

울산지역 대기오염 공간분포

Spatial Distribution of Air Pollution in the Ulsan Metropolitan Region

오인보* · 방진희 · 김순태¹⁾ · 김은혜¹⁾ · 황미경²⁾ · 김양호³⁾

울산대학교 의과대학 환경보건센터, ¹⁾아주대학교 환경공학과,
²⁾부산대학교 대기환경과학과, ³⁾울산대학교 의과대학 직업환경의학교실
(2016년 7월 12일 접수, 2016년 8월 5일 수정, 2016년 8월 8일 채택)

Inbo Oh*, Jin-Hee Bang, Soontae Kim¹⁾, Eunhye Kim¹⁾, Mi-Kyoung Hwang²⁾ and Yangho Kim³⁾

Environmental Health Center, University of Ulsan College of Medicine

¹⁾*Department of Environmental Safety Engineering, Ajou University*

²⁾*Department of Atmospheric Sciences, Pusan National University*

³⁾*Department of Occupational & Environmental Medicine, University of Ulsan College of Medicine*

(Received 12 July 2016, revised 5 August 2016, accepted 8 August 2016)

Abstract

The spatial air pollution distribution of the Ulsan metropolitan region (UMR) was analyzed using monitoring data and high-resolution numerical simulations. A three-year (2011~2014) analysis for the average concentrations from the 13 air quality monitoring sites in the UMR showed that SO₂ and PM₁₀ levels in industrial regions were much higher than those in other regions, whereas spatial differences of NO₂ and CO concentrations were not significant. In particular, elevated O₃ concentrations were clearly found at urban sites near petrochemical complex area. Results from high-resolution simulations by CMAQ model performed for four months of 2012 showed large spatial variations in grid-average pollutant concentrations between industrial areas and other areas in the UMR, which displayed significant changes with wind pattern by season. It was noted that the increases of SO₂ and PM₁₀ levels were limited in costal industrial areas or over the area nearby the sea in all seasons. Modeled O₃ concentrations were quite low in industrial areas and main urban roads with large NO_x emissions. However, the model presented that all pollutant concentrations were significantly increased in the urban residential areas near the industrial complexes in summer season with increase of southerly wind.

Key words : Air pollution, Ulsan metropolitan region, Industrial regions, CMAQ model

*Corresponding author.
Tel : +82-(0)52-250-8402, E-mail : oinbo@ulsan.ac.kr

1. 서 론

울산은 우리나라의 대표적인 산업도시로 1970년대 이후 연안을 따라 대규모 산업단지가 형성되면서 대기 오염현상이 가장 중요한 지역사회 환경문제로 인식되어 왔다. 최근에는 교통량 증가, 도시지표상태의 변화, 고층빌딩지역의 형성, 도시열섬 현상 등으로 나타나는 도시화 효과와 연계되어 지역 대기질 수준과 변화에 대한 이해의 필요성이 높다. 특히 울산은 산업단지 배출 대기오염물질의 노출과 관련한 환경보건 문제가 지역사회의 중요한 이슈로, 이산화황(SO₂), 유해대기오염물질(Hazardous air pollutants, HAPs), 중금속에 대한 위해도와 건강영향에 대한 우려를 가지고 있다(NIER, 2010; Choi *et al.*, 2006a; Lee *et al.*, 1999). 아울러 최근 뚜렷한 농도상승 추세를 보이고 있는 오존(O₃)과(NIER, 2014a) 사회적 관심이 높은 미세먼지 역시 울산의 대기질 파악에 중요한 대상물질로 볼 수 있다.

지역의 대기오염물질 노출수준을 면밀히 파악하고 최적의 대기질 관리 정책 개발을 위해서는 주요 대기오염물질의 시·공간적 거동과 농도분포에 대한 정확한 평가가 우선적으로 이루어져야 한다. 특히 수치모델링 등을 통해 정보의 공간 해상도를 향상시킬 필요가 있으며, 이는 지역 인구집단 및 개인의 노출평가의 신뢰성을 높일 수 있다(Hwang *et al.*, 2015; Isakov *et al.*, 2007).

현재 울산의 영역, 인구, 대기질측정망분포를 고려한다면 모니터링 자료만을 이용하여 울산 전역의 상세한 대기질 수준과 수용체 노출에 대한 정확한 이해는 상당히 제한적이다. 측정망 자료를 이용하여 울산지역 대기오염도분포의 이해가 시도되었지만(Clarke *et al.*, 2014; Choi *et al.*, 2006b) 공간적 정보에 대한 불확실성은 크다. 최근 수치모델링을 이용한 공간적 농도 평가 연구도 몇몇 있었지만(Jo and Kim, 2015; Lee *et al.*, 2014) 지역 대표성과 평균적인 정보에 대한 해상도 높은 이해는 충분히 이루어지지 못했다. 빈도 높은 대기질 측정과 함께 개선된 수치모델링 적용을 통해 지역 내 위치하는 대규모 산업단지와 주변 도시역 대기질의 정확한 평가와 대표성 있는 공간정보의 파악이 필요할 것이다.

본 연구의 목적은 울산지역 산업단지와 도시역을 중심으로, 주요 대기오염물질의 해상도 높은 공간적 평

균농도분포를 제시하고 그 특성과 계절적 변화를 이해하는 데 있다. 이를 위해 다년간 모니터링된 대기오염도 측정자료와 함께 계절별 수행된 고해상도 수치모델링 결과를 분석하였다.

2. 연구 방법

2.1 대상지역

울산은 인구 119만(2014년 12월말 기준)의 대도시로 서쪽으로는 가지산(1,241 m), 신불산(1,209 m) 등 해발 1,000 m가 넘는 높은 산들이 위치하고 남동쪽으로는 동해남부해상과 접하며 복잡한 해안선이 형성되어 있다(그림 1). 도시를 북서쪽에서 남동쪽으로 가로지르는 태화강은 울산만과 연결되어 있으며 주변으로 약 60만의 인구가 거주하고 있다(Ulsan metropolitan city, 2013). 울산만과 연이어 있는 울산항, 온산항, 방어진항구들의 내안 구릉지에는 조선, 석유화학, 자동차 산업을 중심으로 한 대규모 국가산업단지들이 조성되어 있는 것이 도시환경의 주요 특징이다. 그림 1b에서 울산의 주요 국가산업단지(A~D)의 위치를 알 수 있다. A지역은 온산국가산업단지로 금속 및 석유화학 업종 사업장이 주로 분포한다. B~D는 울산·미포국가산업단지로 석유정제와 화학업종이 대부분인 B지역(이하 석유화학단지라 표기)과 자동차 및 부품 업종이 주인 현대자동차 울산공장(C), 선박 및 부품 업종의 산업시설이 위치한 현대중공업(D) 지역으로 구성된다.

지난 30년간(1981~2010년) 평균된 울산의 기온과 강수량의 경우, 각각 14.1°C(여름/겨울: 24.1°C/3.4°C)와 1,277 mm(여름/겨울: 649.4 mm/99.5 mm)로 기록되어 비교적 온화하고 여름에 강수량이 많은 기후 조건을 보인다(KMA, 2011). 공간적으로는 도심·공단지역의 고온현상이 뚜렷하고 연안지역과 최대 3.5°C(7월)의 평균기온 차이가 나타난다(Oh *et al.*, 2015). 바람의 경우 북~북서풍이 연중 탁월하지만 4월과 7월은 다양한 풍향의 약한 바람분포가 특징이다.

평균대기오염도의 경우, 대규모 산업단지의 영향으로 전국 대도시중 SO₂ 농도가 가장 높고 산업단지 인근지역 휘발성 유기화합물농도가 상대적으로 높은 것이 특징이다. 또한 SO₂ 농도는 1990대 이후로 농도의 감소가 큰 폭으로 나타났지만 최근에는 유의한 감소 경향을 확인하기 어렵다(NIER, 2014a).

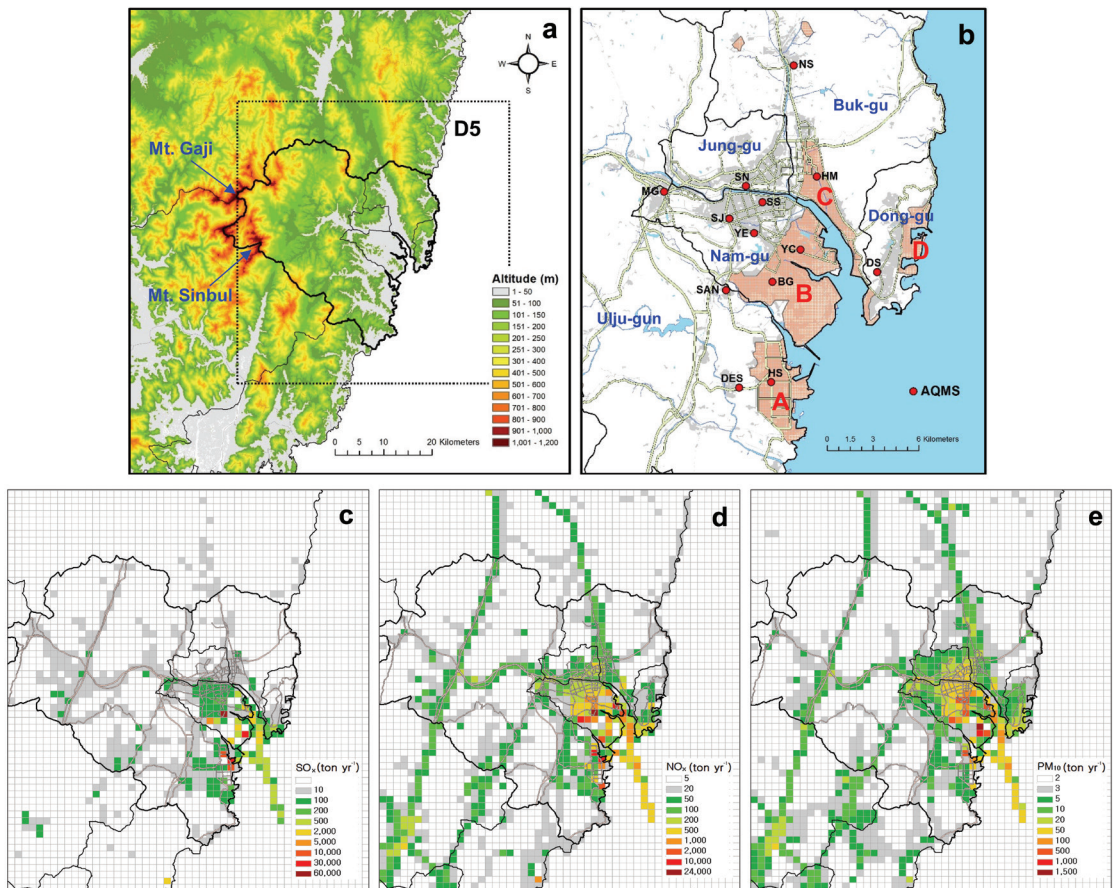


Fig. 1. (a) Terrain in the Ulsan metropolitan region (UMR) and its surroundings. The thick black line is the boundary of the UMR. The dashed black line rectangle indicates the fine domain for the CMAQ modeling. (b) Locations of air quality monitoring sites (AQMS) in the UMR. The light red shaded regions and gray lines indicate industrial areas and main roads, respectively. (c, d and e) Average SO_2 , NO_x and PM_{10} emissions from CAPSS 2012 data.

2.2 대상 오염물질 및 측정자료 분석

울산지역 주요 대기오염물질의 전반적 공간평가를 위해 지역 내에 위치한 13곳의 환경부 운영 도시대기 측정망(Air quality monitoring site, 이하 AQMS) (그림 1b 참고)에서 최근 3년간(2011~2013년) 모니터링된 농도자료를 이용하였다. 분석에 있어 효문(HM), 여천(YC), 부곡(BG), 화산(HS) 지점은 산업단지에 위치한 지점들로, 삼신(SS), YE(야음), 신정(SJ), 성남(SN)은 도심지역에 위치한 지점들로 구분하여 설명하였다.

연구대상 대기오염물질은 SO_2 , 일산화탄소(CO), 이산화질소(NO_2), O_3 , 미세먼지(PM_{10})로서 도시 환경기준 달성여부를 결정하는 물질들이다(NIER, 2014a). 울

산의 대기오염을 이해하는 데 있어 산업단지를 중심으로 배출되는 중금속과 HAPs는 중요하게 고려되어야 하는 부분이지만 이 연구에서는 자료의 시·공간적 분포, 모델링 결과의 신뢰성 등을 고려하여 제외하였다. 연구대상 대기오염물질 농도통계의 기초자료는 1시간 평균값이며, 75% 이상 측정된 유효일만을 대상으로 산출되었다.

2.3 CMAQ 모델링

울산지역 대기오염도 평가의 공간적 해상도를 높이고 측정자료 해석의 한계를 보완하기 위해 대표적인 광화학 대기질 모델인 CMAQ(Community Multi-

Scale Air Quality, v.5.0.1)를 이용하여 수치모의를 수행하였다. CMAQ 모델은 미국 EPA에서 개발한 3차원 광화학 수송 모델로 대류권 내 O₃, PM₁₀을 포함한 주요 가스상/입자상 대기오염물질을 모의할 수 있으며 다양한 규모에 대한 동시 수치모의가 가능한 대기질 모델이다(CMAS, 2016a; Byun and Ching, 1999).

모델링 영역은 총 5개로 CMAQ 모델의 기상입력자료 생성을 위해 수행한 기상모델인 WRF(Weather Research & Forecasting) model의 영역보다 남북/동서로 각각 6개 격자가 작다. 마지막 영역(D5, 격자수: 49×55)은 울산지역과 인근 일부지역 포함하는 1 km 격자 간격의 고해상도 영역으로 이 연구의 주된 분석 영역이다. CMAQ 모델의 기상입력자료는 Oh *et al.* (2015)의 연구에서 생성된 2012년 WRF 모델링 결과(43층 시간평균 격자정보, 최하층 $\sigma=0.996$)를 이용하였고, CMAQ의 전처리 모델링 MCIP(Meteorology Chemistry Interface Processor ver. 4.1)를 수행하여 23층(최하층에서 12층까지는 WRF 모델 격자와 동일) 시간별/격자별 값을 생하여 기상입력자료를 만들었다.

CMAQ 모델링을 위한 배출량 입력자료는 자연 배출량 및 인위적 배출량을 병합하여 마련하였다. 자연 배출량은 식생자료(LAI: Leaf Area Index; PFT: Plant Functional Type; EF: Emission Factors 등)와 MCIP를 통해 생성된 기상인자 자료들을 MEGAN(Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature, v2.04; Guenther *et al.*, 2006)에 입력 후 수행하여 산정하였다. 인위적 배출량의 경우, 국외 배출목록(Emission inventory)으로 주거, 산업, 발전, 교통, 농업 부문으로 구성되어 있는 MICS-Asia(The Model Inter-Comparison Study for Asia) 2010을(Carmichael *et al.*, 2002), 국내 배출목록으로는 국립환경과학원 CAPSS(Clean Air Policy Support System) 2010을 이용하여 SMOKE(Sparse Matrix Operator Kernel Emissions v3.1; CMAS, 2016b)를 수행하여 산정하였다. 동아시아를 포함하는 81 km 모의영역과 동북아시아를 포함하는 27 km 영역에 대해 MICS-Asia 배출량이 단일적으로 이용되었고 한반도를 포함하는 9 km 영역은 CAPSS와 MICS-Asia 배출량이 남한과 북한에 대해 각각 적용되었다. 울산권역을 포함하는 3 km 및 1 km 영역에 대하여는 CAPSS 배출량이 이용되었다.

Table 1. The configuration of the CCTM modeling.

Configuration options	Selected modules ¹⁾
Gas-phase chemistry mechanism	saprc99_ae5_aq
Gas-phase chemistry solver	ebi_saprc99
Horizontal/vertical advection:	hyamo/vwrf
Horizontal/vertical diffusion	multiscale/acm2
Aerosol module	aero5
Deposition velocity calculation	m3dry
Cloud module	cloud_acm_ae5

¹⁾CMAS (2016a)

SMOKE에서 배출량 시간할당을 위하여 미국 환경보호국(EPA) 자료를 바탕으로 개선된 최신의 프로파일 자료가 이용되었으며(Reis *et al.*, 2009), 공간할당을 위한 분배계수 마련을 위해 MIMS(Multi-scale Integrated Modeling System; CMAS, 2014) spatial allocator가 이용되었다. 화학종 분배를 위한 화학메커니즘은 SAPRC99이 이용되었으며(Cater, 2000), 기상자료를 바탕으로 굴뚝이 있는 점 오염원에 대하여 배출량 연직 분배를 수행하였다.

CMAQ 모델링 수행은 2012년 1, 4, 7, 10월을 대상으로 하였다. 계절의 중심에 있는 4개월의 모델링 결과들은 연중 농도변화의 범위를 모두 설명할 수 없지만 선택된 월의 평균값은 계절의 평균값과 유사하다. 이는 지난 3년간(2011~2013년) 평균된 월별 농도변화에서 확인할 수 있었다(여기서는 제시되지 않음). 각 달의 모델링은 초기조건의 불확실성을 줄이기 위해 초기 적응시간(spin-up time) 2일을 추가로 포함하여 수행되었다. CMAQ의 화학수송모델(CMAQ chemical transport model, CCTM) 수행에 적용한 옵션은 표 1과 같으며 국립환경과학원에서 수행한 대기질모델링 정확도 향상을 위한 최적화 연구(NIER, 2014b)에 적용된 옵션과 동일하다.

CMAQ 모델링 결과 검증은 피어슨 상관계수 r, 자료의 편향을 보여주는 Mean Bias(MB)와 Normalized Mean Bias(NMB), 오차통계치표인 Root mean square error(RMSE)와 Normalized mean error(NME), 일치도 지수(index of agreement, IOA) 분석을 통해 이루어졌다. 사용된 통계량은 전통적인 검증지표로 다수의 대기질 모델링 검증 연구들에서 제시되었다(Hogrefe *et al.*, 2015; Yu *et al.*, 2006; Zhang *et al.*, 2006).

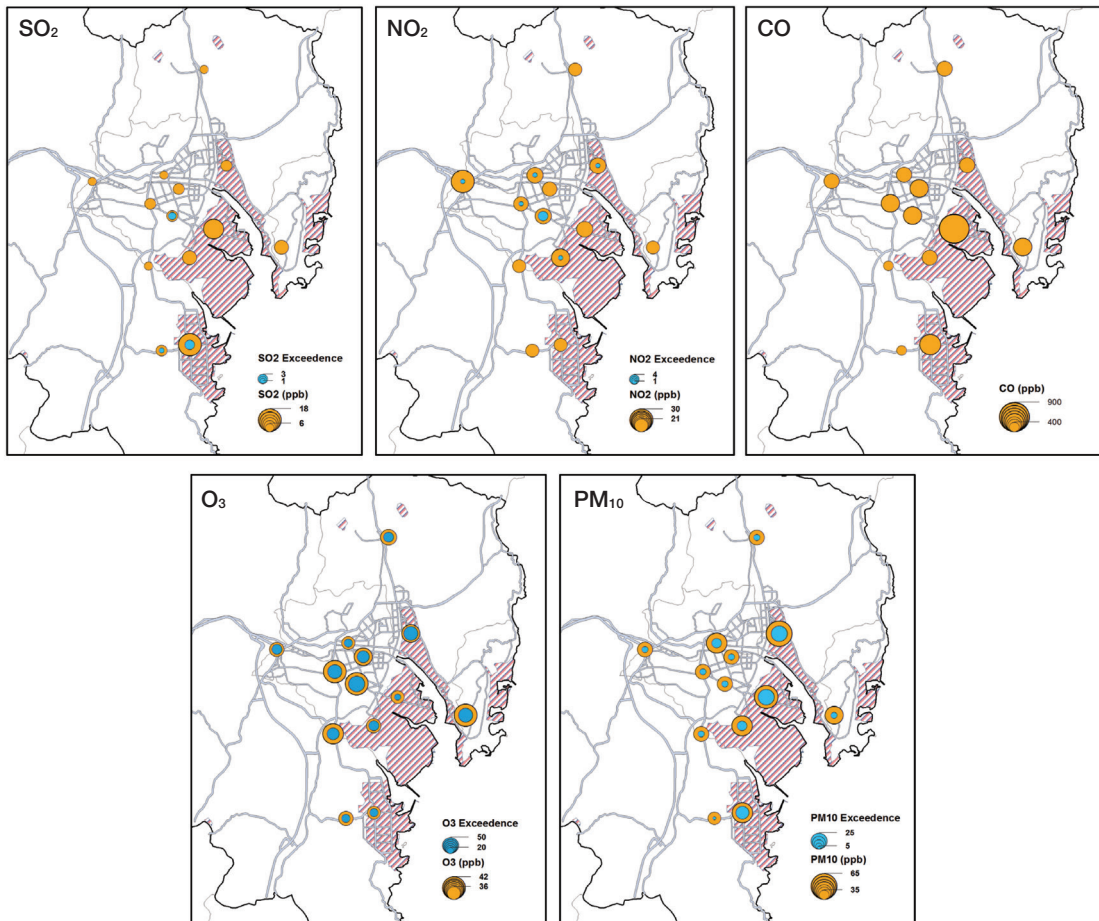


Fig. 2. Spatial distribution of 3-year (2011~2013) averaged pollutant concentrations and numbers exceeding the Korean air quality guidelines at 13 AQMS. The light red slashed regions and gray lines indicate industrial areas and main roads, respectively.

3. 결 과

3.1 도시대기측정망 농도분포

그림 2는 최근 3년간 울산지역에 위치한 13곳 AQMS에서 모니터링된 대기오염물질별 평균농도 값과 대기환경 기준치 초과빈도를 보여준다. 단 O₃의 경우는 일 최고 8시간 평균농도 값을 대상으로 구해진 통계이다.

SO₂는 석유화학단지(그림 1b의 B지역)에 위치한 YC 지점과 온산국가산단에 위치한 HS 지점에서 뚜렷한 고농도가 나타나며 지점별 농도는 4.6 ppb(NS 지점)에서 17.0 ppb(HS 지점)의 큰 범위를 보였다. 특히

HS 지점의 경우는 연평균 3회 이상 국가환경기준치(24시간 평균 50 ppb)를 초과하는 것으로 조사되었다. 이러한 지점별 분포는 산업단지지역 석유정제시설과 석유제품가공 및 유탄회수시설에서 주로 배출되는 SO_x 배출의 영향으로 설명되며 그림 1d에 제시된 산업단지에 높은 SO_x 배출량과 잘 연계된다. YC와 HS 지점 중심의 고농도분포는 기존 Clarke *et al.*(2014)의 연구에서도 확인할 수 있다.

NO₂의 경우는 대송(DS), 상남(SAN), 농도(NS) 지점들에서는 상대적으로 낮은 농도가 나타나며 이외 대부분의 측정지점에서 22~25 ppb 정도의 비슷한 농도 수준을 보였다. 전반적으로 환경기준치(24시간 평균

80 ppb)를 초과하는 고농도 빈도는 적고 YE 지점에서만 4회로 다소 높았다. 이러한 NO₂의 지점별 농도분포는 산업단지의 다양한 제조공정 등에서 배출되는 NO_x의 배출뿐만 아니라 도시역 자동차 배출의 영향이 반영된 결과로 볼 수 있다. 특징적으로 지역의 최고 평균 농도는 상업지역에 위치한 무거(MG) 지점에서 29.0 ppb로 나타났는데, 이는 이 지점이 울산 고속도로 톨게이트 입구지점으로 인근 교차로의 영향과 함께 교통량이 많은 이유로 추정된다. 동일지점에서 HAPs측정이 이루어진 NIER(2010) 연구에서 MG 지점의 상세한 주변 환경정보를 확인할 수 있다.

CO의 경우 산업단지에 위치한 YC 지점의 고농도(830 ppb)가 뚜렷한 것이 특징이다. 이는 대규모 화학 및 석유정제 공장이 밀집되어 있는 인근 지역 배출환경이 주된 원인으로 판단된다(남구지역 총 CO 배출량 중 석유/유기화학제품 생산공정에서 배출되는 양이 28%를 차지함, NIER, 2014c). 교외지역인 SAN 지점과 덕신(DES) 지점에서 농도가 낮았고(각각 350 ppb, 380 ppb) 나머지 측정지점들에서는 500 ppb 전후 농도분포를 보였다.

O₃는 다른 대기오염물질과는 달리 산업단지 내 위치한 지점들에서 농도가 비교적 낮고 NO₂ 농도분포와 반대의 경향을 잘 보여준다. 석유화학단지 인근에 위치한 SAN과 YE 지점, 도심의 SJ 지점, 연안 도시역에 위치한 DS 지점에서 41 ppb 전후로 상대적으로 농도가 높은 것이 특징이다. 환경기준치(8시간 평균 60 ppb) 초과일 수의 경우 YE 지점에서 48.3일로 가장 높게 나타났는데, 이는 인근 석유화학단지에서 배출되는 O₃ 전구물질들(휘발성 유기화합물: VOCs, NO_x)의 이동과 광화학 축적이 주된 원인으로 볼 수 있다. 참고로 O₃는 최근 울산지역에서 농도상승이 뚜렷한 대기오염물질로서, 여기서는 제시되지 않았지만 최근 10년간의 일 최고 8시간 평균농도의 연평균값이 매년 0.8 ppb 수준으로 유의하게(p<0.05) 증가하는 경향이 나타났다.

PM₁₀의 경우 SO₂와 유사하게 산업단지 내 위치한 측정소 지점들에서 50~60 μg m⁻³의 농도 수준을 보여 타 지점들에 비해 높다. HM 지점에서 가장 농도가 높고(61.8 μg m⁻³) 환경기준치 초과일 수 역시 22.3일로 가장 많았다. HM 지점은 현대자동차 울산공장(그림 1b의 C지역)과 인접하여 자동차 제조과정과 관련한 미세먼지 배출의 영향이 큰 것으로 사료된다. 하지만

그림 1에서 제시된 PM₁₀ 배출량의 분포를 고려하면 산업단지 지점들 중 HM 지점의 고농도를 설명하기에는 불확실성이 크다.

3.2 CMAQ 수치모의 결과: 계절별 공간분포

이 절에서는 CMAQ 모델링을 통해 계산된 주요 대기오염물질의 공간 농도분포를 계절별로 파악하고 분석하였다. 모델결과 검증에 위해 울산지역 AQMS(그림 1b 참고)에서 측정된 농도값과 해당 격자의 모델 값(D5 영역, 모델 1층 중간고도: 약 16m)을 대상으로 주요 통계지표에 대한 통계량을 표 2에 제시하였다. 검증은 측정값이 존재하는 시점의 시간별 값들을 대상으로 하였고 계절별 spin-up 기간을 제외한 전체기간을 대상으로 이루어졌다. O₃의 경우는 자료의 적절한 평가를 위해 평균 외의 통계값은 자료의 분포를 고려하여 20 ppb 초과 값들만 사용하여(cut-off value = 20 ppb) 계산하였다(Russel and Dennis, 2000).

검증결과, 계절별 차이는 존재하나 CO를 제외하고 모델이 측정값의 변화를 비교적 잘 재현함을 확인할 수 있다. NO₂와 O₃의 경우 모델값과 측정값의 정량적 차이가 적고(연평균 각각 8.7% 과소모의, 6.7% 과대모의) 모든 통계량에서 모델결과의 신뢰성을 볼 수 있다. 좋지 못한 모의결과를 보인 CO의 경우, 주된 배출원인 도로이동오염원과 산업단지 석유제품 생산공정에서의 배출량 과소평가가 그 원인으로 추정되고, 측정값 단위의 낮은 해상도(100 ppb) 역시 모델 검증의 신뢰도를 떨어지게 하는 요인이다. PM₁₀의 경우 전반적으로 모든 계절에서 과소모의(연평균 23 μg m⁻³, 최대 32 μg m⁻³·4월)의 결과를 보였고, NMB는 46%, NME는 51%로 O₃ 및 NO₂와 비교해 다소 큰 수치이다. 이는 황사 배출량이 고려되지 못한 점, 비산먼지 및 다양한 미세먼지 배출량 산정의 과소평가 부분이 주원인으로 해석된다. O₃는 상관도, 일치도 등 모든 통계지표에서 NO₂와 함께 좋은 검증결과를 보였고, 시간적 변화 역시 모델이 측정된 농도변화를 잘 모의함을 그림 3에서 확인할 가능하다. 이상과 같은 검증결과는 CO를 제외한 나머지 대기오염물질들에 대해서 수치모의 결과를 이용한 울산 전역의 공간적 농도분포 평가가 가능함을 보여준다.

그림 4는 CMAQ 모델로 재현된 D5 영역 대상 계절별 대표 월(1, 4, 7, 10월)의 SO₂, NO₂, O₃, PM₁₀ 평균농

Table 2. Model performance statistics for the 2012 CMAQ simulations of hourly average air pollutant concentrations at all AQMS in the UMR modeling domain.

Statistical measures	Period	Pollutants				
		SO ₂ (ppb)	NO ₂ (ppb)	CO (0.1 ppm)	O ₃ (ppb) ^a	PM ₁₀ (μg m ⁻³)
Mean (AQMS/CMAQ)	Jan.	7.4/7.9	22.7/21.1	6.9/2.0	20.1/19.5	47.6/28.1
	Apr.	9.3/15.1	26.2/22.5	5.7/1.6	34.3/35.1	59.2/27.0
	Jul.	11.0/18.9	21.8/24.9	5.3/1.7	26.4/30.9	49.3/28.5
	Oct.	6.3/9.7	25.8/20.3	5.1/1.6	24.2/27.0	44.1/23.0
r	Jan.	0.59	0.66	0.19	0.65	0.68
	Apr.	0.44	0.64	0.34	0.65	0.53
	Jul.	0.48	0.54	0.22	0.70	0.34
	Oct.	0.40	0.62	0.27	0.62	0.51
MB	Jan.	0.58	-1.5	-4.9	-0.7	-19.4
	Apr.	5.97	-3.6	-4.1	0.7	-32.2
	Jul.	7.54	3.2	-3.6	4.1	-20.5
	Oct.	3.22	-5.5	-3.5	2.7	-20.8
NMB (%)	Jan.	7.9	-6.6	-70.1	-3.3	-40.7
	Apr.	64.5	-13.6	-72.2	2.0	-54.3
	Jul.	68.8	14.8	-68.4	15.4	-41.7
	Oct.	51.7	-21.3	-68.4	11.0	-47.2
NME (%)	Jan.	49.7	27.1	71.2	28.5	43.2
	Apr.	94.9	35.1	72.2	27.0	55.5
	Jul.	95.1	43.5	68.4	43.8	54.5
	Oct.	79.5	33.2	68.5	34.2	49.0
RMSE	Jan.	7.8	9.5	7.2	8.4	28.9
	Apr.	22.2	14.7	4.9	14.2	42.8
	Jul.	23.8	16.1	4.8	16.9	39.6
	Oct.	12.9	13.6	5.5	12.8	28.7
IOA	Jan.	0.74	0.80	0.40	0.81	0.69
	Apr.	0.56	0.79	0.41	0.81	0.58
	Jul.	0.60	0.72	0.40	0.83	0.54
	Oct.	0.47	0.76	0.35	0.78	0.60
No. of valid data	Jan.	9580	9581	9442	9575	9530
	Apr.	9278	9260	9288	9276	9292
	Jul.	9064	9057	9073	9056	9039
	Oct.	9348	9349	9365	9315	9253

r: Pearson's correlation coefficient; MB: mean bias; NMB: mean normalized bias; NME: mean normalized error; RMSE: root mean square error; IOA: index of agreement. ^aThe statistics are obtained for any pairs of the simulated and observed O₃ mixing ratios when the observed mixing ratio is >20 ppb.

도의 공간분포이다. O₃의 경우 일 최고 8시간 평균농도의 월평균 값이 제시되었다. SO₂ 농도장에 함께 그려진 바람벡터는 CMAQ 모델링 기상 입력자료로 이용된 WRF 모델 결과이며 Oh *et al.* (2015)의 연구에 제시된 해당월 평균 바람장과 동일하다.

SO₂의 경우, 계절에 따라 다소의 차이는 있지만 남구에 위치한 석유화학단지과 울주군의 온산산업단지의 일부 지역을 중심으로 고농도가 뚜렷하며 이들 지

역과 인근해상에 고농도역(연간 환경기준치 20 ppb 초과지역)이 한정되는 모습이 특징적이다. 석유화학단지 내 석유정제 및 온산국가산업단지내 화학 업종 산업지역(KICOX, 2016)을 중심으로 높은 농도가 나타나며 이는 SO_x 배출량의 분포(그림 1c 참조)와 잘 연계된다. 또한 해상의 높은 농도는 바람에 의한 이류의 영향도 있지만 해상의 비도로 이동오염원인 선박운송에서 배출되는 SO_x 기여가 큰 부분이다. 하지만 계절에 따라

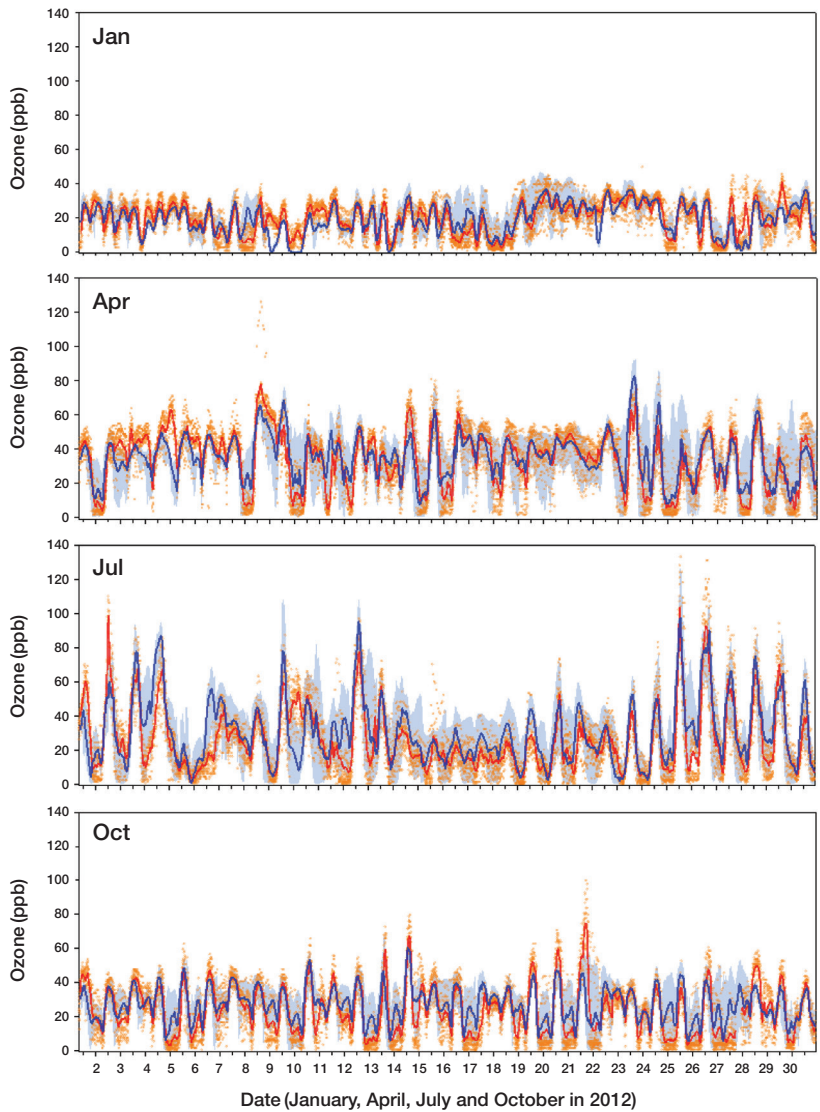


Fig. 3. Time series of observed and simulated ozone concentrations in the UMR. All of the hourly measured values at the 13 sites (solid orange dots) and the simulated range (shaded light blue) are shown. The thick red and blue lines are the average measured and simulated concentrations, respectively.

바람분포와 연계하여 고농도역의 모습과 범위가 다르게 나타남을 확인할 수 있다. 4월과 7월에 나타난 바람 벡터와 농도분포는 대기정체, 국지순환과 관련하여 산단지역과 인접한 도시역으로 SO₂ 농도가 상승할 수 있음을 보여주는 것으로 주민노출과 관련하여 의미 있는 계절적 변화 특징이다. 7월과 1월의 농도차(그림 4e)를 통해 산단 인근 도시역 SO₂ 농도의 계절변화를 면밀히

살펴보면, 석유화학단지와 온산산업단지 인근 내륙 북쪽으로 7월에 농도가 뚜렷이 상승함을 알 수 있다. 특히 석유화학단지와 인접하여 위치한 주요 도시역(야음동, 대현동, 달동 일대)에 해당되는 그림 4e에 빨간색선 사각형 영역(9개 cell)의 경우 1월 대비 평균 52 ppb 높은(약 3배) 농도가 나타났다. 이러한 농도상승은 산단 지역 SO_x 배출량의 계절적 변화가 크지 않아 기상의

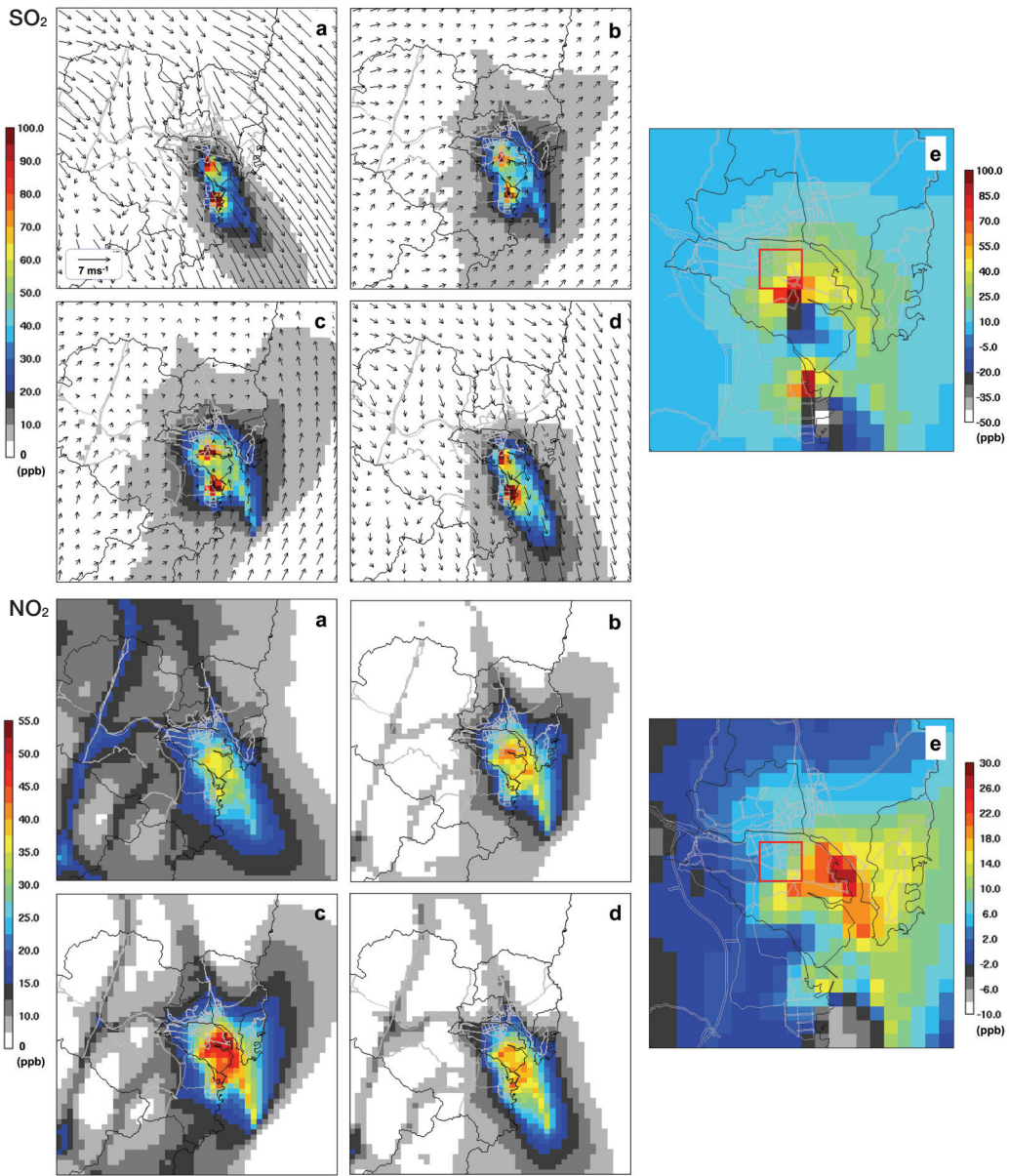


Fig. 4. Horizontal distributions of the simulated monthly mean SO_2 , NO_2 , O_3 , and PM_{10} concentrations at a first model layer for (a) January, (b) April, (c) July, (d) October and (e) differences between July and January (July minus January) in the zoom-in domain. The simulated monthly mean wind vectors are displayed with SO_2 concentration fields every three grid points. The red line rectangle in panel (e) indicates the urban areas (9 cells) near the petrochemical complex.

영향이 주된 원인으로 판단된다. 농도 수준의 정량적 평가에 있어서는 모델의 과대모의 경향(표 2 참고)을 고려하여 제한된 해석이 필요할 것이다.

NO_2 의 경우 SO_2 에 비해 비교적 넓은 범위의 고농도 역(연간 환경기준치 30 ppb 초과지역)이 나타나고 산업단지와 주요 도로에서도 농도가 높다. 이는 에너지

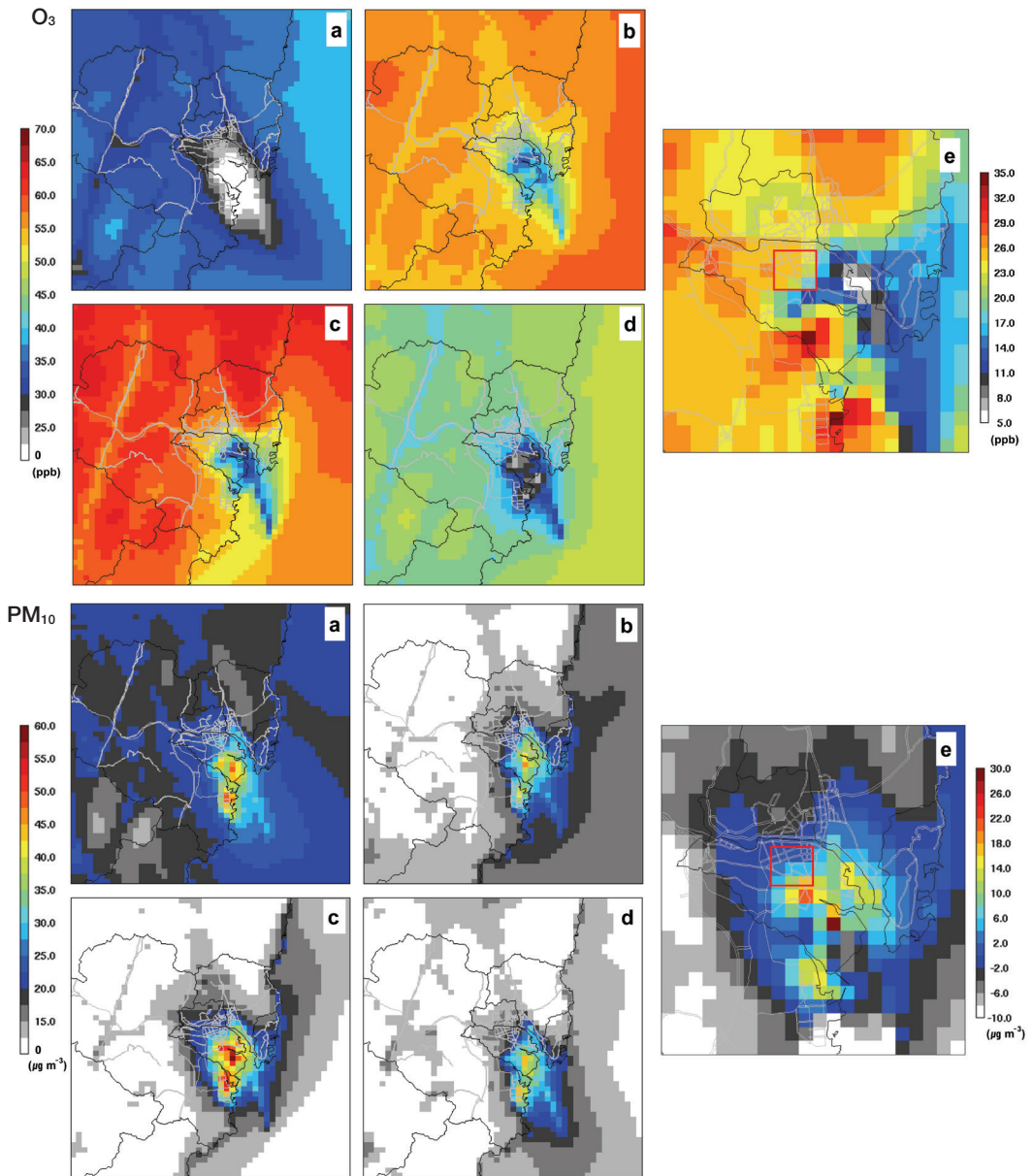


Fig. 4. Continued.

산업 및 제조업 연소와 관련한 산업단지 내 여러 점오염원과, 인근 해상의 선박운송, 도심의 도로이동오염원으로부터의 질소산화물 배출이 기여한 결과로 해석된다. 계절 중 7월에는 산업단지 인근 도시역에 30 ppb 이상의 높은 농도가 모의되었는데 이는 대기의 정체, 활발한 광화학 반응이 주요 원인이다. 7월과 1월의 농

도차 그림에서는 7월에 석유화학단지 인근 북동쪽으로 전반적인 농도상승을 볼 수 있고 석유화학단지 인근 도시역 9개 cell은 1월 대비 평균 8 ppb(약 1.3배) 농도가 상승하였다. AQMS 연평균 농도분포(그림 2 참고)에서 나타난 MG 지점의 고농도 현상은 모델결과에서는 볼 수 없는데, 이는 국지 배출량 산정의 불확실성

과 함께 모델 계산 시 나타나는 격자 내 혼합효과(mixing effect)로 인한 결과로 판단된다.

O₃는 앞서 제시된 SO₂, NO₂ 농도분포와는 달리 NO_x 배출이 많은 산업단지와 도심, 주요 도로부근으로 농도가 낮게 나타났다. 이는 NO_x 적정(titration) 과정으로 야간에, 겨울철, 대규모 NO_x 배출원 지역에서 뚜렷이 나타나는 O₃ 저농도 현상과(Silman, 1999) 관계한다. O₃의 공간분포는 전구물질(precursor)인 NO₂ 농도분포와 반대의 경향을 잘 보여 준다. 산업단지와 도심지역 일부를 제외하고 영역 전반에 나타난 높은 농도는 고도가 높은 지역에서 주로 나타나며, 지역의 배경농도와 대기경계층 내 상대적으로 변화가 적고 높은 농도를 가지는 상층공기의 영향으로 설명될 수 있다. 대기의 연직운동과 오존의 수송효과 등은 고도가 높은 지상부근의 농도를 높일 수 있다(Oh *et al.*, 2010). 해상의 농도는 선박이동지역을 제외하고 약 30~60 ppb 수준의 농도가 연중 분포한다. 4월과 7월의 해상 농도는 직접적인 비교는 어렵지만 항공기를 이용한 남해안 지역의 오존 공간분포 조사에서 나타난 6월의 해상 농도 수준(Seo *et al.*, 2012)과 유사하다.

연중 7월에는 산업단지와 그 외 지역의 농도차가 계절 중 가장 크게 나타나는 특징을 보이며 석유화학단지에서 10km 내외 범위에 위치한 남구와 중구지역 도시역에서 상대적 고농도 현상을 볼 수 있다. 이는 지역 바람특성과 연계하여 산업단지 및 도심에서 배출된 오존 전구물질의 이동 및 풍하지역의 광화학적 축적과정으로 설명될 수 있다. 1월 대비 내륙지역 오존농도 상승이 뚜렷하며 석유화학단지 인근 도시역 9개 cell 평균농도는 25 ppb(약 2배) 높게 모의되었다.

PM₁₀의 경우 SO₂ 농도분포와 유사하게 온산산업단지 및 석유화학단지를 중심으로 고농도역(연간 환경기준치 50 µg m⁻³ 초과지역)이 집중되어 나타나는 모습이다. 이는 산업단지 내 제조업(비철금속, 화학제품 제조 등)/에너지산업 연소와 유기화학제품 생산공정에서 배출되는 다량의 PM₁₀이 주된 원인이다(NAPES, 2016; NIER, 2014c; Na and Lee, 2000). 해상에 나타난 20~40 µg m⁻³ 정도의 농도 수준은 해상의 선박운송과정으로부터의 PM₁₀ 배출과(울산지역 전체 PM₁₀ 배출량의 25%) 연중 탁월한 북서풍을 영향으로 판단된다. 연중 1월은 지역적 농도 경도가 적고 7월에는 산단지역 농도상승이 뚜렷하다. 다른 오염물질들과 비교해 1

월 대비 7월 석유화학단지 인근 9개 cell의 농도상승(5.3 µg m⁻³, 1.2배)은 가장 적었다. PM₁₀ 수치모의 결과의 해석에 있어, 모델이 황사의 영향을 반영하지 못한 부분(4월에 모델의 과소모의 경향이 뚜렷함), 비산먼지 배출량의 불확실성, 2차 생성 미세먼지 수치모의의 한계 등을 고려한다면 농도 수준의 정량적인 해석은 제한적이다.

4. 결 론

이 연구에서는 울산의 산업단지와 도시역을 중심으로 주요 대기오염물질의 공간적 농도분포를 제시하고 물질별 비교와 계절적 차이에 대한 특징들이 분석되었다.

우선 도시대기측정망 자료 분석에서는, SO₂와 PM₁₀은 산업단지에서, O₃는 석유화학단지 인근 도시지역 지점들에서 고농도 현상이 뚜렷함을 알 수 있었다. 반면 NO₂의 경우는 일부 도시지역 측정망 지점들을 제외하고는 평균적으로 비슷한 공간적 농도분포를 보였다. 특징적으로 O₃와 PM₁₀은 인구밀도가 높은 도심 측정지점들에서 환경기준치를 초과하는 고농도가 빈번히 나타나 이들 물질들은 지역의 중요한 관리대상을 확인할 수 있었다.

CMAQ 모델링을 통해 울산 전역을 대상으로 대기오염물질 SO₂, NO₂, O₃, PM₁₀의 해상도 높은 평균농도분포를 계절별로 파악하였다. SO₂와 PM₁₀의 경우 계절별 다소의 차이는 있으나 온산산업단지 및 석유화학단지에 제한된 고농도분포가 뚜렷하였다. NO₂ 역시 산업단지를 중심으로 농도가 높지만 교통량이 많은 도심에도 30 ppb 전후의 농도 수준이 나타났다. O₃는 산단 내에는 농도가 매우 낮으며 인근지역에 상대적 고농도가 분포하였고 여름에 이들의 농도 경도가 크게 나타났다. 특징적으로 계절 중 남풍의 빈도가 많아지는 봄과 여름에 모든 대기오염물질이 산업단지 인근 풍하측 도시역에 농도가 상승하는 경향을 볼 수 있었고, 석유화학단지 인근 도시역의 경우 1월 대비 7월의 농도가 SO₂는 약 3배, O₃는 약 2배 높게 모의되었다. 하지만 연중 탁월한 북서풍으로 인해 산단 배출 대기오염물질의 평균적 영향은 내륙 일부로 제한되었다.

향후 농도분포의 지역적 차이와 특정지역 고농도 현

상의 정확한 원인 규명을 위해서는 집중측정 및 대기 질 모델결과의 3차원적 심층분석이 필요할 것으로 판단된다. 또한 이 연구에서는 초미세먼지(PM_{2.5}) 농도에 대한 분석은 이루어지지 않았지만 대규모 산업단지의 존재와 인체에 미치는 영향을 고려한다면 측정자료 분석과 추가적인 모델링 연구가 필요하다. 또한 산업활동과 관련하여 배출되는 중금속과 벤젠(Benzene), 톨루엔(Toluene), 자일렌(Xylene)과 같은 HAPs 농도에 대한 이해는 울산의 대기질을 평가하는 중요한 부분일 것이다. 지역 내 중금속(4곳) 및 HAPs(2곳) 측정지점이 부족하지만 산업단지 지역에서 중금속과 HAPs 농도가 뚜렷이 높게 나타나는 현상은 주목할 만하다(NIER, 2011~2013). 2009년에 울산지역을 대상으로 수행된 HAPs 조사연구에서도(NIER, 2010) 산업단지 VOCs 농도가 주거지역보다 높은 수준이며 울산지역 독성 VOC 배출 대부분은 산업활동에 기인한 것으로 추정 보고하였다. 유해 대기오염물질의 경우 향후 측정망 확대와 빈도 높은 측정을 통해 지역 내 농도변화의 이해를 높이고 대기질 모델링 연구를 병행하여 공간적 농도분포를 보다 면밀히 분석할 필요가 있다.

이 연구에서 제시된 주요 대기오염물질의 해상도 높은 평균농도분포 정보는 울산산업단지와 인근 도시역을 중심으로 한 지역 대기질 이해에 중요한 자료로 이용될 수 있을 것이다. 또한 환경영향연구를 위한 대기오염물질 노출평가의 기초자료로 활용될 수 있으며, 기존 수행된 울산산업단지 주변 식생 또는 주민 건강영향 평가 연구들(NIER, 2010, 2006, 2001; Lee *et al.*, 1990)의 고도화에 기여할 수 있을 것으로 사료된다.

감사의 글

본 연구는 환경부 환경보건센터 재원에 의해 이루어졌습니다.

References

Byun, D.W. and J.K.S. Ching (1999) Science algorithms of the EPA Models-3 community multiscale air quality (CMAQ) modeling system, Washington, DC: US

Environmental Protection Agency, Office of Research and Development.
 Carmichael, G.R., G. Calori, H. Hayami, I. Uno, S.-Y. Cho, M. Engardt, S.-B. Kim, Y. Ichikawa, Y. Ikeda, J.-H. Woo, H. Ueda, and M. Amann (2002) The MICSA-sia study: Model intercomparison of long-range transport and sulfur deposition in East Asia, *Atmospheric Environment*, 36, 175-199.
 Cater, W.P.L. (2000) Documentation of the SAPRC-99 chemical mechanism for VOC reactivity assessment, Final Report to California Air Resources Board.
 Choi, B.-W., J.-H. Jung, W.-J. Choi, C.-J. Jeon, and B.-H. Shon (2006a) Distribution characteristics of ambient heavy metals based on the emission sources and their carcinogenic risk assessment in Ulsan, Korea, *Journal of Environmental Health Sciences*, 32(5), 522-531. (in Korean with English abstract)
 Choi, B.-W., J.-H. Jung, W.-J. Choi, B.-H. Shon, and K.-J. Oh (2006b) Characteristics of the distribution of high ambient air pollutants with sources and weather condition in Ulsan, *Journal of Environmental Health Sciences*, 32(4), 324-335. (in Korean with English abstract)
 Clarke, K., H.-O. Kwon, and S.-D. Choi (2014) Fast and reliable source identification of criteria air pollutants in and industry city, *Atmospheric Environment*, 95, 239-248.
 Community Modeling and Analysis System (CMAS) (2014) <https://www.cmascenter.org/sa-tools/documentation/4.2/html/>
 Community Modeling and Analysis System (CMAS) (2016a) Operational guidance for the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system. <https://www.cmascenter.org/cmaq>
 Community Modeling and Analysis System (CMAS) (2016b) <http://www.smoke-model.org>
 Guenther, A., T. Karl, P. Harley, C. Wiedinmyer, P.I. Palmer, and C. Geron (2006) Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 3181-3210.
 Hogrefe, C., G. Pouliot, D. Wong, A. Torian, S. Roselle, J. Pleim, and R. Mathur (2015) Annual application and evaluation of the online coupled WRF-CMAQ system over North America under AQMEII phase 2, *Atmospheric Environment*, 115, 683-694.
 Hwang, M.-K., J.-H. Bang, I. Oh, and Y.-K. Kim (2015) Ozone exposure assessment by population characteristics: A

- case study for high ozone days in Busan, *Journal of Environmental Health Sciences*, 41(2), 71-81. (in Korean with English abstract)
- Isakov, V., J.S. Irwin, and J. Ching (2007) Using CMAQ for exposure modeling and characterizing the subgrid variability for exposure estimates, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 46, 1354-1371.
- Jo, Y.-J. and C.-H. Kim (2015) Assessment of emission data for improvement of air quality simulation in Ulsan, *Journal of Environmental Impact Assessment*, 24(5), 456-471. (in Korean with English abstract)
- Korea Industrial Complex Corporation (KICOX) (2016) http://www.kicox.or.kr/home/facility/service_link01.jsp
- Korea Meteorological Administration (KMA) (2011) *Climatological Normals of Korea (1981~2010)*. Publication No. 11-1360000-000077-14.
- Lee, H.-D., J.-W. Yoo, M.-K. Kang, J.-S. Kang, J.-H. Jung, and K.-J. Oh (2014) Evaluation of concentrations and source contribution of PM₁₀ and SO₂ emitted from industrial complexes in Ulsan, Korea: Interfacing of the WRF-CALPUFF modeling tools, *Atmospheric Pollution Research*, 5, 664-676.
- Lee, K.-J., J.-O. Bae, K.-S. Koh, and J.-S. Woo (1990) The effect on the forest by the air pollution around Ulsan Industrial complex (I) - Injury on black pine, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 6(1), 103-110. (in Korean with English abstract)
- Lee, J.-T., D. Shin, and Y. Chung (1999) Air pollution and daily mortality in Seoul and Ulsan, Korea, *Environmental Health Perspectives*, 107(2), 149-154.
- Na, D.-J. and B.-K. Lee (2000) A Study on the characteristics of PM₁₀ and air-borne metallic elements produced in the industrial city, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 16(1), 23-35. (in Korean with English abstract)
- National Air Pollutants Emission Service (NAPES) (2016) National air pollutants emission, <http://airemiss.nier.go.kr/mbshome/mbs/airemiss/index.do>
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2001) *Comprehensive study on environmental pollution exposure and health - Ulsan industrial complex area*, NIER NO. 2001-07-599.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2006) *A study on environmental exposure level of residents in Ulsan industrial complex area*, NIER NO. 2006-76-859.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2010) *A study of hazardous air pollutants (HAPs) in Ulsan*, <http://library.nier.go.kr>
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2011-2013) *Monthly report of air quality*, <http://library.nier.go.kr>
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2014a) *Annual report of air quality in Korea 2013*, <http://library.nier.go.kr>
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2014b) *Studies on the optimization method for improving the accuracy of air quality modeling*, NIER-SP2013-210.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2014c) *National air pollutants emission*. NIER-GP2014-392.
- Oh, I., J.-H. Bang, and Y. Kim (2015) Meteorological characteristics in the Ulsan metropolitan region: focus on air temperature and winds, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 31(2), 181-194. (in Korean with English abstract)
- Oh, I.-B., Y.-K. Kim, M.-K. Hwang, C.-H. Kim, S. Kim, and S.-K. Song (2010) Elevated ozone layers over the Seoul metropolitan region in Korea: evidence for long-range ozone transport from eastern China and its contribution to surface concentrations, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 49(2), 203-220.
- Reis, S., M. Lang, and M. Vieno (2009) Improving the temporal profiles of emission input data for high resolution atmospheric transport modelling a case study for the UK, 18th Annual International Emission Inventory Conference, Baltimore, USA.
- Russell, A. and R. Dennis (2000) NARSTO critical review of photochemical models and modeling, *Atmospheric Environment*, 34(12), 2283-2324.
- Seo, S.-J., S.-Y. Kim, M.-D. Lee, J.-S. Choi, S.-Y. Kim, S.-J. Lee, J.-S. Kim, and G.-W. Lee (2012) The analysis of spatial distribution of ozone in the southern coast of Korea using the aircraft (2009, Summer), *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 28(1), 12-21. (in Korean with English abstract)
- Sillman, S. (1999) The relation between ozone, NO_x and hydrocarbons in urban and polluted rural environments, *Atmospheric Environment*, 33(12), 1821-1845.

Ulsan Metropolitan City (2013) 2013 Ulsan metropolitan city white paper, <http://www.ulsan.go.kr/rep/ghpaper1>

Yu, S., B. Eder, R. Dennis, S.-H. Chu, and S.E. Schwartz (2006) New unbiased symmetric metrics for evaluation of air quality models, *Atmospheric Science Letters*, 7(1), 26-34.

Zhang, M., I. Uno, R. Zhang, Z. Han, Z. Wang, and Y. Pu

(2006) Evaluation of the Models-3 Community Multi-scale Air Quality (CMAQ) modeling system with observations obtained during the TRACE-P experiment: Comparison of ozone and its related species. *Atmospheric Environment*, 40(26), 4874-4882.