
- He, H., Vinnikov, K.Y., Li, C., Krotkov, N.A., Jongeward, A.R., Li, Z., Stehr, J.W., Hains, J.C., Dickerson, R.R. (2016) Response of SO₂ and particulate air pollution to local and regional emission controls: A case study in Maryland, *AGU publications, Earth's Future*, 4. <https://doi.org/10.1002/2015EF000330>
- Hertel, O., Christensen, J., Hov, Ø. (1994) Modelling of the end products of the chemical decomposition of DMS in the marine boundary layer, *Atmospheric Environment*, 28, 2431-2449.
- 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>
- 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, O., Bae, M., Kim, S. (2020a) Evaluation on Provincial NO_x and SO₂ Emissions in CAPSS 2016 Based on Photochemical Model Simulation, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(1), 64-83, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.1.064>
- Kim, S., You, S., Kim, E., Bae, M., Son, K. (2021) Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (III) Jeollanamdo, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 37(2), 206-230, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.2.206>
- Kim, Y.P., Kim, S., Kim, J., Lee, T. (2020b) Estimation of SO₂ emissions in large point sources at Dangjin City using air-borne measurements, *Particle and Aerosol Research*, 16(4), 107-117, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.11629/jpaar.2020.16.4.107>
- Kim, Y.P., Lee, G. (2018) Trend of air quality in Seoul: Policy and science, *Aerosol and Air Quality Research*, 18, 2141-2156. <https://doi.org/10.4209/aaqr.2018.03.0081>
- Korea Environment Corporation (KECO) (2019) Final confirmation annual data download. http://www.airkorea.or.kr/web/pastSearch?pMENU_NO=123. Accessed April 25, 2019 (in Korean).
- Korea Meteorological Administration (KMA) (2019) Weather observation. <https://data.kma.go.kr/data/grnd/selectAsosRltmList.do?pgmNo=36>. Accessed January, 24, 2019 (in Korean).
- Lee, C., Martin, R.V., van Donkelaar, A., Lee, H., Dickerson, R.R., Hains, J.C., Krotkov, N., Richter, A., Vinnikov, K., Schwab, J.J. (2011) SO₂ emissions and lifetimes: Estimates from inverse modeling using in situ and global, space-based (SCIAMACHY and OMI) observations, *Journal of Geophysical Research*, 116, D06304. <https://doi.org/10.1029/2010JD014758>
- Ministry of Environment, Korea (MOEK), National Institute of Environmental Research (NIER) (2019) Guidelines for the air pollutant monitoring network installation and operation, Sejong (in Korean).
- Moon, N., Seo, J., Kim, S. (2021) Estimation of Contribution and Emission-to-PM_{2.5} Conversion Rate by Each Local Government for Policy Support, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 37(6), 891-906, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.6.891>
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2011) Impact assessment of long-range transport of air pollutants in Northeast Asia (II), Incheon (in Korean).
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2020) Emissions by sector and species. <http://airemiss.nier.go.kr/mbshome/mbshome/airemiss/index.do>. Accessed June 23, 2020 (in Korean).
- Seinfeld, J.H., Pandis, S.N. (2016). *Atmospheric chemistry and physics: From air pollution to climate change*, third edition, John Wiley & Sons Inc, Hoboken, New Jersey, USA.
- Statistics Korea (KOSTAT) (2019) Area by district in Korea. http://kosis.kr/statHtml/statHtml.do?orgId=101&tblId=DT_1YL21291&conn_path=I3. Accessed September 30, 2019 (in Korean).
- Stockwell, W.R., Kirchner, F., Kuhn, M., Seinfeld, S. (1997) A new mechanism for regional atmospheric chemistry mod-

- eling. *Journal of Geophysical Research*, 102, 25847-25880. <https://doi.org/10.1029/97JD00849>
- Tan, Z., Lu, K., Jiang, M., Su, R., Zhang, Y. (2019) Daytime atmospheric oxidation capacity in four Chinese megacities during the photochemically polluted season: A case study based on box model simulation, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19, 3493-3513. <https://doi.org/10.5194/acp-19-3493-2019>
- Taylor, J.R. (1997) *An introduction to Error Analysis: the study of uncertainties in physical measurements*, 2nd edition, University Science Books.
- Yeo, M.J., Kim, Y.P. (2020) Long-term Trend of Sulfur Dioxide Concentration by District in Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(6), 742-756, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.6.742>
- You, S., Bae, C., Kim, H., You, C., Kim, S. (2020) Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (I) Gyeonggi Province, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(6), 785-805, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.6.785>

Authors Information

- 여민주 (이화여자대학교 환경공학과 연구교수)
(intminz@ewha.ac.kr)
- 김용표 (이화여자대학교 화공신소재공학과 교수)
(yong@ewha.ac.kr)
- 정창훈 (경인여자대학교 보건의료행정과 교수) (jch@kiwu.ac.kr)

Supplementary Materials

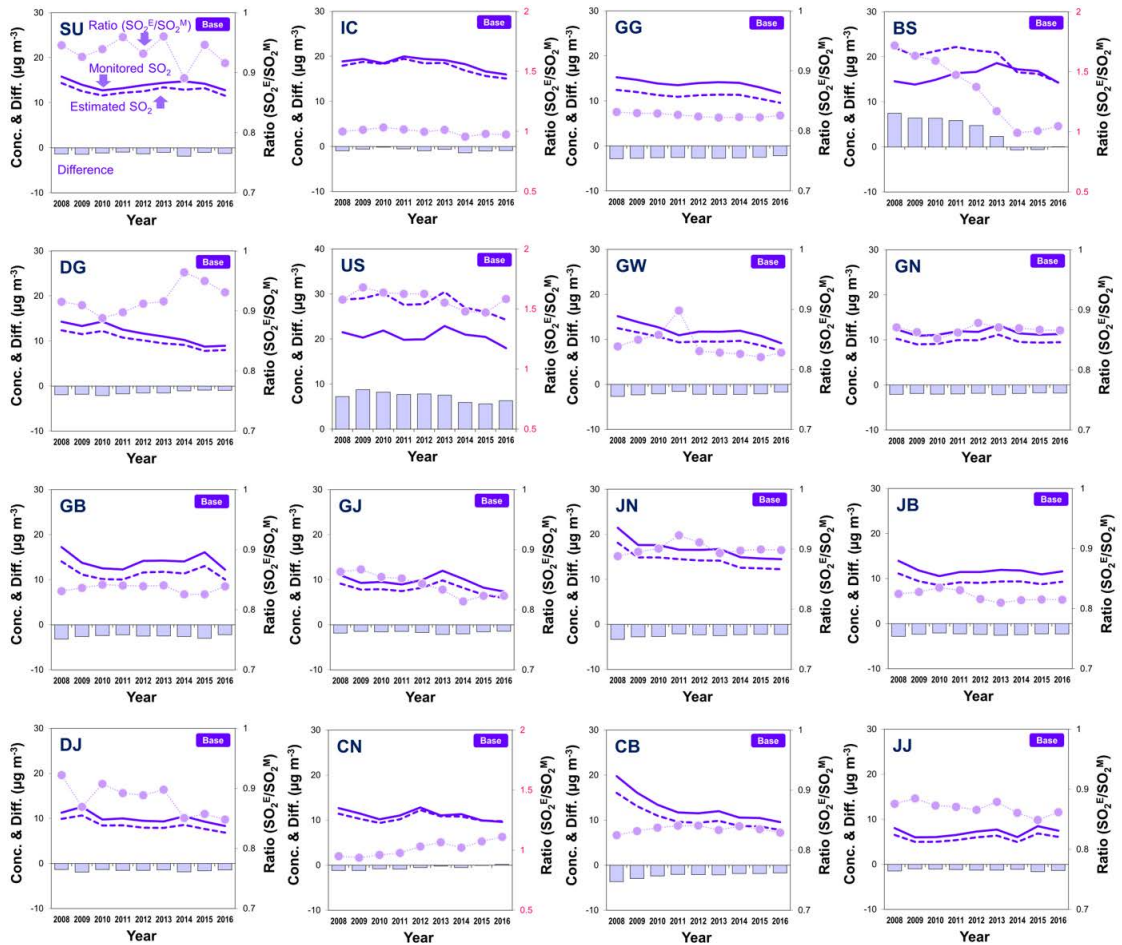


Fig. S1. Annual trends of monitored vs. estimated concentrations of sulfur dioxide (SO_2) on base case by district between 2008 and 2016 in Korea (raw data of monitored SO_2 : KECO, 2019).

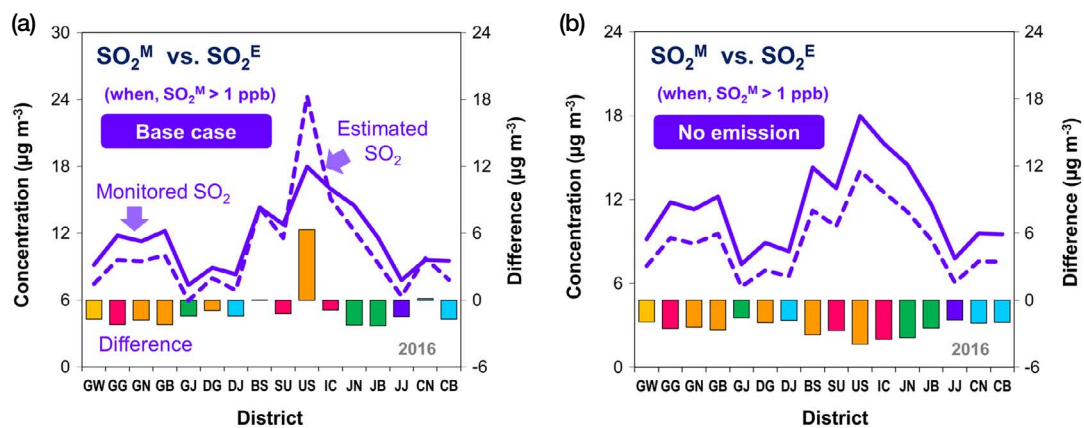


Fig. S2. Monitored vs. estimated concentrations of sulfur dioxide (SO_2) on (a) base case and (b) no emission case by district in Korea in 2016 when the monitored SO_2 concentration is larger than 1 ppb (raw data for monitored SO_2 : KECO, 2019).