

논문

고분해 태양 흡수분광간섭계를 이용한 온실기체 연직분포 산출 연구 - Part II: 메탄

Retrieving the Vertical Profile of Greenhouse Gas Using Fourier Transform Spectrometer (FTS) - Part II: Methane (CH₄)

김민해, 오영석¹, 안명환², 강민아², 시호연³, 박록진, 오상익, 주상원¹, 김상우*

서울대학교 지구환경과학부, ¹국립기상과학원 지구대기감시연구과, ²이화여자대학교 기후에너지시스템공학과, ³덴마크 기상청

Man-Hae Kim, Young-Suk Oh¹, Myoung-Hwan Ahn², Mina Kang², Hoyeon Shi³, Rokjin Park, Sangik Oh, Sangwon Joo¹, Sang-Woo Kim*

School of Earth and Environmental Sciences, Seoul National University, Seoul, Republic of Korea

¹Global Atmospheric Watch and Research Division, National Institute of Meteorological Sciences (NIMS), Jeju-do, Republic of Korea

²Department of Climate and Energy Systems Engineering, Ewha Womans University, Seoul, Republic of Korea

³Danish Meteorological Institute, Copenhagen, Denmark

접수일 2024년 5월 28일
수정일 2024년 6월 7일
채택일 2024년 6월 7일

Received 28 May 2024
Revised 7 June 2024
Accepted 7 June 2024

*Corresponding author
Tel : +82-(0)2-880-6716
E-mail : sangwookim@snu.ac.kr

Abstract This study derived the vertical profile of methane (CH₄) concentrations using Fourier Transform Spectrometer (FTS) measurements from the Anmyeondo site, and validated with ground-based and airborne measurements. The a priori methane profiles currently employed by the Total Carbon Column Observing Network (TCCON) were found to inadequately represent local emissions, exhibiting weak diurnal variations, especially within the boundary layer. In contrast, methane profiles simulated by the Goddard Earth Observing System-Chemistry (GEOS-Chem) model displayed distinct diurnal fluctuations near the surface and demonstrated better agreement with surface in-situ measurements. Interestingly, the column-averaged methane concentrations (XCH₄) retrieved using the TCCON and GEOS-Chem a priori profiles differed only slightly, within 1~2 ppb, suggesting negligible influence of the a priori's vertical distribution on XCH₄. However, employing the GEOS-Chem a priori profiles markedly improved the retrieved vertical profiles of methane compared to using the standard TCCON a priori. When the GEOS-Chem profiles were utilized, the discrepancy between the derived surface methane values and in-situ measurements was halved. Moreover, the GEOS-Chem retrieved profiles exhibited relatively better agreement with airborne measurements, particularly within the boundary layer. These findings highlight the importance of using representative a priori profiles that adequately capture local emissions and boundary layer dynamics to accurately retrieve greenhouse gas vertical distributions from ground-based remote sensing data.

Key words: Greenhouse gas, CH₄ profile, Fourier Transform Spectrometer (FTS), A priori profile

1. 서론

메탄은 이산화탄소에 이어 두 번째로 강력한 기후 효과(복사강제력)를 가진 온실기체로 대기 중 농도는 이산화탄소에 비해 약 200배 낮으나 지구온난화지수

(global warming potential)는 이산화탄소보다 분자당 20배 이상 높아서 작은 양의 변화만으로도 지구온난화 및 기후변화에 미치는 영향이 크다(IPCC, 2021; Etminan *et al.*, 2016; Reisinger *et al.*, 2011; Harvey, 1993). 전 세계 메탄 농도는 산업화 이후 지난 약 250

년간 꾸준히 증가하였으며 1750년에 비해 2010년대 이후 전 지구 평균 메탄 농도는 2.5배 이상 증가하였다(Kogan, 2023; Saunois *et al.*, 2017). 특히, 메탄은 이산화탄소에 비해 대기 중에서 화학반응이 활발하고 체류시간이 상대적으로 짧아 변동성이 크기 때문에 지상 및 위성 관측을 통한 지속적인 감시가 요구된다(Qu *et al.*, 2021; Holmes, 2018; Dalsøren *et al.*, 2016).

이러한 메탄의 농도 변화를 감시하고 향후 변동성을 예측하기 위해 세계기상기구(World Meteorological Organization; WMO)의 지구대기 감시프로그램(Global Atmosphere Watch Programme; GAW), Advanced Global Atmospheric Gases Experiment (AGAGE), Total Carbon Column Observing Network (TCCON)와 Collaborative Carbon Column Observing Network (COCCON) 등의 국제 관측 네트워크에서 지상 직접 및 원격 관측을 수행하고 있다(Frey *et al.*, 2019; Prinn *et al.*, 2018; Zellweger *et al.*, 2016; Toon *et al.*, 2009). 안면도 기후변화감시소는 WMO GAW의 지역급 감시소로 메탄의 지상 농도 관측을 지속적으로 수행하고 있으며, TCCON 국제 관측망에도 참여하여 지상 기반 고분해 태양 흡수분광간섭계(Fourier Transform Spectrometer, FTS)를 이용해 메탄의 전량농도를 관측하고 있다(Oh *et al.*, 2018).

FTS 관측자료로부터 온실기체의 전량농도를 산출하기 위해서는 각 온실기체의 선형적 프로파일(a priori profile)이 입력자료로 사용되는 점에 착안하여, 선형적 프로파일을 개선함으로써 대표적 온실기체인 이산화탄소와 메탄의 연직분포를 산출하는 연구를 수행하였다. 본 연구에서는 안면도 FTS 관측자료로부터 이산화탄소의 연직분포를 산출한 Kim *et al.* (2024)에 이어 메탄의 연직분포를 산출하고 지상 및 항공 관측자료와의 비교, 검증을 수행하였다.

2. 연구 방법

2.1 관측자료

메탄의 전량농도 및 연직분포를 산출하기 위해 기

상청/국립기상과학원 안면도 기후변화감시소의 FTS (Bruker IFS 125HR spectrometer) 관측자료를 사용하였다(Oh *et al.*, 2018). 연구에 사용된 FTS는 Indium-Gallium-Arsenide (InGaAs) detector와 Silicon (Si) diode detector의 두 감지기를 이용하여 3800~25000 cm^{-1} 의 근적외 파장 영역 스펙트럼을 관측한다. 연구에 사용된 스펙트럼 자료는 Kim *et al.* (2024)에서 이산화탄소 연직분포 산출에 사용된 자료와 동일하며 2020년 2월부터 2021년 12월까지 총 50일의 관측 결과이다.

FTS 관측자료로부터 메탄 농도 산출을 위해 TCCON의 표준 알고리즘(GGG2020)에서는 6000 cm^{-1} 메탄 흡수 밴드 내의 3개 채널(5880~5996 cm^{-1} , 5996.45~6007.55 cm^{-1} , 6007~6145 cm^{-1})을 사용하고, 최종 산출되는 메탄 전량농도는 각 채널에서 산출된 값의 가중 평균값으로 계산된다(Malina *et al.*, 2022).

산출된 메탄 농도의 연직분포 검증을 위해 공동감쇠분광기(Cavity Ring Down Spectroscopy, CRDS)로 관측된 안면도 기후변화감시소에서의 지상 직접 관측 결과와 안면도 상공에서의 항공 관측 결과를 이용하였다(Wheeler *et al.*, 1998). 지상 관측은 1시간 간격으로 24시간 연속 관측되며, 항공 관측은 2020년부터 2021년까지 FTS 관측과 동일 시각에 두 차례(2021년 7월 31일, 10월 17일) 수행되었다.

2.2 대기화학수송모델

메탄의 연직분포 모의를 위해 3차원 대기화학-수송 모델인 Goddard Earth Observing System-Chemistry (GEOS-Chem, Version 14.1.1) 모델을 이용하였다(Wang *et al.*, 2004). 모델 격자는 $2^\circ \times 2.5^\circ$ 이며 연직 47개 고도 구간에서 모델링을 수행한다. 메탄은 화석 연료를 포함한 인위적 배출원과 습지, 생체소각(biomassburning) 등의 자연적 배출원을 통해 대기로 배출된다(Scarpelli *et al.*, 2022; Solazzo *et al.*, 2021; Etiope *et al.*, 2019; Randerson *et al.*, 2018; Bloom *et al.*, 2017; Fung *et al.*, 1991). 대기 중 메탄은 주로 OH 및 Cl에 의한 산화 반응과 토양 흡수에 의해 제거된다(Sulprizio,

2022; Murguia-Flores *et al.*, 2018; Park *et al.*, 2004). 대류권에서는 OH와 Cl의 월평균 농도장이 모델에 입력되어 화학반응을 통한 제거율이 계산되었으며, 성층권 이상의 고도에서는 사전에 모의된 제거율이 적용되었다. MERRA-2의 재분석 기상장을 이용하여 기상장에 의한 메탄의 수송을 모의하고 최종적으로 시공간적 메탄의 분포를 산출하였다(Gelaro *et al.*, 2017). 본 연구에서는 GEOS-Chem 모의 결과에서 안면도 기후변화감시소를 포함한 격자의 메탄 농도 프로파일을 선형적 프로파일로 사용하였다.

안면도 기후변화감시소를 포함하는 모델 격자에서의 메탄 농도 모의 결과 및 최하층 모의 결과를 지상 직접 관측 결과와 함께 그림 1에 나타내었다. 안면도에서의 메탄 농도는 분석 기간 꾸준히 증가하였다. 지표면에서의 모의값은 지상 직접 관측 결과와 비교해 여름철 최대 약 100 ppb 정도의 차이를 보이거나 전반적인 증가 경향은 유사하게 나타났다(그림 1a). 월평균 메탄 농도 모의 결과를 살펴보면 대류권 하부에서는 겨울철이 높고 여름철이 낮은 모습을 보이거나 상부 대류권과 하부 성층권에서는 여름철이 더 높게 나타났다(그림 1b). 지상 관측 결과와 비교한 지표면 농도는 겨울과 봄에 비교적 잘 일치하는 결과를 보였으나 여름 및 가을에 큰 차이가 나타났다. 일반적으로 여름철에는 OH의 산화 반응에 의한 제거 과정이 겨울철보다 활발하여 메탄 농도가 낮을 것으로 기대된다(Dowd *et al.*, 2023). 그림 1(b)의 모델링 결과도 이러한 효과가 일부 반영되어 7월과 8월 지표면 부근 메탄 농도가 다른 계절에 비해 약간 낮게 모의(~2010 ppb) 되었으나 지상 직접 관측 결과는 여름철(6~9월)에 연중 가장 높은 값(2050~2070 ppb)을 보였다. 이는 국지적 배출원의 영향으로 판단된다. 여름철 지상 직접 관측값은 국지적 배출원의 영향을 받지 않을 때는 2000 ppb 미만의 낮은 농도를 보이거나 하루 중에도 수백 ppb 이상의 큰 변동폭을 보여 평균 농도는 다른 계절에 비해 높게 나타났다. 메탄 농도의 일변화는 지상 약 2 km 이상의 고도에서는 거의 나타나지 않으나 대기경계층 내에서 매우 뚜렷하게 나타났다(그림 1c).

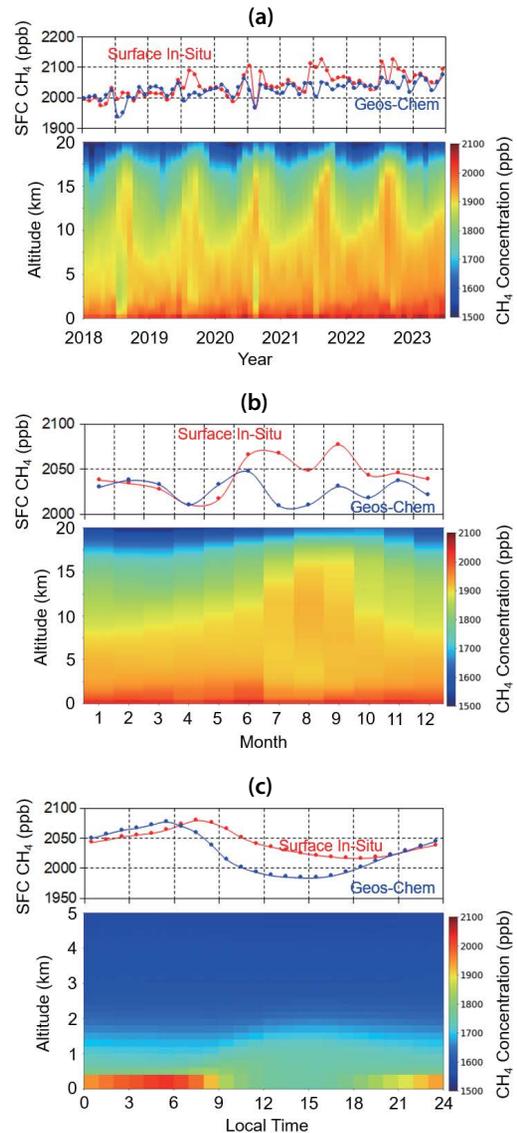


Fig. 1. GEOS-Chem simulated CH_4 concentration at Anmyeon from 2018 to 2023: (a) inter-annual, (b) monthly and (c) diurnal variation. The time series of surface in-situ observation (red) and surface values of GEOS-Chem simulation (blue) are shown together.

지표면 부근의 메탄 농도는 대기의 연직 확산이 억제되는 야간에 증가하고, 일출 후에 대기경계층의 성장에 의한 연직 확산으로 감소하는 것으로 판단된다. 자외선에 의한 OH 생성도 주간의 메탄 농도 감소에 영

향을 미쳤을 것으로 보인다. GEOS-Chem의 일변화는 모델 내에서 모의되는 대기경계층의 성장에 직접적인 영향을 받아 일출 직전에 최댓값을 보이고, 대기경계층 고도가 최대로 성장하는 오후 2~3시경에 최솟값을 보이는 것으로 보인다. 지상 직접 관측 결과는 하루 중 최댓값과 최솟값을 보이는 시각이 모델링 결과보다 약 2~3시간 차이를 보이지만 대체로 유사하게 나타났다. 이러한 오차는 여러 기상 조건에 따른 실제 대기경계층의 성장 속도와 모의된 대기경계층 고도 변화와의 차이, 모델 내에서 시간에 따른 메탄 배출량을 고려하지 못하는 원인 등에 의한 것으로 추측된다.

2.3 메탄 연직분포 산출 방법

메탄의 연직분포를 산출하는 방법은 사용하는 파장이 다를 뿐, Kim *et al.* (2024)에서 언급한 이산화탄소 연직분포를 산출하는 방법과 동일하다. TCCON의 GGG2020 프로그램을 통해 메탄의 전량농도를 산출하는 과정에서 사용되는 선형적 프로파일을 GEOS-Chem 모의 결과로 대체하였으며 기존의 TCCON 선형적 프로파일과 GEOS-Chem 선형적 프로파일 및 각각의 선형적 프로파일을 이용하여 최종 산출된 메탄 연직분포를 비교 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 메탄의 선형적 프로파일

그림 2는 2020년과 2021년 FTS 관측이 수행된 시기의 TCCON 선형적 프로파일과 GEOS-Chem 모의 결과의 평균과 그 차이를 나타낸 것이다. 기본적으로 안면도에서 메탄의 TCCON 선형적 프로파일과 GEOS-Chem 모의 결과는 대류권에서 비교적 일정한 값을 보이며 성층권에서 급격히 감소하는 유사한 형태를 보인다. 두 프로파일은 약 15 km 이하의 하부 성층권과 대류권에서 수십 ppb 정도의 차이 이내로 비교적 잘 일치하나, 고도가 높아짐에 따라 차이가 증가하여 약 40 km 이상의 고도에서는 300 ppb 정도의 비교적 큰 차이를 보였다. 메탄 전량농도 산출을 위해 GGG2020 프로그램에는 지상으로부터 70 km까지의 고도별 메탄 농도가 선형적 프로파일로 사용되지만, 높은 고도에서는 공기의 밀도가 낮아 전량농도에 미치는 영향이 크지 않다. 실제로 그림 2의 두 평균 프로파일의 차이에도 불구하고 각 프로파일로부터 계산된 전량농도의 차이는 10 ppb 이하로 매우 작았으며, 10 km 이상의 고도만 고려하더라도 30 ppb의 비교적 작은 차이를 보였다. 따라서 본 연구에서는 고도 70 km까지 사용되는 선형적 프로파일 및 최종 산출 프로파일에서 대류권, 특히 대기경계층 부근의 하부 대류권

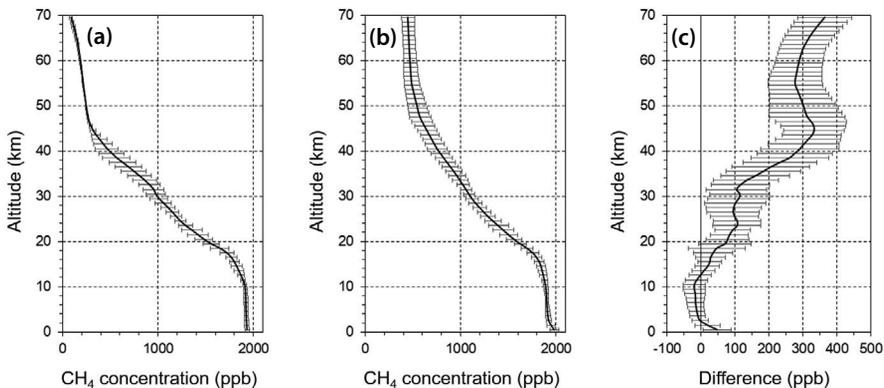


Fig. 2. Mean CH₄ profiles of (a) TCCON a priori and (b) GEOS-Chem simulation and (c) their difference at Anmyeon from 2020 to 2021.

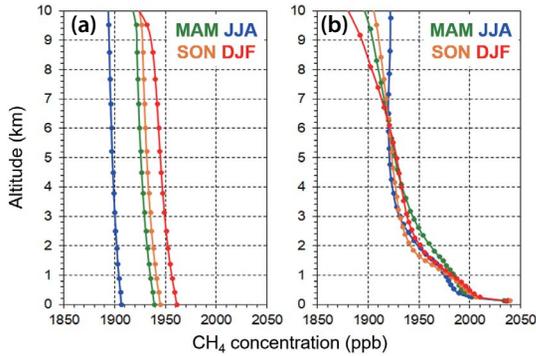


Fig. 3. Seasonal mean CH₄ profiles for (a) TCCON a priori and (b) GEOS-Chem at Anmyeon from 2020 to 2021.

에서의 연직분포 차이에 집중하였다.

그림 2에 나타낸 두 프로파일을 10 km 이하의 고도에 대해 월평균하여 그림 3에 나타내었다. TCCON의 선형적 프로파일은 10 km 이하의 고도에서 고도에 따른 농도 변화가 거의 나타나지 않지만, 계절에 따른 농도 변화는 매우 뚜렷하였다. 이는 TCCON 선형적 프로파일이 배경대기 지역의 관측 결과에 기반하여 생산하기 때문에 판단된다 (Laughner *et al.*, 2023). 즉, 국지적으로 발생하는 인위적 배출원에 의한 영향보다 계절에 따른 메탄의 자연적 배출원과 제거 과정의 영향이 크게 반영되어 여름철에 낮고 겨울철에 높은 값을 보이는 것이다. GEOS-Chem의 모의 결과는 이와 반대로 계절 변동이 거의 나타나지 않고 고도에 따른 농도 변화가 매우 뚜렷하게 나타난다. 지표면 부근에서 농도가 급격히 증가하며 계절에 따른 차이가 크지 않은 것으로 보아 연중 지속적으로 배출되는 안면도 부근의 인위적 배출원의 영향이 고려된 것으로 판단된다.

메탄 연직분포의 일변동은 TCCON 선형적 프로파일과 GEOS-Chem 모의 결과에서 큰 차이를 보였다 (그림 4). GEOS-Chem의 메탄 모의 결과는 대기경계층 고도가 낮아지고 연직 확산이 억제되는 야간에 지표면 부근에서 높은 농도를 보이고, 대기경계층 고도가 높아져 연직 확산이 활발한 주간에는 낮아지는 전형적인 형태로 나타났다. 앞에서 언급한 것처럼 OH 산

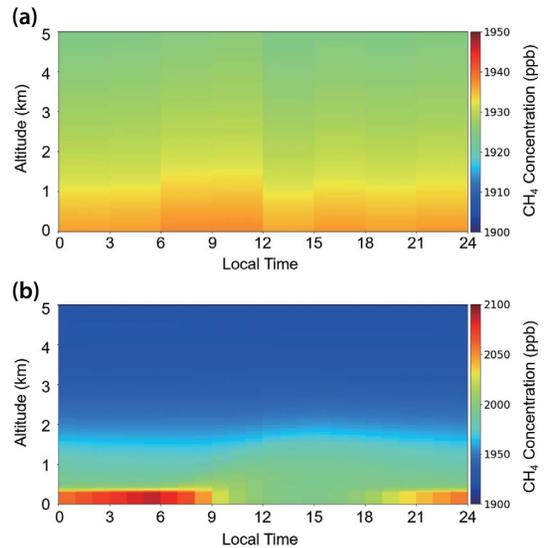


Fig. 4. Diurnal variation of CH₄ vertical profiles for (a) TCCON a priori and (b) GEOS-Chem at Anmyeon from 2020 to 2021. Note that the color scales are different.

화 반응에 의한 메탄의 제거 과정도 주간 농도 감소에 기여한 것으로 보인다. TCCON의 선형적 프로파일은 고도 및 시간에 따른 농도 변화가 거의 나타나지 않았다.

위의 비교 결과를 정리하면, TCCON의 선형적 프로파일은 메탄 농도의 배경대기 특성을 반영하여 여름에 낮고 겨울에 높은 계절 변동성은 고려되었지만, 국지적 배출원에 의한 효과와 대기경계층 일변화에 의한 지표면 부근의 고도에 따른 농도 변화는 제대로 반영하지 못하였음을 알 수 있다.

3.2 메탄 연직분포 및 전량농도 산출 결과

TCCON에서 제공된 기존의 선형적 프로파일과 GEOS-Chem 모델의 통해 모의된 결과를 선형적 프로파일로 이용하여 안면도에서 관측된 FTS 자료로부터 메탄의 연직분포와 전량농도를 산출하였다. 그림 5는 2021년 1월 20일 11~15시 두 선형적 프로파일의 전량농도 및 두 선형적 프로파일을 입력자료로 이용하여 FTS 관측 결과로부터 TCCON의 GGG2020 프로그램을 통해 최종 산출된 전량농도를 나타낸 것이다. 두

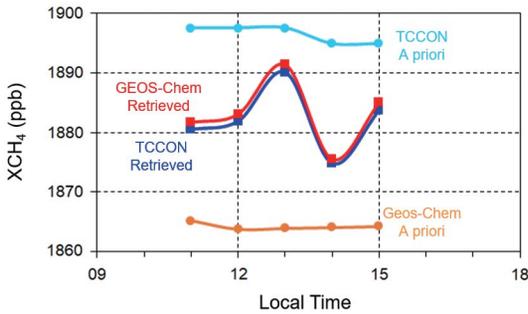


Fig. 5. XCH₄ concentrations for TCCON (light blue) and GEOS-Chem (orange) a priori profiles at Anmyeon on January 20, 2021. Retrieved XCH₄ concentrations are shown in blue (TCCON) and red (GEOS-Chem).

선형적 프로파일의 전량농도는 약 30 ppb 정도의 차이를 보이지만 최종 산출된 전량농도는 약 1 ppb 정도의 차이로 거의 일치하는 것을 볼 수 있다. 그림 5의 예시뿐만 아니라 FTS 관측이 수행된 전 기간 결과도와 유사하게 TCCON과 GEOS-Chem의 선형적 프로파일의 전량농도는 수십 ppb 정도의 차이를 갖는데 반해 최종 산출된 전량농도는 어떤 선형적 프로파일을 사용하는 상관없이 약 1~2 ppb 이내의 매우 작은 차이를 보였다. 이는 선형적 프로파일의 연직분포 형태가 전량농도 산출에 미치는 영향이 거의 없으며 TCCON에서 제공하는 선형적 프로파일과 같이 국지적 배출 특성을 고려하지 않고 배경대기 농도만을 이용하여 생산된 선형적 프로파일도 전량농도 산출에 문제없이 사용될 수 있음을 의미한다. 또한, 이는 메탄의 흡수 채널에서 감쇄된 정도를 통해 전량농도를 산출하는 GGG2020의 알고리즘 특성상, 메탄의 분포 고도보다는 대기 기주 내에 분포하는 메탄의 총량에 영향을 크게 받는다는 것을 의미한다. 고도가 증가함에 따라 공기의 밀도가 급격히 감소하기 때문에, 고도가 낮을수록 절대적인 메탄의 양이 증가하는 것도 고도에 따른 민감도가 약하게 나타나는 원인으로 보인다.

메탄의 선형적 프로파일은 앞에서 확인하였듯이 전량농도 산출에는 거의 영향이 없지만, 연직분포 산출에는 직접적인 영향을 미친다. 최종 산출되는 메탄의 연직분포는 입력자료로 사용되는 선형적 프로파일에

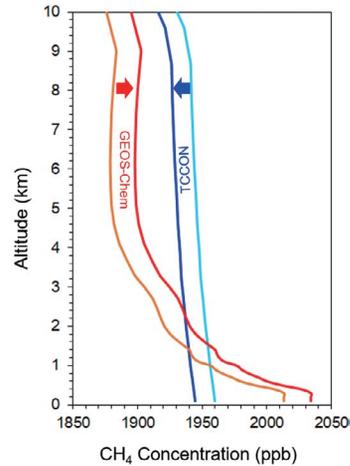


Fig. 6. The CH₄ a priori and retrieved profiles for TCCON and GEOS-Chem at Anmyeon on January 20, 2021. The colors for each line are same with Fig. 5.

스케일 팩터가 곱해진 형태이기 때문이다. 그림 6은 TCCON과 GEOS-Chem의 선형적 프로파일과 각각의 선형적 프로파일을 사용하여 산출된 메탄의 연직분포를 나타낸 것이다. 최종 산출된 메탄의 프로파일은 TCCON의 선형적 프로파일보다 증가하고 GEOS-Chem 선형적 프로파일보다는 감소한 형태로 두 선형적 프로파일의 전 고도 구간의 평균 농도가 유사해지는 방향으로 이동하였음을 볼 수 있다. 그러나 두 선형적 프로파일의 고도에 따른 농도 변화 차이로 인해, 최종 산출된 프로파일의 전 고도 구간 평균 농도(전량농도)는 비슷해지더라도 지표면 부근에서의 농도 차이는 오히려 증가함을 알 수 있다.

그림 7은 선형적 프로파일 및 산출 프로파일의 지표면 농도를 추출하여 지상 직접 관측 결과와 비교해 나타낸 것이다. 지상 관측 결과와 비교하여 GEOS-Chem 모의 결과는 일변화 경향을 잘 반영하고 있으며 농도 값도 비교적 잘 일치하는 반면, TCCON 선형적 프로파일은 전반적으로 낮은 값을 보이며 일변동이 전혀 나타나지 않는 것을 볼 수 있다. 최종 산출된 프로파일의 지표면 농도도 GEOS-Chem 선형적 프로파일을 사용했을 때 지상 관측 결과와 더 잘 일치하였다. TCCON 선형적 프로파일의 지표면 값은 지상 관

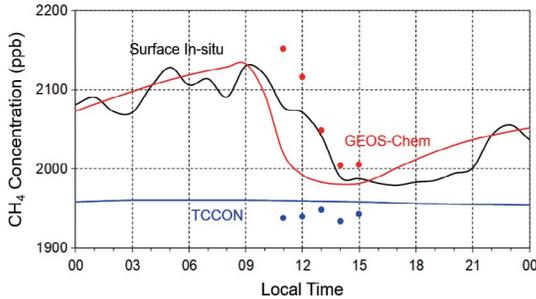


Fig. 7. Surface concentrations of CH₄ at Anmyeon on January 20, 2021. Black line is in-situ measurements, blue and red lines are for TCCON and GEOS-Chem a priori profiles, respectively. Dots are surface CH₄ concentrations in retrieved profiles.

측 결과와 평균 75 ppb의 차이를 보였는데 최종 산출된 프로파일의 지표면 값은 평균 93 ppb로 지상 관측 결과와의 오차가 오히려 증가하였다. 이는 그림 6에서 살펴본 바와 같이 선형적 프로파일의 연직분포 형태에 따라 최종 산출된 프로파일의 지표면 부근 농도의 오차가 선형적 프로파일에 비해 커질 수 있음의 미한다.

FTS 관측이 수행된 전 기간의 선형적 프로파일 및 최종 산출 프로파일에서 지표면 메탄 농도를 추출하여 지상 관측과 비교한 결과를 그림 8에 나타내었다. TCCON과 GEOS-Chem 선형적 프로파일 모두 지표면 농도는 지상 관측 결과에 비해 전반적으로 낮은 값을 보였으며 GEOS-Chem (-64 ± 61 ppb)에 비해 TCCON 선형적 프로파일 (-110 ± 59 ppb)의 차이가 크게 나타났다. 최종 산출된 메탄 농도 프로파일의 지표면 값을 지상 관측 결과와 비교하면 TCCON과 GEOS-Chem 선형적 프로파일을 사용했을 때 각각 -80 ± 59 ppb, -40 ± 61 ppb의 오차를 보여 선형적 프로파일에 비해 모두 감소하였으나 GEOS-Chem 선형적 프로파일을 사용한 결과가 지상 관측 결과와 더 잘 일치함을 알 수 있었다.

TCCON과 GEOS-Chem의 선형적 프로파일을 이용하여 FTS 관측자료로부터 산출된 메탄의 연직분포를 계절평균하여 그림 9에 나타내었다. 그림 3의 선형적 프로파일과 비교해 보면, TCCON의 선형적 프로

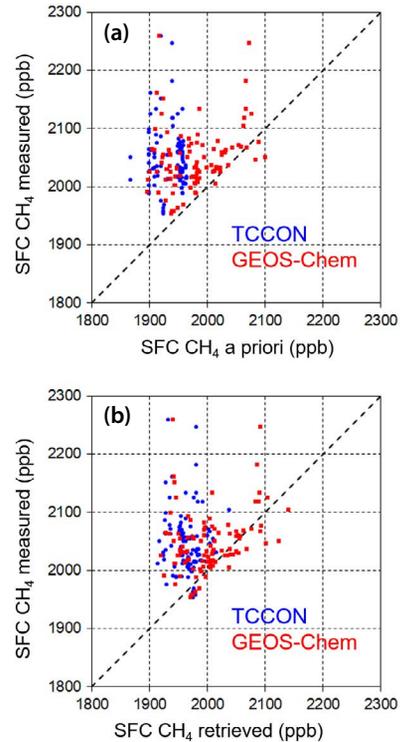


Fig. 8. Comparison of surface CH₄ concentration between (a) in-situ measurements and a priori profiles and between (b) in-situ measurements and retrieved profiles using TCCON (blue) and GEOS-Chem (red) a priori profiles.

파일을 이용한 결과는 모든 계절의 농도가 증가하였으나 여름에 낮고 겨울에 높은 계절 변동성은 유지되었다(그림 9a). GEOS-Chem 선형적 프로파일은 계절 변동이 거의 나타나지 않았지만(그림 3b), 최종 산출된 메탄 프로파일은 계절에 따른 농도 차이가 뚜렷하였다(그림 9b). 산출 프로파일의 지표면 값은 관측 기간 계절 평균된 지상 관측 결과에 비해 대부분 낮은 값을 보였다. TCCON 선형적 프로파일을 이용한 결과의 지표면 메탄 농도는 지상 관측 결과에 비해 겨울철에 약 60 ppb, 여름철에 약 100 ppb 낮게 나타나 큰 차이를 보였다. GEOS-Chem 선형적 프로파일을 이용한 결과는 여름철에 비교적 큰 오차를 보이나 전반적으로 TCCON 선형적 프로파일을 이용한 결과보다 지상 관측 결과와 더 잘 일치하였다.

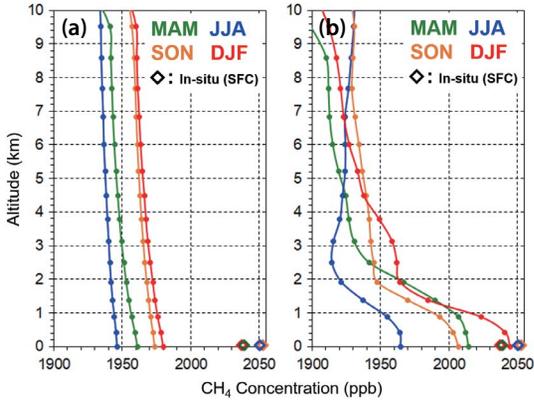


Fig. 9. Seasonal mean retrieved CH₄ profiles using (a) TCCON and (b) GEOS-Chem a priori profiles. Diamond dots at the bottom are from surface in-situ measurements.

3.3 항공 관측 결과와의 비교

메탄 농도의 선형적 프로파일 및 최종 산출된 메탄 농도 연직분포 결과를 기상청/국립기상과학원의 기상항공기 관측 결과와 비교/검증하였다. 그림 10은 기상항공기와 FTS의 동시 관측이 수행된 2021년 7월 31일과 10월 17일의 결과를 나타낸 것이다. 두 관측 사례에서 선형적 프로파일은 TCCON과 GEOS-Chem 모두 항공 관측 결과에 비해 전반적으로 낮은 값을 보였다. 그러나 FTS 관측 결과를 통해 최종 산출된 프로파일은 선형적 프로파일에 비해 항공 관측에 더 가까운 값을 갖는 것을 확인할 수 있었다.

TCCON 선형적 프로파일을 사용한 결과와 항공 관측과의 고도 구간별 오차의 평균은 7월 31일과 10월 17일에 각각 -10.0 ± 41.2 ppb와 $+8.3 \pm 21.5$ ppb로 나타났으며 GEOS-Chem 선형적 프로파일을 사용한 결과는 각각 -8.4 ± 38.2 ppb와 -9.8 ± 20.2 ppb로 나타나 두 결과 모두 평균적인 메탄 농도 대비 약 0.5% 이내의 작은 차이를 보였다. 그러나 두 산출 결과의 가장 큰 차이는 연직분포 형태로 TCCON 선형적 프로파일을 이용한 결과는 고도에 따른 농도 변화가 거의 없는 반면 GEOS-Chem 산출 결과는 지표면 부근에서 메탄 농도가 증가하는 모습을 보여 항공 관측 및 지상 관측 결과와 상대적으로 더 잘 일치하였다.

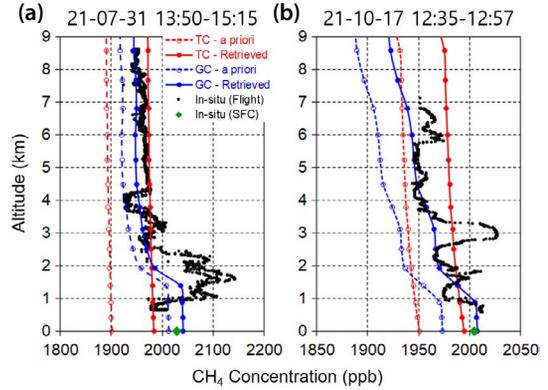


Fig. 10. A priori (dashed lines) and retrieved (solid lines) CH₄ profiles for TCCON (red) and GEOS-Chem (blue) with in-situ measurements from air craft (black dots) and surface (green dots) at Anmyeon (a) 13:50~15:15 LST, July 31, 2021 and (b) 12:35~12:57 LST, October 17, 2021.

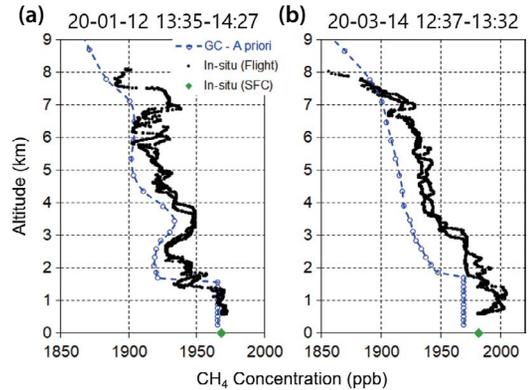


Fig. 11. Same with Fig. 10 but for (a) 13:35~14:27 LST, January 12, 2020 and (b) 12:37~13:32 LST, March 14, 2020. FTS measurements are not available.

그림 11은 2020년 1월 12일과 3월 14일의 항공 관측 결과와 GEOS-Chem 모의 결과를 비교하여 나타낸 것으로 FTS 관측은 없으나 기상항공기 관측자료가 확보된 사례에 대해서 GEOS-Chem 모의 결과와 비교해 보았다. 본 연구에서 최종 산출되는 메탄 농도의 연직분포는 선형적 프로파일에 스케일 팩터가 곱해진 형태로 프로파일의 모양은 그대로 유지된다. 따라서 기상항공기 관측자료와 GEOS-Chem의 선형적 프로

파일을 비교함으로써 FTS 관측이 수행되었을 경우 산출된 메탄의 연직분포를 간접적으로 비교해 볼 수 있다. 두 사례 모두 항공 관측에 비해 모델이 과소모의하고 있음을 알 수 있으나 연직분포 형태는 매우 유사하게 나타났다. 이를 통해 FTS 관측이 수행되었다고 가정했을 때, GEOS-Chem 선형적 프로파일을 사용하여 산출된 메탄의 연직분포는 항공 관측 결과와 유사하게 나타날 것으로 기대할 수 있다.

4. 요약 및 결론

FTS는 적외 영역의 스펙트럼 관측을 통해 다양한 온실기체의 연직 기주 내 전량농도를 산출하는 기기이다. 각 기체의 흡수 밴드에서 FTS 관측으로 얻은 스펙트럼과 모의된 스펙트럼을 비교하는 과정을 통해 전량농도가 산출되며, 이때 모의 스펙트럼 계산을 위해 사용되는 기체의 선형적 프로파일이 두 스펙트럼의 차이를 최소가 되도록 스케일링되는 점을 이용하여 기체의 연직분포를 산출할 수 있다. 본 연구에서는 안면도 기후변화감시소에 설치된 FTS 관측자료로부터 메탄의 연직분포를 산출하고 이를 지상 및 항공 관측자료와 비교/검증하였다.

현재 TCCON에서 사용하고 있는 메탄의 선형적 프로파일은 배경대기 특성을 반영하여 여름철에 낮고 겨울철에 높은 계절변동 특성을 잘 반영하고 있으나 국지적 배출원과 같은 지역적 특성을 제대로 고려하지 못하는 것으로 나타났다. 대류권 내에서 고도에 따른 농도 변화가 거의 없으며, 대기경계층 내의 농도가 야간에 높고 주간에 낮아지는 일변동 특성도 나타나지 않았다. 이러한 한계를 극복하고자 GEOS-Chem으로 모의된 메탄 농도의 연직분포를 선형적 프로파일로 사용하였다. GEOS-Chem 선형적 프로파일은 대기경계층 내의 메탄 농도가 대기 상층에 비해 높아 고도에 따른 농도 변화가 뚜렷하게 나타났으며 주/야간 농도 변화가 대기경계층의 성장과 매우 잘 일치하는 모습을 보였다.

TCCON과 GEOS-Chem의 선형적 프로파일을 이용해 산출된 메탄 농도의 연직분포를 지상 및 항공 관측 결과와 비교해 보면 GEOS-Chem 선형적 프로파일을 이용한 산출 결과가 더 잘 일치함을 알 수 있었다. 산출된 메탄 연직분포의 지표면 값과 지상 관측 결과와의 오차는 GEOS-Chem 선형적 프로파일을 사용한 결과가 TCCON 선형적 프로파일을 사용했을 때보다 절반 수준으로 작게 나타났다. 항공 관측 결과와 비교한 결과를 살펴보면, TCCON 선형적 프로파일을 이용해 산출된 메탄 농도 연직분포는 고도에 따른 농도 변화가 거의 없는 반면, GEOS-Chem 선형적 프로파일을 이용한 산출결과는 고도에 따른 농도 변화가 항공 관측 결과와 상대적으로 더 잘 일치하였다.

FTS 관측 결과로부터 두 선형적 프로파일을 이용해 각각 산출된 메탄의 전량농도는 1~2 ppb 이내의 작은 차이를 보여 전량농도 산출에는 선형적 프로파일의 연직분포 형태가 미치는 영향이 미미함을 확인하였다. 그러나 메탄의 연직분포 산출을 위해서는 기존 TCCON에서 사용하고 있는 선형적 프로파일보다는 GEOS-Chem으로 모의된 선형적 프로파일을 사용하는 것이 정확도 향상에 기여할 수 있음을 알 수 있었다. 메탄은 온실기체로 지구온난화에 기여할 뿐 아니라 화학반응을 통해 OH, 오존, 수증기 등의 농도에 영향을 미치기 때문에 대기 중, 특히 대기경계층 내 농도 파악이 중요하다. 본 연구를 통해 FTS 관측으로부터 산출된 메탄의 연직분포는 이러한 관련 분야 연구에 유용하게 활용될 수 있을 것이다.

감사의 글

이 연구는 기상청 국립기상과학원의 기상업무지원 기술 개발연구 내역사업으로 기후·기후변화 예측기술 지원 및 활용연구의 연구비 지원을 받아 수행되었습니다 (“기후변화 입체감시 기술개발” KMA2018-00324).

References

- Bloom, A.A., Bowman, K.W., Lee, M., Turner, A.J., Schroeder, R., Worden, J.R., Weidner, R., McDonald, K.C., Jacob, D.J. (2017) A global wetland methane emissions and uncertainty dataset for atmospheric chemical transport models (WetCHARTs version 1.0), *Geoscientific Model Development*, 10, 2141-2156. <https://doi.org/10.5194/gmd-10-2141-2017>
- Dalsøren, S.B., Myhre, C.L., Myhre, G., Gomez-Pelaez, A.J., Søvde, O.A., Isaksen, I.S.A., Weiss, R.F., Harth, C.M. (2016) Atmospheric methane evolution the last 40 years, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(5), 3099-3126. <https://doi.org/10.5194/acp-16-3099-2016>
- Dowd, E., Wilson, C., Chipperfield, M.P., Gloor, E., Manning, A., Doherty, R. (2023) Decreasing seasonal cycle amplitude of methane in the northern high latitudes being driven by lower-latitude changes in emissions and transport, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 23(13), 7363-7382. <https://doi.org/10.5194/acp-23-7363-2023>
- Etiopie, G., Ciotoli, G., Schwietzke, S., Schoell, M. (2019) Gridded maps of geological methane emissions and their isotopic signature, *Earth System Science Data*, 11(1), 1-22. <https://doi.org/10.5194/essd-11-1-2019>
- Etminan, M., Myhre, G., Highwood, E.J., Shine, K.P. (2016) Radiative forcing of carbon dioxide, methane, and nitrous oxide: A significant revision of the methane radiative forcing, *Geophysical Research Letters*, 43(24), 12-614. <https://doi.org/10.1002/2016GL071930>
- Frey, M., Sha, M.K., Hase, F., Kiel, M., Blumenstock, T., Harig, R., Surawicz, G., Deutscher, N.M., Shiomi, K., Franklin, J.E., Bosch, H., Chen, J., Grutter, M., Ohyama, H., Sun, Y., Butz, A., Tsidu, G.M., Ene, D., Wunch, D., Cao, Z., Garcia, O., Ramonet, M., Vogel, F., Orphal, J. (2019) Building the COCCON: long-term stability and ensemble performance of the EM27/SUN Fourier transform spectrometer, *Atmospheric Measurement Techniques*, 12(3), 1513-1530. <https://doi.org/10.5194/amt-12-1513-2019>
- Fung, I., John, J., Lerner, J., Matthews, E., Prather, M., Steele, L.P., Fraser, P.J. (1991) Three-dimensional model synthesis of the global methane cycle, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 96(D7), 13033-13065. <https://doi.org/10.1029/91JD01247>
- Gelaro, R., McCarty, W., Suárez, M.J., Todling, R., Molod, A., Takacs, L., Randles, C.A., Darmenov, A., Bosilovich, M.G., Reichle, R., Wargan, K., Coy, L., Cullather, R., Draper, C., Akella, S., Buchard, V., Conaty, A., da Silva, A.M., Gu, W., Kim, G.K., Koster, R., Lucchesi, R., Merkova, D., Nielsen, J.E., Partyka, G., Pawson, S., Putman, W., Rienecker, M., Schubert, S.D., Sienkiewicz, M., Zhao, B. (2017) The Modern-Era Retrospective Analysis for Research and Applications, Version 2 (MERRA-2), *Journal of Climate*, 30, 5419-5454. <https://doi.org/10.1175/JCLI-D-16-0758.1>
- Harvey, L.D. (1993) A guide to global warming potentials (GWPs), *Energy Policy*, 21(1), 24-34. [https://doi.org/10.1016/0301-4215\(93\)90205-T](https://doi.org/10.1016/0301-4215(93)90205-T)
- Holmes, C.D. (2018) Methane feedback on atmospheric chemistry: Methods, models, and mechanisms, *Journal of Advances in Modeling Earth Systems*, 10(4), 1087-1099. <https://doi.org/10.1002/2017MS001196>
- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) (2021) Summary for Policymakers. In: *Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Masson-Delmotte, V., P. Zhai, A. Pirani, S.L. Connors, C. Pean, S. Berger, N. Caud, Y. Chen, L. Goldfarb, M.I. Gomis, M. Huang, K. Leitzell, E. Lonnoy, J.B.R. Matthews, T.K. Maycock, T. Waterfield, O. Yeleki, R. Yu, and B. Zhou (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, pp. 3-32. <https://doi.org/10.1017/9781009157896.001>
- Kim, M.H., Oh, Y.S., Ahn, M.H., Kang, M., Shi, H., Park, R.J., Kim, M., Kim, S.W. (2024) Retrieving the vertical profile of greenhouse gas using Fourier Transform Spectrometer (FTS) - Part I: carbon dioxide (CO₂), *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 40(3), 349-360, (in Korean with English abstract).
- Kogan, F. (2023) The IPCC Reports on Global Warming and Land Changes. In *Remote Sensing Land Surface Changes: The 1981-2020 Intensive Global Warming*, Cham: Springer International Publishing, pp. 67-79. https://doi.org/10.1007/978-3-030-96810-6_3
- Laughner, J.L., Roche, S., Kiel, M., Toon, G.C., Wunch, D., Baier, B.C., Biraud, S., Chen, H., Kivi, R., Laemmle, T., McKain, K., Quehe, P., Rousogonous, C., Stephens, B.B., Walker, K., Wennberg, P.O. (2023) A new algorithm to generate a priori trace gas profiles for the GGG2020 retrieval algorithm, *Atmospheric Measurement Techniques*, 16(5), 1121-1146. <https://doi.org/10.5194/amt-16-1121-2023>
- Malina, E., Veihelmann, B., Buschmann, M., Deutscher, N.M., Feist, D.G., Morino, I. (2022) On the consistency of methane

- retrievals using the Total Carbon Column Observing Network (TCCON) and multiple spectroscopic databases, *Atmospheric Measurement Techniques*, 15(8), 2377-2406. <https://doi.org/10.5194/amt-15-2377-2022>
- Murguia-Flores, F., Arndt, S., Ganesan, A.L., Murray-Tortarolo, G., Hornibrook, E.R.C. (2018) Soil Methanotrophy Model (MeMo v1.0): a process-based model to quantify global uptake of atmospheric methane by soil, *Geoscientific Model Development*, 11(6), 2009-2032. <https://doi.org/10.5194/gmd-11-2009-2018>
- Oh, Y.S., Kenea, S.T., Goo, T.Y., Chung, K.S., Rhee, J.S., Ou, M.L., Byun, Y.H., Wennberg, P.O., Kiel, M., Digangi, J.P., Diskin, G.S., Velasco, V.A., Griffith, D.W. (2018) Characteristics of greenhouse gas concentrations derived from ground-based FTS spectra at Anmyeondo, South Korea, *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(4), 2361-2374. <https://doi.org/10.5194/amt-11-2361-2018>
- Park, R.J., Jacob, D.J., Field, B.D., Yantosca, R.M., Chin, M. (2004) Natural and transboundary pollution influences on sulfate-nitrate-ammonium aerosols in the United States: Implications for policy, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 109(D15). <https://doi.org/10.1029/2003JD004473>
- Prinn, R.G., Weiss, R.F., Arduini, J., Arnold, T., DeWitt, H.L., Fraser, P.J., Ganesan, A.L., Gasore, J., Harth, C.M., Hermansen, O., Kim, J., Krummel, P.B., Li, S., Loh, Z.M., Lunder, C.R., Maione, M., Manning, A.J., Miller, B.R., Mitrevski, B., Muhle, J., O'Doherty, S., Park, S., Reimann, S., Rigby, M., Saito, T., Salameh, P.K., Schmidt, R., Simmonds, P.G., Paul Steele, L., Vollmer, M.K., Wang, R.H., Yao, B., Yokouchi, Y., Young, D., Zhou, L. (2018) History of chemically and radiatively important atmospheric gases from the Advanced Global Atmospheric Gases Experiment (AGAGE), *Earth System Science Data*, 10(2), 985-1018. <https://doi.org/10.5194/essd-10-985-2018>
- Qu, Z., Jacob, D.J., Shen, L., Lu, X., Zhang, Y., Scarpelli, T.R., Nesser, H., Sulprizio, M.P., Maasakkers, J.D., Bloom, A.A., Worden, J.R., Parker, R.J., Delgado, A.L. (2021) Global distribution of methane emissions: a comparative inverse analysis of observations from the TROPOMI and GOSAT satellite instruments, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(18), 14159-14175. <https://doi.org/10.5194/acp-21-14159-2021>
- Randerson, J.T., Van Der Werf, G.R., Giglio, L., Collatz, G.J., Kasibhatla, P.S. (2018) Global Fire Emissions Database, Version 4.1 (GFEDv4), ORNL DAAC, Oak Ridge, Tennessee, USA. <https://doi.org/10.3334/ORNLDAAC/1293>
- Reisinger, A., Meinshausen, M., Manning, M. (2011) Future changes in global warming potentials under representative concentration pathways, *Environmental Research Letters*, 6(2), 024020. <https://doi.org/10.1088/1748-9326/6/2/024020>
- Saunio, M., Bousquet, P., Poulter, B., Peregón, A., Ciais, P., Canadell, J.G., Dlugokencky, E.J., Etiope, G., Bastviken, D., Houweling, S., Janssens-Maenhout, G., Tubiello, F.N., Castaldi, S., Jackson, R.B., Alexe, M., Arora, V.K., Beerling, D.J., Bergamaschi, P., Blake, D.R., Brailsford, G., Bruhwiler, L., Crevoisier, C., Crill, P., Covey, K., Frankenberg, C., Gedney, N., Höglund-Isaksson, L., Ishizawa, M., Ito, A., Joos, F., Kim, H.-S., Kleinen, T., Krummel, P., Lamarque, J.-F., Langenfelds, R., Locatelli, R., Machida, T., Maksyutov, S., Melton, J.R., Morino, I., Naik, V., O'Doherty, S., Parmentier, F.-J.W., Patra, P.K., Peng, C., Peng, S., Peters, G.P., Pison, I., Prinn, R., Ramonet, M., Riley, W.J., Saito, M., Santini, M., Schroeder, R., Simpson, I.J., Spahni, R., Takizawa, A., Thornton, B.F., Tian, H., Tohjima, Y., Viovy, N., Voulgarakis, A., Weiss, R., Wilton, D.J., Wiltshire, A., Worthy, D., Wunch, D., Xu, X., Yoshida, Y., Zhang, B., Zhang, Z., Zhu, Q. (2017) Variability and quasi-decadal changes in the methane budget over the period 2000-2012, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(18), 11135-11161. <https://doi.org/10.5194/acp-17-11135-2017>
- Scarpelli, T.R., Jacob, D.J., Grossman, S., Lu, X., Qu, Z., Sulprizio, M.P., Zhang, Y., Reuland, F., Gordon, D., Worden, J.R. (2022) Updated Global Fuel Exploitation Inventory (GFEI) for methane emissions from the oil, gas, and coal sectors: evaluation with inversions of atmospheric methane observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 22(5), 3235-3249. <https://doi.org/10.5194/acp-22-3235-2022>
- Solazzo, E., Crippa, M., Guizzardi, D., Muntean, M., Choulga, M., Janssens-Maenhout, G. (2021) Uncertainties in the Emissions Database for Global Atmospheric Research (EDGAR) emission inventory of greenhouse gases, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21, 5655-5683. <https://doi.org/10.5194/acp-21-5655-2021>
- Sulprizio, M. (2022) geoschem/geos-chem: GEOS-Chem 14.0.0 (14.0.0), Zenodo. <https://doi.org/10.5281/zenodo.7254288>
- Toon, G., Blavier, J.F., Washenfelder, R., Wunch, D., Keppel-Aleks, G., Wennberg, P., Connor, B., Sherlock, V., Griffith, D., Deutscher, N., Notholt, J. (2009) Total column carbon observing network (TCCON), In *Hyperspectral Imaging and Sensing of the Environment* (p. JMA3), Optica

Publishing Group. <https://doi.org/10.1364/FTS.2009.JMA3>

- Wang, J.S., Logan, J.L., McElroy, M.B., Duncan, B.N., Megretskaya, I.A., Yantosca, R.M. (2004) 3-D model analysis of the slowdown and interannual variability in the methane growth rate from 1988 to 1997, *Global Biogeochemical Cycles*, 18, GB3011. <https://doi.org/10.1029/2003GB002180>
- Wheeler, M.D., Newman, S.M., Orr-Ewing, A.J., Ashfold, M.N. (1998) Cavity ring-down spectroscopy, *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions*, 94(3), 337-351. <https://doi.org/10.1039/A707686J>
- Zellweger, C., Emmenegger, L., Firdaus, M., Hatakka, J., Heimann, M., Kozlova, E., Spain, T.G., Steinbacher, M., van der Schoot, M.V., Buchmann, B. (2016) Assessment of recent advances in measurement techniques for atmospheric carbon dioxide and methane observations, *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(9), 4737-4757. <https://doi.org/10.5194/amt-9-4737-2016>

Authors Information

- 김만해 (서울대학교 지구환경과학부 선임연구원)
(manhae@snu.ac.kr)
- 오영석 (국립기상과학원 지구대기감시연구과 연구사)
(ysoh306@korea.kr)
- 안명환 (이화여자대학교 기후에너지시스템공학과 교수)
(terryahn65@ewha.ac.kr)
- 강민아 (이화여자대학교 기후에너지시스템공학과 박사후연구원)
(mina@ewhain.net)
- 시호연 (덴마크 기상청 박사후연구원)
(drive.hoyeon@gmail.com)
- 박록진 (서울대학교 지구환경과학부 교수)
(rjpark@snu.ac.kr)
- 오상익 (서울대학교 지구환경과학부 석사과정)
(ohsangik98@snu.ac.kr)
- 주상원 (국립기상과학원 지구대기감시연구과 연구관)
(swjoo@korea.kr)
- 김상우 (서울대학교 지구환경과학부 교수)
(sangwookim@snu.ac.kr)