

논문

대기질 모사를 통한 CAPSS 2016 배출목록의 시도별 NO_x 및 SO₂ 배출량 검토

Evaluation on Provincial NO_x and SO₂ Emissions in CAPSS 2016 Based on Photochemical Model Simulation

김옥길, 배민아, 김순태*
아주대학교 환경안전공학과

Okgil Kim, Minah Bae, Soontae Kim*
Department of Environmental & Safety Engineering, Ajou University, Suwon,
Republic of Korea

접수일 2019년 12월 7일
수정일 2020년 1월 7일
채택일 2020년 1월 21일

Received 7 December 2019
Revised 7 January 2020
Accepted 21 January 2020

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

Abstract We evaluated the nation-wide anthropogenic NO_x and SO₂ emissions in the Korean National Emissions Inventory, named the Clean Air Policy Support System 2016, based on three-dimensional air quality model simulation. The air quality modeling system comprised of WRF (Weather Research and Forecasting), SMOKE (Sparse Matrix Operator Kernel Emissions), CMAQ (Community Multiscale Air Quality) predicted NO₂ and SO₂ levels at a 9-km horizontal grid resolution during 2016. Normalized mean biases of simulated provincial annual mean NO₂ and SO₂ concentrations ranged from -41.2~11.4%, and -46.7%~133.1%, respectively. Over-prediction of the annual mean NO₂ concentrations were observed mostly from metropolitan areas such as Seoul (10%), Incheon (11%), and Busan (11%). The NO₂ level in Gangwon was significantly under-estimated by -41%. Annual mean SO₂ concentrations were over-predicted in Ulsan, Chungnam, and Jeonnam by 118%, 133%, and 46% in which point source emissions amount to ~70% of the provincial totals. It is noted that temporal allocation of the bottom-up emissions is associated with the model biases of monthly mean NO₂ and SO₂ concentrations. When the bottom-up emissions are revised based on the ratios between the observed and modeled concentrations for each province, the national total emissions have increased by 14% for NO_x and decreased by 18% for SO₂ for the year.

Key words: NO_x, SO₂, CAPSS 2016, Provincial emissions, CMAQ

1. 서론

최근 많은 관심이 모아지고 있는 대기 중 초미세먼지 농도는 1차적인 배출과 질산염, 황산염 등 2차적인 생성에 의해 결정된다(Huang *et al.*, 2019; Kim *et al.*, 2018b; Han and Kim, 2015). 이에 따라 국내에서 시행된 미세먼지 관련 대기질 관리 대책은 전구물질 및 1차 미세먼지 배출량 저감에 중점을 두어왔다(MOE, 2019, 2015, 2013). 하지만, 초미세먼지를 비롯한 2차 대기오염물질은 배출과 이류 및 확산, 생성과

소멸 등 대기 중 거동에 의해 농도가 변화하며, 배출과 농도 관계에서 비선형성을 보인다(Kim *et al.*, 2017b; Zhang *et al.*, 2012). 이와는 별개로 대기질 개선 계획의 효과 분석을 위해서는 세부 대책별 배출량 삭감에 따른 농도 변화가 추정되어야 하며, 향후 투자 재원의 효율성 평가를 위해서는 대책별 비용-편익 분석 평가 또한 필요하다(Kim *et al.*, 2017a; Shi *et al.*, 2017; Gao *et al.*, 2016; US EPA, 2011). 이러한 일련의 과정에서 배출 자료는 대기질 개선 대책 수립의 밑바탕이 되는 동시에 대책에 따른 삭감량 결정에 있어

기초 자료가 되며 (US EPA, 2019), 배출과 대기질 현황을 설명할 수 있어야 한다. 대기질 모사는 1차 오염물질과 2차 대기오염물질 농도를 예측할 수 있는 장점이 있으며 대기질 현황 분석과 미래 예측에 이용된다 (U.S. EPA, 2011), 기상 및 배출량 입력자료에 따라 예측 농도가 달라지므로 이에 대한 불확도 평가와 개선이 선행되어야 한다.

배출량과 농도 간 관계를 정량적으로 설명하는 것은 앞서 언급한 복잡성으로 인해 쉽지 않다 (Bae *et al.*, 2018; Kim *et al.*, 2017a; Zhao *et al.*, 2017; Lee *et al.*, 2006). 기존 연구를 살펴보면, 배출량과 농도의 상관성을 분석하기 위하여 대기질 모사 농도와 관측 농도를 비교하여 현재 이용되는 배출목록이 얼마나 현실적인지를 평가하였다 (Bae *et al.*, 2019; Kim *et al.*, 2017a; Kim *et al.*, 2017c). 이에 대해 초미세먼지 농도 개선과 관련된 국내 대기질 대책을 중심으로 보다 자세히 살펴보면, 수도권 대기환경 개선에 관한 특별법, 대기환경규제지역 관리 등에서는 특정 지역에 대한 배출량 저감을 목표로 구체적인 이행 및 시행 계획의 세부 대책들이 마련되었다 (MOE, 2015, 2013). 한편, 최근 수립되고 있는 미세먼지 관리 종합계획과 대기질 권역 관리 제도는 일부 지역에 국한되지 않고 배출에 따른 영향 범위를 고려하여 전국적이고 광역적인 대책들을 마련하고 있다 (MOE, 2019). 이러한 대책 마련 시에도 국가 배출목록인 CAPSS (Clean Air Policy Support System)를 사용한다 (Kim *et al.*, 2018a; Lee *et al.*, 2011). 특히, 향후 대기질 개선 대책이 전국 또는 권역 범위에서 수립될 것을 감안하면, 현재 이용되고 있는 대기질 국가 배출목록에 대한 비 수도권 지역에서의 정성적, 정량적 검토가 필요하다. 더욱이 선행연구를 통해 검토되어 온 배출량 자료가 과거 기간에 대한 것으로, 지속적으로 배포되는 국내 배출목록의 주기적인 평가가 필요하다.

본 연구에서는 이러한 국가 배출목록의 국내 전 지역에 대한 검토를 위해 대기질 모사를 수행하고 광역 지자체별로 질소산화물 (NO_x)과 황산화물 (SO₂)의 관측과 모사 농도를 비교한다. 이들 물질은 초미세먼

지의 전구물질이며, 현재 강구되고 있는 국내 대기질 개선 계획에서의 주된 대상 물질이기도 하다. 대기질 모사는 3차원 광화학 모델을 이용하며, 2016년을 대상으로 1년에 걸친 시도별 편차와 계절 변화, 주요 오염원, 개선 방안 등에 대해 논의한다.

2. 연구 방법

2.1 기상, 배출량 및 대기질 모사

본 연구에서는 중국 등 국외 풍상 배출 영향을 고려하기 위하여 27 km 수평 격자 해상도의 모사 영역을 구성하였으며, 이는 중국 동·북부, 북한, 일본 등을 포함한다 (그림 1). 국내 지역에 대한 상세 분석을 위해 남한과 북한 일부가 포함되도록 9 km 수평 격자 해상도로 모사 영역을 설정하였으며, 본 영역의 경계 조건은 27 km 대상 영역의 모사 결과로부터 마련하였다.

기상자료는 WRF (Weather Research and Forecasting; Skamarock and Klemp, 2008) v3.4.1을 사용하여 마련하였다. 도출된 기상 모사 결과는 MCIP (Meteorology-Chemistry Interface Processor) v3.6 처리를 통해 대기질 모사와 점 오염원의 배출량 수직 할당 및 자연 배출량 산정에 이용하였다. 기상 초기장으로 NCEP-FNL (National Centers for Environmental Prediction-Final)을 이용하여 2016년 366일에 대한 모사를 수행하였으며, pre-run 기간은 10일이다.

인위적 배출량 준비를 위한 배출목록은 국내 지역에 대해 CAPSS 2016 (NIER, 2019)을 이용하였으며 국외 지역에 대해서는 CREATE (Comprehensive Regional Emissions inventory for Atmospheric Transport Experiment; Woo *et al.*, 2018) 2015를 사용하였다. SMOKE (Sparse Matrix Operator Kernel Emissions; Benjey *et al.*, 2001)를 통해 국내외 배출목록의 시공간 할당과 SAPRC99 (Statewide Air Pollution Research Center, Version 99; Carter, 1999) 화학 메커니즘에 대한 화학 종을 분류하였다. 자연 휘발성 유

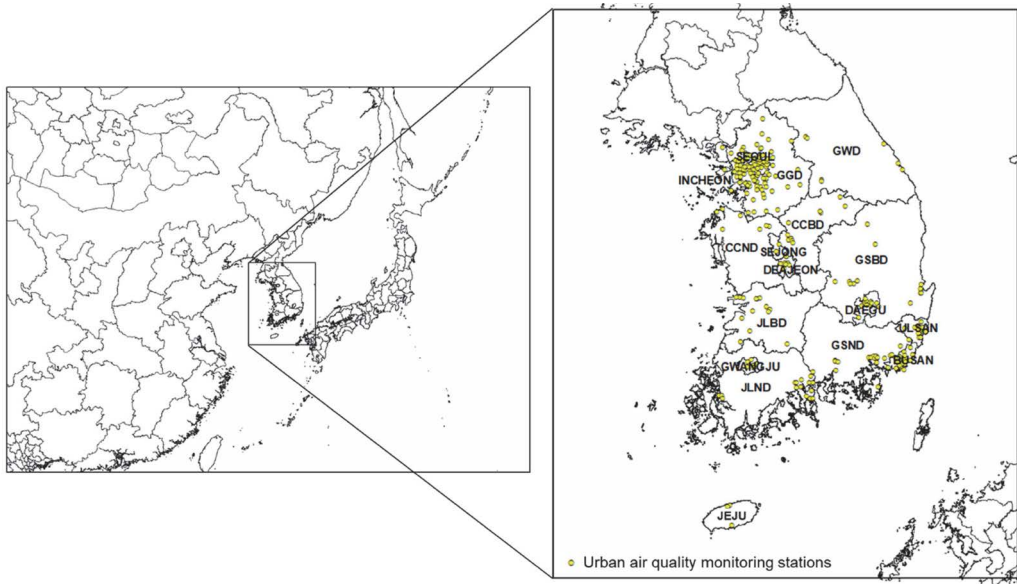


Fig. 1. Modeling domains at horizontal grid resolutions of 27-km (left) and 9-km (right). Yellow circles symbolize urban air quality monitoring stations in the targeted region.

Table 1. WRF and CMAQ configurations used in this study.

WRF	Option	CMAQ	Option
Version	3.4.1	Version	4.7.1
Global MET inputs	FNL	Chemical mechanism and Aerosol module	SAPRC99, AEROS
Micro physics	WSM6	Boundary Condition	Profile for 27 km, Nest down from 27 km for 9 km
Short wave radiation	Goddard	Advection scheme	YAMO scheme
Land-Surface Model	NOAH	Vertical Diffusion	Eddy scheme
PBL scheme	YSU	Cloud Scheme	ACM

기물질 배출량은 MEGAN (The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature, MEGAN; Guenther, 2006)을 통해 처리하였으며 산정된 인위적 배출량과 함께 병합하여 대기질 모사에 이용하였다. 대기질 모사는 CMAQ (Community Multiscale Air Quality; Byun and Schere, 2006) v 4.7.1 모델을 이용하였으며 에어로졸은 AEROS를 기반으로 대기질 농도를 도출하였다. 그 외, WRF 및 CMAQ 모사와 관련된 상세 옵션은 표 1에 정리하였다.

2.2 시도별 배출목록 검토 방법

현재 (2019년 11월 기준) 국립환경과학원으로부터 공개된 가장 최신의 국가 배출목록은 2016년 자료이며, 해당 배출목록을 이용하여 시도별 배출량을 검토하였다. 본 연구에서는 국내 인위적 배출량 중 많은 부분을 차지하고, 1차와 2차 대기오염물질에 모두 영향을 미치는 NO_x , SO_2 배출량에 초점을 맞추었다. 관측 농도와 모사 농도를 비교하여 간접적으로 NO_x , SO_2 배출량을 검토하였으며, 시도별 연간 배출량과 연평균 농도를 기반으로 배출량 수정 범위를 정량적

으로 제시하였다. 또한 대기질 모사에서 과대 및 과소 모사하는 지역에 대한 원인을 검토하고자 점, 선, 면 배출원을 구분하여 주요 배출원을 살펴보았다.

배출량과 대기질 농도 평가는 특별시(1), 특별자치시(1), 광역시(6), 도(9)를 포함한 17개 시도에 대해 수행하였다. 국내는 광역 지자체의 지형적, 지역적 특징이 다르고 계절에 따라 PM_{2.5} 농도 변화를 보이므로, 농도와 배출량의 지역적 분포 및 월별 변화를 분석에 포함하였다. 분석에 사용된 관측 농도는 도시대기측정망 자료를 이용하였다.

3. 결 과

3.1 기상 모사 검증

기상 모사의 검증을 위해 주요 변수에 대한 관측값과 모사값을 비교하였다. 기상 관측은 기상청에서 제공하는 ASOS (Automated Synoptic Observing System) 자료를 사용하였다. 그림 2는 서울에 대한 기상 모사 비교로 일 평균 2 m 기온에 대한 관측과 모사의 상관관계수(R)는 1.0이며, 편차는 -0.8°C 이다. 강수는 여름철에 주로 집중되며, 기간 평균 관측에 비해 모사된 강수량은 20~30% 낮다. 또한 기간 평균 모사된 10 m 풍속은 관측에 비해 -0.1 m/s 가량 낮다. 운량은 관측과 모사의 차이가 $-2.4(1/10)$ 로 과소 모사한다.

3.2 시도별 부문별 NO_x 및 SO₂ 배출량

CAPSS 배출목록의 배출원 구분은 유럽 CORINAIR에서의 분류체계(SNAP 97)를 따르며, 국내 현황에 맞추어 13개 대분류 체계로 재구성되어 있다. 배출량 산정 시 사용되는 배출계수의 경우, 유럽 CORINAIR과 미국 EPA의 배출계수를 참고하여 국내 실정이 반영된 배출계수를 수정하거나, 신규 개발하여 사용한다(NCFDI, 2020; Kim *et al.*, 2013).

CAPSS 2016 배출목록에서 전국 NO_x 배출량은 도로이동오염원 452,995 TPY (Tons Per Year) (36%), 비도로이동오염원 309,986 TPY (25%)으로, 이동 오염

원이 주요 배출원이다. 대기오염물질의 배출과 농도에 대한 상관 분석 시에는 자체 배출에 의한 영향 이외에 인접한 지역으로부터의 영향을 함께 반영해야 하는 점을 고려하여 그림 3과 같이 남한 전 지역에 대한 배출 분포를 우선 제시하였다. 그림 3에서 보면 NO_x 배출량은 도로 및 대도시에 집중되어 배출되며, 발전시설 및 대형 산업단지가 위치하고 있는 지역에서도 NO_x 배출이 높다. CAPSS 2015와 비교하여 CAPSS 2016에서는 국내 전체 NO_x 배출량이 8% (90,581 TPY) 증가했으며, 변화 폭은 제주 31% (4,396 TPY)가 가장 크고 인천이 -0.1% (71 TPY)로 가장 작다.

전국에 대한 부문별 SO₂ 배출량은 생산공정 112,734 TPY (31%), 에너지산업 연소 91,696 TPY (26%), 제조업 연소 86,593 TPY (24%) 순으로 크게 나타난다. 생산공정은 제철, 제강 및 석유제품 산업을 포함하며 충남 등 서해안과 남해안에서 SO₂ 배출이 높다. 또한 발전 등 에너지산업 연소와 시멘트 생산 등 제조업 연소 시설이 위치한 지역에서 SO₂ 배출량이 많다. 전국 SO₂ 배출량은 CAPSS 2015 대비 2% (6,659 TPY) 증가하며, 부문별 SO₂ 배출량 변화 폭이 가장 크게 나타난 부문은 비산업연소로 CAPSS 2015 대비 16% (4,721 TPY) 낮아진다.

CAPSS 2016 배출목록을 지역별로 살펴보면 NO_x 배출량은 경기, 충남, 경북 순으로 높으며, 세 지역 배출량의 합이 448,290 TPY로 전국 NO_x 배출량의 36%에 해당한다. NO_x 배출량 상위 지역에 대해 배출 부문별로 살펴보면 경기는 도로이동오염원이 57%를 차지하고, 이는 인구밀도가 높고 유동인구가 밀집한 지역적 특징에 의한 것으로 사료된다. 충남은 다수의 화력발전 포함 대형 점 오염원의 영향으로 에너지산업연소가 해당 지역 NO_x 배출량의 39%를 차지한다.

SO₂ 배출량의 경우, 상위 세 지역인 충남, 전남, 울산의 배출량 합이 193,228 TPY로 국내 전체 SO₂ 배출의 54%를 차지한다. 배출량 상위 지역의 부문별 SO₂ 배출량을 살펴보면, 충남에서는 에너지산업연소 (36%)와 생산공정 (36%)에서 주로 배출되고, 전남에

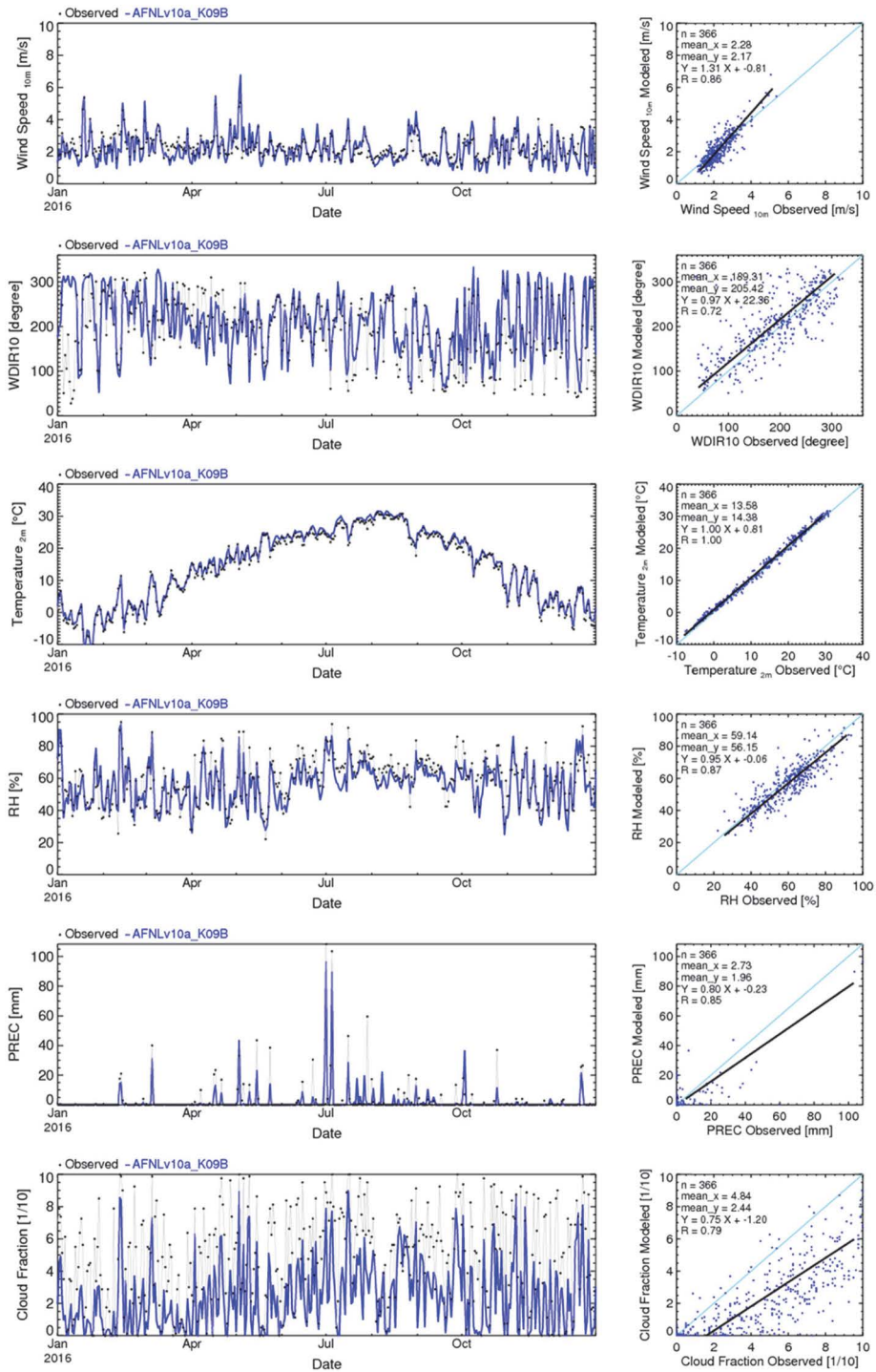


Fig. 2. Time series and scatter plots of daily 10 m-wind speed, 10 m-wind direction, 2 m-temperature, relative humidity, precipitation and cloud fraction at Seoul in 2016. Dot and line represent the observation and simulation, respectively.

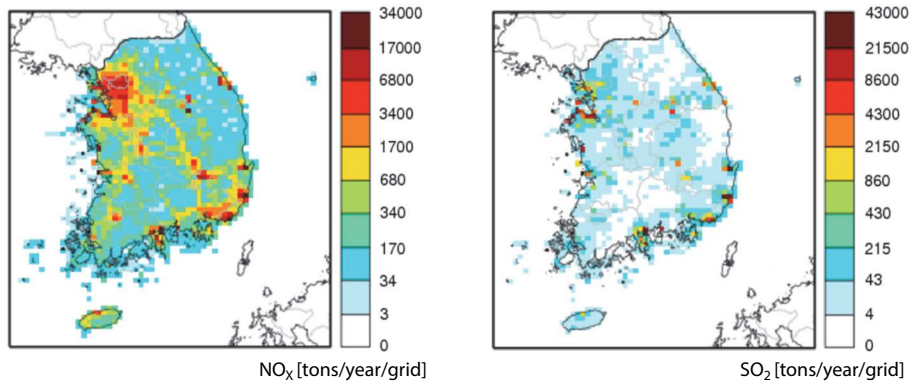


Fig. 3. Spatial distribution of simulated NO_x (left) and SO₂ (right) over South Korea based on the CAPSS 2016 emissions inventory.

Table 2. Provincial emission rates in South Korea based on the CAPSS 2016 emissions inventory. The brackets indicate the percentage of provincial emissions out of total emissions.

	NO _x		SO ₂	
	Emissions (TPY)	Emission density (TPY/km ²)	Emissions (TPY)	Emission density (TPY/km ²)
SEOUL	73,042 (5.9%)	120.7	4,039 (1.1%)	6.7
INCHEON	49,389 (4.0%)	46.5	12,368 (3.4%)	11.6
GGD ¹	203,655 (16.3%)	20.0	15,415 (4.3%)	1.5
GWD ²	83,500 (6.7%)	5.0	17,762 (4.9%)	1.1
DAEJEON	15,719 (1.3%)	29.1	854 (0.2%)	1.6
SEJONG	6,245 (0.5%)	13.4	148 (0.0%)	0.3
CCBD ³	73,029 (5.9%)	9.9	9,067 (2.5%)	1.2
CCND ⁴	134,889 (10.8%)	16.4	81,843 (22.8%)	9.9
GWANGJU	12,951 (1.0%)	25.8	351 (0.1%)	0.7
JLBD ⁵	40,858 (3.3%)	5.1	6,669 (1.9%)	0.8
JLND ⁶	105,776 (8.5%)	8.6	62,171 (17.3%)	5.0
BUSAN	49,468 (4.0%)	64.2	10,777 (3.0%)	14.0
DAEGU	30,110 (2.4%)	34.1	4,187 (1.2%)	4.7
ULSAN	51,223 (4.1%)	48.3	49,214 (13.7%)	46.4
GSBD ⁷	109,746 (8.8%)	5.8	39,361 (11.0%)	2.1
GSND ⁸	102,053 (8.2%)	9.7	30,914 (8.6%)	2.9
JJ ⁹	18,692 (1.5%)	10.1	2,106 (0.6%)	1.1
OCEAN (SHIP)	87,966 (7.0%)	—	11,704 (3.3%)	—
Total	1,248,309 (100.0%)	—	358,951 (100.0%)	—

¹Gyeonggi-do, ²Gangwon-do, ³Chungcheongbuk-do, ⁴Chungcheongnam-do, ⁵Jeollabuk-do, ⁶Jeollanam-do, ⁷Gyeongsangbuk-do, ⁸Gyeongsangnam-do, ⁹Jeju-do

서는 생산공정(48%)과 제조업 연소(22%), 울산은 생산공정(65%), 에너지산업연소(17%), 제조업 연소(9%) 순으로 많이 배출된다.

시도별 면적과 배출량의 분포를 비교하기 위하여

지자체별 면적 당 배출량을 배출 밀도로 정의하고 (KOSIS, 2018), 17개 시도의 배출 밀도를 표 2에 정리하였다. NO_x 배출 밀도는 서울이 120.7 TPY/km²로 가장 높으며, 그다음은 부산(64.2 TPY/km²), 울산

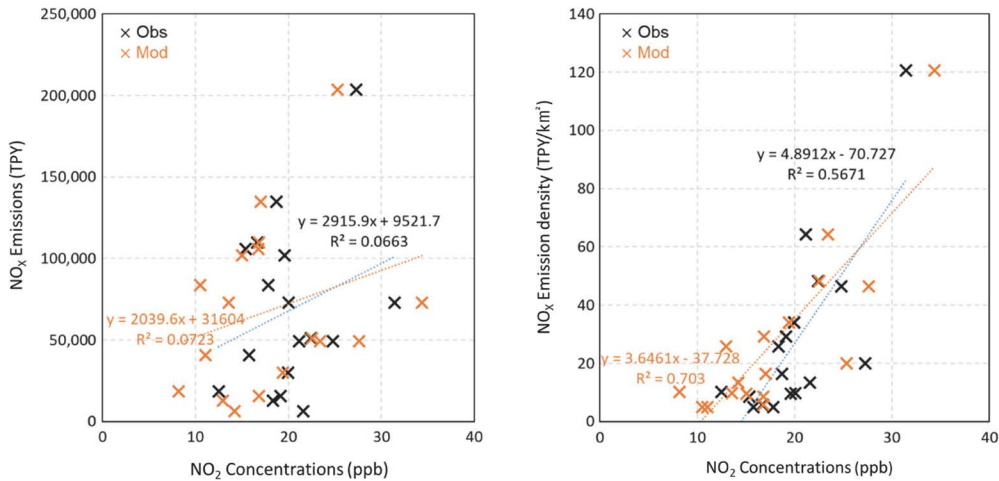


Fig. 4. Correlations of provincial annual mean NO_2 concentrations with the emission rates (left), and the emission densities (right) from the CAPSS 2016 emissions inventory. The observed and simulated NO_2 concentrations are used in the plots.

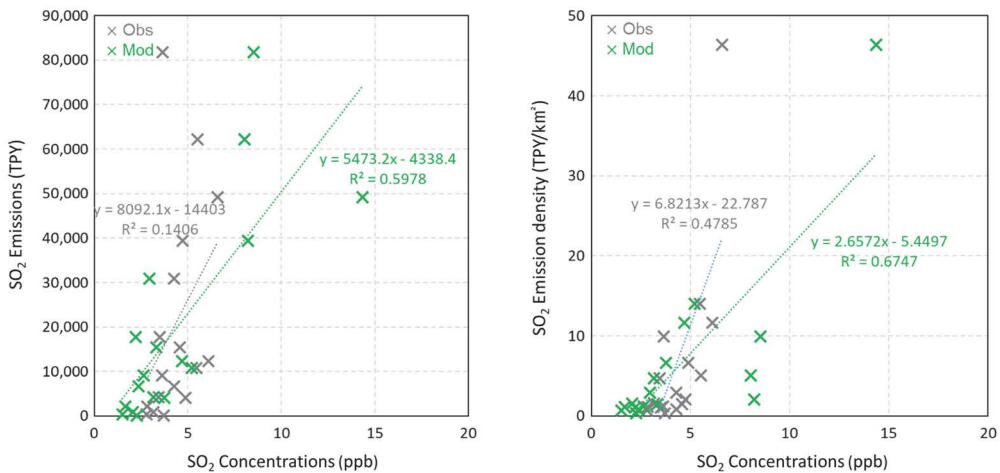


Fig. 5. Correlations of provincial annual mean SO_2 concentrations with the emission rates (left), and the emission densities (right) from the CAPSS 2016 emissions inventory. The observed and simulated SO_2 concentrations are used in the plots.

(48.3 TPY/ km^2), 인천 (46.5 TPY/ km^2) 순이다. 국내 NO_x 배출 밀도는 주로 대도시에서 높게 나타난다. SO_2 배출 밀도는 울산 (46.4 TPY/ km^2), 부산 (14.0 TPY/ km^2), 인천 (11.6 TPY/ km^2), 충남 (9.9 TPY/ km^2) 순으로 대도시나 산업 지역에서 주로 높게 나타난다. 다만, NO_x , SO_2 배출은 배출 지역 외에 주변 지역의 대기질에도 영향을 미치므로, 영향 범위에 대한 고려

가 필요하다. 그림 4와 5를 보면 NO_2 와 SO_2 에 대한 시도별 관측 및 모사 농도 모두 시도별 배출량보다는 배출 밀도와 높은 상관성(R)을 보인다.

본 연구에서는 대기질 모사 농도를 관측 농도와 비교하여 지역별 배출량을 검토하였다. 대기질 모사를 위한 배출량 준비 시에는 SMOKE 수행 과정에서 시군구별 배출량을 바탕으로 격자별 배출 밀도를 산정

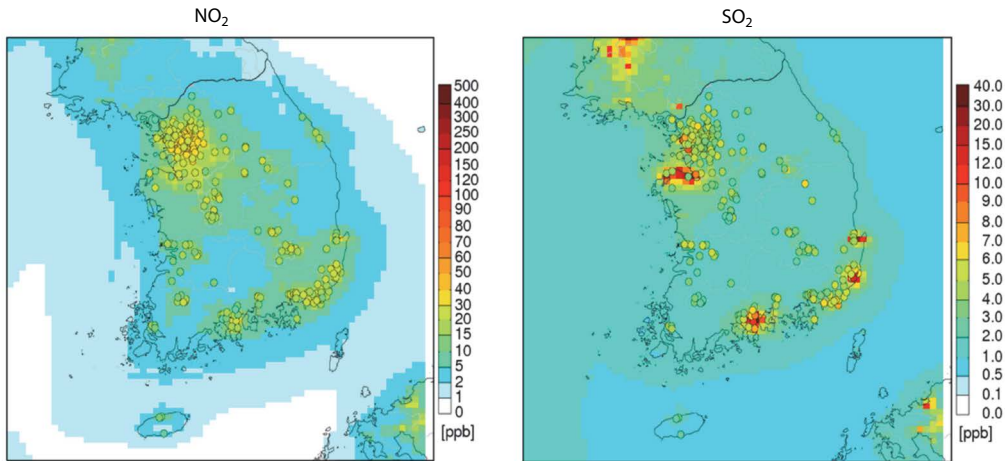


Fig. 6. Spatial distribution of annual average NO₂ (left) and SO₂ (right) during 2016. The circles represent location of urban air quality monitoring sites filled with observation concentrations.

한다(그림 3 참조). 본 연구에서는 배출목록 상의 시군구별 배출량을 격자별 배출 밀도로 전환한 후, 대기화학 모형을 통해 대기 중 농도로 환산하고 이를 관측자료와 비교하여 광역 지자체별 배출량을 평가하였다.

3.3 NO₂ 및 SO₂ 모사 검증

기준성 대기오염물질인 NO₂ 연간 배출량은 대도시 중심으로 높게 배출되며, SO₂ 연간 배출량은 산업시설이 위치한 지역에서 높게 배출된다(그림 3). 그림 6에 보이는 바와 같이 연평균 NO₂의 관측 및 모사 농도는 수도권, 부산, 울산 지역에서 20 ppb 이상으로 높게 나타난다. 연평균 SO₂ 농도는 화력발전 및 석유, 제철, 제강 산업이 위치한 충남, 포항, 울산, 광양만 부근에서 3~4 ppb 정도가 관측되는 반면, 모사 결과에서는 10 ppb 내외의 높은 농도가 나타난다. 전반적으로 NO_x 및 SO₂ 농도는 배출의 공간 분포와 유사하게 나타나나, SO₂ 농도는 NO₂ 농도에 비해 주요 배출 지역에서 국지적인 과대평가가 더욱 두드러진다.

전반적인 연간 배출량 수준을 평가하기 위해 표 3에서 도시대기측정망의 시도별 NO₂와 SO₂의 일평균 관측 농도와 모사 농도를 비교하였다. 대기질 모사는 배출량 이외에도 기상 입력자료와 이용되는 모사

선 등에 따라 모사 결과가 달라진다. 이러한 이유로 대기질 모사를 통해 배출량과 농도의 상관성을 완벽하게 재현할 수는 없으나, 본 연구에서는 지역별 편차 비교를 통해 배출량의 상대적 과대 또는 과소 산정을 평가하였다.

시도별 일평균 NO₂ 모사 농도와 관측 농도의 비는 지역 간 차이를 보이나, 0.6~1.1 사이에 분포한다. 대구, 울산, 경북에서 일평균 NO₂ 관측 농도와 모사 농도의 비는 1.0으로 가장 유사하며, 강원은 0.6으로 약 40% 과소 모사한다. 제주는 일평균 NO₂ 농도의 관측과 모사 농도가 각각 12.5 ppb, 8.2 ppb로 국내 지자체 중 가장 낮으며, 35%가량 과소 모사한다. 서울, 경기, 충남, 전남, 대구, 울산, 경북의 경우에는 일평균 NO₂ 농도의 관측 대비 모사 차이는 10% 내로 나타난다.

전반적으로 일평균 SO₂ 농도는 충남, 경북, 울산, 전남에서는 과대 모사를 보이나, 그 외 지역에 대해서는 과소 모사한다. 시도별 SO₂ 관측 및 모사 농도의 비율은 0.5~2.3 사이로, NO₂에 비해 지역별 배출량의 과대, 과소 산정 비율의 범위가 크다. 예를 들어, 충남의 모사 기간 일평균 SO₂ 관측 농도는 3.7 ppb이고 모사 농도는 8.5 ppb으로 관측과 모사 농도 비는 2.3이며, 17개 시도 중 과대 모사가 가장 크다. 울산의 경우, SO₂ 관측 농도는 6.6 ppb, 모사 농도는 14.4 ppb로,

Table 3. Statistics for NO₂ and SO₂ at the urban air quality monitoring sites in each region during 2016.

SITE	NO ₂ (ppb)						SO ₂ (ppb)					
	OBS	MOD	R	IOA	RMSE	BIAS	OBS	MOD	R	IOA	RMSE	BIAS
SEOUL	31.4	34.4	0.7	0.8	8.3	3.0	4.9	3.8	0.8	0.7	1.9	-1.1
INCHEON	24.8	27.6	0.7	0.8	8.2	2.8	6.1	4.7	0.6	0.7	2.3	-1.4
GGD	27.3	25.3	0.7	0.8	6.7	-2.0	4.6	3.3	0.7	0.7	1.7	-1.2
GWD	17.8	10.5	0.6	0.6	9.0	-7.3	3.5	2.2	0.6	0.6	2.0	-1.3
DAEJEON	19.1	16.8	0.7	0.8	6.1	-2.3	3.2	2.1	0.6	0.7	1.7	-1.1
SEJONG	21.6	14.2	0.6	0.7	10.1	-7.4	3.7	2.3	0.5	0.6	2.0	-1.4
CCBD	20.1	13.5	0.7	0.7	8.7	-6.5	3.6	2.6	0.7	0.7	1.6	-1.0
CCND	18.7	17.0	0.7	0.9	5.6	-1.7	3.7	8.5	0.5	0.3	6.1	4.9
GWANGJU	18.3	13.0	0.7	0.7	7.7	-5.4	2.8	1.5	0.7	0.6	1.5	-1.3
JLBD	15.8	11.1	0.7	0.7	6.5	-4.7	4.3	2.4	0.6	0.4	2.1	-1.9
JLND	15.4	16.8	0.4	0.6	6.6	1.4	5.5	8.0	0.7	0.5	4.0	2.5
BUSAN	21.2	23.4	0.7	0.8	6.1	2.2	5.5	5.2	0.7	0.7	2.2	-0.3
DAEGU	19.9	19.4	0.7	0.9	6.1	-0.5	3.5	3.2	0.7	0.8	1.3	-0.3
ULSAN	22.4	22.5	0.6	0.8	6.2	0.2	6.6	14.4	0.5	0.4	9.4	7.8
GSBD	16.6	16.8	0.6	0.7	5.5	0.2	4.7	8.2	0.4	0.3	4.9	3.5
GSND	19.6	15.0	0.6	0.7	7.2	-4.5	4.3	3.0	0.8	0.7	1.6	-1.3
JJ	12.5	8.2	0.4	0.6	6.8	-4.3	2.8	1.7	0.4	0.6	1.7	-1.2

국내 지자체 중 가장 높은 농도를 보였다. 이에 반해, 광주에서 SO₂ 관측 대비 모사 농도의 비는 0.5로 과소 모사 수준이 가장 크게 나타난다. 부산의 SO₂ 관측 농도와 모사 농도의 비는 1.0으로 가장 유사한 모사 결과를 보인다.

지역적인 배출량과 농도가 비례적인 관계이며, 관측과 모사 농도의 차이가 대기오염물질 배출량의 불확도를 정량적으로 제시한다고 가정하면, 모사 결과를 이용하여 시도별 배출량의 수정 범위를 가늠해 볼 수 있을 것으로 판단하였다. 따라서, 본 절에서의 관측 농도와 모사 농도 비교를 통해 NO_x와 SO₂ 배출량의 과대, 과소 정도를 정량적으로 추정하고자 하며, 이에 대한 자세한 논의는 다음 3.6절에 제시하였다.

3.4 NO_x 및 SO₂ 농도의 월간 변화

그림 7에서 일부 시도의 NO₂ 모사 농도 월별 변화는 관측 농도와 유사하게 변화하는 반면, 다른 일부 지역에서의 NO₂ 모사 농도는 관측 농도에 비해 일부 계절 동안에만 높거나 낮아지기도 한다. 예를 들어 강원, 충북, 전북, 광주 등에서는 대부분의 월별 NO₂ 모사 농도가 관측 농도에 비해 낮지만, 서울, 인천 등

에서는 여름철 동안 NO₂ 과대 모사를 보인다. 이런 점에서 대기질 모사 농도의 불확도는 배출목록에서 제공한 연간 배출량과 함께, 배출량 입력 자료 준비 시 적용되는 월별 분배 계수에 의해서도 나타날 수 있다. 다만, 대기질 모사 농도는 지역별 기상, 지형 등의 특징에 따라 달라질 수 있음을 간과할 수는 없다. 이러한 점을 고려하여 본 연구에서는 광역 지자체별 월평균 관측 농도와 모사 농도의 변화를 비교하였다.

월별 NO₂ 농도는 수도권, 영남권, 전남 등 일부 지역에서는 여름철 동안 과대 모사를 보이나, 많은 지역에서 NO₂ 관측 농도가 높아지는 겨울과 봄철은 과소 모사하였다. 강원도의 경우 여름철 NO₂ 농도는 10 ppb 내외로 관측과 모사가 유사하지만, 겨울철과 봄철에는 10 ppb 이상의 차이를 보인다. 세종과 충북에서는 계절에 상관없이 지속적으로 NO₂ 농도를 과소 모사하며, 이는 이들 지역에서 NO_x 배출량의 증가가 모사 농도 개선에 도움이 될 수 있다는 것을 의미한다. NO₂ 월평균 농도 편차의 과대 모사는 8월 인천에서 11.4 ppb로 가장 크고, 과소 모사는 3월 세종에서 -14.4 ppb로 가장 큰 값을 보인다. 모사된 월별 NO₂ 농도의 NMB는 -56.8% (제주, 2월)~80.2% (전남, 7

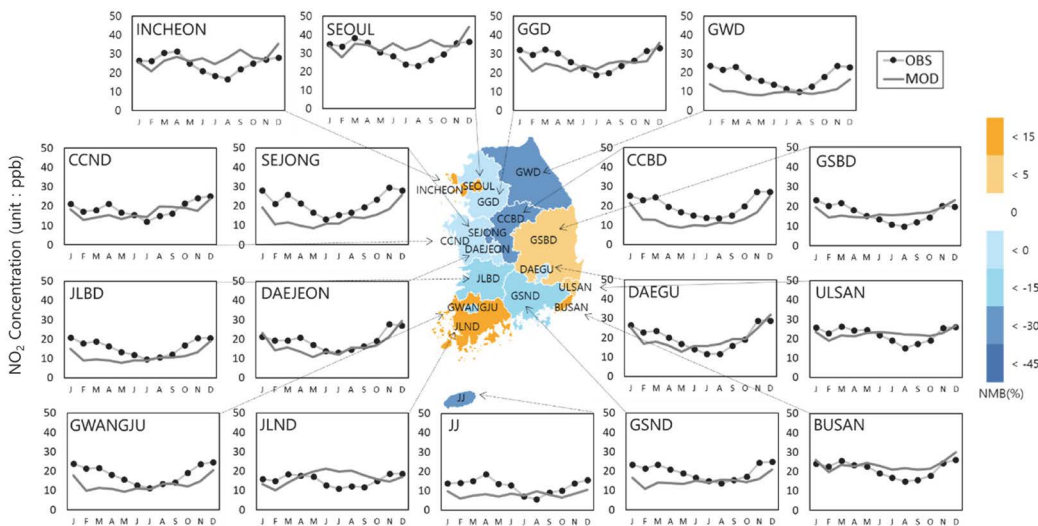


Fig. 7. Comparisons of monthly average NO₂ concentrations in each region. Regional colors mean Normalized mean bias of annual NO₂ concentrations. Line and circle plots represent the model simulation and observed NO₂ concentrations, respectively.

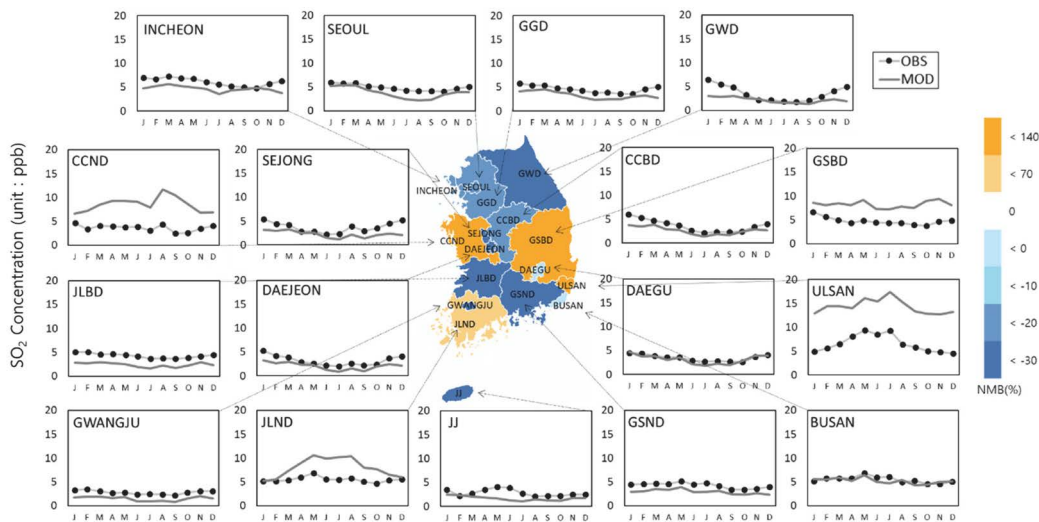


Fig. 8. Comparisons of monthly average SO₂ concentrations in each region. Regional colors mean Normalized mean bias of annual SO₂ concentrations. Line and circle plots represent the model simulation and observed SO₂ concentrations, respectively.

월)이며, 이러한 결과로 유추해보면 현재의 모사 결과를 이용한 NO_x 배출량 추정은 지역별 차이는 물론 계절별 변화가 감안되어야 한다.

부록의 그림 1과 2를 보면 NO 모사 농도가 세종, 충북, 대전, 광주, 대구, 경남 등에서 겨울철 동안 20

ppb가량 과소평가하며, NO_x 농도 역시 과소평가되었다. 이로부터 NO/NO₂ 비를 결정하는 다른 화학 조건의 불확도를 감안하더라도 해당 지역에서의 NO_x 배출량은 과소 산정된 것으로 추정하였다. 서울, 인천, 부산 등 일부 지역에서는 NO와 NO_x 관측 농도가

모사 농도와 유사하거나, 일부 월에 대해서는 과대평가한다. 이러한 지역별 NO와 NO₂ 관측 농도의 과대, 과소평가는 CAPSS 2016 배출목록에서 향후 시도별 NO_x 배출량 수정 방향 설정에 활용될 수 있다.

SO₂ 관측 및 모사 농도의 월간 변동은 유사하게 나타나며, 전반적으로 과소 모사 경향을 보인다(그림 8). 충남, 전남, 울산, 경북의 경우, 전 기간 동안 SO₂ 월평균 농도를 과대 모사하며 이들 지역에서 SO₂ 배출량의 과대평가가 원인이 될 수 있다. 특히, 전남의 경우 겨울철 동안에는 관측과 모사된 SO₂ 농도가 5 ppb 내외로 유사하나, 여름철 동안에는 SO₂ 모사 농도는 10 ppb 정도로 증가하는 반면 관측 농도는 크게 변화하지 않는다.

SO₂ 배출량의 주요 배출 부문인 석유, 제철 산업이 충남 당진, 울산, 경북 포항, 전남 광양 등의 일부 지역에 편중되며, 이들 지역의 SO₂ 모사 농도가 뚜렷하게 과대평가된다. 월별 SO₂ 모사 농도의 NMB는 -68.1% (제주, 6월)~324.6% (충남, 9월) 범위에서 나타난다. 월별 편차는 1월 강원에서 -3.4 ppb의 편차로 가장 과소 모사하고, 8월 울산에서 8.8 ppb의 편차로 가장 과대 모사한다. 그 외 대부분의 지역에서 관측과 모사가 유사한 수준으로 나타났으나, 과대 모사가 지속적으로 나타난 특정 지역의 경우에는 배출목록의 SO₂ 배출량 감소가 고려되어야 할 것으로 사료된다.

다만, 현재 국가 배출목록은 대기오염물질별 연간 배출량 정보를 제공하며(점 오염원 제외), 대기질 모사 시에는 연간 배출량을 월별 그리고 시간별 배출량으로 세분화하는 과정이 필요하다. 이러한 과정은 ‘시간 분배(Temporal allocation)’라고 불리며, 이를 위해서는 해당 배출량에 대한 월간 활동도가 필요하다. 이러한 과정에서 연구자마다 다른 시간 분배 계수를 이용할 수 있으며(Choi *et al.*, 2018; Kim *et al.*, 2008), 국내 활동도 자료가 제한된 경우 미 환경청에서 제공하는 계수를 이용하기 때문에 우리나라 현실 과도 차이를 보일 수 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위해서는 현재 제공되고 있는 연간 배출량뿐만 아

니라 실제 배출목록 마련 시 이용되는 활동도 자료 등의 제공 및 공유가 필요하다.

3.5 시도별 주요 배출 부문

지역별로 배출 부문별 배출량에 따라 대기 중 농도에 대한 기여율이 다르며, 배출량의 불확도의 원인을 배출 부문별로 세분하여 추정하기 위해서는 지역별 주요 배출 구성을 살펴보는 것이 필요하다. 이에 본 절에서는 시도별 NO₂와 SO₂ 농도에 대한 Normalized Mean Bias (NMB)와 전체 배출량 중 점, 선, 면 오염원의 배출량이 차지하는 비율을 제시하였다(표 4).

연평균 NO₂ 농도의 시도별 NMB는 -41.2~11.4% 범위이며, 차이가 가장 크게 나타나는 지역은 강원 -41.2%, 가장 차이가 적은 지역은 울산으로 0.7%이다. 서울, 경기, 대전, 세종, 광주, 부산, 대구 및 제주를 점 오염원의 NO_x 배출량이 해당 지역의 전체 NO_x 배출량의 10% 이하로 세 가지 배출 부문 중 가장 작은 비중을 차지한다. 해당 지역들은 인구밀도가 높은 대도시와 도서 지역이라는 특징이 있으며, 부산과 제주를 제외한 지역의 NO_x 배출량 50% 이상이 선 오염원에서 배출된다. 과소 모사가 가장 크게 나타나는 강원은 점 오염원에서 60%의 NO_x가 배출되는 것으로 CAPSS 2016 배출목록에서 보고하고 있다. 이와 같이 과소 모사 정도가 큰 지역에 대해서는 주요 배출원 및 누락 배출원에 대한 파악이 더욱 중요할 것으로 판단된다. NO₂ 농도는 인천, 전남, 경북, 경남 지역에서 크게 과대 모사하며, 이들 지역의 점, 선, 면 오염원별 배출량은 서로 비슷한 수준이다.

SO₂ 연평균 농도는 울산, 충남, 전남, 경북에서 과대 모사가 두드러지며, 시도별 연평균 SO₂ 농도의 NMB는 -46.7~133.1% 범위로 평가된다. 국내 SO₂ 배출량은 선 오염원에서 전체 배출량의 1% 미만을 차지한다. 이에 반해 인천, 강원, 충남, 전남, 울산, 경남에서는 점 오염원이 지역 전체 배출량의 70% 이상을 차지한다. 서울, 세종, 광주, 부산, 경북 지역에서는 면 오염원이 지역 배출량의 70% 이상, 서울과 부산에서는 90% 이상의 SO₂가 면 오염원에서 배출된다. 과대

Table 4. Compare the Normalized Mean Bias of NO₂ (a) and SO₂ (b) with emissions by region and sector. Emissions represent the ratio of emissions from each region to the total emissions by sector.

SITE	(a) NO ₂				(b) SO ₂			
	Normalized mean bias (%)	Normalized sectoral NO _x emissions (%)			Normalized mean bias (%)	Normalized sectoral SO ₂ emissions (%)		
		AREA	MOBILE	POINT		AREA	MOBILE	POINT
SEOUL	9.5	47.7	51.2	1.0	-23.3	96.3	0.5	3.2
INCHEON	11.4	35.4	41.5	23.0	-23.2	23.3	0.1	76.7
GGD	-7.2	34.9	56.9	8.1	-27.2	53.6	0.4	46.0
GWD	-41.2	16.7	22.9	60.4	-37.2	27.2	0.1	72.7
DAEJEON	-12.1	31.8	63.5	4.7	-35.2	40.6	0.6	58.8
SEJONG	-34.2	56.0	34.6	9.5	-38.7	81.4	0.7	17.8
CCBD	-32.4	16.2	37.3	46.6	-27.2	35.2	0.1	64.7
CCND	-9.1	24.4	22.7	52.9	133.1	27.0	0.0	73.0
GWANGJU	-29.4	39.8	54.0	6.2	-46.7	79.5	1.1	19.4
JLBD	-29.9	29.6	54.8	15.6	-44.4	32.4	0.2	67.4
JLND	9.2	35.9	21.5	42.6	45.8	30.6	0.0	69.3
BUSAN	10.5	63.1	30.6	6.4	-4.5	90.1	0.1	9.8
DAEGU	-2.7	30.7	62.0	7.3	-8.1	67.5	0.2	32.3
ULSAN	0.7	42.2	17.5	40.2	117.7	14.6	0.0	85.4
GSBD	1.1	35.6	40.8	23.6	73.1	73.3	0.1	26.7
GSND	-23.2	25.6	38.8	35.6	-30.9	16.6	0.1	83.3
JJ	-34.6	48.9	42.2	8.9	-41.4	66.6	0.2	33.2

모사를 보이는 지역 중 충남, 전남, 울산은 점 오염원, 경북은 면 오염원의 SO₂ 배출이 가장 주요하며, 과대 모사의 원인이 될 수 있다.

이러한 점을 종합하여 표 4에 보였다. NO₂ 모사 농도는 서울, 인천, 부산을 제외한 대부분의 시도에서 과소평가한다. 이와 다르게 SO₂ 농도는 충남, 울산 등에서 100% 이상 과대평가하며, 이 지역의 주요 배출 원인 점 오염원 관련 배출량에 대한 심도 있는 검토가 필요하다.

3.6 대기질 모사 기반 시도별 배출량 추정

본 절에서는 NO₂와 SO₂의 관측 농도 대비 모사 농도 비를 이용하여 시도별 배출량의 추정 범위를 추정하였다. 이러한 배출량 추정은 시도별 배출량과 관측 농도가 비례한다는 가정을 이용하며, 주변 시도로부터의 유출입 영향과 화학 반응에 의한 전환, 제거 과정 등은 고려되지 않는다. 다만, 이러한 배출 총량의 일치가 점, 선, 면 배출 부문별 배출량 산정의 정확성을 의미하지는 않는다.

NO₂ 관측 농도 대비 모사 농도의 비율로 추정되는 NO_x 배출량의 변화는 -10~70% 범위에서 나타나며, 기존 CAPSS 2016 대비 배출량 증가는 강원(70%), 제주(53%), 세종(52%), 충북(48%) 등의 지역에서 필요하다(그림 9). 울산과 경북에서의 NO_x 배출량 변화 폭은 1% 이내이며 서울, 인천, 부산 등에서는 9~10% 감소가 필요한 것으로 추정된다. 배출량 추정에 따른 국내 NO_x 배출 총량은 기존 CAPSS 2016 자료와 비교하여 166,002 TPY (14%) 증가가 필요한 것으로 추정된다. 가장 높은 NO₂ 배출 지역은 경기이며, 기존 대비 15,771 TPY 증가한 219,426 TPY로 배출량 추정 전과 후 모두 배출량이 가장 크다. 필요한 배출량 증가의 절대적인 값은 강원 58,347 TPY, 충북 35,112 TPY, 경남 30,847 TPY에서 가장 높게 나타났다.

SO₂ 관측 농도 대비 모사 농도의 비율로 추정한 배출량은 -57~87% 범위에서 변화하며, 시도별 변화는 광주(87%), 전북(80%), 제주(70%) 순으로 크게 증가한다(그림 10). SO₂ 농도를 과대 모사했던 충남, 전남, 울산, 경북의 배출량은 31~57% 감소한다. 수정된 국

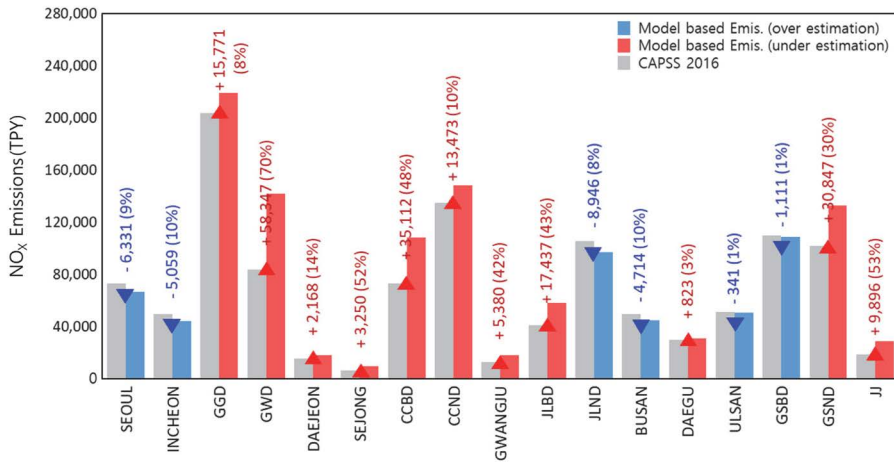


Fig. 9. Comparisons of NO_x emissions between CAPSS 2016 and model-based estimations using NO₂ concentrations by regional local authorities.

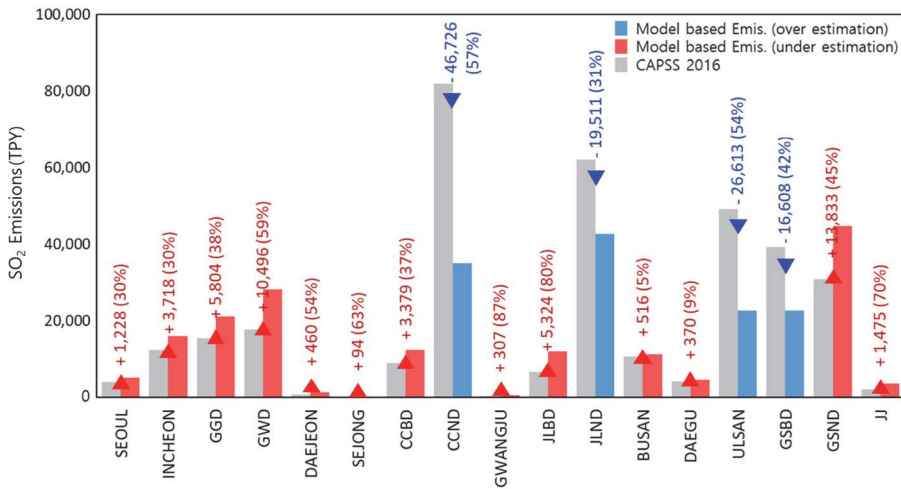


Fig. 10. Comparisons of SO₂ emissions between CAPSS 2016 and model-based estimations using SO₂ concentrations by regional local authorities.

내 SO₂ 배출량은 CAPSS 2016 대비 62,456 TPY 감소가 필요한 것으로 추정되며, SO₂ 배출량이 가장 많았던 충남은 81,843 TPY에서 35,117 TPY로 57% 감소한다. SO₂ 배출량 증가 폭에서는 경남 13,833 TPY (45%), 강원 10,496 TPY (59%), 경기 5,804 TPY (38%) 순으로 큰 변화를 보인다. CAPSS 2016 배출목록에서는 시도별 SO₂ 배출량은 충남이 가장 높으나, 수정된

SO₂ 배출량에서는 경남이 44,747 TPY의 SO₂를 배출하여, 전국 시도에서 가장 높은 SO₂ 배출을 보이는 것으로 추정된다. SO₂ 배출량의 경우, 많은 지역에서 기존 대비 30% 이상의 배출량 증가 폭을 보이나, 발전 및 산업시설이 밀집된 충남, 울산, 전남 등에서는 30~50% 가량 감소가 필요하다. 다만, 이러한 결과에서 이들 지역에서의 SO₂ 배출이 점 또는 면 오염원으

로 기존 배출 형태가 유지된다는 가정 하에 예측된 배출량이며, 실제 배출 형태 감안 시에는 배출량 변화 폭이 달라질 수 있다. 이와 관련하여 Kim *et al.* (2017b)과 Ju *et al.* (2019)은 배출 방식과 굴뚝 제원에 따라 배출량의 농도 전환율이 크게 달라짐을 보고하였다.

4. 결 론

본 연구에서는 CAPSS 2016 국내 배출목록에서의 NO_x와 SO₂ 배출량 검토를 위해 대기질 모사를 수행하고 관측 농도와 비교하였다. 이와 함께 도출된 NO₂ 및 SO₂ 관측 농도와 모사 농도의 비를 이용하여 시도별 NO_x, SO₂ 배출량 불확도 범위를 추정하였다.

연평균 NO₂ 농도는 대부분의 지역에 대해 과소 모사하지만 서울, 인천, 부산, 울산, 전남, 경북은 과대 모사하였다. 시도별 NO_x 배출량에서 점, 선, 면 오염원의 구성비를 고려할 때, 향후 배출량 산정의 정확도 개선 및 배출 규제에서 지역별 차이가 반영되어야 할 것으로 보인다. 월평균 NO₂ 농도는 수도권, 영남권, 전남 등에서 여름철에 과대 모사하고, 겨울철과 봄철에는 대부분의 지역이 과소 모사를 보였다. SO₂의 경우, 연평균 농도와 월평균 농도 모두 울산, 충남, 전남, 경북에서 과대 모사가 두드러지며, 해당 지역은 석유, 제철 및 제강업 등의 산업단지가 위치한 지역이라는 공통적인 특징이 있다.

연평균 NO₂ 모사 농도와 관측 농도의 비를 이용하여 배출량을 추정한 결과, 기존 CAPSS 2016 대비 국내 NO_x 총 배출량은 166,002 TPY (14%) 증가하였으며 시도별로 살펴보면 -10~70%의 NO_x 배출량 변화를 보인다. SO₂ 배출량은 국내 전체적으로는 18% 감소가 추정되며, 시도별로는 -57~87% 정도의 감소 또는 증가가 필요할 것으로 보인다. SO₂ 배출량이 과대 평가되는 지역은 주로 점 오염원 비중이 높은 것을 확인하였다. 이와 관련하여 한미 협력 국내 대기질 공동 조사 결과를 통해 SO₂ 배출량의 과대평가 가능

성이 제시되기도 하였다 (NIER, 2017). 이러한 NO₂ 및 SO₂의 지역별 과대 또는 과소 모사는 배출 이외에도 가스상 대기오염물질의 실제보다 빠른 입자상 대기오염물질로의 전환이 대기질 모사 내에서 일어날 수 있으며, 기상 모사 조건에 따른 이송 및 확산, 제거 과정 등의 영향도 배제할 수 없다.

점 오염원의 경우에는 굴뚝 높이 등에 따라 농도 영향 범위 및 배출-농도 전환율이 달라질 수 있기 때문에 배출량 현실화 시에는 이를 고려한 보완이 필요하다 (Ju *et al.*, 2019; Parvez *et al.*, 2017). 아울러 배출 목록에 기반한 대기질 현황 분석 시, 연간 배출량을 월별 배출량으로 구분하여 적용하며, 월별 분배계수 적용에 따라 배출량의 과대, 과소 추정이 달라질 수 있으므로 실제 조건과 유사한 배출 활동도를 적용할 수 있는 방안이 마련되어야 할 것으로 보인다.

본 연구에서 제시한 NO_x와 SO₂ 배출량 평가는 대기질 모사를 이용하므로, 배출량 자료 외에 입력되는 기상 자료와, 배출량 준비 과정, 대상 기간과 대상 지역, 모사 수행 및 분석 방법 등에 따른 불확도를 내포한다. 또한, 시도별, 부문별 배출 여건과 지형 조건에 따라 배출-농도 비례 관계가 달라지므로 이에 대한 불확도 역시 분석 결과 활용 시 함께 고려되어야 한다. 다만, 상향식 배출량 평가가 쉽지 않은 점을 고려하여 간접적인 방법을 통해 시도별 수준에서 평가하였다는 점, 그리고 과대/과소 배출량 산정을 정량적으로 제시하였다는 점, 이를 토대로 재산정된 국내 전체 배출량의 변화를 살펴본 점에서 의의가 있다. 향후 다양한 대기질 모사 및 분석 도구를 이용한 평가와 지역 범위를 한정된 접근을 통해 보다 고도화된 방법을 적용할 수 있을 것으로 판단된다. 본 연구는 CAPSS 2016을 이용한 결과로 연구 대상 기간 변경과 신규 배출목록을 이용한 분석과는 차이를 보일 수 있는 한계점이 존재한다. 하지만 추후 공개되고, 개선되는 배출목록과 함께 교차 검증이 이루어진다면 다각적인 분석을 통해 배출목록 보완을 위한 참고 자료로 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

감사의 글

본 연구는 정부(과학기술정보통신부, 환경부, 보건복지부) 재원으로 한국연구재단-미세먼지 국가전략 프로젝트사업(2017M3D8A1092020) 및 국립환경과학원(NIER-2019-01-02-034)의 지원을 받아 수행되었으며 이에 감사드립니다.

References

- Bae, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2018) Quantitative Assessment on Contributions of Foreign NO_x and VOC Emission to Ozone Concentrations over Gwangyang Bay with CMAQ-HDDM Simulations, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(5), 708-726, (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.5.708>.
- Bae, C., Kim, H.C., Kim, B.-U., Kim, S. (2019) Surface ozone response to satellite constrained NO_x emission adjustments and its implications, *Environmental Pollution*, (in press), <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2019.113469>.
- Benjey, W., Houyoux, M., Susick, J. (2001) Implementation of the SMOKE emission data processor and SMOKE tool input data processor in models-3, U.S. EPA.
- Byun, D.W., Schere, K.L. (2006) Review of the Governing Equations, Computational Algorithms, and Other Components of the Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System, *Applied Mechanics Reviews*, 59(2), 51-77, <https://doi.org/10.1115/1.2128636>.
- 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.
- Choi, K.-C., Lim, Y., Lee, J.B., Nam, K., Lee, H., Lee, Y., Myoung, J., Kim, T., Jang, L., Kim, J.S., Woo, J.-H., Kim, S., Choi, K.-H. (2018) Evaluation of the Simulated PM_{2.5} Concentrations using Air Quality Forecasting System according to Emission Inventories - Focused on China and South Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(2), 306-320, (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.2.306>.
- Gao, J., Yuan, Z., Liu, X., Xia, X., Huang, X., Dong, Z. (2016) Improving air pollution control policy in China—A perspective based on cost-benefit analysis, *Science of the Total Environment*, 543(A), 307-314, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2015.11.037>.
- Guenther, C.C. (2006) Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 3181-3210, <https://doi.org/10.5194/acp-6-3181-2006>.
- Han, S.H., Kim, Y.P. (2015) Long-term Trends of the Concentrations of Mass and Chemical Composition in PM_{2.5} over Seoul, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 31(2), 143-156, (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2015.31.2.143>.
- Huang, R.-J., Wang, Y., Cao, J., Lin, C., Duan, J., Chen, Q., Li, Y., Gu, Y., Yan, J., Xu, W., Frohlich, R., Canonaco, F., Bozzetti, C., Ovadnevaite, J., Ceburnis, D., Canagaratna, M.R., Jayne, J., Worsnop, D.R., El-Haddad, I., Prevot, A.S.H., O'Dowd, C.D. (2019) Primary emissions versus secondary formation of fine particulate matter in the most polluted city (Shijiazhuang) in North China, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19, 2283-2298, <https://doi.org/10.5194/acp-19-2283-2019>.
- Ju, H., Yoo, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2019) Impact of Stack Parameters on Modeled PM_{2.5} Conversion Rates: A Case Study of Chungnam during the KORUS-AQ 2016, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 35(5), 593-608, (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2019.35.5.593>.
- Kim, E., Bae, C., Yoo, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2018a) Evaluation of the Effectiveness of Emission Control Measures to Improve PM_{2.5} Concentration in South Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(3), 469-485, (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.3.469>.
- Kim, H., Zhang, Q., Heo, J. (2018b) Influence of intense secondary aerosol formation and long-range transport on aerosol chemistry and properties in the Seoul Metropolitan Area during spring time: results from KORUS-AQ, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18, 7149-7168, <https://doi.org/10.5194/acp-18-7149-2018>.
- Kim, J., Kim, J., Hong, J., Jung, D., Ban, S., Lee, Y. (2008) Assessment of Changed Input Modules with SMOKE Model, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 24(3), 284-299, (in Korean with English

- abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2008.24.3.28400>.
- Kim, N.K., Kim, Y.P., Morino, Y., Kurokawa, J.-I., Ohara, T. (2013) Verification of NO_x emission inventory over South Korea using sectoral activity data and satellite observation of NO₂ vertical column densities, *Atmospheric Environment*, 77, 496-508, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.05.042>.
- Kim, S., Bae, C., Kim, B.-U., Kim, H.C. (2017a) PM_{2.5} 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, (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2017.33.2.139>.
- Kim, S., Bae, C., Yoo, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Moon, N. (2017b) PM_{2.5} Simulations for the Seoul Metropolitan Area: (II) Estimation of Self-Contributions and Emission-to-PM_{2.5} Conversion Rates for Each Source Category, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(4), 377-392, (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2017.33.4.377>.
- Kim, H.C., Kim, E., Bae, C., Cho, J.H., Kim, B.-U., Kim, S. (2017c) 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, 10315-10332, <https://doi.org/10.5194/acp-17-10315-2017>.
- Korean Statistical Information Service (KOSIS) (2018) Korea Land & Housing Corporation http://kosis.kr/statHtml/statHtml.do?orgId=315&tblId=TX_315_2009_H1009&conn_path=12 (accessed on Sep 2, 2019).
- Lee, D.G., Lee, Y.-M., Jang, K.-W., Yoo, C., Kang, K.-H., Lee, J.-H., Jung, S.-W., Park, J.-M., Lee, S.-B., Han, J.-S., Hong, J.-H., Lee, S.-J. (2011) Korean National Emissions Inventory System and 2007 Air Pollutant Emissions, *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 5(4), 278-291, <https://doi.org/10.5572/ajae.2011.5.4.278>.
- Lee, S., Ghim, Y.S., Kim, Y.P., Kim, J.Y. (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, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2006.03.029>.
- Ministry of Environment (MOE) (2013) 2nd Air Quality Management Plan in Seoul Metropolitan Area, http://me.go.kr/home/web/policy_data/read.do?sessionid=g-lHceGxF7slz1FaBJPj11k7e4ll8uAj9WqeKKPMLo-E9QjQDWOtMLLku4kuUIMNpW.meweb2vhost_servlet_engine1?pagerOffset=30&maxPageItems=10&maxIndexPages=10&searchKey=&searchValue=&menuId=10262&orgCd=&condition.code=A3&SEQ=6482 (accessed on Oct. 31, 2019).
- Ministry of Environment (MOE) (2015) Evaluation of Air Quality Control Area Management System and Improvement Plan, <http://webbook.me.go.kr/DLi-File/091/025/003/5625701.pdf> (accessed on Nov. 5, 2019).
- Ministry of Environment (MOE) (2019) Fine dust comprehensive management plan, http://me.go.kr/home/web/policy_data/read.do?pagerOffset=0&maxPageItems=10&maxIndexPages=10&searchKey=&searchValue=&menuId=10262&orgCd=&condition.code=A3&condition.deleteYn=N&seq=7399 (accessed on Nov. 5, 2019).
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2017) KORUS-AQ Rapid Science Synthesis Report, <https://espo.nasa.gov/sites/default/files/documents/KORUS-AQ-RSSR.pdf> (accessed on Dec 28, 2019).
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2019) National air pollutants emission, <http://airemiss.nier.go.kr/mbshome/mbs/airemiss/index.do> (accessed on Oct 29, 2019).
- National Center for Fine Dust Information (NCFDI) (2020) National Air Pollutants Emission Service, http://airemiss.nier.go.kr/mbshome/mbs/airemiss/subview.do?id=airemiss_020300000000 (accessed on Jan. 23, 2020).
- Parvez, F., Lamancusa, C., Wagstrom, K. (2017) Primary and secondary particulate matter intake fraction from different height emission sources, *Atmospheric Environment*, 165, 1-11, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.06.011>.
- Shi, Z., Li, J., Huang, L., Wang, P., Wu, L., Ying, Q., Zhang, H., Lu, L., Liu, X., Liao, H., Hu, J. (2017) Source apportionment of fine particulate matter in China in 2013 using a source-oriented chemical transport model, *Science of The Total Environment*, 601, 1467-1487, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.06.019>.
- 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>.
- U.S. Environmental Protection Agency (US EPA) (2011) Regulatory Impact Analysis for the Federal Implementation Plans to Reduce Interstate Transport of Fine Particulate Matter and Ozone in 27 States; Correc-

- tion of SIP Approvals for 22 States, https://www3.epa.gov/ttn/ecas/docs/ria/transport_ria_final_csapr_2011-06.pdf (accessed on Nov. 5, 2019).
- U.S. Environmental Protection Agency (US EPA) (2019) Fine Particulate Matter (PM_{2.5}) Precursor Demonstration Guidance, <https://www.epa.gov/pm-pollution/pm25-precursor-demonstration-guidance> (accessed on Nov. 1, 2019).
- Woo, J.H., Bu, C., Kim, J., Ghim, Y.S., Kim, Y. (2018) Analysis of Regional and Inter-annual Changes of Air Pollutants Emissions in China, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(1), 87-100, (in Korean with English abstract), <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.1.087>.
- Zhang, W., Capps, S.L., Hu, Y., Nenes, A., Napelenok, S.L., Russell, A.G. (2012) Development of the high-order decoupled direct method in three dimensions for particulate matter: enabling advanced sensitivity analysis in air quality models, *Geoscientific Model Development*, 5(2), 355-368, <https://doi.org/10.5194/gmd-5-355-2012>.
- Zhao, B., Wu, W., Wang, S., Xing, J., Chang, X., Liou, K.-N., Jiang, J.H., Gu, Y., Jang, C., Fu, J.S., Zhu, Y., Wang, J., Lin, Y., Hao, J. (2017) A modeling study of the nonlinear response of fine particles to air pollutant emissions in the Beijing-Tianjin-Hebei region, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17, 12031-12050, <https://doi.org/10.5194/acp-17-12031-2017>.

Authors Information

김옥길 (아주대학교 환경공학과 연구원)
 배민아 (아주대학교 환경공학과 박사과정)
 김순태 (아주대학교 환경안전공학과 교수)

SUPPLEMENTARY MATERIALS

Table S1. Statistics for NO at the urban air quality monitoring sites in each region during 2016.

SIDO	OBS (ppb)	MOD (ppb)	R	IOA	RMSE	BIAS
SEOUL	16.9	24.3	0.8	0.8	20.3	7.4
INCHEON	15.8	16.8	0.8	0.8	14.8	1.0
GYEONGGI	18.3	11.8	0.8	0.9	12.3	-6.5
GWD	9.7	1.3	0.4	0.5	11.7	-8.5
DAEJEON	13.7	4.4	0.6	0.6	15.6	-9.3
SEJONG	12.9	2.2	0.6	0.5	17.7	-10.6
CCBD	15.8	2.6	0.6	0.5	18.3	-13.2
CCND	10.1	4.4	0.7	0.7	8.7	-5.7
GWANGJU	10.1	2.1	0.6	0.5	13.5	-8.0
JLBD	7.3	1.4	0.7	0.5	7.4	-6.0
JLND	5.3	3.7	0.1	0.4	5.5	-1.7
BUSAN	9.8	9.4	0.6	0.8	8.0	-0.4
DAEGU	14.0	6.0	0.8	0.7	14.3	-8.0
ULSAN	12.5	7.0	0.5	0.6	10.3	-5.5
GSBD	12.0	5.3	0.5	0.6	10.7	-6.7
GSND	11.0	2.2	0.7	0.5	13.0	-8.8
JJ	3.9	0.8	0.4	0.5	3.8	-3.1

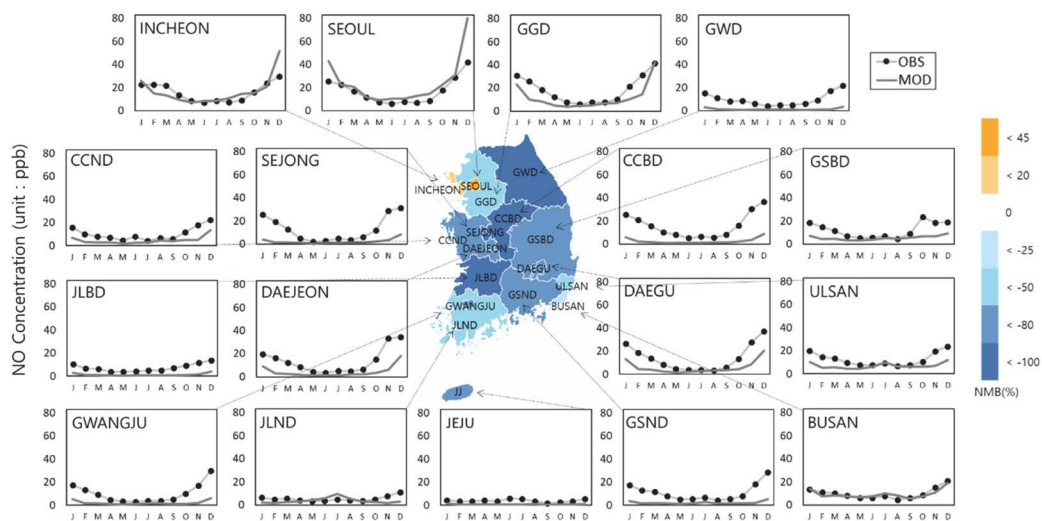


Fig. S1. Comparisons of monthly average NO concentrations in each region. Regional colors mean Normalized mean bias of annual NO concentrations. Line and circle plots represent the model simulation and observed NO concentrations, respectively.

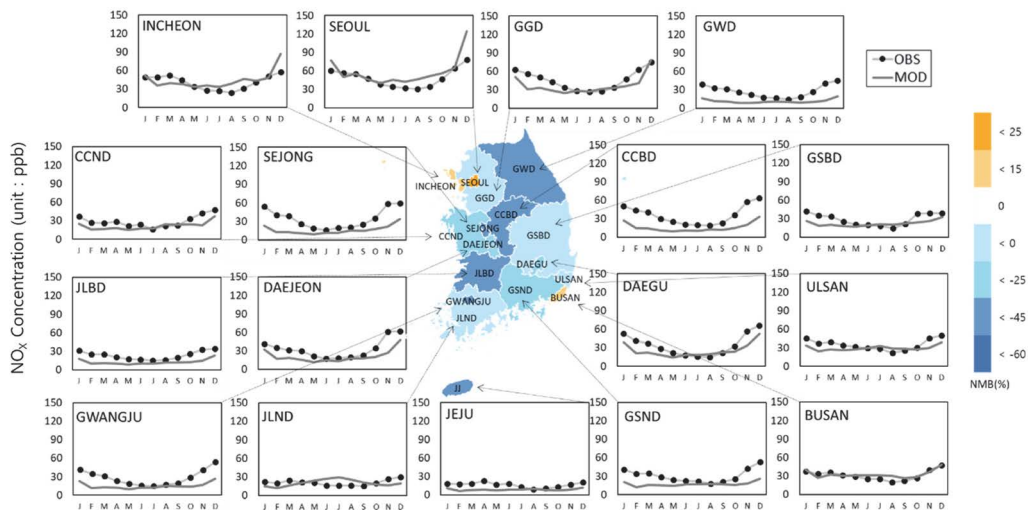


Fig. S2. Comparisons of monthly average NO_x concentrations in each region. Regional colors mean Normalized mean bias of annual NO_x concentrations. Line and circle plots represent the model simulation and observed NO_x concentrations, respectively.

Table S2. Regional comparison of model based emissions through NO_2 , SO_2 concentrations and emissions in CAPSS 2016. Excluding ocean emissions. (Unit = TPY)

Region	(A) NO_x			(B) SO_2		
	CAPSS 2016	Model based emissions	Difference	CAPSS 2016	Model based emissions	Difference
SEOUL	73,042	66,711	-6,331	4,039	5,267	1,228
INCHEON	49,389	44,330	-5,059	12,368	16,086	3,718
GGD	203,655	219,426	15,771	15,415	21,219	5,804
GWD	83,500	141,847	58,347	17,762	28,258	10,496
DAEJEON	15,719	17,887	2,168	854	1,314	460
SEJONG	6,245	9,495	3,250	148	242	94
CCBD	73,029	108,141	35,112	9,067	12,446	3,379
CCND	134,889	148,362	13,473	81,843	35,117	-46,726
GWANGJU	12,951	18,331	5,380	351	658	307
JLBD	40,858	58,295	17,437	6,669	11,993	5,324
JLND	105,776	96,830	-8,946	62,171	42,660	-19,511
BUSAN	49,468	44,754	-4,714	10,777	11,293	516
DAEGU	30,110	30,933	823	4,187	4,557	370
ULSAN	51,223	50,882	-341	49,214	22,601	-26,613
GSBD	109,746	108,635	-1,111	39,361	22,753	-16,608
GSND	102,053	132,900	30,847	30,914	44,747	13,833
JEJU	18,692	28,588	9,896	2,106	3,581	1,475

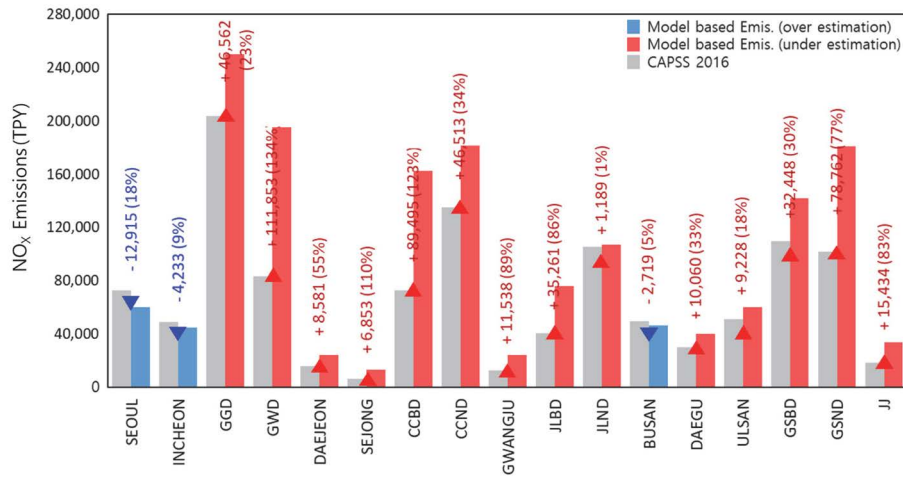


Fig. S3. Comparisons of NO_x emissions between CAPSS 2016 and model-based estimations using NO_x concentrations by regional local authorities.

Table S3. Regional comparison of model based emissions through NO_x concentrations and emissions in CAPSS 2016. Excluding ocean emissions. (Unit = TPY)

Region	NO _x		Difference
	CAPSS 2016	Model based emissions	
SEOUL	73,042	60,127	-12,915
INCHEON	49,389	45,156	-4,233
GGD	203,655	250,217	46,562
GWD	83,500	195,353	111,853
DAEJEON	15,719	24,300	8,581
SEJONG	6,245	13,098	6,853
CCBD	73,029	162,524	89,495
CCND	134,889	181,402	46,513
GWANGJU	12,951	24,489	11,538
JLBD	40,858	76,119	35,261
JLND	105,776	106,965	1,189
BUSAN	49,468	46,749	-2,719
DAEGU	30,110	40,170	10,060
ULSAN	51,223	60,451	9,228
GSBD	109,746	142,194	32,448
GSND	102,053	180,815	78,762
JEJU	18,692	34,126	15,434