

논문

1~5차 미세먼지 계절관리제 기간 국내 초미세먼지 관측 농도 변화 요인 분석

Analyzing The Main Drivers of Observed PM_{2.5} Concentrations in South Korea during the 1st to 5th Seasonal Particulate Matter Management Periods

강윤희, 김은혜, 정성은¹⁾, 박준홍¹⁾, 손채원¹⁾, 김순태^{2)*}

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

Yoon-Hee Kang, Eunhye Kim, Sungeun Jung¹⁾, Junheung Park¹⁾,
Chaewon Son¹⁾, Soontae Kim^{2)*}

Environmental Institute, Ajou University, Suwon, Republic of Korea

¹⁾Department of Environmental Engineering, Ajou University, Suwon, Republic of Korea

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

접수일 2024년 5월 29일
수정일 2024년 6월 5일
채택일 2024년 6월 18일

Received 29 May 2024
Revised 5 June 2024
Accepted 18 June 2024

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

Abstract To analyze the causes of the observed reduction in PM_{2.5} concentrations in South Korea during the 1st to 5th Seasonal PM Management periods (S1~S5), observational data and air quality modeling were utilized, including data from the same periods over the previous three years (BS3~BS1; BS). Observed PM_{2.5} concentrations during S1~S5 decreased by 8.2 µg/m³ compared to the BS periods, while emission impacts reduced PM_{2.5} concentrations by 9.5 µg/m³, and the influence of meteorological conditions increased PM_{2.5} concentrations by 1.3 µg/m³. Although meteorological conditions changed to reduce PM_{2.5} concentrations during the 5th Seasonal PM Management period, both long-term and short-term meteorological conditions could potentially increase PM pollution again. During the same periods, the impacts of long-range transport (LTI) and local emissions (LEI) decreased by 5.8 µg/m³ and 2.4 µg/m³, respectively. Overall, the recent trend of reducing LTI due to reductions in upwind foreign emissions has contributed to lower PM_{2.5} concentrations in South Korea during the S1~S5 periods. However, the rate of improvement in PM_{2.5} concentrations in upwind areas such as China is expected to slow down. Therefore, more proactive domestic emission control measures and policies are necessary to further improve PM_{2.5} levels in South Korea. This study employed foreign emissions adjustment, considering the uncertainty and severe spatial variability of domestic emissions. To develop advanced domestic emission management and effective strategies, it is essential to establish an emission estimation method that accurately reflects the current state of PM_{2.5} concentrations.

Key words: Seasonal particulate matter management periods, PM_{2.5}, Meteorology and emission conditions, LTI and LEI, Emissions adjustment

1. 서 론

국내에서는 겨울철 동안 높아지는 초미세먼지 (PM_{2.5}) 농도 개선을 위해 2019년 12월을 시작으로 2024년 3월까지 5차에 걸쳐 매 겨울철마다 미세먼지 계절관리제 (이하 ‘계절관리제’)를 시행하였다

(KMOE, 2024a). 국내의 PM_{2.5} 관측 농도는 2016년 이후 감소하는 추세이며, 특히 1차 미세먼지 계절관리제가 시행된 기간에는 이전 연도 동기 대비 큰 감소를 보였다 (Park *et al.*, 2024; Seo *et al.*, 2024). 그러나, 계절관리제가 매년 지속적으로 시행되었음에도 불구하고 국내 PM_{2.5} 농도 개선 폭은 5차 계절관리제

를 제외하면 2차 계절관리제 이후 작아졌다(Seo *et al.*, 2024).

이러한 계절관리제 기간의 국내 PM_{2.5} 농도 변화에 대한 원인 분석은 정부 및 지자체를 중심으로 수행된 바 있다. 환경부에서는 1~4차 계절관리제 기간 각각 전년 동기기간과 비교된 PM_{2.5} 농도 변화에 대해 정책 효과, 기상영향, 국외영향을 각각 $-2.0 \sim -0.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $-3.0 \sim 0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $-2.0 \sim 1.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 제시하였다(KMOE, 2024b, 2023, 2022, 2021). 또한 서울시 4차 계절관리제 기간의 PM_{2.5} 농도는 3차와 비교하여 약 $1.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 증가하였는데, 여기에는 기상영향 $0.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 중국영향 $0.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 정책효과 $-0.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 가 포함된 것으로 분석되었다(SI, 2023). 이러한 PM_{2.5} 농도 변화에 대한 요인별 정량화는 주로 대기질 모사를 통해 분석되며, 분석 방법과 비교 대상 기간에 따라 다르게 제시될 수 있다.

국내를 비롯한 중국 등 동북아 지역의 PM_{2.5} 농도는 계절관리제와 같은 대기질 개선 대책은 물론, COVID-19과 같은 사회적 이슈, 경제활동, 기상 여건 변화 등 다양한 동인에 의해 변화한다(Jeong *et al.*, 2024a; Kang *et al.*, 2024, 2023, 2020; Kim *et al.*, 2023). 특히, 국내의 PM_{2.5} 농도는 국내 배출은 물론 국외 배출에 의한 영향을 크게 받고 있으며(Bae *et al.*, 2022a, 2019), PM_{2.5} 농도가 높아지는 겨울철 동안에는 중국 등 배출영향이 다른 계절에 비해 높아진다(Kim *et al.*, 2024b; Kim *et al.*, 2017). 최근 중국의 PM_{2.5} 농도는 2014년 이후 꾸준히 감소하는 것으로 보고되고 있으며, 상향식 배출목록에서 PM_{2.5}의 전구물질인 SO₂, NO_x 배출량 역시 감소하고 있다(Kim *et al.*, 2024b; Zheng *et al.*, 2023; Qi *et al.*, 2022). 이에 따라 국내 풍상에 해당하는 중국의 배출 및 대기질 개선은 국내 대기질에도 상당 부분 영향을 미칠 것으로 예상되나, 중국 배출 변화가 국내 대기질 변화에 미치는 영향을 장기간 분석한 연구는 드물다.

국내에서는 일평균 PM_{2.5} 농도가 높아질수록 국외 배출영향이 높아지므로, 국내 PM_{2.5} 농도 변화 동인 분석 시 국외로부터의 유입 영향을 파악하는 것이 중

요하다(Bae *et al.*, 2023a; Bae *et al.*, 2019). 이러한 국외 유입을 정량적으로 분석하기 위해 대기질 모사가 많이 활용되어왔다(Bae *et al.*, 2023b, 2022b; Kang *et al.*, 2023). 3차원 광화학 모델 등을 이용하여 풍하 지역의 대기오염물질 농도에 대한 국외 배출영향을 분석하는 경우, 대기질 모사에 이용되는 상향식 배출목록 기반의 풍상 및 풍하 배출량 입력자료는 국내와 같은 풍하 지역에서 매우 중요하게 작용한다(Kim *et al.*, 2024b; Bae *et al.*, 2017; Kim *et al.*, 2017). 이런 점에서 풍하는 물론 풍상 모든 지역에서 PM_{2.5} 모사 농도의 재현성을 확보할 수 있는 배출량 자료를 대기질 모사에 활용하는 것은 정확한 국외 배출영향을 물론 국내 배출영향을 분석하는 데 선결 조건이 될 수 있다.

그러나 상향식 배출목록의 경우 자료 생산에 필요한 시간과 과정의 복잡성을 고려할 때, 급변하는 동북아 지역의 배출량을 신속히 반영하는 것은 쉽지 않다(Kim *et al.*, 2024b; Jang *et al.*, 2023). 이런 점을 고려하여 Seo *et al.* (2024)과 Bae *et al.* (2022a)은 중국의 관측 농도를 이용하여 대기질 모사 기반의 PM_{2.5} 농도를 보정함으로써, 국내로 유입되는 국외 배출영향의 계통 오차(systematic bias)를 개선한 바 있다. 그러나, 일평균 농도와 같은 단기 농도에 대한 무작위 오차(random bias) 개선과 PM_{2.5} 농도 생성 과정에서의 비선형성을 감안하기 위해서는 배출량에 대한 보정 등이 추가적으로 포함되어야 한다(Deroubaix *et al.*, 2024; Bae *et al.*, 2022a).

대기질 모사 시 이용되는 상향식 배출량의 제한점을 보완하기 위해 위성 등 관측자료를 이용한 역모델 기법 등이 검토되고 있다(Moon *et al.*, 2024; Luo *et al.*, 2023; Wu *et al.*, 2023). 이와 아울러 최근에는 국내는 물론 중국 등에서 지표 관측소가 확충됨에 따라 이를 이용하여 하향식 배출량을 추정하는 연구가 이뤄지고 있다(Kim *et al.*, 2024a, b; Jeong *et al.*, 2023; Bae *et al.*, 2020). 이러한 접근을 통해 국내의 풍상에 위치하여 국내 대기질에 많은 영향을 미치는 중국의 배출량을 우선적으로 보정할 수 있으며, 이를 기반으

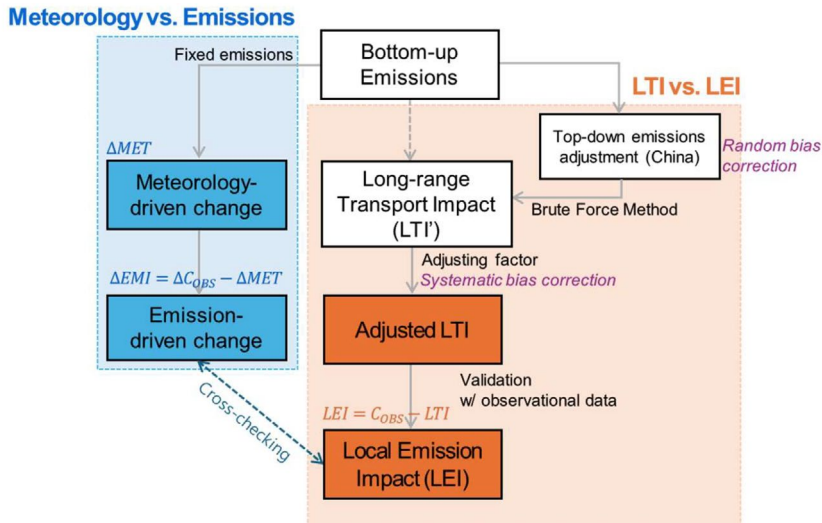


Fig. 1. The flowchart of this study to quantify the changes of PM_{2.5} concentrations in South Korea.

로 국내 PM_{2.5} 농도에 대한 국외 배출영향을 보다 정확하게 산정할 수 있다. 그러나, 이를 장기간 분석에 활용한 예는 매우 드물다.

본 연구에서는 1~5차 계절관리제 기간 동안 관측된 국내 PM_{2.5} 농도의 동인을 크게 두 가지 분류로 구분하고 접근하였으며, 이를 위해 대기질 모사와 지표 관측 자료를 활용하였다(그림 1). 첫 번째로는 국내 PM_{2.5} 농도 변화의 원인을 기상 변화와 배출량 변화에 의한 것으로 구분하였다. 이를 위해 기상 변화에 의한 국내 PM_{2.5} 관측 농도의 변화 폭을 추정하기 위해 고정된 배출량을 이용한 대기질 모사를 수행하였다. 두 번째로는 국내 PM_{2.5} 농도 변화 가운데 국외 배출영향 변화가 차지하는 부분을 살펴보고, 이를 토대로 국내 배출영향 변화를 유추하였다. 국내·외 배출영향 변화를 계절관리제 시행 이전과 비교해 보기 위해 계절관리제 시행 이전 3년 동기간을 연구기간에 포함하였다. 장기간에 걸친 분석 시, 국외 배출량의 변화를 반영해야 하므로, 본 연구에서는 모사 재현성 확보를 위해 NO_x, SO₂, Primary PM_{2.5} 등 PM_{2.5} 중량 농도와 관련된 국외 배출량을 보정하였다. 이러한 시도를 통해 과거 기간에 대한 국내 PM_{2.5} 농도 변화의 다양한 동인을 분석하며, 향후 지속적인 국내

PM_{2.5} 농도 개선이 용이하도록 돕고자 한다.

2. 연구 방법

2.1 대상 지역 및 기간

국내 PM_{2.5} 농도는 국내에서 배출되는 대기오염물질 뿐만 아니라 국외에서 배출되어 국내로 유입되는 영향을 함께 받는다(Jeong *et al.*, 2024b; Kang *et al.*, 2024; Jang *et al.*, 2023; Bae and Kim, 2022). 따라서, 본 연구의 대기질 모사 시 국내는 물론 중국 등 동북아 지역을 포함하였다. 그림 2의 동북아 모사 영역에는 중국 전 지역이 포함되지는 않으나, 배출 밀도가 높은 중국 동부와 국내와 거리적으로 인접한 지역이 포함된다. 또한 동북아 모사 영역 외에, 국외 배출영향과 국내 배출영향을 국내 시도별로 보다 상세하게 산정하기 위하여 국내를 중심으로 세부 모사 영역을 별도로 설정하였다(그림 2). 그림 2에 배출량 보정과 대기질 모사 평가를 위한 지표 관측소의 위치를 보였으며, 중국의 경우 China National Environmental Monitoring Center (CNEMC)를, 국내의 경우에는 Air-Korea (<https://www.airkorea.or.kr/>) 자료 가운데 도시

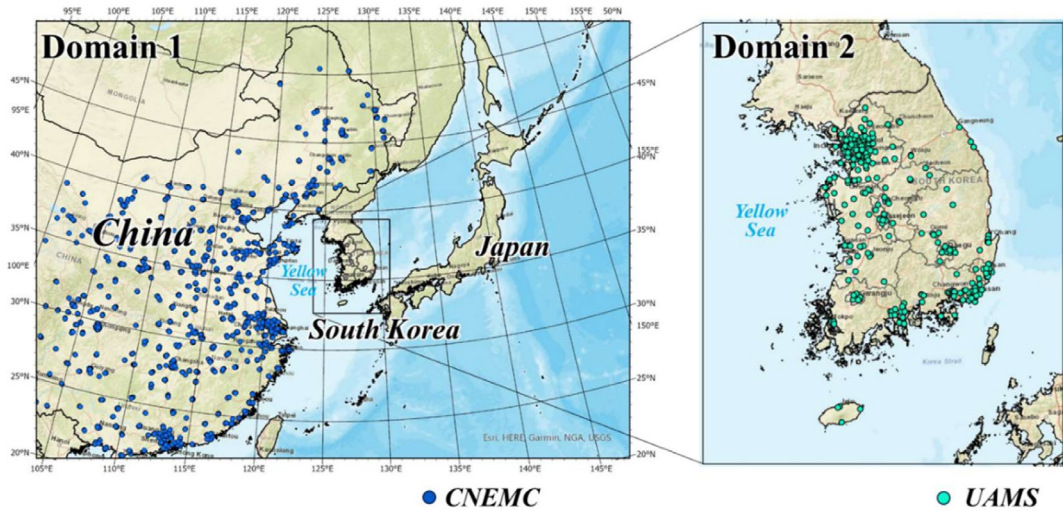


Fig. 2. Modeling domains for air quality simulations in this study. Domain 1 covers the eastern part of China and South Korea with a 27-km horizontal grid resolution. Domain 2 covers South Korea with a 9-km grid resolution. Blue and green circles indicate ground air quality monitoring stations in China and South Korea, respectively.

대기측정망 (Urban Air quality Monitoring Stations, UAMS) 관측 농도를 이용하였다.

계절관리제 기간 동안 $PM_{2.5}$ 농도 변화 동인을 분석하기 위하여 계절관리제 시행 기간 (the Seasonal PM management periods; S)과 이전 기간 (Before the Seasonal PM management; BS)을 구분하여 설정하였다. 계절관리제 시행 기간에는 1차~5차 계절관리제 기간이 포함되며, 시행 이전 기간에는 2016년 12월 이후 3년에 걸친 동 기간 (12월~다음해 3월)을 포함하였다. 국내에서 도시대기측정망을 통한 $PM_{2.5}$ 농도 관측은 2015년부터 이루어졌으나, 2015년의 경우 일부 시도에서는 유효 관측소의 수가 충분하지 않아 비교 대상 기간에서 제외하였다.

표 1은 연구 대상 기간을 정리한 것으로, 중국과 국내에서 관측된 $PM_{2.5}$ 기간별 평균 농도를 제시하였다. 대상기간 동안 중국의 $PM_{2.5}$ 관측 농도는 국내에 비해 평균 2배 정도 높았으며, 표 1에 제시된 두 지역에서 기간별로 평균된 $PM_{2.5}$ 농도 간의 상관계수는 0.81로 높았다. 이는 두 지역 간의 $PM_{2.5}$ 농도의 장기 변화가 유사함을 의미하며 기상, 배출량 등 같은 동인에 의해 농도 변화가 발생했을 가능성을 시사한다.

중국의 경우 다른 기간에 비해 BS3 기간 동안 가장 높은 $PM_{2.5}$ 농도가 관측되었으나, 국내에서는 계절관리제가 시작되기 바로 직전 기간인 BS1 기간 동안 가장 높은 $PM_{2.5}$ 농도가 관측되었다. BS3~S5 기간까지 $PM_{2.5}$ 관측 농도는 평균적으로 중국에서 $3.0 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{period}$, 국내의 경우 $1.6 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{period}$ 의 비율로 감소되었다.

2.2 대기질 모사

대기질 모사를 위해서는 Community Multi-scale Air Quality (CMAQ) v5.3.2를 이용하였다 (Byun and Schere, 2006). 화학 메커니즘은 SAPRC07을, 입자상 모듈은 AERO6를 이용하였다. 중국과 한국을 포함하는 동북아 모사 영역 (Domain 1)의 수평 격자 해상도는 27-km로 설정하였으며, 한국을 중심으로 Domain 2의 수평 격자 해상도는 9-km이다. 기상 입력자료의 모사는 Weather Research and Forecasting (WRF) v3.9.1 모델을 이용하였으며 (Skamarock and Klemp, 2008), Meteorology-Chemistry Interface Processor (MCIP) v4.3을 이용하여 WRF 모사 결과를 CMAQ 모델의 입력자료 형태로 변환하였다.

Table 1. Definition of the study periods and observed mean PM_{2.5} concentrations in China and South Korea.

| Case | | Period | Observed mean PM _{2.5} concentration (µg/m ³) | |
|---------------------------------------|-----|--------------------------|--|-------------|
| | | | China | South Korea |
| Before Seasonal PM Management periods | BS3 | December 2016~March 2017 | 69.7 | 31.5 |
| | BS2 | December 2017~March 2018 | 60.7 | 30.3 |
| | BS1 | December 2018~March 2019 | 55.9 | 33.2 |
| Seasonal PM Management periods | S1 | December 2019~March 2020 | 50.6 | 24.5 |
| | S2 | December 2020~March 2021 | 50.6 | 24.1 |
| | S3 | December 2021~March 2022 | 44.8 | 23.1 |
| | S4 | December 2022~March 2023 | 47.9 | 24.8 |
| | S5 | December 2023~March 2024 | 47.2 | 20.9 |

대기질 모사 시 배출량 입력자료는 상향식 배출목록 기반의 배출량과 함께, 중국에 대해 보정된 배출량을 함께 이용하였다. 한국에 대한 상향식 배출목록은 모사기간(2016년 12월~2023년 3월)를 고려하여 국가미세먼지정보센터의 CAPSS (Clean Air Policy Support System) 2021 추계 배출목록을 (NAIR, 2023; Park *et al.*, 2023), 그 외 지역에 대해서는 SIJAQ (The Satellite Integrated Joint Air Quality) v2 (reference year: 2021)를 이용하였다. 상향식 배출목록의 경우 모든 기간에 대해 고정하여 모사에 이용하였으며, 이를 통해 기간별 기상 조건 변화에 따른 PM_{2.5} 모사 농도 변화 정도를 추정하였다. 중국의 경우 최근 배출량이 크게 감소하였으므로 (Zheng *et al.*, 2018; Kim *et al.*, 2024b), 본 연구에서는 풍상 지역 배출량 변화에 따른 국내 PM_{2.5} 유입 영향을 산정하기 위해 기간별로 중국의 배출량을 보정하여 이용하였다. 배출량 보정을 수행할 경우, 배출목록 선택에 따른 오차를 줄일 수 있다는 장점이 있다 (Kim *et al.*, 2024b). 이에 대한 자세한 사항은 2.4~2.5절에 기술하였다.

2.3 기상 및 배출 변화 영향 분리 방법

그림 1에서 계절관리제 기간 동안 PM_{2.5} 농도 변화의 동인을 기상 및 배출 조건 변화로 구분할 경우, 기상 조건 변화에 의한 PM_{2.5} 농도 변화는 고정된 배출량을 이용하여 추정할 수 있다 (Qi *et al.*, 2022; Chen *et al.*, 2021; Huang *et al.*, 2020; Kang *et al.*, 2020). 또

한, 관측 농도 변화에서 기상 여건 변화에 의한 농도 변화를 제외하면, 배출영향 변화에 의한 PM_{2.5} 농도 변화로 볼 수 있다 (Jeong *et al.*, 2024a; Bae *et al.*, 2023a; Bae *et al.*, 2020; Kang *et al.*, 2020). 기상 변화에 의한 PM_{2.5} 농도 변화를 살펴보기 위해 본 연구에서는 고정된 상향식 배출목록을 이용하여 CMAQ 모사를 수행하였으며, 기간별 모사 농도의 변화는 식 (1)과 같이 계산하였다.

$$\Delta C_{EI}^i = C_{EI}^i - C_{EI}^{ref} \quad (1)$$

여기에서 C_{EI}^i 와 C_{EI}^{ref} 는 동일한 배출목록 (Emissions Inventory)을 이용하여 특정 대상 기간 i 와 기준이 되는 기간 (ref)에 대해 모사된 PM_{2.5} 농도이다. 다만, PM_{2.5} 모사 농도를 관측 농도에 대해 완벽하게 재현하기 어려우므로, 본 연구에서는 모사 농도를 기반으로 기상 변화에 의한 PM_{2.5} 농도의 상대적 변화율을 산정하였다. 식 (2)는 기간별 모사 농도를 이용하여 기상 변화에 의한 PM_{2.5} 농도 변화율을 산정한 것이다.

$$\Delta r C_{EI}^i = (C_{EI}^i - C_{EI}^{ref}) / C_{EI}^{ref} \quad (2)$$

식 (2)에서 $\Delta r C_{EI}^i$ 는 기상 조건 변화에 따른 모사 농도의 변화율을 의미하며, 앞서 언급한 바와 같이 관측 농도와 모사 농도 간의 차이를 고려하여 기상 조건 변화에 의한 PM_{2.5} 관측 농도의 변화는 식 (3)과

같이 계산하였다.

$$\Delta C_{OBS,MET}^i = C_{OBS}^{year,ref} \times \Delta r C_{EI}^i \quad (3)$$

여기에서 $C_{OBS}^{year,ref}$ 는 기준연도에 대한 $PM_{2.5}$ 관측 농도이다. $PM_{2.5}$ 관측 농도의 변화를 기상과 배출 변화에 의한 가정할 경우, 계절관리제 기간 동안 배출 변화에 의한 $PM_{2.5}$ 관측 농도의 변화는 식 (4)와 같이 추정할 수 있다.

$$\Delta C_{OBS,EMI}^i = \Delta C_{OBS}^i - \Delta C_{OBS,MET}^i \quad (4)$$

2.4 중국 배출량 보정 방법

대상 기간에 대한 국외 배출영향 산정에 앞서 국내 $PM_{2.5}$ 농도에 많은 영향을 미치는 중국 배출량을 일평균 관측 농도를 이용하여 보정하였다(Seo *et al.*, 2024; Bae *et al.*, 2023b; Kim *et al.*, 2023). 이를 위해 우선 상향식 배출목록을 이용한 모사 농도 ($C_{EI}^{i,day}$) 이외에 중국의 NO_x , SO_2 , Primary $PM_{2.5}$ (PPM_{2.5}) 등 모든 배출량을 50% ($\Delta\varepsilon$) 삭감한 후 물질별 농도 ($C_{EI,half}^{i,day}$)를 추가적으로 모사하였다. 이를 바탕으로 중국 배출량 변화에 대한 $PM_{2.5}$ 농도 변화의 민감도를 식 (5)와 같이 구하였다. 여기에서 민감도 $S_{China}^{i,day}$ 는 중국의 현 단위에서 모사기간 동안 하루 단위로 산정하였다. 식 (5)에서 $C_{EI}^{i,day}$ 와 $C_{EI,half}^{i,day}$ 는 각각 대상 기간 i 에서 특정된 하루(day)에 대한 상향식 배출량 ($E_{EI}^{i,day}$)과 이를 50% 삭감한 배출량을 이용하여 모사된 농도이다.

$$S_{China}^{i,day} = \left(C_{EI}^{i,day} - C_{EI,half}^{i,day} \right) / \Delta\varepsilon \quad (5)$$

보정 배출량 ($E_{ADJ}^{i,day}$)은 식 (6)과 같이 상향식 배출량을 수정하여 산정하였다(Kim *et al.*, 2024b; Li *et al.*, 2023; Jeong *et al.*, 2023). 여기에서 $C_{OBS}^{i,day}$ 는 특정일에 대한 일평균 관측 농도이며, $E_{EI}^{i,day}$ 와 $E_{ADJ}^{i,day}$ 는 각각 해당일에 대한 상향식 배출량과 보정 배출량이다.

$$E_{ADJ}^{i,day} = \left[\left(C_{OBS}^{i,day} - C_{EI}^{i,day} \right) / S_{China}^{i,day} + 1 \right] \times E_{EI}^{i,day} \quad (6)$$

본 연구에서는 풍상 지역의 $PM_{2.5}$ 모사 농도를 관측 농도와 가능한 유사하게 도출하기 위하여 가스상 대기오염물질 (i.e., NO_x , SO_2)를 우선 보정하였다. 또한, 가스상 대기오염물질의 배출량 보정 후에도 남아 있는 관측 농도와 모사 농도의 차이를 추가적으로 개선하기 위하여 PPM_{2.5} 배출량을 조정하였다. 대상기간 동안 중국의 배출량 보정은 현(prefecture) 단위로 진행되었으며, 배출량 변화에 따른 전구물질의 농도 변화, $PM_{2.5}$ 생성 과정에서의 비선형성 등을 고려하여 가스상 및 입자상 배출물질에 대한 보정을 순차적으로 두 번씩 수행하였다. 배출량 보정과 관련된 자세한 내용은 선행연구를 참고할 수 있다(Kim *et al.*, 2024a, 2024b). 이와 유사한 배출량 보정 방법으로 Li *et al.* (2023)은 위성자료의 특성을 고려하여 중국 NO_x 배출량 보정 시 10일마다 민감도를 산정하였으며, Lee *et al.* (2024)는 관측 농도와 모사 농도의 비를 이용하여 몽골 지역의 배출량을 재추정한 바 있다.

2.5 국내의 배출영향 분리 방법

본 연구에서는 중국의 $PM_{2.5}$ 모사 농도를 관측 농도와 보다 유사하게 재현할 수 있는 보정 배출량을 이용하여 국외 배출영향을 산정하였다. 대기질 모사를 이용한 국외 배출영향 산정 시에는 국외 배출 또는 국내 배출을 변화시키는 방법이 적용될 수 있으며 (Bae *et al.*, 2023b; Nam *et al.*, 2019), 본 연구에서는 국외 배출량을 변화시키는 방법을 선택하였다. 이를 위해 Brute Force Method (BFM)을 이용하였으며, 기간별 국외 배출영향을 식 (7)과 같이 추정하였다(Bae *et al.*, 2023a; Kim *et al.*, 2023).

$$LTI' = \left(C_{ADJ}^{downwind} - C_{ADJ,\Delta\varepsilon}^{downwind} \right) \times \frac{100\%}{\Delta\varepsilon} \quad (7)$$

여기에서 LTI' 는 보정된 국외 배출량을 기반으로 산정된 국외 배출영향이다. $C_{ADJ}^{downwind}$ 는 풍하 지역인 보정된 국외 배출량을 이용하여 국내 지역에 대해 모사된 농도이고, $C_{ADJ,\Delta\varepsilon}^{downwind}$ 는 보정된 국외 배출량을 $\Delta\varepsilon$ 만큼 변화시킨 후 모사된 농도로 매 시간별로 계

산된다. 일평균 또는 기간 평균 국외 배출영향을 산정하기 위해 시간 자료를 산술 평균하였다. 본 연구에서는 배출량 변화율 $\Delta\varepsilon$ 는 50%를 적용하였으며, 대기질 모사 시 국내 지역에 대해서는 모든 기간에 대해 고정된 상향식 배출목록을 동일하게 이용하였다.

배출량 보정 후 대기질 모사 결과를 보면, 풍상 지역 $PM_{2.5}$ 모사 농도의 재현성은 random bias가 감소하여 개선되었으나, 그림 S1과 S2에서 보이는 계통 오차로 인해 국내 $PM_{2.5}$ 농도에 대한 국외 배출영향 (Long-range Transport Impact; LTI)은 과대 산정될 수 있다(3.2절 참조). Bae *et al.* (2022a)과 Seo *et al.* (2024)은 풍상 지역의 관측 농도(C_{OBS}^{upwind})와 모사 농도(C_{ADJ}^{upwind}) 간의 계통 오차를 최소화하기 위해 식 (8)과 같이 중국 Beijing-Tianjin-Hebei (BTH)의 관측 농도와 모사 농도를 이용하여 국내 유입 영향을 수정하였다. 본 연구에서도 산정된 국외 배출영향을 보정하기 위해 동일한 방법을 적용하였다. 국외 배출영향의 계통 오차를 개선하기 위해 본 연구에서는 C_{OBS}^{upwind} 와 C_{ADJ}^{upwind} 를 월평균하여 이용하였다. 이러한 관측 농도와 모사 농도 비를 이용한 모사 결과에 대한 수정은 기존 연구에서도 적용된 바 있다(Lee *et al.*, 2024; Li *et al.*, 2023).

$$LTI = LTI' \times C_{OBS}^{upwind} / C_{ADJ}^{upwind} \quad (8)$$

풍하 지역인 국내에서 관측되는 $PM_{2.5}$ 농도를 국외 배출영향 (LTI)과 국내 배출영향 (LEI)의 합으로 가정하면, 국내 배출영향은 관측 농도와 국외 배출영향의 차이로 계산할 수 있다.

$$LEI = C_{OBS}^{downwind} - LTI \quad (9)$$

3. 연구 결과

3.1 $PM_{2.5}$ 농도 변화와 기상 영향

1~5차 계절관리제 기간(S1~S5; S)과 시행 이전 기간(BS3~BS1; BS) 동안 중국과 국내의 $PM_{2.5}$ 관측 농

도는 전반적으로 점차 감소하였다(그림 3(a)). 국내 $PM_{2.5}$ 관측 농도는 S 기간 평균 $23.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로, BS 기간 평균인 $31.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 에 비해 $8.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (26%) 감소하였다. 같은 기간 동안 중국 전 지역 $PM_{2.5}$ 농도 변화는 $13.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 국내 변화에 비해 크나, 감소율은 22%로 국내에 비해 작았다. 같은 기간 동안 중국 주요 지역별 $PM_{2.5}$ 농도 감소율은 Beijing-Tianjin-Hebei (BTH) 34%, Yangtze River Delta (YRD) 22%, North-East China (NEC) 19%, Near Beijing (NRB) 18% 순으로 높았다. 이러한 중국의 $PM_{2.5}$ 농도 감소는 중국의 배출 감소에서 기인한 것으로 2016~2021년 연간 CO, NO_x , SO_2 배출량의 감소 추세는 각각 7.2%/year, 4.5%/year, 10.6%/year로 보고된 바 있다(Kim *et al.*, 2024b).

다만, 1~5차 계절관리제 기간 평균 농도 변화를 계절관리제 시행 바로 이전 기간인 BS1 (2018년 12월~2019년 3월) 기간을 기준으로 살펴보면, 국내의 경우 $PM_{2.5}$ 관측 농도 감소율이 29%로 높아지나 중국은 평균 14%로 더 낮아졌고, 중국 지역별 감소율은 12~23%로 모든 지역에서 4~11%가량 낮아졌다. 이러한 차이는 국내에서는 2019년 2월말에서 3월초까지 발생한 고농도 $PM_{2.5}$ 사례에 의해 그림 3(a)에 보인 바와 같이 $PM_{2.5}$ 관측 농도가 다른 기간에 비해 높아졌으나, 중국에서는 이러한 $PM_{2.5}$ 농도 증가가 관측되지 않았기 때문이다. 전체 기간(BS3~S5) 동안 국내와 중국 지역별 기간 평균 $PM_{2.5}$ 관측 농도 간의 상관 계수(γ)는 0.71~0.80이었으며, 중국 전 지역 평균 $PM_{2.5}$ 관측 농도와는 $\gamma=0.81$ 의 상관성을 보였다. 다만, 풍상과 풍하 지역 간 농도 변화의 상관성이 국내 $PM_{2.5}$ 농도 변화에 대한 국외 배출영향 변화를 의미하지는 않으므로, 본 연구에서는 대기질 모사를 통해 국외 배출영향의 변화를 3.3 및 3.4절에서 정량적으로 분석하였다.

그림 3(b)는 중국과 국내 $PM_{2.5}$ 관측 농도의 변화율을 계절관리제 시행 직전 기간인 BS1를 기준으로 정규화하여 제시한 것이다. BS3~S5 기간 동안 지역별 $PM_{2.5}$ 관측 농도의 수준 차이를 제외할 경우,

PM_{2.5} 관측 농도의 변화율은 모든 지역에서 유사하였다. 한 가지 주목할 점은 계절관리제가 시행되기 시작한 S1 (2019년 12월~2020년 3월) 기간 동안 국내 평균 PM_{2.5} 관측 농도는 이전 기간인 BS1 대비 크게 감소하였다. 이는 중국 다른 지역과 비교하여도 상대적으로 큰 감소율에 해당한다. 중국 BTH 지역의 경우 PM_{2.5} 관측 농도 변화는 S1~S2 기간 동안에는 국내에 비해 덜 감소하였으나, S3 기간 이후로는 꾸준히 감소하여 전체적으로는 국내의 PM_{2.5} 관측 농도 감소율과 유사하였다. 또한 국내의 경우, BS1→S1 기간 동안 PM_{2.5} 관측 농도가 크게 감소하였으나, 그 이후로는 S5를 제외하면 PM_{2.5} 관측 농도 변화가 뚜렷하지 않았는데 (Seo *et al.*, 2024), 중국 전 지역 평균 PM_{2.5} 관측 농도 역시 유사하게 변화하였다.

식 (3)과 (4)에 제시한 방법으로 대상 기간 동안 국내 PM_{2.5} 농도 변화에 대한 기상 및 배출영향 변화를 추정하면, 그림 3(c)에 보인 바와 같이 BS3~BS2 기간 동안 기상 여건에 의해 PM_{2.5} 농도가 주요하게 감소하였다. 그러나, S 기간 동안에는 배출영향 변화가 국내 PM_{2.5} 농도 변화를 주도하였다. BS 대비 S 기간 평균 국내 PM_{2.5} 관측 농도 감소는 8.2 µg/m³이었다. 기간별로 차이는 있으나, 이 기간 동안 평균적인 배출영향 변화는 국내 PM_{2.5} 농도를 9.5 µg/m³가량 감소시킨 반면, 기상 영향 변화는 국내 PM_{2.5} 농도를 1.3 µg/m³가량 증가시켰다.

5차 계절관리제 기간(S5)의 경우 BS1 기간 대비 PM_{2.5} 관측 농도가 국내에서 가장 낮아졌으며, 이러한 PM_{2.5} 농도 감소에는 배출영향과 기상 영향 감소가 각각 8.9 µg/m³, 3.5 µg/m³가량 작용하였다. 기상 영향 변화를 기간별로 비교해보면, S5 기간 동안 기상 영향 변화에 의한 PM_{2.5} 농도는 BS1 기간 이후 가장 큰 폭으로 감소하였다. 한 가지 주의할 점은 배출영향의 감소에는 배출량 변화뿐 아니라, 기상 여건 변화가 간접적으로 반영된다. 또한, 대기질 모사를 통해 기상과 배출, 국내와 국외 배출영향을 명확히 구분하는 것은 대기 중 PM_{2.5} 농도는 배출과 기상 영향을 함께 받는다는 점에서 쉽지 않다 (Seo *et al.*, 2024;

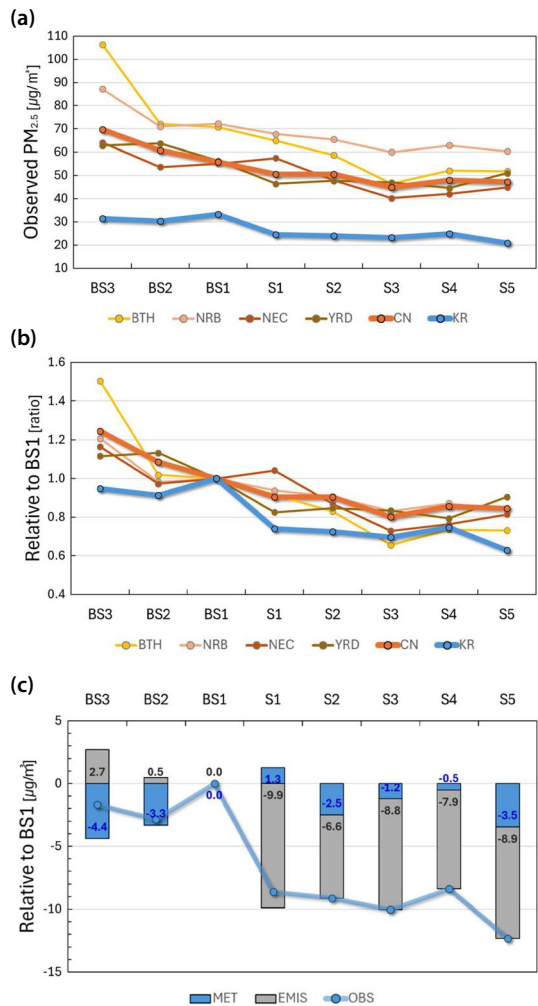


Fig. 3. (a) Trends in observed PM_{2.5} concentrations in South Korea and China, including Beijing-Tianjin-Hebei (BTH), Near Beijing (NRB), North-East China (NEC), and Yangtze River Delta (YRD) regions, during the BS3 to S5 periods; (b) trends in relative changes in PM_{2.5} concentrations compared to the BS1 period; and (c) impacts of meteorological conditions and emissions on changes in PM_{2.5} concentrations in South Korea compared to the BS1 period.

Bae *et al.*, 2023a; Huang *et al.*, 2020). 또한, 그림 3(c)에 제시된 국내 PM_{2.5} 농도 변화에 대한 배출영향 감소는 국내뿐 아니라, 국외 배출영향 변화를 모두 포함한다.

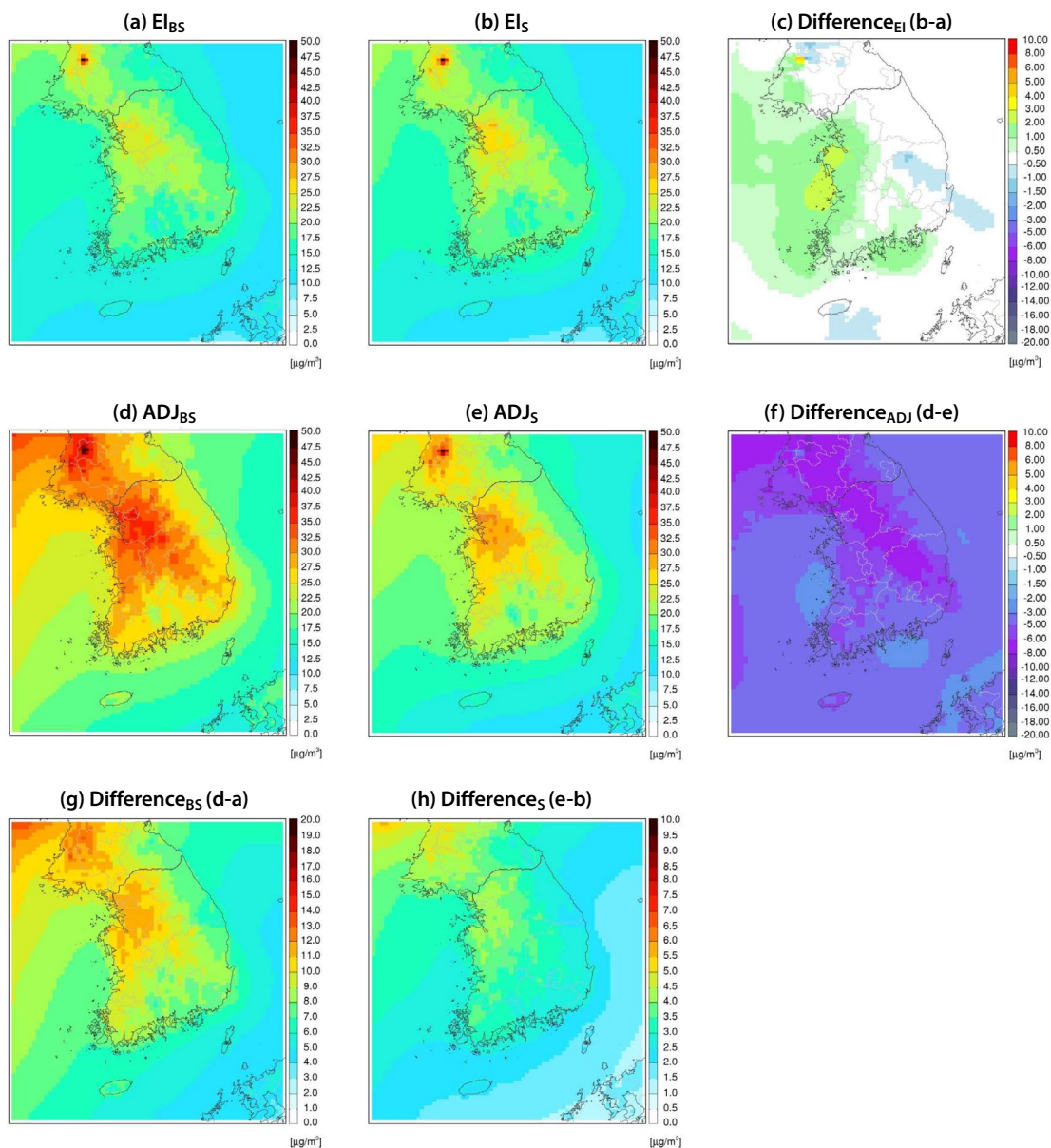


Fig. 4. The spatial distributions of simulated PM_{2.5} concentrations before ('EI', (a), (b)) and after Chinese emissions adjustment ('ADJ', (d), (e)), the differences between EI and ADJ for the BS period (Before the Seasonal PM management, (g)) and S period (the Seasonal PM management, (h)), and the differences between the BS and S periods based on EI (c) and ADJ (f).

3.2 중국 배출량과 국외 유입 보정 효과

상향식 배출목록을 이용한 대기질 모사에서는 대상 기간에 상관없이 PM_{2.5} 모사 농도의 공간 분포가 유사하였다(그림 4(a)와 (b)). 고정된 배출목록을 이

용한 대기질 모사에서 BS 기간 대비 S(계절관리제) 기간의 평균 PM_{2.5} 모사 농도의 증가는 기상 영향에 의한 것으로 이해할 수 있다. 계절관리제 기간 동안 기상 여건 변화에 의해 국내 PM_{2.5} 농도는 주로 서해

Table 2. Model performance statistics for daily average PM_{2.5} concentrations in the BTH region before ('EI') and after Chinese emissions adjustment ('ADJ') during BS3~S5.

| Statistics | | BS3 | BS2 | BS1 | S1 | S2 | S3 | S4 | S5 |
|--|-----|-------|-------|-------|-------|-------|------|------|------|
| Mean _{obs} (μg/m ³) | | 106.4 | 72.1 | 70.8 | 64.9 | 58.7 | 46.4 | 52.0 | 51.8 |
| Mean _{model} (μg/m ³) | EI | 55.6 | 45.9 | 49.3 | 54.4 | 46.8 | 48.8 | 45.1 | 50.9 |
| | ADJ | 109.1 | 77.1 | 77.0 | 73.3 | 62.9 | 53.0 | 57.0 | 60.1 |
| Correlation coefficient | EI | 0.90 | 0.86 | 0.87 | 0.89 | 0.77 | 0.9 | 0.71 | 0.78 |
| | ADJ | 0.99 | 0.98 | 0.99 | 0.99 | 0.99 | 0.99 | 0.99 | 0.98 |
| Mean bias (μg/m ³) | EI | -50.8 | -26.2 | -21.4 | -10.5 | -11.9 | 2.4 | -7.0 | -0.8 |
| | ADJ | 2.7 | 5.0 | 6.2 | 8.4 | 4.2 | 6.6 | 5.0 | 8.3 |

안과 남해안 지역을 중심으로 증가하였다(그림 4(c)). 특히 황해에 걸친 PM_{2.5} 모사 농도의 증가는 국내는 물론 국외 배출영향의 증가를 의미한다.

BS 기간과 계절관리제 기간 동안 PM_{2.5} 모사 농도는 배출량 보정 전과 비교하여 보정 후에 보다 뚜렷한 차이를 보였다(그림 4(f)). 그림 4(c)에 제시된 기상 영향을 감안할 때, 그림 4(f)에 보인 PM_{2.5} 농도 변화는 대부분 국외 배출영향 변화에 의한 것이다. 중국 배출량 보정에 따른 국내 PM_{2.5} 모사 농도의 변화는 서해안 등 해안 지역보다는 수도권, 충북, 경북 등 내륙 지역에서 상대적으로 높았다(그림 4(g)와 (h)). 이는 국외 배출영향의 경우 국내 유입 후 생성이 가능하고, 상층을 통한 장거리 이동, 그리고 해안보다는 내륙에서 환기가 낮은 지형 효과 등이 복합적으로 작용했기 때문일 수 있다(Jeong *et al.*, 2024b; Kim *et al.*, 2023, 2021a, 2021b). 또한, 그림 4(g)와 (h)에서 중국 배출량 보정 후 추정된 국외 배출영향은 S 기간보다는 BS 기간 동안 상대적으로 높았다. 한편, 공간적으로 볼 때, 국외 배출영향의 불확도는 수도권 등 인구 밀집 지역에서 높았다. 따라서, PM_{2.5}에 대한 정확한 인구 노출 평가 등을 위해서는 국외 배출량에 대한 검증이 중요해 보인다.

그림 S1은 중국 배출량 보정 전후의 월평균 PM_{2.5} 모사 농도를 관측 농도와 비교한 것이다. 배출량 보정 전 모사 농도는 전 기간 평균 50.0 μg/m³로 관측 농도와의 mean bias는 15.3 μg/m³이었다($\gamma = 0.66$).

배출량 보정 후 BTH의 모사 농도는 71.8 μg/m³로, 관측 농도인 65.3 μg/m³를 6.5 μg/m³ 과대 모사하였으나, 상관계수 0.99로 높아졌다. 이러한 결과는 중국 배출량 보정 전에는 PM_{2.5} 관측 농도의 월별 변동을 반영하지 못하였으나, 배출량 보정 후에는 관측 농도의 변동성을 잘 재현하였다. 풍상 지역에서의 과대 모사는 장거리 이동경로 상에 위치하는 국내로 이어질 수 있다. 그림 S2는 백령에서의 모사 농도 변화를 비교한 것으로 배출량 보정 전에는 mean bias 또한 -5.3 μg/m³로 컸으나, 배출량 보정 후에는 mean bias는 0.7 μg/m³로 감소하였고, 상관계수 또한 0.52에서 0.77로 개선되었다. 중국 배출량 보정과 BTH의 PM_{2.5} 관측 농도 기반으로 계통 오차를 수정 후에는 백령에서의 mean bias는 -1.4 μg/m³로 일부 증가하였으나, 상관계수는 0.82로 개선되었다. 그림 S2에서 2차와 4차 계절관리제 기간 동안 다른 기간에 비해 백령에서 과소 모사가 나타나며, 이는 해당 기간 동안 황사 발생 빈도의 증가에 의한 것으로 보인다.

표 2에서 고정된 배출량을 이용한 모사에서 중국 BTH에서의 PM_{2.5} 농도 변화는 전체 기간 동안 45.1~55.6 μg/m³로 관측 농도의 변화 폭인 46.4~106.4 μg/m³와는 큰 차이를 보였다. 그러나 배출량 보정 후에는 관측 농도와의 편차가 2.7~8.4 μg/m³로 감소하였으며, 상관계수 역시 0.98 이상으로 증가하였다. 또한 국내 북서단에 위치한 백령에서 PM_{2.5} 관측 및 모사 농도 간의 상관계수는 중국 배출량 보정 이후 크게

Table 3. Model performance statistics for daily average PM_{2.5} concentrations in South Korea before ('EI') and after adjustments of Chinese emissions and modeled bias correction ('ADJ¹⁾') during BS3~S5.

| Statistics | | BS3 | BS2 | BS1 | S1 | S2 | S3 | S4 | S5 |
|--|-----|-------|------|-------|------|------|------|------|------|
| Mean _{obs} (μg/m ³) | | 31.5 | 30.3 | 33.2 | 24.5 | 24.0 | 23.1 | 24.8 | 20.9 |
| Mean _{model} (μg/m ³) | EI | 20.0 | 20.7 | 23.0 | 23.9 | 21.3 | 22.2 | 22.7 | 20.6 |
| | ADJ | 30.2 | 28.5 | 30.6 | 26.8 | 23.9 | 23.1 | 24.7 | 21.9 |
| Mean Bias (μg/m ³) | EI | -11.5 | -9.6 | -10.2 | -0.7 | -2.8 | -1.0 | -2.1 | -0.3 |
| | ADJ | -1.3 | -1.9 | -2.6 | 2.3 | -0.2 | -0.1 | -0.1 | 1.0 |

¹⁾ 'ADJ' were recalculated by combining bias-corrected LTI in Eq. (8) and LEI ($= C_{OBS}^{downwind} - LTI'$). Correlation coefficient for ADJ was not presented since the biases were corrected on monthly basis.

높아졌다(그림 S2 참고).

배출량이 보정된 모사에서 BTH의 PM_{2.5} 농도는 S1과 S5 기간과 같이 양의 계통 오차를 보이며, 이는 국내 PM_{2.5} 농도에 대한 국외 배출영향의 과대 평가로 이어질 수 있다. 이런 점을 보완하기 위해 식 (7)에서 보정된 배출량을 기반으로 추정된 국외 배출영향을 식 (8)과 같이 수정하였다. 표 3에서 국내 PM_{2.5} 모사 농도는 식 (7)에서 추정된 국내 배출영향 (= 관측 농도 - 모사 기반 국외 배출영향)과 식 (8)에서 계산된 국외 배출영향의 합이다. 재계산된 국내 PM_{2.5} 모사 농도 (ADJ)의 기간별 mean bias의 평균은 -0.5 μg/m³로, 상향식 배출량을 이용한 모사(EI)의 기간별 mean bias 평균인 -4.8 μg/m³에 비해 약 4.3 μg/m³ 정도 줄어 들었다.

중국 배출량 보정 전 모사 결과는 고정된 배출목록을 이용한 것으로, 3.1절의 설명과 같이 기상 조건 변화에 따른 국내 PM_{2.5} 농도 변화를 파악할 수 있으나, 대상 기간 동안 PM_{2.5} 관측 농도의 변화를 반영하지 못했다(그림 4). 이에 비해 중국 배출량을 보정한 모사에서는 계절관리제 시행 전 기간(BS3~BS1) 평균 30.9 μg/m³로 관측 농도(31.7 μg/m³)와 유사하였고, 계절관리제 기간(S1~S5) 평균 국내 PM_{2.5} 관측 농도는 24.1 μg/m³, 모사 농도는 26.1 μg/m³로 감소하였다. 다른 기간에 비해 S1 기간 모사 농도는 배출량 보정 후에도 관측 농도를 과대 모사하였으며, 이는 관측 농도의 경우 추가적인 배출량 감소에 의한 영향 등이 나타날 수 있으나, 대기질 모사에서는 이를 반영되지

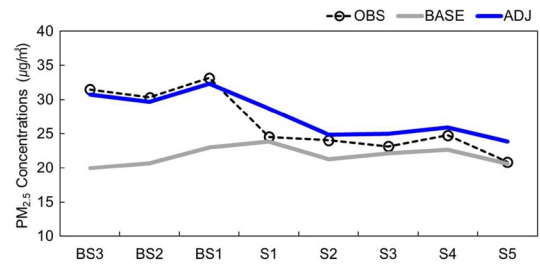


Fig. 5. PM_{2.5} concentrations in South Korea during the target episodes. The Circles represent episode-average observed concentrations, while the gray and blue lines represent modeled concentrations based on EI-based emissions (EI) and adjusted emissions (ADJ), respectively.

못했기 때문으로 추정된다(표 3과 그림 4 참조).

그림 5에 제시된 두 가지 대기질 모사의 경우 국내 배출량을 동일하게 고정하여 이용하였으므로, 두 모사의 차이는 국외 배출영향의 변화에서 기인한다. 따라서, 중국 배출량을 보정한 모사 결과에서 도출된 국외 배출영향의 감소는 계절관리제 기간 동안 국내 PM_{2.5} 관측 농도를 낮춘 주요한 원인으로 분석된다. 다른 주목할 점은 BS1 → S1 기간 동안 국내외 배출량이 고정된 모사에서는 국내 PM_{2.5} 모사 농도가 증가한 반면, 중국 배출량을 보정한 모사에서는 감소하였다. 따라서 BS1 → S1 기간 동안 기상 여건은 국내 PM_{2.5} 관측 농도를 높이는 방향으로 작용한 반면, 국외 배출영향은 국내 PM_{2.5} 관측 농도를 낮추는 방향으로 작용한 것으로 이해된다.

또한, 중국 배출량을 보정한 모사에서 BS 기간 동

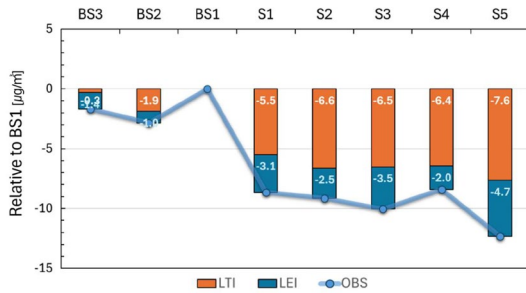


Fig. 6. Impacts of long-range transport (LTI) and local emissions (LEI) on changes in $PM_{2.5}$ concentrations compared to the BS1 period in South Korea from BS3 to S5. The Circles represent the changes in observed $PM_{2.5}$ concentrations relative to the BS1 period.

안 국내 $PM_{2.5}$ 농도가 $0.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 가량 과소 평가되었다. 따라서, 대기질 모사에 이용된 국내 상향식 배출 목록은 실제 배출량에 비해 상대적으로 작게 산정되었을 가능성이 높다. 반대로, 계절관리제 기간 동안 국내 $PM_{2.5}$ 농도는 중국 배출량 보정 후에는 $2.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 정도 과대 모사되었다. 따라서, 계절관리제 기간 동안 실제 국내 배출량은 입력된 배출목록에 비해 낮아져야 할 것으로 추정된다. 이러한 모사 농도의 과소(BS3~BS1 기간) 및 과대(계절관리제 기간; S1~S5) 평가는 전체 대상 기간 동안 국내 배출량이 감소하였음을 시사한다.

3.3 국외 유입 배출영향 변화

대상 기간 동안 $PM_{2.5}$ 관측 농도의 변화에서 식 (8) 과 (9)에서 산정된 국내외 배출영향 변화는 BS1 기간 과 비교하여 모두 감소하였다(그림 6). 이러한 결과는 그림 3(c)에서 기상 영향 변화를 제외한 배출영향 변화가 BS1 기간 대비 BS3과 BS2 기간 동안 증가한 결과와는 대조를 이룬다. 이러한 차이의 주요한 원인 중 하나는 ‘배출영향’의 변화에는 배출량 변화와 함께 대기오염물질의 농도에 많은 영향을 미치는 기상 조건의 변화가 함께 반영되기 때문이다(Park *et al.*, 2024; Bae *et al.*, 2023a).

그림 3(c)의 기상 영향 변화 분석과 마찬가지로 BS1 기간을 기준으로 볼 때, 계절관리제 기간 동안 국

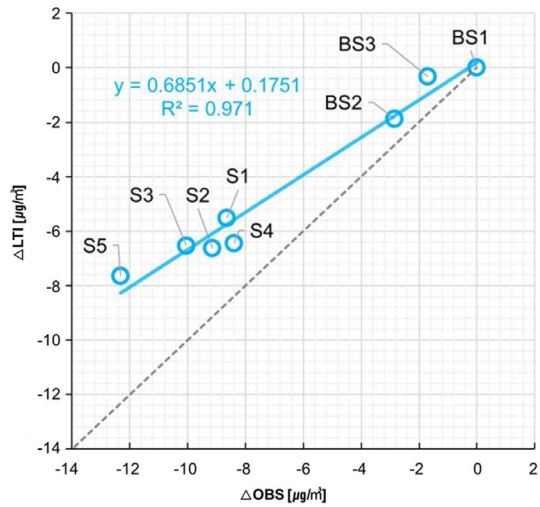


Fig. 7. Scatter plot of changes in observed $PM_{2.5}$ concentrations and changes in LTI from BS3 to S5 periods relative to BS1.

외 배출영향은 $5.5\sim 7.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (평균 $6.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 감소하였으며, 국내 배출영향은 $2.0\sim 4.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (평균 $3.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 감소하였다. 또한, BS 기간 대비 계절관리제 기간 평균 국외 배출영향과 국내 배출영향 감소는 각각 $5.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $2.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 였다. 이러한 결과로부터 계절관리제 기간 동안 배출영향의 감소 가운데 많은 부분이 국외 배출영향 감소에 의한 것으로 분석되었고, 이는 최근 중국의 배출 감소가 급격하고도 상당한 양으로 진행되었기 때문이다. Kim *et al.* (2024b)에 따르면 특히 중국의 NO_x 의 경우, 2019년 이후 배출량의 감소 폭이 이전 기간(2016~2018년)에 비해 약 3.5배 증가한 것으로 보고되었다. 또한 국내 유입지점에 해당하며 국내 배출영향이 적은 백령도의 S5 기간의 $PM_{2.5}$ 관측농도는 BS3 ($27.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$)과 비교하여 약 19% 감소한 $22.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이었고, 이는 중국 배출영향의 감소를 뒷받침한다. 계절관리제 기간 동안 국외 배출영향은 꾸준히 감소한 반면, 국내 배출영향의 경우 기간 별로 감소 폭이 달랐다.

이러한 결과는 분석에 이용된 방법에 따라 달라질 수 있으나, 국내 배출영향의 경우 기상 변화에 보다 민감하게 작용했으며, 이는 중국 등 국외 배출영향

감소에 비해 상대적으로 작은 폭으로 감소했기 때문으로 이해된다.

그림 7을 보면 국내 $PM_{2.5}$ 관측 농도는 계절관리제 기간 동안 큰 폭으로 낮아졌으며, 국외 배출영향 변화와도 상관성이 높았다. 대상 기간 동안 국내 $PM_{2.5}$ 관측 농도 변화와 중국 배출량을 보정한 모사에서 식 (8)에 의해 산정된 국외 배출영향 변화 간 선형 추세선의 기울기는 0.68이었다. 이러한 국내 $PM_{2.5}$ 관측 농도 변화와 국외 배출영향 변화 간의 관계를 이용하여 국내 배출영향 변화를 대략적으로 추정할 수 있다 (Bae *et al.*, 2022b). 예를 들어, BS 기간 대비 계절관리제 기간 평균 국내 $PM_{2.5}$ 관측 농도는 국외 배출영향 변화에 의해 $5.8 \mu\text{g}/\text{m}^3 (=8.2 \mu\text{g}/\text{m}^3 \times 0.68 - 0.18)$, 그 나머지에 해당하는 국내 배출영향 변화에 의해 $2.4 \mu\text{g}/\text{m}^3 (=8.2 \mu\text{g}/\text{m}^3 - 5.8 \mu\text{g}/\text{m}^3)$ 정도 감소한 것으로 추정된다. 다만, 그림 7에 보인 바와 같이 계절관리제 기간 동안 국내 $PM_{2.5}$ 관측 농도의 감소 폭은 BS1 기간 대비 $9.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 가장 컸고, BS2 기간 대비 $8.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 가장 작았다. 따라서 국내 배출영향 변화나 국외 배출영향 변화 폭은 기준 기간 설정에 따라 달라진다는 점을 분석 시 감안해야 한다.

3.4 시도별 $PM_{2.5}$ 농도 변화 요인

계절관리제 시행 이전 기간 (BS3~BS1) 대비 계절관리제 기간 (S1~S5) 동안 국내 평균 $PM_{2.5}$ 농도 변화를 정리하면 다음과 같다(그림 8). 그림 8(a)는 BS 대비 계절관리제 기간 동안 기상과 배출영향의 변화를 보인 것으로, BS 기간과 비교하여 계절관리제 기간 동안 기상 영향에 의해 국내 $PM_{2.5}$ 농도는 $1.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 증가한 것으로 풀이된다. 앞서 설명한 바와 같이 그림 8(a)의 기상 영향과 배출영향은 $PM_{2.5}$ 농도가 가장 높았던 BS1 기간과 대비하여 계산된 상대적인 값이다. 그림 8(b)에서 BS 기간 동안에는 국외와 국내 배출영향이 비슷하였으나, 계절관리제 기간 동안에는 국외 배출영향의 감소가 국내 배출영향 감소에 비해 2배가량 높다.

이러한 결과에서 1~5차 계절관리제 기간 동안 국내 $PM_{2.5}$ 관측 농도의 감소는 배출영향 감소에 의해

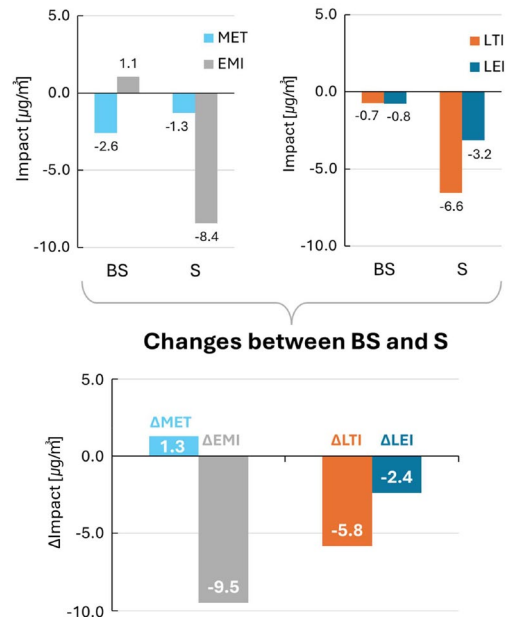


Fig. 8. The quantitative roles of main drives on changes in $PM_{2.5}$ concentrations (top) and their changes during BS to S periods in South Korea (bottom). 'MET' and 'EMI' represent the influences of meteorological conditions and emissions, respectively, estimated relative to those in BS1. Impacts of long-range transport (LTI) and local emissions (LEI) relative to BS1 were calculated with adjusted Chinese emissions.

주도되었고, 기상 영향은 BS 기간을 기준으로 볼 때, 계절관리제 기간 동안 $PM_{2.5}$ 농도를 증가시키는 방향으로 작용하였다. 그럼에도 불구하고 배출영향의 감소 폭이 기상 영향에 의한 농도 증가에 비해 월등히 높아 국내 $PM_{2.5}$ 농도 감소를 주도하였다(그림 8(c)). 이와는 별도로, 국내 평균 $PM_{2.5}$ 관측 농도 변화를 국외 배출영향과 국내 배출영향으로 나뉘보면, 국외 배출영향 변화가 국내 $PM_{2.5}$ 관측 농도 변화의 2/3 정도를 설명하였다. 한편, Seo *et al.* (2024)은 BS1 대비 S1~S4 기간 평균 국내 $PM_{2.5}$ 관측 농도 변화 가운데, 국내 배출영향 감소가 국외 배출영향 감소에 비해 큰 것으로 분석하였다. 이는 해당 연구의 경우 중국 배출량을 보정하지 않은 점과, 국외 배출영향의 계통오차 보정 시 BTH 대신 중국 전 지역에 대한 $PM_{2.5}$ 관측 농도와 모사 농도의 비를 이용한 점이 본 연구와 차별된다.

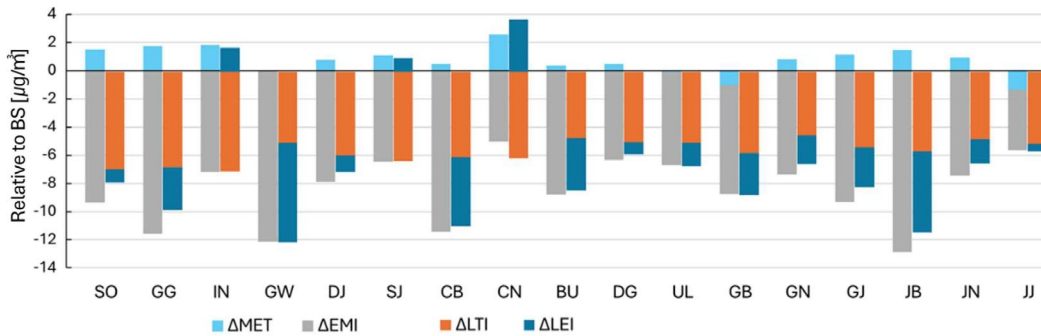


Fig. 9. Provincial changes in the impacts of meteorological conditions (MET), emissions (EMI), long-range transport (LTI), and local emissions (LEI) on PM_{2.5} concentrations during Seasonal PM management period (S1~S5) relative to BS period(SO: Seoul, GG: Gyeonggi, IN: Incheon, GW: Gangwon, DJ: Daejeon, SJ: Sejong, CB: Chungcheongbuk-do, CN: Chungcheongnam-do, BU: Busan, DG: Daegu, UL: Ulsan, GB: Gyeongsangbuk-do, GN: Gyeongsangnam-do, GJ: Gwangju, JB: Jeollabuk-do, JN: Jeollanam-do, JJ: Jeju).

그림 8의 분석을 국내 시도에 대해 수행하면(그림 9), BS 대비 S 기간 평균 국내 시도별 국외 배출영향은 4.5~7.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 사이에서 감소하였다. 이에 반해 국내 배출영향은 -7.7~0.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 범위에서 변화를 보이며 일부 시도에서는 증가하였다. 이러한 분석 결과는 기간별 측정소 수와 위치, 관측 농도 등에 따라 달라질 수 있으나, 시도별 국외 배출영향의 차이는 국내 배출영향의 차이에 비해 크지 않았다. 일부 시도에서 국내 배출영향 변화가 큰 이유로 측정소 증설 등이 포함될 수 있다. 대상 기간 동안 국내 배출영향은 대부분 감소하였으나, 시도별 변화 폭에서 큰 차이를 보이는 점에서, 향후 보다 면밀한 분석을 통해 세분화된 지역 맞춤형 대기질 대책 수립이 필요할 것으로 예상된다. 그림 8에서 국외 배출영향 변화와 국내 배출영향 변화의 합은 PM_{2.5} 관측 농도 변화를 의미한다. 따라서 대상 기간 동안 국내 PM_{2.5} 관측 농도의 감소 역시 시도별로 차이가 큰 것을 알 수 있다(4.9~13.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$). 대상 기간 동안 대부분의 시도에서 국외 배출영향의 변화가 국내 배출영향의 변화보다 컸으나, 반대로 국내 배출영향 변화가 컸던 지자체(예, 강원)도 볼 수 있다.

대상 기간 동안 기상 영향은 BS 기간과 비교하여 국내 PM_{2.5} 농도를 -1.4~2.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 사이에서 변화시켰으며, 제주와 경북 등을 제외하면 기상 영향은 이

전 기간 대비 계절관리제 기간 동안 PM_{2.5} 농도를 상승시키는 방향으로 작용하였다. 이전 기간 대비 S 기간 동안 시도별 배출영향은 4.3~12.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 범위에서 감소하였다. 따라서 이 기간 동안 국내 시도별 PM_{2.5} 관측 농도 감소 역시 배출영향 감소가 주도하였음을 확인할 수 있다. 그림 8에 제시된 국내 배출영향 변화와 국외 배출영향 변화의 합이 전체 배출영향 변화와 일치하지 않는 점은 향후 분석 방법의 보완을 통해 검토가 필요하다. 또한, 국내 배출량 변화를 대기질 모사에 직접 이용하여 국내 배출영향 변화를 산정할 수 있으나, 현재로서는 국내 배출량, 특히 시도별 배출량을 정확히 산정하는 것은 쉽지 않다(Kim *et al.*, 2022; Bae *et al.*, 2021; Kang *et al.*, 2021a; Kang *et al.*, 2021b; Kim *et al.*, 2021c, d, e; Kim *et al.*, 2019). 특히, 이러한 분석을 위해서는 대상 기간 동안 국내 대기질 정책과 사회적 여건 변화에 따른 배출량 변화 등이 모두 산정되어야 하나, 이러한 배출량 변화 산정에는 많은 시간과 노력이 필요하다.

4. 결 론

본 연구에서는 1~5차 계절관리제(S1~S5) 기간 동안 국내에서 관측된 PM_{2.5} 농도 감소의 원인을 분석

하기 위하여 이전 동기간(BS3~BS1)을 포함하여 관측 자료와 대기질 모사를 이용하였다. S1~S5 기간 동안 국내 PM_{2.5} 관측 농도는 BS1 대비 9.7 µg/m³ 감소하였으며, BS3~BS1 기간 대비로는 8.2 µg/m³ 감소하였다. 대상 기간 중 국내 PM_{2.5} 관측 농도가 가장 높았던 BS1 기간을 기준으로, 기상 영향 변화는 국내 PM_{2.5} 농도를 S1~S5 기간 동안 1.3 µg/m³가량 낮추었다. 다만, BS3~BS1 기간과 비교할 경우 기상 영향 변화는 대상 기간 동안 국내 PM_{2.5} 농도를 1.3 µg/m³ 증가시켰다. 5차 계절관리제의 경우 다른 기간에 비해 기상 조건이 호전되었으나, 장·단기적인 기상 여건은 국내 PM_{2.5} 농도를 다시 상승시키는 조건으로 전환될 수 있다.

배출영향 변화는 동기간 동안 BS 대비 9.5 µg/m³, BS3~BS1 대비 8.4 µg/m³ 감소하였다. 따라서 S1~S5 기간 동안 국내 PM_{2.5} 농도는 배출영향 감소에 의해 주도되었다. S1~S5 기간 동안 국외 배출영향과 국내 배출영향은 BS1 대비하여 각각 6.6, 3.2 µg/m³ 감소하였으며, BS3~BS1 대비해서는 5.8, 2.4 µg/m³ 감소하였다. 최근까지 중국에서는 배출량 감소에 의해 PM_{2.5} 농도는 지속적으로 감소되었으나, 향후 중국의 PM_{2.5} 농도 개선 속도는 점차 둔화될 것으로 예상된다. 따라서 국외 배출영향이 중요하게 작용하는 국내에서의 PM_{2.5} 농도 감소세 역시 둔화가 예상된다. 이러한 점에서 향후 국내 PM_{2.5} 농도 개선을 위한 적극적인 국내 배출 관리 등 대책 수립이 요구된다.

본 연구에서는 국내 PM_{2.5} 관측 농도 변화의 원인을 분석하기 앞서 중국 등 국외 지역에 대해 산정된 상향식 배출량을 지표 관측 자료를 이용하여 보정하였다. 이러한 접근은 국내 배출량을 직접적으로 현실적인 수준으로 보정하고, 이를 직접 이용하여 국내 배출영향 분석이 가능하나, 국내의 경우 그림 9와 같이 배출영향의 지역적인 변화가 심한 문제점이 있다. 또한 국지 배출영향에 의한 비선형적인 PM_{2.5} 생성과 제거 과정 등이 모두 고려되어야 하며, 국내 배출량의 불확도를 단시일 내에 파악하기 쉽지 않다. 그러나 향후 국내 배출량 변화에 따른 국내 대기질 변화

를 예측하고, 올바른 대책 마련을 위해서는 대기 중 농도 수준과 변화를 설명할 수 있는 배출량이 도출될 수 있도록 배출량 산정 단계를 장·단기적으로 보완하는 것이 바람직해 보인다. 마지막으로 본 연구에서 도출된 결과 역시 많은 불확실성이 내재되어 있으므로, 다양한 접근을 통해 이러한 제한점을 줄여 나가는 것이 필요하다.

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, E., Kim, B.-U., Kim, H.C., Woo, J.-H., Moon, K.-J., Shin, H.-J., Song, I.H., Kim, S. (2017) Impact of Emission Inventory Choices on PM₁₀ Forecast Accuracy and Contributions in the Seoul Metropolitan Area, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 33(5), 497-514. <https://doi.org/10.5572/kosae.2017.33.5.497>
- Bae, C., Kim, H.C., Kim, B.-U., Kim, Y., Woo, J.-H., Kim, S. (2020) Updating Chinese SO₂ emissions with surface observations for regional air-quality modeling over East Asia, *Atmospheric Environment*, 228. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2020.117416>
- 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., Kim, B.-U., Kim, H.C., Woo, J.H., 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, 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. <https://doi.org/10.5572/kosae>.

- 2021.37.3.466
- 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. <https://doi.org/10.5572/kosae.2022.38.4.624>
- 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 Atmospheric Environment*, 38(4), 610-623. <https://doi.org/10.5572/kosae.2022.38.4.610>
- 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. <https://doi.org/10.5572/kosae.2023.39.1.9>
- Byun, D., Schere, K.L. (2006) Review of the Governing Equations, Computational Algorithms, and Other Components of the Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System, *Applied Mechanics Reviews*, 59(2). <https://doi.org/10.1115/1.2128636>
- Chen, T.-F., Chang, K.-H., Liu, W.-Y., Chen, Y.-C. (2021) Impact of meteorology and emission on atmospheric PM_{2.5} - Using observed concentrations to reduce simulation uncertainty, *Atmospheric Environment*, 261. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2021.118610>
- Deroubaix, A.M., Brasseur, G.P., Andrade, M.d.F., Peralta, A., Franke, P., Gavidia-Calderon, M., Hoelzemann, J.J., Jiang, F., Labuhn, I., Menut, L., Rosário, N., Siour, G., Ynoue, R.Y. (2024) Air quality forecasts with observation-based scaling of anthropogenic emissions for urban agglomerations, *Atmospheric Sciences* <https://doi.org/10.22541/essoar.171352084.46269313/v1>
- 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>
- Jang, Y.-K., Kim, S.-T., Woo, J.-H. (2023) Review of Emission Inventory in Korea and Direction for Improvement, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 39(5), 775-795. <https://doi.org/10.5572/kosae.2023.39.5.775>
- Jeong, J.I., Park, R.J., Song, C.-K., Yeh, S.-W., Woo, J.-H. (2024a) Quantitative analysis of winter PM_{2.5} reduction in South Korea, 2019/20 to 2021/22: Contributions of meteorology and emissions, *Science of The Total Environment*, 907. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.168179>
- Jeong, S., Kang, Y.-H., Kim, E., Kim, S. (2024b) Role of air stagnation in determining daily average PM_{2.5} concentrations in areas with significant impact of long-range transport, *Atmospheric Pollution Research*, 15(7). <https://doi.org/10.1016/j.apr.2024.102147>
- Jeong, S., Kim, E., Kang, Y.-H., Kim, S. (2023) Top-down Emissions of CO, SO₂, NO_x, PM_{2.5}, and PM₁₀ in China and Korea Based on Ground Observations during 2020-2023, proceeding of the 66th meeting of KOSAE, 134.
- Kang, Y.-H., Kim, E., Kim, S. (2024) Adjusting Chinese Elemental Carbon Emissions and Estimating their Impacts on Ambient Concentrations in South Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 40(2), 193-208. <https://doi.org/10.5572/kosae.2024.40.2.193>
- 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., Kim, E., Bae, M., Son, K., Kim, S. (2021) Local Authority-Level Source Apportionments of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (VIII) Busan and Gyeongnam, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 37(6), 871-890. <https://doi.org/10.5572/kosae.2021.37.6.871>
- 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. <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>
- Kim, E., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2021a) 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.envint.2023.108069>

- org/10.1016/j.envpol.2021.116428
- 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 North-east Asia, *Environmental Pollution*, 268(Pt A), 115794. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2020.115794>
- Kim, E., Kim, B.U., Kang, Y.H., Kim, H.C., Kim, S. (2023) 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, TROPO-MI 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, NO_x, and SO₂ emissions in China and South Korea, *Science of The Total Environment*, 907, 167-178. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.167818>
- 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., 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. <https://doi.org/10.5572/kosae.2021.37.2.292>
- Kim, H.C., Kim, E., Bae, C., Cho, J.H., Kim, B.-U., Kim, S. (2017) 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, S., Son, K., You, S., Bae, M., Kang, Y.-H., Kim, E., Kim, S. (2022) Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (IX) Gyeongsangbuk-do, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 38(2), 237-257. <https://doi.org/10.5572/kosae.2022.38.2.237>
- Kim, S., You, S., Kang, Y.-H., Kim, E., Bae, M., Son, K., Kim, Y., Kim, B.-U., Kim, H.C. (2021d) 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, S., You, S., Kim, E., Kang, Y.-H., Bae, M., Son, K. (2021e) Municipality-Level Source Apportionment of PM_{2.5} Concentrations based on the CAPSS 2016: (III) Jeollanamdo, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 37(2), 206-230.
- Korea Ministry of Environment (KMOE) (2021) https://www.airkorea.or.kr/portal/web/board/7/1480/?pMENU_NO=161&searchType=ALL&searchWord=%EA%B3%84%EC%A0%88%EA%B4%80%EB%A6%AC%EC%A0%9C&page=3 (accessed on June 4, 2024).
- Korea Ministry of Environment (KMOE) (2022) https://www.airkorea.or.kr/portal/web/board/7/1531/?pMENU_NO=161&page=3 (accessed on June 4, 2024).
- Korea Ministry of Environment (KMOE) (2023) https://www.airkorea.or.kr/portal/web/board/7/1761/?pMENU_NO=161&page=1 (accessed on June 4, 2024).
- Korea Ministry of Environment (KMOE) (2024a) https://www.airkorea.or.kr/portal/web/contents/contentView/?pMENU_NO=142 (accessed on May 23, 2024).
- Korea Ministry of Environment (KMOE) (2024b) https://www.airkorea.or.kr/portal/web/board/7/6052/?pMENU_NO=161 (accessed on June 4, 2024).
- Lee, H.M., Choi, E., Kim, Y.P., Soyol-Erdene, T.O., Natsagdorj, A., Wu, Z., Song, M., Kim, C., Jang, K.S., Ahn, J., Matsuki, A., Torabi, E., Woo, J.H., Jung, C.H., Lee, J.Y. (2024) Improvement of the anthropogenic emission rate estimate in Ulaanbaatar, Mongolia, for 2020-21 winter, *Environmental Pollution*, 349, 123870. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2024.123870>
- Li, H., Zheng, B., Ciais, P., Boersma, K.F., Riess, T., Martin, R.V., Broquet, G., van der A.R., 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>
- Luo, X., Tang, X., Wang, H., Kong, L., Wu, H., Wang, W., Song, Y., Luo, H., Wang, Y., Zhu, J., Wang, Z. (2023) Investigating the Changes in Air Pollutant Emissions over the Beijing-Tianjin-Hebei Region in February from 2014 to 2019 through an Inverse Emission Method, *Advances in Atmospheric Sciences*, 40(4), 601-618.

- <https://doi.org/10.1007/s00376-022-2039-9>
- Moon, J., Choi, Y., Jeon, W., Kim, H.C., Pouyaei, A., Jung, J., Pan, S., Kim, S., Kim, C.-H., Bak, J., Yoo, J.-W., Park, J., Kim, D. (2024) Hybrid IFDMB/4D-Var inverse modeling to constrain the spatiotemporal distribution of CO and NO₂ emissions using the CMAQ adjoint model, *Atmospheric Environment*, 327. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2024.120490>
- Nam, K.-p., Lee, H.-s., Lee, J.-j., Park, H.-j., Choi, J.-y., Lee, D.-g. (2019) A Study on the Method of Calculation of Domestic and Foreign Contribution on PM_{2.5} using Brute-Force Method, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 35(1), 86-96. <https://doi.org/10.5572/kosae.2019.35.1.086>
- National Air Emission Inventory and Research Center (NAIR) (2023) National Air Pollutants Emission 2021.
- Park, J., Kim, E., Kang, Y.-H., Kim, S. (2024) Assessment of Provincial Air Quality based on Air Quality Index during 2016~2022, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 40(2), 225-241. <https://doi.org/10.5572/kosae.2024.40.2.225>
- Park, S.-K., Kim, H.-C., Kim, J.-H., Oh, H. S., Kim, S., Yoo, C., Bae, C. (2023) A Study on Estimating the Contributions by Emission Source Sector and Province Based on CAMx-PSAT for the Region-Specific Analysis of the Causes of High PM_{2.5} Concentrations. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 39(5), 842-865. <https://doi.org/10.5572/kosae.2023.39.5.842>
- 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>
- Seo, J., Kang, Y.-H., Kim, E., Jeong, S., Kim, J., Kim, S. (2024) Changes in Domestic Emissions Impact on Provincial PM_{2.5} and NO₂ Concentrations during the 1st to 4th Seasonal PM Management Periods, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 40(2), 242-262. <https://doi.org/10.5572/kosae.2024.40.2.242>
- Seoul Institute (SI) (2023) Evaluation of the Forth Seasonal Particulate Matter Management System in Seoul, Korea, Issue Paper, 2023-OR-13.
- Skamarock, W.C., Klemp, J.B. (2008) A time-split nonhydrostatic atmospheric model for weather research and forecasting applications, *Journal of Computational Physics*, 227(7), 3465-3485. <https://doi.org/10.1016/j.jcp.2007.01.037>
- Wu, H., Kong, L., Tang, X., Zhu, L., Zhu, J., Wang, Z. (2023) Air Quality Forecasting with Inversely Updated Emissions for China, *Environmental Science & Technology Letters*, 10(8), 655-661. <https://doi.org/10.1021/acs.estlett.3c00266>
- 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 Physics*, 18(19), 14095-14111. <https://doi.org/10.5194/acp-18-14095-2018>
- Zheng, H., Chang, X., Wang, S., Li, S., Zhao, B., Dong, Z., Ding, D., Jiang, Y., Huang, G., Huang, C., An, J., Zhou, M., Qiao, L., Xing, J. (2023) Sources of Organic Aerosol in China from 2005 to 2019: A Modeling Analysis, *Environmental Science & Technology*, 57(14), 5957-5966. <https://doi.org/10.1021/acs.est.2c08315>

Authors Information

- 강윤희 (아주대학교 환경연구소 연구교수)
(ykang@ajou.ac.kr)
- 김은혜 (아주대학교 환경연구소 연구교수)
(kiesloveeh@ajou.ac.kr)
- 정성은 (아주대학교 환경공학과 석사과정)
(atmos1214@ajou.ac.kr)
- 박준홍 (아주대학교 환경공학과 석사과정)
(wnsgmd1116@ajou.ac.kr)
- 손채원 (아주대학교 환경공학과 석사과정)
(scwsky@ajou.ac.kr)
- 김순태 (아주대학교 환경안전공학과 교수)
(soontaekim@ajou.ac.kr)

Supplementary Materials

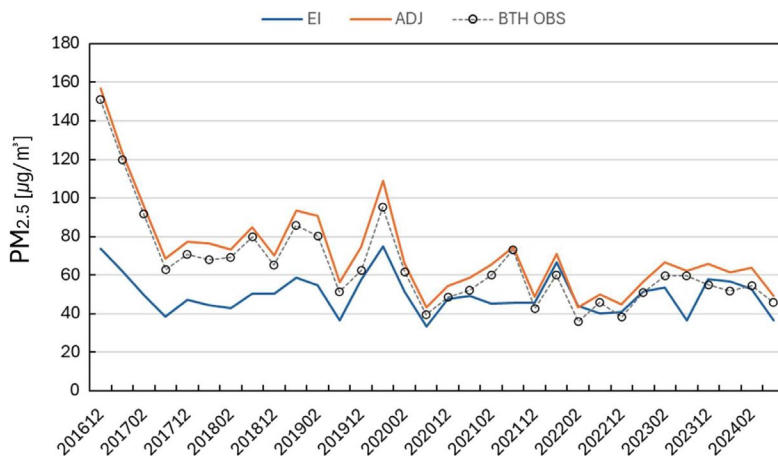


Fig. S1. Time series of observed and simulated monthly mean $PM_{2.5}$ concentrations in BTH. EI and ADJ represents simulated $PM_{2.5}$ concentrations using emissions inventory and after Chinese emissions adjustment, respectively.

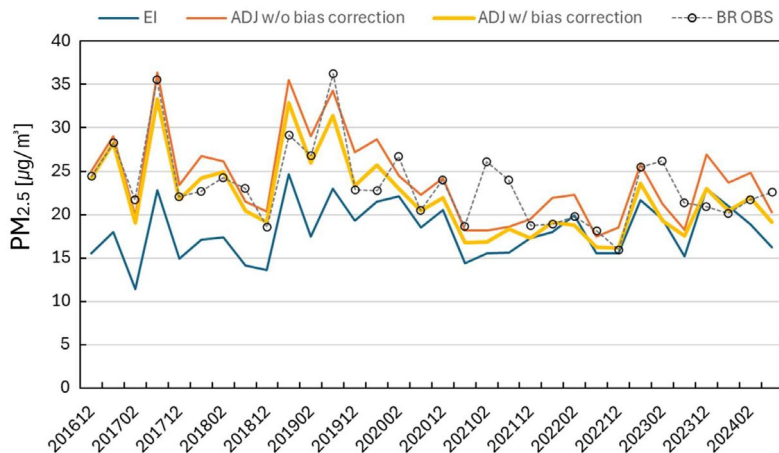


Fig. S2. Time series of observed and simulated monthly mean $PM_{2.5}$ concentrations in BR. EI and ADJ represents simulated $PM_{2.5}$ concentrations using emissions inventory and after Chinese emissions adjustment, respectively. Application of systematic bias correction was compared.

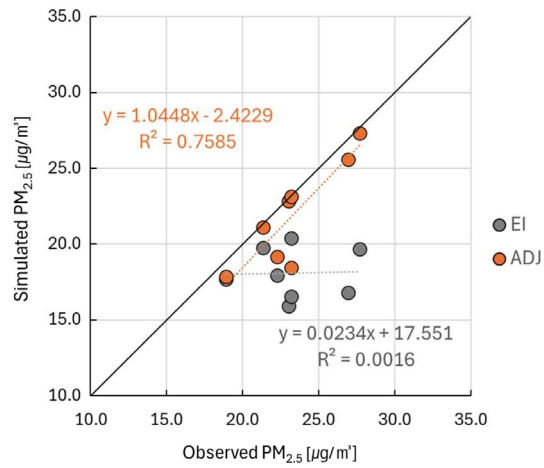


Fig. S3. Scatter plot of simulated vs. observed PM_{2.5} concentrations before ('EI') and after Chinese emissions adjustment ('ADJ') at the Baengnyeong supersite during the BS3 to S5 periods. Systematic bias correction was applied in ADJ.