

논문

1~4차 미세먼지 계절관리제 기간 시도별 PM_{2.5} 및 NO₂ 농도에 대한 국내 배출영향 변화

Changes in Domestic Emissions Impact on Provincial PM_{2.5} and NO₂ Concentrations during the 1st to 4th Seasonal PM Management Periods

서지원, 강윤희¹⁾, 김은혜¹⁾, 정성은²⁾, 김지훈²⁾, 김순태*

아주대학교 환경안전공학과, ¹⁾아주대학교 환경연구소, ²⁾아주대학교 환경공학과

Jiwon Seo, Yoon-Hee Kang¹⁾, Eunhye Kim¹⁾, Seongeun Jeong²⁾,
Jihun Kim²⁾, Soontae Kim*

Department of Environmental and Safety Engineering, Ajou University, Suwon, Republic of Korea

¹⁾Environmental Institute, Ajou University, Suwon, Republic of Korea

²⁾Department of Environmental Engineering, Ajou University, Suwon, Republic of Korea

접수일 2024년 2월 27일
수정일 2024년 3월 27일
채택일 2024년 3월 29일

Received 27 February 2024

Revised 27 March 2024

Accepted 29 March 2024

*Corresponding author

Tel : +82-(0)31-219-2511

E-mail : soontaeim@ajou.ac.kr

Abstract In this study, we quantified changes in domestic emissions impact on PM_{2.5} and NO₂ concentrations in South Korea during the 1st to 4th Seasonal Particulate Matter Management (SPM) periods using observations and air quality simulations. During the entire SPM periods, reductions in domestic emissions impact, the combined effect of changes in emissions and meteorological conditions, contributed an average nationwide decrease of 1.5 µg/m³/year for PM_{2.5} and 0.9 ppb/year for NO₂. The implementation of SPM, coupled with changes in meteorology and unexpected societal issues such as the COVID-19 pandemic, resulted in a decrease of domestic PM_{2.5} emissions impact by 61.2% throughout the SPM periods. On a provincial level, the decreases in PM_{2.5} and NO₂ concentrations due to the reduction in domestic emissions ranged from 0.1 to 2.6 µg/m³ and 0.3 to 1.9 ppb, respectively, showing a correlation coefficient of 0.60 between them. When a nitrogen oxidation ratio of 0.2 from previous studies was applied, the decrease in domestic NO_x emissions impact during the periods accounted for approximately 40% of the nationwide reduction in PM_{2.5} domestic emissions impact. These findings suggest a high possibility that the decrease in PM_{2.5} concentrations in South Korea was affected by various precursor emission changes and interprovincial emissions impacts. Therefore, considering the complicated nature inherent in secondary air pollutants such as PM_{2.5}, it becomes increasingly essential to establish a comprehensive analysis platform to integrate various information such as emissions, observations, and air quality simulations. This integration is crucial for more adequately developing control strategies for air pollution problems that we are facing. Additionally, from a health perspective, the magnitude of reduced PM_{2.5} and NO₂ emissions impacts varied among provinces. Therefore, developing strategies tailored to regional conditions, considering both achieving national ambient air quality standards and promoting public health, appears crucial.

Key words: Domestic emissions impact, Seasonal PM management, NO_x emissions reduction, Precursor emissions, emission-observation-modeling-integrating analysis

1. 서론

2022년 국내 연평균 초미세먼지 (PM_{2.5}) 농도는 18 µg/m³로 대기환경기준인 15 µg/m³를 만족하지 못하

였다(KMOE, 2023a). 국내 PM_{2.5} 농도는 겨울철 동안 다른 계절에 비해 높아지며, 환경부에서는 2019년 12월부터 미세먼지 계절관리제 (이하, '계절관리제'; Seasonal PM Management)를 통해 평상시보다 강화된

배출 관리를 시행하고 있다 (NAIR, 2023; Bae *et al.*, 2023b; Kang and Kim, 2022b). 계절관리제 시행 이후 국내 PM_{2.5} 농도는 줄어드는 추세이긴 하나, 4차 계절관리제 (2022년 12월~2023년 3월) 동안 황사일을 제외한 평균 PM_{2.5} 농도는 24.6 µg/m³로 여전히 높았고, 일평균 대기환경기준인 35 µg/m³를 초과한 일수는 20일에 달하였다 (KMOE, 2023b).

환경부에 따르면 대기질 대책 수립 및 시행에 따른 배출 감소에 의해 1~4차 계절관리제 기간 평균 국내 PM_{2.5} 농도는 1.5 µg/m³가량 감소하였다 (KMOE, 2023b, 2023c, 2022, 2021, 2020). 다만, 이는 국내 전 지역 평균적인 PM_{2.5} 농도 변화를 분석한 것으로 국내 시도별 변화는 검토되지 못하였다. 대상 기간 동안 국내 지자체들은 PM_{2.5} 개선을 위한 다양한 대책을 마련하고 배출량을 감축하였으며, 이 밖에도 COVID-19 발생 등 다양한 사회적 요인에 따라 국내 배출량은 변동하였을 것으로 판단된다 (Kang *et al.*, 2020).

이러한 상황에서 계절관리제 기간 동안 PM_{2.5} 농도 변화의 원인을 분석하려는 선행 연구가 있었다. Bae *et al.* (2022b)은 1~3차 계절관리제 기간에 대해 PM_{2.5} 농도의 변화 요인을 기상과 국외 및 국내 배출영향으로 나누어 살펴보고, 대상 기간 PM_{2.5} 농도 감소 가운데 35%가 국내 배출 변화에 의한 것으로 제시하였다. 또한 Bae *et al.* (2023b)에서는 2차 계절관리제 기간을 대상으로 국내 배출량 저감에 의해 개선될 수 있는 PM_{2.5} 농도를 최대 11.7 µg/m³로 분석하였다. 다만, 이러한 분석 결과는 배출영향을 어떻게 추정하는지에 따라 달라질 수 있다. 더욱이, 1~4차 계절관리제 기간 동안 국내 배출량 변화에 의해 PM_{2.5} 농도가 얼마나 개선되었는지를 종합적으로 분석한 연구는 제한적이다.

PM_{2.5}는 대기 중 체류시간이 길어 장거리 이동이 가능하다 (Kim *et al.*, 2023a; Kim *et al.*, 2017a; Seinfeld and Pandis, 2016). 특히, 고농도 PM_{2.5} 사례 동안 풍상 지역으로부터 대기오염물질이 장거리 이동되어 국외 배출영향이 높아지는 것으로 알려져 있다 (Bae *et al.*,

2023a; Kang *et al.*, 2023; Kim *et al.*, 2023a). 이와 유사하게 국내 한 시도에서 배출되는 전구물질은 해당 지자체는 물론 주변 지역의 PM_{2.5} 농도에도 영향을 미칠 수 있다 (Bae *et al.*, 2021; Kim *et al.*, 2021e; You *et al.*, 2020; Ju *et al.*, 2018). 한 시도에서의 PM_{2.5} 농도 변화는 해당 시도에서의 배출량 변화뿐 아니라, 이웃한 다른 지자체 또는 국외 배출량 변화의 영향을 받을 수 있다 (Kim *et al.*, 2020b). 따라서 지자체별 계절관리제 시행 또는 자체 배출량 변화만을 분리하여 대기질 변화를 평가하기는 쉽지 않다.

국내 PM_{2.5} 농도에 대한 배출 기여도 산정에는 다양한 방법이 적용될 수 있으며 (Bae *et al.*, 2023b), 대기질 모사를 활용하여 국외 기여도를 산정하고 관측 농도와 차이로부터 국내 기여도를 계산할 수 있다 (Bae *et al.*, 2023a; Kim *et al.*, 2021d, 2017b). 이때 사용되는 대기질 모사에서는 기상 자료 외에 배출량 입력 자료가 필요하며, 주로 상향식 배출목록이 이용된다. 상향식 배출목록은 작성되는 시점과 적용 시점의 차이, 이용되는 자료와 산정 자료의 불확도 등이 포함되며, 모델의 불완전성 또한 모사 결과의 오차로 작용하여 산정되는 국외 기여도의 불확도로 이어질 수 있다 (Kim *et al.*, 2024b; Bae *et al.*, 2023a, 2023b; Bae and Kim, 2022; Kim *et al.*, 2017a). 이러한 제한점을 해결하기 위한 방안으로 Bae *et al.* (2022a)은 풍상의 관측 농도와 모사 농도의 비를 이용하여 상향식 배출목록 기반으로 산정된 국외 기여도를 보정하는 방법을 제안하였다. 이 방법을 이용할 경우 보다 현실성 있는 국내 PM_{2.5} 기여도를 산정할 수 있으나, 아직 적용된 사례는 드물다.

한편, 장거리 이동이 가능한 PM_{2.5}와 달리 NO₂는 대기 중 체류시간이 짧으므로, 한 지자체의 NO₂ 농도 변화는 그 지자체의 배출량 변화를 반영할 수 있다 (Han and Kim, 2015). 따라서 NO₂는 지자체별 배출량 변화를 평가하는 지표로 활용할 수 있으나, 국내에서는 이와 같은 접근이 시도된 바 없다. 이와 관련된 연구로 국내에서는 TROPOMI 등 위성 관측자료를 이용하여 도시 규모의 NO_x 배출량을 검토하였으

며(Yang *et al.*, 2023; Bae *et al.*, 2020a; Kim *et al.*, 2020a), 중국의 경우 위성 NO₂ 관측 자료를 통해 중국에서 COVID-19 전후 지역별 CO₂ 배출 변화를 추정하였다(Li *et al.*, 2023; Zheng *et al.*, 2020).

계절관리제 기간 동안 국내 배출 변화와 관련된 PM_{2.5} 농도 변화를 살펴보기 위해 본 연구에서는 계절관리제 시행 이전과 1~4차 계절관리제 시행 기간 동안 지자체별 PM_{2.5} 농도 변화 가운데, 국내 배출 변화의 효과를 관측 자료와 대기질 모사를 동시에 이용하여 분리하였다. 국내 17개 지자체별 PM_{2.5} 농도에 대한 국내 배출영향을 국내 평균 및 타 시도와 비교하였으며, 대표적인 PM_{2.5} 전구물질인 동시에, 자체 배출량 변화에 의해 크게 좌우되는 NO₂ 농도 변화를 함께 비교하였다. 또한, 1~4차 계절관리제 기간 동안 지자체별 PM_{2.5}와 NO₂ 농도 변화 추세를 분석하기 위해 계절관리제 시행 이전 대비, 1차 계절관리제 대비, 전년 대비 등 기준 시점을 다양하게 접근하고, 그 결과를 논의하였다. 이를 통해 국내 PM_{2.5} 농도 변화에서 국내 배출영향이 차지하는 부분과 전구물질 배출량 변화 간의 상관성을 분석하여 향후 국내 대기질 개선 대책 마련 시 농도 중심의 관리 체계 구축의 필요성을 언급하였다.

2. 연구 방법

2.1 대상 기간 및 지역

본 연구는 환경부에서 2019년 12월부터 시행하고 있는 계절관리제 기간을 대상으로 하였다. 계절관리제 동안에는 수도권의 5등급 차량 운행제한, 사업장 불법 배출 상시 점검, 집중관리 도로 선정 및 관리 강화 등 여러 부문에서 배출 저감을 위한 정책이 시행되며(KMOE, 2024a), 2024년 1월 기준으로 5차 계절관리제가 진행 중이다. 또한, 해당 기간 동안에는 대기질 개선 대책과는 별도로 COVID-19, 경제 지수 변화 등 다양한 요인에 의해 국내 배출량이 변화했을 것으로 판단된다(Cha *et al.*, 2023; Kang *et al.*, 2020).

따라서, 본 연구에서 언급하는 국내 배출량 변화는 대기질 대책은 물론 예기치 못했던 사회적 이슈에 의한 변화 등을 모두 포함한다.

계절관리제 기간 동안 국내 배출영향 변화에 의한 지자체별 PM_{2.5} 농도 변화를 살펴보기 위해 1~4차 계절관리제를 대상으로 연구기간을 설정하였고, 각각 S1~S4 (S1: 2019년 12월~2020년 3월, S2: 2020년 12월~2021년 3월, S3: 2021년 12월~2022년 3월, S4: 2022년 12월~2023년 3월)로 정의하였다. 이와 함께 계절관리제 기간과의 비교를 위해 계절관리제 시행 이전 기간(BS: 2018년 12월~2019년 3월)을 추가로 설정하였다.

분석 대상 지역은 국내 17개 시도이며, 종합적인 분석을 위해 국내 평균을 추가하였다(그림 1). NO₂와 PM_{2.5} 농도는 도로변 측정망을 제외하고 환경부에서 운영하는 도시대기측정망, 국가배경측정망, 교외 대기측정망을 기반으로 분석되었다. 대기질 측정망의 위치는 매년 신설, 이동, 폐쇄 등의 이유로 달라지기에 분석방법의 일관성을 위해 전기간에 대해 2019년 기준 430개 측정망(NIER, 2020)을 대상으로 하였고, 분석에 사용된 측정망의 위치는 그림 1에 제시하였다.

2.2 대상 물질의 선정과 농도 변화 분석

본 연구의 주 대상 물질은 PM_{2.5}이며, 국내 시도별 관측 농도의 변화를 우선 살펴보았다. 관측 농도의 변화에는 배출 및 기상 변화의 영향이 모두 포함된다. 특히, PM_{2.5}는 대표적인 월경성 대기오염물질로(Kim *et al.*, 2023a, Kim *et al.*, 2022c; Bae *et al.*, 2020c; Lee *et al.*, 2019; Yim *et al.*, 2019), 대기 중 체류 시간이 길다. 따라서 국내 한 지자체에서 PM_{2.5} 전구물질의 배출량을 저감할 경우, 해당 지자체는 물론 주변 타 지자체에서의 PM_{2.5} 농도 변화 역시 예상된다. 이에 본 연구에서는 지자체별 PM_{2.5} 농도 변화와는 별도로 전구물질의 배출량 변화를 살펴보기 위하여 NO₂ 농도를 이용하였다.

NO₂는 대표적인 기준성 대기오염물질로, 국내 대

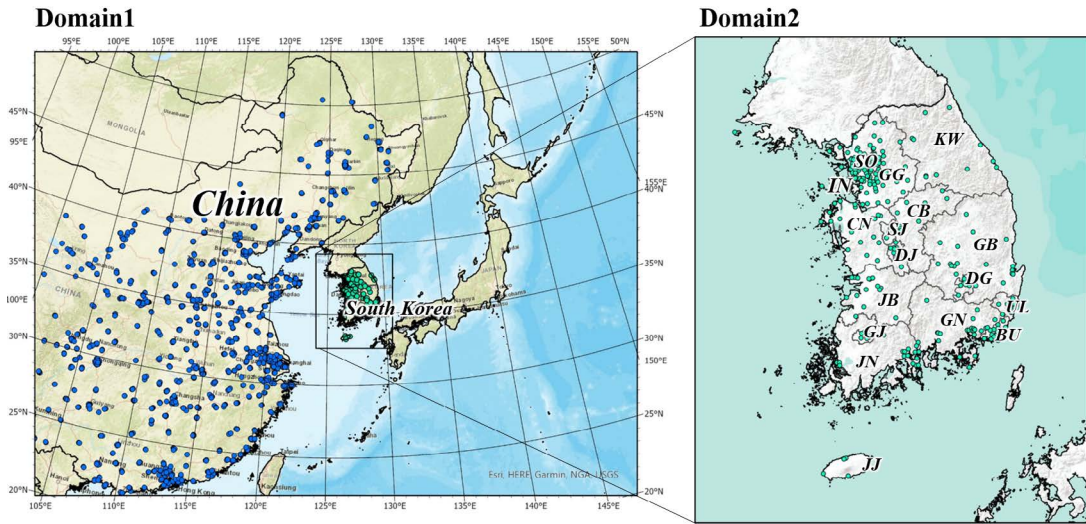


Fig. 1. The modeling domains for horizontal grid resolutions of 27-km (Domain1) and 9-km (Domain2), the locations of seventeen provinces, and air quality monitoring sites (KR: South Korea, SO: Seoul, GG: Gyeonggi, IN: Incheon, CB: Chungcheongbuk-do, CN: Chungcheongnam-do, SJ: Sejong, DJ: Daejeon, GJ: Gwangju, JB: Jeollabuk-do, JN: Jeollanam-do, KW: Gangwon, GB: Gyeongsangbuk-do, GN: Gyeongsangnam-do, DG: Daegu, UL: Ulsan, BU: Busan, JJ: Jeju).

부분의 지자체에서 일정 수준 이상의 농도가 관측된다. 또한, 연료 연소 및 발전, 소각 등 일상 생활과 밀접한 많은 오염원에서 발생하기 때문에 많은 지자체에서 저감 노력을 기울이고 있다. 실제로 환경부 자료에 의하면, 1~4차 계절관리제 시행 동안 4개월 평균 NO_x 배출 감축량은 43,258톤으로, SO_x 29,462톤, VOCs 21,563톤에 비해 높았다(KMOE, 2023c). 선행 연구에 의하면 NO₂ 농도는 동북아 지역에서 COVID-19 등 사회 경제적 변화를 잘 반영하는 배출 물질로 알려져 있다(Kim *et al.*, 2021d; Kang *et al.*, 2020). 또한 대기 중 NO₂의 체류 시간은 상대적으로 짧기 때문에 한 지역에서 관측된 농도는 그 지역의 배출량에 의한 것으로 간주된다(Kim *et al.*, 2024b; Xu *et al.*, 2023; Jin *et al.*, 2021).

반면 SO_x는 일부 지역에 배출원이 편중되어 있고, VOC 농도 관측망은 제한적이다. 따라서 본 연구에서는 대기 중 NO₂를 지자체의 PM_{2.5} 전구물질 배출 저감노력을 대표할 수 있는 물질로 선정하고, 각 지자체에서 관측된 NO₂ 농도의 변화가 지자체의 NO_x 배출영향 변화를 설명할 수 있는 것으로 가정하였다.

다만, 서울과 같이 NO_x 배출이 많은 시도의 풍하에 위치하는 지역의 경우 그 영향을 받을 수 있으므로, 그에 대해서는 결과에서 별도로 논의하였다. 대상 물질의 농도 변화에는 다양한 요인이 작용할 수 있다(Kim *et al.*, 2024b; Bae *et al.*, 2023a; Liu *et al.*, 2023). 본 연구에서는 이러한 농도 변화 요인들 가운데 국내 배출 변화와 관련된 부분이 PM_{2.5} 농도 변화에 얼마나 영향을 주었는지를 관측과 대기질 모사를 이용하여 분석하였으며, 그 과정을 2.3~2.5절에 설명하였다.

2.3 대기질 모사 방법

국내 PM_{2.5} 관측 농도에서 국내 배출영향을 분리하기 위하여 대기질 모사를 이용하였다. 본 연구에서 정의한 국내 배출영향(Domestic Emissions Impact, DEI)은 국내 배출과 함께 기상 영향이 더해진 효과를 의미한다(Bae *et al.*, 2023a, 2022a, 2022b; Bae and Kim, 2022; Kim *et al.*, 2021f). 이는 기존 연구에서 언급된 바와 같이 대기 중으로 배출된 오염물질은 기상 영향에 따라 농도가 달라지며, 특히 국내의 경우, 국

외 배출영향 (= 국외 배출량 + 기상 영향)을 함께 감안해야 한다(Bae *et al.*, 2023a, 2022a). 본 연구에서의 국내 배출영향의 변화는 Bae *et al.* (2022b)과 Bae and Kim (2022)에서와 같이 국내 배출의 변화와 기상 조건의 변화가 함께 작용한 것으로 정의하였다.

대기질 모사는 Community Multi-scale Air Quality (CMAQ) version 5.3.2를 이용하였다(U.S. EPA, 2020). 대기질 모사 시에는 중국 등 국외 배출영향을 고려하기 위하여 동북아 지역에 대해 27-km 수평해상도 격자의 모사 영역(174×128 격자)을 구성하였고, 국내에 대한 상세 분석을 위해 9-km 수평해상도 격자의 모사 영역(67×82 격자)을 별도로 마련하였다(그림 1). 에어로졸 모듈은 AERO6, 가스상 물질 화학 메커니즘은 SAPRC07TC를 선택하였으며, 이외 모사에 이용된 세부 옵션은 Kim *et al.* (2024b)를 참조할 수 있다. 대기질 모사 수행에 필요한 기상 입력자료는 Weather Research and Forecasting (WRF; Skamarock *et al.*, 2008) version 3.9.1를 이용하여 준비하였다. WRF 모사 수행을 위한 초기 및 경계 조건은 National Centers for Environmental Prediction (NCEP)의 FNL Operational Global Analyses 1-degree 자료를 이용하였다.

대기질 모사에 필요한 배출량 입력자료 중 자연 배출량은 Model of Emission of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN; Guenther *et al.*, 2006)을 이용하여 산정하였다. 인위적 배출량의 경우, Sparse Matrix Operator Kernel Emission (SMOKE) version 4.8 모델을 이용하여 처리하였다. 인위적 배출목록은 국외 영역에 대해 The Satellite Integrated Joint Air Quality (SIJAQ) version 2, 국내에 대해 Clean Air Policy Support System (CAPSS) 2021 추계 배출량을 모든 기간에 고정하여 사용하였다. PM_{2.5} 모사 농도에 대한 수행 평가는 그림 1에 보인 중국과 국내 측정망에서의 관측 농도를 이용하여 비교하였다. 일평균 관측 및 모사 농도를 이용하여 Mean Bias (MB), Correlation coefficient (r), Normalized Mean Bias (NMB), Normalized Mean Error (NME) 값을 계산하였고, 이를 Emery *et al.* (2017)이 제시한 대기질 모사 평가 기준과 비교하였다.

2.4 PM_{2.5} 국내 배출영향 산정

해당 기간 동안 국내 배출 변화를 정확히 파악할 수 있다면, 여기에 기상 영향을 더해 국내 배출영향 변화를 대기질 모사를 통해 다른 과정 없이 바로 추정할 수 있다. 그러나, 국내 PM_{2.5} 농도의 경우, 장거리 이동 영향 등 국외 배출영향이 적지 않으며, 대상 기간 동안 국내 배출량 변화를 정확히 추정하는 것 역시 배출목록 산정 시의 불확도, 배출저감 대책, COVID-19 등 사회 여건 및 경제 지수 등 다양한 영향으로 인해 쉽지 않다(Kim *et al.*, 2024b; Jia *et al.*, 2023; Bae *et al.*, 2022a; Kang *et al.*, 2020). 이런 점을 고려하여 본 연구에서는 대상 기간 동안 국내 PM_{2.5} 농도는 국외 배출영향과 국내 배출영향의 합으로 가정하고, 국외 배출영향을 중국 등 관측 농도와 대기질 모사를 이용하여 우선 추정하였다. 그 다음, 국내 PM_{2.5} 관측 농도와 추정된 국외 배출영향의 차이로부터 국내 배출영향을 산정하였으며, 여기에는 해당 기간의 기상 영향이 포함되어 있다.

이러한 과정에서 국내 PM_{2.5} 농도에 미치는 국외 배출영향이 적지 않은 점을 고려하면(Kim *et al.*, 2023a; Kim *et al.*, 2022c; Kim *et al.*, 2017a) 정확한 국외 배출영향에 대한 파악이 중요하나, 대기질 모사 결과에는 다양한 입력자료의 불확도, 모수화 과정에 발생하는 대기질 모형 자체의 오차 등이 포함된다(Cha *et al.*, 2023; Bae *et al.*, 2021; Huang *et al.*, 2021). 이에 본 연구에서는 Bae *et al.* (2022a)에서 제안된 방법을 적용하여 국외 배출영향을 우선 보정하였으며, 이를 포함한 PM_{2.5} 국내 배출영향 산정 방법을 그림 2에 도식하였다.

국내 PM_{2.5} 농도에 대한 국외 배출영향 산정을 위해 우선 상향식 배출목록 기반의 기본 모사를 수행한 다음, 이와는 별도로 국외 배출량을 50% 삭감한 후 민감도 모사를 수행하였다. 이때, 배출목록 기반의 국외 배출영향(Foreign Emissions Impact, FEI_{base})은 기본 모사와 민감도 모사의 결과로부터 식 (1)과 같이 계산할 수 있다(Kim *et al.*, 2024a; Bae *et al.*, 2020c).

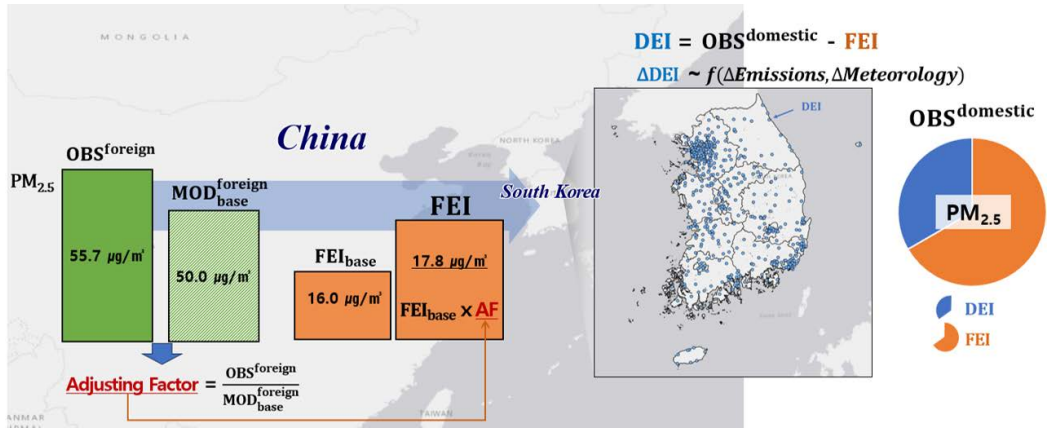


Fig. 2. Schematic diagram of adjustment of foreign emissions impact and estimation of domestic PM_{2.5} emissions impact.

$$FEI_{base} = \left(MOD_{base}^{domestic} - MOD_{\Delta\epsilon}^{domestic} \right) \quad (1)$$

$$\times \frac{100\%}{\Delta\epsilon_{foreign}}$$

여기에서 $MOD_{base}^{domestic}$ 와 $MOD_{\Delta\epsilon}^{domestic}$ 는 각각 기본 모사와 민감도 모사로부터 계산된 국내 지역에 대한 PM_{2.5} 모사 농도이며, $\Delta\epsilon_{foreign}$ 는 민감도 모사에서의 국외 배출 삭감율(50%)을 의미한다.

기본 모사 농도가 관측 농도를 정확히 재현할 경우 식 (1)에서 계산된 값을 그대로 국외 배출영향으로 이용할 수 있으나, 대부분의 경우 관측 농도와 모사 농도는 편차를 보인다. 따라서, 식 (1)에서 산정된 국외 배출영향을 보정하기 위해, 국외 지역에 대한 PM_{2.5} 관측 농도(OBS_{foreign})와 기본 모사 농도($MOD_{base}^{foreign}$)의 비(Adjusting Factor, AF; 식 2)를 계산하였고(Bae *et al.*, 2022a; Bae and Kim, 2022), 이를 FEI_{base}에 곱하여 수정된 국외 배출영향(FEI)을 산정하였다(식 3).

$$AF = \frac{OBS_{foreign}}{MOD_{base}^{foreign}} \quad (2)$$

$$FEI = FEI_{base} \times AF \quad (3)$$

이때 AF 계산에 사용된 PM_{2.5} 관측 농도와 모사 농도는 각 기간에 대해(BS, S1~S4) 그림 1에 보인 중국

의 관측 농도와 해당 관측소 격자에 대한 모사 농도를 평균하여 이용하였다. 이후 국내 측정소별로 기간 평균 PM_{2.5} 관측 농도(OBS_{domestic})에서 측정소가 위치한 격자에 대해 산정된 국외 배출영향(FEI)을 뺀 나머지 농도를 국내 PM_{2.5} 농도에 대한 국내 배출영향(DEI)으로 정의하였다(식 4).

$$DEI = OBS_{domestic} - FEI \quad (4)$$

시도별 국내 배출영향은 대기질 측정망의 위치를 기준으로 지자체별로 평균하여 이용하였고, 각각의 기간(BS~S4)에 대해 계산하였다. 국내 전체 평균의 경우 모든 측정소를 동시에 평균하여 산정하였다.

Kim *et al.* (2024b)에 따르면, 2016년 이후 5년 동안 국내 NO₂ 관측 농도는 23% 감소하였으며, 이 가운데 국외 배출영향이 차지하는 비중은 2% 이내로 작았다. 이런 점에서, 본 연구에서는 대상 기간 중 국내 NO₂ 농도 변화는 국내 배출영향 변화에 의한 것으로 가정하였다. 이후 국내 배출영향 가운데, PM_{2.5}와 NO₂에 대한 국내 배출영향을 필요에 따라 각각 ‘PM_{2.5} 배출영향’과 ‘NO₂ 배출영향’으로 기술하였다.

2.5 PM_{2.5} 및 NO₂ 배출영향 변화의 추세 분석

산정된 시도별 PM_{2.5} 배출영향은 우선 개별 기간별로 그 차이를 살펴보았으며, NO₂ 배출영향 변화와도

비교하였다. 이와 함께 1~4차 계절관리제 기간 동안 시도별 국내 배출영향의 평균적인 추세 변화를 별도로 살펴보았다. 다만, 어떤 방법으로 추세 분석을 수행하는지에 따라 그 결과가 달라질 수 있으므로 본 연구에서는 다음과 같이 다양하게 접근하였다.

첫째, 계절관리제 시행 전(BS)과 대비하여 S1~S4 기간의 국내 배출영향의 변화를 식 (5)와 같이 살펴보았다(ΔDEI_{BS}). BS 기간을 기준으로 비교할 경우 계절관리제 시행 전과 후 국내 배출영향 변화를 직접 비교할 수 있다. 여기에서 DEI_{BS} , DEI_{S1} , DEI_{S2} , DEI_{S3} , DEI_{S4} 는 각 계절관리제(BS~S4) 기간별 평균 국내 배출영향이다.

ΔDEI_{BS}

$$= \frac{(DEI_{S1} - DEI_{BS}) + (DEI_{S2} - DEI_{BS}) + (DEI_{S3} - DEI_{BS}) + (DEI_{S4} - DEI_{BS})}{4} \quad (5)$$

둘째, ΔDEI_{BS} 에서의 BS 대신 S1을 기준으로 S2~S4 기간의 국내 배출영향 변화를 식 (6)과 같이 계산하였다(ΔDEI_{S1}). S1을 기준으로 삼은 이유는 계절관리제 시행 이전인 BS 기간의 경우 국내를 비롯한 동북아 지역에서 다른 기간과 뚜렷하게 구별되는 높은 $PM_{2.5}$ 농도가 관측되었으며 (Bae et al., 2023a, 2022b), 차별적인 기상 영향이나 국외 배출영향 등을 배제하고자 하였다.

$$\Delta DEI_{S1} = \frac{(DEI_{S2} - DEI_{S1}) + (DEI_{S3} - DEI_{S1}) + (DEI_{S4} - DEI_{S1})}{3} \quad (6)$$

셋째, 앞선 두 방법에서는 고정된 시점을 이용한 반면, 식 (7)에서는 전년 동기 대비 배출영향 변화로 추세분석을 시도하였다(ΔDEI_{PY}). 고정된 시점을 이용한 분석의 경우 해당 시점의 기상 및 배출 조건이 배출영향 변화 분석에 매우 중요하게 작용할 수 있는 점을 고려하였다.

ΔDEI_{PY}

$$= \frac{(DEI_{S1} - DEI_{BS}) + (DEI_{S2} - DEI_{S1}) + (DEI_{S3} - DEI_{S2}) + (DEI_{S4} - DEI_{S3})}{4} \quad (7)$$

이렇게 계산된 시도별 $PM_{2.5}$ 국내 배출영향 변화를 국내 평균적인 변화와 비교하였으며, 대표 전구물질인 NO_2 배출영향 변화와의 상관성 분석을 통해 전구물질 배출량 변화와 $PM_{2.5}$ 배출영향 변화가 얼마나 유의성을 가지는지를 분석하였다. 또한, 이러한 접근은 $PM_{2.5}$ 및 NO_2 배출영향을 낮추기 위해 이행된 지자체별 배출 저감 노력을 배출량이 아닌, 농도 변화 측면에서 평가한다는 점에서 중요할 수 있다.

다만, 계절관리제 시행 이후 $PM_{2.5}$ 및 NO_2 배출영향의 변화 정도는 시도별로 큰 차이를 보일 수 있다. 예를 들어, 한 지자체에서 $PM_{2.5}$ 배출영향 변화가 국내 평균 변화와 비교하여 큰 폭으로 감소한 반면, NO_2 배출영향은 상대적으로 작게 감소할 수 있다. 또, 이와는 다르게 $PM_{2.5}$ 배출영향 변화는 작고, NO_2 배출영향 변화가 큰 지자체가 있을 경우, 어느 지자체의 대기질 관리가 더 효과적이었는지를 종합하여 판단하기는 쉽지 않다. 더욱이, 이러한 비교에서 두 대기오염물질의 농도 단위가 달라, 직접적인 배출영향 변화를 비교하기 어렵다.

이러한 점에서, 본 연구에서는 시도별 배출 저감 노력을 대기질과 건강영향의 변화 측면에서 접근해 보기 위한 시도로써 대기환경지수(Air Quality Index, AQI)를 도입하였다. 환경부에서는 대기질 현황이나 예보 시에 최종적인 통합대기환경지수(Comprehensive Air-quality Index, CAI; KMOE, 2006)를 계산하는데 AQI를 활용하고 있다. 통합대기환경지수는 대기오염도에 따른 인체 영향 및 체감 오염도를 고려하여 개발되었으며, 수치에 따라 개별 물질에 의한 대기오염도를 수치로 환산할 수 있다(KMOE, 2024b). AQI를 활용할 경우 두 대기오염물질이 계절관리제 기간 동안 개선된 정도를 건강영향 측면에서 종합하여 시도별로 비교할 수 있을 것으로 기대하였다. 본 연구에서는 $PM_{2.5}$ 와 NO_2 농도에 대한 국내 배출영향 변화를 AQI 변화로 산정하고, 이를 시도별로 종합하여 비교하였다. 이러한 분석을 통해 대상 기간 중 어느 대기오염물질의 국내 배출영향 개선이 국민들의 건강 개선에 실질적으로 기여했는지를 시도별로 분석하였다.

3. 연구 결과

3.1 PM_{2.5} 및 NO₂ 관측 농도와 국내 배출영향 변화

1~4차 계절관리제 기간(S1~S4)의 국내 평균 PM_{2.5} 농도는 계절관리제 시행 이전 기간(BS 평균 PM_{2.5} 농도: 33.2 µg/m³)과 비교하면 각각 8.8, 9.2, 10.4, 8.7 µg/m³만큼 감소하였다(그림 3(a)). Son *et al.* (2020)에 따르면 BS 기간과 비교하여 1차 계절관리제 기간(S1)의 PM_{2.5} 농도는 기상과 배출량 변화에 의해 각각 8.5%, 16% 감소하였다. 그림에도 불구하고 1~4차 계절관리제 기간별 PM_{2.5} 평균 농도는 22.8~24.5 µg/m³로 여전히 높은 수준으로, 해당기간 동안 모든 17개 시도에서 연평균 대기환경기준(15 µg/m³)을 만족하

지 못하였다. 따라서, 연평균 대기환경기준을 만족하기 위해서는 계절관리제 기간은 물론, 그 외 기간에 대해서도 배출 관리가 추가적으로 필요해 보인다. 또한 BS 기간을 제외하면, S1~S4 기간 동안 시도별 PM_{2.5} 농도 변화는 BS 기간을 포함한 변화에 비해 작았고, S4 기간 동안 국내 평균 PM_{2.5} 농도는 바로 전 기간인 S3과 비교하여 오히려 1.7 µg/m³만큼 상승하였다.

반면, 국내 평균 NO₂ 농도는 PM_{2.5} 농도와는 달리 대상 기간 동안 전반적인 감소 추세를 보였다(그림 3(b)). 국내 평균 NO₂ 농도는 BS 기간 22.9 ppb였으며, S1~S4 기간에는 19.1~20.3 ppb로 관측되었다. 다만, S3와 S4 동안 국내 평균 NO₂ 관측 농도는 19.1 ppb로 유사하였다. NO₂는 1차 대기오염물질로 대기

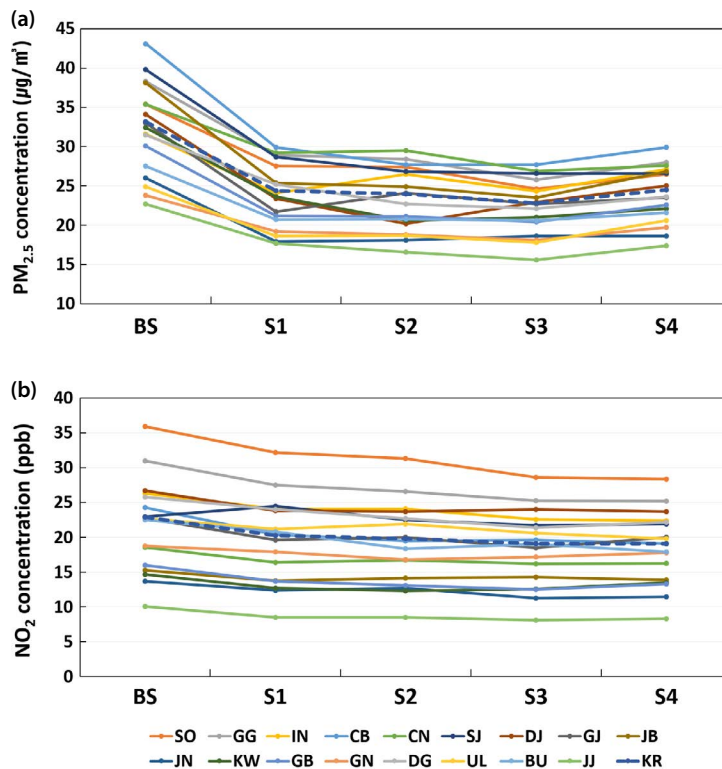


Fig. 3. Changes in provincial (a) PM_{2.5} and (b) NO₂ concentrations during the seasonal PM management periods. 'BS' represents 'Before Seasonal PM management' while 'S1' through 'S4' denote the 1st to 4th seasonal PM management periods, respectively. The dotted line represents overall average concentration in South Korea. Local government abbreviations are the same as shown in Fig. 1.

중 체류시간이 짧아 장거리 이동이 어려움을 감안할 때 (Seinfeld and Pandis, 2016), NO₂ 농도 감소는 상당 부분 해당 지자체의 NO_x 배출량 저감 노력에 의한 것으로 해석할 수 있다. 그 예로, 지표 관측뿐 아니라, 위성 관측 등을 통해 국내 도시별 NO₂ 농도의 시공간 변화를 연구한 바 있다 (Yang *et al.*, 2023; Kim *et al.*, 2020a). 이러한 접근으로 국내에서도 NO_x 배출량 등 대기오염물질의 지속적인 감소를 확인하였다 (Colombi *et al.*, 2023; Bae *et al.*, 2020b). 반면 앞서 설명한 PM_{2.5} 농도의 경우, NO_x 등 배출량 변화는 물론 기상 요인이 크게 작용하며, NO_x 배출량 감소가 오히려 PM_{2.5} 농도 증가를 유발하기도 한다 (Ma *et al.*, 2022; Kim *et al.*, 2021a; Huang *et al.*, 2020). 따라서 S3 → S4 구간에서 NO₂ 농도는 유사한 반면, PM_{2.5} 농도가 증가한 이유는 국내 배출량의 증가보다는 기상이나 외부 유입의 변화, 또는 화학 반응의 비선형성에 의한 것으로 판단된다.

대상 기간 동안 시도별 NO₂ 농도 차이는 20.1 (S4)~23.7 (S1) ppb이었고, 최고 농도를 보인 지자체의 NO₂ 농도는 최소 농도를 보인 지자체의 약 3.6배이었다. 예를 들어, S3 동안 NO₂ 관측 농도는 서울 (SO)에서 30 ppb 내외로 가장 높았고, 제주 (JJ)에서 8.1 ppb로 가장 낮았다. 전체 대상 기간 동안 PM_{2.5} 농도는 충북 (CB)에서 27.7~43.1 µg/m³로 가장 높았으나, NO₂ 농도는 서울에서 28.4~35.9 ppb로 가장 높았다. 다만, 기간별 NO₂ 농도의 증감 정도는 지자체마다 차이를 보였으며, 이러한 점을 감안하여 PM_{2.5} 배출영향 변화와 NO₂ 배출영향 변화의 상관성을 3.3절에서 분석하였다.

그림 4(a)는 시도별 PM_{2.5} 농도 중 국외 배출영향을 제외한 국내 배출영향 (DEI)만의 변화를 보인 것이다. 국내 배출영향은 2.4절에서 설명한 것처럼 관측 농도와 대기질 모사에서 계산된 국외 배출영향의 차이로부터 계산하였고, 기본 모사에 대한 모사 수행 평가는 그림 S1과 표 S1에 수록하였다. 국내 PM_{2.5} 기본 모사 농도는 관측 농도와 비교에서 BS~S4 각각에 대해 R 0.8~0.9, NME 20.3~24.2%, NMB -18.7~

13.8%로, Emery *et al.* (2017)이 제안한 기준 (criteria for 24-hr PM_{2.5}: R ≥ 0.4, NME ≤ 50%, NMB ≤ ± 30%)을 만족하였다.

BS 대비 S1 동안 PM_{2.5} 농도에 대한 국내 배출영향은 대부분의 지자체에서 감소하였으나 (평균 5.0 µg/m³ 감소), S1~S4 기간에 대한 국내 배출영향의 변화는 시도별 차이를 보였다. 또한 계절관리제 기간 중 S3 대비 S4에는 국내 시도별 PM_{2.5} 관측 농도는 0.0~3.3 µg/m³ 범위에서 증가하였으나 시도별 PM_{2.5} 배출영향은 -1.5~2.7 µg/m³ 사이에서 증감을 보였다. 이러한 국내 배출영향의 시도별 차이에는 배출뿐 아니라 기상 영향이 더해질 수 있다. 하지만, 국외 배출영향 역시 국내 유입 후에는 국내 배출영향과 동일한 기상 영향을 받는다고 전제하면 대상 기간 동안 시도별 국외 배출영향 변화의 차이가 국내 배출영향 변화보다 작다는 점에서, 국내 시도별 배출량 변화 역시 PM_{2.5} 농도 감소에 중요한 역할을 했을 것으로 판단된다 (그림 4(b)). 다만, BS 기간을 제외하면 S1~S4 기간 동안 국내 평균 및 시도별 PM_{2.5} 농도에 대한 국내 배출영향은 15 µg/m³ 미만으로 국내 연평균 대기환경기준보다 낮았다. 따라서 대상 기간 동안 국내 배출영향 못지 않게 국외 배출영향에 대한 관심과 추이 분석이 중요해 보인다.

그림 4(b)에서 BS 대비 S1~S4 기간의 평균적인 PM_{2.5} 농도 변화 중 DEI가 차지하는 비율은 국내 평균 61.2%로, 국내 배출영향 감소가 국외 배출영향 감소(39%)보다 크게 기여하였다. 시도별로는 충북에서 BS 대비 S1~S4기간 동안 PM_{2.5} 농도는 14.3 µg/m³로 국내 지자체 가운데 가장 크게 감소하였고, 이 중 국내 배출영향은 10.7 µg/m³로 전체 PM_{2.5} 농도 감소의 74.5%를 차지하였다. 대부분 PM_{2.5} 농도 감소가 큰 지자체일수록 국내 배출영향에 의한 농도 감소 비율이 높았다. 국내 배출영향의 변화보다 국외 배출영향의 변화가 큰 지자체는 충남, 인천, 경남으로 각각 PM_{2.5} 농도 감소 중 국내 배출영향 변화의 기여율이 각각 38.8, 33.8, 28.0%였다. 특징적으로 강원도의 경우, 자체 배출이 적음에도 불구하고 PM_{2.5}의 농도 감소

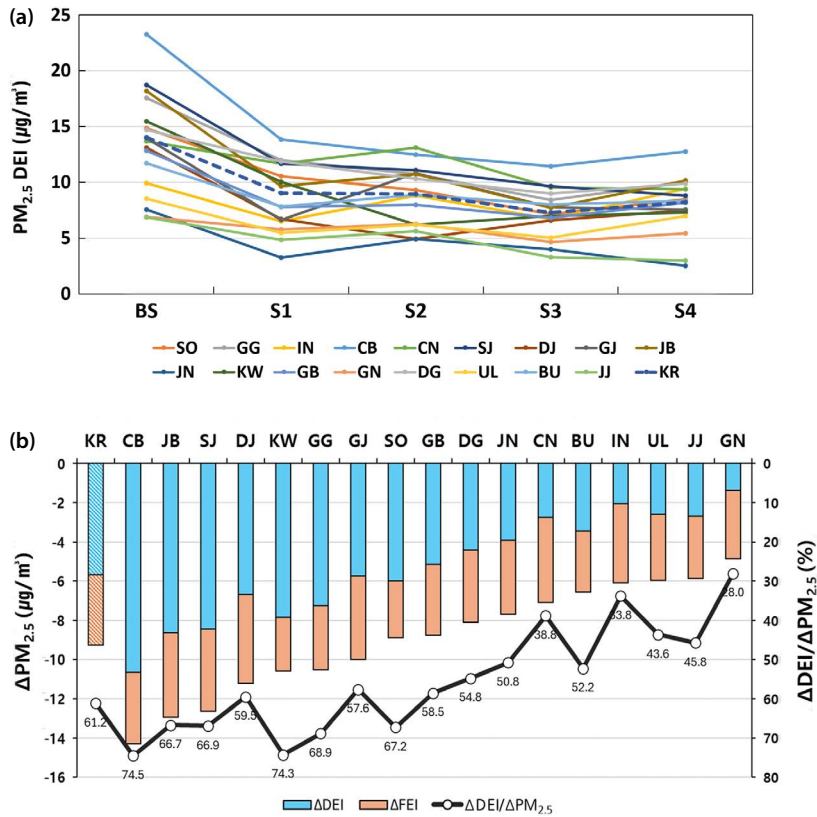


Fig. 4. (a) Changes in domestic emissions impact on provincial PM_{2.5} concentrations during the seasonal PM management periods, and (b) changes of DEI and FEI compared to BS and the ratio of ΔDEI to $\Delta\text{PM}_{2.5}$ between S1 and S4.

폭이 크고, 그 중 국내 배출영향의 변화가 크게 나타났는데, 이는 풍상에 위치한 수도권의 배출 감소 영향이 함께 반영된 것으로 보인다.

3.2 시도별 PM_{2.5} 및 NO₂ 국내 배출영향 변화 비교

앞절에서 살펴본 것처럼 대상 기간 동안 PM_{2.5}와 NO₂ 배출영향의 변화는 시도별, 기간별로 차이를 보이므로(그림 3과 4 참고), 기준 시점 설정에 따라 국내 배출영향에 대한 평가가 달라질 수 있다. 예를 들어, PM_{2.5} 배출영향은 BS 기간을 기준으로 살펴보면 뚜렷하게 감소하였다. 하지만 S1을 기준으로 분석하면, S2 동안 PM_{2.5} 배출영향은 강원에서는 3.8 µg/m³ 감소한 반면, S2를 기준으로 분석하면 S3 기간 PM_{2.5}

배출영향은 0.7 µg/m³ 증가하였다. 이처럼 비교 방법에 따라 S1~S4 기간 동안 지자체별 국내 배출영향에 대한 평가가 달라질 수 있다. 이러한 점에서 본 연구에서는 방법론에 설명한 것과 같이 1) BS 대비 변화, 2) S1 대비 변화, 그리고 3) 이전 연도 대비 변화로 기준 시점을 다양하게 설정하고 접근을 시도하였다.

1~4차 계절관리제 기간 동안 국내 평균 PM_{2.5} 배출영향은 BS, S1, 전년 대비로 계산 시, 각각 5.7, 0.9, 1.5 µg/m³ 감소하였으며, NO₂ 배출영향은 3.3, 1.0, 0.9 ppb 감소하였다. PM_{2.5} 배출영향과 NO₂ 배출영향 모두 BS 기준 대비 변화가 가장 컸으며, 이는 계절관리제 시행 직후 국내 PM_{2.5}와 NO₂ 농도가 다른 기간과 비교하여 감소 폭이 가장 컸기 때문이다. 다만, S1 대비, 그리고 전년 대비 변화가 BS 대비 변화에 비해 작

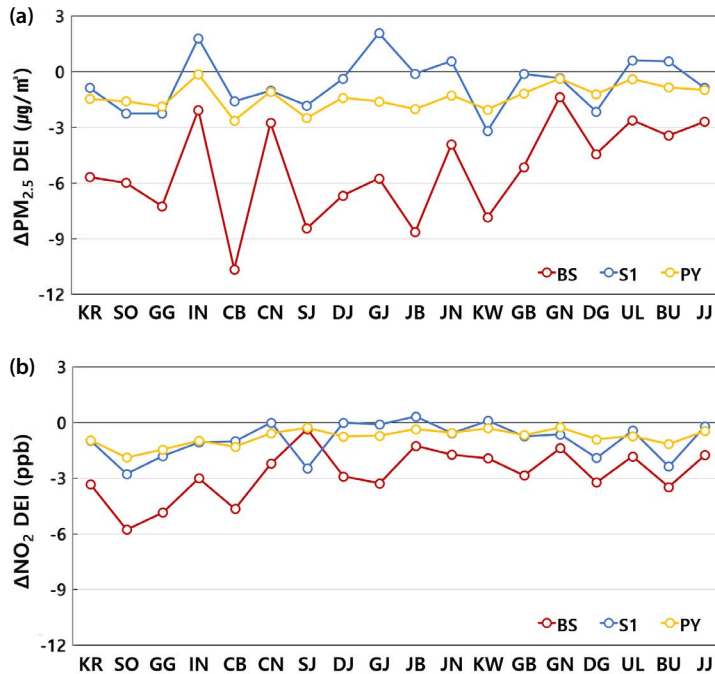


Fig. 5. Changes in (a) $PM_{2.5}$ and (b) NO_2 domestic emissions impacts during the seasonal PM management periods for the seventeen provinces. Local government abbreviations are the same as shown in Fig. 1. 'BS', 'S1', and 'PY' represents 'Before Seasonal PM management', '1st seasonal PM management periods', 'Previous Year', respectively. Red, yellow, and blue set the reference years to 'BS', 'S1', and 'PY', respectively, and donate the calculated concentration change.

은 점에서 BS → S1 구간에 걸쳐 나타난 국내 배출영향 변화에는 정책적 효과 외에도 COVID-19로 인한 국내 배출량 변화, 기상과 같은 다른 요인이 복합적으로 작용한 것으로 판단된다(Cha *et al.*, 2023; Kang *et al.*, 2020).

BS (ΔDEI_{BS}), S1 (ΔDEI_{S1}), 그리고 전년 대비 (ΔDEI_{PY})로 살펴본 $PM_{2.5}$ 와 NO_2 배출영향은 대부분의 지자체에서 감소하였다(그림 5). 전년 대비 시도별 국내 배출영향(ΔDEI_{PY})의 경우 $PM_{2.5}$ 는 0.1~2.6 $\mu g/m^3$ 만큼, NO_2 는 0.3~1.9 ppb만큼 감소하였고, 이는 해당 기간의 기상 조건이 반영된 결과이다. 본문에는 보이지 않았으나 BS 수준으로 배출량을 고정할 경우 대상 기간 동안 기상 변화는 S1~S4 기간 평균 국내 NO_2 농도를 0.2 ppb (시도별 표준편차 1.9 ppb) 감소시켰다. 국내 배출영향 변화에서 기상 영향을 구분하는 것은 후속 연구로 진행할 예정이다.

BS 대비로 살펴보면 $PM_{2.5}$ 배출영향(ΔDEI_{BS})은 1.4~10.9 $\mu g/m^3$ 만큼 감소하였고, 모든 지자체에서 전년 대비 감소보다 더 큰 폭으로 감소하였다. NO_2 도 세종을 제외하면 BS 대비 배출영향 감소가 전년 대비 감소에 비해 컸다. 하지만 S1을 기준 시점으로 설정할 경우, BS 또는 전년 대비보다 국내 배출영향의 감소는 줄어들었고, 일부 지자체에서는 $PM_{2.5}$ 및 NO_2 배출영향이 오히려 증가하였다. 이는 S1 동안 $PM_{2.5}$ 와 NO_2 배출영향이 S2~S4보다 낮았기 때문이며, S1 동안 $PM_{2.5}$ 와 NO_2 농도 감소에 기여했던 기상과 같은 동인들이 S2~S4 기간 중 약화되었기 때문으로 이해된다.

하지만 지자체별 $PM_{2.5}$ 배출영향과 NO_2 배출영향의 변화가 항상 일치하지는 않았다. 예를 들어 S1 기간 동안 광주(GJ), 울산(UL), 부산(BU) 등에서 $PM_{2.5}$ 배출영향은 감소하였으나 NO_2 농도는 오히려 증가

하였고, 이와 반대의 경향을 보이는 지자체(전북, 강원)도 확인되었다. BS 기간 동안 세종에서 PM_{2.5} 배출영향 감소는 충북과 전북 다음으로 높았으나, NO₂ 배출영향 감소는 17개 지자체 가운데 가장 낮았다.

이상의 분석을 통해 다음과 같은 몇 가지 사항을 정리할 수 있다. 첫째, 계절관리제 시행 이후 지자체별 PM_{2.5}와 NO₂ 농도에 대한 국내 배출영향은 전반적으로 감소하였으나, 일부 지역과 시기 동안 증가를 보였다. 둘째, 일정 기간에 대한 지자체별 PM_{2.5} 농도 또는 국내 배출영향 변화 분석 시에는 고정된 특정 시점을 기준으로 하기보다는 전년 동기 대비 변화로 전체 기간에 대해 살펴보는 것이 타당해 보였다. 특정 기간에 대해 한 지자체의 관측 농도에 이상치(outlier)가 포함될 경우, 해당 기간을 기준으로 분석된 장기 추세는 이상치의 영향으로 인해 잘못된 분석으로 이어질 수 있다. 따라서, 국내 시도별 대기오염 물질의 농도 또는 배출영향의 장기 변화를 분석할 때에는 특정 기간을 기준으로 정하기보다는 이전 동기 대비 변화를 이용하는 것이 이상치에 대한 영향을 최소화할 수 있을 것으로 보인다. 마지막으로, 각 지자체의 PM_{2.5} 배출영향과 NO₂ 배출영향의 변화 추세를 반드시 비례하지는 않았다. 이에 대해서는 3.3절에서 보다 자세히 살펴보았다.

3.3 PM_{2.5} 배출영향 변화와 NO₂ 배출영향 변화의 상관성

그림 6은 4년간 전년 대비(ΔDEI_{py})로 평균된 대상 기간의 지자체별 PM_{2.5} 배출영향 변화와 NO₂ 배출영향 변화 간 상관성을 보인다. 1~4차 계절관리제 기간 동안 해마다 국내 PM_{2.5}와 NO₂ 농도에 대한 국내 배출영향(=배출+기상)은 각각 1.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 0.9 ppb만큼 감소하였으며, 시도별로는 각각 0.1~2.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 0.3~1.9 ppb만큼 감소하였다.

대상 기간 동안 4개 시도를 제외한 13개 시도에서는 PM_{2.5}와 NO₂ 배출영향 감소의 비가 1:2~2:1 사이에 위치하였으며, 이들 간의 상관계수는 0.60이었다. 다만, 일부 시도의 경우 NO₂ 배출영향이 크게 감

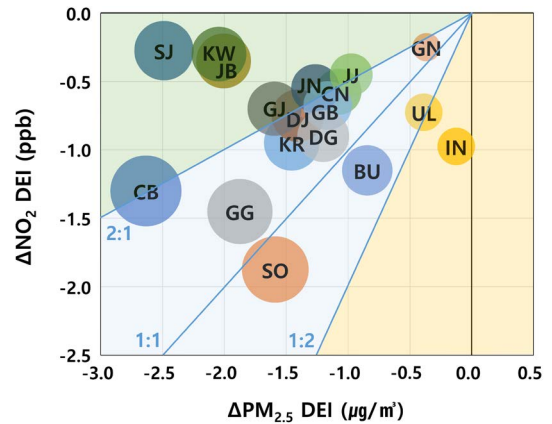


Fig. 6. Scatter plot of the annual mean changes in PM_{2.5} and NO₂ domestic emissions impacts during the seasonal PM management periods for the seventeen provinces. The 1:2 to 2:1 line represents the ratio of PM_{2.5} and NO₂ domestic emissions impacts changes. The size of circles is the sum of PM_{2.5} and NO₂ domestic emissions changes.

소하지 않았음에도 PM_{2.5} 배출영향은 다른 시도에 비해 크게 감소하였으며, 반대로 NO₂ 배출영향이 크게 감소하였음에도 PM_{2.5} 배출영향은 타 시도에 비해 개선 정도가 낮은 시도 역시 확인되었다. 이는 국내 배출에 의한 PM_{2.5} 농도 변화가 다양한 전구물질 배출 변화에 따라 결정되고, 주변의 시도와 배출영향을 서로 주고받기 때문으로 이해된다.

국내 평균적으로 감소한 NO₂ 배출영향은 0.9 ppb로 국내 관측에서 측정된 0.2 정도의 Nitrogen Oxidation Ratio (NOR)로 질산암모늄으로 생성된다고 가정하면(Kim *et al.*, 2022a; Kim *et al.*, 2022b), 이는 0.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 에 해당한다. 이는 간단한 계산값이나, 본 연구에서 추정된 국내 평균 PM_{2.5} 배출영향 변화(1.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)의 40% 수준으로, 1~4차 계절관리제 기간 동안 국내 NO₂ 배출영향 감소는 PM_{2.5} 배출영향 감소의 일부만을 설명할 수 있다. 또한, NOR을 0.2로 가정한 것은 기존 관측 연구에 기반한 것으로 실제 국내 배출영향은 이보다 낮을 것으로 예상된다(Kang and Kim, 2022a). 이와 같이 NO₂ 배출영향 변화 대비 PM_{2.5} 배출영향 변화가 큰 이유는 다음과 같은 점을

고려할 수 있다.

첫째, 시도별 PM_{2.5} 배출영향의 감소가 해당 지자체의 자체 배출량 감소와 상관성이 높다고 가정할 경우, PM_{2.5} 배출영향 감소는 NO₂ 배출영향 감소가 아닌, 다른 전구물질의 배출 감소에 의한 것일 수 있다. 이에 대한 확인을 위해서는 배출량 변화와 관측 자료를 통해 어떤 PM_{2.5} 구성 성분의 농도가 감소했는지 등에 대한 면밀한 조사가 필요하다. 예를 들어, 그림 6에서 세종, 강원, 전북의 경우, PM_{2.5} 배출영향은 각각 2.5, 2.0, 2.0 µg/m³ 감소하여 타 지자체 대비 감소 폭이 높았으나, NO₂ 배출영향 감소는 0.3, 0.3, 0.4 ppb로 전남을 제외하면 국내 지자체 중 가장 낮았다. 환경부 자료에 의하면 계절관리제 기간(S1~S4) 동안 주요 배출 삭감 대상 물질은 SO_x와 NO_x이었고, 각각 계절관리제 시행 전 배출량(CAPSS 2016 기준 12~3월의 배출량)의 28~35%, 13~15%만큼 감축되었다(KMOE, 2024c). SO_x의 경우 전국 규모의 배출량 감소는 높았으나, 세종, 강원, 전북의 배출량은 국내 배출의 0.0~4.5%로 낮았고(Choi *et al.*, 2021), 겨울철 동안 SO₂ → 황산염으로의 전환율도 높지 않다(Kang and Kim, 2022a, 2022b; Qi *et al.*, 2022). Primary PM_{2.5} (PPM_{2.5}) 역시 중요한 관리 대상이나, 국가대기 오염물질 배출량(CAPSS) 2017 기준 세종, 강원, 전북에서 배출되는 PPM_{2.5}은 각각 국내 전체 배출의 0.4, 4.5, 3.9%(Choi *et al.*, 2021)로 낮았고, 계절관리제 동안 삭감 비율도 높지 않아(약 20%) PM_{2.5} 배출영향 감소의 주된 원인으로 충분치 않다. 이러한 점에서 다른 전구물질의 역할 또는 규제 내에 포함되지 않은 오염원의 영향을 살펴보는 것이 필요하다. 또한, 규제 대상에 포함되지 않았던 배출량 변화를 포함하여, 전구물질 배출량 변화와 그에 따른 PM_{2.5} 배출영향 변화를 보다 면밀히 분석하기 위해서는 관측 자료를 이용하여 구성 성분별 변화를 살펴보는 등의 심도 깊은 추가적인 연구가 요구된다.

둘째, 본 연구에서 계산된 PM_{2.5} 배출영향은 해당 지자체의 자체 배출량을 포함한 국내 전체 배출량에 의한 기여를 의미한다(2.3절 참고). 특히, PM_{2.5}의 생

성 과정과 지역간 이동 가능성을 고려하면, 일부 시도에서의 높은 PM_{2.5} 배출영향 감소는 해당 지자체의 배출량 감소보다는 주변 지자체의 배출량 감소에서 기인했을 가능성이 있다(Kang *et al.*, 2021; Kim *et al.*, 2021e; You *et al.*, 2020). 예를 들어, Kim *et al.* (2021c)에 따르면 전북의 PM_{2.5} 농도에 대한 국내 타 지자체의 배출 기여도는 전북 자체 배출 기여도보다 높았으며, NO_x에 의한 질산염 생성은 전북 자체 배출보다 타 지자체 배출에 의한 기여도가 2배 정도 높았다. Son *et al.* (2021)은 국내 중앙부에 위치한 충북의 PM_{2.5} 농도는 지리적 특성상 자체 배출영향보다는 주변 시도의 배출영향이 더 높음을 대기질 모사를 통해 설명하였다. 세종 역시, 충북과 지리적 위치가 비슷하므로 자체 배출영향보다는 주변 시도의 배출영향이 높을 것으로 예측된다. 특히, 상대적으로 작은 지자체 면적과 작은 배출량은 인근 시도의 배출영향을 상대적으로 높이는 이유가 될 수 있다. Kim *et al.* (2023b)은 수도권 배출영향에 의해 강원도의 오존 농도가 증가함을 보였으며, 이와 마찬가지로 PM_{2.5} 농도 또한 수도권 등 주변 시도의 배출영향을 받을 것으로 예상된다. 이처럼 해당 지자체의 배출 특성은 물론, 주변 여건을 고려하여 주변 지역으로부터의 배출영향을 함께 고려해야 하며, 이는 2차 대기오염물질의 관리가 점차로 중요해지는 국내 현 상황에서는 ‘농도’ 측면에서 대책의 효과를 분석할 수 있는 체계 마련의 시급성을 의미한다.

3.4 시도별 PM_{2.5}와 NO₂ 배출영향 개선 평가

지난 1~4차 계절관리제 기간 동안 PM_{2.5}를 포함한 대기질 개선을 위해 배출량 삭감 등 다양한 정책적 노력을 펼쳐왔으나, 그림 6에 보인 바와 같이 대기오염물질 농도에 대한 국내 배출영향의 개선은 지자체마다, 대기오염물질에 따라 차이를 보였다. 본 절에서는 PM_{2.5}와 NO₂ 배출영향 변화를 AQI 변화로 환산하고, 그 결과를 그림 7에 제시하였다. 인천을 제외한 모든 지자체에서 지난 1~4차 계절관리제 기간 동안 대기질은 NO₂ 배출영향보다는 PM_{2.5} 배출영향 개선

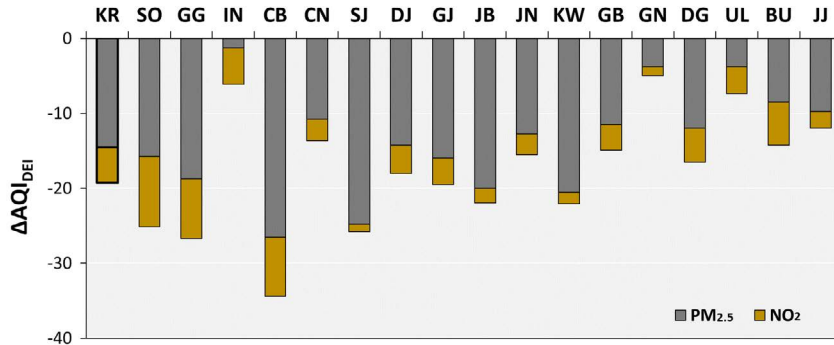


Fig. 7. PM_{2.5} and NO₂ Air Quality Indices due to changes in their domestic emissions impacts during the seasonal PM management periods for the seventeen provinces (KR: South Korea, SO: Seoul, GG: Gyeonggi, IN: Incheon, CB: Chungcheongbuk-do, CN: Chungcheongnam-do, SJ: Sejong, DJ: Daejeon, GJ: Gwangju, JB: Jeollabuk-do, JN: Jeollanam-do, KW: Gangwon, GB: Gyeongsangbuk-do, GN: Gyeongsangnam-do, DG: Daegu, UL: Ulsan, BU: Busan, JJ: Jeju).

에 의한 AQI가 크게 개선되었다. 국내 평균 배출영향 변화에 의한 AQI는 PM_{2.5}와 NO₂에 의해 각각 14.5, 4.7만큼 감소하였다.

지자체별 AQI는 충북에서 34.4만큼 감소하여 17개 지자체 중 가장 크게 개선되었다. 다만, NO₂ 배출영향 변화만을 분리하면 충북의 AQI 변화는 서울, 경기와 비슷하나, PM_{2.5} 배출영향 변화에 의한 AQI 변화는 두 지역들보다 크다. 따라서, 대상 기간 동안 충북의 대기질은 주변 지역의 배출영향을 받았을 가능성이 존재한다. 충북과 인접한 세종의 경우 PM_{2.5} 배출영향 변화에 의한 AQI 변화는 충북과 유사한 수준이나, NO₂ 배출영향 변화에 의한 AQI 변화는 국내 지자체 가운데 가장 낮았다. 강원과 전북 역시 전체 AQI 감소는 국내 평균보다 높았으나 NO₂ 배출영향 변화에 의한 AQI 감소 비중은 낮았다. 시도별 AQI 감소는 국민 건강 개선이란 측면에서는 고무적이거나, 지속적인 대기질 개선을 위해서는 명확한 AQI 변화 원인 파악이 중요해 보인다.

반대로, 부산, 대구, 인천에서 NO₂ 배출영향 변화에 따른 AQI 개선 폭은 국내 평균에 비해 높았으나, PM_{2.5} 배출영향을 포함할 경우 전체적인 AQI 개선은 국내 평균에 비해 낮았다. 이와 관련하여 다양한 원인이 있을 수 있으나, 대기질 관리의 궁극적 목표는 대기오염물질의 농도 개선을 통한 국민 건강 증진이

란 점에서 배출량 저감과 함께 대기질 변화를 평가하고 예측할 수 있는 체계 마련이 필요해 보인다.

4. 결 론

본 연구에서는 1~4차 미세먼지 계절관리제 (S1~S4) 기간 동안 관측 농도와 대기질 모사 기법을 이용하여 국내 배출영향 변화에 의해 국내 평균 PM_{2.5}와 NO₂ 농도가 각각 1.5 μg/m³/year, 0.9 ppb/year 감소한 것으로 분석하였다. 이는 계절관리제 시행 전과 비교하여 국내에서 S1~S4 기간 동안 감소한 PM_{2.5} 농도의 61.2%에 해당한다. 다만, 해당 시기의 PM_{2.5} 배출영향 분석에는 대기오염물질의 농도에 영향을 미치는 기상 조건과 COVID-19 등으로 인한 국내 배출량 변화가 함께 반영되어 있다. S1~S4 기간 동안 국내 PM_{2.5} 배출영향은 모든 지자체에서 14 μg/m³ 이하로 유지되었다. 전년 대비로 계산된 PM_{2.5} 배출영향은 시도별로 0.1~2.6 μg/m³ 감소하였으며, NO₂ 배출영향은 0.3~1.9 ppb 감소하였다. 다만, 일부 시도의 경우 NO₂ 배출영향이 크게 감소하지 않았음에도 PM_{2.5} 배출영향은 다른 시도에 비해 크게 감소하였으며, 반대로 NO₂ 배출영향이 크게 감소하였음에도 PM_{2.5} 배출영향은 타 시도에 비해 개선 정도가 낮은 시도 역시 확

인되었다. 이는 국내 $PM_{2.5}$ 배출영향이 다양한 전구 물질의 배출량 변화에 따라 결정되고, 한 지역의 배출 감소가 주변 시도의 대기오염물질 농도에 영향을 미칠 수 있기 때문이다. 일부 시도를 제외한 13개 지자체에서 $PM_{2.5}$ 배출영향 변화와 NO_2 배출영향 변화 간 상관계수는 0.6 수준이었으며, 1:2~2:1의 범위 내에 위치하였다. 기존 연구의 국내 NOR 등을 고려할 경우 NO_2 배출영향 변화는 국내 $PM_{2.5}$ 배출영향 변화를 최대 40% 정도 설명할 수 있었다.

대기환경연구소 등 관측 자료를 이용한 기존 연구에서 겨울철 국내 $PM_{2.5}$ 농도가 높아질수록 질산염의 비중은 높아졌다(Lee *et al.*, 2024; Bae *et al.*, 2019). 따라서, 국내 NO_x 배출 감소는 궁극적으로는 질산염 농도의 감소로 이어질 것으로 예상된다. 다만, 수도권과 같이 NO_x 배출이 높은 지역의 경우 충분하지 않은 NO_x 배출량 감소는 오히려 질산염 농도 증가를 유발할 수 있으며, 국외로부터의 직간접적인 유입 영향도 정확하게 산정하기 어렵다(Kim *et al.*, 2021f, 2017c; Huang *et al.*, 2020). 특히, 계절관리제 기간 동안 변화된 NO_x 배출량은 물론 국내외 암모니아 배출 조건의 불확도와 그 영향을 감안할 때, 지표는 물론 상층 이동 등 $PM_{2.5}$ 의 거동을 물리화학적 과정에서 해석하는 것이 필요하다(Yoo *et al.*, 2024; Kim *et al.*, 2023a, 2021a, 2021b; Bae *et al.*, 2021).

이러한 점에서 국내 $PM_{2.5}$ 농도 개선을 위해서는 $PM_{2.5}$ 와 같은 복잡한 대기오염 문제를 보다 과학적으로 분석하고, 이를 대기질 개선 대책 수립과 평가에 연계하는 것이 필요하다. 이를 위해 배출-관측-대기질 모사를 종합적으로 분석하고 이해할 수 있는 체계 마련과 이를 운용할 수 있는 인적 자원 확보는 향후 대기질 관리의 고도화 단계에서 불가피한 선택으로 예상된다. 본 연구에서는 AQI를 활용하여 $PM_{2.5}$ 증량 농도 변화에 대한 건강영향을 살펴보았으나, 향후에는 $PM_{2.5}$ 성분 농도가 고려된 건강영향 평가나 이를 반영할 수 있는 국내 AQI 마련이 필요해 보인다. 끝으로, 국내 모든 시도에서 최근 몇 년간 대기질은 개선되었으나, 건강영향 측면에서 살펴본 $PM_{2.5}$ 및 NO_2

배출영향의 감소는 지자체마다 차이를 보였다. 이러한 점에서 지자체별 배출 특성이 고려된 농도 저감 대책을 통해 대기환경기준을 달성하는 동시에, 실질적인 국민 건강에 대한 영향을 함께 평가하는 과정이 절실히 보인다.

References

- Bae, C., Kim, B.-U., Kim, H.C., Yoo, C., Kim, S. (2019) 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). <https://doi.org/10.3390/atmos11010048>
- Bae, C., Kim, H.C., Kim, B.U., Kim, S. (2020a) Surface ozone response to satellite-constrained NO_x emission adjustments and its implications, *Environmental Pollution*, 258, 113469. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2019.113469>
- Bae, M., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, J., Kim, S. (2020b) Role of Emissions and Meteorology in the Recent $PM_{2.5}$ Changes in China and South Korea from 2015 to 2018, *Environmental Pollution*. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2020.116233>
- Bae, M., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2020c) 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, M., Kim, E., You, S., Son, K., Kang, Y.-H., Kim, S. (2021) Local Authority Level Source Apportionments of $PM_{2.5}$ Concentrations based on the CAPSS 2016: (VII) Seoul, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 37(3), 466-486, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.3.466>
- Bae, M., Kim, B.-U., Kim, H.C., Jung, H.W., Kim, S. (2022a) An observation-based adjustment method of regional contribution estimation from upwind emissions to downwind $PM_{2.5}$ concentrations, *Environment International*. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2022.107214>
- Bae, M., Kim, S., Kim, S. (2022b) Quantitative Evaluation on the Drivers of $PM_{2.5}$ Concentration Change in South Korea during the 1st - 3rd Seasonal $PM_{2.5}$ Management Periods, *Journal of Korean Society for Atmo-*

- spheric Environment, 38(4), 610-623, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2022.38.4.610>
- Bae, M., Kang, Y.H., Kim, E., Kim, S., Kim, S. (2023a) A multifaceted approach to explain short- and long-term PM(2.5) concentration changes in Northeast Asia in the month of January during 2016-2021, *Science of The Total Environment*, 880, 163309. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.163309>
- Bae, M., Woo, J.-H., Kim, S. (2023b) Seasonal PM Management: (II) How Low PM_{2.5} Concentration in South Korea can be Achieved?, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 39(1), 9-23, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2023.39.1.9>
- Bae, M., Kim, S. (2022) Adjustment of Foreign Emission Impacts on Provincial PM_{2.5} Concentrations in South Korea based on Upwind Observations and Estimation of Domestic Emission Uncertainty, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 38(4), 624-636, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2022.38.4.624>
- Cha, Y., Song, C.-K., Jeon, K.-h., Yi, S.-M. (2023) Factors affecting recent PM_{2.5} concentrations in China and South Korea from 2016 to 2020, *Science of The Total Environment*, 881. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.163524>
- Choi, S.-w., Bae, C.-h., Kim, H.-c., Kim, T., Lee, H.-k., Song, S.-j., Jang, J.-p., Lee, K.-b., Choi, S.-a., Lee, H.-j., Park, Y., Park, S.-y., Kim, Y.-m., Yoo, C. (2021) Analysis of the National Air Pollutant Emissions Inventory (CAPSS 2017) Data and Assessment of Emissions based on Air Quality Modeling in the Republic of Korea, *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 15(4), 114-141. <https://doi.org/10.5572/ajae.2022.084>
- Colombi, N.K., Jacob, D.J., Yang, L.H., Zhai, S., Shah, V., Grange, S.K., Yantosca, R.M., Kim, S., Liao, H. (2023) Why is ozone in South Korea and the Seoul metropolitan area so high and increasing?, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 23(7), 4031-4044. <https://doi.org/10.5194/acp-23-4031-2023>
- Emery, C., Liu, Z., Russell, A.G., Odman, M.T., Yarwood, G., Kumar, N. (2017) Recommendations on statistics and bench-marks to assess photochemical model performance, *Journal of Air & Waste Management Association*, 67(5), 582-598. <https://doi.org/10.1080/10962247.2016.1265027>
- 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>
- 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, L., Zhu, Y., Zhai, H., Xue, S., Zhu, T., Shao, Y., Liu, Z., Emery, C., Yarwood, G., Wang, Y., Fu, J., Zhang, K., Li, L. (2021) Recommendations on benchmarks for numerical air quality model applications in China - Part 1: PM_{2.5} and chemical species, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(4), 2725-2743. <https://doi.org/10.5194/acp-21-2725-2021>
- 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. (2020) Enhanced secondary pollution offset reduction of primary emissions during COVID-19 lockdown in China, *National Science Review*. <https://doi.org/10.1093/nsr/nwaa137>
- Jia, H., Zang, S., Zhang, L., Yakovleva, E., Sun, H., Sun, L. (2023) Spatiotemporal characteristics and socioeconomic factors of PM_{2.5} heterogeneity in mainland China during the COVID-19 epidemic, *Chemosphere*, 331. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2023.138785>
- Jin, X., Zhu, Q., Cohen, R.C. (2021) Direct estimates of biomass burning NO_x emissions and lifetimes using daily observations from TROPOMI, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(20), 15569-15587. <https://doi.org/10.5194/acp-21-15569-2021>
- 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>
- Kang, Y.-H., You, S., Bae, M., Kim, E., Son, K., Bae, C., Kim, Y., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2020) The impacts of COVID-19, meteorology, and emission control policies on PM_{2.5} drops in Northeast Asia, *Scientific Reports*, 10(1). <https://doi.org/10.1038/s41598-020-79088-2>

- Kang, Y.-H., You, S., Son, K., Kim, E., Bae, M., Kim, S. (2021) Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (V) Ulsan, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 37(3), 487-511, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.3.487>
- Kang, Y.H., Son, K., Kim, B.U., Chang, Y., Kim, H.C., Schwarz, J.P., Kim, S. (2023) Adjusting elemental carbon emissions in Northeast Asia using observed surface concentrations of downwind area and simulated contributions, *Environment International*, 178, 108069. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2023.108069>
- Kang, Y.-H., Kim, S. (2022a) Estimating Oxidation Rates of NOx and SO₂ Released from Domestic Emission Sources in South Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 38(5), 716-733, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2022.38.5.716>
- Kang, Y.-H., Kim, S. (2022b) Seasonal PM Management: (1) What Emissions Should be Reduced?, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 38(5), 746-763, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2022.38.5.746>
- Kim, D.Y., de Foy, B., Kim, H. (2022a) The investigations on organic sources and inorganic formation processes and their implications on haze during late winter in Seoul, Korea, *Environmental Research*, 212(Pt A), 113174. <https://doi.org/10.1016/j.envres.2022.113174>
- Kim, E., Kim, B.U., Kim, H.C., Kim, S. (2021a) Direct and cross impacts of upwind emission control on downwind PM_{2.5} under various NH₃ conditions in Northeast Asia, *Environmental Pollution*, 268(Pt A), 115794. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2020.115794>
- Kim, E., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2021b) Sensitivity of fine particulate matter concentrations in South Korea to regional ammonia emissions in Northeast Asia, *Environmental Pollution*, 273, 116428. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2021.116428>
- Kim, E., You, S., Bae, M., Kang, Y.-H., Son, K., Kim, S. (2021c) Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (IV) Jeollabuk-do, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 37(2), 292-309, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.2.292>
- Kim, E., Kim, B.U., Kang, Y.H., Kim, H.C., Kim, S. (2023a) Role of vertical advection and diffusion in long-range PM(2.5) transport in Northeast Asia, *Environmental Pollution*, 320, 120997. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2022.120997>
- Kim, E., Kim, B.U., Kim, H.C., Liu, Y., Kang, Y.H., Jacob, D.J., Kim, Y.P., Woo, J.H., Kim, J., Wang, S., Yoo, C., Bae, C., Kim, Y., Kim, S. (2024a) North Korean CO emissions reconstruction using DMZ ground observations, TROPOMI space-borne data, and the CMAQ air quality model, *Science of The Total Environment*, 171059. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2024.171059>
- Kim, E., Kim, H.C., Kim, B.-U., Woo, J.-H., Liu, Y., Kim, S. (2024b) Development of surface observation-based two-step emissions adjustment and its application on CO, NOx, and SO₂ emissions in China and South Korea, *Science of The Total Environment*, 907, 167818. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.167818>
- Kim, H.C., Kim, E., Bae, C., Cho, J.H., Kim, B.-U., Kim, S. (2017a) 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, H.C., Kim, S., Kim, B.U., Jin, C.S., Hong, S., Park, R., Son, S.W., Bae, C., Bae, M., Song, C.K., Stein, A. (2017b) Recent increase of surface particulate matter concentrations in the Seoul Metropolitan Area, Korea, *Scientific Reports*, 7(1), 4710. <https://doi.org/10.1038/s41598-017-05092-8>
- Kim, H.C., Bae, C., Bae, M., Kim, O., Kim, B.-U., Yoo, C., Park, J., Choi, J., Lee, J.-b., Lefer, B., Stein, A., Kim, S. (2020a) Space-Borne Monitoring of NOx Emissions from Cement Kilns in South Korea, *Atmosphere*, 11(8). <https://doi.org/10.3390/atmos11080881>
- Kim, H.C., Kim, S., Cohen, M., Bae, C., Lee, D., Saylor, R., Bae, M., Kim, E., Kim, B.-U., Yoon, J.-H., Stein, A. (2021d) Quantitative assessment of changes in surface particulate matter concentrations and precursor emissions over China during the COVID-19 pandemic and their implications for Chinese economic activity, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(13), 10065-10080. <https://doi.org/10.5194/acp-21-10065-2021>
- Kim, J.-A., Lim, S., Shang, X., Lee, M., Kang, K.-S., Ghim, Y.S. (2020b) Characteristics of PM_{2.5} Chemical Composition and High-concentration Episodes Observed in Jeju from 2013 to 2016, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(3), 388-403, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.3.388>
- Kim, N.-K., Kim, Y.-P., Shin, H.-J., Lee, J.-Y. (2022b) Long-Term Trend of the Levels of Ambient Air Pollutants of a

- Megacity and a Background Area in Korea, *Applied Sciences*, 12(8). <https://doi.org/10.3390/app12084039>
- Kim, S., Bae, C., Kim, B.-U., Kim, H.C. (2017c) 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., You, S., Kang, Y.-H., Kim, E., Bae, M., Son, K., Kim, Y., Kim, B.-U., Kim, H.C. (2021e) 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, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.2.206>
- Kim, T., Choi, D., Ko, W., Kim, Y., Kim, J., Kwak, K.-H., Kang, Y.-H., Kim, S. (2023b) Ozone air quality deteriorated by inter-provincial transport downwind of Seoul metropolitan area, *Atmospheric Environment*, 314. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2023.120071>
- Kim, Y., Kim, E., Kang, Y.-H., You, S., Bae, M., Son, K., Kim, S. (2021f) 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, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.1.169>
- Kim, Y., Jeon, K., Park, J., Shim, K., Kim, S.-W., Shin, H.-J., Yi, S.-M., Hopke, P.K. (2022c) Local and transboundary impacts of PM_{2.5} sources identified in Seoul during the early stage of the COVID-19 outbreak, *Atmospheric Pollution Research*, 13(8), 101510. <https://doi.org/10.1016/j.apr.2022.101510>
- Korea Ministry of Environment (KMOE) (2006) Development and Distribution of Integrated Air Environment Index for Comprehensive Evaluation of Air Pollution, <https://me.go.kr/home/web/board/read.do?pagerOffset=7650&maxPageItems=10&maxIndexPages=10&searchKey=&searchValue=&menuId=&orgCd=&boardMasterId=1&boardCategoryId=&boardId=149437&decorator> (accessed on Nov. 9, 2023).
- Korea Ministry of Environment (KMOE) (2020) First seasonal management... Mitigation effect of high concentration of fine dust, <https://www.me.go.kr/home/web/board/read.do?menuId=&boardId=1370620&boardMasterId=1> (accessed on Mar. 25, 2024).
- Korea Ministry of Environment (KMOE) (2021) With the implementation of the second seasonal management, the 'bad' has decreased and the 'good' has increased, <https://www.me.go.kr/home/web/board/read.do?menuId=10525&boardMasterId=1&boardCategoryId=39&boardId=1454600> (accessed on Mar. 25, 2024).
- Korea Ministry of Environment (KMOE) (2022) Comprehensive analysis of the 3rd seasonal management system... 4% improvement in ultrafine dust compared to the previous year, <https://www.me.go.kr/home/web/board/read.do?menuId=10525&boardMasterId=1&boardCategoryId=39&boardId=1528700> (accessed on Mar. 25, 2024).
- Korea Ministry of Environment (KMOE) (2023a) Ultra-fine dust bad day in 2022, the fewest since observation, <https://www.me.go.kr/home/web/board/read.do?boardMasterId=1&boardId=1574330&menuId=10525> (accessed on Nov. 9, 2023).
- Korea Ministry of Environment (KMOE) (2023b) Results of implementation of the 4th Seasonal Management, <https://www.me.go.kr/home/web/board/read.do?pagerOffset=500&maxPageItems=10&maxIndexPages=10&searchKey=&searchValue=&menuId=10525&orgCd=&boardId=1602020&boardMasterId=1&boardCategoryId=&decorator> (accessed on Nov. 9, 2023).
- Korea Ministry of Environment (KMOE) (2023c) Implementation Plan of the 5th Seasonal Management.
- Korea Ministry of Environment (KMOE) (2024a) Overview of the Fine Dust Seasonal Management, https://www.airkorea.or.kr/portal/web/contents/contentView/?pMENU_NO=142 (accessed on Jan. 11, 2024).
- Korea Ministry of Environment (KMOE) (2024b) Comprehensive air-quality index, https://www.airkorea.or.kr/web/khailInfo?pMENU_NO=129 (accessed on Jan. 11, 2024).
- Korea Ministry of Environment (KMOE) (2024c) Seasonal Management Promotion Results, https://www.airkorea.or.kr/portal/web/contents/contentView/?pMENU_NO=143 (accessed on Jan. 11, 2024).
- 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>
- Lee, H.M., Kim, N.K., Ahn, J., Park, S.M., Lee, J.Y., Kim, Y.P. (2024) When and why PM(2.5) is high in Seoul, South Korea: Interpreting long-term (2015-2021) ground observations using machine learning and a chemical trans-

- port model, *Science of The Total Environment*, 920, 170822. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2024.170822>
- Li, H., Zheng, B., Ciais, P., Boersma, K.F., Riess, T., Martin, R.V., Broquet, G., van der A., Li, H., Hong, C., Lei, Y., Kong, Y., Zhang, Q., He, K. (2023) Satellite reveals a steep decline in China's CO(2) emissions in early 2022, *Science Advances*, 9(29), eadg7429. <https://doi.org/10.1126/sciadv.adg7429>
- Liu, Y., Geng, G., Cheng, J., Liu, Y., Xiao, Q., Liu, L., Shi, Q., Tong, D., He, K., Zhang, Q. (2023) Drivers of Increasing Ozone during the Two Phases of Clean Air Actions in China 2013-2020, *Environmental Science & Technology*, 57(24), 8954-8964. <https://doi.org/10.1021/acsc.3c00054>
- Ma, T., Duan, F., Ma, Y., Zhang, Q., Xu, Y., Li, W., Zhu, L., He, K. (2022) Unbalanced emission reductions and adverse meteorological conditions facilitate the formation of secondary pollutants during the COVID-19 lockdown in Beijing, *Science of The Total Environment*, 838(Pt 1), 155970. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.155970>
- National Air Emission Inventory and Research Center (NAIR) (2023) Seasonal Management, <https://www.air.go.kr/contents/view.do?contentsId=12&menuId=44> (accessed on Nov. 9, 2023).
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2020) Air Quality Yearbook 2019, <https://ecolibrary.me.go.kr/nier/#/search/detail/5700499> (accessed on Jan. 11, 2024).
- Qi, L., Zheng, H., Ding, D., Wang, S. (2022) Responses of sulfate and nitrate to anthropogenic emission changes in eastern China - in perspective of long-term variations, *Science of The Total Environment*, 158875. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.158875>
- Seinfeld, J.H., Pandis, S.N. (2016) *Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change*: John Wiley & Sons.
- Skamarock, W., Klemp, J., Dudhia, J., Gill, D., Barker, D., Wang, W., Huang, X.-Y., Duda, M. (2008) A Description of the Advanced Research WRF Version 3. UCAR/NCAR. <https://doi.org/10.5065/D68S4MVH>
- Son, K., Bae, M., You, S., Kim, E., Kang, Y.-H., Bae, C., Kim, Y., Kim, H.C., Kim, B.-U., Kim, S. (2020) Meteorological and Emission Influences on PM_{2.5} Concentration in South Korea during the Seasonal Management: A Case of December 2019 to March 2020, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(4), 442-463, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.4.442>
- Son, K., Kang, Y.-H., You, S., Kim, E., Bae, M., Kim, S. (2021) Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (VI) Chungcheongbuk-do, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 37(3), 429-455, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.3.429>
- United States Environment Protection Agency (U.S. EPA) (2020) CMAQ (Version 5.3.2). <https://doi.org/10.5281/zenodo.4081737>
- Xu, J., Zhang, Z., Zhao, X., Cheng, S. (2023) Downward trend of NO₂ in the urban areas of Beijing-Tianjin-Hebei region from 2014 to 2020: Comparison of satellite retrievals, ground observations, and emission inventories, *Atmospheric Environment*, 295. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2022.119531>
- Yang, L.H., Jacob, D.J., Colombi, N.K., Zhai, S., Bates, K.H., Shah, V., Beaudry, E., Yantosca, R.M., Lin, H., Brewer, J.F., Chong, H., Travis, K.R., Crawford, J.H., Lamsal, L.N., Koo, J.-H., Kim, J. (2023) Tropospheric NO₂ vertical profiles over South Korea and their relation to oxidant chemistry: implications for geostationary satellite retrievals and the observation of NO₂ diurnal variation from space, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 23(4), 2465-2481. <https://doi.org/10.5194/acp-23-2465-2023>
- Yim, S.H.L., Gu, Y., Shapiro, M.A., Stephens, B. (2019) Air quality and acid deposition impacts of local emissions and transboundary air pollution in Japan and South Korea, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(20), 13309-13323. <https://doi.org/10.5194/acp-19-13309-2019>
- Yoo, J.W., Park, S.Y., Jo, H.Y., Jeong, Y., Lee, H.J., Kim, C.-H., Lee, S.H. (2024) Assessing the role of cold front passage and synoptic patterns on air pollution in the Korean Peninsula, *Environmental Pollution*, 348, 123803. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2024.123803>
- 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. [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, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.2.206>
- Zheng, B., Geng, G., Ciais, P., Davis, S.J., Martin, R.V., Meng, J., Wu, N., Chevallier, F., Broquet, G., Boersma, F., van der

A.R., Lin, J., Guan, D., Lei, Y., He, K., Zhang, Q. (2020) Satellite-based estimates of decline and rebound in China's CO(2) emissions during COVID-19 pandemic, *Science Advances*, 6(49). <https://doi.org/10.1126/sciadv.abd4998>

강윤희 (아주대학교 환경연구소 연구교수)
(ykang@ajou.ac.kr)

김은혜 (아주대학교 환경연구소 연구교수)
(kiesloveeh@ajou.ac.kr)

정성은 (아주대학교 환경공학과 석사과정)
(atmos1214@ajou.ac.kr)

김지훈 (아주대학교 환경공학과 석사과정)
(kckckc9807@ajou.ac.kr)

김순태 (아주대학교 환경안전공학과 교수)
(soontaekim@ajou.ac.kr)

Authors Information

서지원 (아주대학교 환경안전공학과 학부생)
(seojiwon46@ajou.ac.kr)

Supplementary Materials

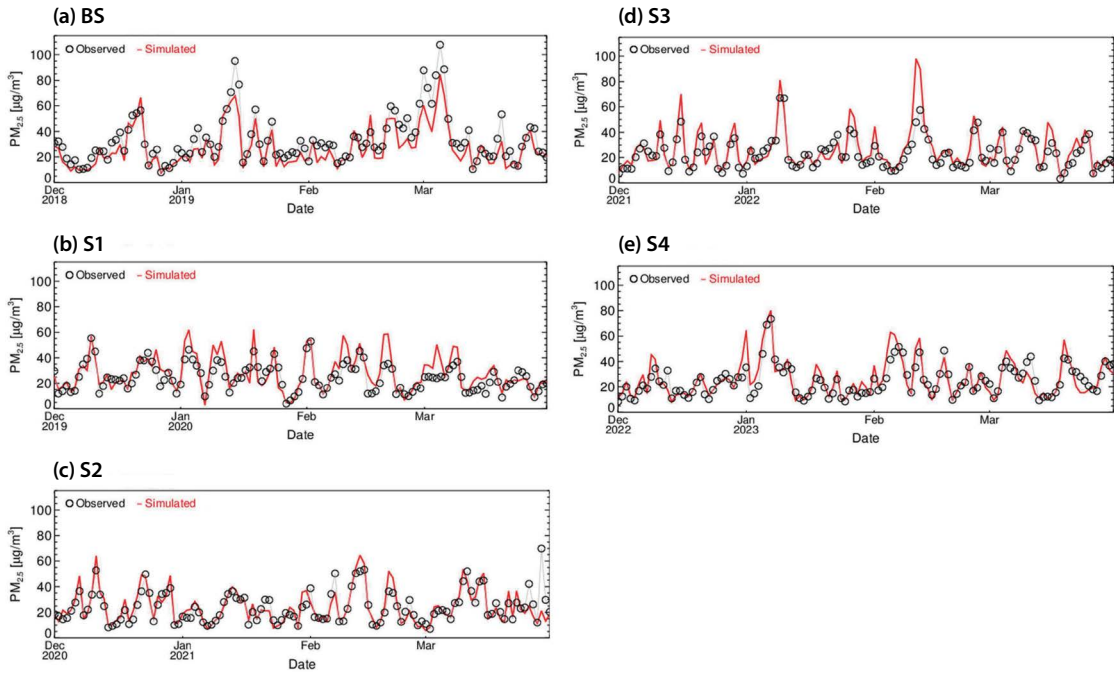


Fig. S1. Time series of observed and simulated daily mean $PM_{2.5}$ concentrations in South Korea for (a) BS, (b) S1, (c) S2, (d) S3 and (e) S4. The circle symbols and red lines imply observed and simulated $PM_{2.5}$ concentrations, respectively.

Table S1. Model performance statistics for $PM_{2.5}$ concentrations in the South Korea for BS, S1, S2, S3 and S4.

Period	Observed mean ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Simulated mean ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	MB ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	R	NME (%)	NMB (%)
BS	33.2	27.0	-6.2	0.9	21.8	-18.7
S1	24.5	27.9	3.4	0.8	24.2	13.8
S2	24.0	24.4	0.4	0.8	20.3	1.5
S3	23.1	26.2	3.1	0.9	23.9	13.1
S4	24.8	26.3	1.5	0.9	21.3	6.0

Emery et al. (2017) goals for 24-hr $PM_{2.5}$: $R \geq 0.7$, $NME \leq 35\%$, $NMB \leq \pm 10\%$, criteria for 24-hr $PM_{2.5}$: $R \geq 0.4$, $NME \leq 50\%$, $NMB \leq \pm 30\%$