Journal of Korean Society for Atmospheric Environment
Vol. 33, No. 2, April 2017, pp. 139-158
https://doi.org/10.5572/KOSAE.2017.33.2.139
p-ISSN 1598-7132, e-ISSN 2383-5346

수도권 초미세먼지 농도모사: (I) 2013 CAPSS 배출량 목록의 전구물질별 기여도 추정

$PM_{2.5}$ Simulations for the Seoul Metropolitan Area: (I) Contributions of Precursor Emissions in the 2013 CAPSS Emissions Inventory

김순태* · **배창한** · **김병욱**[1)] · **김현철**[2),3)]
아주대학교 환경안전공학과, [1)]미국조지아주환경청,
[2)]미국국립해양대기청, [3)]메릴랜드대학 기후 · 위성 연구소

(2017년 1월 18일 접수, 2017년 2월 24일 수정, 2017년 3월 14일 채택)

Soontae Kim*, Changhan Bae, Byeong-Uk Kim[1)] and Hyun Cheol Kim[2),3)]
Department of Environment & Safety Engineering, Ajou University
[1)]*Georgia Environmental Protection Division, Atlanta, GA, USA*
[2)]*NOAA / Air Resources Laboratory, College Park, MD, USA*
[3)]*UMD / Cooperative Institute for Climate and Satellites, College Park, MD, USA*

(Received 18 January 2017, revised 24 February 2017, accepted 14 March 2017)

Abstract

CMAQ (Community Multiscale Air Quality Model) simulations were carried out to estimate the potential range of contributions on surface $PM_{2.5}$ concentrations over the Seoul Metropolitan Area (SMA) with the gaseous precursors and Primary Particulate Matters (PPM) available from a recent national emissions inventory. In detail, on top of a base simulation utilizing the 2013 Clean Air Policy Supporting System (CAPSS) emission inventory, a set of Brute Force Method (BFM) simulations after reducing anthropogenic NO_x, SO_2, NH_3, VOCs, and PPM emissions released from area, mobile, and point sources in SMA by 50% were performed in turn. Modeling results show that zero-out contributions (ZOC) of NH_3 and PPM emissions from SMA are as high as 4~5 $\mu g/m^3$ over the region during the modeling period. On the contrary, ZOC of local NO_x and SO_2 emissions to SMA $PM_{2.5}$ are less than 1 $\mu g/m^3$. Moreover, model analyses indicate that a wintertime NO_x reduction at least up to 50% increases SMA $PM_{2.5}$ concentrations, probably due to increased HNO_3 formation and conversion to aerosols under more abundant ozone and radical conditions after the NO_x reduction. However, a nation-wide NO_x reduction decreased SMA $PM_{2.5}$ concentrations even during winter, which implies that nation-wide reductions would be more effective to curtail SMA $PM_{2.5}$ concentrations than localized efforts.

Key words : CMAQ, $PM_{2.5}$, Precursors, Nation-wide reduction, Carbons

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

1. 서 론

최근 환경부에서는 수도권 초미세먼지 연평균 농도를 2021년까지 20 μg/m^3, 2024년까지 18 μg/m^3 수준으로 개선하기 위해 LEZ(Low Emission Zone)의 단계적 적용, 노후 자동차 조기 폐차, 전기 자동차와 같은 저공해 자동차 도입 등 도로 이동 오염원으로부터 기인되는 질소산화물(NO_x, Oxides of Nitrogen)과 석탄 연소 등에서 배출되는 이산화황(SO_2), 그리고 1차 미세먼지(Primary Particulate Matters) 저감을 검토하고 있다(MOE, 2016).

초미세먼지의 다양한 성분을 고려할 때 효과적인 농도 저감을 위해서는 대상지역에서 관측된 구성성분을 바탕으로 영향을 미칠 수 있는 오염원의 파악과 관리가 중요하다(Sun *et al*., 2016; Kim *et al*., 2016a). 초미세먼지는 배출원에서 직접 배출되는 1차 미세먼지뿐 아니라 SO_2, NO_x 등 전구물질에 기인하여 생성되는 2차 미세먼지의 영향이 복합적으로 나타나며, 불광동 관측 자료를 보면 sulfate, nitrate, ammonium 등의 무기성 이온 성분 농도가 50~60% 가량으로 나타난다(Moon *et al*., 2011).

서울특별시 대기환경정보를 보면 2013~2015년 사이 연평균 초미세먼지 농도는 25 μg/m^3, 24 μg/m^3, 23 μg/m^{3}이며, 주요 기여지역으로는 서울을 비롯한 수도권 지역과 국외 지역을 언급하였다(Seoul, 2017). 이외에도 2009년 서울시 미세먼지에 대하여 중국 등 국외 영향을 49%, 국내 영향을 51%로 조사하였으며, 국내 영향 중 이동오염원, 비산먼지 등에 대한 기여도가 크다고 평가하였다(Seoul, 2011, 2010). 국내의 경우 지리적 특성상 국외로부터의 유입이 계절별로 강하게 나타나며, 대상지역에 대한 국내외 기여도 및 삭감 대책에 따른 농도 개선 정도는 이용되는 배출목록에 따라 달라질 수 있다(Kim *et al*., 2017, 2016b).

미국에서는 오존, 초미세먼지, 시정장애 SIP(State Implementation Plan) 수행을 위해 국가 배출량 목록인 NEI(National Emission Inventory)를 기반으로 대기관리 해당 지역의 최신 정보를 추가한 정밀 배출량 자료를 이용하고 있다(TCEQ, 2016). NEI는 전국적인 일반조사 결과로 대기관리를 수행해야 하는 지방 자치단체 혹은 담당 부서의 최종 목표에 따라서는 부족하거나 상대적으로 정확도가 떨어지는 배출원 혹은 배출량 정보이기 때문이다. 그러나, 국내에서는 현재까지 이러한 개선 노력이 미흡한 실정이다.

본 연구에서는 2013 CAPSS 배출량 목록을 이용한 대기질 모사를 통해 수도권 배출량이 해당 지역 및 주변 지역의 초미세먼지 농도에 미치는 기여농도 및 범위를 조사한다. 이를 위해 2013 CAPSS 배출량을 이용한 모사결과를 관측치와 비교하여 재현성을 평가하고, 민감도 모사를 통해 배출량 변화에 따른 초미세먼지 농도변화 정도를 관찰한다. 이러한 결과는 전구물질별 삭감에 따른 초미세먼지 농도변화 범위 추정을 가능하게 하며, 향후 수도권 지역의 초미세먼지 개선계획 수립 시 주요 대상물질 선정 등에 활용될 수 있다.

2. 연구 방법

2.1 기상 및 대기질 모사

대기질 모사는 WRF(Weather Research and Forecast; Skamarock *et al*., 2008) version 3.4.1-SMOKE (Sparse Matrix Operation Kernel Emissions; Benjey *et al*., 2001) version 3.1 /MEGAN (Guenther *et al*., 2006) version 2.1-CMAQ (Byun and Ching, 1999) version 4.7.1 모델 시스템을 이용하였다(Kim *et al*., 2008). WRF 모사 시 초기장은 NCEP(National Centers for Environmental Prediction)/FNL(Final Operational Global Analysis data) 자료를 이용하였으며 수직층은 36층으로 구성하였다. WRF에서 산정된 기상자료는 MCIP (Meteorology-Chemistry Interface Processor) version 3.6을 통해 대기질 모사용 기상자료로 변환하였고, 이때 수직층은 22층으로 재구분되었으며, 최하층 높이는 33미터로 하였다. 처리된 대기질 모사용 기상자료는 자연배출량 산정 및 점 배출량의 수직층 할당과 대기질 모사에 이용되었다. 대기질 모사를 위해 휘발성 유기물질은 SAPRC99 (Statewide Air Pollution Research Center, Version 99; Carter, 1999) 화학 메커니즘에 따라 화학종 구분되었으며, 에어로졸 모사를 위해 AERO5가 이용되었다. 모사영역은 남한과 북한 일부를 대상으로 수평해상도 9-km의 격자로 구성되며, 해당 모사영역에 대한 경계조건을 생산하기 위하여 27-km 수평해상도로 중국 등이 포함된 동북아시아 지역의 모사를 먼저 수행하였다. 이용된 배출자료는 동

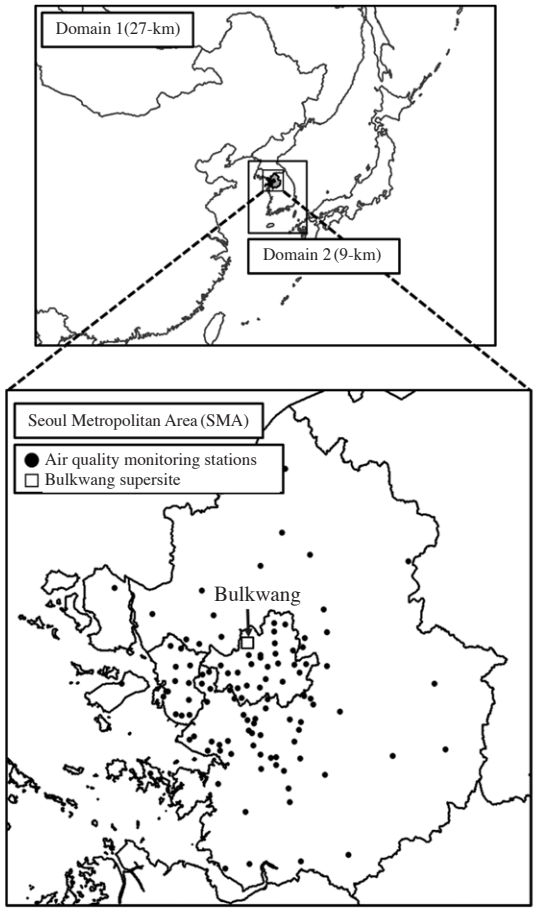

Fig. 1. CMAQ modeling domain at a horizontal resolutions of 27-km and 9-km, respectively. Filled circles and an open box in SMA represents air quality monitoring stations and Bulkwang super site, respectively.

북아 지역에 대해서는 2010 CREATE (Woo *et al*., 2014) 자료를, 국내에 대해서는 2013 CAPSS 배출량 목록을 SMOKE를 이용하여 처리하였다.

모사기간은 2014년 1월, 4월, 7월과 10월을 각 계절의 대표 월로 정하여 한 달씩 모사를 수행하였다. 모사년도는 모사결과를 비교할 수 있는 관측자료가 이용가능한 시기와 배출량 목록의 기준년도를 고려하여 2014년으로 정하였다. 모사 시 spin-up 기간은 각 모사월에 대해 15일 정도를 설정하였다. 그림 1은 모사에 이용된 모사영역을 보여주며, 표 1에 WRF와 CMAQ의 모사 조건을 제시하였다.

Table 1. WRF and CMAQ configurations for the base and sensitivity runs in the study.

(a) WRF

	Description
Version	WRF v3.4.1
Global MET inputs	FNL (NCEP, 2000)
Micro physics	WSM6 (Hong *et al*., 2004)
Short wave radiation	Dudhia (Dudhia, 1989)
Land-Surface Model	NOAH (Chen and Dudhia, 2001)
PBL scheme	YSU (Hong *et al*., 2006)

(b) CMAQ

	Description
Version	Version 4.7.1
Chemical mechanism	SAPRC99
Chemical solver	EBI
Aerosol module	AERO5
Boundary condition	Default profile for the 27-km domain Nest-down boundary for the 9-km domain
Advection scheme	YAMO
Horizontal diffusion	Multiscale
Vertical diffusion	Eddy
Cloud scheme	RADM

3. 결과 및 고찰

3.1 전구물질 배출량 분석

2013 CAPSS 배출량 목록을 바탕으로 수도권 지역에서 배출되는 배출 전구물질별 기여도를 분석하고자 표 2에 정리된 모사를 수행하였다. 질소산화물과 황산화물의 경우 수도권에 한정된 삭감과 전국적인 삭감에 따른 영향 차이를 비교하기 위하여 전국 삭감 모사를 추가하였다. 대기질 모사를 통한 기여도 분석은 BFM (Brute Force Method)을 이용하였으며, 향후 초미세먼지의 목표 수준을 달성하기 위해서는 이용된 배출량 목록에서 50% 가량의 삭감이 필요할 것을 가정하여 (MOE, 2013), 전구물질별로 일률적인 50% 삭감을 적용한 후 모사를 수행하였다. 다만, 본 연구에서의 배출량 삭감은 오염원과 지역별로 삭감율을 달리 적용하는 수도권 기본계획과는 삭감방식이 다를 수 있다. 좀 더 자세한 삭감은 3.2절에 설명하였다.

본 연구에서는 전구물질별 전반적인 기여도를 우선 살펴보기 위해 점, 선, 면 구분은 하지 않았으나, 그림 2에 오염원별로 구분된 수도권 전구물질 배출량을 2013 CAPSS 자료를 정리하여 제시하였다. 민감도 분석 시

가스상 전구물질과 대별되는 primary elemental carbon, primary organic carbon 등은 primary $PM_{2.5}$, PMC (Coarse Particulate Matter) 배출량과 함께 PPM (Primary Particulate Matter)으로 구분하였다. 모델종 (model species)으로 분류된 초미세먼지 배출량은 2013 CAPSS를 SMOKE를 통해 처리한 결과로, SCC (Source Classification Code)별 분율은 미 EPA (Environmental Protection Agency) 자료를 근거로 작성되며, 사용되는 연료 구분이 반영되었다.

황산화물은 주로 황(Sulfur)이 포함된 연료이용 시설이나, 생산공정, 비도로오염원 등에서 발생하며, 수도권 내 배출량은 37,894 tons/year (TPY)으로 전국 배출량의 10% 가량이다. 질소산화물은 주로 자동차 등 도로이동오염원을 대표하는 선 오염원과 건설장비 등 비도로 이동오염원 배출량이 포함된 면 오염원이 각각 40% 정도 차지한다. 점 오염원에서 발생되는 질소산화물 배출량은 다른 배출원에 비해 1/3~1/4 수준이다. 수도권 전체 질소산화물 배출량 284,942 TPY으로 전국의 25% 가량을 차지한다. 휘발성 유기물질의 수도권 배출량은 질소산화물과 비슷한 정도이며, 유기용제 사용으로 인한 배출이 주를 이룬다. 암모니아 배출의 경우 56,443 TPY으로, 배출 목록 상에는 주로 농업 및 생산 공정에서 배출되는 것으로 제시되어 있다. 1차 미세먼지 배출량은 재비산 먼지와 일부 생물성 연소를 포함한 값으로 32,509 TPY이 배출되며, 면과 선 오염원에 집중되어 있다.

Table 2. CMAQ sensitivity runs used in this study.

Case	Source region	Species for emission reduction
E1	SMA	NO_x
E2		SO_2
E3		NH_3
E4		PPM
E5		VOC
E6	South Korea	NO_x
E7		SO_2

3.2 기본모사 수행평가

그림 3과 4에 기상 모사에 대한 수행평가(performance evaluation)로써 2-m 기온과 10-m 풍속에 대해 관측치와 모사치를 모사월에 대해 비교하였다. 그림 3에서 관측자료는 그림 1에서 보인 모사영역에 대해 기상청 관측자료를 시간별로 평균한 것으로 월평균 모사온도(1월, 4월, 7월 그리고 10월에 대해 각각 0.5°C, 12.4°C, 23.5°C, 15.6°C)와 변화모의는 관측치(0.5°C,

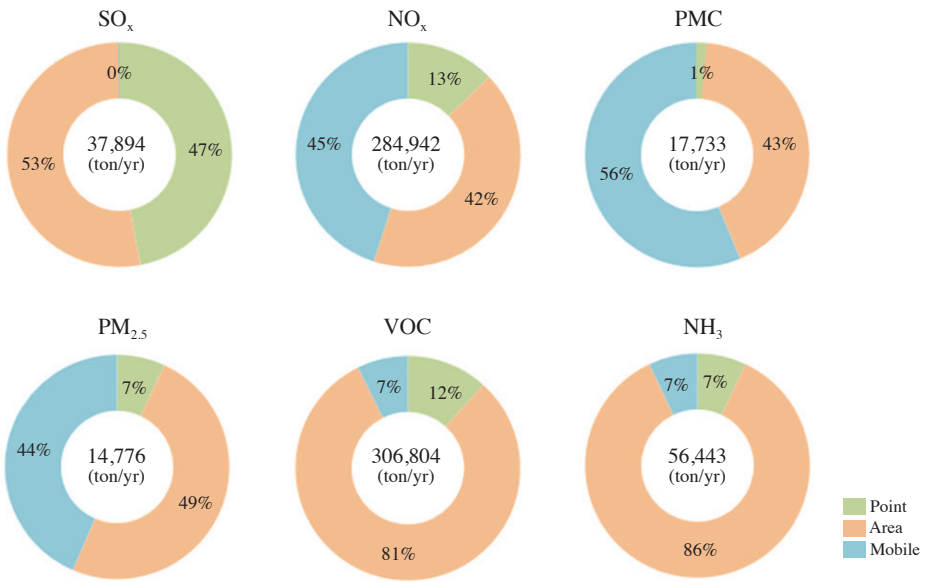

Fig. 2. Annual emission rates and proportions of point, area, and mobile sources in SMA for the selected species in the 2013 CAPSS.

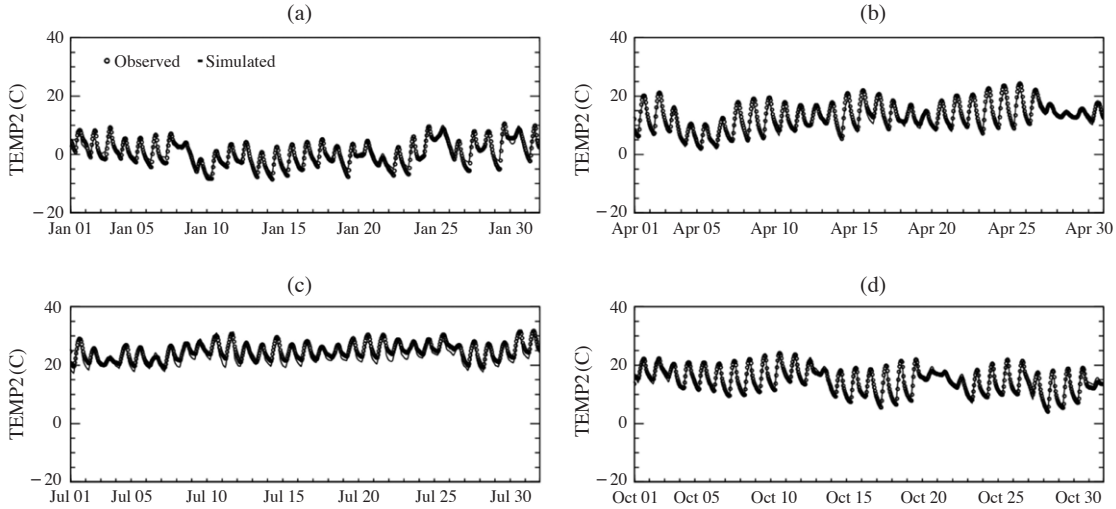

Fig. 3. Time series of hourly 2-m temperature at the monitoring sites for (a) January, (b) April, (c) July and (d) October in 2014.

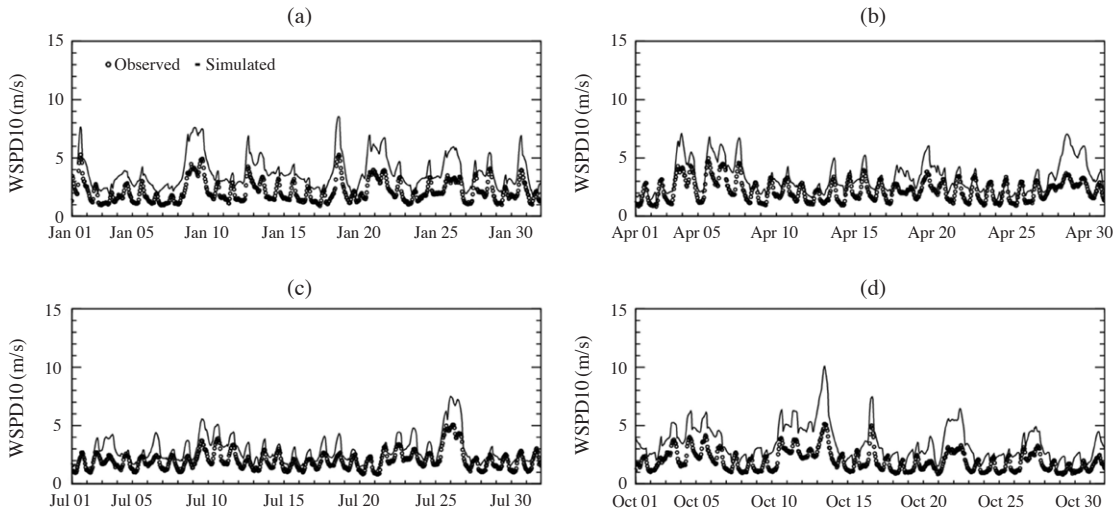

Fig. 4. Time series of 10-m wind speed at the monitoring sites for (a) January, (b) April, (c) July and (d) October in 2014.

13.1°C, 24.7°C, 14.8°C)와 유사한 반면, 10-m 풍속은 모사월에 대해 관측 풍속은 2.1 m/s, 2.2 m/s, 2.0 m/s, 2.0 m/s인 반면 모사 풍속은 각 3.8 m/s, 3.3 m/s, 2.8 m/s, 3.4 m/s로 월별로 0.8 m/s~1.7 m/s 정도 과대 모사하며, 시간평균 풍속이 빠를수록 과대 모사가 커지는 것으로 볼 수 있다.

풍향의 경우 WRF-MCIP 결과를 바탕으로 아래 식 (1)을 기반으로 U, V 바람성분별 오차에 따른 이격거리(Wind Displacement)를 산정하였다(그림 5). 이격거리는 하루 중 시간과 계절별로 편차는 보이나 9-km보다 전반적으로 작은 값을 보이는데, 이격거리의 기준으로 제시한 9-km는 미 EPA에서 초미세먼지 모사를 위해 제시한 적정 격자 크기 정도로, 국립환경과학원의 대기질 예보시스템에서도 한반도 모사영역 모사에

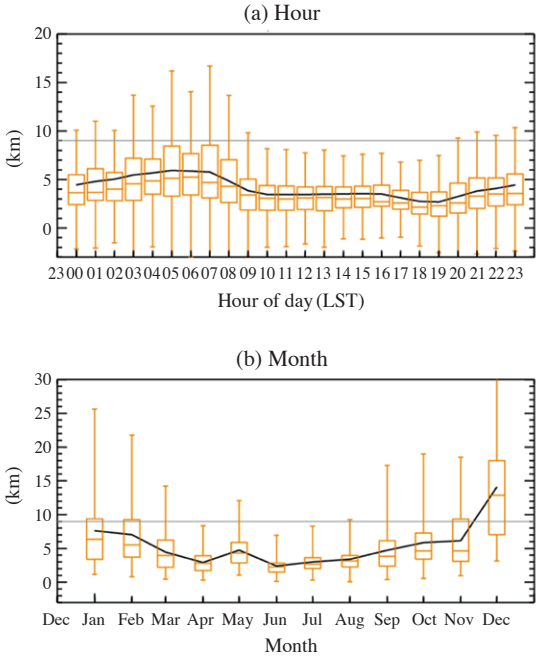

Fig. 5. Diurnal and monthly wind displacements at the meteorology monitoring sites in South Korea during 2014.

많이 쓰이는 크기이다(U.S. EPA, 2013; NIER, 2011).

$$\text{Wind displacement (km)} = (\text{U_Mod} - \text{U_Obs} + \text{V_Mod} - \text{V_Obs}) * (1\ \text{km}/1000\ \text{m}) * (3600\ \text{s/hr}) * (1\ \text{hr}) \quad (1)$$

여기에서 U_Mod는 동서방향 모사풍속, U_Obs는 동서방향 관측풍속, V_Mod는 남북방향 모사풍속, 그리고 V_Obs는 남북방향 관측풍속이다.

그림 6는 모사된 2014년 1월, 4월, 7월 그리고 10월에 대해 대기질 모사 수행평가를 보인 것으로, 미세먼지의 경우 모든 모사월에 대해 과소평가가 보이나, 4월에 대해서는 과소 모사가 두드려진다. 모사월에 대한 미세먼지 평균 관측농도는 52 μg/m^3, 모사농도는 36 μg/m^3 (R = 0.73)이다. 기상청 웹사이트에 의하면 2014년 4월 동안 보고된 황사일은 없으나, 100 μg/m^3 이상의 미세먼지 관측일을 볼 때 간접적인 영향이 있었던 것으로 판단된다. 초미세먼지 모사월에 대한 평균 모사농도는 30.6 μg/m^{3}으로 관측농도인 30.0 μg/m^{3}와 유사한 농도 수준이 모의되었다(Bias = 0.6 μg/m^3). 오존의 경우 4월과 7월에 높은 농도가 관찰되었는데, 일별 변화 등이 유사하게 모사되었다(R = 0.89). 한 가지 유의하여 볼 점은 오존의 경우 모든 관측소별 일 최고 농도를 평균하였는데, 그럼에도 불구하고 1월의 경우 관측농도 23 ppb, 모사농도 27 ppb로 배경농도인 35 ppb에 비해 낮은 농도를 보이는데, 이는 NO_x 배출량 높은 지역에서의 오존 적정효과에 의한 것으로 판단된다. NO_2의 경우 상대적으로 관측농도가 낮았던 7월에는 관측농도 21.3 ppb, 모사농도 26.6 ppb로 다소 과대 모사가 이뤄졌으나, 다른 모사월에 대해서는 관측농도에 비해 월평균 5~10 ppb 가량 낮게 모사하였다(모사월 관측평균 32.5 ppb, 모사평균 29.4 ppb). 2014년 1월 중 SO_2 관측농도 월평균 8 ppb 정도였으나, 모사농도는 5 ppb 내외로 과소 모사되었으며, 4월, 7월 그리고 10월에는 관측농도와 모사농도는 각각 3~6 ppb, 2~5 ppb 내외의 농도를 보인다. 전반적으로 수도권 지역에 대한 SO_2 농도는 전체 모사월에 대해 30% 가량 과소 평가하였다.

그림 7은 2014년 모사월에 대해 모든 측정소의 일평균 농도의 산포도를 보인 것으로 오존은 일최고 농도의 평균을 보였다. 앞선 시계열에서 설명한 바와 같이 미세먼지의 경우 모사기간 동안 관측치를 30% 가량 과소 모사하였으나(기울기 0.74), 초미세먼지의 경우 기울기 1.0 정도로 모사하였다. 오존은 관측치(46 ppb)와 유사한 일최고 농도(47 ppb)를 모사하였으며(R = 0.89), NO_2 산포도를 보면 40 ppb 이상의 고농도 일평균 관측 시, 모사농도가 과소 예측함을 알 수 있다. SO_2는 모사기간 평균 관측농도 5.8 ppb, 모사농도 3.8 ppb로 전반적인 과소 평가가 보인다.

본 연구에서 대기질 기본모사 및 민감도 모사는 배출물질별 초미세먼지 기여도를 분석하기 위한 것으로 불광동 관측자료를 이용하여 초미세먼지 구성성분에 대한 모사 재현성을 평가하였다. 표 3에 모사월에 대한 초미세먼지 모사결과에 대한 불광 측정소에서의 통계값을 제시하였으며, 표 4에 성분별 모사결과를 보였다.

표 3을 보면 그림 6과 7에서 보인 도시대기 측정망과는 달리 불광동 측정소에서는 모든 모사월에 대해 초미세먼지 농도를 과소 평가하며, 4월에 가장 큰 편차를 보인다. 모사기간 평균 초미세먼지는 관측 38.5 μg/m^3, 모사 31.5 μg/m^{3}로 20% 정도 과소 예측되었다.

표 4에서 황산염의 경우 1월에 대해 관측 6.2 μg/m^3,

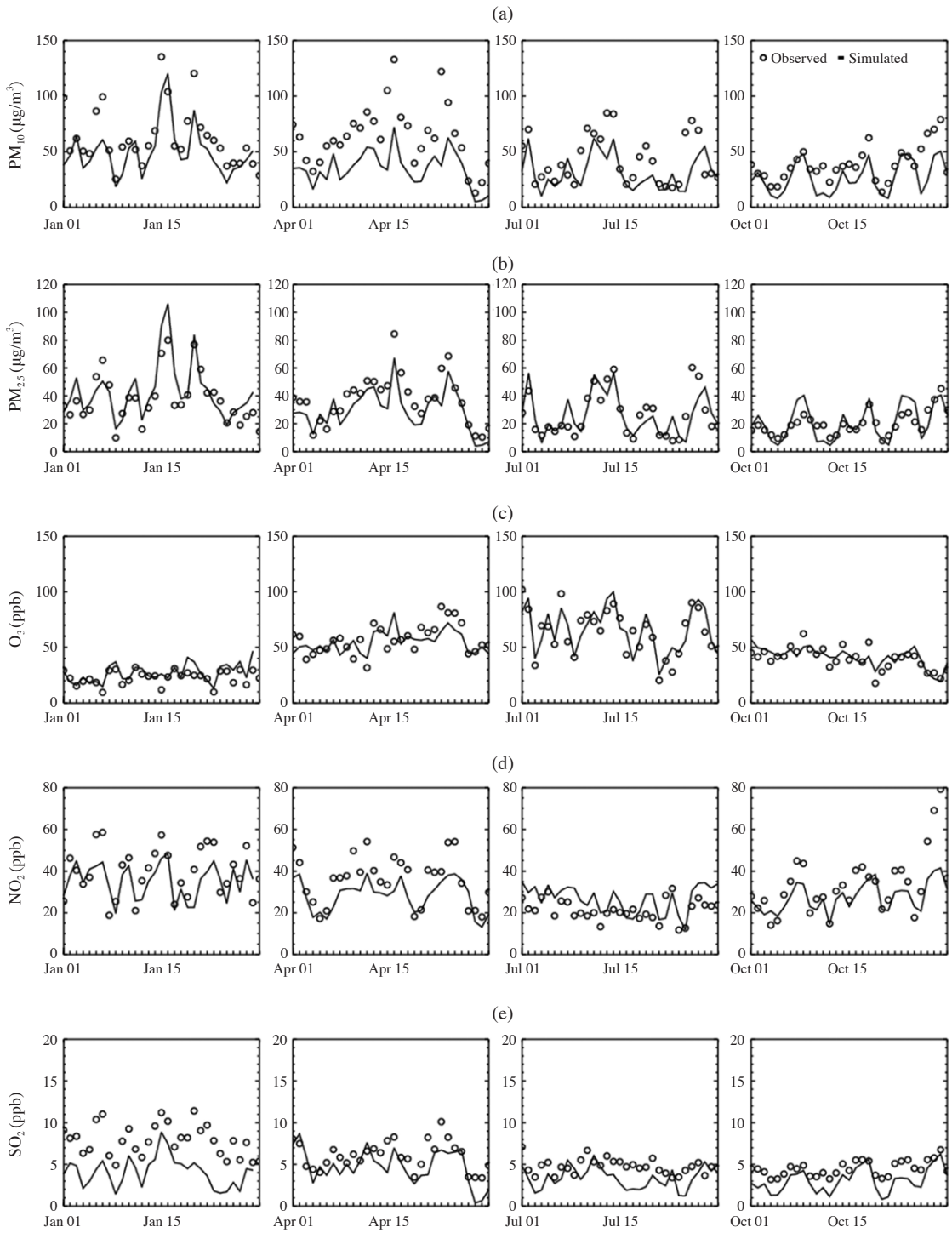

Fig. 6. Time series of daily averaged (a) PM_{10}, (b) $PM_{2.5}$, (c) O_3, (d) NO_2 and (e) SO_2 at the monitoring sites in the SMA for the modeling months in 2014. The daily mean values were used in the plot while mean of the maximum concentrations was used for ozone.

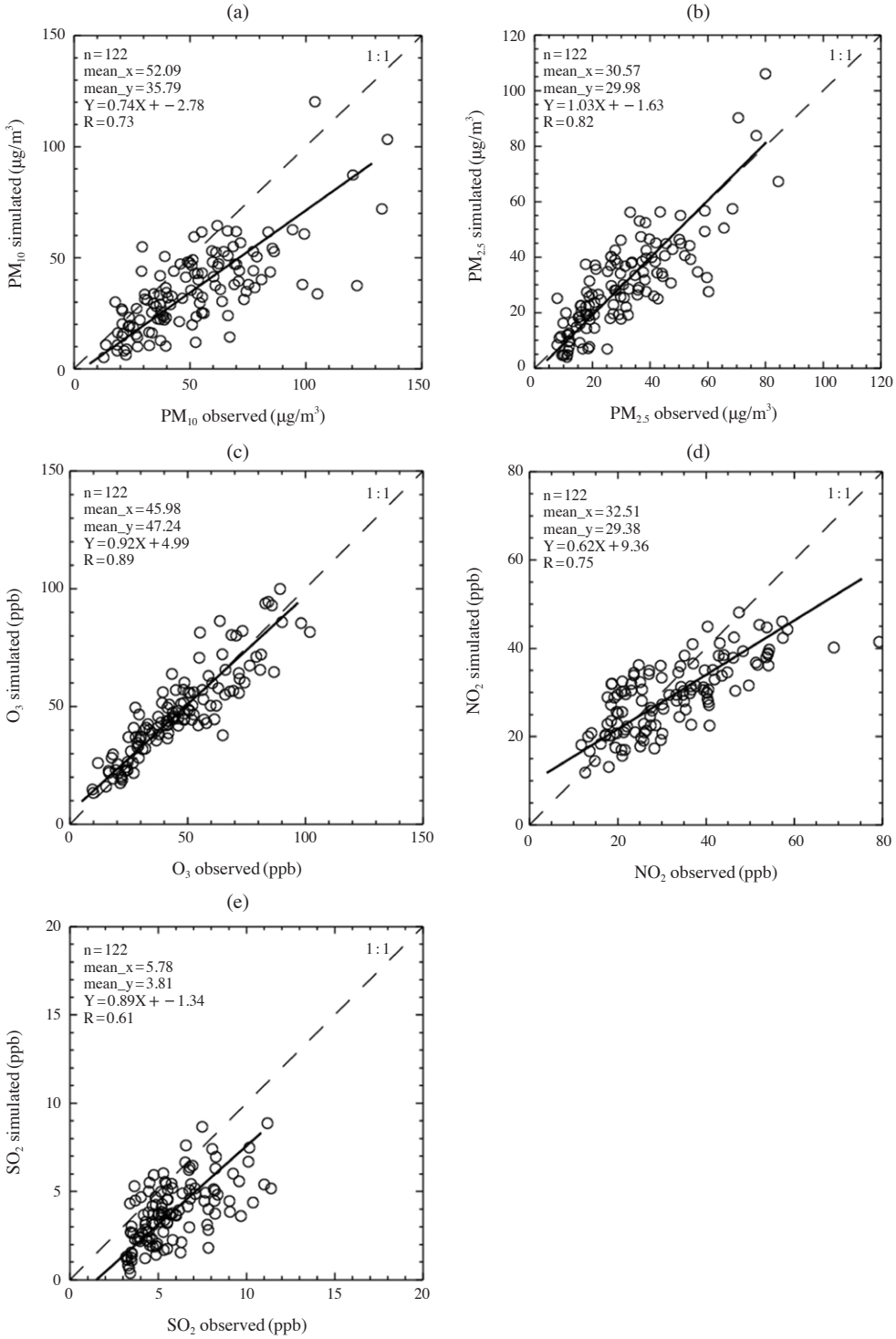

Fig. 7. Scatters of daily mean (a) PM_{10}, (b) $PM_{2.5}$, (d) NO_2, (e) SO_2 and (c) daily maximum 1-hr O_3 averaged for the monitoring sites in the SMA for the modeling months in 2014.

Table 3. Statistics for $PM_{2.5}$ at Bulkwang super site during the simulation period in 2014.

	Monthly mean ($\mu g/m^3$)		R	Bias	Error	RMSE	IOA
	Observed	Modeled					
January	49.1	44.3	0.8518	−4.8	11.0	14.0	0.9024
April	47.1	30.7	0.8541	−16.4	17.3	22.9	0.7600
July	35.8	30.0	0.7080	−5.7	12.9	16.6	0.8083
October	23.0	21.4	0.7926	−1.5	7.1	8.4	0.8783
Annual	38.5	31.5	0.8013	−7.0	12.0	16.2	0.8536

Table 4. Statistics for $PM_{2.5}$ composition at Bulkwang super site for each modeling month in 2014.

Species	Month	Mean ($\mu g/m^3$)		R	IOA	Error	RMSE	Bias
		Observed	Modeled					
Sulfate	January	6.2	3.6	0.7230	0.6379	3.2	4.5	−2.6
	April	10.7	8.0	0.8769	0.8105	4.3	6.0	−2.8
	July	11.1	10.2	0.8664	0.8942	4.0	5.3	−0.8
	October	3.1	2.8	0.8718	0.9265	0.9	1.1	−0.3
Nitrate	January	10.6	11.6	0.8096	0.8904	3.1	4.0	1.0
	April	11.0	9.3	0.8567	0.9018	3.0	4.1	−1.7
	July	7.4	7.0	0.2889	0.5285	5.3	8.0	−0.5
	October	9.4	10.9	0.8680	0.9093	2.8	3.8	1.5
Ammonium	January	5.2	5.0	0.8878	0.9122	1.4	1.7	−0.3
	April	6.8	5.8	0.9071	0.8993	1.9	2.7	−1.1
	July	6.1	5.9	0.7404	0.8256	2.8	3.7	−0.3
	October	4.2	4.4	0.8713	0.9290	1.1	1.3	0.1
EC	January	2.3	2.5	0.7650	0.8590	0.6	0.7	0.2
	April	1.9	1.3	0.8435	0.7057	0.7	0.8	−0.6
	July	1.3	1.3	0.5945	0.7325	0.4	0.5	0.0
	October	1.4	1.4	0.7965	0.8809	0.4	0.5	0.0
OC	January	5.7	7.8	0.7107	0.7428	2.7	3.4	2.0
	April	3.7	2.3	0.6408	0.6297	1.6	2.0	−1.4
	July	3.7	1.4	0.3948	0.3972	2.2	3.9	−2.2
	October	3.5	2.2	0.7966	0.6861	1.4	1.8	−1.3
Others	January	18.8	14.1	0.7959	0.8238	5.6	7.0	−4.7
	April	14.9	4.6	0.6337	0.4676	10.3	11.8	−10.3
	July	10.5	3.7	0.2481	0.4448	6.9	9.5	−6.8
	October	8.3	4.3	0.3574	0.5118	4.0	4.7	−4.0

모사 3.6 $\mu g/m^3$로 50% 가량 과소 모사하나, 상대적으로 고농도가 관측된 7월과 10월의 경우 모사농도 10.7 $\mu g/m^3$와 11.1 $\mu g/m^3$, 관측농도 8.0 $\mu g/m^3$, 10.2 $\mu g/m^3$로 10% 가량 차이를 보인다. 질산염의 경우 1월에는 관측 10.6 $\mu g/m^3$, 모사 11.6 $\mu g/m^3$로 10% 과대 모사하나 4월과 10월에는 각각 10~20% 과소, 과대 평가한다. 암모늄의 경우 황산염과 질산염 농도에 의해 결정될 것으로 판단되며, 모사월 평균농도를 볼 때, 관측치와의 편차는 1 $\mu g/m^3$보다 작다. EC의 경우 4월에는 다소 과소 모사하나, 나머지 모사월에 대해서는 관측농도와 유사한 수준을 모사하였다. OC의 경우 1월에는 관측 5.7 $\mu g/m^3$, 모사 7.8 $\mu g/m^3$로 30% 정도 과대 모사하나 다른 모사월은 과소평가가 보이며, 특히 7월의 경우 관측 3.7 $\mu g/m^3$, 모사 1.4 $\mu g/m^3$로 과소 모사가 두드러진다. 초미세먼지 중 기타 성분(Others)에 대해서는 1월을 제외하고는 상당히 큰 차이를 보인다. 특히 4월에 대해

서는 3배 정도 과소평가하고 있다. 초미세먼지 전체 농도에 대해서는 1월과 10월에 대해서는 10% 이하의 차이를 보이나, 7월 16%, 4월에는 35% 이상의 차이를 보인다. 2013 CAPSS 배출 목록을 이용한 2014년 모사결과를 보면 일부 물질에 대한 편차를 보이기는 하나, 4월을 제외한 모사월에 대해서는 일정 수준 이상의 모사가 수행된 것으로 판단되며, 다음 절의 민감도 모사 및 분석은 무리가 없어 보인다. 다만 4월의 경우 기타 성분(Others)에서 10 μg/m^3 이상 차이를 보이는 바, 이에 대한 원인 분석 및 개선이 필요하다. 본 연구에서 설명은 어려우나, 향후 계절별 전반적인 초미세먼지 모사 개선을 위해서는 황산염, 질산염 등 성분농도 과대 또는 과소 모사 원인을 배출량, 생성과정, 기상 등 다각적인 측면에서 접근하는 것이 필요할 것으로 판단된다.

3.3 모사기간 평균 기여도

대기질 모사는 기본배출량을 이용한 기본모사 외에 수도권 지역 배출량이 초미세먼지 농도에 미치는 기여도를 산정하기 위하여 대상 배출량의 절반을 감소시킨 후 민감도를 산정하고(식(2)), 이를 이용하여 식(3)과 같이 ZOC(Zero-Out Contribution)를 산정하였으며, 본 연구의 결과에서는 해당 ZOC를 모사 기여도 또는 기여도로 사용하였다.

$$S_i = \frac{C_B - C_{S,50}}{\Delta e_{i,50}} \quad (2)$$

$$ZOC = (S_i \times 2) \times 100\,(\%) \quad (3)$$

S_i(μg/m^3): 배출원 i에 대한 민감도 계수
C_B(μg/m^3): 기본모사농도
$e_{i,50}$: 배출원 i의 배출량 변화정도(50%)
$C_{S,50}$(μg/m^3): 배출원 i의 배출량을 50% 삭감 후 민감도 모사농도
ZOC(μg/m^3): 배출원 i의 배출량 유무에 따른 농도 및 추정 기여도

적용된 BFM 방법론상 배출량-농도변화의 비선형성으로 결과해석에 불확도가 내재될 수 있으며, 선행 연구에서는 연구자의 판단에 따라 20%, 50%, 100% 등 다양한 삭감율이 적용되어 왔다(Wang *et al*., 2015; MOE, 2013; NIER, 2013). 다만, 본 연구에서는 앞 절에서 설명한 바와 같이 2013년 수립된 2차 수도권 기본계획(MOE, 2013)을 참고하여 일괄적인 50% 삭감을 적용하였다. BFM 기반의 기여도 분석 시 삭감 배출량은 기본계획 등에서 실제 예측하는 삭감 범위를 고려하는 것이 타당한 것으로 판단하였다. 100% 삭감의 경우, 때때로 너무 많은 배출량 변화로 인해 기본모사와는 다른 모사 환경이 적용될 수 있음을 감안하였다. 배출량 삭감율에 따른 기여도 변화 차이는 동반논문에서 다시 논의될 예정이다.

수도권 지역에서 배출되는 전구물질 및 PPM이 해당 지역 및 주변 지역에 미치는 영향 범위를 우선적으로 살펴보기 위하여 모사월 평균 공간분포를 제시하였다. 그림 8은 2013 CAPSS 배출량 중 수도권에서 배출되는 전구물질 및 PPM에 대해 모사 기여도를 보인 것이다. 단, 그림 8에서 모사 기여도는 질소산화물이 질산염으로의 전환만을 고려한 것이 아니라, 질산염 성분농도 증가로 인한 암모늄 성분농도 증가 등 다른 성분에 미치는 영향 또한 포함된다.

NO_x의 경우 단위 면적당 배출량이 많은, 즉 배출밀도가 높은, 서울 및 인천 지역에 대해서는 음의 기여도를 보인다. 이와 반대로 상대적으로 배출밀도가 낮은 경기 동부 및 강원과 충북 인접지역에서는 연평균 2 μg/m^3 가량의 기여도를 보인다. 그림 2에서 수도권에서 많은 NO_x 배출량에도 불구하고 그림 8(a)에서 보이는 낮은 기여도의 원인을 살펴보기 위하여 그림 9에 모사월에 대한 수도권 NO_x 배출량의 모사 기여도를 나타내었다. 그림 9를 보면 겨울철인 1월 모사에서 수도권 NO_x 배출량은 초미세먼지 농도에 대한 상당한 음의 기여도를 보인다. 이러한 음의 기여도는 앞서 언급된 바와 같이 NO_x 배출밀도가 높은 지역에서 뚜렷이 나타나는데, 이에 대한 원인으로는 NO_x-rich인 지역에서 NO가 감소하게 되면, 오존 및 라디칼 농도가 증가하고 되고, 이로 인해 HNO_3 생성이 증가되고, 질산염으로의 전환이 증가하기 때문으로 판단된다. 이에 대한 자세한 서술은 그림 10과 함께 기술하였으며, 이러한 'NO_x disbenefit'과 관련된 박스(box) 모사연구는 국내에서도 수행된 바 있다(i.e., Lee *et al*., 2006).

그림 8(b)는 수도권 배출 SO_2에 의한 초미세먼지 기여도를 보인 것으로 모사된 연평균 기여도는 0.4 μg/m^3 정도로 나타난다. 그림 8(c)에서 가스상 암모니아 배출에 의한 수도권 초미세먼지 기여도는 연평균 4~5 μg/m^3 정도로 다른 물질에 비해 높은 기여도를 보인다. 암

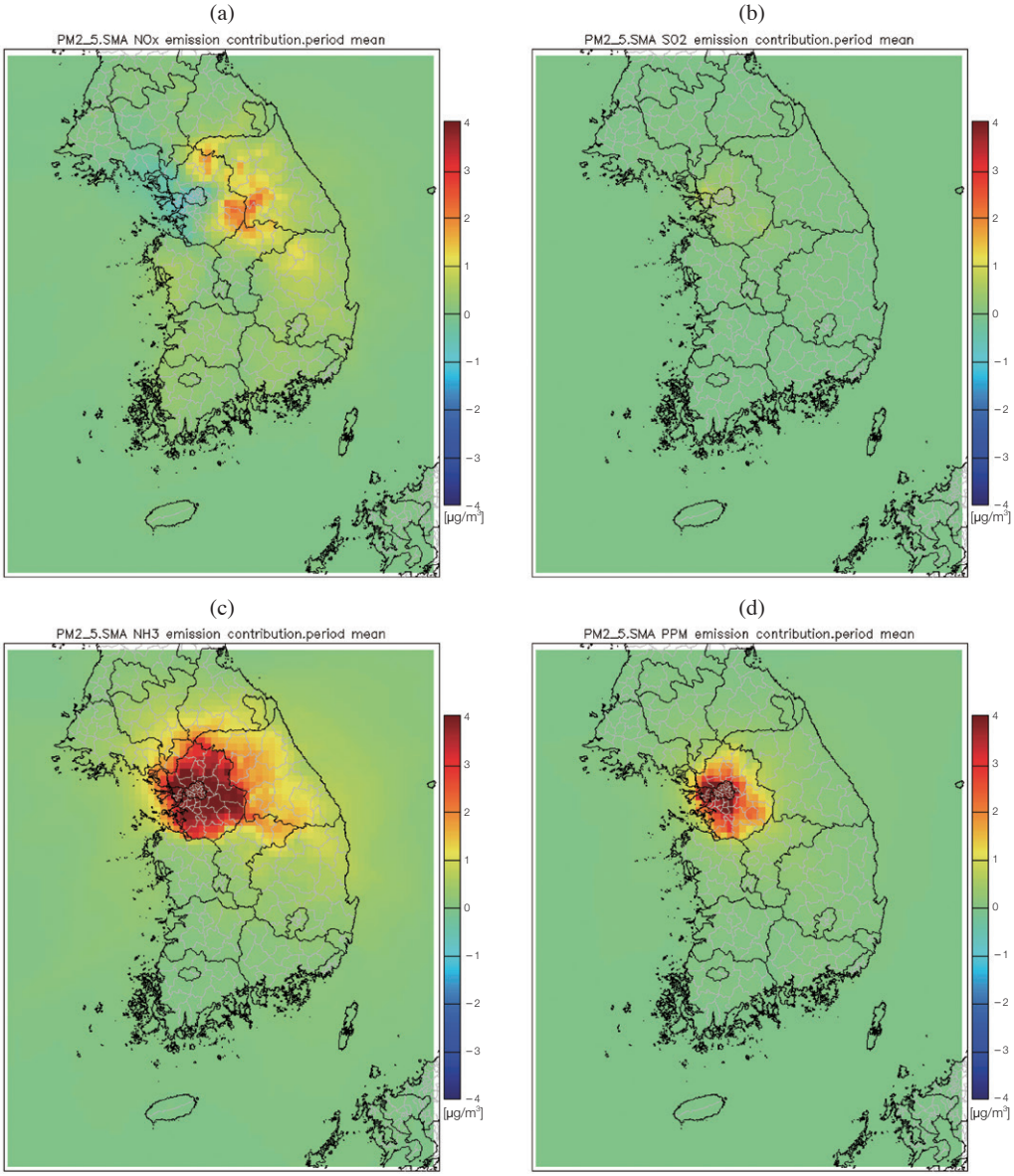

Fig. 8. Zero-out contributions of (a) NO_x, (b) SO_2, (c) NH_3 and (d) PPM emissions from the SMA to surface $PM_{2.5}$ concentrations averaged for the modeling period in 2014.

모니아 배출량에 대해 기여도가 높게 나타나는 이유는 암모니아 농도가 감소하게 되면 산성 성분인 황산염, 질산염 농도 또한 초미세먼지로의 전환이 제한되기 때문으로 판단된다. 암모니아 배출량이 다른 성분에 미치는 영향은 그림 11(c)에서 확인할 수 있다.

오염원에서 직접 배출되는 1차 미세먼지의 영향은 그림 8(d)에 보였으며, 수도권 지역에서도 교통이 밀집되어 있는 지역에서 높은 기여율을 보이는데, 이는 2013 CAPSS의 1차 미세먼지 배출량에서 도로 재비산이 차지하는 비율이 높기 때문으로 판단된다. 최근 도로 및 비도로 재비산 먼지를 포함한 1차 미세먼지 배출량에 많은 변화가 있었는데, 그림 8(d)는 초미세먼지

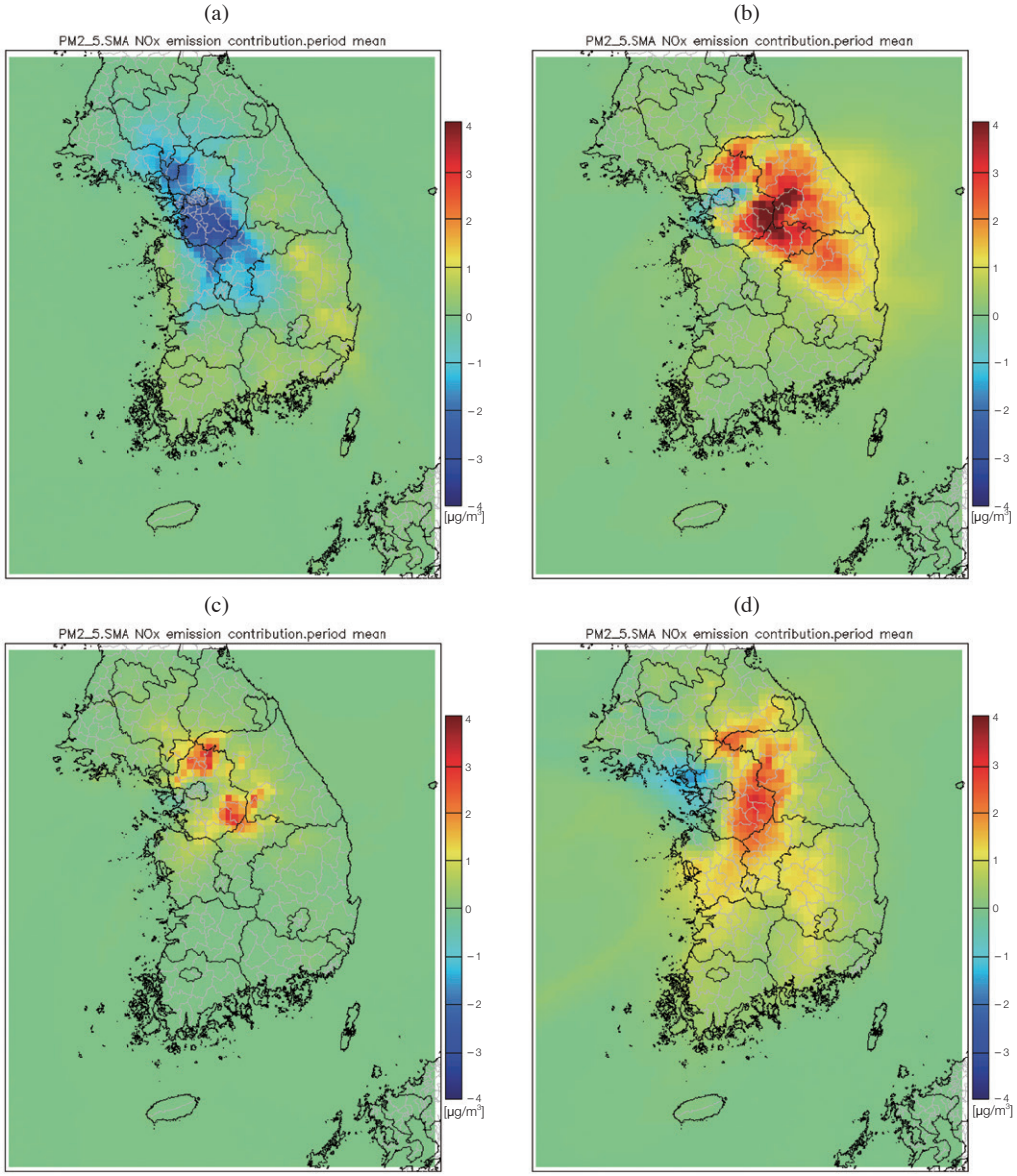

Fig. 9. Zero-out contributions of NO_x from the SMA to surface $PM_{2.5}$ concentrations averaged for (a) January, (b) April, (c) July and (d) October in 2014.

농도 저감 시 1차 미세먼지 배출량의 중요도를 보여준다.

본 연구에서 이런 일련의 과정을 자세히 설명하기는 어려우나, 그림 10에 수도권 NO_x 배출량 변화에 따른 1월 모사농도 변화를 제시하였다. 그림 10(a)를 보면 수도권 지역을 비롯한 대도시 지역에서 높은 NO_2 농도를 보이고 있으며, 민감도 분석을 위한 50% 수도권 NO_x 배출량 저감에 따라 수도권 및 충북 일부 지역에서 NO_2 농도가 낮아지는 것을 볼 수 있다(그림 10(f)). 그림 10(b)를 보면 오존 농도가 다른 지역에 비해 낮은데, 이는 NO 적정에 의한 것으로 보이며(Kwak *et al*., 2011), 그림 10(g)에서도 NO_2 농도 감소가 보이는 지

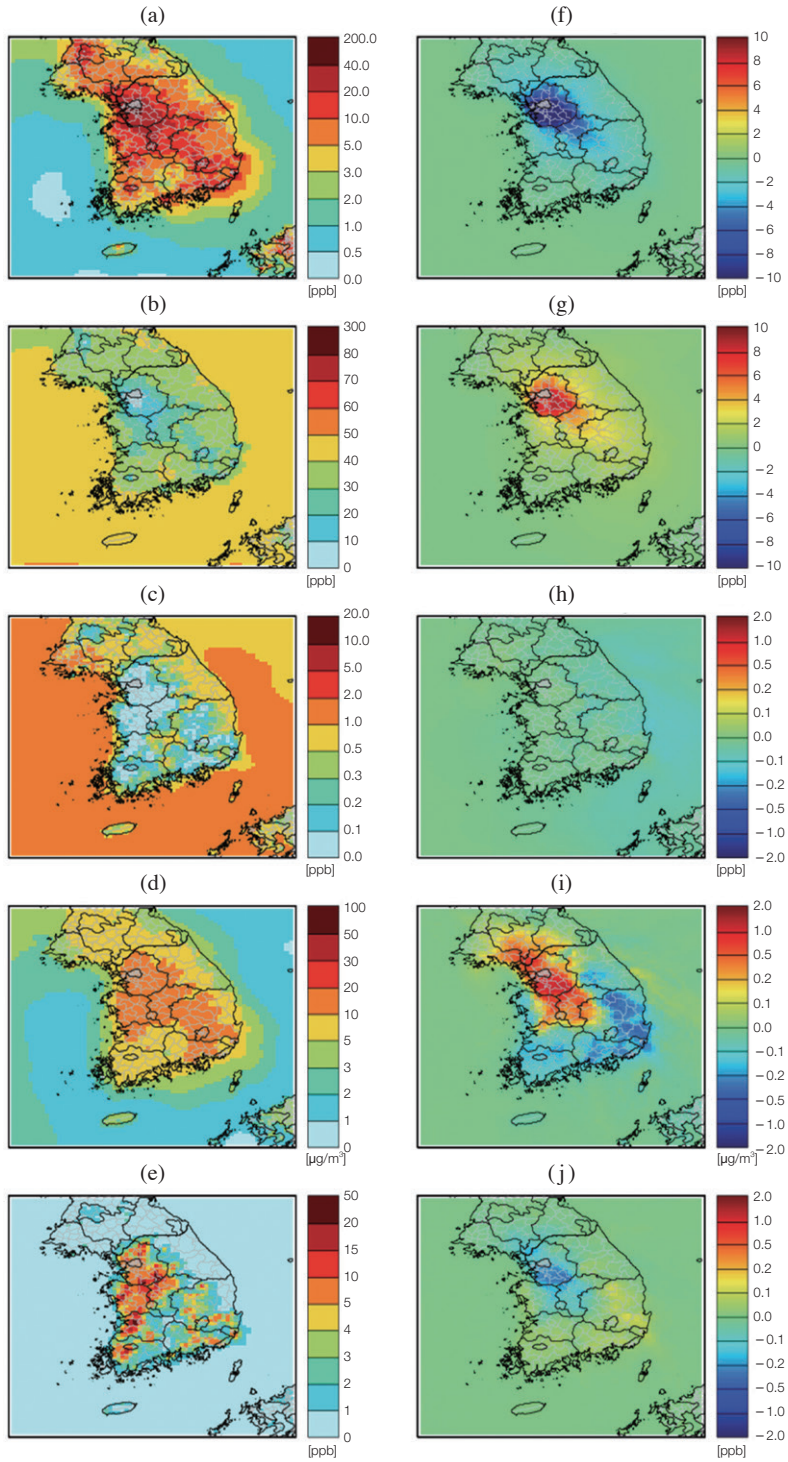

Fig. 10. Spatial distributions of selected species; (a) NO_2, (b) O_3, (c) HNO_3, (d) Nitrate and (e) NH_3, and the concentration changes of; (f) NO_2, (g) O_3, (h) HNO_3, (i) Nitrate and (j) NH_3 after a SMA NO_x reduction by 50% in January 2014.

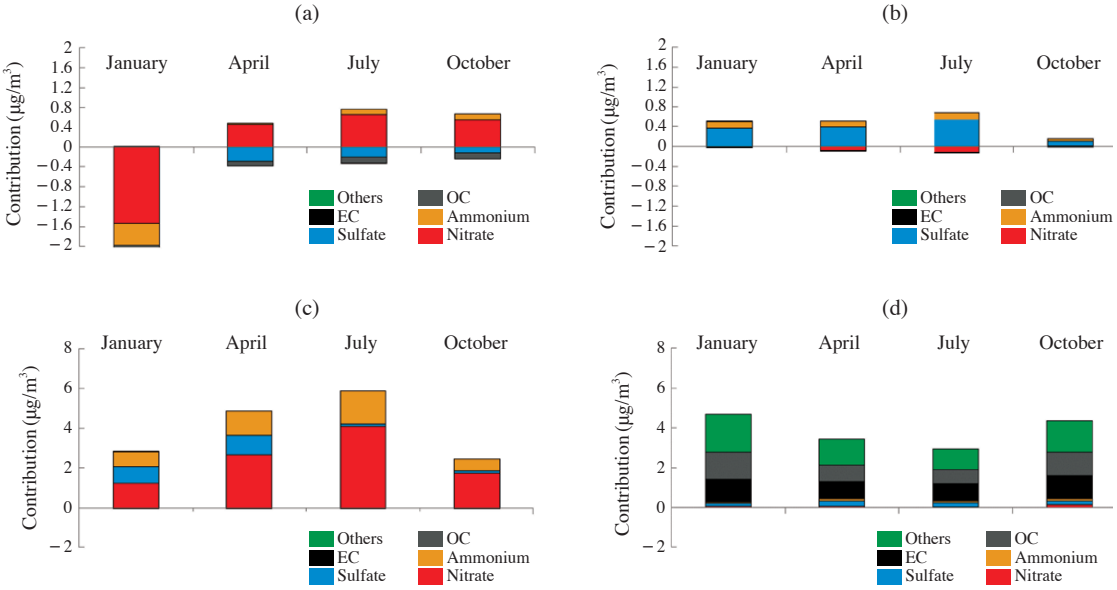

Fig. 11. Zero-out contributions of SMA (a) NO_x, (b) SO_2, (c) NH_3 and (d) PPM emissions to $PM_{2.5}$ concentrations for each modeling month in 2014.

역에서 오존 농도가 증가하는 것을 볼 수 있다. 그림 10(c)에서 HNO_3 농도는 서해와 남해 등에서는 1 ppb 이상 모사되나, 내륙에서는 0.1 ppb 이하로 매우 낮은 농도로 모사되었다. 한편, HNO_3의 농도가 낮은 지역에서는 암모니아 농도가 5 ppb 이상 높게 모사됨을 그림 10(e)에서 볼 수 있다. 그림 10(h)에서 대기 중 HNO_3 모사농도 변화는 거의 없는데, 이는 상대적으로 모사조건에서는 고농도의 암모니아 농도가 존재함에 따라 질산염으로의 신속한 전환과 연관하여 이해할 수 있다. 그림 10(d)를 보면 질산염 농도는 대기 중 HNO_3 농도가 낮음에도 지역적으로 10 μg/m^3 이상 고농도를 보인다. 그림 10(i)에서는 질산염 농도가 수도권과 인접 지역에서 증가하는 것으로 모사되는데, 이는 질소산화물 배출량 감소로 인한 농도조건 변화로 인해 질산염 생성이 촉진되기 때문으로 예상된다. 다만 전체적으로 볼 때 질소산화물 배출량 감소는 일정거리 이상의 풍하 지역에서 질산염 농도 감소를 유도하게 된다. 이에 따라 그림 10(j)에서는 대기 중 암모니아 농도가 감소하는 것으로 모사되는데, 이는 암모늄 농도 증가를 의미한다.

그림 11은 모사월에 대한 월평균 모사 기여도를 보이는 것으로, 전구물질 배출 변화에 따른 미세먼지 성분별 농도 변화를 고려한다. 수도권 NO_x 배출량이 초미세먼지에 미치는 기여도는 겨울철인 1월을 제외하고는 모사 월평균 0.5 μg/m^3 정도로 나타난다(그림 11(a)). 이는 수도권 평균 기여도로 그림 12에 보였듯이 위치에 따라 기여도가 다르게 나타난다. 결과적으로 수도권 NO_x 배출량 10,000 TPY 저감 시 초미세먼지 농도 감소 효과는 0.018 μg/m^{3}으로, 삭감량 대비 초미세먼지 감소 효과는 크지 않게 모사되었다. 특히, 겨울철에 대해 NO_x 배출량 감소 시 초미세먼지 농도가 높아지는데, 이는 연평균 초미세먼지 농도 변화에 대한 대책으로 수도권 NO_x 배출량 저감계획이 효과적이지 않을 수 있음을 시사한다. 나머지 모사월 1월, 4월, 7월에 대해서도 NO_x 배출량 감소 시 질산염 농도는 감소하는 한편, 황산염, 유기탄소 농도는 소폭 증가하는데, 이는 NO_x 농도 감소와 오존 농도 증가로 인해 SO_2와 VOC의 산화가 촉진되기 때문으로 추정된다.

그림 11(b)는 수도권 SO_2 배출량에 대한 초미세먼지 기여도로 배출량은 NO_x에 비해 작으나, 각 모사월에 대한 초미세먼지 기여도는 유사한 수준으로 나타난다. 특히 NO_x와는 달리 SO_2는 겨울철인 1월에도 양의 기

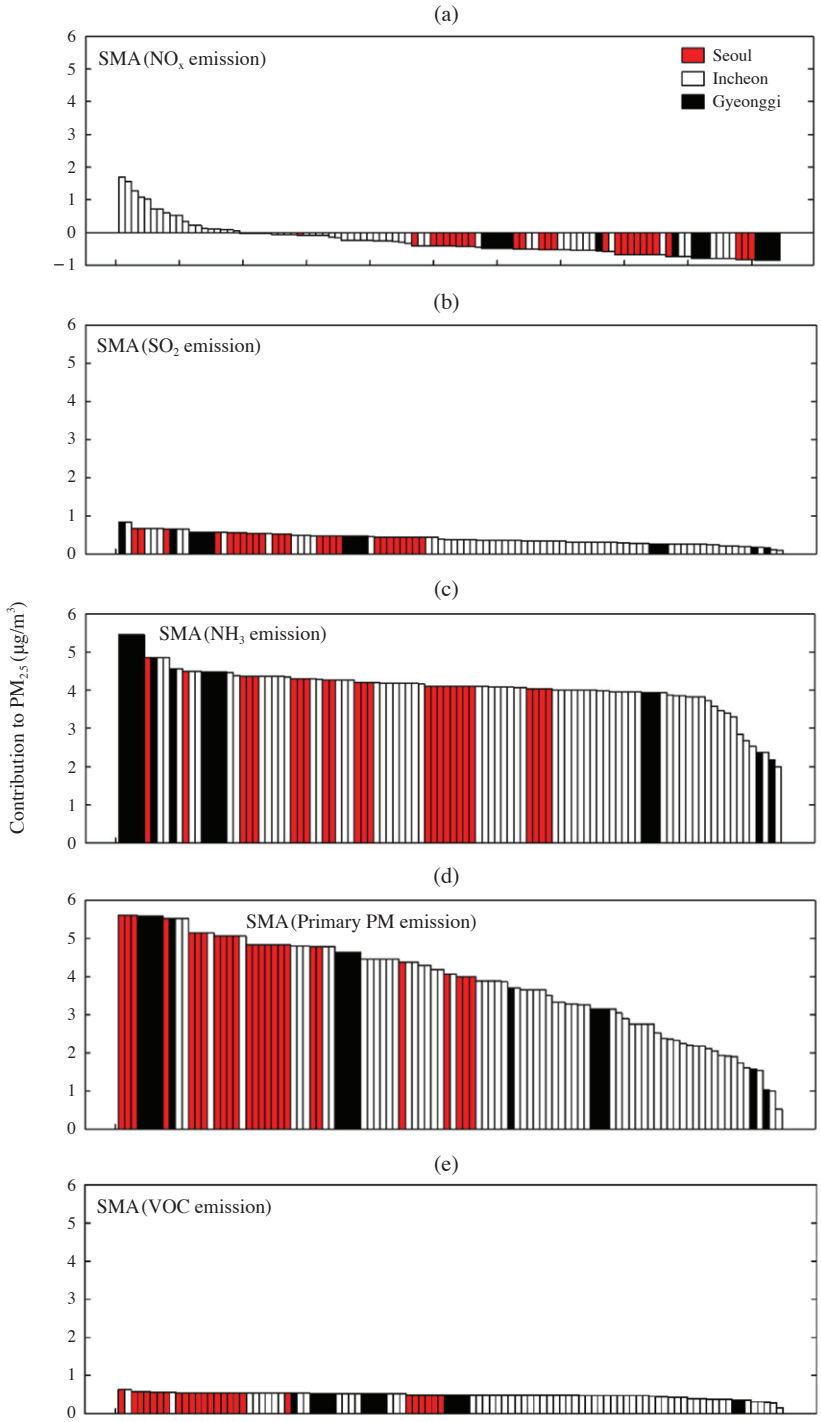

Fig. 12. Modeled zero-out contributions of (a) NO_x, (b) SO_2, (c) NH_3, (d) PPM and (e) VOC emissions from the SMA to $PM_{2.5}$ concentration at each monitoring site over the region. Contributions at the monitoring sites are sorted decreasingly for each pollutant.

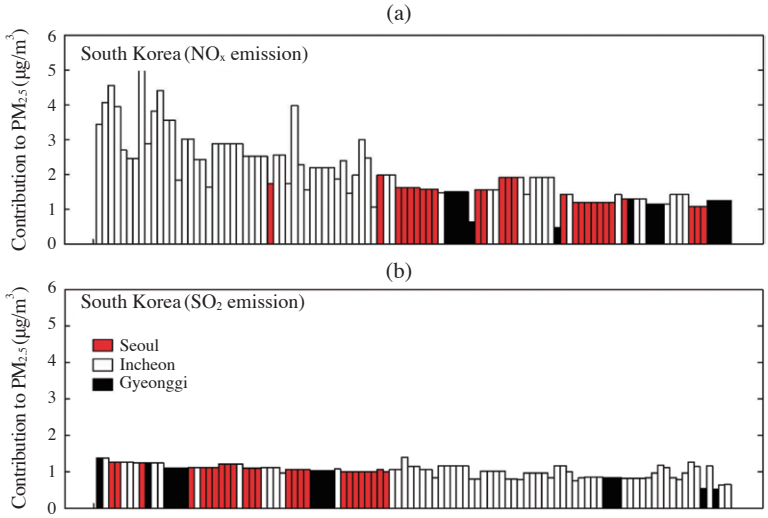

Fig. 13. The same with Fig. 12 except (a) NO_x and (b) SO_2 emissions from the whole South Korea.

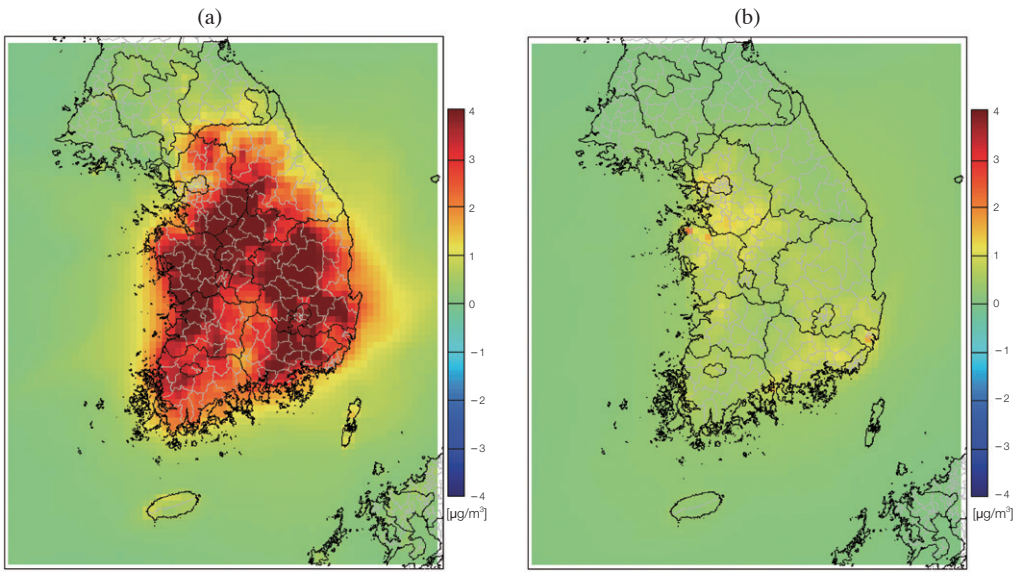

Fig. 14. Zero-out contributions of (a) NO_x and (b) SO_2 emissions from South Korea to surface $PM_{2.5}$ concentrations averaged for the modeling period in 2014.

여도를 보이며, 수도권 초미세먼지에 대한 기여도는 연평균 0.4 $\mu g/m^3$로 정도로 모사되었다. 10월 가을철 모사의 경우 다른 모사월에 비해 기여도가 작게 나타나는데, 이는 배출과 기상 조건 등의 영향으로 예상된다. 1월과 4월의 경우 황산염 농도 증가로 인해 질산염 농도가 0.1 $\mu g/m^3$보다 작게 감소하는 것이 보인다.

2013년 배출량을 이용한 모사에서 수도권 암모니아 배출량의 초미세먼지 기여도는 모든 모사월에 대해 0.3~2 $\mu g/m^3$ 이상의 암모늄 이온을 형성시키는 동시에 질산염 및 황산염 농도 또한 증가시킨다. 7월 모사의

경우 암모늄 농도가 2 μg/m^{3}로 암모니아 배출량이 절반으로 감소된다면 암모늄 농도 외에도 질산염과 황산염 감소로 인해 초미세먼지 농도는 대략 3 μg/m^3 가량 감소하는 것으로 모사되었다.

1차 미세먼지 배출량에 대한 초미세먼지 기여도는 연평균 4 μg/m^3 정도로 나타났으며, 1월과 10월에 대한 월평균 기여도가 4~5 μg/m^3 이상으로 4월과 7월에 비해 높게 나타난다. 1차 미세먼지 배출량에 대한 성분별 기여도는 원소탄소, 유기탄소와 기타 성분(Others)이 대부분을 차지하며, 일부 무기성 이온에도 영향을 미치는 것으로 모사되었다. 탄소 성분에 대한 모사 정확도는 CAPSS 배출목록의 $PM_{2.5}$ 배출량과 탄소 성분의 종분류에 이용된 프로파일에 대하여 향후 검토가 보완되어야 하나, 그림 11(d)에서 볼 수 있듯이 수도권 지역에서 탄소 성분에 대한 민감도가 NO_x와 SO_2에 비해 작지 않음을 고려할 때, 초미세먼지 농도 저감을 위한 대책 수립 시에 적극적인 고려가 필요할 것으로 판단된다. 본 연구에 이용된 2013 CAPSS 배출량에는 도로 및 비도로 배출량이 포함되어 있으며, 주로 기타 성분 농도에 영향을 미칠 것으로 판단된다. 다만 비산먼지 배출량은 산정 단계에서부터 결과 분석단계까지 많은 불확도가 포함되어 있는 점을 감안되어야 한다. 일례로 산정되는 배출량에 따라 모사 기여도가 크게 변할 수 있으며, 측정 성분농도를 고려한 RRF (Relative Response Factor) 적용 시에도 결과에 차이를 보일 수 있다. 이에 대한 논의는 다음 동반논문에서 보다 자세히 논의할 예정이다. 그림 11(d)에서 황산염 등 2차 초미세먼지 성분농도가 PPM 농도에 영향을 받는 것은 PPM 농도에 따라 수 농도 또는 표면적 농도가 달라지며, 이로 인해 이온성 성분 등에 대한 기상-입자상 분배(partitioning)에 대한 영향 때문으로 판단된다(Wang *et al*., 2012).

대기질 개선계획에 대한 평가는 측정소 관측값을 중심으로 이뤄져야 하는 바, 그림 12에 수도권 내에 위치하는 측정소별로 전구물질 저감에 따른 농도변화 차이를 검토하여 측정소별 저감농도 차이를 논의하였다. 그림 12(a)에서 보면 양의 기여도를 보이는 경기도 일부 측정소를 제외하면 수도권 NO_x 배출량 저감 시 초미세먼지 연평균 농도는 증가함을 보이며, 평균적인 변화폭 또한 작음을 볼 수 있다. SO_2에 대한 기여도는 모든 측정소에서 양의 값을 보이나, 앞선 설명과 처럼 기여농도는 1 μg/m^{3}보다 작게 나타난다. 이에 반해 그림 12(c)와 그림 12(d)에 보이는 암모니아와 PPM에 대한 기여도는 크게 나타나며, 특히 인천 및 서울에 위치하는 측정소에서 각각 4~5 μg/m^3 정도의 높은 기여도를 보이는데, 이는 배출 특성이 감안된 결과로 보인다. 그림 12(e)의 경우 VOC에 의한 2차 생성 초미세먼지로 SO_2에 의한 생성과 비슷한 크기를 보이고 있다.

그림 13(a)와 그림 14(a)는 그림 12(a)의 수도권 NO_x 배출량과는 달리 전국 NO_x 배출량에 대한 초미세먼지 모사 기여도를 보이는 것으로, x축의 측정소 순서는 그림 12(a)와 같다. 여기서 주목할 사항으로 수도권 NO_x 배출량만을 저감할 경우에는 도심지역에서 음의 기여도를 보였던 측정소에서도 양의 기여도를 보인다(그림 13(a)). 이는 전국적인 NO_x 배출량 저감 시 수도권 지역에서 1) 보다 효과적인 초미세먼지 저감이 이뤄지며, 2) 일정 수준까지 질소산화물 저감으로 인한 역효과를 예방할 수 있다는 점, 그리고 3) 전반적인 초미세먼지 저감 폭이 증가한다는 것을 의미한다. 결국 수도권에 한정된 대기질 저감대책 수립보다는 영향권역을 감안한 광역적인 방안 수립이 필요하며, 이러한 계획이 보다 효율적임을 보인다. 그림 13(b)와 그림 14(b)는 전국 SO_2 배출량에 대한 초미세먼지 기여농도 모사결과로 대부분의 측정소에서의 초미세먼지 저감효과가 고르게 나타남을 볼 수 있다. 그림 12(b)에서 수도권 SO_2 배출량에 의한 초미세먼지 먼지 기여도는 0.41 μg/m^{3}인데 비해, 전국 SO_2 배출량에 의한 기여도는 1.03 μg/m^{3}로 2.5배 정도 증가하였다. 이러한 원인은 주요 SO_2 배출원이 수도권과 인접한 지역에 집중된 결과로 결국 대기질 영향권역 설정 및, 배출원 조사, 그리고 기여도 분석 등이 필요함을 보인다. 이러한 광역적인 대기질 개선대책 수립은 바람에 따른 배출물질 및 전구물질의 이동 범위와 국내 여건상 거의 모든 지자체가 상호 대기질 영향권역 내에 위치함을 고려하면 향후 전반적인 도입 검토가 필요하다.

4. 결 론

본 연구에서는 2013 CAPSS 배출량을 이용하여 수도권 지역을 대상으로 각 배출물질별 초미세먼지 모사 기여도를 CMAQ/BFM을 활용하여 살펴보았다. 이러

한 분석은 현재 수도권 초미세먼지 농도 개선에 있어 어떤 물질이 우선 삭감 배출량 대상이 되어야 하고, 각 대책별 배출물질 저감에 따른 개선 정도를 우선적으로 가늠해 보는 데 목적이 있다.

수도권 자체 배출량에 대한 모사 결과를 보면 가스상 전구물질 중 암모니아를 제외한 질소산화물과 황산화물에 대한 모사 기여도가 수도권에서 낮게 나타났다. 이는 현재 국가 배출량 자료를 바탕으로 무기성 이온성분 농도 감소를 위해 초미세먼지 전구물질이 되는 질소산화물과 황산화물의 수도권 배출량 저감으로는 초미세먼지 농도 개선이 충분하지 못함을 의미한다. 다만 현실적으로 뚜렷한 암모니아 저감대책 마련은 쉽지 않은 실정에서 질소산화물 또는 황산화물 저감 대책 중 암모니아 배출을 동시에 낮출 수 있는 방안과 향후 암모니아 배출원에 대한 장기적 계획 수립 및 암모니아 측정값 확보를 통한 보다 심도 있는 모델 검증 또한 필요하다. 현재의 모사 조건에서는 암모늄 농도가 감소된다면 산성 성분인 질산염과 황산염 농도가 효과적으로 감소될 것으로 예측되었다.

질소산화물의 경우 일부 모사기간에 대해 자동차 등 배출량이 많은 도심 지역에서는 초미세먼지 농도에 대해 음의 모사 기여도를 보인다. 이는 질소산화물 배출밀도가 높은 지역에서는 오존에 대한 NO 적정과 같이 라디칼 생성 등의 화학반응이 억압된 환경이 수도권 도심 지역에서 형성되기 때문으로, 이들 지역에 대한 충분하지 않은 질소산화물 감소방안은 초미세먼지 농도 감소에는 그리 효과적이지 못한 것으로 예상된다. 이러한 'NO_x disbenefit'는 기존 국내외 연구에서도 논의된 적이 있다(i.e., SOS, 2016; Lee *et al*., 2006). 이와는 차별적으로 본 연구에서는 일정 수준 이상의 전국적인 질소산화물 저감이 이루어질 경우, 수도권 지역 만의 질소산화물 저감에 따른 'NO_x disbenefit' 특성이 'NO_x benefit'로 변화 가능함을 보였다.

또한 수도권 질소산화물 배출량 감소는 풍하 지역에서의 초미세먼지 농도 감소에 도움이 되며, 수도권 도심 지역에서도 일정 수준 이상의 질산염 농도가 관측되는 점을 고려할 때, 수도권 외곽 및 인근 지역으로부터의 질소산화물 배출량 감소는 상당히 중요하며, 수도권을 비롯한 국내의 초미세먼지 관리를 위해서는 영향권역 고려 및 관리권역의 확대가 필요한 것으로 판단된다.

수도권 지역에서 1차 초미세먼지 성분 기여율 또한 높게 나타났으며, 1차 탄소 성분 배출량에 의한 영향 또한 높은 점을 고려하면, 향후 초미세먼지 농도 저감을 위해서는 탄소 성분에 대한 관리방안 수립이 보다 적극적으로 이뤄져야 함을 의미할 수 있다. 특히, 휘발성 유기물질 배출에 의한 영향 역시 현재 배출목록에서의 황산화물에 의한 초미세먼지 영향보다 작지 않음을 주목해야 한다.

감사의 글

이 연구는 환경부의 지원과 미래창조과학부/한국연구재단 지원 초미세먼지 피해저감 사업단(NRF-2014M3C8A5030624)의 일환으로 수행되었으며, 국립환경과학원의 배출량과 관측자료 제공에 감사드립니다.

References

Benjey, W., M. Houyoux, and J. Susick (2001) Implementation of the SMOKE emission data processor and SMOKE tool input data processor in Models-3, US EPA.

Byun, D.W. and J.K.S. Ching (1999) Science Algorithms of the EPA Models-3 Community Multi-scale Air Quality (CMAQ) Modeling System, EPA Report, EPA/600/R-99/030, NERL, Research Triangle Park, NC.

Carter, W.P.L. (1999) Documentation of the SAPRC-99 Chemical Mechanism for VOC Reactivity Assessment, Report to California Air Resources Board, Contracts 92-329 and 95-308.

Chen, F. and J. Dudhia (2001) Coupling an advanced land surface-hydrology model with the Penn State-NCAR MM5 modeling system. Part I: Model implementation and sensitivity, Monthly Weather Review, 129(4), 569-585.

Dudhia, J. (1989) Numerical study of convection observed during the winter monsoon experiment using a mesoscale two-dimensional model, Journal of the Atmospheric Sciences, 46(20), 3077-3107.

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), Atmo-

spheric Chemistry and Physics Discussions, 6(1), 107-173.

Hong, S.Y., J. Dudhia, and S.H. Chen (2004) A revised approach to ice microphysical processes for the bulk parameterization of clouds and precipitation, Monthly Weather Review, 132(1), 103-120.

Hong, S., Y. Noh, and J. Dudhia (2006) A New Vertical Diffusion Package with an Explicit Treatment of Entrainment Processes, Monthly Weather Review, 134(9), 2318-2341.

Kim, B.U., O. Kim, H.C. Kim, and S. Kim (2016a) Influence of fossil-fuel power plant emissions on the surface fine particulate matter in the Seoul Capital Area, South Korea. Journal of the Air & Waste Management Association, 66(9), 863-873.

Kim, E., C. Bae, H.C. Kim, J.H. Cho, B.U. Kim, and S. Kim (2017) Regional Contributions to Particulate Matter Concentration in the Seoul Metropolitan Area, Korea: Seasonal Variation and Sensitivity to Meteorology and Emissions Inventory, Atmospheric Chemistry And Physics Discuss, doi:10.5194/acp-2016-1114.

Kim, H.C., S. Kim, S.W. Son, P. Lee, C.-S. Jin, E. Kim, B.U. Kim, F. Ngan, C. Bae, C.-K. Song, and A. Stein (2016b) Synoptic perspectives on pollutant transport patterns observed by satellites over East Asia: Case studies with a conceptual model, Atmospheric Chemistry And Physics Discuss, doi:10.5194/acp-2016-673.

Kim, S., N. Moon, and D.W. Byun (2008) Korea Emissions Inventory Processing Using the US EPA's SMOKE System, Asian Journal of Atmospheric Environment, 2(1), 34-46.

Kwak, K., Y. Ryu, and J. Baik (2011) Temporal and Spatial Variations of NO_x and Ozone Concentrations in Seoul during the Solar Eclipse of 22 July 2009, Journal of Applied Meteorology And Climatology, 50(3), 500-506.

Lee, S., Y. Ghim, Y. Kim, and J. Kim (2006) Estimation of the seasonal variation of particulate nitrate and sensitivity to the emission changes in the greater Seoul area, Atmospheric Environment, 40(20), 3724-3736.

MOE (2013) The 2nd stage of air quality management plan over the Seoul Metropolitan Area. (in Korean)

MOE (2016) Fine Dust Countermeasure Plan, http://www.me.go.kr/issue/finedust (accessed on Feb. 23, 2017). (in Korean)

Moon, K.J., S.M. Park, J.S. Park, I.H. Song, S.K. Jang, J.C. Kim, and S.J. Lee (2011) Chemical Characteristics and Source Apportionment of $PM_{2.5}$ in Seoul Metropolitan Area in 2010, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 27(6), 711-722. (in Korean with English abstract)

NCEP (2000) NCEP FNL Operational Model Global Tropospheric Analyses, continuing from July 1999, Research Data Archive at the National Center for Atmospheric Research, Computational and Information Systems Laboratory, https://doi.org/10.5065/D6M043C6 (accessed on Feb. 23, 2017).

NIER (2011) Development of Meteorology-Air Quality Forecasting System for Urban-scale PM Prediction (III). (in Korean)

NIER (2013) Trans-boundary Transport of Air Pollutants over Northeast Asia (I). (in Korean)

Skamarock, W.C., J.B. Klemp, J. Dudhia, D.O. Gill, D.M. Barker, M.G. Duda, X. Huang, W. Wang, and J.G. Powers (2008) A description of the advanced research WRF version 3, NCAR Tech. Note NCAR/TN-475+STR, National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO, 125.

Seoul (2010) Comprehensive Monitoring of Particulate Matter to Characterize Its Properties in Seoul. (in Korean)

Seoul (2011) Control Measures for $PM_{2.5}$ reduction in Seoul. (in Korean)

Seoul (2017) http://cleanair.seoul.go.kr/ (accessed on Feb. 23, 2017).

SOS (2016) https://www.ncsu.edu/sos/x.html (accessed on Feb. 23, 2017).

Sun, Y.L., Z. Wang, O. Wild, W. Xu, C. Chen, P. Fu, W. Du, L. Zhou, Q. Zhang, T. Han, Q. Wang, X. Pan, H. Zheng, J. Li, X. Guo, J. Liu, and D.R. Worsnop (2016) "APEC Blue": Secondary Aerosol Reductions from Emission Controls in Beijing, Scientific reports, 6.

TCEQ (2016) Emissions Inventory Guidelines, http://tceq.state.tx.us/publications/rg/rg360-15 (accessed on Feb. 23, 2017).

U.S. EPA (2013) U.S. Environmental Protection Agency Meteorological Model Performance 2007 Fine Scale Platform, http://www.epa.gov/ttn/scram/reports/WRF_2007_FineScale_Performance.pdf (accessed on Feb. 23, 2017).

Wang, J., S. Wang, A. Voorhees, B. Zhao, C. Jang, J. Jiang, J. Fu, D. Ding, Y. Zhu, and J. Hao (2015) Assessment of short-term $PM_{2.5}$-related mortality due to different emission sources in the Yangtze River Delta,

China, Atmospheric Environment, 123, 440-448.

Wang, K., Y. Zhang, A. Nenes, and C. Fountoukis (2012) Implementation of dust emission and chemistry into the Community Multiscale Air Quality modeling system and initial application to an Asian dust storm episode, Atmospheric Chemistry And Physics Discussions, 12(5), 13457-13514.

Woo, J.H., S. Quan, K.C. Choi, H.K. Kim, H. Jin, C.-K. Song, J. Han, and S. Lee (2014) Development of the CREATE Inventory in Support of Integrated Modeling of Climate and Air Quality for East Asia, In GEIA Conference.