Check for updates

Journal of Korean Society for Atmospheric Environment
Vol. 37, No. 3, June 2021, pp. 466-486
https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.3.466
p-ISSN 1598-7132, e-ISSN 2383-5346

논 문

2016년 국가배출목록 기반 지자체별 초미세먼지 기여도 분석: (VII) 서울

Local Authority Level Source Apportionments of $PM_{2.5}$ Concentrations based on the CAPSS 2016: (VII) Seoul

배민아, 김은혜[1], 유승희, 손규원, 강윤희[1], 김순태[2],*
아주대학교 환경공학과, [1]아주대학교 환경연구소, [2]아주대학교 환경안전공학과

Minah Bae, Eunhye Kim[1], Seunghee You, Kyuwon Son, Yoon-Hee Kang[1], Soontae Kim[2],*
Department of Environmental Engineering, Ajou University, Suwon, Republic of Korea
[1]Environmental Research Institute, Ajou University, Suwon, Republic of Korea
[2]Department of Environmental and Safety Engineering, Ajou University, Suwon, Republic of Korea

접수일 2021년 4월 9일
수정일 2021년 5월 10일
채택일 2021년 5월 13일

Received 9 April 2021
Revised 10 May 2021
Accepted 13 May 2021

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

Abstract The Comprehensive Air quality Model with eXtensions with Particulate Source Apportionment Technology (CAMx-PSAT) was simulated to quantify the self- and neighboring provincial contributions to the concentrations of $PM_{2.5}$ and its compositions in Seoul during the whole year of 2016. The domestic and foreign contributions to the annual mean $PM_{2.5}$ concentration in Seoul were 11.8 and 15.8 μg/m^3, respectively during the year. The individual contribution of Seoul, Gyeonggi, Incheon, and Chungnam were 4.5, 3.3, 1.1, and 1.5 μg/m^3, respectively. While Seoul has the highest NO_x emission density among 17 provinces in South Korea, its self-contribution to nitrate was 0.3 μg/m^3, which is lower than the contributions of Gyeonggi (1.0 μg/m^3) and Chungnam (0.5 μg/m^3). The contribution of NO_x emissions released from Seoul to nitrate over Yeoju and Guri in Gyeonggi, the downwind areas of Seoul, was 0.4 μg/m^3 which was higher than the self-contribution. While sulfate in Seoul was largely attributable to the emissions from the upwind foreign countries, the contribution of Chungnam was 0.4 μg/m^3, which is higher than the sum of the contributions of Seoul, Gyeonggi, and Incheon. In cases of ammonium and Primary $PM_{2.5}$ ($PPM_{2.5}$), the self-contributions were dominant and as high as 1.6 and 2.5 μg/m^3, respectively. The results of this study imply that collaboration on air quality management among Seoul and the neighboring provinces is imperative to meet the national ambient air quality standard for the annual mean $PM_{2.5}$ (15 μg/m^3).

Key words: $PM_{2.5}$ contribution, Seoul, Inter-provincial contribution, Nitrate, Foreign and domestic contributions

1. 서 론

초미세먼지 ($PM_{2.5}$)는 시정악화를 비롯한 일상의 불편과 함께, 호흡기 질환 등을 유발하여 건강에 악영향을 미친다. Yeo *et al.* (2019)은 2003~2018년간 서울의 연평균 $PM_{2.5}$ 농도가 꾸준히 감소 추세를 보이나, 고농도 발생 빈도는 오히려 증가하고 있음을 보고하였다. 서울의 $PM_{2.5}$ 주의보 발령 기준은 2018년 7월 이후 변경되어 (기존: 1시간 평균 90 μg/m^3 이상의 농도가 2시간 지속; 신규: 1시간 평균 75 μg/m^3 이상의 농도가 2시간 지속) 연간 $PM_{2.5}$ 발령일수를 직접적으로 비교하기는 어렵다. 다만, 2017~2019년 동안 $PM_{2.5}$ 주의보 발령일수가 10~25일로 고농도 $PM_{2.5}$의 발생이 꾸준히 나타났다 (서울시보건환경연구원, 2020). 특히, 2019년에는 서울의 $PM_{2.5}$ 경보 발령일수 (1시간 평균 농도가 150 μg/m^3 이상 2시간 지속) 또한

4일로 나타나는 등 고농도 $PM_{2.5}$ 발생이 사회적으로 큰 문제가 되고 있다. 서울의 2019년 연평균 $PM_{2.5}$ 농도는 전국 평균인 23 μg/m^{3}에 비하여 2 μg/m^3 높은 25 μg/m^{3}를 기록하였으며, 인구노출도를 고려하면 $PM_{2.5}$ 농도 개선이 매우 시급한 지역 중 하나이다 (Son *et al.*, 2020). 서울시와 정부에서는 이러한 $PM_{2.5}$ 고농도 현상을 해소하기 위하여 다양한 대기질 개선 정책을 수립하고 수행하고 있다(KMOE, 2020; Kim *et al.*, 2018).

인천과 경기를 포함한 수도권 지역에는 국내 인구의 50% 이상이 거주하고 있으며, 그중에서도 2021년 2월 기준 서울의 인구는 경기(1,381만 명)에 이어 두 번째로 높은 991만 명으로 전국의 19%의 인원을 수용하고 있다(Statistics Korea, 2021). 서울의 면적이 605.2 km^{2}임을 고려하면 서울의 인구밀도는 국내 지자체 중 압도적으로 높다. 서울은 북한산과 관악산, 청계산 등으로 둘러싸인 분지 지형의 도시이며, 국내에서 가장 도시화된 지역이면서 배출량이 높은 경기와 인천의 인근에 위치하여 자체적인 영향뿐만 아니라, 주변지역으로부터의 대기질 영향을 많이 받는 지리적 특성이 있다.

Kim (2014)은 서울시 $PM_{2.5}$ 농도를 효과적으로 관리하기 위해서는 동북아시아로부터의 장거리 이동 및 국내 배출원에 의한 정량적인 기여도 파악이 중요함을 언급하였다. Bae *et al.* (2020a)은 2010~2017년 장기 분석을 통해 서울에 대한 기간 평균 국외 기여율이 약 40% 수준임을 보고하였으며, Lee *et al.* (2019)은 2019년 2월 27일~3월 7일 동안의 수도권 $PM_{2.5}$ 고농도 사례에 대해 국외 기여율을 78.8%로 분석하였다. Bae *et al.* (2020b)은 2012~2016년 수도권 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 중국 배출량의 기간 평균 기여율을 41~44% 수준으로 추정하였으며, 계절별로는 봄철에 50%로 가장 높게 나타남을 보였다.

이처럼 서울에 대해 많은 배출원 - 수용지 분석이 수행되었으나, 주로 국가 단위에서 배출지역을 구분하였다. 또한, 지역별 $PM_{2.5}$ 농도를 이해하기 위한 다양한 연구가 이루어져 왔으나, 서울에 대한 배출원 특성, 그리고 서울이 주변지역에 주는 영향 혹은 받는 영향 등을 정량적으로 파악한 연구는 드물다. 이에, 본 연구에서는 국내 지자체별 $PM_{2.5}$의 배출원 - 수용지 관계를 분석한 동반논문(Kim *et al.*, 2021a; You *et al.*, 2020)에 이어서, 서울 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 국외, 그리고 국내 시도별 배출량의 기여도를 정량적으로 분석하고 고찰하였다.

2. 연구 방법

2.1 대상 지역 선정 및 배출 특성

지역별 기여도 분석에서 동반연구(Kim *et al.*, 2021a; You *et al.*, 2020)는 대상 광역 지자체를 세분한 기초 지자체 수준에서 수행되었다. 그러나 서울의 경우, 면적이 좁고(605.2 km^2, 약 68개의 3-km 수평 해상도 격자에 해당), 지역 내 측정소들의 연평균 $PM_{2.5}$ 농도의 표준편차가 1.6 μg/m^3(평균 26.2 μg/m^3)으로 $PM_{2.5}$ 농도 구배가 작다. 따라서 본 연구에서는 서울을 구 단위의 기초 지자체로 세분하는 대신 서울 $PM_{2.5}$ 농도에 영향을 미치는 배출지역을 광역 지자체와 기초 지자체 수준으로 구분하고, 기여도를 분석하였다. 배출원 - 수용지 관계를 분석함에 있어서 서울이 주변지역으로부터 받는 기여도뿐만 아니라 주변지역에 주는 기여도를 함께 분석하였다.

남한은 중국과 북한의 풍하 지역에 위치하고 있어 국외 배출에 의한 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 영향이 연평균 50% 이내로 알려져 있다(Bae *et al.*, 2020b; Bae *et al.*, 2018; Kim *et al.*, 2017a). 이에, 국내 주요 지역 배출의 서울 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 기여도를 분석하기 이전에 국외 배출에 의한 기여도(이하 '국외 기여도')와 국내 배출에 의한 기여도(이하 '국내 기여도')를 살펴보았다. 국내 기여도는 서울 배출에 의한 기여도인 '자체 기여도'와 주변지역의 배출에 의한 기여도(이하 '주변지역 기여도')로 구분하였다. 이때, 주변지역은 경기, 인천, 거리는 멀지만 오염물질 배출량이 높고 기상 조건에 따라 수도권 대기질에 적지 않은 영향을 주는 것

으로 알려진 충남(Bae *et al.*, 2020c; Kim *et al.*, 2016a), 그리고 그 외 지역을 포함하고 있다. 바다로 분류된 해상 배출량도 기여도 분석에 포함하였으며, 그 외 지역으로 구분하였다. 단, 국외 기여도는 모사된 $PM_{2.5}$ 농도에서 국내 기여도를 제외한 농도로 보았다. 기여도는 기여농도와 기여율(=기여농도/$PM_{2.5}$ 농도×100%)로 구분하였다.

2.2 기상 및 대기질 관측자료

본 연구에서 수행한 기상 및 대기질 모사를 평가하기 위하여 관측자료와 모사 결과를 비교하였다. 기상 관측자료는 기상청에서 제공하는 서울 Automated Synoptic Observing System (ASOS) 지점에서의 1시간 간격의 풍속, 기온을 이용하였다. 대기질 관측자료는 에어코리아(www.airkorea.or.kr)에서 제공하는 도시대기측정망의 서울 25개 지점에 대한 1시간 간격의 $PM_{2.5}$, NO_2, SO_2를 이용하였다. $PM_{2.5}$ 성분 농도는 불광동에 위치한 수도권 대기환경연구소에서 관측되는 1시간 간격 자료를 이용하였다. 또한, 국외 기여도의 불확도를 추정하기 위해서 백령도 대기환경연구소의 $PM_{2.5}$ 관측 농도와 모사 결과를 비교하였다.

2.3 대기질 모사 및 기여도 분석 방법

분석 기간은 2016년 1월 1일부터 12월 31일로 설정하였다. 기상 입력자료는 Weather Research and Forecasting (WRF; Skamarock and Klemp, 2008) v3.9를 수행하여 마련하였으며, 기상 초기장은 6시간 간격의 1°×1° 해상도의 National Centers for Environmental Prediction-Final (NCEP-FNL)을 이용하였다. 배출량 입력자료는 국내 및 국외에 대하여 Clean Air Policy Support System (CAPSS) 2016와 Comprehensive Regional Emissions inventory for Atmospheric Transport Experiment (CREATE) 2015을 입력자료로 Sparse Matrix Operator Kernel Emissions (SMOKE; Benjey *et al.*, 2001) v3.1을 수행하여 준비하였다. 대기질 모사를 위하여 Comprehensive Air Quality Model with eXtension (CAMx; Ramboll-ENVIRON, 2016) version 6.2를 Particulate Source Apportionment Technology (PSAT)과 함께 수행하였다. PSAT은 배출된 오염물질이 농도로 발현되는 과정을 추적하므로 민감도 모사에서 발생하는 배출 - 농도의 비선형성의 문제는 발생하지 않는다. 다만, CAMx-PSAT의 기여도는 언제나 양의 값을 가지며, 현재의 대기 조건에서의 기여도를 추정하

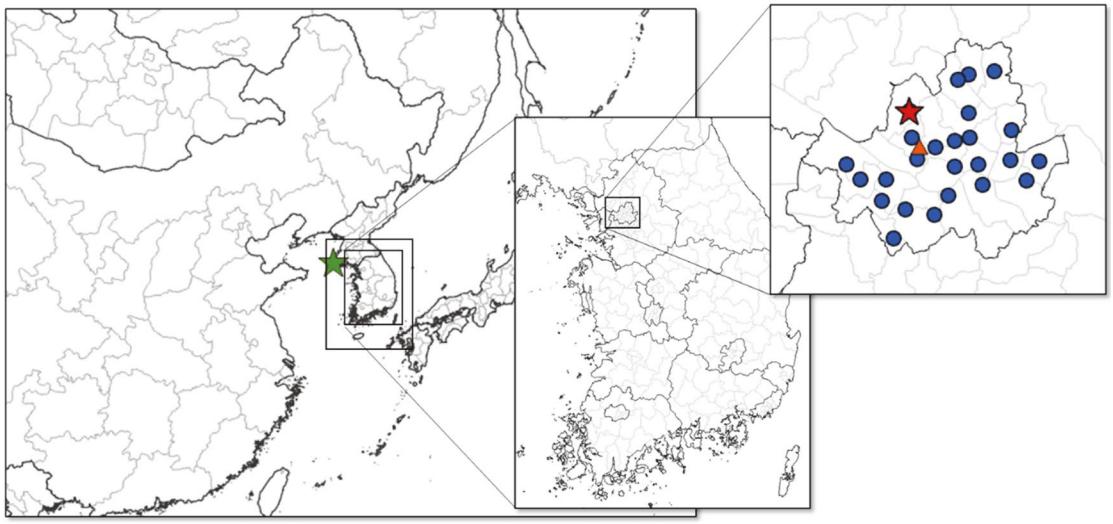

Fig. 1. Modeling domains at 27-, 9-, and 3-km horizontal resolutions. The blue dots depict locations of air quality measurement stations. The orange triangle indicates the ASOS meteorology site in Seoul. The green and red stars show locations of supersites in Baengnyeong and Seoul, respectively.

는 것이므로 NO_x-disbenefit과 같은 배출 감소에 따른 농도 증가 현상 등을 고려하지 못한다.

모사영역은 국외 배출 영향 및 경계장 설정을 위하여 동북아를 포함하는 지역에 대해 27 km 수평 해상도, 북한 일부와 한반도 영역에 대해 9 km 수평 해상도, 국내에 대해 3 km 수평 해상도로 설정하였다(그림 1). 배출원-수용지 관계는 3 km 모사영역 결과를 이용하여 분석하였다. 대기질 모사 시 화학 메커니즘은 SAPRC99 (Carter, 2016)을 이용하였으며, 에어로졸 모듈은 Static two-mode (Coarse/Fine modes; CF; Ramboll-ENVIRON, 2016)를 이용하였다. 그 외 자세한 모사 옵션은 동반연구 Kim *et al.* (2021a)과 You *et al.* (2020)을 참고할 수 있다.

3. 결 과

3.1 CAPSS 2016 지역별 배출량

본 연구에서 국내 배출목록으로 사용된 CAPSS 2016의 총 NO_x 및 SO_2 배출량은 각각 123만 톤/년, 36만 톤/년이다. 이 중, 서울의 NO_x, SO_2 배출량은 각각 73천 톤/년, 4천 톤/년으로 국내 배출량의 6%, 1%에 해당한다. 그 외, 서울의 PM_{10}, $PM_{2.5}$, VOCs, NH_3는 국내 전체 배출량 대비 1~6% 수준의 양을 배출하고 있다. 서울 배출량을 CAPSS 13개 대분류별로 살펴보면, NO_x 배출량은 도로 및 비도로이동오염원에서 각각 67%, 12%, 그리고 비산업연소에서 28% 배출된다. 서울의 SO_2는 92%가 비산업연소에서 배출되고 있다. 비산업연소는 주거시설, 상업 및 공공기관시설 및 농업, 축산, 수산업 시설에서 배출되는 오염물질을 포함한다. PM_{10}과 $PM_{2.5}$ 배출은 자동차 이동에 따른 비산먼지에서 주로 발생하였다. VOCs는 유기용제사용 부문에서 주로 배출되었다. 한편, 경기, 충남, 전남 등 국내 대부분의 지역에서 NH_3 배출량은 농업 부문에서 주로 기인하였던 것과 달리 서울 NH_3의 63%는 '기타 면오염원'에서 배출되며, 기타 면오염원 중에서도 중분류-소분류가 동물-인간으로 분류된 배출부문에서 모두 배출되었다. 국립환경과학원(2013)과 U.S. EPA (1994)에 따르면, 해당 배출부문은 인간의 호흡과 땀에서 배출되는 NH_3에 대한 분류이다.

종합해 보면, 서울은 인구 밀도가 높아 이동오염원과 관련된 배출량과 주거 및 상업시설 부문에서 대부분의 오염물질이 배출되고 있다. 한편 서울의 주변 지역 배출량을 살펴보면, 서울을 둘러싸고 있는 경기에서는 국내 총 NO_x 배출량의 16%를 배출하며, 인천에서는 4%를 배출한다. 한편, 충남의 NO_x와 SO_2 배출량은 국내 전체의 11%, 23%를 차지한다.

전국 17개 시도의 물질별 배출량을 높은 순으로 나열해 보면, 서울의 NO_x 배출량은 17개 시도 가운데 7위에 해당하며, SO_2 배출량은 13위로 비교적 낮다. 그러나, 각 시도의 면적을 고려하여 배출밀도 순으로 살펴보면 SO_2와 NH_3를 제외한 모든 물질에 대해 전국에서 가장 높은 순위를 보였다(표 S1). 대기질 모사에 활용된 격자별 배출량은 면적에 따른 배출량으로, 배출밀도와 동일하게 해석될 수 있다(그림 2). SO_2는 서울 대부분의 지역에서 2.0톤/년/격자 이상 배출되었으며, 주변지역 중에서는 인천과 경기 서부, 그리고 충남의 북쪽에서 SO_2가 다량 배출되었다. 서울의 NO_x 배출량은 주변지역에 비하여 3배 이상 높게 분포하였다. 인천과 경기 서부 및 남부에서도 주변지역에 비하여 높은 NO_x 배출분포를 보였다. 서울의 연간 NH_3 배출량은 국내 총 배출량의 1% 수준이나, 배출밀도는 6.5톤/년/km^2로 인천(6.6톤/년/km^2) 및 충남(6.0톤/년/km^2)과 유사하다. $PM_{2.5}$는 수도권 지역에서 주요하게 배출되었으며, 그중에서도 서울의 배출밀도가 높다. 충남의 $PM_{2.5}$는 다른 배출물질과 유사하게 수도권과 인접한 충남 북부인 당진과 서산 등에 배출량이 집중되어 있으므로 그 영향 또한 작지 않을 것으로 예상된다.

3.2 기상 및 대기질 모사수행평가

기상 모사수행평가를 위해 서울의 ASOS 지점에서 일평균 관측값과 해당 격자의 모사 결과를 비교하였다(그림 S1). 2016년 한 해 동안 모사된 10 m 풍속의

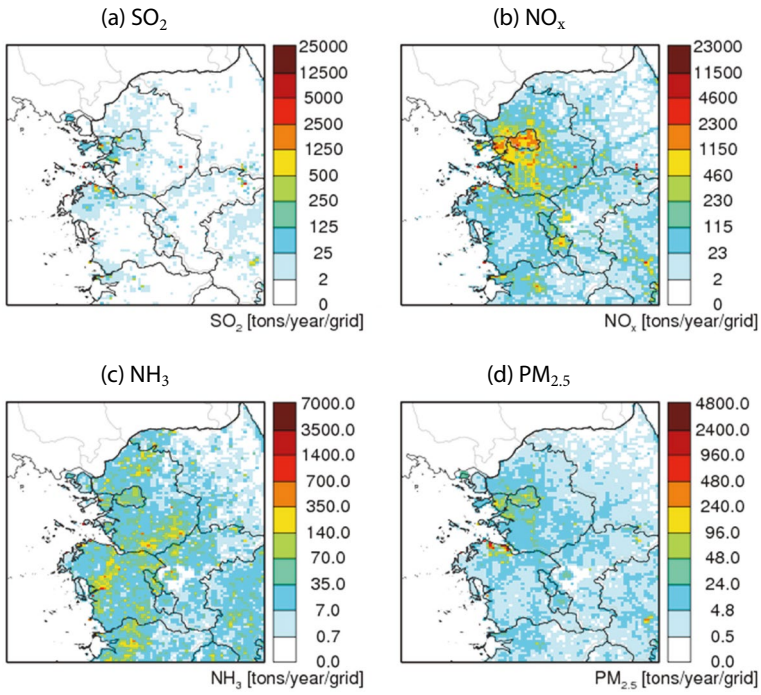

Fig. 2. Spatial distributions of (a) SO_2, (b) NO_x, (c) NH_3, and (d) $PM_{2.5}$ emissions during the study period in 2016.

평균값은 2.3 m/s으로 관측값과 동일하였으며, 이들 간의 상관계수(Correlation coefficient; R)는 0.90로 분석되었다. 서울의 풍속은 겨울철에 높고 여름철에 낮은 경향을 보였다. 2 m 기온의 연평균 관측과 모사는 각각 13.6, 14.1°C로 0.5°C가량 과대 모사하였으며, 상관계수는 1.00으로 높은 일치도를 보였다. 동일 지점에서 모사 결과를 통해 각 기간 동안의 시간별 서울의 풍속 및 풍향의 빈도를 분석하였다(그림 S2). 2016년 1년 동안 서울은 서풍계열의 바람의 영향을 주로 받았다. 계절별로 나누어 살펴보면, 계절풍의 영향으로 겨울철에는 북서풍의 빈도가 30% 이상으로 높았으며, 봄철에는 서풍계열의 빈도가 70% 이상으로 높았다. 여름철에는 동풍의 빈도가 20%로, 타 계절에 비하여 높았으며, 가을에는 서풍과 남서풍의 빈도가 가장 높게 분석되었다. 본 연구 대상 기간인 2016년의 2 m 기온은 평년(1981~2010년)에 비하여 1.1°C 높고, 10 m 풍속은 동일하며, 연강수량이 459 mm 낮았다(KMA, 2016). 최근 연도인 2020년에 비해서는 2 m 기온의 경우 0.3°C가량 높고, 10 m 풍속은 0.1 m/s 낮으며, 연강수량은 659 mm 낮았다.

서울의 $PM_{2.5}$ 농도는 기간평균 26.2 μg/m^{3}로 관측되었으며, 모사는 30.2 μg/m^{3}로 4 μg/m^{3}가량 과대 모사하였다(그림 S1). 서울의 일평균 $PM_{2.5}$ 농도는 3~4월에 높게 나타나며, 여름철에 낮은 계절적 차이를 보였다. 한편, SO_2의 연평균 관측 및 모사 농도는 모두 4.9 ppb이며, 상관계수는 0.74로 분석되었다. 일평균 SO_2는 $PM_{2.5}$와 마찬가지로 3~4월에 연평균 대비 농도가 높아 5.0 ppb 이상의 농도를 보였다. 5~8월에는 일평균 SO_2 농도가 3.0~5.0 ppb로 관측되었으나 모사는 1.0~4.0 ppb 수준으로 과소 모사하였다. 이는 모델 자체의 불확도, 혹은 배출량 과소평가, 기상 입력자료 및 관측자료 자체의 불확도 등 다양한 요인이 있을 수 있다. 한편, 서울의 NO_2 농도는 연평균 31.4 ppb로 관측되었으며, 모사는 36.7 ppb의 농도를 보여 5.3 ppb가

량 과대 모사되었다. 월평균 NO_2 농도는 3월에 과소 모사되었으나, 8~9월에는 최대 10 ppb가량 과대 모사하였다. 단, 상관계수는 0.66으로 비교적 낮은 값을 보였다(그림 S1). 다만, 현재 NO_2 관측에 이용되는 몰리브덴을 촉매로 하는 화학발광법의 경우 NO_z의 간섭으로 인해 NO_2 농도가 과대 평가되는 불확도가 있는 것으로 보고되었다(Kim *et al.*, 2016b; Kleffmann *et al.*, 2013).

$PM_{2.5}$ 성분 농도에 대한 모사 결과를 검토하기 위하여 수도권 대기환경연구소에서의 일평균 관측과 비교하였다(그림 3). 기간 평균 질산염 관측 및 모사 농도는 4.5, 7.0 μg/m^{3}으로, 2.5 μg/m^{3}가량 과대 모사하였다. 질산염은 1~4월 월평균 관측 농도가 7.6~8.1 μg/m^{3}로 높고, 7~8월에 1.8 μg/m^3 이하의 농도를 보였다. 황산염은 기간평균 관측 및 모사 농도가 각각 4.8, 7.0 μg/m^{3}으로 약 2.2 μg/m^3 과대 모사하였다. 황산염의 월평균 관측 농도는 4~6월에 6.4~7.2 μg/m^{3}로 높게 분포하였다. 한편, Elemental Carbon (EC)의 연평균 관측과 모사 농도는 1.2, 1.4 μg/m^{3}으로 유사한 수준을 보였다. Organic Carbon (OC)의 경우 연평균 관측 농도는 3.6 μg/m^{3}이나, 모사는 2.9 μg/m^{3}로 과소 평가하였다. OC의 대부분은 Primary OC (POC)이며,

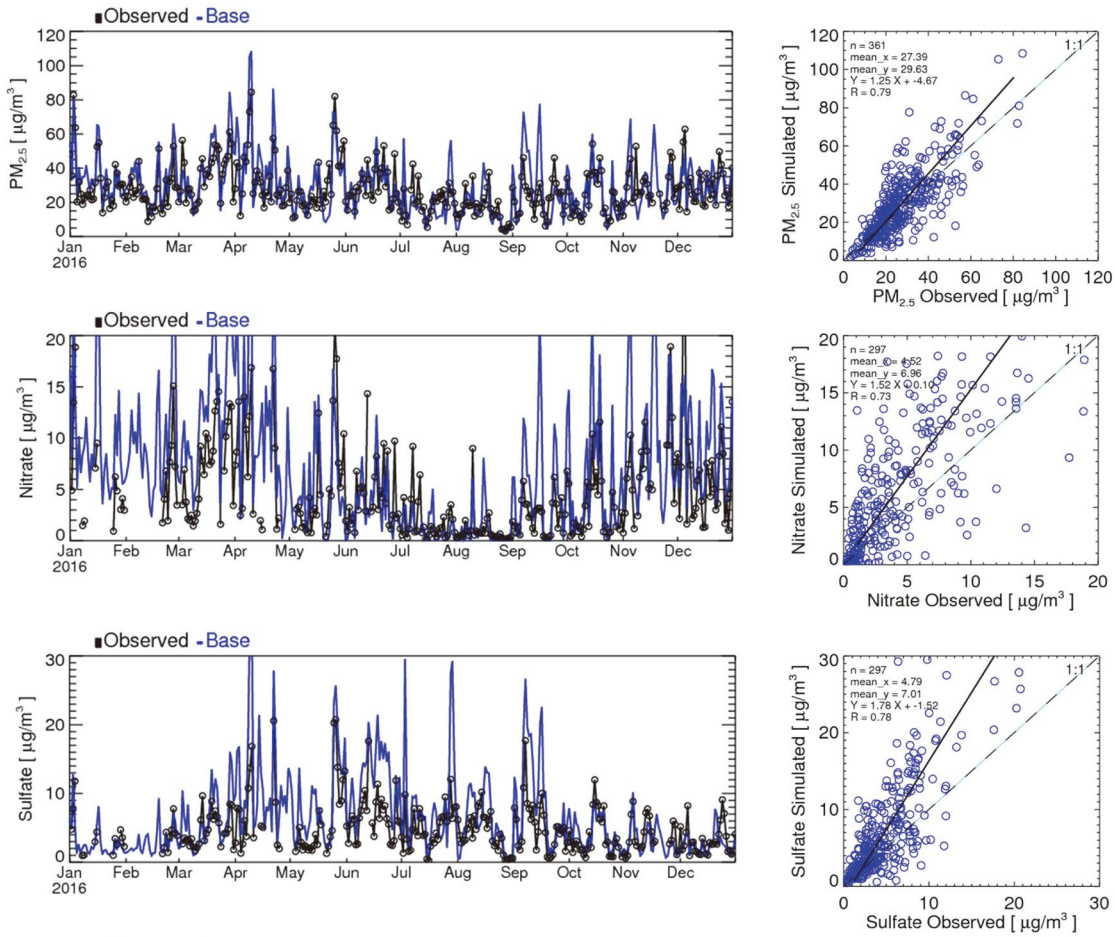

Fig. 3. Time series and scatter of daily mean observated and simulated concentrations of $PM_{2.5}$ and its composition at Bulgwang supersite during study period in 2016.

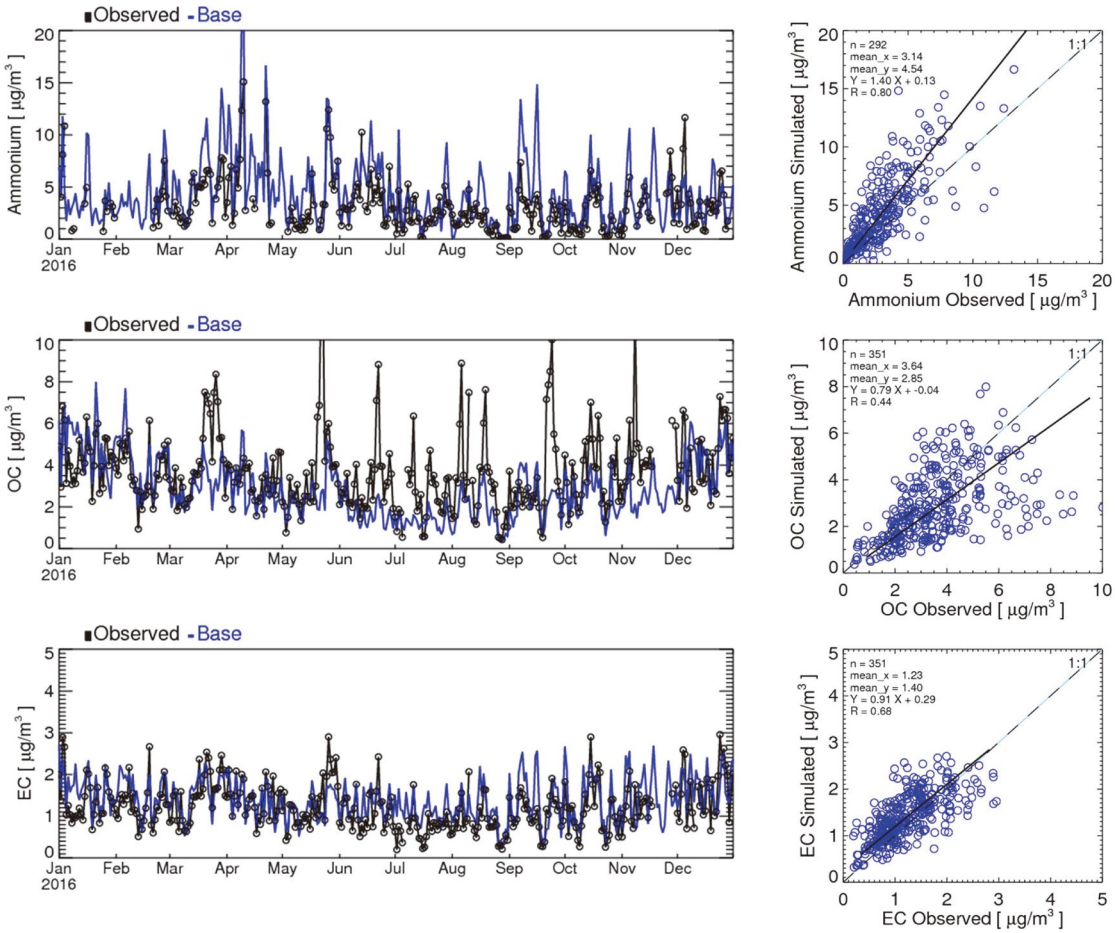

Fig. 3. Continued.

대기질 모사에서 Secondary OC (SOC)의 재현성이 제한적인 것으로 알려져 있다(Zhao *et al.*, 2016; Koo *et al.*, 2014). 따라서 성분별 기여도 분석에서 POC와 EC를 Primary $PM_{2.5}$ ($PPM_{2.5}$)로 포함하고, SOC는 제외하였다. $PM_{2.5}$ 성분농도에 대한 모사 수행평가 결과를 종합하면, 본 연구에서 제시된 질산염, 황산염, 암모늄에 대한 과대 모사가 나타나는 바, 본 연구에서 평가된 서울에 대한 배출지역별 기여농도가 과대 평가되었을 가능성을 감안할 필요가 있다.

3.3 국외 및 국내 배출에 의한 서울 $PM_{2.5}$ 기여도

서울 연평균 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 국외 기여농도는 18.0 μg/m^3, 국내 기여농도는 11.8 μg/m^{3}으로 모사되었다 (그림 S3). 월평균 국외 기여농도는 6.0 (8월)~29.0 μg/m^3 (4월)로, 국외 기여율은 봄철과 겨울철인 11~5월에 58~73%로 높고, 여름철과 가을철인 6~10월 38~56%로 비교적 낮은 값을 보였다(그림 4). 봄철과 겨울철 나타나는 서울의 고농도 $PM_{2.5}$ 농도 개선을 위해서는 국내의 노력과 함께 국외 배출 저감이 이루어져야 함을 시사한다. 다만, 최근 2013~2017년 사이 중국의 SO_2와 $PM_{2.5}$ 배출량이 각각 50%, 30% 이상, 그리고 그 외 물질에 대해서도 배출량이 감소하는 추세인 것으로 보고되고 있다(Zheng *et al.*, 2018). 이를 감안하면 최근 국외 기여도는 본 연구에서 제시

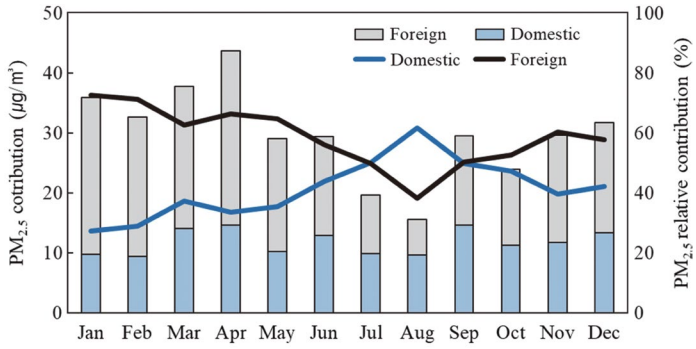

Fig. 4. Monthly mean domestic and foreign emissions contributions and relative contributions to $PM_{2.5}$ in Seoul during the simulation period of 2016. Bars and lines indicate $PM_{2.5}$ contributions and relative contributions.

한 값보다 작을 것으로 예상된다. 이에, 국외 배출 및 모사의 불확도를 고려하기 위하여 국내 배경지역인 백령도 대기환경연구소에서의 $PM_{2.5}$ 관측과 모사 농도차(2.2 μg/m^3)를 바탕으로 서울 $PM_{2.5}$에 대한 국외 기여농도를 보정하여 재산정하면, 보정 전후 기여농도가 18.0 μg/m^{3}에서 15.8 μg/m^{3}로, 기여율은 60%에서 57%로 감소하였다. 서울의 $PM_{2.5}$ 농도를 이해하기 위해서는 국외 기여도를 파악하는 것 또한 중요하므로, 향후 국외 배출량 최신화에 따른 기여도 변화가 검토될 필요가 있다. 한편, 서울 $PM_{2.5}$에 대한 국내 월별 기여농도가 4월과 9월에 14.7 μg/m^{3}까지 높아지고, 가장 낮은 2월에도 9.4 μg/m^3 이상 유지되는 점을 감안하면, 국내의 자체적인 노력에 의해서 $PM_{2.5}$농도를 개선시킬 수 있는 잠재력 역시 높은 것으로 판단된다.

3. 4 자체 및 주변지역의 $PM_{2.5}$ 기여농도

서울 연평균 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 자체기여도는 서울 중심부에서 6.0 μg/m^3 이상, 서울 외곽에서는 1.0 μg/m^3 이상이며, 평균 4.5 μg/m^{3}로 모사되었다(그림 5). 주변지역 중에서는 서울을 둘러싸고 있는 경기도에서 연평균 3.3 μg/m^{3}로 가장 높은 기여농도를 보였으며, 충남과 인천이 각각 1.5, 1.1 μg/m^{3}씩 기여하였다.

서울의 NO_x 배출량이 전국적으로 높은 수준임에도 불구하고, 서울 질산염 농도에 대해 자체 기여농도(0.3 μg/m^3)보다는 경기와 충남의 기여농도가 각각 1.0, 0.5 μg/m^{3}으로 더 높게 모사되었다. 서울 배출에 의한 질산염 기여농도는 서울 자체보다는 경기 남부 등 풍하 지역에서 오히려 높게 분석되었다. NO_x 배출이 높은 도심에서는 NO-titration ($NO + O_3 \rightarrow NO_2 + O_2$)에 의해 O_3, OH와 같은 radical이 감소하며, 이에 따라 아래와 같은 반응들이 제한적으로 일어나면서 $NO_2 \rightarrow HNO_3$로의 산화가 제한되었기 때문으로 이해된다 (Huang *et al.*, 2021).

$$NO_2 + OH \rightleftarrows HNO_3$$

$$NO_2 + O_3 \rightarrow N_2O_5$$

$$N_2O_5 + H_2O \rightarrow 2HNO_3$$

따라서, 서울에서는 NO_x 배출이 높음에도 불구하고 HNO_3 생성 속도는 낮아, 질산염에 대한 자체 기여농도가 낮은 것으로 추정된다(Kim *et al.*, 2021b; Kim *et al.*, 2017c). 이를 보다 자세히 살펴보기 위해서는 서울 NO_x 배출에 대해 Process Analysis와 같은 진단 모델을 통한 화학 및 에어로졸 반응 과정에 대한 상세 분석이 필요하다. Kim *et al.* (2021b)과 Kim *et al.* (2017b)에 따르면, 서울의 NO_x 배출량을 삭감하였을 때 $PM_{2.5}$ 농도가 증가하는 NO_x-disbenefit 현상이 모사되었으나, 본 연구에서 이용한 표식 기법에서는 앞서 언급하였듯 음의 기여도는 산정되지 않는다.

한편, 황산염에 대한 자체 기여농도는 서울 전 지역

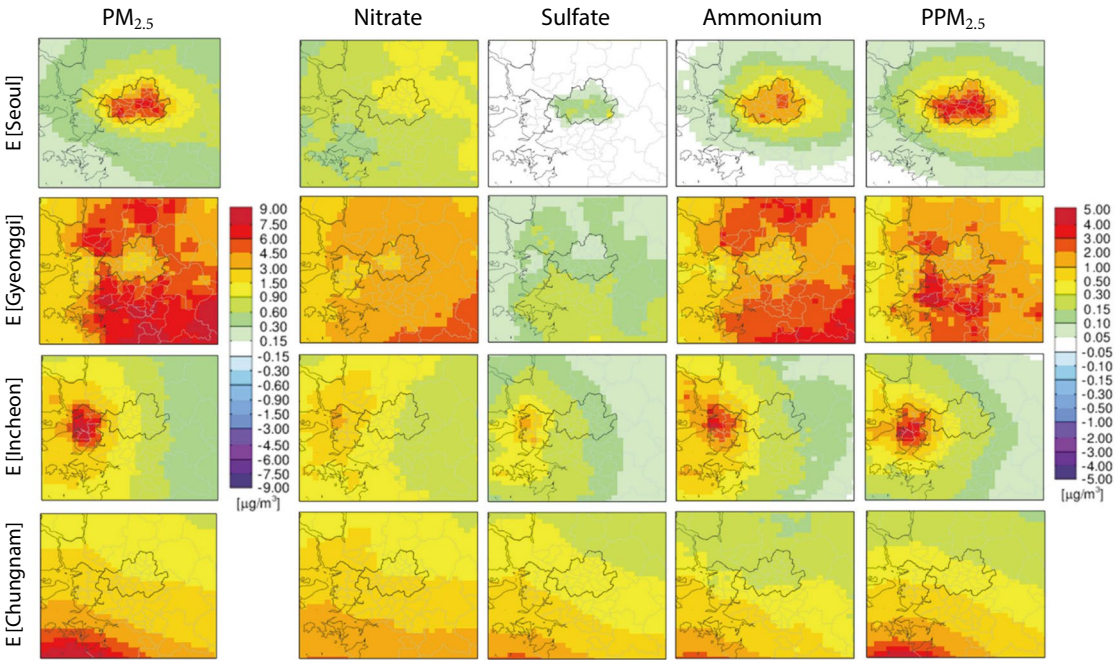

Fig. 5. Annual mean contributions of emissions released from Seoul, Gyeonggi, Incheon, and Chungnam to $PM_{2.5}$, nitrate, sulfate, ammonium, and primary $PM_{2.5}$ during the simulation period of 2016.

에서 0.1~0.2 μg/m^3, 평균 0.1 μg/m^{3}로 모사되어, 인천(0.2 μg/m^3)과 충남(0.4 μg/m^3)의 기여농도에 비해 낮았다. 이는 서울의 SO_2 배출이 주변 지역에 비해 상대적으로 낮기 때문으로 판단된다. 암모늄의 경우 자체 기여농도가 1.6 μg/m^{3}으로 주변지역 기여농도(0.3~0.9 μg/m^3)보다 높게 모사되었다. 서울의 NH_3 배출밀도가 경기나 인천과 유사하거나 높은 수준이므로, 자체적인 영향이 높은 것으로 판단된다. $PPM_{2.5}$에 대한 서울 자체의 기여농도가 2.5 μg/m^{3}로 암모늄과 마찬가지로 자체적인 영향이 가장 높았으며, 경기, 충남, 인천이 각각 1.2, 0.4, 0.3 μg/m^{3}의 기여농도를 보였다.

경기는 서울을 둘러싸고 있으며, 서울 인근에서 배출 밀도가 높고(그림 2), 인천은 서풍의 영향을 주로 받는 서울의 풍상지역에 위치하기 때문에 서울 $PM_{2.5}$는 경기와 인천 배출에 의한 기여농도가 높다. 한편, 충남은 경기와 인천에 비해 상대적으로 서울과 먼 거리에 위치하고 있으나, $PM_{2.5}$ 농도와 대부분의 성분 농도에 대해 경기 및 인천과 유사한 수준의 기여농도를 보였다. 이는 충남 북쪽인 당진, 보령, 서산 등에 화력발전, 제철업 등 국내 주요 대형 점오염원이 밀집되어 위치하고 있기 때문으로 판단된다(Kim *et al.*, 2019; Kim *et al.*, 2016a). 이러한 결과로부터 서울의 $PM_{2.5}$ 농도를 개선하기 위해서는 주변지역과의 협력이 필수적임을 확인할 수 있다.

배출지역별 서울 $PM_{2.5}$ 구성성분에 대한 월별 기여농도를 그림 6에서 살펴보았다. 서울 월평균 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 자체 기여농도는 3.3 (7월)~6.0 μg/m^3 (12월) 수준으로 분석되었다. 월별 자체 기여농도는 10~2월 동안 국내 기여농도 중 50% 내외를 차지하였다. 한편, 2016년 동안 주변지역 중에서는 경기의 기여농도가 2.4 (7월)~4.6 μg/m^3 (9월)으로 모든 월에 걸쳐 높게 나타났다. 인천의 월별 $PM_{2.5}$ 기여농도는 0.3 (11월)~2.1 μg/m^3 (4월) 수준으로, 특히 3~6월에 높은

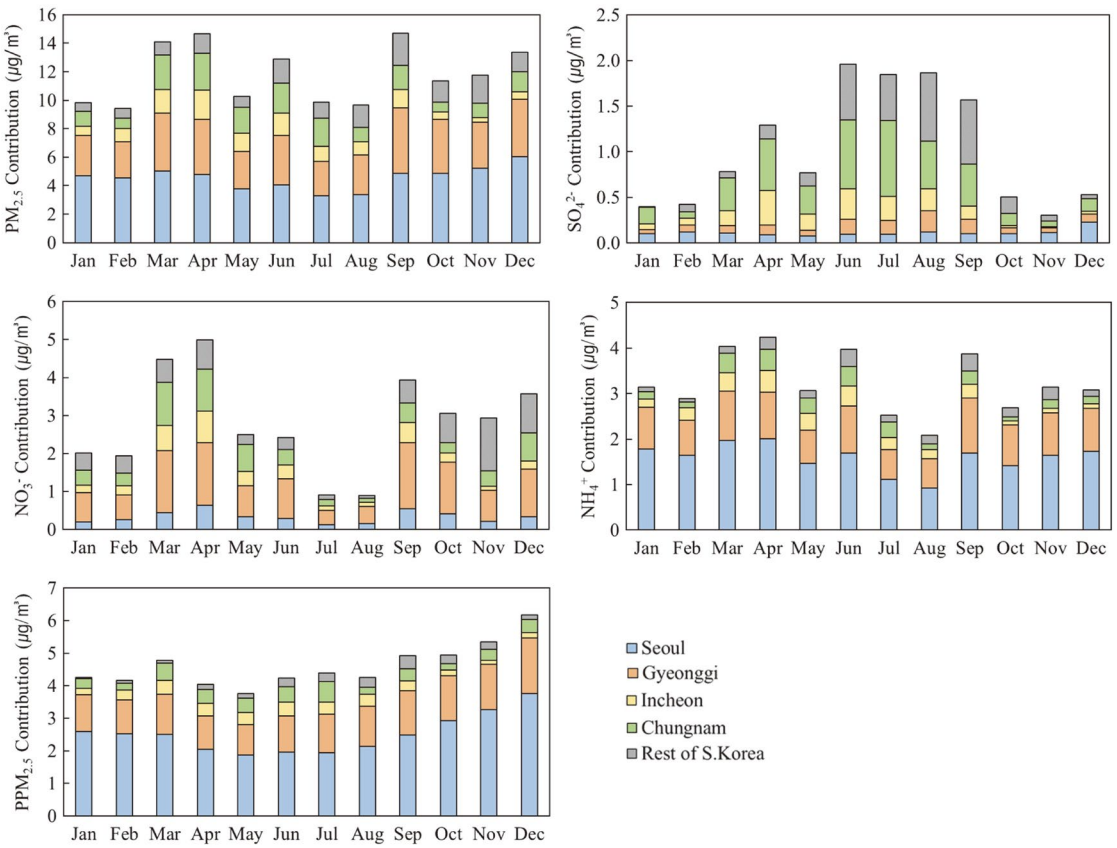

Fig. 6. The self- and neighboring provincial contributions to the monthly mean $PM_{2.5}$ and its components in Seoul during the simulation period in 2016.

기여농도를 보였다. 동반연구인 Kim *et al.* (2021a)과 You *et al.* (2020)에 따르면, 서울의 배출은 경기와 인천의 연평균 $PM_{2.5}$ 농도에 각각 0.8 μg/m^3 (2.8%), 0.5 μg/m^3 (1.7%) 기여하였다. 한편, 충남의 월별 $PM_{2.5}$ 기여농도는 0.7~2.6 μg/m^{3}의 수준으로 남풍의 빈도가 높아지는 봄철과 여름철에 높게 분석되었다.

서울의 질산염에 대한 국내 기여농도는 7~8월에 낮고, 3~4월과 9~12월에 높아지는 계절적 차이를 보였다. 서울의 질산염에 대한 자체 기여농도는 0.1 (7월)~0.6 μg/m^3 (4월)로 분석되었으며, 경기의 기여농도는 이보다 3배 이상 높은 0.4 (7월)~1.6 μg/m^3 (3월)로 모사되었다. 경기의 기여농도는 서울 질산염에 대한 국내 기여농도의 40%에 해당하는 양으로, 그림 5에 보인 바와 같이 경기의 NO_x 배출이 서울의 질산염 농도에 중요한 인자임을 의미한다. 이와 관련하여 Kim *et al.* (2021d) 연구에서는 수도권 경유차의 NO_x 배출량(수도권 전체 NO_x 배출량의 48%)을 감소시키는 경우, 겨울철 질산염 농도가 증가하는 것으로 모사되었지만, 다른 오염원의 NO_x 배출량을 추가로 감소시킨(수도권 NO_x 배출량의 62% 저감) 모사에서는 동기간에 대해 질산염 농도가 감소하는 것으로 나타났다. 즉, 서울의 경우 높은 NO_x 배출량으로 인해 50% 이내의 NO_x 배출량 저감 시 겨울철 동안 NO_x disbenefit 효과가 발생할 수 있을 것으로 예측되나, 60% 이상의 NO_x 배출량 저감은 서울 질산염 농도 감소에 효과적일 것으로 보인다. 따라서, $PM_{2.5}$ 개선대책 수립

시 질산염을 감소시킬 수 있는 충분한 NO_x 배출량 저감이 필요하며, 정책 수립 과정에서 배출 저감량에 따른 농도 감소 효과를 면밀히 살펴볼 필요가 있다.

한편, 서울의 연평균 황산염 농도는 6.5 μg/m^{3}로 모사되었으며, 이 가운데 1.0 μg/m^{3}만이 국내 기여농도로 분석되어, 대부분이 국외 배출에 의한 것으로 나타났다. 다만, 이는 앞서 언급한 바와 같이 최근 중국의 SO_2 배출이 50% 이상 감소한 것을 감안하면, 국외 기여농도가 감소하였을 것으로 추정된다. 황산염에 대한 국내 기여농도는 10~2월에는 0.5 μg/m^3 이내로 작게 나타나지만, 6~9월에는 1.5 μg/m^3 이상으로 높게 분석되었다. 이는 질산염의 계절특성과는 반대인 것으로(Bae *et al.*, 2020a), 여름철에는 광화학 반응이 활발해져, O_3과 H_2O_2와 같은 산화제 증가 및 이로 인한 SO_2의 황산염으로의 전환이 증가하기 때문이다(Seinfeld and Pandis, 2016). 국내 기여농도 중에서도 그림 6에 보인 바와 같이 충남의 월별 기여농도가 0.1~0.8 μg/m^3 수준이며, 여름철에 높다. 특히, 황산염에 대한 충남 기여농도는 서울, 경기, 인천 기여농도의 합보다도 크게 모사되었다.

황산염과 질산염이 각각 특정 계절에 높은 기여농도를 보인 것과 달리, 암모늄은 황산염 및 질산염의 생성과 모두 관련이 있는 바, 계절에 관계없이 국내 기여농도가 3.0 μg/m^3 내외로 꾸준히 높게 나타났다. 특히, 자체 기여농도가 월별로 0.9~2.0 μg/m^{3}의 분포를 보여 가장 주요하였으며, 그 다음으로는 경기 기여농도가 0.6~1.2 μg/m^{3}으로 높았다. 암모늄의 기여농도와 황산염 및 질산염 기여농도를 당량비로 비교하면, 암모늄의 국내 및 서울의 기여농도가 상대적으로 더 높게 나타난다. 이는 국외로부터 HNO_3와 같은 질산염 전구물질이 국내에 유입된 후, 국내에서 발생되는 NH_3와 반응한 결과로 이해된다(Kim *et al.*, 2021b; Kim *et al.*, 2021c). $PPM_{2.5}$에 대한 월별 국내 기여농도는 3.8 (5월)~6.2 μg/m^3 (12월)로 분석되었으며, $PM_{2.5}$ 농도가 높아지는 겨울철 동안 자체 기여농도가 높은 경향을 보였다. 1차 오염물질은 배출지역에서 가장 높은 기여도를 보이는 바(Kim *et al.*, 2017a; Kim *et al.*, 2017b), 서울의 자체 기여농도가 1.9 (5월)~3.8 μg/m^3 (12월)로 주요하였다.

3.5 자체 및 주변지역 배출량의 서울 $PM_{2.5}$ 전환율

서울의 $PM_{2.5}$ 성분 농도에 대한 서울, 경기, 인천, 충남 배출량의 전환율(=서울에 대한 기여 농도/각 지역의 배출량)을 검토하였다. 전환율은 단위 배출량당 $PM_{2.5}$ 성분농도로의 전환 비율, 즉 단위 배출량당 기여농도로 이해될 수 있다(Kang *et al.*, 2021; Moon and Seo, 2018). 따라서 각 배출지역의 전환율 비교는 동일 배출량 저감 시 서울의 $PM_{2.5}$ 저감에 효율적인 배출 관리대상을 파악할 수 있다. 또한, 배출량 자료의 불확도 개선 및 배출량 변화를 반영하여 서울 $PM_{2.5}$농도에 대한 지역별 기여농도를 재산정할 수 있다.

월별 $NO_x \rightarrow NO_3^-$ 전환율(이하 'NO_x 전환율')의 연평균 값은 서울과 경기가 0.06 μg/m^3/KTPM (Kilotons per month), 인천이 0.08 μg/m^3/KTPM, 충남이 0.05 μg/m^3/KTPM로 산정되었다. 그림 5와 6에서 서울에 대해 경기의 질산염 기여농도가 높았던 것과 달리, 단위 배출량당 영향은 인천이 가장 높은 값을 보였다. 월별 NO_x 전환율은 모든 배출지역에 대해 3~5월, 9~10월에 높고, 7~8월에 낮은 경향이 나타났다(그림 7). 특히, 인천의 NO_x 전환율은 1~9월까지 서울에 비하여 최대 2배가량 높게 산정되었다. 이는 지역별 단위 NO_x 배출량 감축 시, 서울의 질산염 농도 개선에는 인천 NO_x 배출량 저감이 가장 효율적임을 의미한다. 1~9월 동안의 인천의 월별 NO_x 전환율이 경기의 NO_x 전환율에 비하여 최대 2.0~1.0배 높음에도 불구하고, 경기의 NO_x 배출량이 인천에 비해 4배가량 높아(표 1), 서울 질산염에 대한 경기 및 인천의 기여농도는 각각 1.0, 0.3 μg/m^{3}으로 경기가 3배 이상 높았다. 이처럼 전환율이 높다 하더라도, 총 배출량이 작은 경우 기여농도는 작을 수 있으므로, $PM_{2.5}$ 농도 관리 측면에서는 전환율과 기여농도를 모두 고려할 필요가 있다.

서울에 대한 연평균 $SO_2 \rightarrow SO_4^{2-}$ 전환율(이하 'SO_2

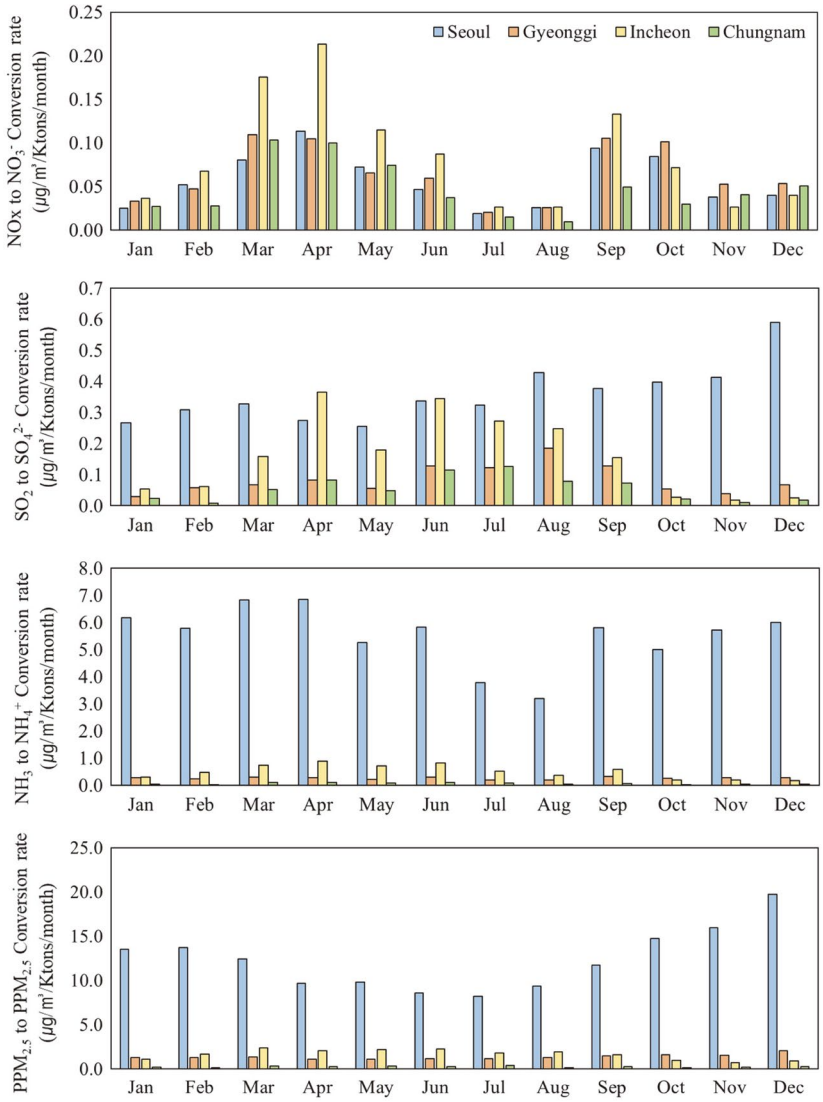

Fig. 7. Monthly emission-to-concentration conversion rates of NO_x, SO_2, NH_3, $PPM_{2.5}$ emissions from Seoul, Gyeonggi, Incheon, and Chungnam to nitrate, sulfate, ammonium, and $PPM_{2.5}$ in Seoul during the simulation period of 2016.

전환율')은 서울에서 0.36 μg/m^3/KTPM이며, 경기, 인천, 충남 배출에 의한 SO_2 전환율은 각각 0.08, 0.16, 0.05 μg/m^3/KTPM로 분석되었다. 서울에 대한 겨울철 SO_2 전환율은 서울 자체 지역에서 가장 높았다. 한편, 4~8월 인천의 SO_2 전환율 또한 서울과 유사하거나 소폭 낮은 값을 보였다. 서울에 대한 충남의 SO_2 전환율은 타 지역에 비해 낮은 값을 보이나, 충남 SO_2 배출량이 타 지역에 비해 5~21배 높기 때문에 기여농도가 높다. 따라서 황산염 농도 저감을 위해서는 서울 자체 뿐만 아니라 인천과 충남 지역에서의 저감이 모두 중요하다고 할 수 있다.

그 외 $NH_3 \rightarrow NH_4^+$의 전환율(이하 'NH_3 전환율')과 $PPM_{2.5} \rightarrow PPM_{2.5}$의 전환율(이하 '$PPM_{2.5}$ 전환율')은 서울지역의 자체 전환율이 가장 높게 분석되었다.

Table 1. Air pollutants emissions by provinces in the Clean Air Policy Support System (CAPSS) 2016. (unit: tons/year)

	CO	NO_x	SO_2	$PM_{2.5}$	VOCs	NH_3
Seoul	56,275 (7)	73,042 (6)	4,039 (1)	2,524 (3)	63,098 (6)	3,946 (1)
Combustion in energy industries	363	304	2	6	49	12
Non-industrial combustion plants	10,028	20,273	3,730	157	672	278
Combustion in manufacturing industries	79	254	15	1	11	4
Production processes	–	–	–	–	–	17
Energy storage and distribution	–	–	–	–	419	–
Solvent use	–	–	–	–	51,170	–
Road transportation	37,686	38,071	22	530	7,690	573
Non-road transportation	6,853	13,419	100	618	1,687	4
Waste treatment and disposal	100	692	169	12	1,229	3
Agriculture	–	–	–	–	–	572
Other sources & sinks	960	23	–	35	80	2,483
Fugitive dust	–	–	–	1,065	–	–
Biological combustion	207	7	0	100	91	0
Gyeonggi	131,070 (16)	203,655 (16)	15,415 (4)	11,127 (11)	185,131 (18)	46,428 (15)
Incheon	37,856 (5)	49,389 (4)	12,368 (3)	2,247 (2)	52,014 (5)	6,958 (2)
Chungnam	64,146 (8)	134,889 (11)	81,843 (23)	18,822 (19)	73,310 (7)	49,585 (16)
Rest of South Korea	505,696 (64)	787,335 (63)	245,285 (68)	65,528 (65)	650,475 (64)	194,384 (65)
Total	795,044	1,248,309	358,951	100,247	1,024,029	301,301

Each provincial emission's relative ratio to South Korean total emissions is in parentheses (unit: %).

특히, $PPM_{2.5}$는 앞서 언급한 바와 같이 1차 오염물질로, 배출지역에서 자체 기여도가 높기 때문이다(Kang *et al.*, 2021; Kim *et al.*, 2017c). 전환율의 크기로부터 서울 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 전구물질별 단위 배출량 당 영향은 $PPM_{2.5}$ 성분에 대해 가장 높았다.

3.6 서울 주변지역과의 $PM_{2.5}$ 상호 기여농도

주변지역 배출이 서울 $PM_{2.5}$에 영향을 주는 것과 마찬가지로 서울 배출 또한 주변지역의 $PM_{2.5}$ 농도에 기여한다. 서울의 배출은 자체지역에서 가장 높은 $PM_{2.5}$ 기여농도를 보이지만, 연간 주 풍향인 북서풍의 영향하에 남동쪽으로 넓은 지역에 걸쳐 영향을 보였다(그림 8). 서울에서 배출되는 오염물질은 인천, 경기의 대부분 시군, 그리고 충북과 강원 일부 지역의 $PM_{2.5}$ 농도에 0.8 μg/m^3 이상 기여하였다. 이는 연평균 대기환경기준인 15 μg/m^{3}의 5%에 해당하는 양이다.

성분별로 살펴보면, 서울에서 상대적으로 배출량이 낮은 SO_2의 경우 자체 및 주변지역의 황산염에 대한 기여농도는 0.07 μg/m^3 이하로 낮게 평가되었다. 서울의 NO_x 배출량은 앞서 언급된 바와 같이 질산염 농도에 자체 기여농도보다 풍하 지역인 경기 여주 및 구리에 대해 0.4 μg/m^{3}로 더욱 높았으며, 그 외에도 경기와 강원 일대에서 높은 기여농도를 보였다. 이처럼 서울에서 배출되는 NO_x의 경우 다른 전구물질과는 구별되는 기여농도의 공간분포를 보인다.

한편, 기초 지자체 수준에서 주변지역 배출량의 서울 $PM_{2.5}$ 및 성분농도에 대한 기여농도는 그림 9와 같다. 배출지역 표식 시, 인천의 경우 각 기초 지자체를 구분하지 않아 다른 지역에 비해 서울에 대해 높은 기여농도를 미치는 것으로 보이나, 경기 기초 지자체 기여농도의 합과 비교하면 낮은 수준이다(그림 5와 6). 경기의 기초 지자체 중에서는 서쪽에 위치한 지역들이 주로 서울 $PM_{2.5}$ 농도에 영향을 주었으며, 충남 중에서는 당진, 서산, 태안에서 주로 서울에 대한 높은 기여농도를 보였다. 해당 지자체들은 그림 2에서도 배출밀도가 높게 나타난다. 당진, 서산, 태안은 특히 황산염과 질산염 성분에 주요하게 기여하였으며, 그 중에서도 황산염은 당진의 기여농도가 서울 자체 기

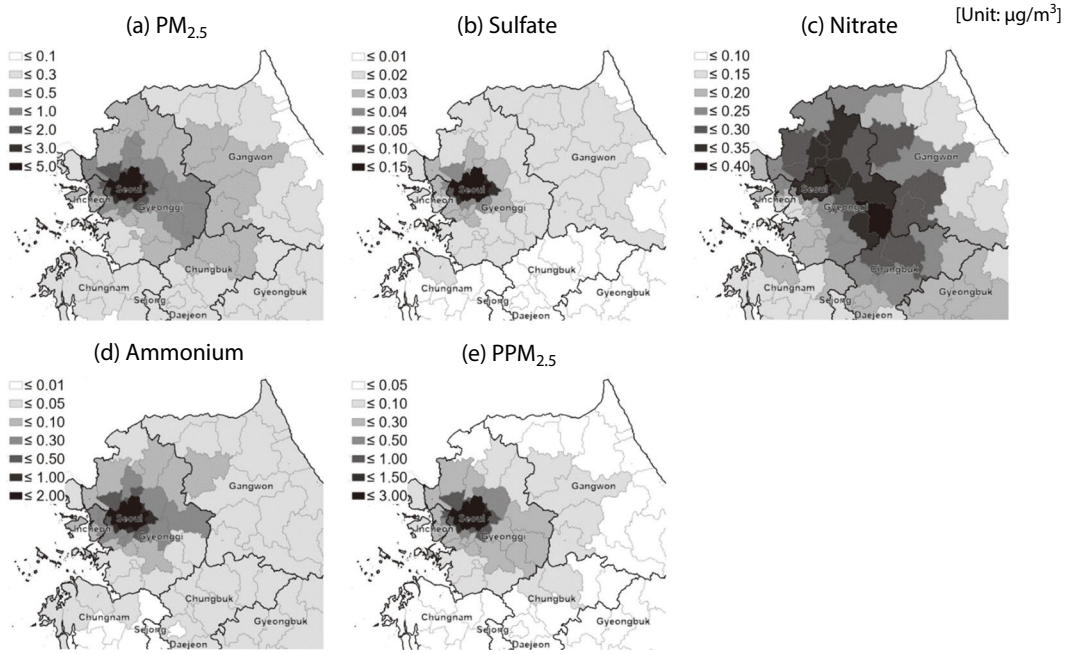

Fig. 8. The out-going contributions of the emissions released from Seoul to the annual mean (a) $PM_{2.5}$, (b) sulfate, (c) nitrate, (d) ammonium, and (e) $PPM_{2.5}$ concentrations in the surrounding local authorities during the simulation period of 2016.

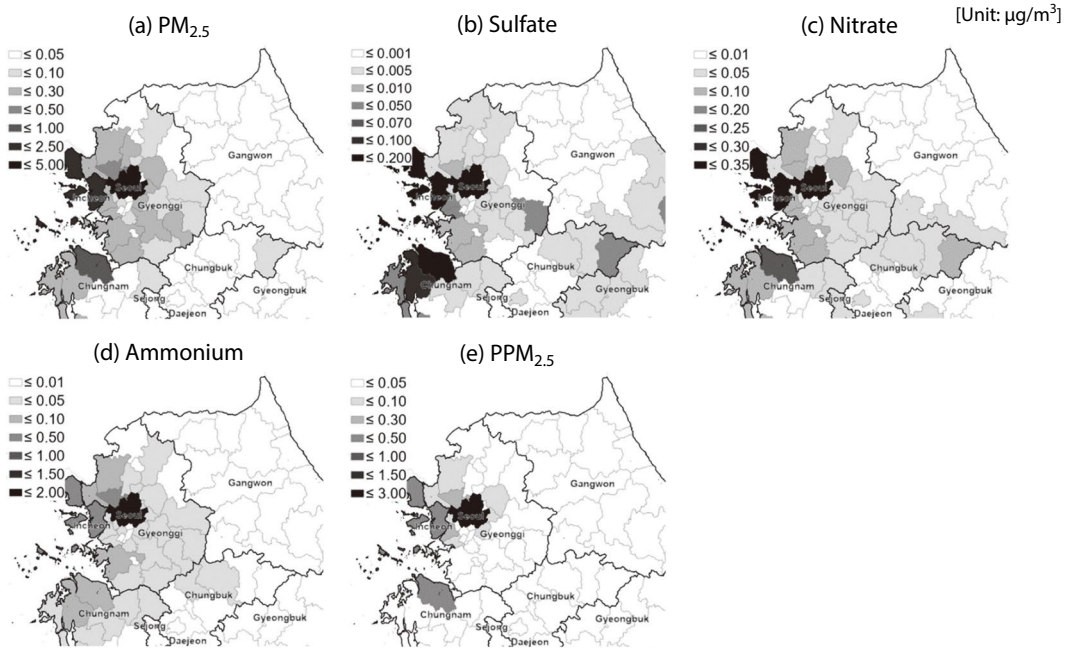

Fig. 9. The contributions of the emissions released from Seoul and its surrounding local authorities to the annual mean (a) $PM_{2.5}$, (b) sulfate, (c) nitrate, (d) ammonium, and (e) $PPM_{2.5}$ concentrations in Seoul during the simulation period of 2016. In case of Incheon, the contributions of local authorities in the province are not separately presented.

여농도보다도 높게 분석되었다. 한 가지 특이한 점은, 황산염과 질산염에 대해 충북의 단양에서 서울에 기여하는 농도가 각각 0.6, 0.1 μg/m^{3}로 서울과 인접하고 배출량이 높은 경기 일부 기초 지자체와 유사한 수준을 보였다. 단양은 시멘트 관련 배출원이 위치한 지역으로, 해당 지역에서 다량의 NO_x 배출이 집중적으로 이루어지는 것으로 알려진 바 있다(Kim *et al.*, 2020).

서울 $PM_{2.5}$농도에 대해 서울 자체와 주변지역에서 배출되는 대기오염물질의 2016년 평균 기여농도를 요약하여 그림 10에 보였다. 서울은 주변 시도보다 높은 자체 $PM_{2.5}$ 기여농도를 보였다. 다만, 경기, 인천, 충남의 $PM_{2.5}$ 기여농도를 합산할 경우 자체 기여농도에 비해 1.3배가량 높았다. 백령도 대기환경연구소에 대해 분석기간 동안 관측과 모사의 농도차를 이용하여 보정한 국외 기여농도는 연평균 15.8 μg/m^{3}로 분석되었다. 한편, 최근 겨울철 $PM_{2.5}$ 농도 저감을 위해 수행하고 있는 계절관리제 시행기간(12~3월) 동안의 기여농도를 분석하기 위하여 본 연구의 분석 기간인 2016년 1~3월, 그리고 12월에 대해 기간을 한정하여 살펴보았다. 계절관리제 기간 동안 서울의 $PM_{2.5}$ 농도는 34.5 μg/m^{3}이며, 이 중 국외 기여농도는 26.2 μg/m^{3}으로 1년 평균 국외 기여농도에 비하여 높았다(그림 5). 계절관리제 기간 동안 서울 자체 기여농도는 5.1 μg/m^{3}이었으며, 이는 경기, 인천, 충남의 기여농도를 더한 5.7 μg/m^{3}과 유사한 수준이다.

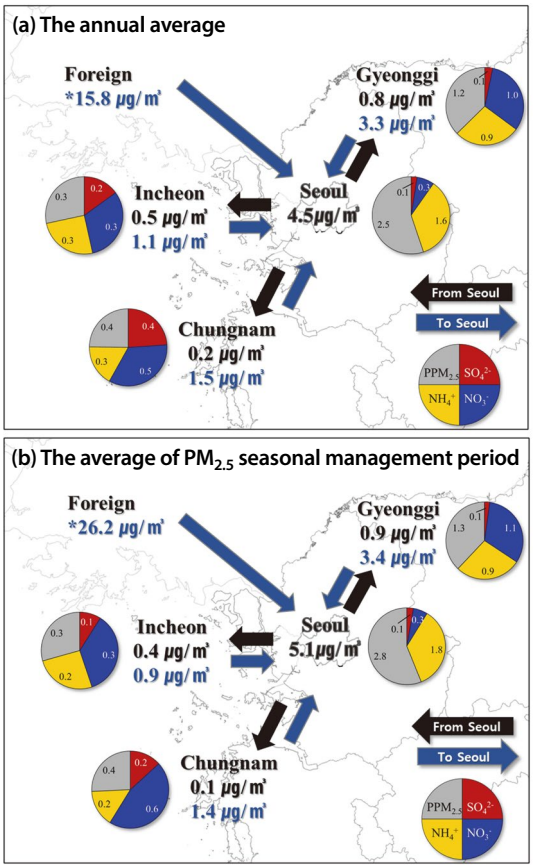

Fig. 10. Summary of inter-provincial contributions to the $PM_{2.5}$ concentrations in Seoul during (a) the simulation period of 2016, and (b) the $PM_{2.5}$ seasonal management. Circles depict the $PPM_{2.5}$ and inorganic ions ratio of contribution to Seoul from each source regions. Foreign contributions were adjusted by the difference of observed and simulated $PM_{2.5}$ concentration in Baengnyeong supersite.

4. 결 론

본 연구에서는 2016년을 대상으로 서울과 인근 지자체 배출에 의한 $PM_{2.5}$ 상호 기여농도를 분석하였다. 2016년 평균 서울 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 국내 기여농도는 11.8 μg/m^{3}이었으며, 국외 기여농도는 15.8 μg/m^{3}로 모사되었다. 월평균 서울 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 국내 기여농도는 9.4~14.7 μg/m^3 수준으로, 국내 자체적인 노력으로 인해 감소시킬 수 있는 $PM_{2.5}$ 농도의 폭이 작지 않았다. 다만, 북서풍의 영향이 강해지는 겨울철에는 국외 기여율이 높아짐에 따라, 겨울철 고농도 $PM_{2.5}$ 개선을 위해서는 국내 및 국외 배출량이 함께 저감되어야 할 것으로 판단된다.

연평균 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 서울의 자체 기여농도는 4.5 μg/m^3, 경기, 인천, 충남의 기여농도는 각각 3.3, 1.1, 1.5 μg/m^{3}으로 모사되었다. 겨울철 $PM_{2.5}$ 계절관리제 기간 동안에는 자체 영향이 5.1 μg/m^{3}로 소폭 증가하였으나, 그럼에도 불구하고 주변지역으로부터의 기여농도가 자체 기여농도보다 높게 분석되었다. 이처럼, 서울 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 국내 기여농도 중, 서울 자체 영향은 38% 수준으로 주변 및 그 외 지역으로부

터의 영향이 더욱 크게 나타났다. $PM_{2.5}$ 성분별로는, 암모늄과 $PPM_{2.5}$ 농도에 대해서는 서울 자체 배출에 의한 기여농도가 각각 1.6, 2.5 $\mu g/m^3$로 주요하였다. 황산염에 대해서는 충남의 기여농도가 0.4 $\mu g/m^3$로, 서울(0.1 $\mu g/m^3$), 경기(0.1 $\mu g/m^3$), 인천(0.2 $\mu g/m^3$)의 기여농도를 모두 합친 것에 비해 크게 분석되었다. 서울 질산염에 대한 기여농도는 서울 자체(0.3 $\mu g/m^3$)보다 경기(1.0 $\mu g/m^3$)와 충남(0.5 $\mu g/m^3$) 배출의 영향이 높게 나타났다. 한편, 서울의 높은 NO_x 배출량의 영향은 자체 기여농도보다 풍하 지역인 경기 여주와 구리에서 0.4 $\mu g/m^3$로 더욱 높게 나타났다.

본 연구 결과들을 종합하면, 서울의 $PM_{2.5}$ 농도는 자체 기여농도보다는 국외와 주변 지역으로부터의 영향을 크게 받으며, 서울의 배출 또한 주변지역의 $PM_{2.5}$ 농도에 작지 않은 기여농도를 보였다. 따라서, 서울의 $PM_{2.5}$ 농도를 효과적으로 관리하기 위해서는 자체적인 배출 저감 노력뿐만 아니라 주변지역과의 상호 협력을 통한 동반 저감이 필수적일 것으로 사료된다. 또한, 전구물질별 $PM_{2.5}$ 기여농도의 차이를 고려한 전략적인 정책마련이 필요하다. 본 연구에서는 모사 재현성의 한계로 연평균 SOC 농도에 대한 분석은 제외하였으나, 향후 배출 및 모델 자체의 불확도 개선을 통해 SOC 성분에 대한 추가적인 연구가 필요할 것으로 판단된다.

감사의 글

본 연구는 국가미세먼지정보센터와 삼성전자 종합기술원의 지원을 받아 수행하였습니다.

References

Bae, M., Kim, H.C., Kim, B.-U., Kim, S. (2018) $PM_{2.5}$ Simulations for the Seoul Metropolitan Area: (V) Estimation of North Korean Emission Contribution, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 34(2), 294-305. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.2.294

Bae, M., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2020a) A Multiscale Tiered Approach to Quantify Contributions: A Case Study of $PM_{2.5}$ in South Korea During 2010-2017, Atmosphere, 11(2), 141. https://doi.org/10.3390/atmos11020141

Bae, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Yoo, C., Kim, S. (2020b) Long-range transport influence on key chemical components of $PM_{2.5}$ in the Seoul Metropolitan Area, South Korea, during the years 2012-2016, Atmosphere, 11(1), 48. Multidisciplinary Digital Publishing Institute. https://doi.org/10.3390/atmos11010048

Bae, M., Yoo, C., Kim, S. (2020c) Estimating the Shutdown Effect of the Old Coal-fired Power Plants on $PM_{2.5}$ and its Composition, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 36, 48-63. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.1.048

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

Carter, W.P.L. (2016) SAPRC-99 Mechanism Files and Associated Programs and Examples. http://www.engr.ucr.edu/~carter/SAPRC99/index.htm (accessed 26 April 2021).

Huang, X., Ding, A., Gao, J., Zheng, B., Zhou, D., Qi, X., Tang, R., Wang, J., Ren, C., Nie, W., Chi, X., Xu, Z., Chen, L., Li, Y., Che, F., Pang, N., Wang, H., Tong, D., Qin, W., Cheng, W., Liu, W., Fu, Q., Liu, B., Chai, F., Davis, S.J., Zhang, Q., He, K. (2021) Enhanced secondary pollution offset reduction of primary emissions during COVID-19 lockdown in China, National Science Review, 8(2), nwaa137. https://doi.org/10.1093/nsr/nwaa137

Kang, Y.-H., Kim, E., You, S., Bae, M., Son, K., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2021) Source Sectoral Impacts on Provincial $PM_{2.5}$ Concentrations based on the CAPSS 2016 using the CMAQ Model, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 37(1), 17-44. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.1.017

Kim, S., You, S., Kang, Y.-H., Kim, E., Bae, M., Son, K., Kim, Y., Kim, B.-U., Kim, H.C. (2021a) Municipality-Level Source Apportionment of $PM_{2.5}$ Concentrations based on the CAPSS 2016: (II) Incheon, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 37(1), 144-168. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.1.144

Kim, E., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2021b) Direct and cross impacts of upwind emission control on downwind $PM_{2.5}$ under various NH_3 conditions in Northeast Asia, Environmental Pollution, 268115794. https://doi.org/10.1016/j.envpol.2020.115794

Kim, E., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2021c) Sensitivity of fine particulate matter concentrations in South Korea to

regional ammonia emissions in Northeast Asia, Environmental Pollution, 273116428. https://doi.org/10.1016/j.envpol.2021.116428

Kim, Y., Kim, E., Kang, Y.-H., You, S., Bae, M., Son, K., Kim, S. (2021d) Impact of Diesel Vehicle Emissions on $PM_{2.5}$ Concentrations in Seoul Metropolitan Area during the Seasonal $PM_{2.5}$ Management, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 37(1), 169-190. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.1.169

Kim, H.C., Bae, C., Bae, M., Kim, O., Kim, B.-U., Yoo, C., Park, J., Choi, J., Lee, J., Lefer, B., Stein, A., Kim, S. (2020) Space-Borne Monitoring of NO_x Emissions from Cement Kilns in South Korea, Atmosphere, 11(8), 881. https://doi.org/10.3390/atmos11080881

Kim, E., Kim, H.C., Kim, B.-U., Kim, S. (2019) $PM_{2.5}$ Simulations for the Seoul Metropolitan Area: (VI) Estimating Influence of Sectoral Emissions from Chungcheongnam-do, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 35(2), 226-248. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2019.35.2.226

Kim, E., Bae, C., Yoo, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2018) 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. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.3.469

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, S., Bae, C., Kim, B.-U., Kim, H.C. (2017b) $PM_{2.5}$ 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. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2017.33.2.139

Kim, S., Bae, C., Yoo, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Moon, N. (2017c) $PM_{2.5}$ 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. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2017.33.4.377

Kim, B.-U., Kim, O., Kim, H.C., Kim, S. (2016a) Influence of fossil-fuel power plant emissions on the surface fine particulate matter in the Seoul Capital Area, South Korea, Journal of the Air & Waste Management Association, 66(9), 863-873. https://doi.org/10.1080/10962247.2016.1175392

Kim, D.-S., Jeong, J., Ahn, J. (2016b) Characteristics in Atmospheric Chemistry between NO, NO_2 and O_3 at an Urban Site during MAPS (Megacity Air Pollution Study)-Seoul, Korea, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 32(4), 422-434. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2016.32.4.422

Kim, W. (2014) Policy Report 182. The Seoul Institute. https://www.si.re.kr/sites/default/files/pol_182.pdf

Kleffmann, J., Tapia, G.V., Bejan, I., Kurtenbach, R., Wiesen, P. (2013) NO_2 measurement techniques: pitfalls and new developments. in: Disposal of Dangerous Chemicals in Urban Areas and Mega Cities. Springer, 15-28.

KMOE (Korea Ministry of Environment) (2020) http://www.me.go.kr/home/web/board/read.do?pagerOffset=0&maxPageItems=10&maxIndexPages=10&searchKey=&searchValue=&menuId=286&orgCd=&boardId=1370620&boardMasterId=1&boardCategoryId=39&decorator= (accessed 2 March 2021).

KMA (Korea Meteorological Administration) (2016) Annual Climatological Report.

Koo, B., Knipping, E., Yarwood, G. (2014) 1.5-Dimensional volatility basis set approach for modeling organic aerosol in CAMx and CMAQ, Atmospheric Environment, 95, 158-164. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.06.031

Lee, D., Choi, J.-Y., Myoung, J., Kim, O., Park, J., Shin, H.-J., Ban, S.-J., Park, H.-J., Nam, K.-P. (2019) Analysis of a Severe $PM_{2.5}$ Episode in the Seoul Metropolitan Area in South Korea from 27 February to 7 March 2019: Focused on Estimation of Domestic and Foreign Contribution, Atmosphere, 10(12), 756. https://doi.org/10.3390/atmos10120756

Moon, N., Seo, J. (2018) Analysis System for Regional Environmental Status to Support Environmental Assessment: Estimation of $PM_{2.5}$ Contribution and Conversion Rates by Source Category over Local Governments, Korea Environment Institute. https://library.kei.re.kr:444/dmme/img/001/014/007/%ec%82%ac%ec%97%85_2018_05_01_%eb%ac%b8%eb%82%9c%ea%b2%bd_1%ea%b6%8c.pdf (accessed 4 March 2021).

NIER (National Institute of Environmental Research) (2013) Manual on the Calculation Method of Air Pollutants Emissions (III). http://airemiss.nier.go.kr (accessed 4 May 2021).

Ramboll-ENVIRON (2016) CAMx User's Guide Version 6.1. https://camx-wp.azurewebsites.net/Files/CAMxUsersGuide_v6.10.pdf (accessed 4 March 2021).

Seinfeld, J.H., Pandis, S.N. (2016) Atmospheric Chemistry and

Physics: From Air Pollution to Climate Change. P. in.: John Wiley & Sons, 1146.

Seoul Institude of Health & Environment Research (2020) 2019 Annual Report of Air Quality in Seoul. P. in.: Seoul Institude of Health & Environment Research, Seoul.

Skamarock, W.C., Klemp, J.B. (2008) A time-split non-hydrostatic 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

Son, K., Kim, E., Bae, M., You, S., Kang, Y.-H., Kim, H.C., Kim, B.-U., Kim, S. (2020) Evaluations on $PM_{2.5}$ Concentrations and the Population Exposure Levels for Local Authorities in South Korea during 2015-2017, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 36(6), 806-819. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.6.806

Statistics Korea (2021) Korean Statistical Information Service (KOSIS). https://kosis.kr/statHtml/statHtml.do?orgId=202&tblId=DT_202N_B4&conn_path=I2 (accessed 16 March 2021).

U.S. Environmental Protection Agency (U.S. EPA) (1994) Development and Selection of Ammonia Emission Factors.

Yeo, M.J., Im, Y.S., Yoo, S.S., Jeon, E.M., Kim, Y.P. (2019) Long-term Trend of $PM_{2.5}$ Concentration in Seoul, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 35(4), 438-450. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2019.35.4.438

You, S., Bae, C., Kim, H., Yoo, C., Kim, S. (2020) Municipality-Level Source Apportionment of $PM_{2.5}$ Concentrations based on the CAPSS 2016: (I) Gyeonggi Province, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 36(6), 785-805. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.6.785

Zhao, B., Wang, S., Donahue, N.M., Jathar, S.H., Huang, X., Wu, W., Hao, J., Robinson, A.L. (2016) Quantifying the effect of organic aerosol aging and intermediate-volatility emissions on regional-scale aerosol pollution in China, Scientific Reports, 6(1), 28815. https://doi.org/10.1038/srep28815

Zheng, B., Tong, D., Li, M., Liu, F., Hong, C., Geng, G., Li, H., Li, X., 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

배민아 (아주대학교 환경공학과 박사과정)
김은혜 (아주대학교 환경연구소 연구원)
유승희 (아주대학교 환경공학과 박사과정)
손규원 (아주대학교 환경공학과 석사과정)
강윤희 (아주대학교 환경연구소 연구조교수)
김순태 (아주대학교 환경안전공학과 교수)

Supplementary Materials

Table S1. Air pollutants emission densities by provinces in the CAPSS 2016. (unit: tons/year/km^2)

	CO	NO_x	SO_2	$PM_{2.5}$	VOCs	NH_3
Seoul	92.99	120.69	6.67	4.17	104.26	6.52
Incheon	35.63	46.48	11.64	2.11	48.95	6.55
Gyeonggi	12.87	20.00	1.51	1.09	18.18	4.56
Gangwon	2.65	4.96	1.06	0.23	1.53	0.76
Chungnam	7.80	16.40	9.95	2.29	8.91	6.03
Chungbuk	6.47	9.86	1.22	0.53	5.42	2.25
Sejong	11.71	13.43	0.32	0.95	14.49	6.99
Daejeon	21.32	29.15	1.58	1.12	28.82	1.54
Jeonnam	5.15	8.59	5.05	1.11	7.08	3.33
Jeonbuk	5.27	5.06	0.83	0.43	8.84	4.04
Gwangju	18.16	25.84	0.70	1.23	33.05	1.95
Daegu	22.62	34.08	4.74	1.60	35.38	2.01
Busan	30.38	64.25	14.00	3.30	53.12	2.27
Ulsan	29.84	48.29	46.39	2.36	91.25	14.27
Gyeongnam	5.28	9.68	2.93	0.53	10.23	2.41
Gyeongbuk	4.87	5.77	2.07	1.19	4.47	1.80
Jeju	7.03	10.11	1.14	0.66	5.83	4.34

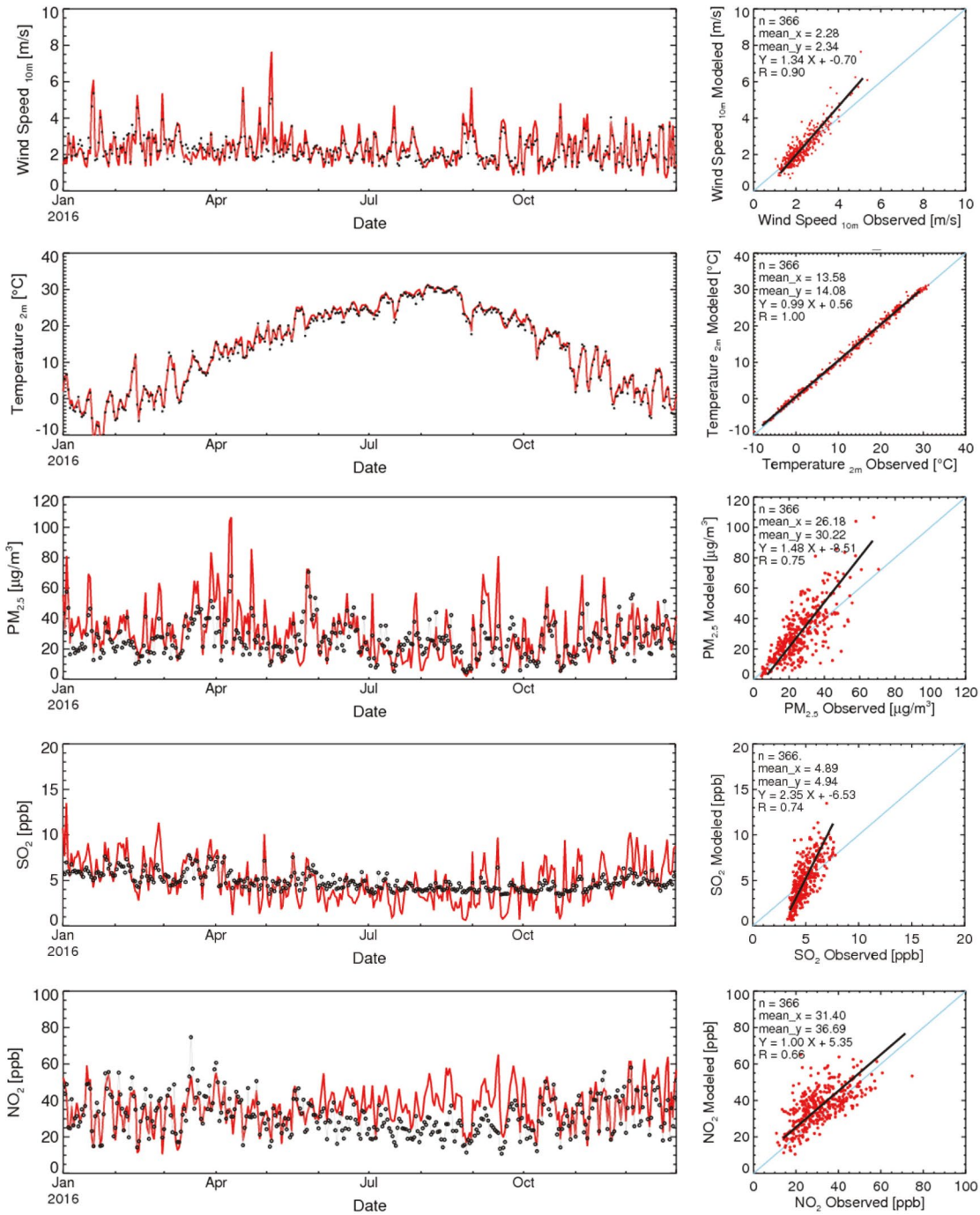

Fig. S1. Time series of observed and simulated daily mean of 10-m wind speed, and 2-m temperature at Seoul ASOS station, and concentrations of $PM_{2.5}$, SO_2, and NO_2 concentration over South Korea during 2016. Dotted line and red solid line indicate observed and simulated data, respectively.

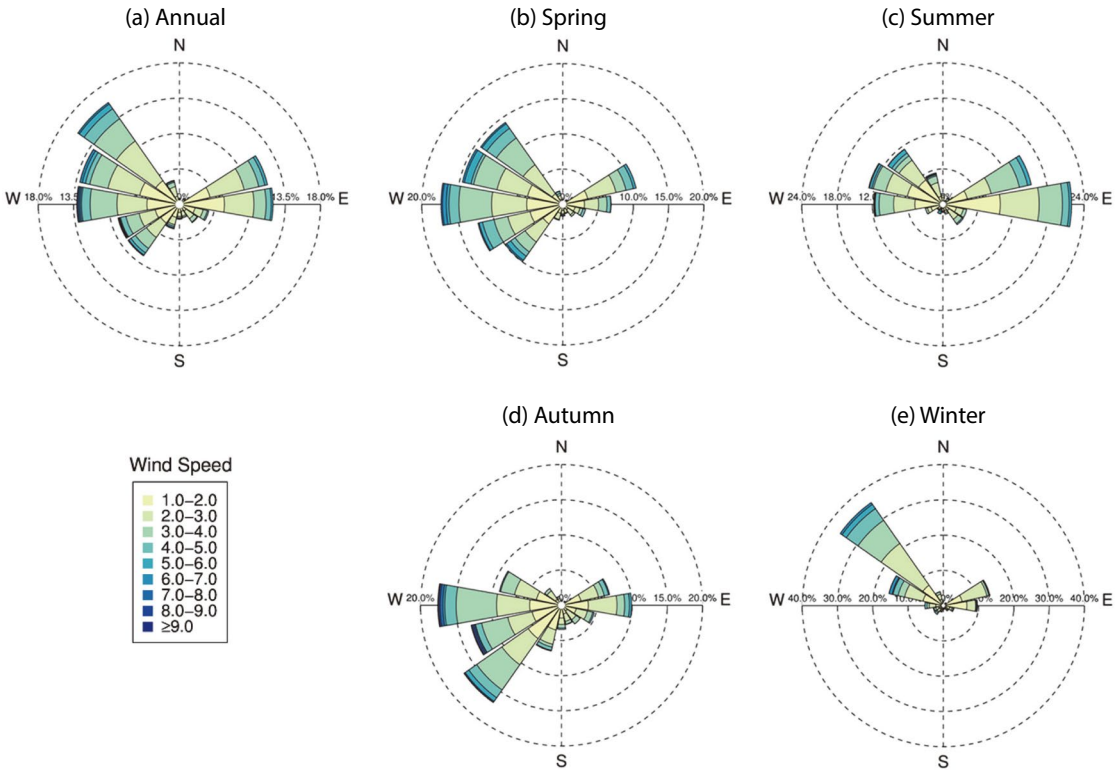

Fig. S2. Windrose based on hourly meteorology simulation result at Seoul ASOS station for (a) Annual, (b) Spring (February~April), (c) Summer (May~July), (d) Autumn (August~October), and (e) Winter (November~January).

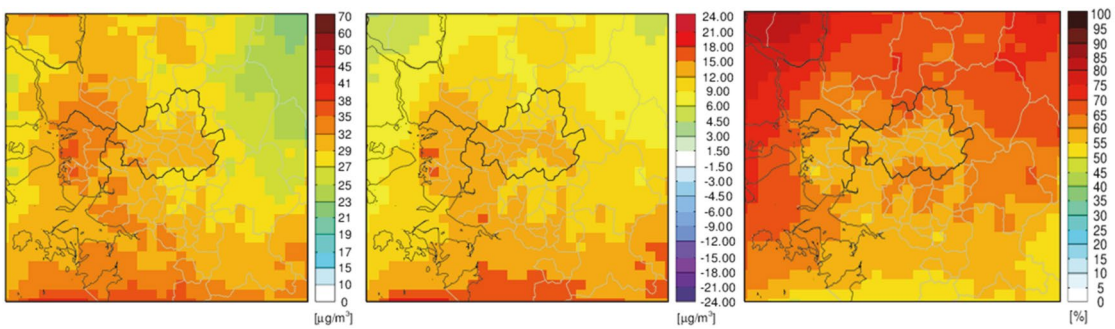

Fig. S3. Simulated annual mean $PM_{2.5}$ concentration (left), domestic contribution (middle), and foreign relative contribution (right) during the simulation period of 2016.