



수도권 초미세먼지 농도모사:  
(III) 관측농도 대비 모사농도 비율 적용에 따른  
기여도 변화 검토

PM<sub>2.5</sub> Simulations for the Seoul Metropolitan Area:  
(III) Application of the Modeled and Observed PM<sub>2.5</sub> Ratio on  
the Contribution Estimation

배창한 · 유 철<sup>1)</sup> · 김병욱<sup>2)</sup> · 김현철<sup>3),4)</sup> · 김순태\*

아주대학교 환경안전공학과, <sup>1)</sup>환경부 대기환경정책과, <sup>2)</sup>미국조지아주환경청,

<sup>3)</sup>미국국립해양대기청, <sup>4)</sup>메릴랜드대학 기후·위성 연구소

(2017년 5월 11일 접수, 2017년 7월 18일 수정, 2017년 8월 9일 채택)

Changhan Bae, Chul Yoo<sup>1)</sup>, Byeong-Uk Kim<sup>2)</sup>, Hyun Cheol Kim<sup>3),4)</sup>  
and Soontae Kim\*

*Department of Environmental & Safety Engineering, Ajou University, Suwon, Korea*

<sup>1)</sup>*Air Quality Policy Division, Ministry of Environment, Sejong, Korea*

<sup>2)</sup>*Georgia Environmental Protection Division, Atlanta, GA, 30354, USA*

<sup>3)</sup>*Air Resources Laboratory, National Oceanic and Atmospheric Administration,  
College Park, MD, 20740, USA*

<sup>4)</sup>*Cooperative Institute for Climate and Satellites, University of Maryland,  
College Park, MD, 20740, USA*

(Received 11 May 2017, revised 18 July 2017, accepted 9 August 2017)

### Abstract

In this study, we developed an approach to better account for uncertainties in estimated contributions from fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) modeling. Our approach computes a Concentration Correction Factor (CCF) which is a ratio of observed concentrations to baseline model concentrations. We multiply modeled direct contribution estimates with CCF to obtain revised contributions. Overall, the modeling system showed reasonably good performance, correlation coefficient R of 0.82 and normalized mean bias of 2%, although the model underestimated some PM species concentrations. We also noticed that model biases vary seasonally. We compared contribution estimates of major source sectors before and after applying CCFs. We observed that different source sectors showed variable magnitudes of sensitivities to the CCF application. For example, the total primary PM<sub>2.5</sub> contribution was increased

\*Corresponding author.

Tel : +82-(0)31-219-2511, E-mail : soontaeKim@ajou.ac.kr

2.4  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  or 63% after the CCF application. Out of a 2.4  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  increment, line sources and area source made up 1.3  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  and 0.9  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  which is 92% of the total contribution changes. We postulated two major reasons for variations in estimated contributions after the CCF application: (1) monthly variability of unadjusted contributions due to emission source characteristics and (2) physico-chemical differences in environmental conditions that emitted precursors undergo. Since emissions-to-PM<sub>2.5</sub> concentration conversion rate is an important piece of information to prioritize control strategy, we examined the effects of CCF application on the estimated conversion rates. We found that the application of CCFs can alter the rank of conversion efficiencies of source sectors. Finally, we discussed caveats of our current approach such as no consideration of ion neutralization which warrants further studies.

**Key words** : PM<sub>2.5</sub> control strategy, CAPSS emission inventory, PM<sub>2.5</sub> domestic contribution, Conversion rate, Concentration Correction Factor

## 1. 서 론

대기질 모사는 대기오염 현상의 이해, 원인 분석, 장래 예측, 오염원별 기여도 분석 등 다양한 분야에 걸쳐 이용되고 있다(MOE, 2013; U.S. EPA, 2007). 따라서, 모사 결과의 활용에 앞서 대기오염물질의 모사가 실제 현상을 얼마나 잘 재현하는지, 즉 신뢰도 확보가 필요하다. 미 환경청의 경우 SIP(State Implementation Plan) 수립 시 모사 결과 이용에 앞서 모사 정확도/불확도를 여러 가지 관측자료를 이용하여 다각적으로 평가한다(U.S. EPA, 2007). 이러한 과정을 통해 모사 불확도 검토 및 배출량 등 입력자료의 개선을 수행하여 모사농도의 정확도 개선을 추구하기도 한다. 그러나, 많은 개선 노력에도 불구하고 모사농도는 관측농도와 정확하게 일치하기 매우 어렵다.

모사-관측 불일치의 주요 원인으로는 이용되는 대기질 모델의 구조적(예: 화학 메커니즘) 불확도, 입력자료의(예: 배출량, 기상) 불확도, 그리고 모사농도와 측정농도 간의 시공간적 불일치 등 몇 가지 이유가 거론되어 왔다(Russell and Dennis, 2000). 그러므로, 모사농도의 정확도가 충분한지의 여부는 대체로 기존 연구에 적용된 모사 정확도가 비교의 대상이 되기도 한다. 예를 들어, Simon *et al.*(2012)과 Emery *et al.*(2017)은 북미 지역에 대한 3차원 광화학 모델 수행결과를 관측농도와 비교하여 통계치가 일정 범위를 만족하도록 권고하고 있다. 그러나, 정확도 평가와 개선을 통해 일정 수준의 정확도가 확보된다고 해도 모사 결과에 전체적으로 내재되어 있는 불확도는 대기질 모사와 같은 열

린계(open system)에서는 완전히 없어지지 않는다(Oreskes *et al.*, 1994). 이러한 이유로 Oreskes *et al.*(1994)은 수치모델에서 얻을 수 있는 두 가지 모사 결과의 상대적인 응답 특성이 절대적인 모사 결과보다 유용할 수 있다고 주장하였다. 마찬가지로, 미 환경청의 지침에 따르면 대기질 모사를 이용하여 배출량 삭감에 따른 장래 대기환경기준 달성 여부 판정 시 모사농도의 절대값을 바로 이용하지 않고 현황 모사농도와 장래 모사농도(즉 배출량 삭감 시나리오 모사 결과)의 비율을 활용하는 RRF(Relative Response Factor)를 설계치(design value)와 함께 쓰도록 하고 있다(U.S. EPA, 2007).

국내의 경우 최근 문제시 되고 있는 초미세먼지의 효과적인 관리를 위해 원인이 되는 오염원과 그 오염원이 초미세먼지 농도에 미치는 영향(기여도)을 파악하기 위한 연구를 수행하고 있으며, 특히 3차원 광화학 모델을 이용한 연구가 활발히 수행되고 있다(Kim *et al.*, 2017a; Kim *et al.*, 2016; MOE, 2013). 그러나 아직 국내에 대한 초미세먼지 모사농도는 관측농도를 과소 모사하는 문제점이 꾸준히 지적되고 있는 실정으로(Bae *et al.*, 2015; In and Kim, 2010) 이는 모사를 통해 도출되는 기여도 결과 또한 이러한 불확실성에 대한 고려가 필요함을 의미한다.

따라서, 본 연구에서는 미 환경청의 RRF와 유사한 방법으로 기여도 보정계수(Contribution Correction Factor; 이하 CCF)를 고안하여, 모사의 불확실성을 고려한 초미세먼지 기여도 분석을 시도하였다. 이를 위해 대기화학모델 CMAQ을 사용한 민감도 모사를 통

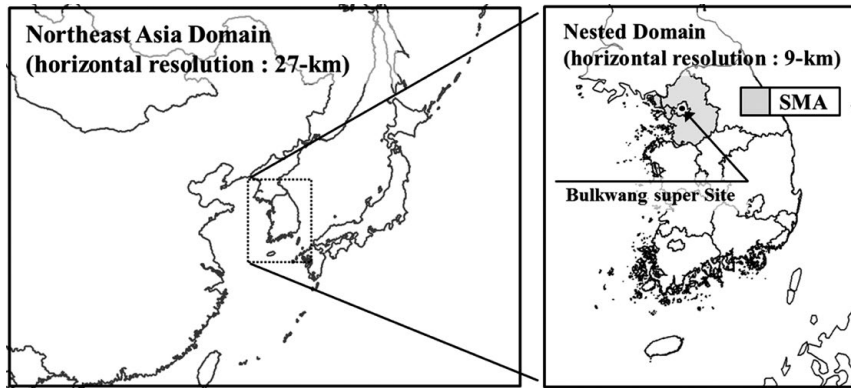


Fig. 1. Modeling domains with a 27-km horizontal grid resolution for the northeast Asia (left) and a 9-km for South Korea (right). The gray area in the right hand side map depicts the SMA (Seoul Metropolitan Area).

해 배출원별 기여도를 도출하였으며, 수도권 집중측정소의 성분별 관측농도와 기본 모사농도를 이용하여 CCF를 마련하였다. 마지막으로, CCF의 적용 후 기여도 변화를 검토하였다.

## 2. 실험 방법

### 2.1 기상 및 대기질 모사

모사기간은 초미세먼지의 성분별 관측자료가 이용 가능한 2014년을 선정하였으며, 모사농도의 계절적인 차이를 반영하도록 1월, 4월, 7월, 10월을 선택하여 모사하였다. 모사 영역은 장거리 이동 영향을 고려하기 위해 한반도를 중심으로 중국 및 일본을 포함하는 27-km 수평해상도 모사 영역과 국내 기여도 분석을 위해 한반도 지역을 포함하는 9-km 수평해상도의 모사 영역을 설정하고 등기격자화 하였다(그림 1 참조).

대기질 모사를 위해 기상-배출량-대기화학 모사체계를 다음과 같이 구성하였다. 기상 입력자료는 WRF (Weather Research and Forecast; Skamarock *et al.*, 2008) version 3.4.1을 이용하여 생성하였다. WRF 모델 결과는 MCIP (Meteorology-Chemistry Interface Processor) version 3.6을 후처리 도구로 이용하여 배출량 모델 및 대기화학 모델의 입력자료로 사용하였다. 인위적 배출량은 동북아 지역에 대하여 2010년 CREATE (Comprehensive Regional Emissions inventory for Atmospheric Transport Experiment; Woo *et al.*, 2014)

배출량 목록을 이용하였으며, 남한 지역에 대해서는 2013년 CAPSS (Clean Air Policy Support System) 배출량 목록을 이용하였다. 배출량 목록은 대기질 모델 입력용 자료로 변환하기 위해 SMOKE (Sparse Matrix Operator Kernel Emission; Benjey *et al.*, 2001)를 이용하여, SCC (Source Classification Code) 각각에 대한 시공간 할당 및 화학종 분배를 수행하였다(Kim *et al.*, 2008). 자연적 배출량은 MEGAN (The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature; Guenther *et al.*, 2006) 모델을 이용하여 마련하였다. 대기질 모델링은 CMAQ (Community Multiscale Air Quality; Byun and Ching, 1999) version 4.7.1을 이용하였으며, 초미세먼지 모사를 위한 에어로졸 모듈은 AERO5 (Aerosol module version 5; Carlton *et al.*, 2010)를 이용하였다. 모델링의 세부적인 사항은 동반논문 Kim *et al.* (2017a)에 보다 자세히 기술되어 있다.

### 2.2 기여도 및 보정계수 산정

기여도 산정을 위해서 여러 가지 방법이 존재하는데, 이들 중 BFM (Brute Force Method)을 이용하면 기본 모사농도와 기여도 분석을 위한 대상 배출량이 존재하지 않을 때의 모사농도 차이로부터 기여도 (Zero-Out Contribution, ZOC; 이하 ‘기여도’)를 식 1과 같이 산정할 수 있다(Bartnicki, 1999).

$$ZOC_j = C_{Base} - C_{BFM,j} \tag{1}$$

여기에서  $ZOC_j$ 는 배출량  $j$ 에 의한 기여도,  $C_{Base}$ 는 기

본 모사농도,  $C_{BFM_j}$ 는 배출량  $j$ 를 삭감 후 모사농도이다.

이러한 기여도 산정의 정확도는 기본 모사농도( $C_{Base}$ )의 정확도, 즉 모사농도가 관측농도를 얼마나 재현하는가에 따라 달라진다. 현실적으로 대기질 모사는 다양한 불확도를 내포하고 있으며, 이로 인해 기여도 산정 역시 불확도를 포함한다(U.S. EPA, 2007; Oreskes *et al.*, 1994). 미 환경청에서는 이와 같은 대기질 모사 결과의 불확도를 감안하기 위하여, 현재 연도에 대한 관측농도( $C_{OBS,Current}$ )와 모사농도( $C_{MOD,Current}$ )를 바탕으로 미래 연도에 대한 관측농도( $C_{OBS,Future}$ ) 예측 시 다음 식을 이용한다(U.S. EPA, 2007).

$$C_{OBS,Future} = C_{OBS,Current} \times C_{MOD,Future} / C_{MOD,Current} \quad (2)$$

여기에서  $C_{MOD,Future}$ 는 미래 연도에 대한 모사농도로 실제로는 배출량 변화 후 모사농도를 의미한다. 식 2에서  $C_{MOD,Future} / C_{MOD,Current}$ 는 기본 모사 대비 배출량 변화 후 모사의 농도 변화비를 나타내며, RRF로 정의된다(U.S. EPA, 2007).

식 2는 배출량 변화에 따른 예상농도 산정 시에 모사농도를 직접 이용하기보다는 현재 또는 기본 조건에서의 관측농도와 모사농도의 상대적인 비율을 적용하는 것으로, 대기질 모사의 불확도를 줄이기 위한 노력의 일환이다.

식 1의 기여도 역시 배출량 변화 전후의 모사농도를 바탕으로 하며, 여기에 내재된 불확도를 감안하기 위한 방안으로 식 2를 적용하면 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$ZOC_{j,adj} = ZOC_j \times C_{OBS,Current} / C_{MOD,Current} \quad (3)$$

여기에서  $ZOC_{j,adj}$ 는 관측농도를 반영하여 보정된 배출량  $j$ 의 기여도이며,  $C_{OBS,Current} / C_{MOD,Current}$ 는 관측 대비 기본 모사의 과대 또는 과소평가를 감안하기 위한 기여도 보정계수로 본 연구에서는 Contribution Correction Factor (CCF)로 정의하였다. 단, RRF는 모사의 상대적인 변화율을 이용하여 배출량 변화 후 관측농도를 추정하는 것이므로 질량의 보존이 고려되지 않으며, RRF를 기초로 고안한 CCF와 보정된 기여도 ( $ZOC_{j,adj}$ ) 또한 질량의 보존이 고려되지 못하는 단점이 존재한다.

초미세먼지의 경우 단일 물질이 아닌 여러 물질이 혼합된 것으로 모사 불확도 역시 각 물질별로 상이하 다. 따라서, RRF의 경우 6가지 주요 구성 성분인 황산

염, 질산염, 암모늄, OC, EC 및 기타 성분에 대해 각각 산정하도록 하고 있다. 이에 CCF 또한 RRF와 마찬가지로 개별 구성성분에 각각에 대하여 산정하였다.

개별 성분에 대한 CCF 산정을 위해 관측농도는 국립환경과학원의 불광동 대기오염 집중측정소(그림 1 참조)의 1시간 단위의 초미세먼지 성분농도를 이용하였으며, 모사농도는 CMAQ 모사 결과에서 집중측정소와 동일한 위치의 1시간 단위의 성분별 농도를 추출하여 이용하였다. 본 연구에서는 동반논문 Kim *et al.* (2017a)에서 도출된 수도권 초미세먼지 기여도에 CCF를 적용하여, 초미세먼지 성분별 기여도 변화를 산정하였다. 본문에 모두 보이기 어려운 CCF 도출의 중간 과정은 부록 1에 자세히 서술하였다.

### 3. 결 과

#### 3.1 기본 모사 평가

본 연구에 이용된 기상 모델과 대기화학 모델의 기본적인 수행평가는 동반논문 Kim *et al.* (2017a)에서 논의되었다. 주요 사항만 간단하게 정리하면, 수도권 지역 초미세먼지의 평균적인 정합도는 상관계수(R) 0.82, NMB (Normalized Mean Bias) 2%로, Emery *et al.* (2017)에서 제시된 권장 수준(상관계수 0.7 이상, NMB 10% 이하)을 만족하였다. 한편, 본 연구는 초미세먼지의 개별 성분에 대한 분석이 중요한 바, 각 성분에 대한 정합도 평가를 추가로 제시하였다.

그림 2는 모사 대상 기간인 2014년의 1월, 4월, 7월, 10월에 대하여 초미세먼지 성분별 일평균 농도의 모사 정합도를 보인 것이다. 일평균 관측자료는 각 모사월에 대하여 80% 가량 이용 가능하였으나, 10월은 황산염, 질산염, 암모늄 성분의 결측일이 많아 이용 가능한 자료의 수가 11일로 적다. 기타 성분의 경우 초미세먼지 총 질량에서 다른 성분 관측자료를 감하여 계산되는 값이기에 이용 가능한 관측자료의 수가 상대적으로 적은 특성이 있다. 모사기간 평균 초미세먼지 관측농도는  $39 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 인데 비해 모사농도는  $31 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 관측농도를 21% 가량 과소 모사하나, 상관계수는 0.80을 보인다. 개별 성분의 경우 기타 성분(Others), 황산염, OC(Organic Carbon) 순으로 각각 모사기간 평균 관측농도 대비 모사 비율(농도차)은 49% ( $6.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), 23%

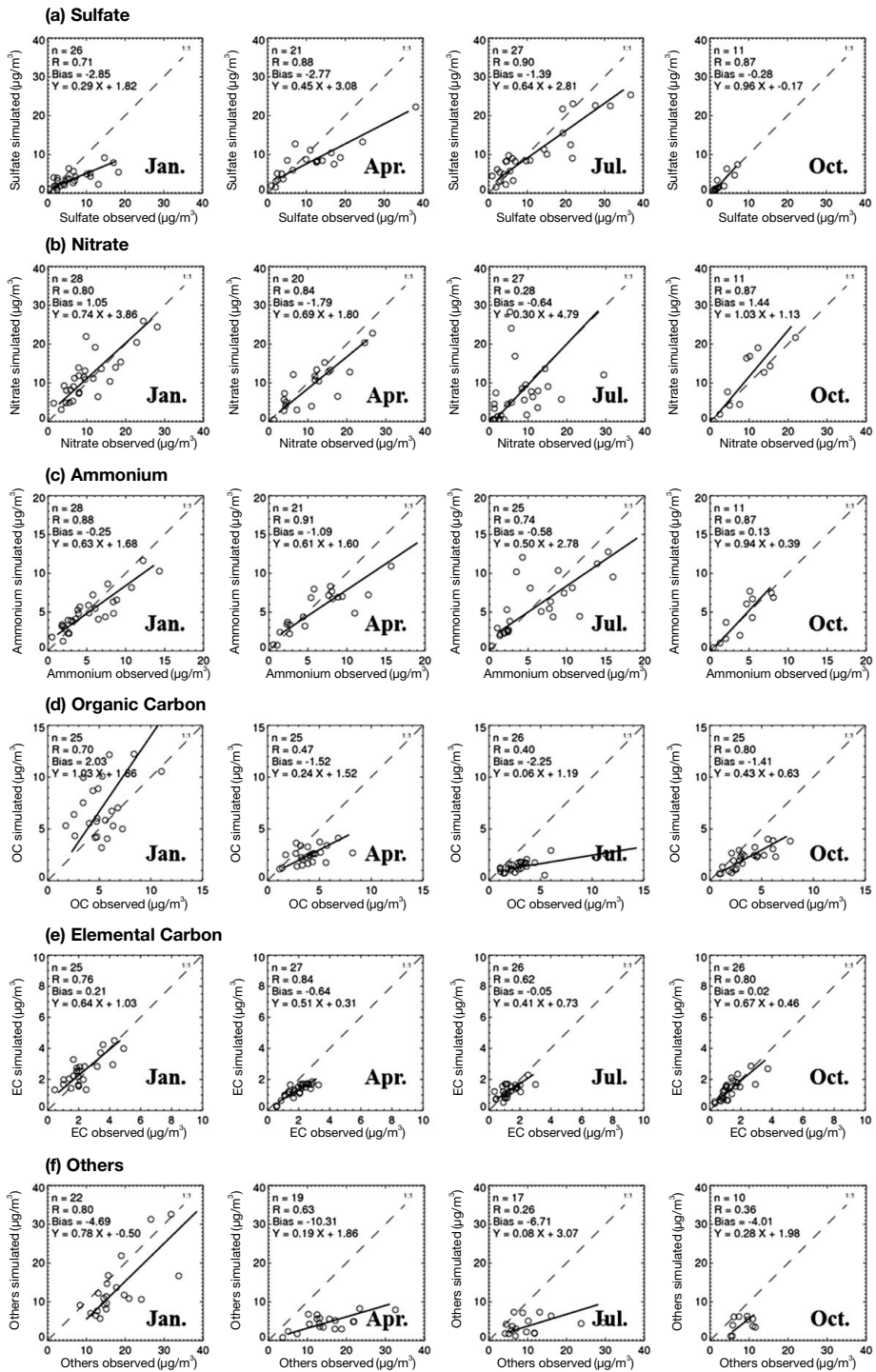


Fig. 2. Observed and modeled daily average concentrations of (a) sulfate, (b) nitrate, (c) ammonium, (d) organic carbon, (e) elemental carbon and (f) others at the monitoring sites in the Bulgwang super site for the simulation month in 2014.

( $1.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), 19% ( $0.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) 가량이었으며, 질산염의 경우 관측과 유사한 농도 수준이 모사되었다.

모사월별로 정합도를 보면, 황산염의 경우에는 1월에 과소 모사가 가장 크게 43% ( $2.85 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) 나타났으며, 4월, 7월, 10월은 각각 26% ( $2.77 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), 12% ( $1.32 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), 9% ( $0.27 \mu\text{g}/\text{m}^3$ )의 과소 모사를 보였다. 질산염은 1월과 10월에 10% ( $1.05 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), 15% ( $1.44 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) 과대 모사되었으며, 4월과 7월에는 16% ( $1.79 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), 8% ( $0.64 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) 과소 모사하였다. 암모늄의 경우 질산염과 유사한 경향을 보이거나 과대 모사는 상대적으로 작게 나타났다. OC는 1월에는 35% ( $2.02 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) 과대 모사하나, 그 외 모사월에는 반대로 38%~61% ( $1.41 \sim 2.25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) 과소 모사하였다. 이는 겨울철 1차 배출에 의한 primary organic carbon의 과대 모사와 여름철 secondary organic aerosol의 과소 모사와 관련이 있을 것으로 추정되며 (Hayes *et al.*, 2014; Zhang *et al.*, 2014; Carlton *et al.*, 2010), 향후 추가 연구가 필요할 것으로 판단된다. EC (Elemental Carbon)는 4월에 33% ( $0.64 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) 과소 모사를 보이며, 그 외 모사월에는 편차 10% 이내로 관측과 유사한 범위를 보인다. 기타 성분은 모든 성분 중 과소 모사가 가장 크게 나타났으며, 모사월별로는 1월 25% ( $4.69 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), 4월 69% ( $10.30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), 7월 63% ( $6.71 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), 10월 48% ( $4.01 \mu\text{g}/\text{m}^3$ )의 과소 모사를 보였다. 반면 상관계수의 경우 Emery *et al.* (2017)에서 제시된 권장수준 0.7을 전반적으로 만족하고 있다. 여기서 제시된 모델의 전반적인 과소 모사는 모델을 통해 도출된 기여도를 그대로 사용하는 경우 측정농도와 모사농도의 편차만큼 과소평가될 수 있음을 시사한다. 단, 앞서 논의한 바와 같이 초미세먼지의 정합도는 개별 성분 및 대상 기간에 따라 정합도에서 차이를 보이므로, 이를 고려한 적용이 필요하다. 이에 대한 자세한 내용은 다음 절에 서술하였다.

### 3.2 모사월별 CCF

표 1에 수도권 지역을 대상으로 초미세먼지 성분별, 월별 CCF를 제시하였다. CCF는 충분한 측정자료가 확보된다면 1일 평균농도의 적용도 가능하나, 매일 모사농도를 보정하기에는 결측자료가 전반적으로 많다. 따라서 본 연구에서는 측정 및 모사농도를 월평균 농도로 변환하여 CCF를 도출하였다. 보정계수는 1을 기

**Table 1. Contribution correction factors for PM<sub>2.5</sub> constituents at the Bulgwang super site for the simulation months in 2014.**

	Sulfate	Nitrate	Ammonium	EC	OC	Others
January	1.77	0.91	1.05	0.92	0.74	1.50
April	1.35	1.18	1.19	1.50	1.62	3.22
July	1.14	1.09	1.09	1.04	2.58	2.71
October	1.10	0.87	0.97	0.99	1.64	1.93
Mean	1.34	1.01	1.08	1.11	1.65	2.30

<sup>N.B.</sup> Observed Others concentration is estimated with the following equation: Others = PM<sub>2.5</sub> - sulfate - nitrate - ammonium - EC - OC - Na - K - Cl - Ca - Mg. Modeled concentration of Others was estimated as the sum of two modeling species, A25I and A25J.

준으로, 1보다 큰 경우 보정 후 기여도는 증가하며, 1보다 작은 경우 보정 후 기여도는 감소한다. 앞서 정합도 분석에서 보았듯 모사농도의 전반적인 과소 모사 경향으로 인하여 CCF는 대부분 1보다 큰 값을 보이거나 월간 변동성은 성분마다 다른 경향을 보였다. CCF가 1.5 이상인 경우는 1월의 황산염과 기타 성분, 4월의 EC, OC, 및 기타 성분, 7월과 10월의 OC와 기타 성분으로, 과소 모사 경향이 가장 두드러진 기타 성분의 경우 모사기간 평균 2.3의 CCF가 계산되었다. 이는 기타 성분의 주된 배출원 및 오염물질의 기여도가 CCF 적용 후 상대적으로 크게 증가할 수 있음을 말한다. 모사에서 기타 성분은 초미세먼지 모사에 사용된 AERO5 모듈에서 중분류되지 않은 1차 초미세먼지(A25)로 구분된다. CAPSS 2013 배출량 목록의 수도권 지역 1차 초미세먼지 (Primary PM<sub>2.5</sub>; 이하 PPM) 배출량은 도로 재비산먼지 (비산먼지) 배출원에서 16.6%, 화물차(선 오염원) 배출원에서 16.0%, 농업잔재물 소각(생물성 연소) 배출원에서 5.3% 발생되고 있어, CCF 적용 후 이들 배출원의 기여도 증가를 예상할 수 있다.

### 3.3 CCF 적용에 따른 기여도 변화 분석

그림 3은 수도권 지역에서 배출되는 대기오염물질 각각에 대한 초미세먼지 기여도를 배출원별로(면, 선, 점) 구분하여 보인 것으로, 모사기간의 평균적인 기여도 및 CCF 적용 후 변화된 기여도를 나누어 제시하였다. 수도권 지역 전체 배출량의 모사기간 평균 기여도는 CCF 적용 전  $7.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , CCF 적용 후  $10.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로  $2.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$  증가하였다. 배출원 구분에 따라 살펴보면, CCF 적용 후 기여도는 모두 증가하였으며 선 오염원

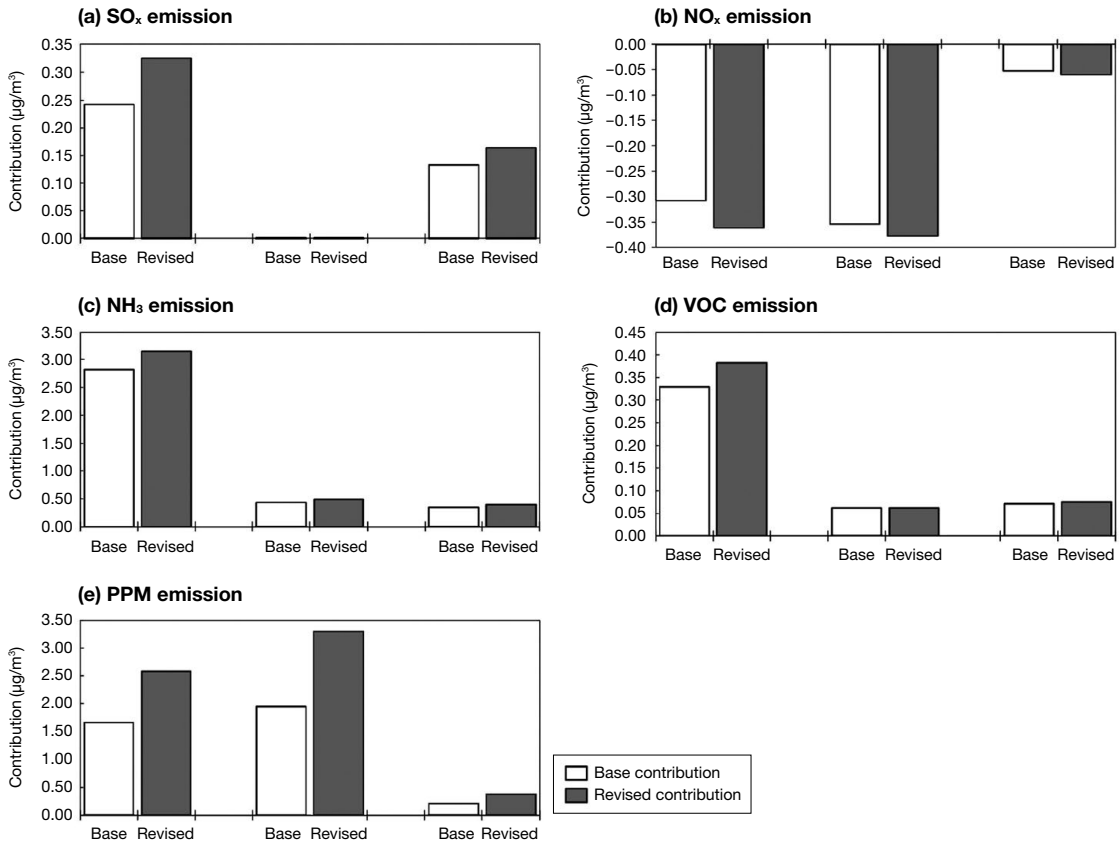


Fig. 3. Contributions of (a) SO<sub>x</sub>, (b) NO<sub>x</sub>, (c) NH<sub>3</sub>, (d) VOC, and (e) PPM emissions from SMA to surface PM<sub>2.5</sub> concentration averaged for the simulation months in 2014.

1.4 μg/m<sup>3</sup>, 먼 오염원 1.3 μg/m<sup>3</sup>, 점 오염원 0.2 μg/m<sup>3</sup> 증가하였다. 오염물질의 경우 PPM 배출의 기여도가 기존 3.8 μg/m<sup>3</sup>에서 보정계수 적용 후 6.3 μg/m<sup>3</sup>로 2.4 μg/m<sup>3</sup> (64%) 증가하였으며, 그중 선 오염원의 기여도가 가장 크게 증가하였다. NH<sub>3</sub> (Ammonia), SO<sub>x</sub> (Sulfur Oxides) 그리고 VOC (Volatile Organic Compounds)는 각각 0.4 μg/m<sup>3</sup> (12%), 0.1 μg/m<sup>3</sup> (31%), 0.06 μg/m<sup>3</sup> (12%) 기여도가 증가하였으며, 주로 먼 오염원의 기여도가 가장 크게 증가하였다. 반면 NO<sub>x</sub> (Oxides of Nitrogen)의 경우는 CCF 적용 후 0.8 μg/m<sup>3</sup> (12%) 기여도가 감소되었다. NO<sub>x</sub> 배출량의 기여도 감소는 대기질 모사에서 수도권 지역 NO<sub>x</sub> 배출량과 초미세먼지 농도가 disbenefit 관계에 있기 때문으로 (Kim *et al.*, 2017a) CCF 적용 시 disbenefit 효과가 더욱 증가할 수 있다.

표 2와 표 3은 그림 3의 모사기간 평균 기여도를 월

별, 성분별로 구분한 것으로, 기여도의 변화가 배출원에 따라 다르게 나타난 이유를 분석하기 위해 제시하였다. 배출원에 따른 기여도 차이는 크게 두 가지로 파악된다. 첫째, 배출 특성에 따라 기여도의 월간 변동성이 다르게 나타나기 때문이다. 표 2의 PPM 배출에 의한 초미세먼지 기여도를 보면, 먼 오염원의 월평균 기여도는 최소 1.439 μg/m<sup>3</sup> (7월)에서 최대 1.929 μg/m<sup>3</sup> (10월)로 34% 차이를 보인 반면, 선 오염원의 경우 최소 1.273 μg/m<sup>3</sup> (7월)에서 최대 2.695 μg/m<sup>3</sup> (1월)로 117% 차이를 보여 선 오염원 기여도의 월간 변동성이 상대적으로 뚜렷하게 나타났다. 이는 배출원에 따라 배출량의 월간 변화가 서로 다르기 때문으로 판단된다. 예를 들어, 먼 오염원의 10월 배출량은 7월보다 15% 가량 낮은 반면 선 오염원의 배출량은 10월과 7월의 배출량 변화가 1% 내외로 작다. 일차적으로는 기상조

**Table 2. Comparison of base and revised self-contributions from PPM emissions in the SMA to surface PM<sub>2.5</sub> species concentrations. The percentage represents the relative change in self-contributions after applying contribution correction factors.** (Unit: µg/m<sup>3</sup>)

(a) Area PPM emission														
	PM <sub>2.5</sub>		Sulfate		Nitrate		Ammonium		OC		EC		Others	
	Base contribution	Revised contribution	Base contribution	Revised contribution	Base contribution	Revised contribution	Base contribution	Revised contribution	Base contribution	Revised contribution	Base contribution	Revised contribution	Base contribution	Revised contribution
Jan.	1.756	1.990 (13%)	0.091	0.162 (77%)	0.020	0.018 (-9%)	0.039	0.041 (5%)	0.392	0.290 (-26%)	0.589	0.542 (-8%)	0.625	0.937 (50%)
Apr.	1.537	3.090 (101%)	0.172	0.233 (35%)	0.026	0.030 (18%)	0.072	0.085 (19%)	0.257	0.416 (62%)	0.540	0.810 (50%)	0.471	1.517 (222%)
Jul.	<b>1.439</b>	<b>2.566 (78%)</b>	0.161	0.184 (14%)	0.000	0.000 (-)	0.054	0.059 (9%)	0.248	0.641 (158%)	0.575	0.598 (4%)	0.400	1.083 (171%)
Oct.	<b>1.929</b>	<b>2.698 (40%)</b>	0.111	0.122 (10%)	0.071	0.062 (-13%)	0.063	0.061 (-3%)	0.397	0.651 (64%)	0.726	0.719 (-1%)	0.561	1.083 (92%)
Mean	1.665	2.586 (55%)	0.134	0.175 (31%)	0.029	0.028 (-5%)	0.057	0.062 (8%)	0.324	0.499 (54%)	0.607	0.667 (10%)	0.514	1.155 (125%)
(b) Mobile PPM emission														
Jan.	2.695	3.025 (12%)	0.030	0.053 (77%)	0.022	0.020 (-9%)	0.017	0.018 (5%)	0.925	0.684 (-26%)	0.522	0.480 (-8%)	1.179	1.769 (50%)
Apr.	1.580	3.617 (129%)	0.030	0.040 (35%)	0.025	0.030 (18%)	0.019	0.023 (19%)	0.524	0.850 (62%)	0.284	0.425 (50%)	0.699	2.250 (222%)
Jul.	<b>1.273</b>	<b>2.918 (129%)</b>	0.024	0.027 (14%)	0.018	0.019 (9%)	0.014	0.015 (9%)	0.433	1.17 (158%)	0.232	0.241 (4%)	0.554	1.500 (171%)
Oct.	<b>2.268</b>	<b>3.640 (61%)</b>	0.033	0.037 (10%)	0.058	0.050 (-13%)	0.031	0.030 (-3%)	0.760	1.246 (64%)	0.424	0.420 (-1%)	0.963	1.858 (92%)
Mean	1.954	3.300 (69%)	0.029	0.039 (35%)	0.031	0.030 (-3%)	0.020	0.021 (6%)	0.660	0.974 (47%)	0.365	0.392 (7%)	0.848	1.844 (114%)

**Table 3. Comparison of the base and revised self-contributions of SO<sub>x</sub> emissions from the SMA to the surface PM<sub>2.5</sub> concentrations. The percentage represents the relative change in self-contributions after applying contribution correction factors.** (Unit: µg/m<sup>3</sup>)

(a) Area SO <sub>x</sub> emission														
	PM <sub>2.5</sub>		Sulfate		Nitrate		Ammonium		OC		EC		Others	
	Base contribution	Revised contribution	Base contribution	Revised contribution	Base contribution	Revised contribution	Base contribution	Revised contribution	Base contribution	Revised contribution	Base contribution	Revised contribution	Base contribution	Revised contribution
Jan.	0.367	0.570 (55%)	0.278	0.493 (77%)	-0.003	-0.003 (-)	0.103	0.108 (5%)	-0.004	-0.003 (-26%)	0.001	0.001 (-)	-0.009	-0.013 (50%)
Apr.	0.242	0.319 (32%)	<b>0.227</b>	<b>0.307 (35%)</b>	<b>-0.050</b>	<b>-0.059 (18%)</b>	<b>0.067</b>	<b>0.079 (19%)</b>	-0.001	-0.001 (-)	0.000	-0.001 (50%)	-0.001	-0.003 (222%)
Jul.	0.267	0.287 (7%)	<b>0.267</b>	<b>0.305 (14%)</b>	<b>-0.062</b>	<b>-0.068 (9%)</b>	<b>0.064</b>	<b>0.070 (9%)</b>	0.000	-0.001 (158%)	0.000	0.000 (-)	-0.001	-0.003 (171%)
Oct.	0.089	0.094 (5%)	0.061	0.068 (10%)	0.004	0.003 (-13%)	0.024	0.023 (-3%)	0.000	0.000 (-)	0.000	0.000 (-)	0.000	0.000 (-)
Mean	0.241	0.319 (32%)	0.209	0.293 (40%)	-0.028	-0.031 (13%)	0.064	0.070 (9%)	-0.001	-0.001 (-5%)	0.000	0.000 (-)	-0.003	-0.005 (78%)
(b) Point SO <sub>x</sub> emission														
Jan.	0.071	0.114 (61%)	0.060	0.105 (77%)	0.000	0.000 (-)	0.022	0.023 (5%)	-0.003	-0.002 (-26%)	0.002	0.001 (-8%)	-0.008	-0.013 (50%)
Apr.	0.140	0.186 (33%)	<b>0.126</b>	<b>0.170 (35%)</b>	<b>-0.024</b>	<b>-0.028 (18%)</b>	<b>0.039</b>	<b>0.047 (19%)</b>	0.000	0.000 (-)	0.000	0.000 (-)	-0.001	0.002 (222%)
Jul.	0.260	0.294 (13%)	0.254	0.290 (14%)	-0.056	-0.062 (9%)	0.064	0.070 (9%)	0.000	-0.001 (158%)	0.000	0.000 (-)	-0.001	0.003 (171%)
Oct.	0.059	0.062 (5%)	0.039	0.043 (10%)	0.004	0.004 (-)	0.016	0.015 (-3%)	0.000	0.000 (-)	0.000	0.000 (-)	0.000	0.000 (-)
Mean	0.132	0.164 (24%)	0.120	0.152 (27%)	-0.019	-0.022 (13%)	0.035	0.039 (10%)	-0.001	-0.001 (-)	0.000	0.000 (-)	-0.002	-0.004 (74%)



건의 변화로 10월이 7월에 비해 전반적인 국내기여도 증가 경향을 보이지만, 먼 오염원은 배출량 감소로 인해 기여도의 증가 폭이 선 오염원보다 작다(Kim *et al.*, 2017b). 둘째, 배출된 전구물질이 초미세먼지로 전환되는 대기 화학적인 환경의 차이 때문이다. 동일한 배출 물질이라고 하더라도 배출지역이 도심지역인지, 교외 지역인지에 따라 생성 과정에서 차이가 발생할 수 있다. 대기 중으로 배출된  $SO_x$ 의 경우, 황산염으로 전환되는 과정 중 산화제 및 촉매 농도, 암모니아 배출량 등에 따라 전환율이 달라진다(Seinfeld and Pandis, 1998). 또한, 대기화학적 특성상 한 전구물질의 대기화학적 변환은 다른 물질의 미세먼지 전환율에도 영향을 미칠 수 있다. 한 예로 대기 중 2차 무기 미세먼지 성분인 황산염, 질산염은 암모늄에 의해 중화된다(Seinfeld and Pandis, 1998). 따라서  $SO_x$  농도는  $NO_x$  및  $NH_3$ 의 미세먼지 전환율에도 영향을 미칠 수 있으며, 이와 같은 현상의 재현성을 동반논문 Kim *et al.* (2017b)을 통해 국내에 대해서도 확인되었다.

한편, 이러한 대기 화학적인 특성은 배출된 오염물질의 물리적 확산 특성과 맞물려 CCF 사용에 따라 조금 더 복잡한 기여도 변화를 야기한다. 예를 들어, 먼 오염원에서 배출된  $SO_x$  기여도는 황산염 외에 질산염과 암모늄의 기여도를 함께 변화시키며, 질산염의 기여도는 4월과 7월에 각각  $0.050 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0.062 \mu\text{g}/\text{m}^3$  감소하였고, 암모늄의 기여도는 같은 기간  $0.067 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0.064 \mu\text{g}/\text{m}^3$  증가하였다. 반면 점 오염원에서 배출된  $SO_x$  또한 4월의 질산염과 암모늄의 기여도를 각각  $0.024 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0.039 \mu\text{g}/\text{m}^3$  변화시켰다(표 3 참조). 결과적으로 배출원에 따른 기여도 보정효과 차이는 시공간적인 배출 변동성과 물리화학적 전환 특성이 복합적으로 작용한 것이라 할 수 있다. CCF를 다양한 배출원별로 적용하려면 모사값도 배출원별로 구해야 하는데 이는 현실적으로 매우 어려운 일이다. 따라서, 배출원별로 서로 다른 CCF를 적용하기가 현재로서는 쉽지 않다. 이로 인해 기여도 보정 시, 배출원이 달라도 동일한 CCF를 적용해야 하는 제한점이 존재한다. 또한, 현재의 방법론은 2차 무기염의 중화 정도를 고려하고 있지 못한데 이를 위해서는 질량 보존 및 화학적 특성을 반영하는 방법론의 개발이 필요하며, 후속 연구로 진행되어야 할 것이다.

### 3.4 CCF 적용에 따른 전환율 변화

기여도 분석은 대기오염의 원인을 정량적으로 파악하는 데 있어 중요하나, 효과적인 대기 개선대책을 수립함에 있어서는 전구물질 단위 배출량당 초미세먼지 생성량(즉, 전환율) 또한 유용한 기초자료로 활용될 수 있다(Kim *et al.*, 2017b). 본 절에서는 3.3의 CCF 적용 후 기여도 변화를 이용하여 전환율 변화를 분석하였다.

표 4는 배출원에 따른 각 오염물질이 초미세먼지 농도에 미치는 기여도를 단위 배출량으로 나누어 전환율을 보인 것으로, CCF 적용 후 전환율과 비교하였다. CCF의 적용에 따라 PPM 배출량의 모사기간 평균 전환율은 기존  $217.9 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{MTPY}$  (MTPY는  $10^6$  TPY)에서  $365.2 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{MTPY}$ 로 1.7배 증가하였으며, 특히 4월의 경우 전환율이 2.2배 증가하였다. 이에 반해 두 번째로 높은 전환율을 보이는 암모늄의 경우에는 CCF의 적용 후 전환율 증가가 평균 1.1배, 최대 1.2배로 상대적으로 작은 차이를 보였다.

효과적인 미세먼지 저감이라는 정책적 관점에서 볼 때 기여도 보정에 따른 전환율 변화는 저감 대책을 수립하는 단계에서 관리가 필요한 오염물질 및 배출원의 우선순위 결정에 영향을 줄 수 있다. 예를 들어 PPM 배출의 경우 모사 결과만 이용할 경우 먼 오염원의 전환율은  $206.8 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{MTPY}$ 로 점 오염원의 전환율  $177.1 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{MTPY}$ 보다 높다. 단위 배출량당 초미세먼지 저감효율을 고려 시 먼 오염원의 우선적인 관리가 필요할 것으로 판단될 수 있다. 그러나, 기여도 보정 후 점 오염원의 전환율은 먼 오염원의 전환율과 거의 동등하게 나타나 단순 기여도 분석 외에 보다 상세한 비교가 필요함을 보인다.

## 4. 결 론

모사된 초미세먼지 농도는 다양한 불확도로 인해 관측농도와 차이를 보이게 된다. 미 환경청의 경우 대기질 개선계획 수립 시 이러한 불확도가 최종적인 모사 결과 활용에 미치는 영향을 줄이기 위하여 RRF를 적용하고 있다(U.S. EPA, 2007). 본 연구에서는 초미세먼지의 기여도 분석 시 모사 불확도를 고려하기 위해 한 가지 대안으로 RRF 개념을 차용한 CCF를 제시하여 보다 현실에 가까운 기여도를 도출하고자 하였다.

**Table 4. Comparison of base and revised conversion rates of (a) area, (b) mobile, and (c) point source emissions in the SMA to monthly mean SMA PM<sub>2.5</sub> during the simulation period in 2014. The percentage represents the relative change in conversion rate as a result of applying the contribution correction factor.**

(Unit: µg/m<sup>3</sup>/MTPY)

(a) Area										
	NO <sub>x</sub>		SO <sub>x</sub>		NH <sub>3</sub>		VOC		PPM	
	Base	Revised	Base	Revised	Base	Revised	Base	Revised	Base	Revised
Jan.	-4.4	-4.2(-5%)	14.6	23.2(55%)	39.0	48.0(23%)	0.6	0.5(-17%)	244.6	277.1(13%)
Apr.	-3.4	-4.2(-24%)	10.8	14.4(33%)	66.0	80.0(21%)	0.9	1.1(22%)	196.1	394.3(101%)
Jul.	-0.8	-1.4(-75%)	12.3	13.9(13%)	90.1	97.6(8%)	1.1	1.8(64%)	155.1	276.4(78%)
Oct.	-0.9	-1.1(-22%)	4.2	4.4(7%)	35.7	32.1(-10%)	2.1	2.0(-5%)	243.6	340.7(40%)
Mean	-2.2	-2.6(-18%)	10.6	14.3(35%)	57.2	63.9(12%)	1.2	1.4(17%)	<b>206.8</b>	<b>321.0(55%)</b>
(b) Mobile										
	NO <sub>x</sub>		SO <sub>x</sub>		NH <sub>3</sub>		VOC		PPM	
	Base	Revised	Base	Revised	Base	Revised	Base	Revised	Base	Revised
Jan.	-5.2	-4.9(6%)	-164.9	-251.9(53%)	54.0	69.3(28%)	2.0	1.6(-20%)	354.3	397.7(12%)
Apr.	-1.9	-2.4(-26%)	23.3	31.8(36%)	127.3	154.4(21%)	2.2	2.7(23%)	219.3	501.9(129%)
Jul.	-0.1	-0.5(-400%)	8.6	9.8(14%)	146.0	158.0(8%)	1.0	1.3(30%)	175.8	403.2(129%)
Oct.	1.5	1.0(-33%)	-9.8	-7.3(26%)	63.3	56.9(-10%)	4.5	4.1(-9%)	316.0	507.6(61%)
Mean	-2.3	-2.4(-4%)	-37.9	-57.8(-53%)	96.9	109.0(12%)	2.4	2.4(0%)	267.4	451.6(69%)
(c) Point										
	NO <sub>x</sub>		SO <sub>x</sub>		NH <sub>3</sub>		VOC		PPM	
	Base	Revised	Base	Revised	Base	Revised	Base	Revised	Base	Revised
Jan.	-3.3	-3.4(-3%)	3.0	4.8(60%)	24.4	25.0(2%)	0.9	0.7(-22%)	126.3	156.9(24%)
Apr.	-0.9	-1.3(-44%)	6.9	9.2(33%)	124.9	153.7(23%)	2.6	3.2(23%)	266.8	579.3(117%)
Jul.	0.1	-0.4(-500%)	12.9	14.5(12%)	128.9	138.6(8%)	1.3	1.8(38%)	179.3	349.7(95%)
Oct.	-0.3	-0.5(-67%)	3.2	3.3(3%)	27.0	24.6(-9%)	2.6	2.4(-8%)	137.0	197.7(44%)
Mean	-1.1	-1.4(-27%)	6.4	7.9(23%)	75.1	84.1(12%)	1.7	1.8(6%)	<b>177.1</b>	<b>320.5(81%)</b>

본 연구의 모사기간 동안 초미세먼지 성분별 모사농도는 기타 성분, 황산염, OC 순서로 각각 48.8%, 22.8%, 18.6% 과소 모사하였으며, 질산염과 암모늄은 관측과 유사 수준으로 모사되었다. 모사 결과는 대부분 Emery *et al.* (2017)의 최소 수준을 만족하고 있으나, 기타 성분의 경우 모사 정확도의 개선이 필요하다. 이러한 결과를 통해 모사기간 평균적으로 기타 성분 2.27, OC 1.64, 황산염 1.31의 CCF가 산정되었다. 동반논문 Kim *et al.* (2017a)에 제시된 수도권 자체 기여도를 CCF로 보정한 결과 PPM, NH<sub>3</sub>, SO<sub>x</sub>, VOC 배출량이 초미세먼지에 미치는 기여도는 모사기간 평균 각각 2.44 μg/m<sup>3</sup> (64%), 0.43 μg/m<sup>3</sup> (12%), 0.11 μg/m<sup>3</sup> (31%), 0.06 μg/m<sup>3</sup> (12%) 증가하였으며, NO<sub>x</sub>의 경우 0.08 μg/m<sup>3</sup> (12%) 감소하였다. 이 결과는 수도권의 배출량 저감정책 시행에 따른 초미세먼지 농도 감소 효과가 보정 후 최대 2.95 μg/m<sup>3</sup> (39%)까지 증가할 수 있으며, 자체 배출량 저감정책으로 달성할 수 있는 목표농도가 모사농도를 직접 사용하였을 때와 다르게 설정될 수 있음을 의미한다.

한편, 본 연구에서 수행한 기여도 보정은 배출원의 시공간적 배출 특성 차이와 배출된 오염물질이 겪는 물리화학적 환경 특성으로 인하여 배출원에 따라 서로 다른 결과를 보였다. 이는 배출원별 배출량 저감대비 농도 개선 효과(전환율)에도 변화를 야기하였다. 전환율은 대기질 개선정책 수립 시 저감대책의 우선순위 결정에 있어 중요한 자료로 기여도 보정은 대기질 관리에 있어 중요한 단계가 될 수 있을 것으로 사료된다.

단, 본 연구에서 제안한 CCF는 향후 개선의 여지가 있다. 첫째, 관측자료의 이용 방법이다. 가장 큰 CCF 값을 보인 기타 성분의 경우 미 연방 환경청에서는 중금속 농도를 이용하여 기타 성분의 농도를 추산하기도 한다(U.S. EPA, 2007). 그러나 본 연구에서는 관측자료의 결측, 중금속 측정자료의 불확실성 등 현실적인 제한 사항으로 인해, 현시점에서 이용 가능한 범위 내의 접근을 시도하였다. 둘째, 모사 정확도의 개선이다. 모사 정확도가 현저히 나쁜 경우, CCF의 적용보다는 배출량 개선 등 보다 근본적인 정확도 개선을 통해 현실에 가까운 결과를 확보하는 것이 우선일 수 있다.

이러한 한계점에도 본 연구의 결과는 현시점에서 이용 가능한 자료 활용을 통해, 모사의 불확실성을 고려한 보다 정확한 기여도 및 전환율을 추정하는 것에 의의

가 있다. 앞서 언급한 바와 같이 대기오염물질의 저감 대책 수립은 배출량 감축대비 농도 개선 효과뿐만 아니라 투입되는 비용을 고려한 비용/편익 분석이 필요하며, 따라서 후속 연구로 CCF 적용으로 개선된 전환율을 이용한 저감 대책별 비용/편익 분석이 이루어져야 한다.

## 감사의 글

본 논문은 환경부의 재원으로 국립환경과학원의 지원을 받아 수행하였으며(NIER-2017-01-02-047), 환경부의 환경정책기반공공기술개발 사업에서 지원받았습니다.

## References

- Bartnicki, J. (1999) Computing source-receptor matrices with the EMEP Eulerian Acid Deposition Model. EMEP MSC-W Note, 5, 99.3
- Bae, C.H., H.C. Kim., B.U. Kim, and S.T. Kim (2015). Improvement of PM Forecast using PSAT based Customized Emission Inventory over Northeast Asia. 14th Annual CMAS Models-3 Users' Conference, October 5-7, 2015, Chapel Hill, NC.
- 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.
- Carlton, A.G., P.V. Bhave, S.L. Napelenok, E.O. Edney, G. Sarwar, R.W. Pinder, G.A. Pouliot, and M. Houyoux (2010) Model representation of secondary organic aerosol in CMAQv4. 7, Environmental Science and Technology, 44(22), 8553-8560.
- Chu, B., X. Zhang, Y. Liu, H. He, Y. Sun, J. Jiang, J. Li, and J. Hao (2016) Synergetic formation of secondary inorganic and organic aerosol: effect of SO<sub>2</sub> and NH<sub>3</sub> on particle formation and growth, Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 16(22), 14219-

- 14230.
- Emery, C., Z. Liu, A.G. Russell, M.T. Odman, G. Yarwood, and N. Kumar (2017) Recommendations on statistics and benchmarks to assess photochemical model performance, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 67(5), 582-598.
- 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 Discussions*, 6(1), 107-173.
- Hayes, P.L., A.G. Carlton, K.R. Baker, R. Ahmadov, R.A. Washenfelder, S. Alvarez, B. Rappenglück, J.B. Gilman, W.C. Kuster, J.A. de Gouw, P. Zotter, A.S.H. Prévôt, S. Szidat, T.E. Kleindienst, J.H. Offenberg, and J.L. Jimenez (2014) Modeling the formation and aging of secondary organic aerosols in Los Angeles during CalNex 2010, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 14, 32325-32391, doi:10.5194/acpd-14-32325-2014.
- In, H.J. and Y. P. Kim (2010). Estimation of the aerosol optical thickness distribution in the Northeast Asian forest fire episode in May 2003: Possible missing emissions, *Atmospheric Research*, 98(2), 261-273.
- Kim, B.U., O. Kim, H.C. Kim, and S. Kim (2016) 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, 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.
- Kim, S., C. Bae, C. Yu, B-U. Kim, H.C. Kim, and N. Moon (2017a) PM<sub>2.5</sub> simulations for the Seoul Metropolitan Area: (II) estimation of self-contributions and emission-to-PM<sub>2.5</sub> conversion rates for each source category, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*. (in submit)
- Kim, S., C. Bae, B-U. Kim, and H.C. Kim (2017b) PM<sub>2.5</sub> simulations for the Seoul Metropolitan Area: (I) contributions of precursor emissions in the 2013 CAPSS emissions inventory, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(2), 139-158.
- MOE (2013) The 2nd stage of air quality management plan over the Seoul Metropolitan Area. (in Korean)
- Oreskes, N., K. Shrader-Frechette, and K. Belitz (1994) Verification, validation, and confirmation of numerical models in the earth sciences, *Science*, 263(5147), 641-646.
- Russel, A. and R. Dennis (2000) NARSTO critical review of photochemical models and modeling, *Atmospheric Environment*, 34, 2283-2324.
- Seinfeld, J.H. and S.N. Pandis (1998) *Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change*, 2nd edition., Waveland Press Inc., U.S.A.
- Simon, H., K.R. Baker, and S. Phillips (2012) Compilation and interpretation of photochemical model performance statistics published between 2006 and 2012, *Atmospheric Environment*, 61, 124-139.
- 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.
- U.S. EPA (2007) Guidance on the Use of Models and Other Analyses for Demonstrating Attainment of Air Quality Goals for Ozone, PM<sub>2.5</sub>, and Regional Haze, <https://www.epa.gov/scram001/guidance/guide/final-03-pm-rh-guidance.pdf> (accessed on May 1, 2017).
- 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.
- Zhang, X., C.D. Cappa, S.H. Jathar, R.C. McVay, J.J. Ensberg, M.J. Kleeman, and J.H. Seinfeld (2014) Influence of vapor wall loss in laboratory chambers on yields of secondary organic aerosol, *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 111(16), 5802-5807.

**Appendix. 기여도 보정계수(CCF) 도출 과정**

대기 중 오염물질 농도에 대한 배출원  $j$ 의 기여도 분석을 위해 Brute Force Method 접근 방법이 이용되었다. 기본 상태에서의 오염물질 농도( $C_{OBS,Base}$ )와 배출원  $j$ 의 배출량이 존재하지 않을 때의 오염물질 농도( $C_{OBS,BFM_j}$ ) 차이를 바탕으로 배출량  $j$ 에 의한 실제 기여도(Zero-Out Contribution, ZOC)를 식 1과 같이 정의할 수 있다(Bartnicki, 1999).

$$ZOC_{OBS,j} = C_{OBS,Base} - C_{OBS,BFM_j} \quad (1)$$

그러나 현실에서는 배출량 삭감이 제한적일 뿐만 아니라 배출량 삭감 전/후의 대기 조건을 유사하게 유지하기 어려우므로, 대기질 모사를 수행하여  $C_{OBS,BFM_j}$ 를 간접적으로 추정하였다. 대기질 모사를 통해 계산된 기본 모사농도( $C_{MOD,Base}$ )가 관측농도( $C_{OBS,Base}$ )를 재현할 수 있다고 가정하면, 식 1은 식 2와 같이 나타낼 수 있다.

$$ZOC_{MOD,j} = C_{MOD,Base} - C_{MOD,BFM_j} \quad (2)$$

여기에서  $ZOC_{MOD,j}$ 는 모델에서 모의된 배출량  $j$ 에 의한 기여도이며,  $C_{MOD,Base}$ 는 기본 모사농도,  $C_{MOD,BFM_j}$ 는 배출량  $j$  삭감 후 모사농도이다.

그러나 현실적으로 모의된 농도는 관측농도와 완전히 일치하지 않으므로, 모의된 기여도 또한 실제 기여도와는 다소 차이를 보일 것으로 판단된다.

이러한 한계를 개선하기 위한 방안으로 미 환경청에서는 SIP를 위하여 배출량 변화에 따른 미래 연도에 대한 관측농도 변화 추정 시, 배출량 삭감 전/후 모사농도의 변화 비율을(Relative Reduction Factor, RRF) 적용할 것을 권장하고 있다(U.S. EPA, 2007). 이는 통계적으로 유의한 상관성을 보일 경우, 모사농도와 관측농도의 상대적인 변화율은 유사할 것이라는 가정에 기초한다(식 3 참조).

$$\frac{C_{OBS,Future}}{C_{OBS,Base}} \approx \frac{C_{MOD,Future}}{C_{MOD,Base}} \quad (3)$$

여기에서  $C_{MOD,Base}$ 는 기본 모사농도이며  $C_{MOD,Future}$ 는 미래 연도에 대한 모사농도로, 실제로는 배출량 변화 후 모사농도  $C_{MOD,BFM}$ 와 동일한 의미이다. 마찬가지로

$C_{OBS,Base}$ 는 현재 연도에 대한 관측농도이며  $C_{OBS,Future}$ 는 미래 연도에 대한 관측농도로, 배출량 변화 후 관측농도  $C_{OBS,BFM}$ 와 동일한 의미이다.

즉, 기본 모사와 배출량 삭감모사 그리고 현재의 관측농도를 바탕으로 배출량 변화 후의 관측농도를 추정할 수 있다(식 4 참조).

$$C_{OBS,BFM} = C_{OBS,Base} * C_{MOD,BFM} / C_{MOD,Base} \quad (4)$$

식 4를 식 1에 대입하면, 본 연구에서 도출하고자 하는 실제 기여도를 배출량 삭감 전/후의 모사농도와 현재의 관측농도를 이용하여 식 5와 같이 나타낼 수 있다.

$$ZOC_{obs,j} = C_{OBS,Base} - C_{OBS,Base} * \frac{C_{MOD,BFM_j}}{C_{MOD,Base}} \quad (5)$$

식 5는 이항정리를 통해 식 6, 식 7과 같이 정리할 수 있다. 식 7의  $C_{MOD,Base} - C_{MOD,BFM_j}$ 는  $ZOC_{MOD,j}$ 와 같으므로(식 2), 식 8과 같이 나타낼 수 있다.

$$ZOC_{obs,j} = C_{OBS,Base} * \left( 1 - \frac{C_{MOD,BFM_j}}{C_{MOD,Base}} \right) \quad (6)$$

$$ZOC_{obs,j} = C_{OBS,Base} * \left( \frac{C_{MOD,Base} - C_{MOD,BFM_j}}{C_{MOD,Base}} \right) \quad (7)$$

$$ZOC_{obs,j} = C_{OBS,Base} * \left( \frac{ZOC_{MOD,j}}{C_{MOD,Base}} \right) \quad (8)$$

식 9는 식 8을 정리한 것으로, 배출량 삭감 전/후 모사농도를 통해 도출된 기여도( $ZOC_{MOD,j}$ )와 기본 모사에 대한 관측농도의 비율을 곱해 실제 기여도( $ZOC_{OBS,j}$ )를 추정하였다.

$$ZOC_{obs,j} = ZOC_{MOD,j} * \left( \frac{C_{OBS,Base}}{C_{MOD,Base}} \right) \quad (9)$$

기본 모사농도( $C_{MOD,Current}$ )와 관측농도( $C_{OBS,Current}$ )를 이용하여 식 10과 같이  $ZOC_{adj}$ (Adjusted Contribution)을 정의하였다. 식 10은 본문에 제시된 식 3으로,  $C_{OBS,Current} / C_{MOD,Current}$ 는 관측 대비 모사의 불확실성을 고려하기 위한 기여도 보정계수이며, 본 연구에서는 Contribution Correction Factor(CCF)로 정의하였다.

$$ZOC_{j,adj} = \left( \frac{C_{OBS,Current}}{C_{MOD,Current}} \right) * ZOC_j \quad (10)$$