

논문

박스모델 기반 자료동화법을 활용한 오존 생성 전구물질 유입량의 시간해상도 분석

Time-resolved Analysis of Ozone Precursor Influx Using Box Model-based Data Assimilation Techniques

김정환, 김기완¹⁾, 안준영²⁾, 장임석³⁾, 이강웅*

한국외국어대학교 환경학과, ¹⁾시프테크놀로지스 코리아 영업팀,
²⁾국립환경과학원 기후대기연구부 대기환경연구과, ³⁾국립환경과학원 환경위성센터

Jeonghwan Kim, Giwan Kim¹⁾, Joon-Young Ahn²⁾, Limseok Chang³⁾,
Gangwoong Lee*

Department of Environmental Science, Hankuk University of Foreign Studies, Yongin,
Republic of Korea

¹⁾Business Development & Account Management, Syft Technologies Korea, Seongnam, Republic of Korea

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

³⁾Environmental Satellite Center, National Institute of Environment Research, Incheon, Republic of Korea

접수일 2025년 3월 12일
수정일 2025년 4월 19일
채택일 2025년 5월 7일

Received 12 March 2025
Revised 19 April 2025
Accepted 7 May 2025

*Corresponding author
Tel : +82-(0)31-330-4273
E-mail : gwlee@hufs.ac.kr

Abstract Accurate representation of precursor emissions and photochemical processes is essential for improving ozone (O₃) simulations in air quality models. In this study, we incorporated a wide range of observational constraints and photolysis rates derived from model calculations that reflect real atmospheric conditions to enhance O₃ simulations using a box model. However, despite the inclusion of these comprehensive observational inputs, the model exhibited limitations in reproducing observed O₃ concentrations accurately. To address this issue, a nudging-based data assimilation technique was applied to optimize precursor influx - including both transport and emissions - while maintaining the physical and chemical consistency of the model for subsequent applications, such as sensitivity analysis. When using the original emission inventory, nitrogen oxides (NO_x), toluene, formaldehyde (HCHO), and other precursors were overestimated, whereas the carbon monoxide (CO), sulfur dioxide (SO₂), and isoprene were underestimated. However, the assimilated influxes reduced these discrepancies. Additionally, diurnal variation analysis revealed that the assimilated influxes better captured time-dependent emission characteristics and statistical analysis indicated that the correlation coefficient between the observed and modeled results significantly improved, both demonstrating the enhanced capability of the assimilated influxes to capture observed trends. These improvements in precursor representation ultimately led to a more accurate simulation of O₃, both in terms of absolute concentrations and temporal variations. The results emphasize the importance of integrating reliable observational constraints and data assimilation techniques in air quality modeling to achieve more reliable predictions of O₃ and its precursors, which are crucial for the development of effective air pollution control strategies.

Key words: Ozone, Box model, Influx, Nudging

1. 서론

산업단지의 확장, 인구 증가 및 급속한 경제 성장에 따라 대기오염물질 배출이 지속적으로 증가하면

서, 국내 대기환경 개선이 시급한 과제로 대두되었다 (Kim *et al.*, 2018; Kim *et al.*, 2016). 이에 따라 정부는 1978년 대기환경보전법을 제정한 이후 청정연료 사용 의무화, 저유황유 사용 확대, 배출허용기준 강화 등

대기오염 저감 정책을 지속적으로 개정 및 강화해 왔다. 이러한 노력의 결과로 이산화황(SO₂), 일산화탄소(CO), 미세먼지(PM₁₀) 등 1차 오염물질의 농도는 감소하는 추세를 보였으나(Kim *et al.*, 2018; Kim and Yeo, 2013; Yoo *et al.*, 2011; Ha *et al.*, 2006), 2차 오염물질의 경우 복잡한 생성 메커니즘으로 효과적인 저감이 어려운 실정이다(Park *et al.*, 2024; Lee *et al.*, 2023; Kim *et al.*, 2021, 2018).

오존은 대표적인 2차 광화학 오염물질로서, CO, 질소산화물(NO_x = NO + NO₂), 휘발성유기화합물(VOCs) 등과 같은 전구물질의 광화학 반응을 거쳐 생성된다. 이 전구물질들은 주로 자동차 배기가스 및 산업단지에서 배출되며, 특히 대도시 지역에서는 NO_x 및 VOCs의 농도가 높아 과량의 오존이 생성되어 광화학 스모그를 유발할 수 있다(Kim *et al.*, 2020; Fleming *et al.*, 2018; Monks *et al.*, 2015). 전구물질 외에도 다양한 요인에 의해 현재 국내(Park *et al.*, 2024; Lee *et al.*, 2023; Kim *et al.*, 2021, 2018; Yeo and Kim, 2021; Kang *et al.*, 2019; Ju *et al.*, 2018)뿐만 아니라 동아시아 지역(Wang *et al.*, 2022; Li *et al.*, 2022; Gao *et al.*, 2017; Akimoto *et al.*, 2015; Wei *et al.*, 2014)에서 오존 농도는 장기적으로 증가하는 추세이다.

따라서 오존의 생성 및 소멸 과정을 보다 정량적으로 이해하고 예측하기 위해 대기화학 모델이 널리 활용되고 있다. 특히, 박스모델은 대기 중 화학 반응을 비교적 간단하면서도 상세하게 모사할 수 있는 도구로, 다양한 연구에서 오존 농도 변동성을 분석하고 광화학 반응 메커니즘을 규명하는 데 활용되어 왔다(Place *et al.*, 2023; Gil *et al.*, 2021; Kim *et al.*, 2020; Tan *et al.*, 2019). Tan *et al.* (2019)은 Regional Atmospheric Chemical Mechanism version 2 (RACM2)를 기반으로 한 박스모델을 활용하여 중국의 대표적인 4개 도심 지역(베이징, 상하이, 광저우 및 텐진)에서 과산화 라디칼(RO_x)의 산정을 증점적으로 수행하고, 오존 생성률과 이에 기여하는 VOCs의 화학종별 기여도를 정량적으로 평가하였다. Place *et al.* (2023) 또한 미국 북동부 지역의 지표 오존 생성에 대한 VOCs의 기여도를

분석하기 위해 Framework for 0-D Atmospheric Modeling (FOAMv4.2) 모델에 Community Regional Atmospheric Chemistry Multiphase Mechanism (CRACMM v1.0)을 적용하였다.

국내 연구로는 Gil *et al.* (2021)과 Kim *et al.* (2020)이 본 연구와 동일한 측정 기간인 2016년 KORUS-AQ 실험 기간 동안 FOAM 박스모델에 Master Chemical Mechanism (MCMv3.3.1)을 적용하여, 오존 생성에 기여하는 주요 전구물질과의 관계를 분석하였다. Gil *et al.* (2021)은 HONO의 광분해를 통해 생성되는 OH 라디칼이 오전 시간대 VOC 산화를 촉진하여, 오존 형성에 상당한 영향을 미친다고 보고하였다. 반면 Kim *et al.* (2020)은 오존 전구물질인 NO_x 및 VOC의 농도 변화와 기상 인자를 함께 고려하여, 고농도 오존 발생의 시공간적 특징과 그 제어 인자를 정량적으로 분석하였다. 최근 순천대학교와 국립환경과학원에서는 CMAQ 수송 모델을 기반으로 대기오염물질의 확산, 이동 및 시공간 농도 변화를 모사하는 한국형 대기질 박스모델(KAB)을 개발하였다. 해당 모델은 수도권 지역에서 관측된 대기오염 농도를 활용하여 2차 무기 에어로졸 형성을 모사하는 데 신뢰할 수 있는 도구로 평가되었다(Lee *et al.*, 2022). 이처럼 박스모델은 다양한 분야 특히 오존 농도를 정량적으로 평가하고, 오존 생성 과정에 기여하는 주요 인자들을 분석하는 데 중요한 역할을 하고 있다.

박스모델을 활용한 연구에서 정확한 오존 모사를 위해서는 입력자료의 신뢰성이 필수적으로 요구되며, 이에 따라 모델을 활용한 많은 연구들은 오존의 생성에 미치는 요인들을 정확하게 모사하기 위해 다양한 방법을 적용하였다(Travis *et al.*, 2024; Place *et al.*, 2023; Gaubert *et al.*, 2020; Tan *et al.*, 2019; Tang *et al.*, 2016; Righi *et al.*, 2015). 앞서 언급한 Tan *et al.* (2019)은 isoprene과 nitrous acid (HONO)의 배출량을 추가하였고 Righi *et al.* (2015)은 모델을 활용하여 자료 동화를 적용 여부 및 배출량, 해수면온도, 해빙온도 등 경계 조건을 변화시켜 오존 및 기후 인자 모사에 미치는 영향을 평가하였다. 또한, 번개에 의한 NO_x 배출

량 감소 및 hydroperoxyl (HO_2)과 NO 반응을 통한 nitric acid (HNO_3) 추가 생성이 대류권 오존 과대 모사를 완화하는 데 기여함을 확인하였다. 이와 같이 기존 모델에서 누락된 물질의 배출량, 관측 농도 및 화학반응 등 입력자료를 보완하는 방법을 적용하였다.

배출량 최적화에 초점을 맞춘 연구들도 활발히 진행되어 왔다. Place *et al.* (2023)은 VOCs의 배출량을 갱신하여 오존 모사의 정확도를 개선하였으며, Tang *et al.* (2016)은 NO_x 배출량을 최적화함으로써 모델에서 재현된 오존 농도의 신뢰도를 높였다. 이와 유사하게, Gaubert *et al.* (2020)은 VOCs 배출량의 최적화를 강조하여 과소평가될 경우 오존 농도 예측에 미치는 영향을 분석하였으며, Travis *et al.* (2024)은 CO 배출량의 과소평가가 오존 생성에 미치는 영향을 평가하면서 배출량 최적화를 통해 오존 농도의 정확성을 향상시켰다.

국내 KORUS-AQ 캠페인 자료를 활용한 기존 선행 연구들은 오존 생성 기작의 해석에 중점을 두어, 실측 농도를 기반으로 주요 전구물질의 상대적 기여를 정성적으로 평가하였다(Gil *et al.*, 2021; Kim *et al.*, 2020). 반면, 본 연구는 오존 생성 민감도 분석 수행을 위한 정량적 기반 자료를 구축하는 데 목적을 두고 있으며, 타지역으로부터의 수송이 직접적으로 반영되지 않는 박스모델의 구조적 한계를 보완 및 입력 배출량의 시간 변동성 재현을 위해 자료동화 기법을 적용하였다. 이와 같은 접근은 오존 농도 재현의 정밀도를 높이고, 향후 민감도 분석에서 보다 현실적인 입력 조건을 제공할 수 있는 기반을 마련한다는 점에서 기존 연구들과 차별성을 가진다. 이를 위해, 본 연구는 입력자료의 대부분을 KORUS-AQ 캠페인 기간 동안의 실제 관측 값으로 설정하여 초기 및 환경 조건의 현실성을 높였고 배출량 인벤토리(KORUSv5)에 자료동화 기법을 적용하여 시간대별로 정밀하게 보정된 유입량(=이동량+배출량)을 도출하였다. 이러한 접근을 통해, 최종적으로 서울 지역의 효과적인 대기오염 저감 전략 수립과 오존 생성 메커니즘에 대한 민감도 분석 수행을 위한 정량적 기반 자료 구축을 목표로 하였다.

2. 실험 방법

2.1 측정장소

본 연구에서는 오존의 정확한 모사를 위해 KORUS-AQ 2016 캠페인 기간의 관측 자료를 활용하였다. KORUS-AQ 2016 캠페인은 비교적 미세먼지 및 오존 농도가 높은 늦봄에서 초여름인 2016년 5월 1일부터 6월 12일까지 한·미 공동 국제 대기질 조사이다. 총 130여 개의 연구 기관이 참여하였고 항공기, 위성, 지상 및 해상 관측망을 총동원하여 다양한 대기질 자료를 수집하였다.

캠페인 기간 동안 총 4가지의 대표적인 종관 기상 패턴이 관측되었다(Peterson *et al.*, 2019). 5월 초(1~16일)에는 강한 제트류와 중위도 저기압의 영향을 받는 동적 기상 조건이 지배적이었다. 이 시기에는 황사 및 오염물질이 상층으로 수송되면서 복잡한 에어로졸 수직 분포가 형성되었고, 이에 따라 오존 및 미세먼지 농도가 크게 변동하였다. 이어지는 5월 중순(17~22일)에는 한반도 상공에 고기압이 장기간 정체하면서 오염물질의 확산이 제한되었고, 이로 인해 대기 중에 축적된 1차 및 2차 오염물질 농도가 급격히 증가하였다. 5월 말(25~31일)에는 약한 한랭 전선이 통과하면서 저층에서의 수평 수송이 활성화되었고, 이로 인해 안개 및 스모그가 형성되면서 지표면 NO_2 및 $\text{PM}_{2.5}$ 농도가 뚜렷하게 증가하였다. 동시에 광화학 반응에 유리한 조건이 조성되어 오존 농도도 상승하였다. 6월 초(1~7일)에는 차단형 블로킹 패턴이 형성되면서 기류가 차단되고 장거리 수송이 억제되어 오염물질 축적이 우세한 조건이 유지되었다. 이 시기에는 대기 정체와 강한 일사 조건이 겹치면서 광화학 반응이 활발하게 일어나 오존 농도가 지속적으로 높게 유지되었다. 마지막으로 6월 8일 이후에는 약한 한랭 전선의 유입으로 강수일을 제외한 날들은 오존과 $\text{PM}_{2.5}$ 농도가 높은 수준을 유지하였다.

본 연구에서는 KORUS-AQ 캠페인 기간 중 서울시 송파구 방이동에 위치한 올림픽공원(37.52°N, 127.12°E)에서 측정된 자료를 활용하였다(그림 1). 을

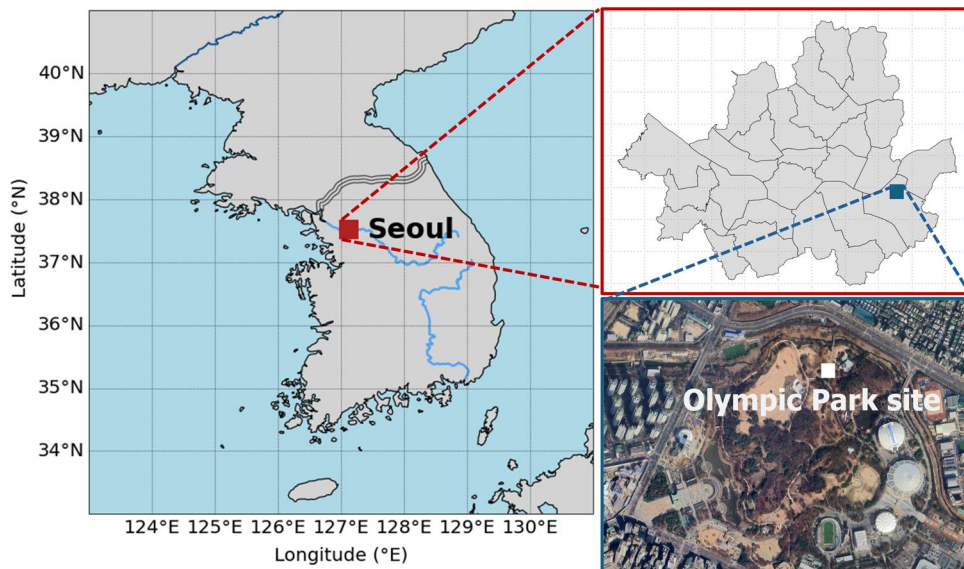


Fig. 1. Location of the Olympic Park site (37.52°N, 127.12°E) during the KORUS-AQ 2016 campaign.

림픽공원은 서울 동부에 위치하며 교통량이 많은 도로에 인접해 있어 자동차 배출원의 영향을 크게 받는다. 또한 주변에 대규모 아파트 단지가 조성되어 인구 밀집도가 높아, 도심 지역 대기오염 특성을 반영하는 대표 지점으로 평가된다(Gil *et al.*, 2021; Kim *et al.*, 2020; Jeong *et al.*, 2017). 모델 모사 기간은 KORUS-AQ 캠페인 기간 중 측정 장비가 안정화되고, 주요 대기오염물질의 결측치가 존재하지 않는 5월 20일부터 6월 12일까지 총 24일간으로 설정하였다. Peterson *et al.* (2019)의 연구에 따르면, 이 기간은 전반적으로 정체 및 차단형 블로킹 고기압의 영향이 우세하여 광화학 반응이 활발히 일어나는 기상 조건이 지속되었고, 이로 인해 지역 배출원의 영향이 지배적으로 작용하였다. 특히 5월 25일부터 31일 사이에는 일시적으로 장거리 이동이 관측되었으나, 전체 기간을 통틀어 도심 지역에서의 오염물질 축적과 지역 배출의 영향이 더욱 뚜렷하게 나타났다. 이러한 점에서 올림픽공원은 국지 배출과 광화학 반응 간의 상호작용을 정량적으로 평가할 수 있는 적절한 관측 지점으로 평가된다.

2.2 BOXMOX 모델

본 연구에서는 Knote *et al.* (2015)이 개발한 BOXMOX 모델을 활용하여 오존 생성 및 소멸 메커니즘을 모사하였다. BOXMOX는 FORTRAN, Matlab, Python 및 기타 C 기반 코드 환경에서 실행이 가능하며, 기존의 Kinetic PreProcessor (KPP; Sandu and Sander, 2006)를 기반으로 개발된 확장형 박스모델이다(Knote *et al.*, 2015). KPP는 화학 반응 메커니즘을 기반으로 Ordinary Differential Equations (ODE) 시스템을 자동 생성하는 기능을 제공하지만, 초기 및 경계 조건, 기상 변수 등 외부 환경 정보를 직접적으로 입력하거나 시뮬레이션 내에서 처리하는 기능은 제한적이다. 이러한 한계를 보완한 BOXMOX는 다양한 초기 조건 및 환경 변수인 광분해율, planetary boundary layer (PBL) 고도, 온도 등을 간단한 텍스트 형식으로 입력할 수 있도록 구성되어 있으며, 배출, 침강, 혼합 등의 과정도 함께 모사할 수 있어 실제 대기환경 조건을 보다 정밀하게 반영할 수 있다(Knote *et al.*, 2018).

BOXMOX 모델은 다수의 선행 연구를 통해 그 활용성과 신뢰성이 입증된 바 있다. Knote *et al.* (2015)은

Air Quality Modelling Evaluation International Initiative (AQMEII) Phase 2에 참여한 여러 지역 대기질 모델들이 사용하는 가스상 화학 메커니즘을 BOXMOX 환경에서 상호 비교하였다. 해당 연구에서는 고정된 기상 조건과 동일한 초기 및 경계 조건 하에서 시뮬레이션을 수행함으로써, 8종의 화학 메커니즘에 대한 오존 및 라디칼 생성 성능을 비교하였으며, 이는 박스 모델을 활용한 메커니즘 검증의 유용성을 보여주었다. 또한 Zheng *et al.* (2017)은 BOXMOX를 활용하여 미국 중부 오크립 지역에서 가뭄 조건이 생물기원 탄화수소 배출 및 HCHO 농도에 미치는 영향을 분석하였다. 해당 연구는 온도 및 수분 변화에 따른 isoprene 배출의 변화와 이에 따른 2차 오염물질의 농도 변화를 정량화하며, BOXMOX의 기후-생물-대기 상호작용 분석에의 적용 가능성을 입증하였다. Archibald *et al.* (2020) 또한 BOXMOX를 활용하여 전 세계적 오존 변동 요인을 정량화하였으며, 선진국과 개발도상국 간의 배출 저감 정책 효과에 따른 지표 오존의 변화 예측에도 활용하였다. 이와 같이 BOXMOX 모델은 다양한 기상 조건과 오염물질 조합 하에서도 신뢰할 수 있는 결과를 제공하였다.

BOXMOX는 다양한 가스상 화학 반응 메커니즘을 내장하고 있으며, 본 연구에서는 이 중 CB05TUCL 메커니즘을 기반으로 일부 반응을 수정하여 적용하였다. CB05TUCL은 CB05 메커니즘을 기반으로 toluene과 chlorine의 화학 반응을 추가한 메커니즘으로, 다양한 대기질 모델에 적용되어 오존 모사에 널리 활용되고 있다(Tang *et al.*, 2021; Hembeck *et al.*, 2019; Kitayama *et al.*, 2019; Gantt *et al.*, 2017; Knote *et al.*, 2015). Knote *et al.* (2015)에서는 CB05 및 그 파생 메커니즘(CB05TUCL 포함), MCM과 같은 고복잡도 메커니즘에 비해 계산 효율성이 높고, 오존 및 NO_x, 라디칼(OH, HO₂) 등의 주요 오염물질 농도 예측에 있어서 안정적인 성능을 보였다. CB05TUCL은 본래 107개의 화학 종과 199개의 반응으로 구성되어 있으며, 본 연구에서는 여기에 에어로졸 표면에서의 불균질 반응을 통한 HO₂ 라디칼 제거 과정을 추가함으로써 수정 메

커니즘을 구축하였다. 이를 이용해 대류권 경계층 내의 일변화 주기를 모사하였다.

BOXMOX 모델 입력자료 중 초기 농도조건을 KORUS-AQ 캠페인 기간 동안 관측한 1시간 평균 자료를 사용하였으며 동시에 Automatic Weather Station (AWS)을 통해 수집한 기온 자료를 활용하였다(표 1). 박스모델 내에서 기상 변수들은 오존 및 전구물질의 광화학 반응과 확산 과정을 정밀하게 모사하는 데 중요한 요소로 반영되었다. 기온과 기압은 시간에 따라 변화하는 값을 적용하여 화학 반응 속도 및 공기 밀도 계산에 활용하였으며, 관측이 이루어지지 않은 광분해율은 미국 National Center for Atmospheric Research (NCAR)에서 개발한 Tropospheric Ultraviolet and Visible radiation (TUV) 모델을 통해 산출하였다. TUV 모델의 입력 변수로는 실제 대기 환경을 최대한 반영하기 위해, NASA Aqua/Terra 위성에 탑재된 Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) 자료를 활용하여 산출된 Cloud Optical Depth (COD) 및 Aerosol Optical Depth (AOD)를 적용하였다. 이를 통해 구름 및 에어로졸의 광학적 특성을 고려함으로써, 보다 현실적인 광분해율을 산출하고자 하였다. 오존 컬럼 데이터는 Kim *et al.* (2005)에서 제시한 서울 지역의 오존 전량 시계열(1979~2004)을 기반으로 하였다. 해당 연구에서는 Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) 위성 자료와 지상 Dobson 분광기 관측 값을 통합하여 월별 오존 전량을 재구성하였으며, 본 연구에서는 이 월평균값을 선형 보간하여 일 평균값으로 변환하여 TUV 모델 입력으로 활용하였다.

PBL 고도 자료는 서울 중랑구 측정소(올림픽공원에서 북쪽으로 약 8.62 km 지점)에 설치된 ceilometer 장비로 측정하였으며 시간대별 변화를 고려하여 적용함으로써 낮 동안의 경계층 확장과 야간 수축에 따른 연직 혼합의 변화를 반영하였다. 이로 인해 대기 중 오존 전구물질의 희석 및 축적 정도가 시각별로 조절되어, 실제 대기 중에서 발생하는 연직 확산 효과를 모사할 수 있었다. 이러한 기상 변수의 반영은 모델의 광화학 반응 재현성과 오존 모의 정확도 향상에 크게 기

Table 1. Summary of the parameters utilized in BOXMOX model.

Input	Parameters	
Initial concentration	O ₃ , NO _x , CO, SO ₂	KRISS ^a
	HONO, H ₂ O ₂	HUFS ^b
	HCHO, HNO ₃ , toluene, xylene	SIHE ^c
	Isoprene, PAR (n-butane + propane)	Air pollution monitoring network
Environment	PBL height	Ceilometer at Jungnang-gu
	Temperature	AWS at Olympic Park
Emissions	KORUSv5	
Photolysis rates	Calculated using measured COD and AOD data from Tropospheric Ultraviolet and Visible (TUV) radiation model	
	COD (Cloud Optical Depth)	Aqua/Terra MODIS data
	AOD (Aerosol Optical Depth)	Aqua/Terra MODIS data
Aerosol	Calculated using measured total number concentrations of aerosol and PM ₁₀ concentrations Aerosol size distribution 10.6 nm~18.5 μm	
Background	Default	
Deposition	Default	
Mechanism	CB05TUCI	107 species (Aerosol = 24; Gas = 83)
	(With additional HO ₂ aerosol surface scavenging)	199 reactions

^aKorea Research Institute of Standards and Science

^bHankuk University of Foreign Studies

^cSeoul Research Institute of Public Health and Environment

여하였다.

보다 정밀한 오존 모사를 위해 본 연구에서는 HO₂ 라디칼의 영향을 추가적으로 고려하였다. HO₂ 라디칼은 대기 중에서 중요한 산화제로 작용하며, NO 및 NO₂와의 반응을 통해 대류권 오존 생성을 유도하는 전구물질로 알려져 있다(Bedjanian *et al.*, 2013). 그러나 HO₂는 에어로졸 표면에서의 불균질 반응(heterogeneous reaction)을 통해 제거될 수 있으며, 이는 대기 중 HO₂ 농도와 광화학 반응 메커니즘에 영향을 미쳐 결과적으로 오존 생성에 중요한 역할을 한다(Kohno *et al.*, 2022; Song *et al.*, 2022; Huijnen *et al.*, 2014). 특히, Kohno *et al.* (2022)의 연구에 따르면, 에어로졸 표면에서 일어나는 HO₂ 제거 반응으로 인해 오존 생성률을 약 20% 저하시키는 것으로 평가되었다. 따라서 본 연구에서는 에어로졸 표면에서의 HO₂ 라디칼의 제거율을 보다 정밀하게 반영하기 위해, Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) 장비로 측정된 입자 수

농도 자료를 이용하였다. 이를 통해 시간대별 총 입자 수 농도와 질량 농도에서 Surface Area Density (SAD)를 산출하였다. 그 값을 모델 입력으로 반영하였다. 또한, CB05TUCI 메커니즘에 에어로졸 표면에서의 HO₂ 라디칼 제거율(γ_{HO_2})을 추가하고 Li *et al.* (2019)에서 제시한 0.2로 설정하였다. 이는 HO₂가 에어로졸 입자와 충돌 시 비가역적으로 제거될 확률을 반영한 값으로, 오존 모사의 정확도를 향상시키기 위한 중요한 입력 요소로 활용되었다.

본 연구에서 사용한 배출량 자료는 KORUS-AQ 현장 관측 캠페인을 지원하기 위해 개발된 KORUSv5 인벤토리로, 국내 지역의 격자 해상도는 3 km, 아시아 지역은 0.1도로 인위적 배출원을 기반으로 제작되었다. 해당 인벤토리는 CREATE (Comprehensive Regional Emissions inventory for Atmospheric Transport Experiment)를 바탕으로 하며, 한국은 Clean Air Policy Support System (CAPSS) 배출 인벤토리를 통합하여 구축

되었다(Woo *et al.*, 2020). KORUSv5는 총 13종의 대기오염물질(SO₂, NO_x, CO, VOCs, NH₃, PM₁₀, PM_{2.5} 등)을 포함하고 있지만 BVOCs의 배출량 자료는 없으며, 배출량은 SAPRC-99 화학 메커니즘 기준으로 종이 분류되어 월별 시간 가중치 기반의 Sparse Matrix Operator Kernel Emissions-ASIA (SMOKE-ASIA) 처리 과정을 거쳐 대기질 모델 입력용 형식으로 제공된다(Woo *et al.*, 2012). 하지만 본 연구에 활용된 박스모델은 고정 격자 기반의 2차원 인벤토리를 직접 사용할 수 없기 때문에, KORUSv5의 서울 지역 배출량을 대표값으로 산정한 후, 관측값과의 오차를 기반으로 시간해상도가 반영된 형태로 보정하였다. 이는 관측 자료를 기반으로 2.3. 섹션에 소개할 nudging 기법을 적용하여 수행하였으며, 결과적으로 약 한 달 동안의 시간별 유입량 변화를 재현할 수 있었다.

2.3 자료동화

본 연구는 오존 생성 민감도 분석에 활용할 수 있는 정량적 기반 자료를 구축하고자 다양한 입력자료 중 배출량 자료의 중요성을 인지하고 KORUSv5 배출 인벤토리를 기반으로 최적화된 박스모델의 유입량으로 환산 후 반영하였다. 초기 KORUSv5 배출 인벤토리는 월별 해상도를 가지며, 시간대별 변동이 없으므로 모의 결과에 편향을 초래하는 한계를 갖는다. KORUSv5 이외에도 대부분의 배출 인벤토리는 월별 또는 연간 해상도를 가지므로 이러한 한계를 보완하기 위해 다양한 자료동화 기법이 도입되어 왔으며, 대표적으로 interpolation (Tombette *et al.*, 2009; Adhikary *et al.*, 2008), variational methods (Baker *et al.*, 2006; Elbern and Schmidt, 2001) 및 ensemble Kalman filter (Lei and Hacker, 2015) 기법이 활용되고 있다. 본 연구에서는 여러 자료동화 기법 중 하나인 nudging 기법을 적용하였다. 이 기법은 비교적 간단한 연속적 자료동화 기법으로, 다양한 연구에서 성공적으로 적용된 바 있으며(Tran *et al.*, 2018; Lei and Hacker, 2015; Bei *et al.*, 2008) 기본 원리는 예측 방정식 내에 조정 항을 추가하여 모델 예측값과 관측값의 차이를 점진적으로 줄임으로써, 최종적으로 모델이 관측값에 수렴하도록

유도한다. 배출량 자료를 개선하기 위한 nudging 방법의 수식은 다음과 같다(식 (1)).

$$\begin{bmatrix} E_{1n+1} \\ E_{2n+1} \\ \vdots \\ E_{mn+1} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_{1n} \\ E_{2n} \\ \vdots \\ E_{mn} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} (1 + \eta_{1n}) \left(\frac{C_{1t} - C_{1n}}{C_{1t} + C_{1n}} \right) \\ (1 + \eta_{2n}) \left(\frac{C_{2t} - C_{2n}}{C_{2t} + C_{2n}} \right) \\ \vdots \\ (1 + \eta_{mn}) \left(\frac{C_{mt} - C_{mn}}{C_{mt} + C_{mn}} \right) \end{bmatrix} \quad (n = 1, 2, \dots, n) \quad (1)$$

식 (1)은 nudging 기법의 반복(iterative) 과정을 나타낸다. 이 기법은 여러 대기오염물질에 대해 동시에 적용이 가능하며, 특정 시점의 모의 농도값(C_{mn})과 관측값(C_{mt}) 간의 상대 오차를 이용해 기존 배출량(E_n)을 새로운 값(E_{n+1})으로 갱신해 나간다. 여기서 C는 시간에 따른 오염물질 농도를 나타내는 1차원 시계열이며 식에 포함된 nudging 계수(η_{mn})는 조정 속도를 결정하는 매개변수로서, 값이 클수록 빠른 수렴을 유도하고 작을수록 점진적인 조정을 수행한다. 따라서, 안정적인 수렴을 위해 η_{mn} 값의 설정은 매우 중요하며, 실험적으로 결정되는 과정이 요구된다.

3. 결 과

3.1 모사 횟수의 적합성 평가

본 연구에서는 KORUSv5 배출 인벤토리를 기반으로 CO, SO₂, NO_x, toluene, xylene, isoprene, PAR, HCHO 및 HONO의 유입량을 보정하였다. 배출량 자료를 기반으로 유입량을 산정하기 위한 최적 모사 횟수는 Root Mean Squared Error (RMSE)를 이용하여 산출하였으며, 이는 모의 결과와 실제 관측값 간의 차이를 정량적으로 평가하는 지표이다(식 (2)). 본 연구에서는 시계열 전 구간에 대해 RMSE를 계산하였으며, 이는 nudging 반복 수행 과정에서 오차가 수렴하는 정도를 수치적으로 평가하고, 최적의 반복 횟수를 설정하는 기준으로 활용되었다.

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_1^n (C_n - C_{n-1})^2}, \quad (n = 0, 1, 2, \dots, n) \quad (2)$$

그림 2는 각 오염물질의 유입량 보정을 위해 nudging 기법을 30회 반복 적용한 결과와 평균 RMSE 값의 변화를 나타낸다. 분석 결과, NO_x, HONO, CO, SO₂, toluene 및 xylene의 경우 반복 횟수가 증가함에 따라 RMSE 값이 점진적으로 감소한 후 일정 수준에서 수렴하는 경향을 보였으며 isoprene은 반복 횟수에 따라 RMSE 값이 상대적으로 적지만 꾸준히 감소하였다. 반면, PAR과 HCHO의 경우 반복 횟수가 증가할수록 RMSE 값이 다시 증가하는 패턴을 나타냈다. 특히, CO, SO₂, NO_x와 같은 주요 가스상 오염물질의 경우, 약 10~15회 반복 이후 RMSE 값이 안정화되었으며, 이는 유입량 산정이 특정 횟수 이상 진행될 경우 추가적인 개선 효과가 제한적임을 의미한다. 오존의 경우, 6번째 시뮬레이션에서 RMSE 값이 최소(0.017)를 기록한 후, 반복 횟수가 증가함에 따라 RMSE 값이 다시 상승하는 경향을 보였다. 이는 유입량 산정이 6회 이상 진행될 경우, 모델의 성능이 개선되지 않을 뿐만 아니라 오히려 정확도가 저하될 수 있음을 의미한다.

따라서, 본 연구에서는 오존을 기준으로 유입량 보정을 위한 최적의 모사 횟수를 6회로 결정하였다.

3.2 유입량 자료의 일변화 경향 비교

그림 3은 KORUSv5 배출 인벤토리와 nudging 기법을 적용하여 보정된 유입량의 일변화를 비교한 결과이다. CO, SO₂, HONO 및 PAR은 자료동화 후 각 77%, 100%, 85%, 48% 증가하여 기존 인벤토리에서 과소평가되었음을 보여준다. 반면, NO_x는 22% 감소하며, 이를 구성하는 NO와 NO₂는 각각 20%, 35% 감소하여 KORUSv5 인벤토리에서의 과대 평가가 효과적으로 보정되었음을 나타낸다. VOCs의 경우, toluene은 22% 감소, xylene은 29% 증가하여 서로 상반된 경향을 보였는데, 이는 VOC 종류별로 주요 배출원의 특성이 다르게 반영된 결과로 해석된다. Isoprene과 HCHO의 유입량은 각각 기존 배출량보다 37% 및 76% 증가하여, 과소평가되었던 배출량이 효과적으로 보정되었다. 또한, 기존 KORUSv5 배출량은 시간대별 변동 없이 일정한 값을 유지하는 반면, nudging 기법을 적용한 후에는 실제 배출 및 이동 특성을 반영하여 시간대별 변화가 보다 뚜렷하게 나타났다. 이는 단순히 배출량의 총량을 조정하는 것에 그치지 않고, 실제 관측된 대기 중 농도와의 동화를 통해 배출 및 이동과정의 시간적 변동성을 효과적으로 재현할 수 있음을 보여준다.

Nudging 기법 적용 후, 다수의 오염물질에서 시간대별 거동 특성이 보다 뚜렷하게 나타났다. NO_x의 경우 교통량 증가에 따른 배출 특성이 반영되어 오전과 오후 두 차례 피크를 형성하는 경향을 보였지만 (de Foy, 2018) 기존 KORUSv5 배출량에서는 NO_x는 시간대별로 일정한 값을 유지하고 있다. SO₂ 배출량은 주로 산업 및 화석연료 연소 배출이 주요 기여원으로 작용하며, 기존 배출 인벤토리에서 해당 부문의 배출량이 과소 반영되었음을 나타낸다 (Lin *et al.*, 2012). HONO는 오전에 해가 뜨면서 광화학 반응을 통해 급격히 증가하는 경향을 보이며 오후 시간대에는 많은 선행 연구에서 발표한 결과와 마찬가지로 밝혀지지

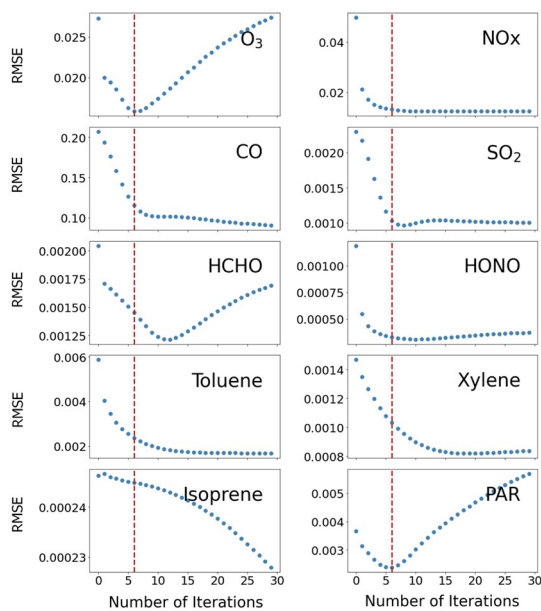


Fig. 2. Comparison of RMSE values with the number of iterations for each pollutant. The red dashed line represents the 6th iteration of the simulation.

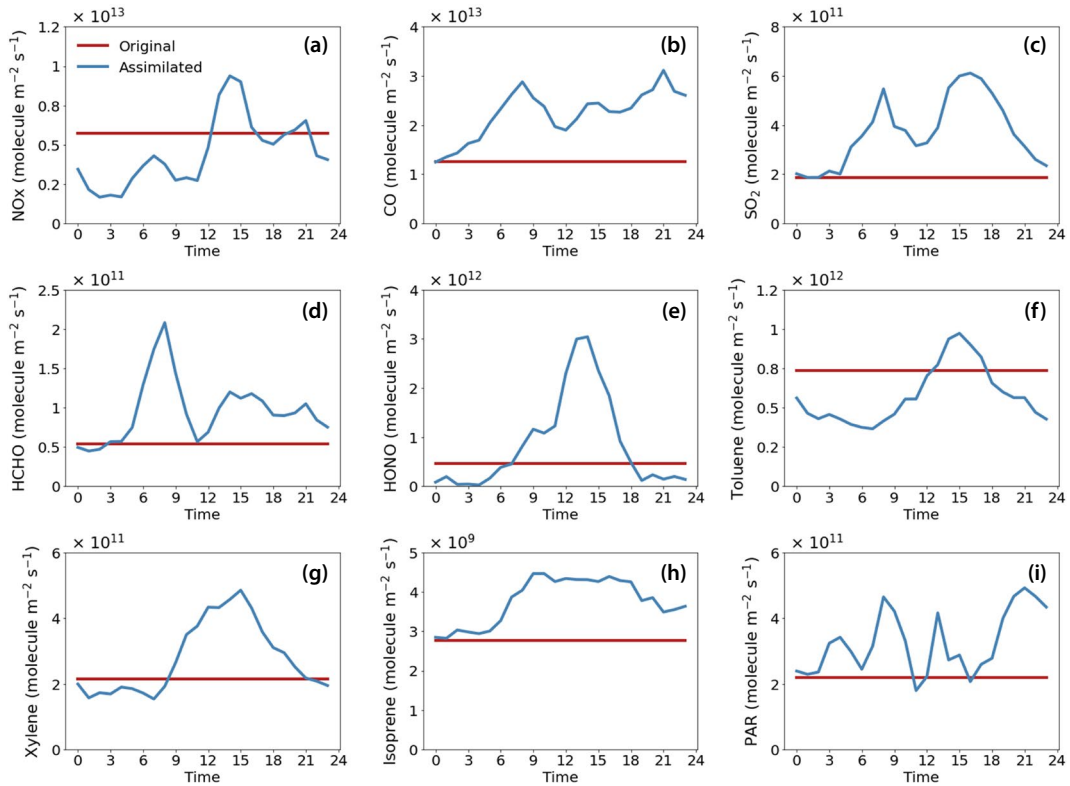


Fig. 3. Diurnal variations of original KORUSv5 emission (red) and assimilated influx (blue) for (a) NO_x, (b) CO, (c) SO₂, (d) HCHO, (e) HONO, (f) toluene, (g) xylene, (h) isoprene, and (i) PAR.

않은 배출원들에 의해 높은 배출량을 유지하다 저녁이 되면서 다시 감소하는 경향을 보였다(Zhang *et al.*, 2023; Gil *et al.*, 2021).

VOCs의 경우, 교통뿐 아니라 산업, 생활 배출원 및 이동 특성 등의 복합적 영향을 받은 것으로 나타난다. Nudging 기법 적용 후 toluene과 xylene의 배출량은 오전에 증가하기 시작하여 오후 3시경 최대값을 보인 후 감소하는 패턴을 보였다. 또한, 두 물질은 교통 배출뿐만 아니라 이동 영향과 밀접한 관련이 있어 상·공업 활동 시간(오전 6시~오후 6시)에 증가한 후 점진적으로 감소하는 경향을 보였다(Park *et al.*, 2006). HCHO는 교통 및 산업 배출뿐만 아니라 광화학 반응을 통해 2차 생성되는 물질로, 일변화 패턴에서 오전 6시와 오후 12시에 두 차례 급격한 증가를 보인 후 이후 점진적으로 감소하는 경향을 나타냈다(Park *et al.*,

2006).

CO, isoprene 및 PAR과 같은 일부 물질은 nudging 이후에도 완전한 주기성을 갖는 일변화 패턴이 형성되지 않았다. 이는 CO의 장기 체류 특성, isoprene의 광화학 반응 및 생물기원 배출의 복합성, 그리고 PAR의 다양한 배출 경로와 반응성에 기인한 것으로 보이며, 이러한 특성은 관측 기반 nudging 기법을 통해서도 완전히 반영되기 어려운 한계가 있음을 보여주었다. 다만, isoprene의 경우 오전부터 급격히 증가하여 오후까지 높은 배출량을 유지하고, 일몰 이후 급격히 감소하는 전형적인 생물기원 배출 패턴이 모사되었으나(Schlaerth *et al.*, 2023) 야간 시간대에 배출량이 다시 소폭 증가하는 경향이 나타나 완전한 주기성을 갖추지는 못하였다. 그러함에도 불구하고 대부분의 오염물질에서 시간대별 배출 특성의 재현이 가능하였음

을 보여주며, 본 연구의 자료동화 기반 시간해상도 개선이 전반적으로 효과적이었음을 나타낸다.

일반적으로 박스모델은 수평 수송을 모사하지 못하는 구조적 한계가 존재하여, 타 지역에서 유입된 오염물질의 영향을 명시적으로 반영하기 어렵다. 하지만 KORUSv5 배출 인벤토리와 올림픽공원의 관측자료에 포함된 오염물질 농도에는 이미 국내 및 국외 수송에 의한 기여가 반영되어 있어 nudging 기법을 통해 최종적으로 산출된 유입량에 수평 수송이 간접적으로 반영되었다고 볼 수 있다. 특히, 자료동화는 고정된 월별 KORUSv5 배출량을 시간해상도가 반영된 형태로 보정하는 과정이므로, 일 단위 또는 시각별 수송 기여도를 포함하여 현실적인 유입 특성을 모사할 수 있었다.

3.3 모사 결과 정합도 분석

관측 농도, 광분해율 및 반응 등 BOXMOX 모델의 입력자료가 동일한 조건에서 유입량 동화가 모델 결과에 미치는 영향을 평가하기 위해 관측값, 기존 KORUSv5 배출량을 이용한 모사 결과, 그리고 보정된 유입량을 적용한 모사 결과를 비교하였다(그림 4). 전체적으로 관측값과 동화된 유입량을 적용한 결과는 유사한 경향을 보였으나, 기존 KORUSv5 배출량을 이용한 경우 특정 오염물질에서 과대 또는 과소 모사되는 경향이 뚜렷하게 나타났다. 특히, isoprene은 식생 등 생물기원 배출이 주요 기여원으로 알려져 있음에도 불구하고, 본 연구에서는 인위적 배출 인벤토리인 KORUSv5 기반으로만 자료동화를 수행하였기 때문에 유입량의 보정에 한계가 존재할 수 있다. 배출량 자료 동화 효과의 차이를 보다 정량적으로 분석하기 위해,

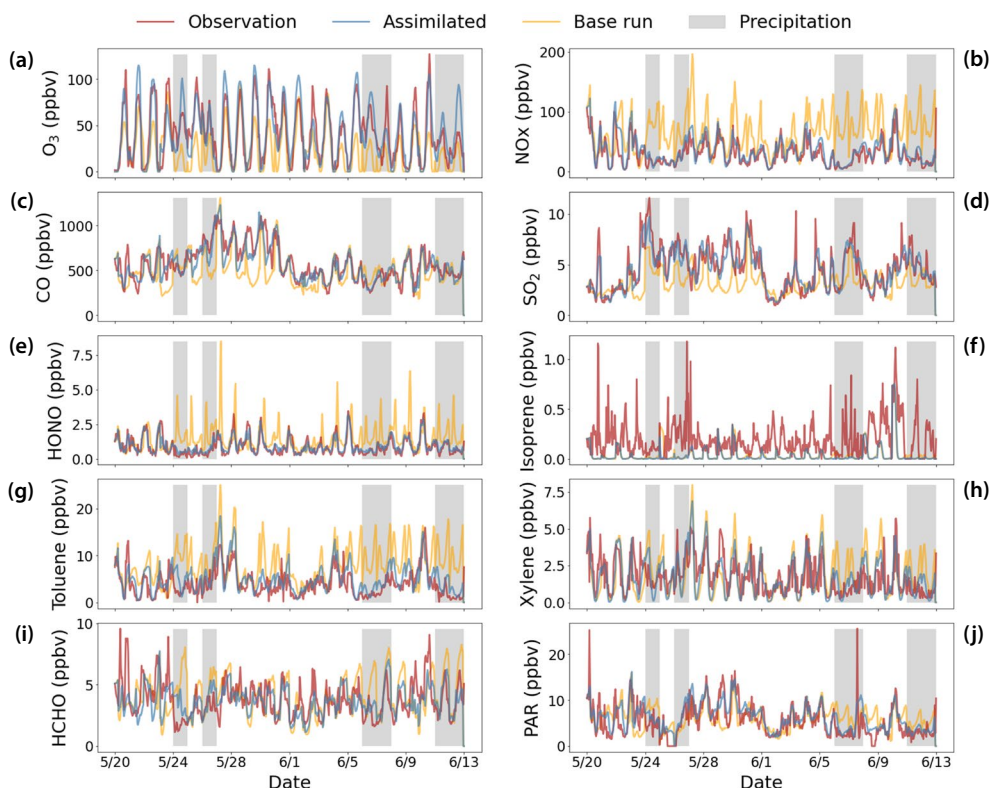


Fig. 4. Time series of observations (red), assimilated (blue), and base (orange) BOXMOX simulations of (a) O₃, (b) NO_x, (c) CO, (d) SO₂, (e) HONO, (f) isoprene, (g) toluene, (h) xylene, (i) HCHO, and (j) PAR. The gray boxes represent the days with precipitation.

다양한 기상 조건(전체 기간, 강수일 및 비강수일, 낮과 밤)에서 각 오염물질의 평균 농도를 표 2에 정리하여 비교하였다. NO_x의 경우 기존 배출량을 이용한 결과(66.1 ppbv)는 관측값(29.8 ppbv) 대비 122% 과대 모사되었으며, 이는 본 연구에서 분석된 모든 오염물질 중 가장 큰 차이를 보였다. 이는 기존 KORUSv5 배출 인벤토리에서 NO_x 배출량이 과다 추정되었음을 나타낸다. NO와 NO₂에 대해서도 각각의 재현성을 평가하였다. NO는 동화 전 평균 18.02 ppbv에서 동화 후 4.86 ppbv로 감소하였으며, 관측값(5.08 ppbv)과 유사한 수준으로 보정되었다. NO₂ 또한 동화 전 48.07 ppbv에서 동화 후 24.67 ppbv로 감소하여, 관측값(24.67 ppbv)과의 차이를 효과적으로 줄였다. 이러한 결과는 NO와 NO₂ 각각의 배출량이 과대 추정되었음을 의미한다.

강수가 발생한 날에는 기존 KORUSv5 배출량을 이용한 모델 결과가 실제 관측값과 큰 차이를 보였다. NO_x는 강수 발생일에 가장 큰 차이를 보였으며, 기존 배출량을 이용한 결과(76.6 ppbv)는 관측값(18.1 ppbv)보다 323% 높게 나타났다. 반면, 자료동화 적용 후에는 모의값이 22.6 ppbv로 감소하여 관측값과의 차이가 약

4.5 ppbv로 줄어들며, NO_x의 과대 모사가 현저히 완화되었다. Toluene 역시 기존 배출량을 이용한 결과(8.0 ppbv)가 관측값(4.0 ppbv)보다 100% 과대 모사되었지만 자료동화를 적용한 결과(5.1 ppbv)는 과대 모사된 정도가 완화되었다. HCHO의 경우 기존 배출량을 이용한 결과(3.8 ppbv)와 관측값(4.0 ppbv) 간 차이는 5%로 상대적으로 작은 편이었으며, 이는 기존 배출 인벤토리에서 비교적 정확하게 반영된 사례로 볼 수 있다. 다만, 자료동화를 적용한 결과(3.6 ppbv)는 오차가 약간 증가하는 경향을 보였다. HONO의 경우 기존 배출량 결과(1.5 ppbv)는 관측값(0.9 ppbv)보다 67% 높았으며, 강수 발생일에는 기존 배출량을 이용한 결과(1.7 ppbv)가 관측값(0.6 ppbv)보다 183% 높게 나타났다. 하지만 자료동화 후(0.8 ppbv)는 오차가 33% 수준으로 줄어들었다.

반면, 일부 오염물질은 기존 배출량을 이용한 결과가 관측값보다 낮게 나타나는 경향을 보였다. CO의 경우 기존 배출량을 이용한 결과(483 ppbv)는 관측값(580 ppbv)보다 17% 낮았으며, 이는 본 연구에서 분석된 주요 대기오염물질 중 가장 크게 과소 모사된 사례에 해당한다. 강수 발생일에도 기존 배출량을 이용한

Table 2. Comparison of mean concentrations between the observation and model simulations for each pollutant under different conditions (unit: ppbv).

Type	Dataset	O ₃	NO _x	CO	SO ₂	HONO	Isoprene	Toluene	Xylene	HCHO	PAR
Total	Obs.	40.4	29.8	580	4.6	0.9	0.20	4.0	1.7	3.8	5.6
	Base	22.4	66.1	483	3.2	1.5	0.04	8.0	1.9	4.1	6.0
	Assim.	41.8	35.5	554	4.4	1.0	0.03	5.1	1.7	3.7	6.2
Rain	Obs.	38.6	18.1	522	5.6	0.6	0.17	2.6	1.2	3.1	3.9
	Base	13.4	76.6	484	4.0	1.7	0.02	9.5	2.1	4.8	5.9
	Assim.	42.1	22.6	512	5.3	0.8	0.01	4.2	1.5	3.8	5.0
Non-rain	Obs.	41.0	33.6	599	4.2	1.0	0.21	4.5	1.9	4.0	6.1
	Base	25.4	62.6	483	3.0	1.4	0.05	7.5	1.8	3.8	6.0
	Assim.	41.7	39.8	568	4.1	1.0	0.04	5.4	1.8	3.6	6.6
Day	Obs.	53.5	25.4	535	4.5	0.7	0.23	3.6	1.5	4.1	4.9
	Base	33.3	57.4	421	2.8	1.5	0.01	6.8	1.2	4.1	5.4
	Assim.	58.0	27.8	490	4.0	0.7	0.01	4.0	1.0	3.7	5.5
Night	Obs.	25.0	34.9	632	4.6	1.2	0.16	4.5	2.0	3.4	6.3
	Base	9.6	76.3	557	3.8	1.5	0.08	9.4	2.7	4.1	6.6
	Assim.	22.7	44.5	628	4.9	1.2	0.06	6.4	2.5	3.7	7.0

결과(484 ppbv)는 관측값(522 ppbv) 대비 7% 낮게 나타났으며, 자료동화 후(512 ppbv)에는 오차가 2% 수준으로 줄어들어 기존 배출 인벤토리에서 CO 배출량이 과소 추정되었음을 다시 확인하였다. SO₂ 역시 기존 배출량을 이용한 결과(3.2 ppbv)가 관측값(4.6 ppbv)보다 30% 낮았으며, 자료동화 후(4.4 ppbv)에는 관측값과의 차이가 감소하였다.

Xylene과 PAR는 강수가 발생한 날을 제외하고 다른 주요 대기오염물질에 비해 관측값과 두 배출량을 이용한 모사 결과 간 차이가 상대적으로 적게 나타났다. Isoprene은 전체 기간 평균 농도에서 기존 모델 결과(0.04 ppbv)가 관측값(0.20 ppbv) 대비 80% 이상 과소 평가되었으나, 자료동화 후(0.03 ppbv)에도 큰 변화가 없어 여전히 과소 평가되는 경향이 지속되었다. 강수 발생일에도 기존 모델 결과(0.02 ppbv)가 관측값(0.17 ppbv) 대비 약 88% 과소 평가되었으며, 자료동화 후(0.01 ppbv)에도 유사한 수준의 오차를 보였다. 이는 모델 내에서 isoprene의 광화학적 생성 및 소멸 경로가 실제 대기 환경을 정확히 재현하지 못했을 가능성을 암시한다.

마지막으로, 2차 오염물질인 오존의 경우, 전체 기간 동안의 평균 농도를 비교했을 때 관측값(40.4 ppbv)과 자료동화를 적용한 모델 결과(41.8 ppbv)는 약 4%의 차이를 보이며 매우 유사한 경향을 나타냈다. 반면, 기존 KORUSv5 배출량을 이용한 결과(22.4 ppbv)는 관측값 대비 45% 낮게 나타나, 자료동화 기법을 적용함으로써 모델 성능이 크게 개선되었음을 확인할 수 있다. 또한, 강수일과 비강수일을 비교했을 때, 기존 모델 결과는 강수일(13.4 ppbv)과 비강수일(25.4 ppbv) 모두에서 관측값(강수일: 38.6 ppbv, 비강수일: 41.0 ppbv)에 비해 각각 65%, 38% 낮게 모사되었다. 반면, 자료동화 후 모델 결과는 강수일(42.1 ppbv)과 비강수일(41.7 ppbv)에서 관측값과 각각 9%, 2%의 차이를 보이며 보다 정밀하게 재현되었다. 하지만 오존 농도가 급격히 증가하는 피크 구간에서는 자료동화 기법을 적용한 유입량을 이용한 모델 결과가 일부 과대 평가되는 경향을 보였다. 이는 nudging 기법을 통해 보정

된 배출량에서 특정 전구물질(오존 생성에 기여하는 NO_x 또는 VOCs)의 배출량이 상대적으로 과대 추정되었거나, 모델 내에서 광화학 반응이 강화되어 오존 생성이 증가했을 가능성을 시사한다.

일변화 패턴을 분석한 결과(그림 5), 오존은 낮 시간(06:00~18:59 KST)에 기존 KORUSv5 배출량을 이용한 결과가 관측값 대비 최대 45% 과소 모의되었으나, 자료동화를 적용한 유입량을 이용한 결과는 오히려 최대 15% 과대 모의되었다. 반면, 야간(19:00~05:59 KST)에는 두 모의 결과 모두 관측값보다 20~30% 낮게 나타났다. 이는 낮 동안 광화학 반응이 활발하게 일어나는 과정에서, HO₂의 제거 반응을 과소 평가하였거나 자료동화 과정에서 특정 전구물질이 과대 추정 및 광화학 반응 강도가 모델에서 다르게 재현되었을 가능성을 나타낸다.

새벽과 오전에 기존 KORUSv5 배출량을 이용한 결과가 가장 크게 차이가 난 물질은 NO_x, HONO, toluene 및 xylene으로 NO_x는 새벽에 기존 KORUSv5 배출량을 이용한 결과가 관측값 대비 120% 이상 과대 모의되었으며, 이는 배출량이 시간에 따라 변동하지 않는 기존 인벤토리의 한계를 반영하는 것으로 보인다. 자료동화 후에는 전체적으로 NO_x 농도가 낮아졌으나, 특히 새벽과 야간에는 관측값보다 여전히 30% 이상 높게 나타났다. 이는 자료동화 과정에서 NO_x 배출량이 충분히 감소하지 않았거나, 야간 중 질산(HNO₃) 등의 제거 반응이 충분히 반영되지 않았을 가능성이 있다. HONO의 경우, 기존 KORUSv5 배출량을 이용한 결과는 오전 06:00~09:00 사이 급격한 피크를 보이며 최대 300% 이상 과대 모의되었다. 반면, 자료동화를 적용한 후에는 피크가 완화되면서 전체적인 일변화 패턴이 관측값과 매우 유사해졌다. 이는 모델에서 HONO의 광분해 및 생성 반응이 충분히 반영되지 않았을 가능성이 있다. Toluene과 xylene은 새벽과 야간에 두 모델 결과가 과대 모의되었으며, 기존 KORUSv5 배출량을 이용한 경우 최대 80% 높게 나타났다. 낮 시간 동안 toluene의 경우 기존 KORUSv5 결과는 관측값보다 25% 높았으나, 자료동화를 적용한

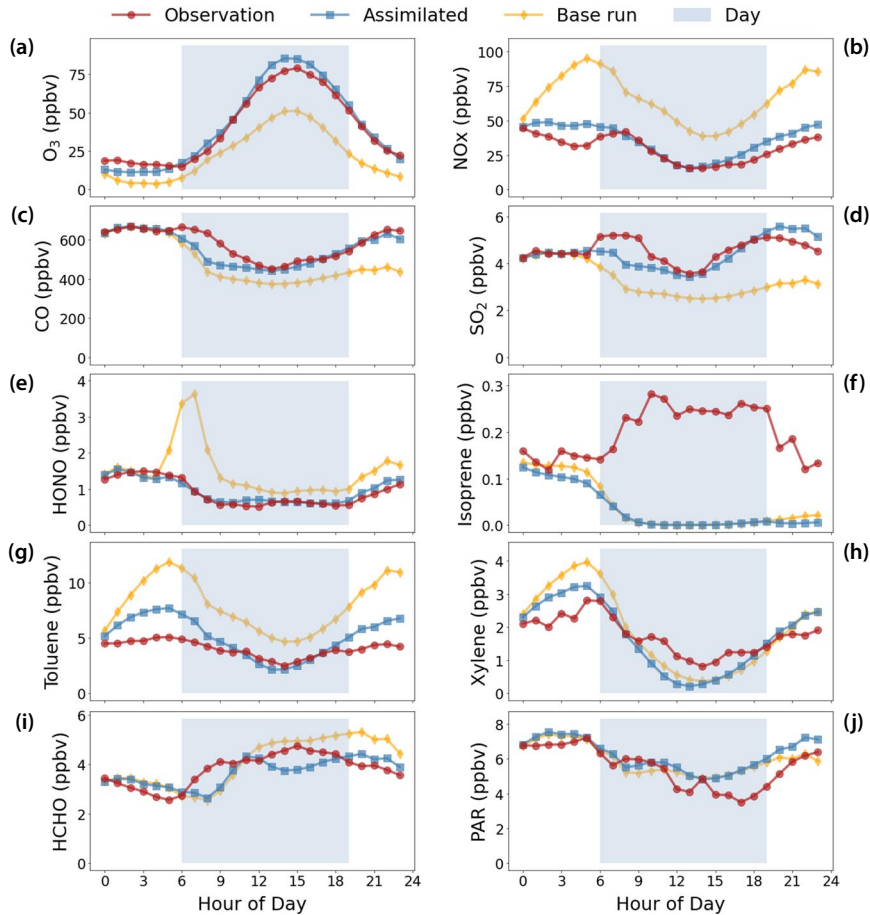


Fig. 5. Averaged diurnal variations of observation (red), assimilated (blue), and base (orange) BOXMOX simulations of (a) O_3 , (b) NO_x , (c) CO , (d) SO_2 , (e) $HONO$, (f) isoprene, (g) toluene, (h) xylene, (i) $HCHO$, and (j) PAR . The blue boxes represent the day (06:00~18:00 KST) period.

결과는 관측값과 유사한 수준으로 개선되었다. Xylene의 경우 낮 시간(09:00~15:00) 동안 관측값이 기존 KORUSv5 배출량을 이용한 결과보다 최대 30% 높은 값을 보이며, 자료동화 후에도 유사한 경향이 유지되었다.

CO 와 SO_2 는 오전 시간(06:00~09:00)대에 가장 큰 차이를 보였으며, 기존 KORUSv5 배출량을 이용한 결과는 관측값보다 CO 는 25%, SO_2 는 35% 낮게 모의되었다. 그러나 자료동화를 적용한 후에는 오전 시간 동안 CO 와 SO_2 농도가 각각 10%, 15% 정도 증가하면서 관측값과 유사한 수준으로 개선되었다. 오후부터는 두

모델 결과가 유사한 경향을 보였으나, 저녁 이후에는 기존 KORUSv5 배출량을 이용한 결과와 자료동화 후 결과 모두 관측값보다 10~20% 높은 값을 나타냈다. 이는 CO 와 SO_2 의 저녁 및 야간 시간 배출량이 과대 추정되었거나, 대기 안정도 변화로 인해 농도가 상대적으로 높게 나타났을 가능성이 있다.

$HCHO$ 는 저녁 및 야간에는 자료동화를 적용한 결과가 관측값과 유사하였으나, 오전 06:00~10:00에는 관측값과 모델 결과 간 상승 패턴의 차이가 존재하였다. 또한, 오후 12:00~15:00에는 모델 결과가 감소하는 반면, 관측값은 증가하여 15:00에 최대값을 기록하였

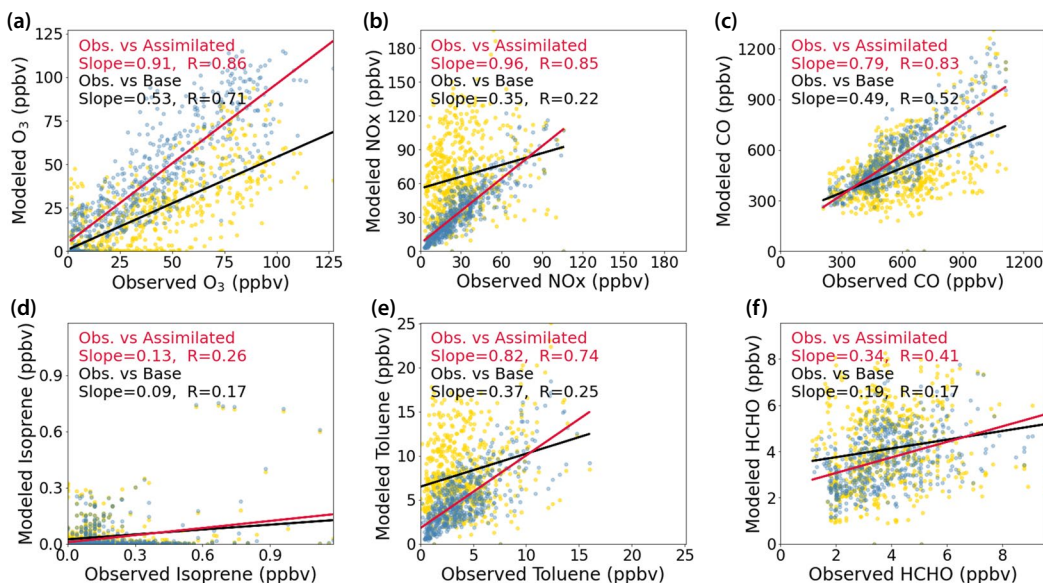


Fig. 6. Scatter plots showing the correlation between observed and modeled concentrations of (a) O₃, (b) NO_x, (c) CO, (d) isoprene, (e) toluene, (f) HCHO. The yellow dots and black regression line correspond to the observed and base run results, whereas the blue dots and red regression line represent the observed and assimilated run results.

다. 이는 모델에서 HCHO의 광화학적 생성 및 제거 반응이 실제 대기에서의 변화를 충분히 반영하지 못해 추가적인 반응 메커니즘 분석이 필요할 것으로 판단된다. 기존 KORUSv5 배출량을 이용한 결과는 12:00 이후에도 계속 높은 값을 유지하여, 시간 변동이 없는 배출량의 영향이 나타난 것으로 해석된다. PAR은 전반적으로 모든 모델 결과가 새벽 시간(00:00~06:00)부터 유사한 경향과 수준을 보였으나, 오후 12:00 이후부터는 두 모델 결과가 관측값보다 약 20% 과대 모의되는 경향을 보였다. 이는 낮 시간 동안 배출량이 과대 추정되었거나, 광화학적 반응으로 인해 실제보다 높은 값이 지속적으로 유지된 결과로 해석될 수 있다. Isoprene은 새벽 시간(00:00~06:00) 동안에는 관측값과 두 모델 결과가 유사한 수준으로 모사되었으나, 일출 이후(06:00 이후)부터는 모델과 관측값 간 차이(약 80%)가 뚜렷하게 나타났다. 이는 isoprene의 주요 배출원인 식생(생물기원 배출)의 기여가 전체적으로 과소평가되었을 가능성도 배제할 수 없으며 박스모델에서 isoprene의 생성 및 소멸 과정에 대한 추가적인 검

토가 필요한 것으로 사료된다.

그림 6과 표 3은 각 오염물질의 관측값 대비 모의값 산점도를 나타내며, 기존 KORUSv5 배출량과 보정된 유입량을 적용한 결과를 비교한 것이다. 기존 배출량을 사용한 모사 결과에서는 NO_x, toluene, HCHO, HONO의 농도가 관측값에 비해 과대 모사된 반면, CO, xylene, SO₂, O₃의 농도는 과소 모사되었다. 그러나 배출량 동화 후, 모든 오염물질에서 상관관계수(R)와 기울기(slope)가 증가하였으며, 이는 보정된 배출량이 기존 인벤토리보다 실제 유입 특성을 더욱 정밀하게 반영했음을 보여준다. 특히, CO, NO_x, SO₂, toluene, xylene, HONO의 경우 상관관계수가 0.65 이상으로 증가하며 보정된 유입량이 모델 성능을 크게 향상시킨 것으로 나타났다. 하지만 Isoprene과 HCHO는 상관관계수가 0.17에서 0.26, 0.17에서 0.41로 증가하였으나 다른 물질들보다 상대적으로 낮았다.

표 3에 정리된 바와 같이, 전반적으로 기존 KORUSv5 배출량을 이용한 모사 결과는 관측값과의 상관성이 낮게 나타났으며, 특히 강수일에는 대부분의 오염

Table 3. Comparison of correlation coefficients (R-value) between the observation variables and model simulations.

Type	Dataset	O ₃	NO _x	CO	SO ₂	HONO	Isoprene	Toluene	Xylene	HCHO	PAR
Total	Obs. vs. Base	0.71	0.22	0.52	0.47	0.25	0.17	0.25	0.42	0.17	0.33
	Obs. vs. Assim.	0.86	0.85	0.83	0.88	0.87	0.26	0.74	0.65	0.41	0.77
Rain	Obs. vs. Base	0.59	0.21	0.39	0.57	-0.04	-0.11	0.12	0.16	0.41	0.18
	Obs. vs. Assim.	0.63	0.84	0.85	0.86	0.83	0.22	0.68	0.65	0.58	0.63
Non-rain	Obs. vs. Base	0.73	0.32	0.56	0.37	0.34	0.20	0.38	0.50	0.20	0.37
	Obs. vs. Assim.	0.90	0.83	0.81	0.87	0.87	0.28	0.75	0.66	0.40	0.78
Day	Obs. vs. Base	0.71	0.33	0.44	0.49	0.28	0.06	0.33	0.44	0.17	0.07
	Obs. vs. Assim.	0.82	0.85	0.84	0.91	0.80	0.18	0.75	0.67	0.44	0.73
Night	Obs. vs. Base	0.37	0.03	0.52	0.54	0.32	0.37	0.13	0.28	0.17	0.17
	Obs. vs. Assim.	0.79	0.85	0.81	0.89	0.87	0.43	0.75	0.63	0.43	0.43

물질에서 상관계수가 비강수일보다 크게 감소하는 경향을 보였다. 반면, 자료동화를 적용한 유입량을 이용한 결과에서는 강수일과 비강수일 간 상관계수 차이가 크지 않았으며, 이는 보정된 유입량이 다양한 기상 조건에서도 안정적으로 모델을 개선하는 데 기여했음을 의미한다. 한편, 낮과 밤을 비교했을 때 기존 KORUSv5 배출량을 이용한 모델 결과에서는 NO_x, isoprene, toluene, xylene에서 밤 시간대 상관계수가 낮아지는 경향이 확인되었다. 특히 NO_x의 경우, 낮 시간대에는 0.33의 상관성을 보였으나, 밤에는 0.03으로 급격히 감소하였다. 그러나 자료동화를 적용한 결과에서는 PAR을 제외한 모든 물질에서 낮과 밤의 상관계수 차이가 크지 않았으며, 이는 유입량 조정을 통해 일중 변동성을 보다 정확히 반영할 수 있음을 나타낸다.

유입량 보정에 따른 오존 농도의 모사 성능을 살펴보면, 기존 배출량을 이용한 모델 결과의 상관계수는 0.71이었으나, 자료동화 적용 후 0.86으로 크게 향상되었다. 이는 배출량 조정을 통해 주요 전구물질의 유입이 보다 현실적으로 반영되면서 오존 생성 과정의 모의 정확성이 개선되었음을 나타낸다. 또한, 자료동화 후 강수일과 비강수일의 차이는 존재하였지만 기존 배출량을 사용한 결과보다 전반적으로 높은 상관성을 유지하였으며, 낮과 밤의 결과에서도 유사한 수준의 상관성을 보였다. 따라서 본 연구에서 수행한 유입량 보정은 단순한 1차 오염물질의 모의 성능을 향상

시키는 데 그치지 않고, 2차 오염물질인 오존의 모의 성능도 개선하는 데 기여하였다. 이는 박스모델을 활용한 광화학적 상호작용의 재현성이 향상되었음을 의미하며, 향후 보다 정교한 대기질 평가를 위한 기초자료로 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

4. 결 론

본 연구에서는 향후 오존 생성 민감도 분석에 활용하기 위해 입력자료의 최적화 특히 자료동화 기법인 nudging 기법을 적용하여 KORUS-AQ 배출 인벤토리를 보정하고, 이를 기반으로 오존 모사 성능을 평가하였다. 이를 위해 먼저, 2016년 KORUS-AQ 캠페인 기간 동안 관측된 다양한 대기오염물질의 농도, PBL 높이 및 실제 대기 환경을 반영한 입력자료를 활용한 TUV 모델을 사용하여 산출된 광분해율을 BOXMOX 모델의 입력자료로 활용하였다. 또한, 에어로졸 표면에서의 HO₂ 제거 반응을 추가하여 광화학 반응을 보다 정교하게 반영하였다.

기존 KORUSv5 배출량을 이용한 모델 모사 결과는 NO_x, toluene, HONO, xylene, PAR 및 HCHO를 과대 모사하는 경향(약 5~122%)을 보였으며 O₃, CO 및 SO₂는 과소 모사(17~44%)되었다. 따라서 배출량 자료동화 과정의 필요성을 확인 후 이를 통해 주요 대기

오염물질의 유입량을 기존 인벤토리 대비 보다 현실적인 수준으로 조정하였다. 유입량의 자료동화를 적용한 후, BOXMOX 모델의 모사 결과를 정량적으로 평가한 결과, NO_x 및 toluene의 과대 모사는 완화되었으며, CO 및 SO₂는 관측값과의 차이가 줄어들어 보다 신뢰성 높은 유입량을 반영할 수 있음을 확인하였다. 특히, 2차 오염물질인 오존의 경우 기존 배출량을 이용한 모델 결과는 관측값 대비 45% 낮게 모사되었으나, 자료동화 적용 후 약 4% 이내로 차이가 줄어들며 모델 성능이 크게 개선되었다. 또한, 자료동화를 적용한 결과에서는 강수일과 비강수일 간의 차이가 크게 감소하여 배출량 보정이 다양한 기상 조건에서도 안정적인 모델 개선 효과를 나타내는 것을 확인하였다.

일변화 분석 결과, 기존 배출량을 이용한 모델은 NO_x, HONO, toluene, xylene에서 새벽과 오전에 과대 모사되는 경향이 뚜렷하였으며, 자료동화를 적용한 후에는 모든 오염물질 특히 NO_x와 HONO의 일변화 패턴이 관측값과 보다 유사하게 재현되었다. 하지만 isoprene의 경우 자료동화를 적용하더라도 여전히 낮 시간대에 관측값을 크게 과소평가하는 경향이 지속되었다.

자료동화의 효과는 평균 농도 비교뿐만 아니라, 상관성 분석을 통해서도 확인되었다. 기존 배출량을 이용한 모사에서 오존의 상관계수는 0.71이었으나, 자료동화 후 0.86으로 증가하였으며, NO_x의 경우 0.22에서 0.85로 크게 향상되었다. CO, VOCs, HONO 등의 주요 오염물질에서도 상관계수가 증가하며, 배출량 보정이 모델의 재현성을 향상시키는 데 기여했음을 확인하였다. 특히, 강수일과 비강수일의 상관성을 비교한 결과, 기존 배출량을 이용한 모사는 강수일에 상관계수가 현저히 감소하는 경향을 보였으나, 보정된 유입량을 적용한 경우 강수 여부와 관계 없이 보다 안정적인 상관성을 유지하였다.

본 연구는 배출량 자체의 보정보다는, 향후 오존 생성 민감도 분석을 위한 정량적 기반 자료를 마련하는데 목적을 두었으며, 이를 위해 현실적인 입력 조건을 구성하는 데 중점을 두었다. 특히 수평 수송이 명시적

으로 반영되지 않는 박스모델의 구조적 한계를 보완하기 위해, 관측값과 함께 국내의 수송 기여가 포함된 KORUSv5 배출 인벤토리를 활용하였고, 이를 기반으로 도출된 보정 유입량은 단순한 배출량이 아닌 수송이 간접적으로 반영된 유입(influx) 형태로 해석할 수 있다. 이와 같은 자료동화 절차는 단순한 1차 오염물질뿐만 아니라, 2차 오염물질인 오존의 모의 성능 향상에도 효과적인 것으로 나타났다. 이러한 해석을 통해 얻어진 입력자료는 실제 대기환경을 반영하는 데 있어 보다 유효하며, 민감도 분석 연구의 기반으로 활용될 수 있을 것이다. 향후 연구에서는 isoprene과 같은 특정 전구물질의 반응 메커니즘을 보다 면밀히 분석하고, 오존 생성 과정에 영향을 미치는 추가적인 반응 및 물질을 모델에 반영함으로써 배출량 보정뿐만 아니라 광화학적 과정의 개선을 함께 고려할 필요가 있다. 최종적으로 개선된 모델을 적용하여 국내에서 장기적으로 나타나는 오존 농도의 증가 경향을 정량적으로 평가하고, 이를 활용한 정책적 시사점을 도출하는 연구가 요구된다.

감사의 글

이 연구는 한국연구재단-중견연구(RS-2022-NR070338)의 지원으로 수행되었습니다.

References

- Adhikary, B., Kulkarni, S., Dallura, A., Tang, Y., Chai, T., Leung, L.R., Qian, Y., Chung, C.E., Ramanathan, V., Carmichael, G.R. (2008) A regional scale chemical transport modeling of Asian aerosols with data assimilation of AOD observations using optimal interpolation technique, *Atmospheric Environment*, 42(37), 8600-8615. <https://doi.org/10.1016/J.ATMOSENV.2008.08.031>
- Akimoto, H., Mori, Y., Sasaki, K., Nakanishi, H., Ohizumi, T., Itano, Y. (2015) Analysis of monitoring data of ground-level ozone in Japan for long-term trend during 1990-2010: Causes of temporal and spatial variation, *Atmospheric*

- Environment, 102, 302-310. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.12.001>
- Archibald, A.T., Turnock, S.T., Griffiths, P.T., Cox, T., Derwent, R.G., Knote, C., Shin, M. (2020) On the changes in surface ozone over the twenty-first century: sensitivity to changes in surface temperature and chemical mechanisms, *Philosophical Transactions: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 378(2183), 1-16. <https://www.jstor.org/stable/27101046>
- Baker, D.F., Doney, S.C., Schimel, D.S. (2006) Variational data assimilation for atmospheric CO₂, *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology*, 58B(5), 359-365. <https://doi.org/10.1111/J.1600-0889.2006.00218.X>
- Bedjanian, Y., Romanias, M.N., El Zein, A. (2013) Uptake of HO₂ radicals on Arizona Test Dust, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(13), 6461-6471. <https://doi.org/10.5194/acp-13-6461-2013>
- Bei, N., de Foy, B., Lei, W., Zavala, M., Molina, L.T. (2008) Using 3DVAR data assimilation system to improve ozone simulations in the Mexico City basin, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(24), 7353-7366. <https://doi.org/10.5194/ACP-8-7353-2008>
- de Foy, B. (2018) City-level variations in NO_x emissions derived from hourly monitoring data in Chicago, *Atmospheric Environment*, 176, 128-139. <https://doi.org/10.1016/J.ATMOSNV.2017.12.028>
- Elbern, H., Schmidt, H. (2001) Ozone episode analysis by four-dimensional variational chemistry data assimilation, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 106(D4), 3569-3590. <https://doi.org/10.1029/2000JD900448>
- Fleming, Z.L., Doherty, R.M., Von Schneidmesser, E., Malley, C.S., Cooper, O.R., Pinto, J.P., Colette, A., Xu, X., Simpson, D., Schultz, M.G., Lefohn, A.S., Hamad, S., Moolla, R., Solberg, S., Feng, Z. (2018) Tropospheric Ozone Assessment Report: Present-day ozone distribution and trends relevant to human health, *Elementa: Science of the Anthropocene*, 6, 12. <https://doi.org/10.1525/elementa.273>
- Gantt, B., Sarwar, G., Xing, J., Simon, H., Schwede, D., Hutzell, W.T., Mathur, R., Saiz-Lopez, A. (2017) The Impact of Iodide-Mediated Ozone Deposition and Halogen Chemistry on Surface Ozone Concentrations Across the Continental United States, *Environmental Science and Technology*, 51(3), 1458-1466. <https://doi.org/10.1021/ACS.EST.6B03556>
- Gao, W., Tie, X., Xu, J., Huang, R., Mao, X., Zhou, G., Chang, L. (2017) Long-term trend of O₃ in a mega City (Shanghai), China: Characteristics, causes, and interactions with precursors, *Science of The Total Environment*, 603-604, 425-433. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.06.099>
- Gaubert, B., Emmons, L.K., Raeder, K., Tilmes, S., Miyazaki, K., Arellano, A.F., Elguindi, N., Granier, C., Tang, W., Barré, J., Worden, H.M., Buchholz, R.R., Edwards, D.P., Franke, P., Anderson, J.L., Saunio, M., Schroeder, J., Woo, J.H., Simpson, I.J., Diskin, G.S. (2020) Correcting model biases of CO in East Asia: Impact on oxidant distributions during KORUS-AQ, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20(23), 14617-14647. <https://doi.org/10.5194/ACP-20-14617-2020>
- Gil, J., Kim, J., Lee, M., Lee, G., Ahn, J., Lee, D.S., Jung, J., Cho, S., Whitehill, A., Szykman, J., Lee, J. (2021) Characteristics of HONO and its impact on O₃ formation in the Seoul Metropolitan Area during the Korea-US Air Quality study, *Atmospheric Environment*, 247, 118182. <https://doi.org/10.1016/J.ATMOSNV.2020.118182>
- Ha, H., Lee, S.-D., Lee, J.-K., Park, C.-O., Mun, T.-R. (2006) On Characteristics of Surface Ozone Concentration and Temporal · Spatial Distribution in Kwangyang-Bay. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 22(5), 642-652.
- Hembeck, L., He, H., Vinciguerra, T.P., Canty, T.P., Dickerson, R.R., Salawitch, R.J., Loughner, C. (2019) Measured and modelled ozone photochemical production in the Baltimore-Washington airshed, *Atmospheric Environment: X*, 2, 100017. <https://doi.org/10.1016/J.AEAOA.2019.100017>
- Huijnen, V., Williams, J., Flemming, J. (2014) Modeling global impacts of heterogeneous loss of HO₂ on cloud droplets, ice particles and aerosols, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 8575-8632. <https://doi.org/10.5194/acpd-14-8575-2014>
- Jeong, B., Bae, M.-S., Ahn, J., Lee, J. (2017) A Study of Carbonaceous Aerosols Measurement in Metropolitan Area Performed during KORUS-AQ 2016 Campaign, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(3), 205-216. <https://doi.org/10.5572/kosae.2017.33.3.205>
- Ju, H., Kim, H.C., Kim, B.-U., Ghim, Y.S., Shin, H.J., Kim, S. (2018) Long-term Trend Analysis of Key Criteria Air Pollutants over Air Quality Control Regions in South Korea using Observation Data and Air Quality Simulation, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(1), 101-119. <https://doi.org/10.5572/kosae.2018.34.1.101>
- Kang, Y.-H., Kim, Y.-K., Hwang, M.-K., Jeong, J.-H., Kim, H., Kang, M.-S. (2019) Spatial-temporal variations in surface

- ozone concentrations in Busan metropolitan area, *Journal of Environmental Science International*, 28(2), 169-182. <https://doi.org/10.5322/jesi.2019.28.2.169>
- Kim, D.-S., Jeong, J., Ahn, J. (2016) Characteristics in Atmospheric Chemistry between NO, NO₂ and O₃ at an Urban Site during MAPS (Megacity Air Pollution Study)-Seoul, Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 32(4), 422-434. <https://doi.org/10.5572/kosae.2016.32.4.422>
- Kim, H., Gil, J., Lee, M., Jung, J., Whitehill, A., Szykman, J., Lee, G., Kim, D.-S., Cho, S., Ahn, J.-Y., Hong, J., Park, M.-S. (2020) Factors controlling surface ozone in the Seoul Metropolitan Area during the KORUS-AQ campaign, *Elementa: Science of the Anthropocene*, 8, 46. <https://doi.org/10.1525/ELEMENTA.444>
- Kim, J., Ghim, Y.S., Han, J.-S., Park, S.-M., Shin, H.-J., Lee, S.-B., Kim, J., Lee, G. (2018) Long-term Trend Analysis of Korean Air Quality and Its Implication to Current Air Quality Policy on Ozone and PM₁₀, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(1), 1-15. <https://doi.org/10.5572/kosae.2018.34.1.001>
- Kim, J., Lee, J., Han, J.S., Choi, J., Kim, D.G., Park, J., Lee, G. (2021) Long-term Assessment of Ozone Nonattainment Changes in South Korea Compared to US, and EU Ozone Guidelines, *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 15(4), 1-13. <https://doi.org/10.5572/AJAE.2021.098>
- Kim, J., Cho, H.K., Lee, Y.G., Oh, S.N., Baek, S.K. (2005) Updated trends of stratospheric ozone over Seoul, *Atmosphere*, 15(2), 101-118.
- Kim, Y.P., Yeo, M.J. (2013) The Trend of the Concentrations of the Criteria Pollutants over Seoul, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 29(4), 369-377. <https://doi.org/10.5572/kosae.2013.29.4.369>
- Kitayama, K., Morino, Y., Yamaji, K., Chatani, S. (2019) Uncertainties in O₃ concentrations simulated by CMAQ over Japan using four chemical mechanisms, *Atmospheric Environment*, 198, 448-462. <https://doi.org/10.1016/J.ATMOSENV.2018.11.003>
- Knote, C., Tuccella, P., Curci, G., Emmons, L., Orlando, J.J., Madronich, S., Baró, R., Jiménez-Guerrero, P., Luecken, D., Hogrefe, C., Forkel, R., Werhahn, J., Hirtl, M., Pérez, J.L., San José, R., Giordano, L., Brunner, D., Yahya, K., Zhang, Y. (2015) Influence of the choice of gas-phase mechanism on predictions of key gaseous pollutants during the AQMEII phase-2 intercomparison, *Atmospheric Environment*, 115, 553-568. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.11.066>
- Knote, C., Barré, J., Eckl, M. (2018) BEATBOX v1.0: Background Error Analysis Testbed with Box Models, *Geoscientific Model Development*, 11(2), 561-573. <https://doi.org/10.5194/GMD-11-561-2018>
- Kohno, N., Zhou, J., Li, J., Takemura, M., Ono, N., Sadanaga, Y., Nakashima, Y., Sato, K., Kato, S., Sakamoto, Y., Kajii, Y. (2022) Impacts of missing OH reactivity and aerosol uptake of HO₂ radicals on tropospheric O₃ production during the AQUAS-Kyoto summer campaign in 2018, *Atmospheric Environment*, 281, 119130. <https://doi.org/10.1016/J.ATMOSENV.2022.119130>
- Lee, H., Kim, D., Yeo, M., Kim, Y., Jung, C.H., Cho, S., Park, J.H., Shin, H.J., Park, S.H. (2022) A Box-Model Simulation of the Formation of Inorganic Ionic Particulate Species and Their Air Quality Implications in Republic of Korea, *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 16(4), 1-26. <https://doi.org/10.5572/AJAE.2022.119/METRICS>
- Lee, J., Han, J., Park, J., Ahn, J.Y., Lee, G. (2023) Long-term changes of rice yield loss estimated with AOT40 and M7 metrics using comprehensive ozone and rice cultivation data over South Korea, *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 17(1), 1-9. <https://doi.org/10.1007/s44273-023-00021-w>
- Lei, L., Hacker, J.P. (2015) Nudging, Ensemble, and Nudging Ensembles for Data Assimilation in the Presence of Model Error, *Monthly Weather Review*, 143(7), 2600-2610. <https://doi.org/10.1175/MWR-D-14-00295.1>
- Li, K., Jacob, D.J., Liao, H., Zhu, J., Shah, V., Shen, L., Bates, K.H., Zhang, Q., Zhai, S. (2019) A two-pollutant strategy for improving ozone and particulate air quality in China, *Nature Geoscience*, 12(11), 906-910. <https://doi.org/10.1038/s41561-019-0464-x>
- Li, X.B., Yuan, B., Parrish, D.D., Chen, D., Song, Y., Yang, S., Liu, Z., Shao, M. (2022) Long-term trend of ozone in southern China reveals future mitigation strategy for air pollution, *Atmospheric Environment*, 269, 118869. <https://doi.org/10.1016/J.ATMOSENV.2021.118869>
- Lin, W., Xu, X., Ma, Z., Zhao, H., Liu, X., Wang, Y. (2012) Characteristics and recent trends of sulfur dioxide at urban, rural, and background sites in North China: Effectiveness of control measures, *Journal of Environmental Sciences*, 24(1), 34-49. [https://doi.org/10.1016/S1001-0742\(11\)60727-4](https://doi.org/10.1016/S1001-0742(11)60727-4)
- Monks, P.S., Archibald, A.T., Colette, A., Cooper, O., Coyle, M., Derwent, R., Fowler, D., Granier, C., Law, K.S., Mills, G.E., Stevenson, D.S., Tarasova, O., Thouret, V., Von Schneidemesser, E., Sommariva, R., Wild, O., Williams, M.L. (2015) Tropospheric ozone and its precursors from the urban to the global scale from air quality to short-lived climate forcer, *Atmospheric Chemistry and Phys-*

- ics, 15(15), 8889-8973. <https://doi.org/10.5194/ACP-15-8889-2015>
- Park, J.-H., Seo, Y.-K., Baek, S.-O. (2006) A Study on the Comparison of Atmospheric Concentrations of Volatile Organic Compounds in a Large Urban Area and a Sub-Urban Area, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 22(6), 767-778.
- Park, S.M., Han, J.S., Ahn, J.Y., Park, J.S., Kim, D.G., Park, J.M., Yoo, M., Lee, G. (2024) Assessment of WHO Seasonal Ozone Standard Using Long-term Trends of Ambient Ozone in South Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 40(4), 477-485. <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2024.40.4.477>
- Peterson, D.A., Hyer, E.J., Han, S.O., Crawford, J.H., Park, R.J., Holz, R., Kuehn, R.E., Eloranta, E., Knote, C., Jordan, C.E., Lefer, B.L. (2019) Meteorology influencing springtime air quality, pollution transport, and visibility in Korea, *Elementa: Science of the Anthropocene*, 7(1), 57. <https://doi.org/10.1525/elementa.395>
- Place, B.K., Hutzell, W.T., Appel, K.W., Farrell, S., Valin, L., Murphy, B.N., Seltzer, K.M., Sarwar, G., Allen, C., Piletic, I.R., D'Ambro, E.L., Saunders, E., Simon, H., Torres-Vasquez, A., Pleim, J., Schwantes, R.H., Coggon, M.M., Xu, L., Stockwell, W.R., Pye, H.O.T. (2023) Sensitivity of north-eastern US surface ozone predictions to the representation of atmospheric chemistry in the Community Regional Atmospheric Chemistry Multiphase Mechanism (CRACMMv1.0), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 23(16), 9173-9190. <https://doi.org/10.5194/ACP-23-9173-2023>
- Righi, M., Eyring, V., Gottschaldt, K.D., Klinger, C., Frank, F., Jöckel, P., Cionni, I. (2015) Quantitative evaluation of ozone and selected climate parameters in a set of EMAC simulations, *Geoscientific Model Development*, 8(3), 733-768. <https://doi.org/10.5194/GMD-8-733-2015>
- Sandu, A., Sander, R. (2006) Simulating chemical systems in Fortran90 and Matlab with the Kinetic PreProcessor KPP-2.1. *Atmospheric Chemistry and Physics* 6 (1): 187-195
- Schlaerth, H.L., Silva, S.J., Li, Y. (2023) Characterizing Ozone Sensitivity to Urban Greening in Los Angeles Under Current Day and Future Anthropogenic Emissions Scenarios, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 128(20), e2023JD039199. <https://doi.org/10.1029/2023JD039199>
- Song, H., Lu, K., Dong, H., Tan, Z., Chen, S., Zeng, L., Zhang, Y. (2022) Reduced Aerosol Uptake of Hydroperoxyl Radical May Increase the Sensitivity of Ozone Production to Volatile Organic Compounds, *Environmental Science and Technology Letters*, 9(1), 22-29. <https://doi.org/10.1021/ACS.ESTLETT.1C00893>
- Tan, Z., Lu, K., Jiang, M., Su, R., Wang, H., Lou, S., Fu, Q., Zhai, C., Tan, Q., Yue, D., Chen, D., Wang, Z., Xie, S., Zeng, L., 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(6), 3493-3513. <https://doi.org/10.5194/ACP-19-3493-2019>
- Tang, X., Zhu, J., Wang, Z.F., Gbaguidi, A., Lin, C.Y., Xin, J.Y., Song, T., Hu, B. (2016) Limitations of ozone data assimilation with adjustment of NOx emissions: Mixed effects on NO₂ forecasts over Beijing and surrounding areas, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(10), 6395-6405. <https://doi.org/10.5194/ACP-16-6395-2016>
- Tang, Y., Bian, H., Tao, Z., Oman, L.D., Tong, D., Lee, P., Campbell, P.C., Baker, B., Lu, C.H., Pan, L., Wang, J., McQueen, J., Stajner, I. (2021) Comparison of chemical lateral boundary conditions for air quality predictions over the contiguous United States during pollutant intrusion events, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(4), 2527-2550. <https://doi.org/10.5194/ACP-21-2527-2021>
- Tombette, M., Mallet, V., Sportisse, B. (2009) PM₁₀ data assimilation over Europe with the optimal interpolation method, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(1), 57-70. <https://doi.org/10.5194/ACP-9-57-2009>
- Tran, T., Tran, H., Mansfield, M., Lyman, S., Crosman, E. (2018) Four dimensional data assimilation (FDDA) impacts on WRF performance in simulating inversion layer structure and distributions of CMAQ-simulated winter ozone concentrations in Uintah Basin, *Atmospheric Environment*, 177, 75-92. <https://doi.org/10.1016/J.ATMOENV.2018.01.012>
- Travis, K.R., Nault, B.A., Crawford, J.H., Bates, K.H., Blake, D.R., Cohen, R.C., Fried, A., Hall, S.R., Huey, L.G., Lee, Y.R., Meinardi, S., Min, K.E., Simpson, I.J., Ullman, K. (2024) Impact of improved representation of volatile organic compound emissions and production of NOx reservoirs on modeled urban ozone production, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 24(16), 9555-9572. <https://doi.org/10.5194/ACP-24-9555-2024>
- Wang, W., Parrish, D.D., Wang, S., Bao, F., Ni, R., Li, X., Yang, S., Wang, H., Cheng, Y., Su, H. (2022) Long-term trend of ozone pollution in China during 2014-2020: distinct seasonal and spatial characteristics and ozone sensitivity, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 22(13), 8935-8949. <https://doi.org/10.5194/ACP-22-8935-2022>

- Wei, W., Cheng, S., Li, G., Wang, G., Wang, H. (2014) Characteristics of ozone and ozone precursors (VOCs and NOx) around a petroleum refinery in Beijing, China, *Journal of Environmental Sciences (China)*, 26(2), 332-342. [https://doi.org/10.1016/S1001-0742\(13\)60412-X](https://doi.org/10.1016/S1001-0742(13)60412-X)
- Woo, J.H., Choi, K.C., Kim, H.K., Baek, B.H., Jang, M., Eum, J.H., Song, C.H., Ma, Y.I, Sunwoo, Y., Chang, L.S., Yoo, S.H. (2012) Development of an anthropogenic emissions processing system for Asia using SMOKE, *Atmospheric Environment*, 58, 5-13. <https://doi.org/10.1016/J.ATMOENV.2011.10.042>
- Woo, J.H., Kim, Y., Kim, H.K., Choi, K.C., Eum, J.H., Lee, J.B., Lim, J.H., Kim, J., Seong, M. (2020) Development of the CREATE Inventory in Support of Integrated Climate and Air Quality Modeling for Asia, *Sustainability* 2020, 12(19), 7930. <https://doi.org/10.3390/SU12197930>
- Yeo, M.J., Kim, Y.P. (2021) Long-term trends of surface ozone in Korea, *Journal of Cleaner Production*, 294, 125352. <https://doi.org/10.1016/J.JCLEPRO.2020.125352>
- Yoo, S.-S., Jeon, J.-S., Jung, K., Shin, E.-S., Jung, B.-J., Ryu, R.-N., Woo, J.-H., Sunwoo, Y. (2011) Analysis on Air Quality Characteristics through Air Quality Monitoring Stations in urban Background and High Altitude in 2005-2006 in Seoul, *Journal of Environmental Impact Assessment*, 20(1), 49-59. <https://doi.org/10.14249/EIA.2011.20.1.049>
- Zhang, W., Tong, S., Lin, D., Li, F., Zhang, X., Wang, L., Ji, D., Tang, G., Liu, Z., Hu, B., Ge, M. (2023) Atmospheric chemistry of nitrous acid and its effects on hydroxyl radical and ozone at the urban area of Beijing in early spring 2021, *Environmental Pollution*, 316, 120710. <https://doi.org/10.1016/J.ENVPOL.2022.120710>
- Zheng, Y., Unger, N., Tadić, J.M., Seco, R., Guenther, A.B., Barkley, M.P., Potosnak, M.J., Murray, L.T., Michalak, A.M., Qiu, X., Kim, S., Karl, T., Gu, L., Pallardy, S.G. (2017) Drought impacts on photosynthesis, isoprene emission and atmospheric formaldehyde in a mid-latitude forest, *Atmospheric Environment*, 167, 190-201. <https://doi.org/10.1016/J.ATMOENV.2017.08.017>

Authors Information

김정환 (한국외국어대학교 환경학과 박사후연구원)
(kimcwjh@hufs.ac.kr)

김기완 (시프테크놀로지스 코리아 영업팀 프로그래머)
(giwan.kim@syft.com)

안준영 (국립환경과학원 대기연구부 대기환경연구과 연구관)
(nierair@korea.kr)

장임석 (국립환경과학원 환경위성센터 연구관)
(lschang@korea.kr)

이강웅 (한국외국어대학교 환경학과 교수)
(gwlee@hufs.ac.kr)