



논문

# 2013~2016 기간 전국 규모 PM<sub>2.5</sub> 고농도 사례의 전반적 특성

## Overall Characteristics of Nationwide High PM<sub>2.5</sub> Episodes during 2013~2016

김영성\*, 최용주, 박지수, 김순태<sup>1)</sup>, 배창한<sup>1)</sup>, 서지훈<sup>2)</sup>,  
 신혜정<sup>3)</sup>, 임용재<sup>3)</sup>, 유영숙<sup>3)</sup>, 이영재<sup>3)</sup>  
 한국외국어대학교 환경학과, <sup>1)</sup>아주대학교 환경안전공학과,  
<sup>2)</sup>한국과학기술연구원 환경복지연구센터,  
<sup>3)</sup>국립환경과학원 대기환경연구과

접수일 2019년 8월 19일  
 수정일 2019년 9월 9일  
 채택일 2019년 9월 10일

Received 19 August 2019  
 Revised 9 September 2019  
 Accepted 10 September 2019

\*Corresponding author  
 Tel : +82-(0)31-330-4993  
 E-mail : ysghim@hufs.ac.kr

Young Sung Ghim\*, Yongjoo Choi, Jisoo Park, Soontae Kim<sup>1)</sup>,  
 Chang Han Bae<sup>1)</sup>, Jihoon Seo<sup>2)</sup>, Hye Jung Shin<sup>3)</sup>, Yong Jae Lim<sup>3)</sup>,  
 Young Sook Lyu<sup>3)</sup>, Young Jae Lee<sup>3)</sup>

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

<sup>1)</sup>Department of Environmental and Safety Engineering, Ajou University, Suwon, Republic of Korea

<sup>2)</sup>Center for Environment, Health, and Welfare Research, Korea Institute of Science and Technology, Seoul, Republic of Korea

<sup>3)</sup>Air Quality Research Division, National Institute of Environmental Research, Incheon, Republic of Korea

**Abstract** Five nationwide high PM<sub>2.5</sub> episodes were selected using data from intensive air quality monitoring stations operated by the National Institute of Environmental Research during 2013~2016. Episode selection was based on the number of stations with mean PM<sub>2.5</sub> ≥ 75 µg/m<sup>3</sup>, number of episode days, and mean PM<sub>2.5</sub>, considering season. PM<sub>2.5</sub> concentration increased mainly with sulfate as air trajectories arrived from polluted regions in China, when the Chinese contribution was high. Although not as prominent as sulfate, high nitrate concentration in the case of high PM<sub>2.5</sub>, and K<sup>+</sup> enrichment in the case of high Chinese contribution were observed during some episodes. While sulfate and nitrate behaved similarly in many cases, the difference in concentration between sulfate and nitrate was useful in determining the relative importance of long-range transport and local emissions. Long-range transport of pollutants from China, which played a vital role in leading to high PM<sub>2.5</sub>, was primarily associated with development and movement of migratory high-pressure system. As a high-pressure system developed, pollutants accumulated in the northern part of China and were transported to the Korean Peninsula along with the eastward movement of the high-pressure system. High PM<sub>2.5</sub> concentrations occurred while the high-pressure system resided over the Korean Peninsula and the domestic contribution increased.

**Key words:** Episode selection, Sulfate, Nitrate, Chinese contribution, Synoptic meteorology

### 1. 서론

최근 PM<sub>2.5</sub>에 대한 관심이 높다. 2013년 초 이래 미세먼지가 사회적으로 큰 이슈인 가운데, 작년 3월 PM<sub>2.5</sub> 일평균 환경기준이 50 µg/m<sup>3</sup>에서 35 µg/m<sup>3</sup>으로 강화되며 나쁨 수준의 PM<sub>2.5</sub> 발생이 크게 증가하였고, 올해 1월과 3월, 남부 일부를 제외한 전국에서

매우 나쁨 수준의 PM<sub>2.5</sub>가 며칠씩 계속된 원인이 크게 작용한 결과로 보여진다([https://www.airkorea.or.kr/web/sidoQualityCompare?itemCode=10008&pMENU\\_NO=102](https://www.airkorea.or.kr/web/sidoQualityCompare?itemCode=10008&pMENU_NO=102)). 올해만 하여도 2월 특별법이 시행되고, 4월 대통령 직속 국가기후환경회의가 출범하였으며, 1조원 대 추경예산이 편성되는 등 환경 현안으로서는 이례적으로 미세먼지를 대상으로 한 대응

이 전방위적으로 진행되고 있다. 하지만 고농도 사례에 대한 이해가 아직 미흡하고, 중국으로부터 장거리 유입에 대한 논란에서 볼 수 있는 것과 같이 대응의 효과를 장담하기 어려운 것도 사실이다.

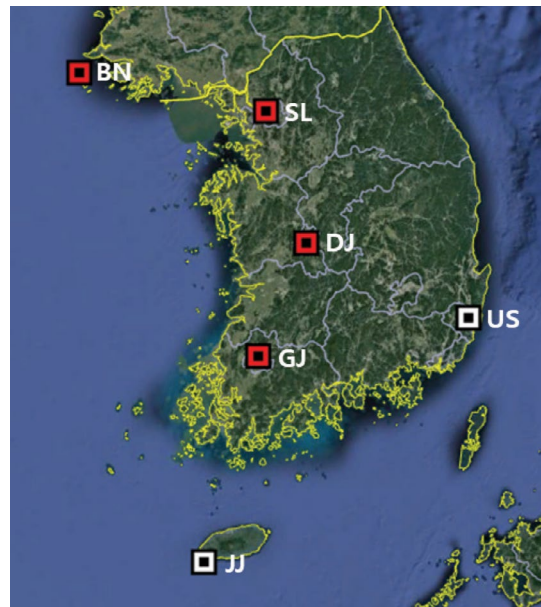
이번 연구는 2017년 9월 시작된 국가전략프로젝트(올해 2월부터는 범부처 프로젝트)의 일환이다. 과학기술기반 미세먼지 대응을 위한 국가전략프로젝트에서도 고농도 사례 원인규명은 핵심이슈이며, 집중측정 중심의 사례 분석에 앞서, 이전 기간을 대상으로 주요 고농도 사례의 특성을 조사하고자 하였다. PM<sub>2.5</sub> 성분을 측정한 국립환경과학원 집중측정소 자료를 이용하였으며, 2013~2016년은 국가전략프로젝트 시작 시점에서 확보가 가능하였던 가장 최근의 다년 자료였다. 2013년은 중국에 이어 국내에서도 고농도가 발생한 까닭에 국내외에서 많은 연구들이 진행되었고(Koo *et al.*, 2018; Fu and Chen, 2017; Cheng *et al.*, 2016; Kim *et al.*, 2016a; Huang *et al.*, 2014; Ji *et al.*, 2014; Lee *et al.*, 2014; Tian *et al.*, 2014; Wang *et al.*, 2014a; Wang *et al.*, 2014b), 2014년을 대상으로도 연구들이 이어졌다(Jung *et al.*, 2019, 2016; Yu *et al.*, 2019; Tan *et al.*, 2018; Kim *et al.*, 2017a; Seo *et al.*, 2017; Kim *et al.*, 2016c). 이외에도 해당 기간 고농도 사례에 대한 다양한 분석 결과들이 발표되었다(Shao *et al.*, 2018; Yu *et al.*, 2018a, b, c; Li *et al.*, 2017a; Shi *et al.*, 2017; Kim *et al.*, 2016b).

국내외에서 고농도 사례를 대상으로 많은 연구 결과들이 발표되었으나 대부분 사례별 특성 분석이다. 이번 연구에서도 사례별 특성을 조사하지만 일반화와 함께 전반적 특성을 파악하고자 하는데, 보편적 이해를 토대로 고농도 상승에 대응하기 위해서는 고농도 상승에 대한 개념 모델(conceptual model)이 필요하기 때문이다(Tan *et al.*, 2018; NARSTO, 2004). 분석 대상으로는 공간적으로 규모가 크고, 장기간 계속된 사례를 선정하고자 하였으며, 역궤적과 국내외 배출의 기여도, 주요 성분의 일변화를 토대로 사례별 특성을 조사하고, 장거리 유입의 종관기상을 살펴보았다.

## 2. 자료 이용

PM<sub>2.5</sub> 질량 농도와 이온, 탄소 농도는 그림 1의 권역별 집중측정소 자료를 이용하였다. PM<sub>2.5</sub> 질량 농도는 BAM-1020 Continuous Particulate Monitor (Met One), 이온 농도는 URG-9000D Ambient Ion Monitor (URG), 탄소 농도는 Model-4 Semi-Continuous OC-EC Field Analyzer (Sunset)로 측정하였으며 상세한 내용은 NIER (2018)을 참조할 수 있다. 기상자료의 경우, 수도권(서울)과 같이 집중측정소 자료를 이용할 수 있을 때는 집중측정소 자료를 이용하였으나, 대부분 인근 기상대 자료를 이용하였다.

국내외 배출의 기여도 산정을 위한 대기질 모델링에는 WRF (Weather Research and Forecast; Skamarock and Klemp, 2008) v3.4.1, SMOKE (Sparse Matrix



**Fig. 1.** Locations of intensive air quality monitoring stations operated by the National Institute of Environmental Research: BN, Baengnyeong; SL, Seoul; DJ, Daejeon; GJ, Gwangju; US, Ulsan; and JJ, Jeju. Data from US and JJ stations were not used in characterizing high PM<sub>2.5</sub> episodes because the US station started monitoring from 2014, one year short of the study period, and no episodes occurred at the JJ station.

Operator Kernel Emissions Processor; Benjey *et al.*, 2001) v3.1, 그리고 CMAQ (Community Multiscale Air Quality; Byun and Ching, 1999) v4.7.1을 이용하였다. 배출량 목록으로, 국외는 2010년 MICS-Asia (Model Inter-Comparison Study for Asia; Li *et al.*, 2017b), 국내는 2010년 CAPSS (Clean Air Policy Support System) 국가 배출목록, 자연 배출에 대해서는 MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature; Guenther *et al.*, 2006)을 이용하였다. 수평 방향 격자는, 동북아 지역을 대상으로 해상도 27 km, 격자수 174×128였으며, 연직 방향으로는 22층, 최하층의 높이는 33 m였다. 중국과 우리나라 배출의 기여도는 BFM (brute force method)을 이용하여 계산하였는데, 각각의 배출량을 50% 줄여서 얻은 농도 변화에 2배를 함으로써 배출량을 100% 삭감하였을 때 농도 변화 (zero-out contribution)를 추정하였다. BFM은 간편하여 국내외에서 가장 많이 사용되는 방법의 하나이지만 (Kim *et al.*, 2017b; Itahashi *et al.*, 2015; Burr and Zhang, 2011), 배출량과 농도 사이에 선형 반응 (linear response)을 가정하기 때문에 대기화학반응 등에서 비선형성이 커질 때에는 오차도 커지게 되므로 결과 해석에 유의할 필요가 있다 (Clappier *et al.*, 2017; Koo *et al.*, 2009). 대기질 모델링과 기여도 분석의 상세한 내용은 각각 Ju *et al.* (2018)과 Bae *et al.* (2017)을 참조할 수 있다.

역궤적 분석에는 HYSPLIT\_4 (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) 모델을 이용하였다 (Draxler *et al.*, 2018). 1°×1°, 3시간 간격의 GDAS (Global Data Assimilation System) 자료를 기상자료로 사용하였고, 연직 방향의 변화는 기상모델의 연직 속도로써 계산하였다. 각 측정소별로 오전 9시 (0000 UTC), HYSPLIT에서 제공하는 혼합고의 1/2 높이에서 궤적을 출발시켜 1시간 간격으로 72시간 위치를 추적하였다.

오염물질의 장거리 유입과 관련된 종관기상 분석에는 ERA-Interim (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts Re-Analysis) 재분석 자료의 850

hPa 지위고도 (geopotential height)와 u, v 바람 자료를 일평균하여 사용하였다 (Dee *et al.*, 2011). 850 hPa 등압면은 일반적인 대기경계층 높이 이상인 약 1.5 km 고도에 해당하며, 지상보다 기압계 패턴이 단순하여 오염물질의 장거리 이동 분석에 유용하다. 일별 종관기상 패턴에 상응하는 미세먼지 공간분포를 관찰하기 위해 NASA의 지구관측위성 Terra 및 Aqua에 탑재된 MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectrometer) 센서의 AOD (aerosol optical depth) 자료를 함께 이용하였다.

### 3. 사례 선정

집중측정소에서는 시간 단위로 PM<sub>2.5</sub> 질량과 성분을 측정하지만 4년간 권역별 측정소를 대상으로 하는 만큼 일평균을 이용하여 고농도 발생을 조사하였다. 6개 집중측정소 중 2014년부터 측정이 시작된 울산을 제외하고, 5개 측정소 PM<sub>2.5</sub> 자료에서 일평균 50, 70, 90  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  이상을 조사한 결과 각각 11.4%, 3.5%, 1.3%였다. 각 측정소에 고농도일이 고르게 분포되었다면 4년 1461일 중 각각 167일, 51일, 19일에 해당되며, 연간 42일, 13일, 5일이다. 1년에 5일은 너무 적고, 42일은 많다고 생각하여 70  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 을 고농도 기준으로 설정하였다. 현재 24시간 환경기준의 약 2배이고, 예보에서는 매우 나쁨에 근접하는 농도이다.

5개 측정소에 대하여 고농도 발생을 조사하였지만 제주도는 일평균 70  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  이상이 발생하지 않아 백령도와 서울, 대전, 광주 등 4개 측정소 자료를 이용하여 사례를 선정하였다. 표 1은 사례 선정 결과이다. 일단위로는 기준농도 이하가 되더라도 짧은 시일 내 기준농도 이상이 이어진다면 같은 사례로 보는 것이 합당하다고 생각하여 사례기간 평균이 70  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이 되도록 기간을 설정하였다. 표에서 측정소 수는 사례기간 평균이 70  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  이상인 측정소 수이다. 울산과 제주도가 제외되었기 때문에 측정소 수는 최대가 4개이다.

**Table 1.** Selection of high PM<sub>2.5</sub> episodes<sup>a</sup>.

Episode selected	Ranking	Number of stations <sup>b</sup>	Start	End	Number of days	SDP index <sup>c</sup>	PM <sub>2.5</sub> Ca <sup>2+</sup>		WS (m/s)	Temp (°C)	RH (%)
							(µg/m <sup>3</sup> )				
2014-winter	1	4	2014-02-20	2014-03-04	13	3,994	77	0.07	1.77	4.2	59
2013-winter	2	4	2013-01-11	2013-01-24	14	3,740	67	0.07	2.10	-0.7	72
	3	4	2014-01-14	2014-01-24	11	2,654	60	0.05	2.10	-1.2	62
	4	3	2015-10-16	2015-10-24	9	1,824	68	0.12	0.78	16.9	75
2015-fall	5	4	2013-03-04	2013-03-09	6	1,723	72	0.14	3.00	6.8	64
	6	3	2014-04-09	2014-04-18	10	1,707	57	0.09	1.41	14.4	64
2014-spring	7	4	2013-12-02	2013-12-05	4	1,167	73	0.09	1.56	4.6	73
	8	3	2013-05-22	2013-05-26	5	933	62	0.18	1.34	22.3	59
	9	4	2014-12-28	2014-12-30	3	914	76	0.08	1.80	2.0	66
2013-summer	10	3	2013-07-25	2013-07-29	5	894	60	0.07	2.59	25.3	85

<sup>a</sup>Mean values were calculated using data from four stations shown in Fig. 1 during the episode. WS, wind speed; Temp, temperature; RH, relative humidity.

<sup>b</sup>Number of stations with a mean PM<sub>2.5</sub> ≥ 70 µg/m<sup>3</sup> among four stations.

<sup>c</sup>Station-day-pm index defined by (number of stations) × (number of days) × (mean PM<sub>2.5</sub>).

측정소별로 사례 시작과 종료는 모두 50 µg/m<sup>3</sup>이 되도록 하였는데 사례 중 일평균이 높은 경우 뒷부분은 농도가 낮은 날이 계속되어도 사례에 포함되기 때문이며, 앞부분에서는 50 µg/m<sup>3</sup> 이상부터 상승을 관찰하고자 하였기 때문이다. 표 1에서 시작과 종료는 측정소별 사례에서 가장 빠른 시작일과 가장 늦은 종료일이다. SDP (station-day-pm) 지수는 (고농도 발생 측정소 수) × (사례 일수) × (PM<sub>2.5</sub> 평균 농도)이다. 고농도 발생 공간과 시간 규모에 PM<sub>2.5</sub> 농도를 곱한 값이며, 이 지수를 기준으로, 2014년과 2013년 겨울 둘을 포함하여, 나머지 계절은 계절별로 하나씩 5개 사례를 선정하였다. 봄철의 경우 2013년 3월의 순위가 2014년 4월 순위보다 높으나, 1일과 9일 약한 황사가 관측되었고 (NIER, 2014), Ca<sup>2+</sup> 농도가 0.14 µg/m<sup>3</sup>로, 다른 사례의 0.07~0.12 µg/m<sup>3</sup>보다 높아 제외하였다.

#### 4. 사례별 특성

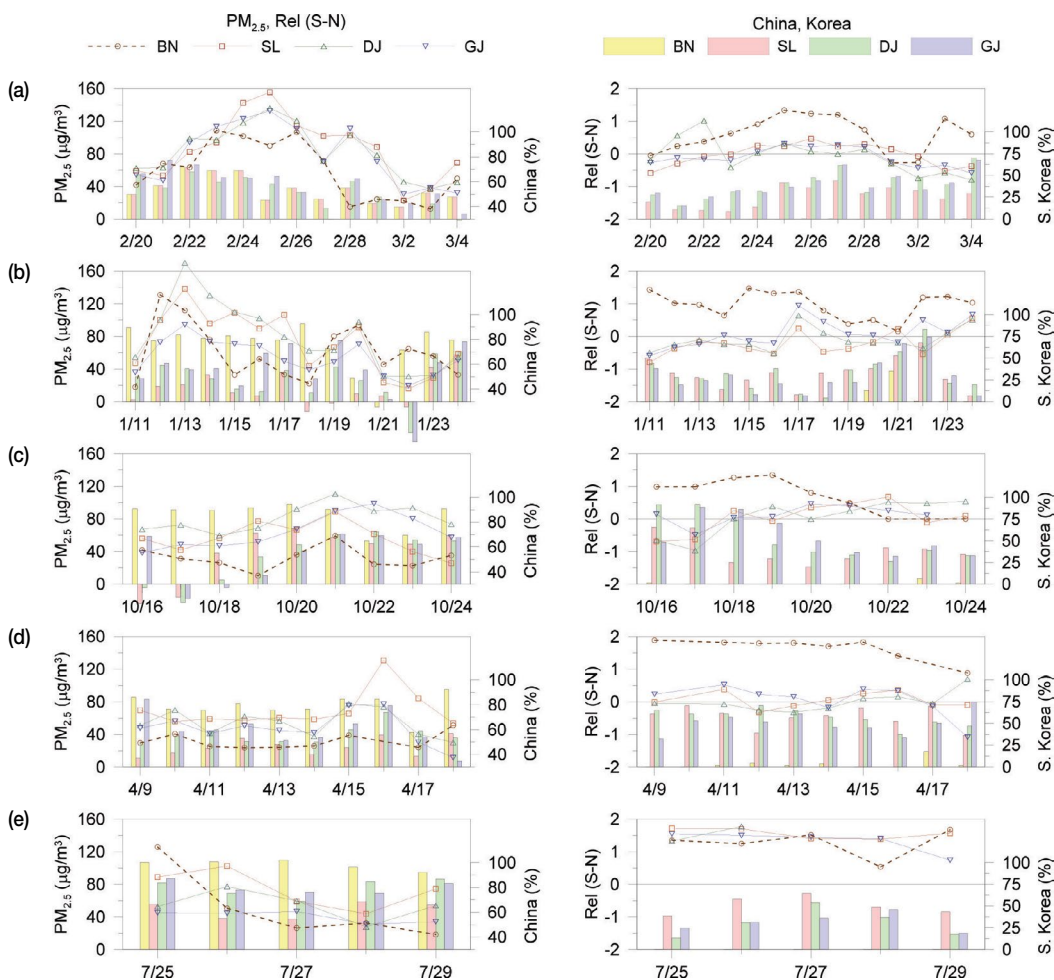
그림 2에서 왼쪽 그림은 각 사례기간 백령도와 내륙 세 도시(서울, 대전, 광주) 측정소의 PM<sub>2.5</sub>와 중국의 기여도, 오른쪽 그림은 황산염, 질산염의 차이(Rel[S-N], SN의 차이)와 국내 기여도 변화이다. SN의 차이는 두 성분의 변화가 동등하게 반영될 수 있도록, 모델성능 평가 지표인 MFB (mean fractional bias;

Boylan and Russell, 2006)의 형태로 계산하였다. 다음의 서술에서 PM<sub>2.5</sub>와 중국, 국내 기여도 변화 등은 특별히 언급하지 않아도 그림 2를 토대로 하였다.

##### 4.1 2014년 겨울

제1 사례인 14년 겨울의 경우, 초기 20일부터 25일까지, 내륙 세 도시에 대한 중국의 기여도 평균이 63%로 높은 가운데 내륙 도시의 PM<sub>2.5</sub> 평균이 58 µg/m<sup>3</sup>에서 141 µg/m<sup>3</sup>까지 상승하였다. 22일 중국의 기여도가 백령도 72%, 내륙 도시 71%로 가장 높지만, 궤적의 이동속도가 크게 저하되며 내륙 도시에 대한 국내 기여도가 40%로 높아진 25일 PM<sub>2.5</sub> 농도가 최고가 되었다(그림 3(a)). 내륙 도시의 경우, 27일 많은 궤적이 한반도에 머물며 국내 기여도 평균이 56%까지 상승하였으나 중국 기여도가 38%로 낮아지며 PM<sub>2.5</sub> 농도가 저하되었고 중국 기여도가 59%로 높아진 28일 PM<sub>2.5</sub>가 다시 상승하였다.

백령도는 중국의 영향이 압도적일 뿐 아니라 배출 등 오염특성이 다르므로 표 2에서는 백령도를 제외한 내륙 도시에 대하여 PM<sub>2.5</sub> 농도가 50 µg/m<sup>3</sup>보다 높을 때와 낮을 때, 중국 기여도가 50%보다 높을 때와 낮을 때를 구분하여 PM<sub>2.5</sub>와 주요 성분의 변화를 조사하였다. 13년 여름을 제외한 대부분 사례에서 PM<sub>2.5</sub>가 낮을 때 황산염보다 질산염이 높고 (13년 겨울을 제외하고), PM<sub>2.5</sub>가 높을 때는 황산염이 주로 상



**Fig. 2.** Temporal variations in 24-h average PM<sub>2.5</sub> and Chinese contribution (left panel) and Rel (S-N) and domestic contribution (right panel). (a) 2014-winter, (b) 2013-winter, (c) 2015-fall, (d) 2014-spring, and (e) 2013-summer. Rel (S-N) is defined by  $2(SO_4^{2-} - NO_3^-)/(SO_4^{2-} + NO_3^-)$ . Horizontal lines in the right panel represent Rel (S-N) = 0. Note that the base of bar graphs for Chinese contribution is 30%.

증가하였다. 14년 겨울에는 PM<sub>2.5</sub>가 높아짐에 따라 황산염이 4.6배 증가하였고, 질산염, K<sup>+</sup>, EC, OC 순으로 2배 이상 증가하였는데, 황산염은 PM<sub>2.5</sub>보다 증가폭이 1.6배 컸다.

중국의 기여도가 50% 미만일 때도 황산염보다 질산염이 높았고, 중국의 기여도가 높아짐에 따라 황산염, K<sup>+</sup>, 질산염, OC, EC 순으로 증가하였으며, 황산염과 K<sup>+</sup>가 PM<sub>2.5</sub>보다 증가폭이 컸다(표 2(a)). 그림 2에서 중국의 기여도가 높을 때 PM<sub>2.5</sub> 농도가 증가하는

양상을 보임에 따라 두 값의 변화에 따른 성분 변화도 유사하다. 중국의 기여도가 높을 때 황산염의 증가가 가장 크고, 황산염이 PM<sub>2.5</sub> 농도 상승을 주도하면서 중국의 석탄연소가 PM<sub>2.5</sub> 농도 상승에 중요한 모습이다(Liu *et al.*, 2015; Lu *et al.*, 2010). 황산염보다는 작아도 중국의 기여도가 클 때 K<sup>+</sup>의 증가도 커서 바이오매스 연소의 영향을 암시하였다(Jung *et al.*, 2016; Watson *et al.*, 1998).

표 2에서는 중국의 기여도가 클 때(13년 겨울을 제



외하고) 대체로 황산염과 질산염이 함께 증가하였으나 황산염은 중국의 석탄연소에 의한 장거리 이동을, 질산염은 국내 차량 배출에 의한 국지 영향을 대표하여 상반된 변화를 보이는 경우가 많다(Jung *et al.*, 2019; Ghim *et al.*, 2017). 둘의 변화를 극대화하기 위하여 그림 2의 오른쪽 그림에서는 SN의 차이를 살펴 보았다. 백령도에서는 SN의 차이 대부분이 큰 양의 값인데 내륙 도시에 비하여 중국의 영향이 클뿐 아니라 차량 배출의 영향도 작기 때문이다. 백령도와 달리 다른 세 측정소는 농도가 낮을 때 질산염의 농도가 높아 사례 초반과 후반 음의 값이 많다.

#### 4.2 2013년 겨울

비교적 청정한 북서쪽으로부터 유입되던 궤적이 12일 백령도부터 오염지역을 지나며 백령도의  $PM_{2.5}$  농도가  $131 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 까지 상승하였고, 13일 내륙 도시 평균도  $134 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 까지 상승하였다(그림 3(b)). 오염 지역의 영향이 직접적인 13일 대전은  $PM_{2.5}$  농도가  $170 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 까지 상승한데 비해 황해로부터 궤적이 유입된 광주주는  $94 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 상대적으로 낮았다. 15일 내륙 도시에 대한 중국의 기여도가 감소하였다가 17일 북서쪽으로부터 궤적이 유입되며 중국 기여도가 증가하였으나 서울의  $PM_{2.5}$ 가  $106 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 높아졌을 뿐이다. 19일부터 22일까지 중국의 기여도가 감소하고 국내 기여도가 증가하는 가운데 20일 백령도와 서울, 대전의  $PM_{2.5}$ 가  $91\sim 98 \mu\text{g}/\text{m}^3$  이상 상승하였고 24일 중국의 기여도가 커지며 내륙 도시에서  $PM_{2.5}$ 가 상승하였으나  $51\sim 59 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 크게 높지 않았다.

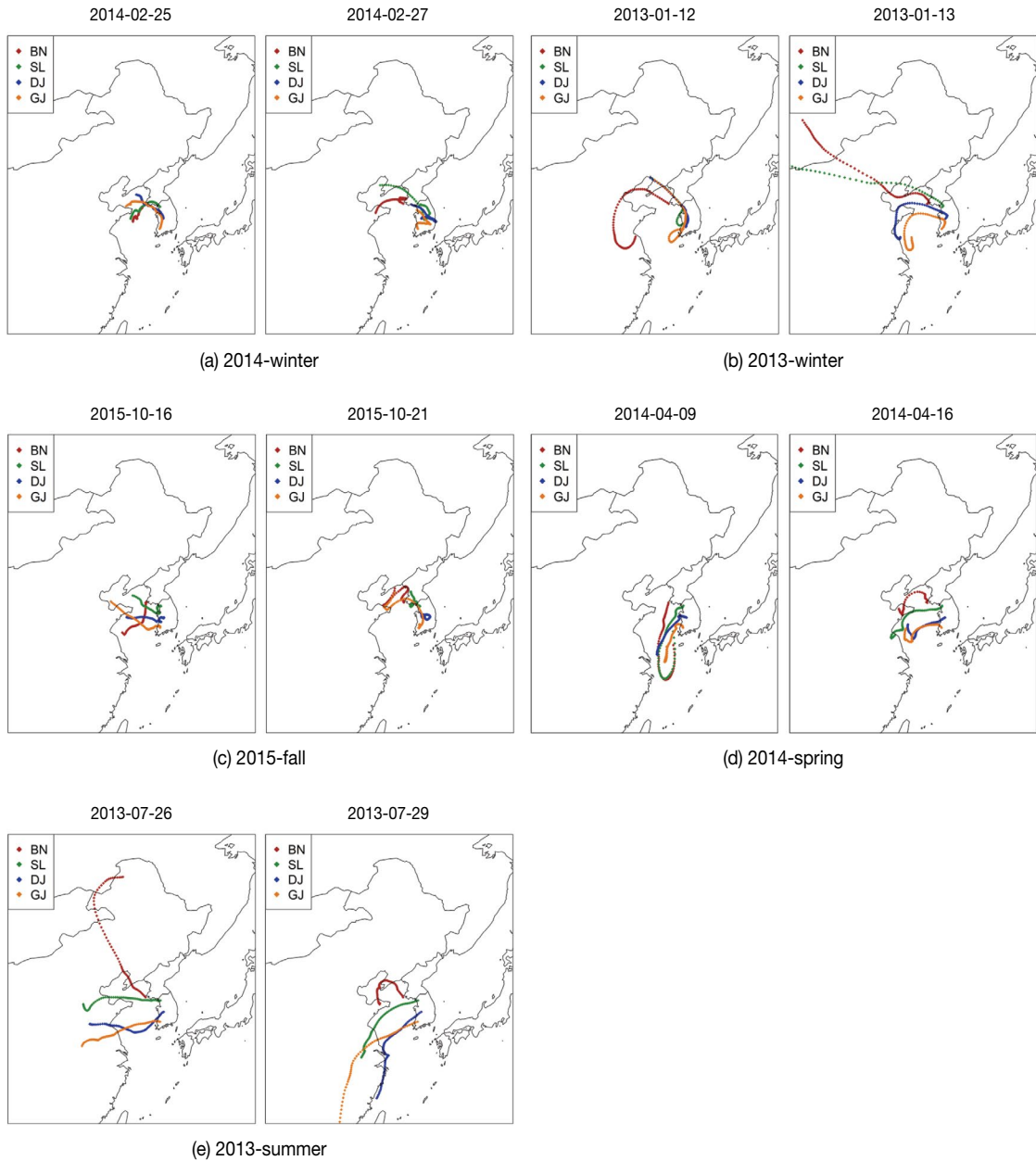
13년 겨울은  $PM_{2.5}$ 가 낮을 때뿐 아니라 높을 때도 질산염이 황산염보다 높았다(표 2(b)). 14년 겨울에 비하여 기온이 낮고( $4.2$  vs.  $-0.7^\circ\text{C}$ ) 상대습도가 높아( $59$  vs.  $72\%$ ) 질산염이 입자상에 머물기에 유리한 환경이 조성되었기 때문일 수 있다(표 1).  $PM_{2.5}$ 가 높을 때  $K^+$ 의 증가가 가장 큰데, 기본적으로  $PM_{2.5}$ 가 낮을 때 농도가 낮았기 때문이지만, 중국의 기여도가 높을 때도 증가가 커서 중국의 바이오매스 연소가 원인일 수 있다. 다른 이온 대비  $K^+$ 의 높은 증가는 광주를 대

상으로 하였던 Lee *et al.* (2014)에서도 관찰되었고, Kim *et al.* (2016a)에서는 2차 생성을 제외하고 이동에 의한 바이오매스 연소의 기여도가 10.2%로 가장 높았다. 반면, 질산염은  $PM_{2.5}$ 가 높을 때 증가하지만, 중국의 기여도가 높을 때는 감소하여 주로 국지배출에 의하여 생성되는 모습이다(Koo *et al.*, 2018).

많은 질산염이 국지배출에 의하여 생성됨에 따라 중국의 기여도가 큰 사례 초에도 내륙 도시의 SN 차이는 음이다(그림 2(b)). 백령도는 국내 영향이 큰 15, 16일까지도 SN 차이가 큰 양의 값이어서 중국의 영향이 압도적일 뿐 아니라 질산염 생성이 내륙 도시에 국한되었음을 보여주고 있다(Koo *et al.*, 2018). 17일  $PM_{2.5}$ 는 크게 증가하지 않았으나 중국의 기여도가 상승하고 국내 기여도가 크게 낮아지며 SN 차이가 양이 되었다. 22일 내륙 도시에서는 국내 기여도가 최대이고 중국 기여도가 최소이며  $PM_{2.5}$ 도 낮았으나 서울, 대전만 SN 차이가 음이었고 24일 중국 기여도가 높아지며  $PM_{2.5}$ 이 증가하며 SN 차이가 다시 양이 되었다. 내륙 도시를 중심으로 한 13년 겨울은, 중국 기여도가 높을 때 황산염이 증가하지만 국내 기여에 의한 질산염 증가가 두드러져  $PM_{2.5}$ 와 SN 차이의 상관관계수가  $-0.29$ 로 음이었고, 황산염보다 질산염이  $PM_{2.5}$  증가에 중요하였다.

#### 4.3 2015년 가을

이번 연구 사례의 많은 변화가 정체와 연관되지만 15년 가을의 사례 기간 평균 풍속  $0.78 \text{ m/s}$ 는 특별하다(표 1). 사례 초반 내륙 도시 평균 국내 기여도가 71%에 이르는 등 국내 배출의 영향이 지배적이어서 중국의 영향이 큰 백령도의  $PM_{2.5}$ 는  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 를 밑돌고, 내륙 도시 중에서는 중국의 영향이 직접적이었던 광주가 가장 높았다(그림 3(c) 2015-10-16). 사례 후반 궤적이 북서쪽으로부터 유입되며 중국의 기여도가 높아지고  $PM_{2.5}$ 이 상승하기 시작하여 21일에는 백령도도  $59 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 까지 상승하였지만 이번 연구 고농도 기준인  $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 에는 못 미쳤고, 내륙 도시 중에서는 대전이  $111 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 가장 높았다.



**Fig. 3.** Backward trajectories starting from four stations on selected days of the episodes.

초반에 국내 기여도가 높았지만 후반, 중국의 기여도가 높아지며 PM<sub>2.5</sub>가 상승함에 따라 PM<sub>2.5</sub> 상승에 따른 증가도 역시 황산염이 가장 크고, 질산염도 PM<sub>2.5</sub>와 유사한 비율로 증가하였다(표 2(c)). 이중 황

산염과 K<sup>+</sup>가 중국의 기여도가 높을 때 PM<sub>2.5</sub> 이상 증가하여 중국의 영향을 보여줄 뿐 질산염, EC, OC는 변화가 없거나 작아 국내 요인이 중요하였다. 그림 2(c)를 보면 백령도는 초반 PM<sub>2.5</sub>가 낮아도 중국의 기

**Table 2.** Comparison of PM<sub>2.5</sub> and major component concentrations (µg/m<sup>3</sup>) for three inland stations (Seoul, Daejeon, and Gwangju) between high and low PM<sub>2.5</sub> and between high and low Chinese contributions.

	PM <sub>2.5</sub> <sup>a</sup>						Chinese contribution <sup>b</sup>					
	PM <sub>2.5</sub>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	K <sup>+</sup>	OC	EC	PM <sub>2.5</sub>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	K <sup>+</sup>	OC	EC
(a) 2014-winter												
High	96.25	17.17	15.61	0.59	10.50	3.24	93.48	16.46	14.69	0.59	10.30	3.18
Low	32.72	3.75	5.55	0.26	5.21	1.54	62.85	9.97	11.06	0.37	7.73	2.42
High/low ratio	2.94	4.58	2.81	2.25	2.02	2.10	1.49	1.65	1.33	1.60	1.33	1.32
(b) 2013-winter												
High	86.56	14.03	16.13	0.49	9.13	3.30	72.64	12.31	11.58	0.43	7.62	2.79
Low	29.44	4.13	4.51	0.12	3.90	1.46	63.03	8.95	11.83	0.30	6.90	2.51
High/low ratio	2.94	3.40	3.58	4.07	2.34	2.26	1.15	1.38	0.98	1.45	1.10	1.11
(c) 2015-fall												
High	74.40	19.46	16.22	0.61	8.95	2.79	73.25	20.03	14.87	0.64	8.47	2.69
Low	35.54	6.97	7.98	0.35	5.89	1.67	55.00	9.40	14.82	0.37	8.17	2.46
High/low ratio	2.09	2.79	2.03	1.73	1.52	1.67	1.33	2.13	1.00	1.72	1.04	1.09
(d) 2014-spring												
High	66.31	13.79	12.16	0.34	6.73	2.38	61.75	11.99	10.59	0.30	6.76	2.20
Low	35.16	4.17	4.98	0.23	5.16	1.54	38.27	6.42	6.78	0.20	4.30	1.59
High/low ratio	1.89	3.31	2.44	1.47	1.30	1.54	1.61	1.87	1.56	1.50	1.57	1.38
(e) 2013-summer												
High	70.40	24.48	2.69	0.18	3.59	1.74	56.09	20.10	2.64	0.15	3.28	1.54
Low	34.90	9.75	1.71	0.08	2.70	1.21	- <sup>c</sup>	-	-	-	-	-
High/low ratio	2.02	2.51	1.57	2.32	1.33	1.44	-	-	-	-	-	-
(f) Overall												
High	79.38	17.31	13.27	0.46	8.08	2.76	75.28 <sup>d</sup>	15.20	12.93	0.49	8.29	2.72
Low	33.46	5.47	5.17	0.22	4.71	1.50	54.79	8.69	11.12	0.31	6.78	2.24
High/low ratio	2.37	3.16	2.56	2.12	1.72	1.84	1.37	1.75	1.16	1.58	1.22	1.21

<sup>a</sup>High and low denote  $\geq$  and  $< 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , respectively.

<sup>b</sup>High and low denote  $\geq$  and  $< 50\%$ , respectively.

<sup>c</sup>Not available for Chinese contribution  $< 50\%$ .

<sup>d</sup>Excluding the value for 2013-summer because the low value for that episode was not available.

여도가 높아 SN 차이는 양의 값이나 후반에는 중국의 기여도 낮아지면서 0에 근접하였다. 반면, 대전은 중국의 기여도가 꾸준히 21일 이후 PM<sub>2.5</sub>가 낮아짐에도 불구하고 SN 차이가 증가하였다.

#### 4.4 2014년 봄

사례 기간 내륙 도시의 중국 기여도는 54%로 평균 수준이었으나 국내 기여도는 55%로 가장 높았다. 국내 기여도가 높고 남서쪽으로부터 유입이 많아(그림 3(d) 2014-4-9) 15년 가을과 같이 백령도에서는 70 µg/m<sup>3</sup> 이상이 관찰되지 않았다. 백령도를 제외하고 내륙 도시 중에서는 광주에서 중국의 기여도가 가장 높으나 PM<sub>2.5</sub>가 그만큼 높지 않은 반면, 서울은 중국

의 기여도가 낮고 국내 기여도가 높은 가운데 PM<sub>2.5</sub>가 가장 높은 것도 국내 배출의 영향이 중요하였기 때문에 볼 수 있다. 그럼에도 불구하고 중반 이후 오염지역으로부터 귀적이 유입되어 중국의 영향이 직접적이었던 서울에서 16일 PM<sub>2.5</sub>가 최고가 되었다(그림 3(d)).

국내 기여도가 높은 까닭에 표 2(d)에서는 PM<sub>2.5</sub>가 높을 때 황산염과 함께 질산염이 PM<sub>2.5</sub> 이상 증가하였다. 중국의 기여도가 높을 때는 황산염이 PM<sub>2.5</sub> 이상 증가하였을 뿐 다른 성분의 변화는 PM<sub>2.5</sub>와 유사하였다. 그림 2(d)에서 백령도의 SN 차이는 중반 이후까지 거의 상한인데 주로 질산염의 농도가 낮기 때문이다. 중국의 기여도가 상대적으로 큰 광주는 SN



차이가 대부분 양이나 18일 중국의 기여도가 줄고 국내 기여도가 증가하며 음이 되었다.

#### 4.5 2013년 여름

13년 여름 사례는 모든 측정소의 PM<sub>2.5</sub>가 50 µg/m<sup>3</sup>보다 낮은 28일을 제외하고 내륙 측정소 평균이 50 µg/m<sup>3</sup> 이상이었고, 중국 기여도는 사례 기간 내내 50% 이상이었다(그림 2(e)). 앞의 가을, 봄 사례와 달리 서쪽 혹은 북서쪽으로부터 권적이 유입되어 백령도와 함께 서울, 대전에서 PM<sub>2.5</sub>가 높았다(그림 3(e)). 광주는 중국의 기여도가 서울보다 높음에도 70 µg/m<sup>3</sup> 이상 고농도가 관찰되지 않았는데, 상대적으로 오염이 덜한 지역으로부터 권적이 유입되었을 수 있으나 분명하지 않다.

표 2(e)에서는 PM<sub>2.5</sub>가 낮을 때도 황산염의 농도가 상당하지만, PM<sub>2.5</sub>가 높을 때는 더욱 높았다. 여름인데 황산염과 더불어 K<sup>+</sup>가 PM<sub>2.5</sub>보다 증가폭이 크다. 그림 2(e)의 SN 차이를 보면 다른 사례와 달리 백령도가 특별히 높지 않고 오히려 서울이 높는데, 사례 평균에서 서울이 백령도에 비하여 황산염은 더 높고(18.2 vs. 11.5 µg/m<sup>3</sup>), 질산염은 더 낮았기 때문이다

(2.0 vs. 2.8 µg/m<sup>3</sup>). 서울에서 기온이 더 높고(25.5 vs. 23.0°C) 상대습도가 낮은 까닭에(81 vs. 91%) 광화학 생성이 활발한 가운데 질산염 휘발이 많아 나타난 현상으로 볼 수 있다.

### 5. 장거리 유입의 종관기상

사례별 특성에서 일관되게 나타난 특징 중 하나가 중국의 기여도가 높을 때 PM<sub>2.5</sub>가 상승하고, 주로 황산염 상승을 동반한다는 점이다. PM<sub>2.5</sub> 상승에서 중국으로부터 장거리 유입이 중요함에 따라 그림 4에는 장거리 유입의 기압배치와 농도 상승을 도식적으로 표시하였다. 이동성 고기압의 발달과 이동이 핵심으로, 늦겨울부터 초여름까지 일반적으로 관찰되는 기상 패턴이다. Kim *et al.* (2016b)은 중국으로부터 장거리 유입을 3가지 패턴으로 구분하였는데, 그림 4를 기본으로 한 변형으로 볼 수 있다. 그림 4의 기상 패턴을 나누어 설명하면, (1) 남중국에서 고기압이 발달하며 안정된 대기조건 하에서 오염물질이 적체되고, 시계 방향의 고기압성 순환은 오염물질을 북중국

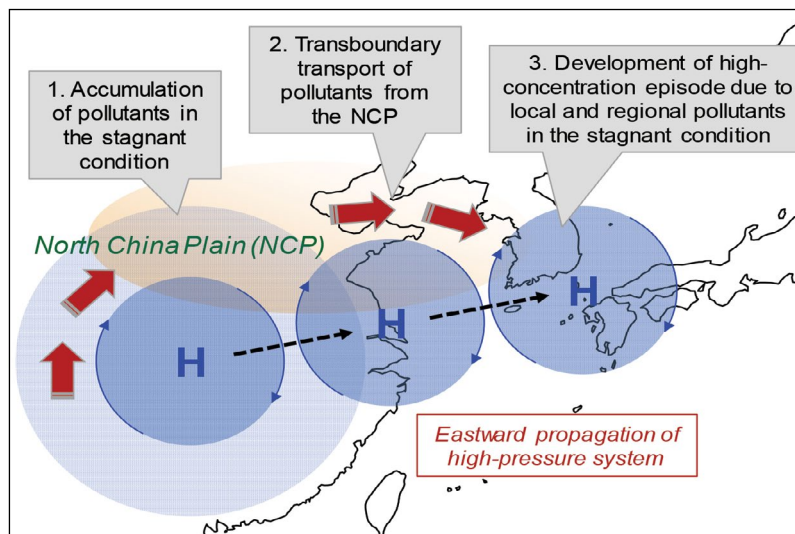


Fig. 4. Schematic of high-concentration episode in Korea associated with combination of transboundary transport and stagnant conditions induced by the eastward movement of migratory high-pressure system.

평원 일대로 수송하여 이 지역의 오염물질 농도를 높인다. (2) 고기압의 중심이 동중국해로 이동하며 북중국 평원의 오염물질은 고기압의 북쪽 가장자리를 따라 황해를 통과하여 한반도로 유입된다. (3) 한반도가 동진하는 고기압의 영향권 아래에 놓임에 따라 중국으로부터의 오염물질 유입과 함께 국내에서 생성된 오염물질의 영향이 커지며 고농도가 심화된다.

그림 5는 중국으로부터 장거리 유입의 종관기상을 설명하기 위한 850 hPa 일기도이다. 그림 5(a)는 2014년 겨울 사례이다. 20일 중국 남부에서 발달한 고기압의 안정된 대기조건 아래 중국 내륙의 광범위한 지역에서 연무가 발생하여 AOD를 높였고, 22일 동진하는 이동성 고기압의 북쪽 가장자리를 따라 연무 발생 지점이 한반도 방향으로 확대되었다. 고기압성 순환에 따른 약한 서풍 기류에 의해 한반도에는 중국의 기여도가 점차 증가하였으나(그림 2(a)), 24일에는 한반도 상공에 고기압이 정체되며 국내 영향이 커졌고, 중국으로부터 유입과 국내 발생 오염물질이 축적되어 내륙 도시에서  $PM_{2.5}$ 가 최고가 되었다. 26일에는 중국 남부에서 발달한 저기압이 남해상으로 진출하여 한반도 상공에 저기압성 순환에 의한 약한 동풍을 유발함에 따라, 중국으로부터의 오염물질 유입이 감소하며 차츰  $PM_{2.5}$ 가 저하되었다.

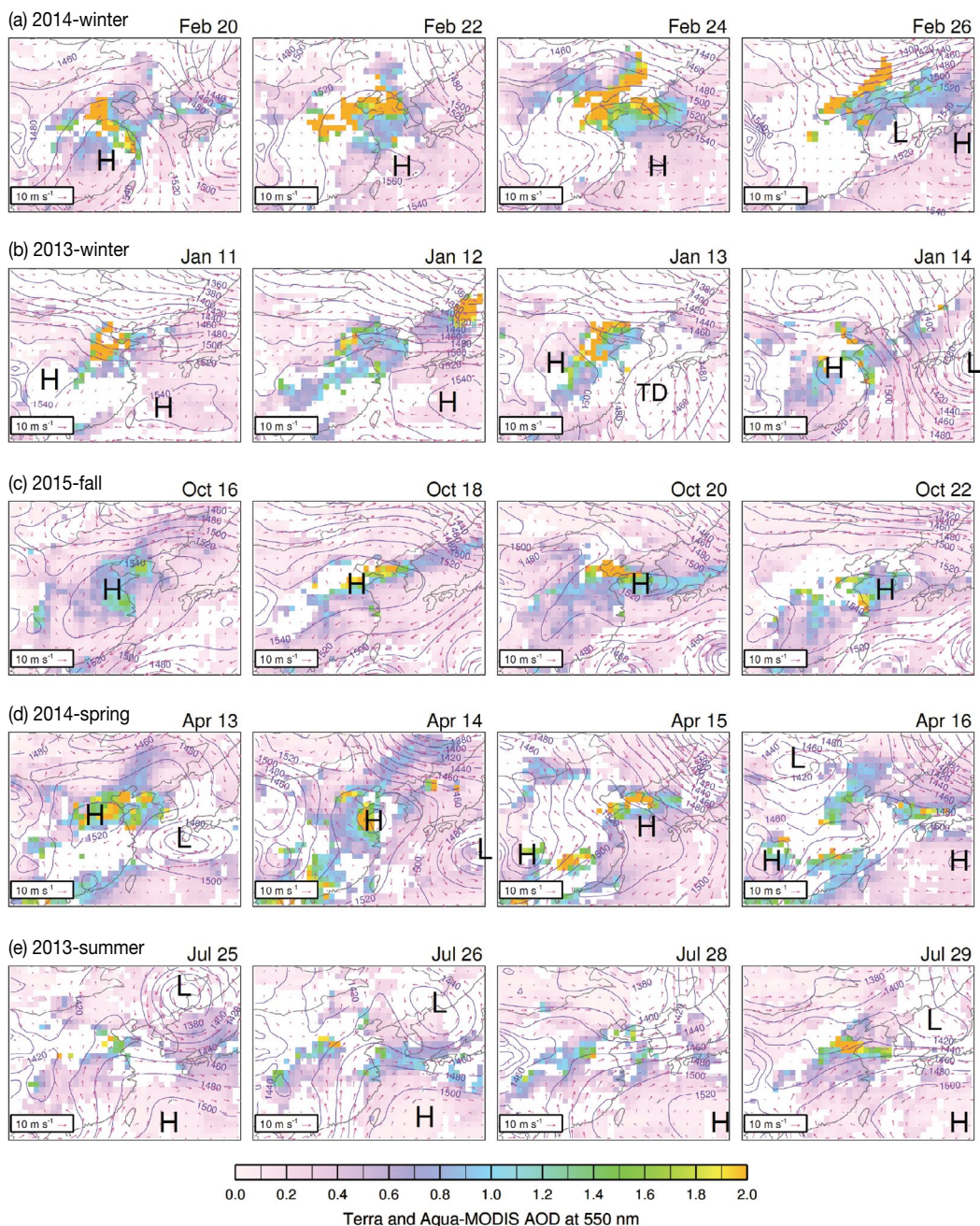
2013년 겨울 사례는 2014년 겨울 사례와 비교하여 이동성 고기압의 발달과 이동이 빠른 주기로 반복되었다(그림 5(b)). 사례 초기  $PM_{2.5}$ 가 빠르게 상승하였는데, 11일과 12일에 걸쳐 중국 남부에서 서태평양에 이르는 고압대의 북쪽 가장자리를 따라 황해상에 발생한 서풍 기류를 통해 북중국 평원 지역으로부터 오염물질이 유입되고, 13일에는 한반도 전체가 중국을 중심으로 재차 발달하는 고기압의 서쪽 가장자리에 놓여 대기가 정체되었기 때문이다. 한편, 13일 동중국해에 위치하였던 열대저기압(TD, tropical depression)이 14일 일본 남동부로 북동진하며 온대저기압으로 변질되었다. 열대저기압의 북상 과정에서 한반도 상공에 발생한 약한 북동기류가 만주와 한반도 북부에 오염물질을 적체시켰으며, 14일 저기압이 일본

으로 이동하며 중국의 이동성 고기압과의 사이에서 발생한 북서기류에 의해 한반도 북부에 적체된 오염물질이 남쪽으로 수송되며 한반도 남부에서 고농도  $PM_{2.5}$ 가 계속되었다.

2015년 가을 사례는 한반도를 중심으로 중국 북부에서 발달해 느리게 이동하는 고기압의 띠가 일본까지 동서로 길게 이어진, 대상 고기압에 의한 지속적인 대기 정체와 이로 인한 중국으로부터의 오염물질 유입이 특징이다(그림 5(c)). 사례 초반인 16일에는 중국 북부로부터 한반도 북부로 장출한 고기압에 의해 한반도 상공에 발생한 동풍이 중국으로부터의 오염물질 수송을 차단하면서, 중국의 기여도가 낮았다. 그러나 16~18일에 걸쳐 산둥반도에 중심을 둔 고기압이 발달하며 북중국 평원 지역의 오염물질 농도가 점차 증가하였고, 한반도 상공의 동풍 역시 해소되어 중국으로부터의 오염물질 유입이 시작되었다. 20일에는 산둥반도 남단에 중심을 둔 약한 고기압이 황해상으로 이동하며 발생한 고기압성 순환으로 인해 중국으로부터 유입이 증가하였으며, 이후 22일까지 한반도 상공에 고기압이 정체하며 국내 발생 오염물질의 영향도 커졌다.

2014년 봄 사례의 초반 종관기상은 2015년 가을 사례 초반과 유사하다(그림 5(d)). 13일 중국 북부에서 발달한 고기압에 의해 북중국 평원 지역에 오염물질이 축적되었으나, 한반도에서는 북부로 장출한 고기압과 남해상에 발달한 저기압의 영향으로 동풍 계열의 바람이 우세하여 국내 기여도가 높았다. 그러나 14일과 15일 이동성 고기압이 빠르게 동진하며 중국 북부의 오염물질 유입에 유리한 조건이 형성되어  $PM_{2.5}$ 가 점차 상승하였다. 16일에는 한반도가 북서태평양으로 이동한 고기압의 북서쪽 장출부에 위치하여 외부 유입과 함께, 정체 조건에서 국내 오염물질이 적체되며  $PM_{2.5}$ 가 최고가 되었다.

주로 이동성 고기압의 영향을 받았던 앞선 사례와 달리 2013년 여름 사례에서는 북태평양 고기압의 확장과 한반도 북쪽을 지나는 저기압에 의해 발생한 한반도 상공의 서풍 기류와 이에 따른 중국으로부터의



**Fig. 5.** ERA-Interim daily-mean geopotential height (contours, gpm) and wind (arrows) at 850 hPa superimposed on the Terra and Aqua MODIS AOD at 550 nm.

유입이 특징이다(그림 5(e)). 25~26일에 걸쳐 중국 내륙으로 깊숙이 진출한 북태평양 고기압의 북서쪽

가장자리의 북중국 평원 지역에서 높은 AOD가 관찰되며, 한반도 남부에 형성된 서풍 기류를 따라 높은



AOD 구역이 띠처럼 분포하여 중국으로부터 한반도 남부로 미세먼지가 수송되고 있음을 보여준다. 유사한 중관기상 패턴이 28일과 29일에 반복되며 한반도 남부를 중심으로 중국으로부터 오염물질 유입이 재차 증가하였다.

## 6. 요약 및 결론

2013~2016년 백령도와 서울, 대전, 광주에 위치한 집중측정소 일평균  $PM_{2.5}$  자료로부터 14년 겨울, 13년 겨울, 15년 가을, 14년 봄, 13년 여름 등 5개 고농도 사례를 선정하였다. 측정소별로 사례기간 평균  $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , 시작일과 종료일  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  이상인 사례를 선택한 후, 가장 빠른 시작일과 가장 늦은 종료일로써 사례기간을 설정하고, 사례기간 평균  $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$  인 측정소 수(stations), 사례기간 일수(days), 사례기간 평균  $PM_{2.5}$  농도(pm)를 곱한 SDP 지수를 이용하여, SDP 지수가 높은 사례부터 계절을 고려하여 선정할 결과이다.

14년 겨울과 13년 겨울은 북서쪽과 서쪽으로부터 권적이 유입되며 모든 측정소에서 고농도가 발생하였고, 15년 가을과 14년 봄은 서쪽과 남서쪽으로부터 권적이 유입되며 서울, 대전, 광주 등 내륙 도시에서만  $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$  이상 고농도가 발생하였다. 13년 여름은 서쪽과 남서쪽으로부터 권적이 유입되었지만 광주에서는 농도가 상승하지 않았다. 사례기간 내륙 도시 평균  $PM_{2.5}$ 는 모두 중국의 기여도가 50% 이상 클 때 상승하였다. 이에 따라 13, 14년 겨울 등에서는 중국의 기여도가 높은 가운데 사례 전반에(내륙 도시 평균)  $PM_{2.5}$ 가 가장 높았지만, 평균 풍속이  $0.78 \text{ m/s}$ 로 매우 낮았던 15년 가을과 국내 기여도가 전체적으로 높게 유지되었던 14년 봄에는 중국 기여도가 높은 후반에  $PM_{2.5}$ 가 가장 높았다.

내륙 도시의 경우,  $PM_{2.5}$ 가 낮을 때는 질산염이 황산염보다 높았으나  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  이상일 때는 황산염의 증가폭이 질산염보다 컸다. 13년 겨울 유일하게 질산

염의 증가폭이 컸는데, 14년 겨울에 비하여 기온이 낮고 상대습도가 높아 질산염이 입자상에 머무르기 유리한 조건이었다. 황산염은 언제나  $PM_{2.5}$ 보다 증가폭이 커서  $PM_{2.5}$  증가에 따라 농축되는 모습이었다. 중국의 기여도가 높을 때  $PM_{2.5}$ 가 주로 상승한 까닭에  $PM_{2.5}$ 가 높을 때와 같이 중국의 기여도가 50% 이상일 때도 황산염이 증가하였고,  $PM_{2.5}$ 보다 증가폭이 커서 농축되었다. 황산염만큼은 아니어도 사례에 따라,  $PM_{2.5}$ 가 높을 때는 질산염이, 중국의 기여도가 높을 때는  $K^+$ 가 농축되는 현상이 관찰되었다.

황산염과 질산염의 변화가 유사한 경우도 많지만 황산염은 장거리 이동, 질산염은 국내 배출의 영향을 대변하는 것이 보통이므로 둘의 차이를 극대화하기 위하여 SN 차이를 살펴보았다. 중국의 영향이 큰 반면 자체 배출이 적은 백령도는 대부분의 사례에서 큰 양의 값이었다. 내륙 도시는 사례별, 날짜별로 중국의 기여도와 함께 황산염이 높을 때는 양, 국내 기여도와 함께 질산염이 높을 때는 음이 되어 중국과 국내 배출의 영향을 구분할 만하였다.

고농도 발생에서 중요한 중국으로부터 오염물질 유입은 대부분 이동성 고기압의 발달 및 이동과 연관되었다. 중국 남부에서 고기압이 발달하며 북중국 평원 지역에 오염물질이 적체되고, 고기압이 동진하며 오염물질이 황해를 통과하여 한반도로 유입되었고, 이후 고기압이 한반도에 위치하며 국외 영향과 더불어 국내 영향이 커지면서 고농도가 발생하였다. 14년 겨울에는 고기압이 서서히 이동하며 중국의 기여도가 증가하면서  $PM_{2.5}$ 가 상승하였고, 국내 정체 상태에서  $PM_{2.5}$ 가 최고가 된 후, 남해상의 저기압이 중국으로부터 유입을 저해하며  $PM_{2.5}$ 가 감소하였다. 13년 겨울에는 이동성 고기압의 발달과 이동이 빠른 주기로 반복되었는데, 사례 초기  $PM_{2.5}$ 가 최고가 된 후에도 일본 남부로 북동진하는 열대성 저기압에 의한 기류변화가 한반도 인근에서 오염물질의 적체와 수송을 반복하며 오염이 지속되었다.

15년 가을에는 중국 북부부터 일본 동쪽까지 이어진 대상 고기압의 영향으로 사례 기간 서쪽 내륙 도

시의 평균 풍속이 매우 낮아 대기 정체가 이어진 한편, 이동성 고기압의 영향으로 중국 오염물질의 영향이 함께 나타났으며, 14년 봄에는 사례 초반 정체 조건 아래에서 국내 기여도가 높았으나 후반에는 이동성 고기압이 빠르게 통과하여 중국의 기여도가 높아지며 PM<sub>2.5</sub>가 상승하였다. 앞선 사례들과 달리 13년 여름에는 북태평양 고기압과 한반도 북쪽을 지나는 저기압으로 대표되는 전형적인 남고북저형의 여름철 기압배치 조건에서 중국으로부터 한반도 남부지방으로 오염물질 유입이 반복되었다.

2013~2016년을 대상으로 한 이번 연구 사례의 고농도 상승에서는 대부분 중국의 기여도가 클 때 황산염의 상승이 두드러졌다. 그러나 2013~2016년은 중국에서 SO<sub>x</sub> 배출 감소가 본격화함과 동시에 NO<sub>x</sub> 배출 감소가 시작된 시기이다(Si *et al.*, 2019; Zheng *et al.*, 2018; Zhang *et al.*, 2017). SO<sub>x</sub>와 NO<sub>x</sub> 배출이 감소되며 각각 SO<sub>2</sub>와 NO<sub>2</sub> 농도가 감소되었으나 황산염 모늄과 질산염모늄 생성이 줄며 암모니아 농도가 증가되었다(Lachatre *et al.*, 2019). 산성기체 대비 암모니아의 양이 중요하지만 암모니아가 충분히 과잉이 아니라면, 암모니아 농도 증가는 질산염모늄 생성을 촉진시킬 수 있다. 이번 연구의 결과에도 불구하고 향후 연구에서는 국내 생성뿐 아니라 장거리 유입에서도 질산염의 역할이 커질 수 있어 유의가 필요하다.

## 감사의 글

이 연구는 2017년도 정부(과학기술정보통신부, 환경부, 보건복지부) 재원 한국연구재단-미세먼지 국가전략프로젝트사업(2017M3D8A1092015)과 한국외국어대학교 교내학술연구비 지원으로 수행되었습니다.

## References

Bae, C., Kim, E., Kim, B.-U., Kim, H.C., Woo, J.-H., Moon, K.-J.,

Shin, H.-J., Song, I.H., Kim, S. (2017) Impact of emission inventory choices on PM<sub>10</sub> forecast accuracy and contributions in the Seoul metropolitan area, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(5), 497-514, (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2017.33.5497>.

Benjey, W.G., Houyoux, M.R., Susick, J.W. (2001) Implementation of the SMOKE emission data processor and SMOKE tool input data processor in Models-3, <https://www3.epa.gov/ttnchie1/conference/ei10/modeling/benjey2.pdf> (accessed July 2019).

Boylan, J.W., Russell, A.G. (2006) PM and light extinction model performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air quality models, *Atmospheric Environment*, 40, 4946-4959, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.09.087>.

Burr, M.J., Zhang, Y. (2011) Source apportionment of fine particulate matter over the Eastern U.S. Part I: source sensitivity simulations using CMAQ with the Brute Force method, *Atmospheric Pollution Research*, 2(3), 300-317, <https://doi.org/10.5094/APR.2011.036>.

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

Cheng, Y., Zheng, G., Wei, C., Mu, Q., Zheng, B., Wang, Z., Gao, M., Zhang, Q., He, K., Carmichael, G.R., Pöschl, U., Su, H. (2016) Reactive nitrogen chemistry in aerosol water as a source of sulfate during haze events in China, *Science Advances*, 2(12), e1601530, <https://doi.org/10.1126/sciadv.1601530>.

Clappier, A., Belis, C.A., Pernigotti, D., Thunis, P. (2017) Source apportionment and sensitivity analysis: two methodologies with two different purposes, *Geoscientific Model Development*, 10(11), 4245-4256, <https://doi.org/10.5194/gmd-10-4245-2017>.

Dee, D.P., Uppala, S.M., Simmons, A.J., Berrisford, P., Poli, P., Kobayashi, S., Andrae, U., Balmaseda, M.A., Balsamo, G., Bauer, P., Bechtold, P., Beljaars, A.C.M., van de Berg, L., Bidlot, J., Bormann, N., Delsol, C., Dragani, R., Fuentes, M., Geer, A.J., Haimberger, L., Healy, S.B., Hersbach, H., Hólm, E.V., Isaksen, I., Kållberg, P., Kohler, M., Matricardi, M., McNally, A.P., Monge-Sanz, B.M., Morcrette, J.-J., Park, B.-K., Peubey, C., de Rosnay, P., Tavolato, C., Thépaut, J.-N., Vitart, F. (2011) The ERA-Interim reanalysis: configuration and performance of the



- data assimilation system, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 137, 553-597, <https://doi.org/10.1002/qj.828>.
- Draxler, R., Stunder, B., Rolph, G., Stein, A., Taylor, A. (2018) HYSPLIT4 user's guide, [http://www.arl.noaa.gov/documents/reports/hysplit\\_user\\_guide.pdf](http://www.arl.noaa.gov/documents/reports/hysplit_user_guide.pdf) (accessed July 2019).
- Fu, H., Chen, J. (2017) Formation, features and controlling strategies of severe haze-fog pollutions in China, *Science of the Total Environment*, 578, 121-138, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.10.201>.
- Ghim, Y.S., Kim, J.Y., Chang, Y.-S. (2017) Concentration variations in particulate matter in Seoul associated with Asian dust and smog episodes, *Aerosol and Air Quality Research*, 17, 3128-3140, <https://doi.org/10.4209/aaqr.2016.09.0414>.
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P.I., Geron, C. (2006) Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(11), 3181-3210, <https://doi.org/10.5194/acp-6-3181-2006>.
- Huang, R.J., Zhang, Y., Bozzetti, C., Ho, K.-F., Cao, J.-J., Han, Y., Daellenbach, K.R., Slowik, J.G., Platt, S.M., Canonaco, F., Zotter, P., Wolf, R., Pieber, S.M., Bruns, E.A., Crippa, M., Ciarelli, G., Piazzalunga, A., Schwikowski, M., Abbaszade, G., Schnelle-Kreis, J., Zimmermann, R., An, Z., Szidat, S., Baltensperger, U., Haddad, I.E., Prévôt, A.S.H. (2014) High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China, *Nature*, 514(7521), 218-222, <https://doi.org/10.1038/nature13774>.
- Itahashi, S., Hayami, H., Uno, I. (2015) Comprehensive study of emission source contributions for tropospheric ozone formation over East Asia, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 120(1), 331-358, <https://doi.org/10.1002/2014JD022117>.
- Ji, D., Li, L., Wang, Y., Zhang, J., Cheng, M., Sun, Y., Liu, Z., Wang, L., Tnag, G., Hu, B., Wen, T., Miao, H. (2014) The heaviest particulate air-pollution episodes occurred in northern China in January, 2013: Insights gained from observation, *Atmospheric Environment*, 92, 546-556, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.04.048>.
- Ju, H., Kim, H.C., Kim, B.U., Ghim, Y.S., Shin, H.J., Kim, S. (2018) Long-term trend analysis of key criteria air pollutants over air quality control regions in South Korea using observation data and air quality simulation, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(1), 101-119 (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.1.101>.
- Jung, J., Lyu, Y., Lee, M., Hwang, T., Lee, S., Oh, S. (2016) Impact of Siberian Forest Fires on the Atmosphere over the Korean Peninsula during Summer 2014, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16, 6757-6770, <https://doi.org/10.5194/acp-16-6757-2016>.
- Jung, J., Ghim, Y.S., Lyu, Y.S., Lim, Y.-j., Park, J., Sung, M.-y. (2019) Quantification of regional contributions to fine particles at downwind areas under Asian continental outflows during winter 2014, *Atmospheric Environment*, 210, 231-240, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.04.062>.
- Kim, B.M., Seo, J., Kim, J.Y., Lee, J.Y., Kim, Y. (2016a) Transported vs. local contributions from secondary and biomass burning sources to PM<sub>2.5</sub>, *Atmospheric Environment*, 144, 24-36, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.08.072>.
- Kim, B.-U., Bae, C., Kim, H.C., Kim, E., Kim, S. (2017a) Spatially and chemically resolved source apportionment analysis: Case study of high particulate matter event, *Atmospheric Environment*, 162, 55-70, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.05.006>.
- Kim, H.C., Kim, S., Son, S.W., Lee, P., Jin, C.S., Kim, E., Kim, B.-U., Ngan, F., Bae, C., Song, C.-K., Stein, A. (2016b) Synoptic perspectives on pollutant transport patterns observed by satellites over East Asia: Case studies with a conceptual model, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, <https://doi.org/10.5194/acp-2016-673>.
- Kim, H.C., Kim, E., Bae, C., Cho, J.H., Kim, B.U., Kim, S. (2017b) Regional contributions to particulate matter concentration in the Seoul metropolitan area, South Korea: seasonal variation and sensitivity to meteorology and emissions inventory, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(17), 10315-10332, <https://doi.org/10.5194/acp-17-10315-2017>.
- Kim, J.-H., Choi, D.-R., Koo, Y.-S., Lee, J.-B., Park, H.-J. (2016c) Analysis of domestic and foreign contributions using DDM in CMAQ during particulate matter episode period of February 2014 in Seoul, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 32(1), 82-99, (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2016.32.1.082>.
- Koo, B., Wilson, G.M., Morris, R.E., Dunker, A.M., Yarwood, G. (2009) Comparison of source apportionment and sensitivity analysis in a particulate matter air quality model, *Environmental Science & Technology*, 43(17), 6669-6675, <https://doi.org/10.1021/es9008129>.

- Koo, Y.-S., Yun, H.-Y., Choi, D.-R., Han, J.-S., Lee, J.-B., Lim, Y.-J. (2018) An analysis of chemical and meteorological characteristics of haze events in the Seoul metropolitan area during January 12-18, 2013, *Atmospheric Environment*, 178, 87-100, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.01.037>.
- Lachatre, M., Fortems-Cheiney, A., Foret, G., Siour, G., Dufour, G., Clarisse, L., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Van Damme, M., Beekmann, M. (2019) The unintended consequence of SO<sub>2</sub> and NO<sub>2</sub> regulations over China: increase of ammonia levels and impact on PM<sub>2.5</sub> concentrations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(10), 6701-6716, <https://doi.org/10.5194/acp-19-6701-2019>.
- Lee, Y.-J., Jung, S.-A., Jo, M.-R., Kim, S.-J., Park, M.-K., Ahn, J.-Y., Lyu, Y.-S., Choi, W.-J., Hong, Y.-d., Lim, J.-H. (2014) Characteristics of PM chemical component during haze episode and Asian dust at Gwang-ju, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 30(5), 434-448 (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2014.30.5.434>.
- Li, L., Tan, Q., Zhang, Y., Feng, M., Qu, Y., An, J., Liu, X. (2017a) Characteristics and source apportionment of PM<sub>2.5</sub> during persistent extreme haze events in Chengdu, southwest China, *Environmental Pollution*, 230, 718-729, <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2017.07.029>.
- Li, M., Zhang, Q., Kurokawa, J.-i., Woo, J.-H., He, K.B., Lu, Z., Ohara, T., Song, Y., Streets, D.G., Carmichael, G.R., Cheng, Y., Hong, C., Huo, H., Jiang, X., Kang, S., Liu, F., Su, H., Zheng, B. (2017b) MIX: a mosaic Asian anthropogenic emission inventory under the international collaboration framework of the MICS-Asia and HTAP, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(2), 935-963, <https://doi.org/10.5194/acp-17-935-2017>.
- Liu, F., Zhang, Q., Tong, D., Zheng, B., Li, M., Huo, H., He, K.B. (2015) High-resolution inventory of technologies, activities, and emissions of coal-fired power plants in China from 1990 to 2010, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(23), 13299-13317, <https://doi.org/10.5194/acp-15-13299-2015>.
- Lu, Z., Streets, D.G., Zhang, Q., Wang, S., Carmichael, G.R., Cheng, Y.F., Wei, C., Chin, M., Diel, T., Tan, Q. (2010) Sulfur dioxide emissions in China and sulfur trends in East Asia since 2000, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(13), 6311-6331, <https://doi.org/10.5194/acp-10-6311-2010>.
- NARSTO (2004) Particulate Matter Science for Policy Makers: A NARSTO Assessment. P. McMurry, M. Shepherd, and J. Vickery, eds. Cambridge University Press, Cambridge, England.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2014) Annual Report of Air Quality in Korea, NIER-GP 2014-157.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2018) 2017 Annual Report of Intensive Air Quality Monitoring Station, NIER-GP2018-31.
- Seo, J., Kim, J.Y., Youn, D., Lee, J.Y., Kim, H., Lim, Y.B., Kim, Y., Jin, H.C. (2017) On the multiday haze in the Asian continental outflow: the important role of synoptic conditions combined with regional and local sources, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(15), 9311-9332, <https://doi.org/10.5194/acp-17-9311-2017>.
- Shao, P., Tian, H., Sun, Y., Liu, H., Wu, B., Liu, S., Liu, X., Wu, Y., Liang, W., Wang, Y., Gao, J., Xue, Y., Bai, X., Liu, W., Lin, S., Hu, G. (2018) Characterizing remarkable changes of severe haze events and chemical compositions in multi-size airborne particles (PM<sub>1</sub>, PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub>) from January 2013 to 2016-2017 winter in Beijing, China, *Atmospheric Environment*, 189, 133-144, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.06.038>.
- Shi, G., Xu, J., Peng, X., Xiao, Z., Chen, K., Tian, Y., Guan, X., Feng, Y., Yu, H., Nenes, A., Russell, A.G. (2017) pH of aerosols in a polluted atmosphere: source contributions to highly acidic aerosol, *Environmental Science & Technology*, 51(8), 4289-4296, <https://doi.org/10.1021/acs.est.6b05736>.
- Si, Y., Yu, C., Zhang, L., Zhu, W., Cai, K., Cheng, L., Chen, L., Li, S. (2019) Assessment of satellite-estimated near-surface sulfate and nitrate concentrations and their precursor emissions over China from 2006 to 2014, *Science of the Total Environment*, 669, 362-376, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.02.180>.
- Skamarock, W.C., Klemp, J.B. (2008) A time-split nonhydrostatic atmospheric model for weather research and forecasting applications, *Journal of Computational Physics*, 227, 3465-3485, <https://doi.org/10.1016/j.jcp.2007.01.037>.
- Tan, T., Hu, M., Li, M., Guo, Q., Wu, Y., Fang, X., Gu, F., Wang, Y., Wu, Z. (2018) New insight into PM<sub>2.5</sub> pollution patterns in Beijing based on one-year measurement of chemical compositions, *Science of the Total Environment*, 621, 734-743, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.11.208>.
- Tian, S., Pan, Y., Liu, Z., Wen, T., Wang, Y. (2014) Size-resolved aerosol chemical analysis of extreme haze pollution events during early 2013 in urban Beijing, China, *Journal of Hazardous Materials*, 279, 452-460, <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2014.07.023>.

- Wang, J., Wang, S., Jiang, J., Ding, A., Zheng, M., Zhao, B., Wong, D.C., Zhou, W., Zheng, G., Wang, L., Pleim, J.E., Hao, J. (2014a) Impact of aerosol-meteorology interactions on fine particle pollution during China's severe haze episode in January 2013, *Environmental Research Letters*, 9(9), 094002, <https://doi.org/10.1088/1748-9326/9/9/094002>.
- Wang, L.T., Wei, Z., Yang, J., Zhang, Y., Zhang, F.F., Su, J., Meng, C.C., Zhang, Q. (2014b) The 2013 severe haze over the southern Hebei, China: model evaluation, source apportionment, and policy implications, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 3151-3173, <https://doi.org/10.5194/acp-14-3151-2014>.
- Watson, J.G., Robinson, N.F., Fujita, E.M., Chow, J.C., Pace, T.G., Lewis, C., Coulter, T. (1998) CMB8 Application and Validation Protocol for PM<sub>2.5</sub> and VOCs. Document Number 1808-2 D1, Desert Research Institute, U.S, Environment Protection Agency.
- Yu, G.-H., Park, S.S., Ghim, Y.S., Shin, H.J., Lim, C.S., Ban, S.J., Yu, J.A., Kang, H.J., Seo, Y.K., Kang, K.S., Jo, M.R., Jung, S.A., Lee, M.H., Hwang, T.K., Kang, B.C., Kim, H.S. (2018a) Difference in chemical composition of PM<sub>2.5</sub> and investigation of its causing factors between 2013 and 2015 in air pollution intensive monitoring stations, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(1), 16-37 (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.1.016>.
- Yu, G.-H., Park, S.-S., Park, J.S., Park, S.M., Song, I.H., Oh, J., Shin, H.J., Lee, M.D., Lim, H.B., Kim, H.W., Choi, J.Y. (2018b) Pollution characteristics of PM<sub>2.5</sub> observed during winter and summer in Baengryeongdo and Seoul, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(1), 38-55, (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.1.038>.
- Yu, G.-H., Park, S.-S., Jung, S.A., Jo, M.R., Lim, Y.J., Shin, H.J., Lee, S.B., Ghim, Y.S. (2018c) Investigation on characteristics of high PM<sub>2.5</sub> pollution occurred during October 2015 in Gwangju, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(4), 567-587, (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.4.567>.
- Yu, G.-H., Lee, B.-J., Park, S.-S., Jung, S.A., Jo, M.R., Lim, Y.J., Kim, S. (2019) A case study of severe PM<sub>2.5</sub> event in the Gwangju urban area during February 2014, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 35(2), 195-213, (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2019.35.2.195>.
- Zhang, L., Lee, C.S., Zhang, R., Chen, L. (2017) Spatial and temporal evaluation of long term trend (2005-2014) of OMI retrieved NO<sub>2</sub> and SO<sub>2</sub> concentrations in Henan Province, China, *Atmospheric Environment*, 154, 151-166, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.11.067>.
- Zheng, B., Tong, D., Li, M., Liu, F., Hong, C., Geng, G., Li, H., Peng, L., Qi, J., Yan, L., Zhang, Y., Zhao, H., Zheng, Y., He, K., Zhang, Q. (2018) Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(19), 14095-14111, <https://doi.org/10.5194/acp-18-14095-2018>.

## Authors Information

- 김영성 (한국외국어대학교 환경학과 교수)  
 최용주 (한국외국어대학교 환경학과 박사후 연구원)  
 박지수 (한국외국어대학교 환경학과 박사과정 학생)  
 김순태 (아주대학교 환경안전공학과 교수)  
 배창한 (아주대학교 환경안전공학과 박사과정 학생)  
 서지훈 (한국과학기술연구원 환경복지연구센터 연구원)  
 신혜정 (국립환경과학원 대기환경연구과 연구관)  
 임용재 (국립환경과학원 대기환경연구과 연구사)  
 유영숙 (환경부 한중협력센터 연구관)  
 이영재 (국립환경과학원 영산강물환경연구소 연구관)