

논문

중국 NH₃ 배출량의 변동이 남한 PM_{2.5} 농도 및 전구물질 전환율에 미치는 영향

Impacts of Chinese NH₃ Emission Variations on PM_{2.5} Concentrations and Precursor Conversion Rates in South Korea

최현식¹⁾, 전원배^{1),2),*}, 김우진²⁾, 양채영¹⁾, 허민¹⁾

¹⁾부산대학교 지구환경시스템학부, ²⁾부산대학교 대기환경과학과

Hyeonsik Choe¹⁾, Wonbae Jeon^{1),2),*}, WooJin Kim²⁾,
Chae-Yeong Yang¹⁾, Min Heo¹⁾

¹⁾Division of Earth and Atmospheric Sciences, Pusan National University, Busan, Republic of Korea

²⁾Department of Atmospheric Sciences, Pusan National University, Busan, Republic of Korea

접수일 2025년 8월 4일
수정일 2025년 8월 25일
채택일 2025년 8월 26일

Received 4 August 2025
Revised 25 August 2025
Accepted 26 August 2025

*Corresponding author
Tel: +82-(0)51-510-2714
E-mail: wbjeon@pusan.ac.kr

Abstract This study investigates the impact of variations in Chinese NH₃ emissions on South Korean air quality using the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model. We conducted spring and summer simulations for two scenarios: a Default case and an Enhanced case, in which Chinese NH₃ emissions were increased by 75.7% relative to the Default case. Under the Enhanced case, spring PM_{2.5} increased by an average of 2.0 μg/m³ inland and 3.0 μg/m³ over adjacent seas, with maximum increases of 5.9 and 7.6 μg/m³, respectively. These changes were mainly driven by higher NO₃⁻ and NH₄⁺ levels. In summer, PM_{2.5} increases were smaller (0.2 μg/m³ inland and 0.7 μg/m³ over the ocean on average) with lower contributions from NO₃⁻ and NH₄⁺. Although NH₃ emissions increased more in summer, the resulting changes in PM_{2.5} concentrations were smaller than in spring. This is because summer circulation inhibited the transport of NO₃⁻ and NH₄⁺ formed in China, and the relatively high summer temperatures reduced NO₃⁻ stability, converting it to HNO₃ and NH₃. Furthermore, changes in NH₃ emissions in China affected precursor conversion rates such as Nitrogen Oxidation Rate (NOR), Ammonium Formation Rate (NHR) and Sulfur Oxidation Rate (SOR) in the atmosphere over South Korea. NOR increased mainly over marine areas, while NHR showed mixed responses, decreasing over oceans due to NH₃ regeneration. These findings highlight the transboundary influence of NH₃ emission changes and its seasonally distinct effects on PM_{2.5} composition and precursor conversion over South Korea.

Key words: NH₃, PM_{2.5}, Emissions, CMAQ, Air quality

1. 서론

초미세먼지 (PM_{2.5})는 입경이 2.5 μm 이하인 입자로, 대기 중에서 직접 배출되거나 혹은 가스상 물질의 화학반응을 통해 이차적으로 생성되는 복합적인 에어로졸 형태의 유해 대기오염물질이다. 이러한 미세한 입자는 호흡기를 통해 폐포 깊숙이 침투할 수 있으며, 호흡기 및 심혈관계 질환을 유발하고 조기 사망 위험

을 높이는 등 공중보건 및 사회·경제 전반에 심각한 악영향을 미치는 것으로 알려져 있다(Liu *et al.*, 2018; Jeon *et al.*, 2015; Erismann and Schaap, 2004). PM_{2.5}를 구성하는 주요 성분으로는 유기물질(Organic Matter, OM), 흑색 탄소(Black Carbon, BC) 등이 있으며, 그 중 질산염(NO₃⁻), 황산염(SO₄²⁻), 암모늄염(NH₄⁺), 3개의 무기 에어로졸(Sulfate, Nitrate, Ammonium, SNA)은 동아시아 지역의 PM_{2.5} 농도 관리를 위한 핵

심 성분으로 평가된다(Cao *et al.*, 2017; Kai *et al.*, 2007).

이러한 무기 에어로졸은 가스상 대기오염물질 간의 대기 중 반응을 통해 생성되며, 이 중 암모니아(NH₃)는 이산화질소(NO₂), 이산화황(SO₂) 등과의 반응을 통해 2차 무기 에어로졸 형성에 중요한 역할을 한다. 그동안에는 NO₂와 SO₂의 유해성에 따라 이들 물질에 대한 정책적 관심과 배출량 관리가 우선되어 왔으나, 최근 연구에 따르면 NO₂ 및 SO₂의 농도가 지속적으로 감소함에 따라 NH₃ 배출 제어가 PM_{2.5} 농도 저감을 위한 핵심 요소로 부각되고 있다(Huang *et al.*, 2024; Gu *et al.*, 2021). Pinder *et al.* (2007)은 NO₂, SO₂, NH₃의 감축에 따른 PM_{2.5} 농도 감소 효과를 비용 관점에서 비교한 바 있으며, 계절에 따라 경향 차이는 있으나 NH₃ 감축이 가장 효율적인 수단으로 평가되었다. 또한 Park *et al.* (2021)은 남한의 고농도 PM_{2.5} 사례에서 NH₃의 기여가 NO₂나 SO₂에 비해 뚜렷하게 증가하고 있음을 보고한 바 있다.

그러나 이러한 배경에도 불구하고, NH₃ 배출량의 저감 및 인벤토리 관리 수준은 여전히 NO₂나 SO₂에 비해 미흡한 실정이다. 특히 동아시아에 위치한 중국은 전 세계 NH₃ 배출량의 약 26.42%를 차지하는 대표적인 배출국임에도 불구하고, 최근 10년간 NH₃ 배출량은 3.99% 감소하는 데 그쳤으며, 같은 기간 NO_x (22.1%) 및 SO₂ (68.7%)에 비해 현저히 낮은 감축률을 보이고 있다(Crippa *et al.*, 2023). 중국의 NH₃ 배출량은 상당한 불확실성을 가지고 있으며(Chen *et al.*, 2023; Dong *et al.*, 2010) Zhang *et al.* (2017)은 2000년부터 2015년까지의 중국 배출량을 Mass balance 기법으로 재산정하였을 때 기존의 인벤토리가 NH₃ 배출량을 40%가량 과소 모의할 수 있음을 언급한 바 있다. 또한, Liu *et al.* (2022)은 Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI)와 Geostationary Interferometric Infrared Sounder (GIIRS, FY-4A) 위성 자료를 활용하여 2008년부터 2019년까지의 중국 NH₃ 배출량을 재산정하였으며, 분석 결과 2019년의 중국 NH₃ 배출량이 기존에 비하여 75.7% 높게 산정될 수 있음

을 보고하였다. 이는 중국에서의 NH₃ 배출량이 실제보다 낮게 산정되어 있을 가능성을 시사하며, 나아가 중국 배출이 풍하 지역인 남한에 미치는 영향 또한 충분히 반영되지 못했을 수 있음을 의미한다.

중국이 위치한 동아시아는 여러 국가가 인접해 있으며, 해양을 통한 활발한 무역 활동으로 인한 인위적 배출량이 대기질에 미치는 영향이 크게 나타나는 지역이다(Park *et al.*, 2024; Jeon *et al.*, 2021; Oh *et al.*, 2015; Kaneyasu *et al.*, 2014). 특히, 동아시아 지역의 대기오염물질은 계절별 대기 순환에 따라 주변 지역으로 수송되며, 이로 인해 인접 국가들이 겪는 미세먼지 오염의 국외 기여율 또한 계절에 따라 상이하게 나타날 수 있다. Kim *et al.* (2017)은 2014년 남한 수도권의 PM_{2.5} 농도에 대한 국외 배출원의 기여율이 여름철에는 약 45%였으나, 봄철에는 70% 이상으로 증가하였고 보고하였으며, Bae *et al.* (2019)은 2012년부터 2016년까지의 분석을 통해, 봄철 남한의 NO₃⁻ 중 약 67%가 중국에서 유입된 NO_x에 기인한다고 밝힌 바 있다.

Kim *et al.* (2021)에서 중국과 남한의 NH₃ 배출 변동이 남한 PM_{2.5} 농도에 미치는 영향을 평가한 바 있으나, CMAQ에서의 메커니즘에 대한 분석은 시행되지 않았다. 이에, 본 연구에서는 중국 배출량 변화가 남한 PM_{2.5} 농도의 계절별 변동에 미치는 영향을 평가하기 위해 대기질 수치 모델인 Community Multi-scale Air Quality (CMAQ)를 활용한 민감도 실험과 함께 Integrated Process Rate (IPR) 분석 및 전구물질 전환율 분석을 수행하였다(Appel *et al.*, 2021). 봄과 여름 두 계절을 대상으로 수치모델링을 진행하였으며, Liu *et al.* (2022)에서 제기한 중국 NH₃ 배출량의 과소 모의 가능성을 근거로 배출량 증가 시나리오를 설계하였다. 이렇게 수행된 수치 모의 결과를 서로 비교하였으며, 이를 통해 Kim *et al.* (2021)에서 나타난 PM_{2.5} 농도 변화의 계절적 차이가 어떠한 핵심 과정으로 인하여 나타나는지 분석하고, 중국 NH₃ 배출량의 변동이 남한 대기질에 미치는 영향을 정량적으로 규명하고자 하였다.

2. 자료 및 방법

2.1 모델링 시스템

중국 암모니아 배출량의 불확실성이 대기질에 미치는 영향을 분석하기 위하여 CMAQ을 활용한 대기질 수치 모의를 수행하였다. CMAQ은 미국 환경보호청 (United States Environmental Protection Agency, EPA) 에서 개발한 3차원 광화학 수송모델로, 기상 및 대기질 데이터를 통합하여 대기 오염물질의 생성, 소멸, 이동 과정을 정밀하게 묘사할 수 있는 도구이다. 본 연구에서는 동아시아에서의 기상과 대기질 모의를 위해 중국 동부, 황해, 남한을 포함하는 15 km 격자 해상도의 도메인을 설정하였으며, 분석영역 안에 위치한 국가와 바다의 위치를 그림 1에 표시하였다.

대기질 수치 모의 시 단일 도메인이 가지는 불확실성을 줄이기 위하여 CMAQ HEMI sphere 모델링 결과를 초기 및 경계 조건으로 적용하였다(U.S. EPA, 2018). CMAQ HEMI sphere는 북반구 전체를 대상으로 한 대규모 수치 모의 결과를 제공하며, 이를 통해 초기 및 경계 조건의 영향을 최소화하고 모의 정확도를 향상시킬 수 있는 것으로 알려져 있다(Appel *et al.*, 2021; Mathur *et al.*, 2017). CMAQ에 사용된 배출량 자료는 Emissions Database for Global Atmospheric Res-

earch Hemispheric Transport of Air Pollution version 3 (EDGAR HTAP v3) 인벤토리를 기반으로 한 인위적 배출량과 Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN) v2.1 (Guenther *et al.*, 2012) 모델을 통해 산출된 자연적 배출량을 활용하였다. EDGAR HTAP v3 배출량은 유럽에서 제공하는 전 지구 배출량 인벤토리로 높은 해상도와 대기질에 관여하는 7개의 배출물질의 공간적, 시간적 배출량을 제공함으로써 높은 수준의 대기질 수치 모의에 폭넓게 활용되고 있는 자료이다(Crippa *et al.*, 2023). 또한 MEGAN v2.1 모델을 활용한 자연적 배출량은 CMAQ 수치 모의에 폭넓게 활용되고 있으며, 이는 CMAQ 5.4 이전 버전에서의 자연적 배출량에 의한 대기질의 영향을 평가하는 데 도움을 줄 수 있다. 추가적으로 CMAQ의 IPR 모듈을 활용하였으며, 이를 통해 각 성분의 생성-소멸 메커니즘을 분석하고자 하였다. IPR은 CMAQ의 핵심 분석 기능으로, 대기 중 오염물질 농도 변화에 기여하는 각 화학적·물리적 과정을 정량적으로 평가할 수 있는 도구이다(Jeon *et al.*, 2021; Li *et al.*, 2014). CMAQ 수치 모의 및 IPR 분석을 위해 사용된 기체 및 에어로졸 메커니즘은 CB6r3와 AERO7을 적용하였다.

CMAQ의 기상 입력자료를 생성하기 위해 중규모

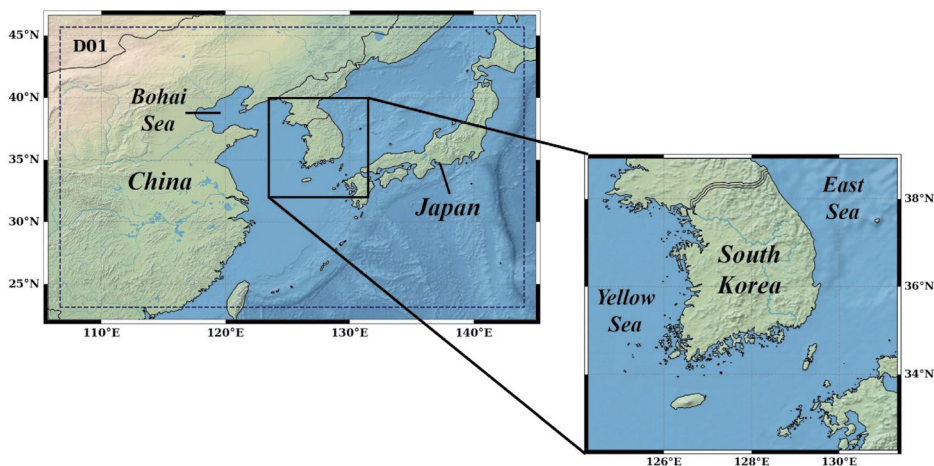


Fig. 1. Simulation domain of CMAQ (D01) covering East Asia, with an enlarged area centered on the Korean Peninsula for analysis.

Table 1. Model configurations and simulation settings for WRF v4.1.1 and CMAQ v5.3.2 used in the study.

Model version	WRF v4.1 + CMAQ v5.3.2
Horizontal resolution	15 km
Number of grids	262 × 190
Vertical layers	15 layers
Reanalysis data	ERA v5
Microphysics	WSM 3-class scheme
PBL	YSU scheme
CMAQ boundary & initial condition	CMAQ Hemi sphere 2015
Emission data	EDGAR HTAP v3 + MEGAN v 2.1
Chemical mechanism	Cb6r3_ae_7_aq
Time period	2019. 02. 26. 00 UTC~2019. 04. 05. 00 UTC (spring) 2019. 05. 26. 00 UTC~2019. 07. 05. 00 UTC (summer)

기상 모델인 Weather Research and Forecasting (WRF) v4.1.1 (Skamarock *et al.*, 2019)을 활용하였으며, WRF 모델의 초기 및 경계 조건은 European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF)의 ERA 5 재분석 자료 (Hersbach *et al.*, 2020)를 기반으로 하였다. 기상 수치 시뮬레이션의 모의 정확도를 높이기 위해 격자 넷징 기법을 적용하였으며 (Souri *et al.*, 2017; Jeon *et al.*, 2015), 대기질 및 기상 수치 시뮬레이션에 활용된 세부설정은 표 1에 나타났다.

2.2 실험 설계

동아시아는 계절에 따른 기류 변화와 인위적 대기 오염물질 배출량의 변동이 뚜렷하게 나타나는 지역이다. 이 지역의 풍계는 고기압과 저기압의 계절적 분포에 따라 달라지며, 일반적으로 봄철에는 대륙성 고기압의 영향으로 북서풍이 우세하고, 여름철에는 해양성 고기압의 확장으로 인해 남풍 계열의 바람이 주로 형성된다. 한편, NH₃ 배출량 역시 계절에 따라 변화를 보이는데, 중국의 NH₃ 배출량 중 약 80%는 농업 및 축산 활동에서 기인하며, 이러한 배출 특징과 기온 상승에 따라 기화가 촉진되는 NH₃의 화학적 특성에 의해 여름철의 배출량은 다른 계절에 비해 50% 이상 높은 수준을 보인다 (Chen *et al.*, 2023). 이러한 계절적 배출 특성과 기류 차이를 반영하여, 본 연구에서는 봄철(3월)과 여름철(6월)을 모의 기간으로 선정하였다. 봄철은 NH₃ 배출량이 상대적으로 적지만, 북서풍의

영향으로 중국에서 발생한 오염물질이 효율적으로 남한으로 유입될 수 있어 기류에 따른 수송 영향이 크게 작용할 수 있다. 반면, 여름철은 절대적인 NH₃ 배출량이 많아, 동일한 비율로 배출량이 변화하였음에도, 더 큰 영향을 보일 수 있다.

본 연구에서는 Liu *et al.* (2022)에서 제시한 수치를 바탕으로 민감도 실험을 설계하였다. EDGAR_HTAP v3 배출량 인벤토리를 활용한 Default case와 NH₃ 배출량을 75.7% 증가시킨 Enhanced case 두 개의 배출량 데이터를 만들었으며, 배출량 증가는 중국 지역에만 적용하여, 풍상 지역에서의 배출량 변화가 풍하 지역의 PM_{2.5} 농도에 미치는 영향을 분석하고자 하였다.

모의 기간은 각 계절의 대표성을 확보하기 위해 한 달 동안 진행되었다. 봄철 시뮬레이션은 2019년 2월 25일 00 UTC부터 4월 3일 00 UTC까지 수행되었으며, 여름철 시뮬레이션은 5월 27일 00 UTC부터 7월 3일 00 UTC까지 수행되었다. 초기 조건의 영향을 최소화하기 위해 각 실험의 첫 4일을 spin-up 기간으로 설정하여 분석에서 제외하였으며, 최종적으로 3월(3월 1일 00 UTC~4월 1일 00 UTC)과 6월(6월 1일 00 UTC~7월 1일 00 UTC)의 결과를 활용하였다.

2.3 전구물질 전환율 산정

본 연구에서는 배출량 변화에 의한 PM_{2.5} 농도 변화뿐만 아니라 가스상 대기오염물질의 전환율 변화를 추가적으로 분석하였다. 전구물질 전환율은 대기 중

가스상 전구물질이 광화학 반응 등을 통해 산화되어 2차 생성물로 전환되는 정도를 나타내는 지표로, 대기질의 변화 과정을 정량적으로 이해하는 데 활용된다. Kang and Kim (2022)에 따르면, 전구물질 전환율은 대기오염물질의 생성 과정뿐만 아니라 주요 오염원의 영향 분석, 배출량 저감 정책의 효과 평가 등 다양한 분야에서 유용하게 사용될 수 있으며, 전환율의 변화는 대기질 관리 전략 수립에 중요한 정보를 제공한다.

서론에서 언급한 바와 같이 동아시아 영역의 PM_{2.5}는 상대적으로 높은 SNA 비율을 보이며, 이는 해당 영역에서의 PM_{2.5} 농도 특성을 이해하기 위해 산화 반응의 정량적 분석이 필요함을 시사한다 (Qiu *et al.*, 2023). NO₃⁻, SO₄²⁻, NH₄⁺의 형성 과정을 각각 정량적으로 분석하기 위해, Nitrogen Oxidation Rate (NOR), Sulfur Oxidation Rate (SOR), Ammonium Formation Rate (NHR)을 산정하였으며, 이에 대한 정의는 식 (1)~(3)에 제시하였다 (Fang *et al.*, 2017; Liu *et al.*, 2015). 여기서 n 은 각 화학종의 몰수를 의미하며, 대괄호 ([])는 해당 종의 농도를 나타낸다. 일반적으로 SOR이 0.25를 넘거나 NOR이 0.1을 넘을 경우 SO₂ 또는 NO_x의 상당 부분이 산화되어 각각 SO₄²⁻ 또는 NO₃⁻으로 전환되었음을 나타내며 (Li *et al.*, 2016), SOR과 NOR이 PM_{2.5} 농도와 양의 상관관계를 갖는다는 점 또한 선행 연구를 통해 밝혀진 바 있다 (Wang *et al.*, 2021). 한편, NHR은 NH₃가 NH₄⁺로 전환된 비율을 나타내는 지표로, 국지적 배출과 장거리 수송의 복합적 영향을 반영하며, 배출원에서 멀어질수록 NH₃와 NH₄⁺의 농도는 평형에 가까워지는 경향을 보인다 (Meng *et al.*, 2018). Park *et al.* (2021)은 NHR이 높을수록 PM_{2.5} 및 SNA 농도가 기하급수적으로 증가한다고 보고한 바가 있으며, 이는 NH₃의 가스-입자 전환이 PM_{2.5} 오염에 실질적인 기여를 할 수 있음을 시사한다.

$$\text{NOR} = [\text{nNO}_3^-] / \{[\text{nNO}_x] + [\text{nNO}_3^-]\} \quad (1)$$

$$\text{SOR} = [\text{nSO}_4^{2-}] / \{[\text{nSO}_2] + [\text{nSO}_4^{2-}]\} \quad (2)$$

$$\text{NHR} = [\text{nNH}_4^+] / \{[\text{nNH}_3] + [\text{nNH}_4^+]\} \quad (3)$$

3. 결 과

3.1 수치 모의 결과 검증

수치 모의 결과 분석에 앞서, 모의 결과의 신뢰성을 확보하기 위하여 수치 모의 결과에 대한 검증을 시행하였다. 이를 위해 기상청에서 제공하는 95개 종관기상관측시스템 (Automated Synoptic Observing System, ASOS)의 관측자료와 국립환경과학원 (National Institute of Environmental Research, NIER)에서 제공하는 452개 대기질 관리 시스템 (Air Quality Monitoring System, AQMS)의 관측자료를 활용하였다. 검증 대상 변수는 기온, 풍속, PM_{2.5} 농도이며 Default case의 수치 모의 결과와 지상 관측 결과를 서로 비교하여 모델의 정확도를 평가하고자 하였다. 모의 결과 검증을 위한 통계 지표로는 평균 제곱근 오차 (Root Mean Squared Error, RMSE), 평균편향 오차 (Mean Bias Error, MBE), 일치도지수 (Index of Agreement, IOA)와 상관계수 (Correlation, R)을 사용하였으며, 각 지표의 계산식은 식 (4)~(7)에 제시하였다. 각 식에서 n 은 전체 관측지점의 개수를 의미한다. 대괄호 ([])로 나타난 수식은 분자와 분모가 동일한 차원을 가지므로 단위가 소거되어 무차원 값으로 표현된다. 검증에는 관측지점과 가장 가까운 격자의 수치 모의 결과를 활용하였으며, 수치 모의 값은 M , 관측 값은 O 로 표기하였다.

$$\text{RMSE} = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_1^n (M - O)^2} \quad (4)$$

$$\text{MBE} = \frac{1}{n} \sum_1^n (M - O) \quad (5)$$

$$\text{IOA} = 1 - \left[\frac{\sum_1^n (O - M)^2}{\sum_1^n (|M - \bar{O}| + |O - \bar{O}|)^2} \right] \quad (6)$$

$$R = \frac{\sum_1^n (O_i - \bar{O})(M_i - \bar{M})}{\sqrt{\sum_1^n (O_i - \bar{O})^2} \sqrt{\sum_1^n (M_i - \bar{M})^2}} \quad (7)$$

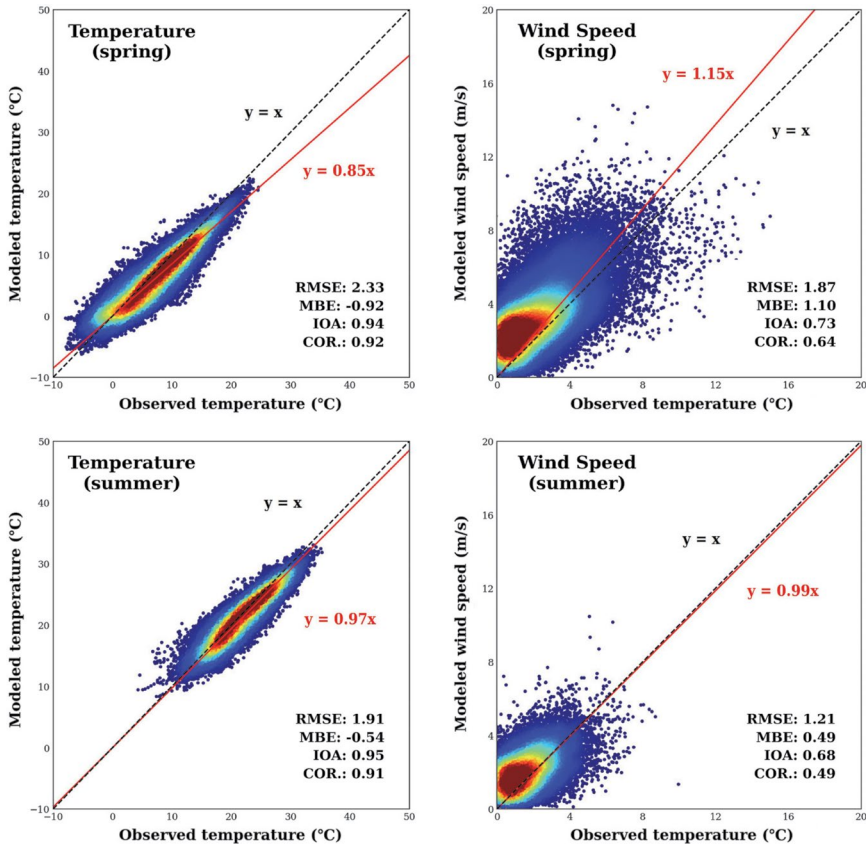


Fig. 2. Scatter plots of WRF-simulated versus observed temperature (left) and wind speed (right) for spring and summer, with statistical metrics (RMSE, MBE, IOA, and COR) shown in each panel.

먼저, 기상 관측자료와 WRF 모델 결과 간의 비교 검증 수행하였다(그림 2). 강수에 의한 세정효과가 모델의 모의 성능 및 결과 해석에 영향을 미칠 수 있는 점을 고려하여, 검증 및 분석 과정에서는 강수 영역을 제외하였다. 모델과 관측의 비교는 각 시간의 자료를 서로 비교하였다. 봄철 기온의 RMSE는 2.33, MBE는 -0.92로 나타났으며, IOA와 R은 각각 0.94와 0.92로, 모델이 기온을 매우 잘 모의하는 것으로 분석되었다. 풍속의 경우 RMSE는 1.87, MBE는 1.10으로 과대 모의 경향을 보였으나, IOA는 0.73, R은 0.64로 Emery *et al.* (2017)의 평가 기준을 만족하였다. 여름철 기온의 RMSE는 1.91, MBE는 -0.54였으며, IOA와 R은 각각 0.95와 0.91로 봄철과 유사한 수준의 성능을 보였으

며, 풍속은 RMSE 1.21, MBE 0.49, IOA 0.68, R 0.49로 나타났다.

다음으로, CMAQ 모델의 대기질 수치 모의 결과에 대한 검증을 수행하였다(그림 3). 대기질 모델의 모의 성능 검증에는 Emery *et al.* (2017)에서 제안한 바와 같이 일간 농도를 평균하여 서로 비교하였다. 봄철 PM_{2.5} 농도에 대한 RMSE는 14.11, MBE는 1.05, IOA는 0.93, R은 0.87로 나타났으며, 여름철의 경우 RMSE는 9.66, MBE는 3.11, IOA는 0.74, R은 0.54로 산정되었다. 여름철 모의 결과는 다소 낮은 모의 성능을 보였으나, 회귀분석을 통해 도출된 기울기가 1.05로 관측의 경향을 잘 따라가고 있는 것으로 분석되었다. 또한, Kim *et al.* (2020)에서 제시한 기준치인 IOA 0.5, R 0.4

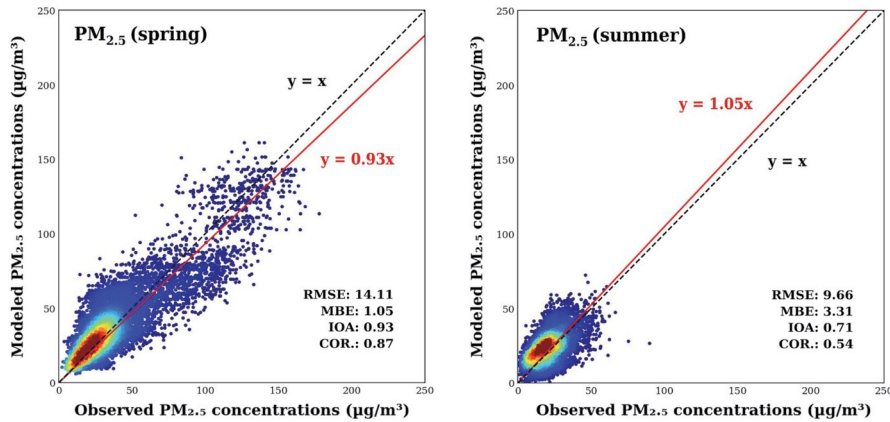


Fig. 3. Scatter plots of CMAQ-simulated versus observed PM_{2.5} concentrations, with spring shown on the left and summer on the right. Statistical metrics (RMSE, MBE, IOA, and COR) are included in each panel.

를 충족하였으며 이에 따라 해당 모델 결과를 기반으로 NH₃ 배출량 변화에 따른 PM_{2.5} 농도 변화를 분석하였다.

3.2 중국 배출량 변화에 따른 남한 PM_{2.5} 농도 변화

앞서 모의한 결과를 바탕으로 봄과 여름 각각에 중국 NH₃ 배출량 증가로 인한 PM_{2.5} 농도 변화를 분석하였다. 그림 4는 기존 배출량 기반의 수치 모의 결과(Default case)와 NH₃ 배출량 증가 시나리오(Enhanced case) 간의 PM_{2.5} 및 세부 성분의 농도 차이를 계절별로 평균하여 수평장으로 나타낸 것이며, 표 2는 이를 내륙(Inland)과 해양(Ocean)으로 구분하여 각 성분별 농도 변화를 계절별로 비교한 것이다. 실험 결과, 봄과 여름 두 계절 모두 대한민국 전역에서 PM_{2.5} 농도 상승이 나타났으나 그 증가 폭은 계절과 성분에 따라 차이를 보였다. 특히 봄철에는 내륙에서 2.03 µg/m³, 해양에서 3.00 µg/m³의 평균 PM_{2.5} 농도가 증가가 나타났으며, 내륙 0.16 µg/m³, 해양 0.72 µg/m³ 수준의 증가에 그친 여름철보다 농도 변화가 훨씬 두드러지게 나타났다. 이러한 PM_{2.5}의 농도 변화는 주로 NO₃⁻와 NH₄⁺의 농도 증가에 기인하였으며, 두 성분은 봄철에 내륙 기준 각각 1.61 µg/m³와 0.48 µg/m³, 해양

기준 2.40 µg/m³와 0.71 µg/m³의 증가를 보였다. 반면, SO₄²⁻의 농도 변화는 두 계절 모두 0.1 µg/m³ 미만의 변화 수준을 보였으며, OM과 기타 성분(Other)들은 오히려 내륙과 해양 모두에서 -0.1 µg/m³에서 -0.3 µg/m³ 수준의 소폭 감소 경향을 나타냈다.

이러한 변화는 중국에서의 NH₃ 배출량 증가로 인한 PM_{2.5} 농도 증가가 주로 NH₃와 HNO₃의 반응을 통해 생성된 질산암모늄(NH₄NO₃)의 증가에서 비롯하였음을 의미한다. PM_{2.5}는 다양한 세부 성분으로 구성되며, 이들 세부 성분은 가스상 대기오염물질이 OH radical과 같은 산화제와의 반응을 통해 입자상 물질로 전환된다(Li *et al.*, 2018). 본 연구에서는 중국 NH₃ 배출량을 증가시켰으며, NH₃는 NH₄NO₃와 황산암모늄((NH₄)₂SO₄)의 주요 전구물질로 작용할 수 있다. 그러나 봄과 여름 두 계절 모두 NO₃⁻ 농도 변화가 SO₄²⁻에 비해 더욱 크게 나타났다는 점은, NH₃가 추가적인 (NH₄)₂SO₄ 생성보다는, NH₄NO₃ 생성에 우선적으로 기여하였음을 의미한다.

일반적으로 대기에서의 NH₃는 황산(H₂SO₄)과 우선적 반응하며, 이후 남은 NH₃가 질산(HNO₃)과 반응하여 NH₄NO₃ 형성에 관여하는 것으로 알려져 있다(Seinfeld and Pandis, 2016; Bari *et al.*, 2003) 그러나 중국 내 SO_x 배출량(2018년: 8.93 Tg/yr)은 지속해

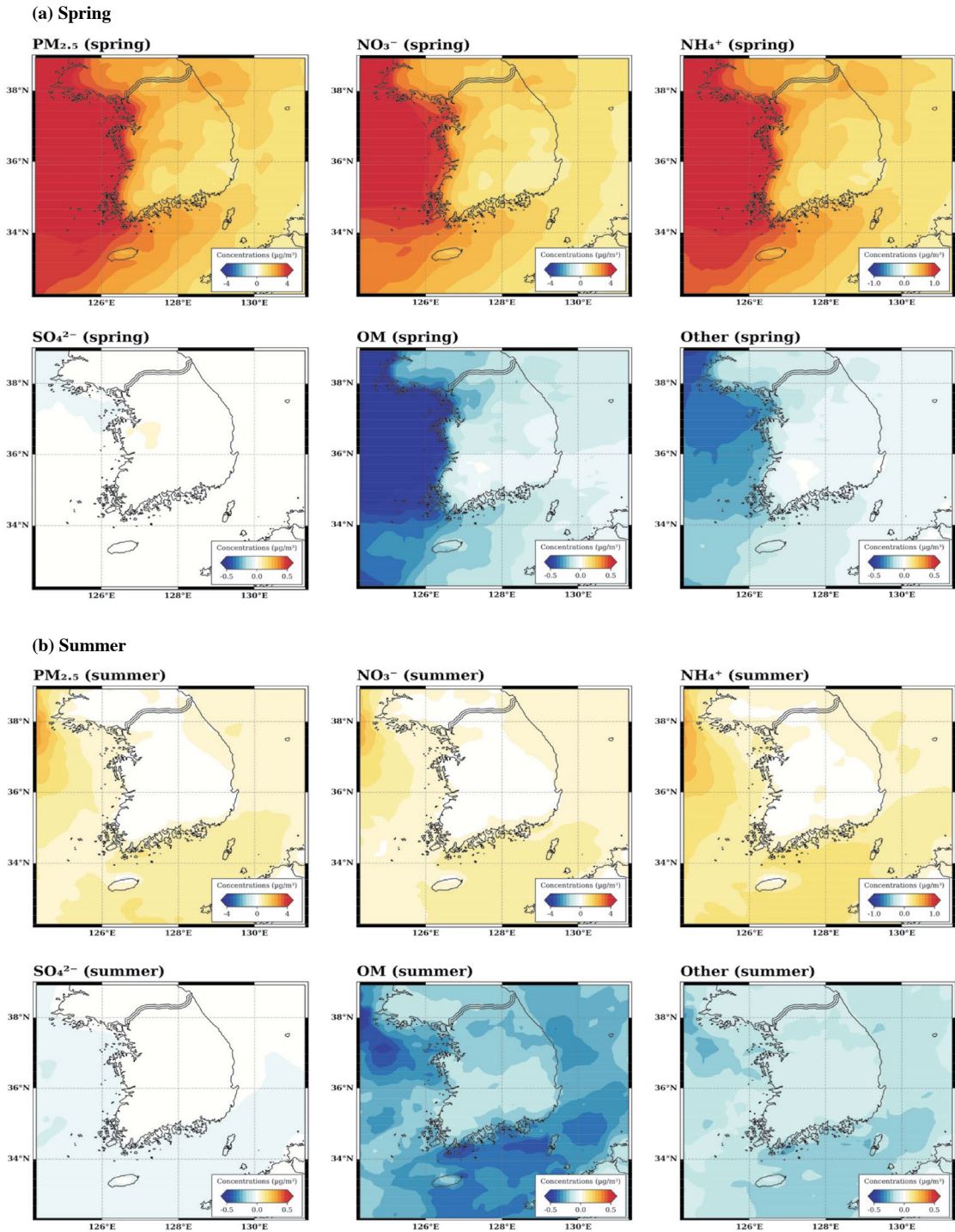
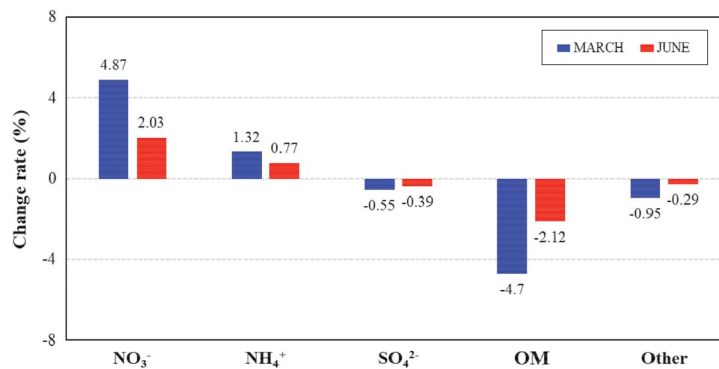


Fig. 4. Spatial distributions of changes in PM_{2.5} and its components in response to increased NH₃ emissions from China. Panels in (a) show spring, and those in (b) show summer. Each map shows changed in concentration of PM_{2.5}, NO₃⁻, NH₄⁺, SO₄²⁻, OM, and other components.

Table 2. Maximum and mean changes in PM_{2.5} concentrations and component species (NO₃⁻, NH₄⁺, SO₄²⁻, OM, and Other) for spring and summer, calculated as the concentration differences between the Enhanced case and the Default case.

Concentrations change (µg/m ³)			PM _{2.5}	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	SO ₄ ²⁻	OM	Other
Spring	Inland	Max	5.91	4.71	1.37	0.03	-0.57	-0.32
		Mean	2.03	1.61	0.48	0.01	-0.14	-0.08
	Ocean	Max	7.64	6.08	1.78	-0.04	-0.87	-0.48
		Mean	3.00	2.40	0.71	0.00	-0.27	-0.16
Summer	Inland	Max	0.71	0.65	0.19	-0.03	-0.30	-0.17
		Mean	0.16	0.20	0.06	-0.01	-0.19	-0.11
	Ocean	Max	2.66	2.25	0.63	-0.09	-0.54	-0.30
		Mean	0.72	0.62	0.23	-0.04	-0.30	-0.17

**Fig. 5.** Changes in PM_{2.5} component concentrations in response to increased NH₃ emissions. The bars represent change rates (%) for NO₃⁻, NH₄⁺, SO₄²⁻, OM, and other components in spring (blue) and summer (red).

서 감소하고 있으며, 이는 SO₄²⁻ 생성 반응(2NH₃ + H₂SO₄ ⇌ (NH₄)₂SO₄ ⇌ 2NH₄⁺ + SO₄²⁻)에 필요한 H₂SO₄의 공급을 제한하였다. 반면, NO_x의 경우 2018년 배출량이 NH₃ 배출량보다 높은 수준을 유지하고 있었으며(NO_x: 23.59 Tg/yr, NH₃: 12.30 Tg/yr), 이는 NO₃⁻의 전구물질인 HNO₃의 공급을 원활하게 하였다. 결과적으로, 추가 배출된 NH₃는 NO₃⁻ 생성 반응(NH₃ + HNO₃ ⇌ NH₄NO₃ ⇌ NH₄⁺ + NO₃⁻)에 참여하게 되었으며, 이는 남한에서의 NO₃⁻와 NH₄⁺ 농도 상승을 유발한 것으로 분석되었다.

한편, 중국에서의 NH₃ 배출량 증가로 인한 각 PM_{2.5} 세부 성분들의 농도 변화는 각기 다르게 나타났으며, 이로 인해서 남한 전체 PM_{2.5} 농도에서 각 물질이 차지하는 비율 또한 변화를 보였다. 그림 5는

Enhanced case에서 PM_{2.5}를 구성하는 주요 성분들의 상대적 기여도 변화를 보여주며, 수평 분포 분석 결과와 마찬가지로 NO₃⁻, NH₄⁺, 그리고 OM의 비율 변화가 뚜렷하게 나타났다. 이 중 NO₃⁻와 NH₄⁺는 농도 증가와 함께 그 비율 또한 증가한 반면, OM은 그림 4에서 나타난 바와 같이 농도가 감소하였으며, 이로 인해 전체 PM_{2.5} 농도에서 차지하는 비율 또한 4.7% 감소하는 것으로 나타났다.

이러한 OM의 비율 감소는 에어로졸 형성 과정에서의 OH radical 소비와 관련이 있는 것으로 유추된다. CMAQ에서의 OM은 1차 유기 에어로졸(Primary Organic Aerosol, POA)과 2차 유기 에어로졸(Secondary Organic Aerosol, SOA)로 구성되는데, OH radical은 대기 중에서 휘발성 유기화합물(Volatile Organic

Compounds, VOC)과 반응($\text{VOC} + \text{OH} \rightarrow \text{RO}_2 \rightarrow \text{SOA}$)하여 SOA 생성을 유발한다. 그러나 OH radical은 SOA 생성을 위한 VOC 산화뿐만 아니라, NH_4NO_3 의 전구물질인 HNO_3 생성에도 관여한다. Enhanced case에서 배출량이 증가함에 따라, OH radical은 NO_3^- 및 NH_4^+ 형성과 관련된 경로에 더 많이 소모되었으며, 이에 따라 OM 생성에 참여한 OH radical이 감소하면서 OM 농도와 전체 $\text{PM}_{2.5}$ 에서의 상대적 비율 또한 감소한 것으로 분석되었다.

이러한 결과는, 중국 NH_3 배출량 변화로 인한 $\text{PM}_{2.5}$ 의 농도 변화가 다른 가스상 오염물질의 배출량 및 전구물질의 농도와 밀접하게 연관되어 있음을 의미한다. 중국 내 NO_x , SO_x , NH_3 의 배출 비율 차이는 NH_3 배출량 증가에 따른 $\text{PM}_{2.5}$ 세부 성분의 반응 경향을 결정하는 데 주요한 요인으로 작용하였으며, 추가적인 NH_3 배출은 기존에 OM 생성에 참여할 OH radical을 NO_3^- , NH_4^+ 생성 반응에 참여하도록 유도하였다. 그러나 봄철의 NH_3 배출량은 0.82 Tg/yr에서 1.45 Tg/yr로 0.63 Tg/yr 증가하였고, 여름철 배출량은 1.42 Tg/yr에서 2.50 Tg/yr로 1.08 Tg/yr 증가하여 여름철의 증가 폭이 더 컸음에도 불구하고, 남한에서의 성분 농도 변화는 봄철에 더 크게 나타났으며, 이러한 차이는 배출량이 직접 변화한 중국 지역에서도 유사하게 나타났다(그림 S1). 이에, 본 연구에서는 배출량과 반응물 간의 시공간적 불일치를 분석하기 위해 중국을 포함한 영역에서의 전구물질 농도 변화와 기류 특성을 함께 분석하였으며, 이를 바탕으로 계절 및 지역에 따른 기상 조건의 차이가 남한으로의 $\text{PM}_{2.5}$ 수송에 미치는 영향을 규명하고자 하였다.

3.3 남한 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 변화의 계절적 차이 분석

그림 6은 Enhanced case에서의 NO_3^- 와 그 전구물질인 NH_3 , HNO_3 의 농도 변화와 계절별로 바람 벡터를 공간 평균하여 나타낸 것으로, HNO_3 와 NO_3^- 의 농도 변화가 가장 뚜렷하게 나타난 발해만 지역을 빨간색 상자로 나타내었다. 앞서 언급한 바와 같이 HNO_3 는 NH_4NO_3 의 전구물질이며, 해당 물질의 농도가 감

소한 영역은 NH_4NO_3 의 생성 반응이 활발히 일어난 지역으로 해석할 수 있다. HNO_3 의 농도 감소는 봄과 여름 모두 발해만 일대에서 가장 두드러지게 나타났는데, 발해만에서의 HNO_3 농도는 봄철 평균 1.07 ppb, 여름철 평균 1.54 ppb 감소하는 것으로 나타났으며, 특히 육지와 인접한 지역에서는 각각 최대 1.97 ppb와 3.31 ppb까지 감소하는 양상을 보였다. 이러한 농도의 변화 분포는 NH_3 배출량 증가에 따른 추가적인 NH_4NO_3 의 생성 반응이 주로 육지와 인접한 해양에서 일어났음을 시사한다. NH_3 는 수용성이 높고 반응성이 크기 때문에, 대기 중 장거리 수송 도중 해양의 수증기 및 다양한 에어로졸 성분과 반응할 수 있으며, 따라서 NH_3 는 배출 지점에서 가까운 내륙 혹은 육지와 인접한 해양 지역에서 빠르게 반응하여 다른 물질을 형성하는 경향을 보인다(Backes *et al.*, 2016; Behera *et al.*, 2013). 본 연구에서 발해만은 3면이 내륙으로 감싸져 있으며, 이로 인해서 증가한 NH_3 배출량의 영향을 크게 받을 수 있었다. 발해만에서는 봄철과 여름철 모두에서 HNO_3 농도의 감소가 뚜렷하게 나타났으며, 이는 해당 지역에서 NH_4NO_3 생성 반응이 활발하게 일어났음을 시사한다. 그러나, 발해만에서의 HNO_3 농도 감소가 여름철에 더 뚜렷하게 나타났음에도 불구하고, NO_3^- 농도 증가는 봄철에 더 크게 나타났다(봄철: $6.08 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 여름철: $3.54 \mu\text{g}/\text{m}^3$). 이는 NH_3 배출 증가에 따른 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 변화가 전구물질의 농도 변화뿐만 아니라, NO_3^- 의 생성과 소멸에 영향을 미치는 다른 요인들도 좌우될 수 있음을 의미한다. 이에 본 연구에서는 IPR 분석을 통해 NO_3^- 의 생성-소멸 메커니즘을 분석하였으며, 이를 통하여 어떤 물리·화학적 과정이 여름철 NO_3^- 농도 증가를 억제하였는지 파악하고자 하였다.

그림 7은 중국 동부와 남한에서 Aerosol (AERO)과 Horizontal advection (HADV) process에 의한 NO_3^- 의 농도 변화율을 나타낸 것이다. 붉은색 영역은 각 물리 과정으로 인한 NO_3^- 의 농도 변화율이 양의 방향을 나타낸 영역이며, 파란색 영역은 해당 물리 과정으로 인한 NO_3^- 의 농도 변화율이 음의 값을 나타낸 영역이

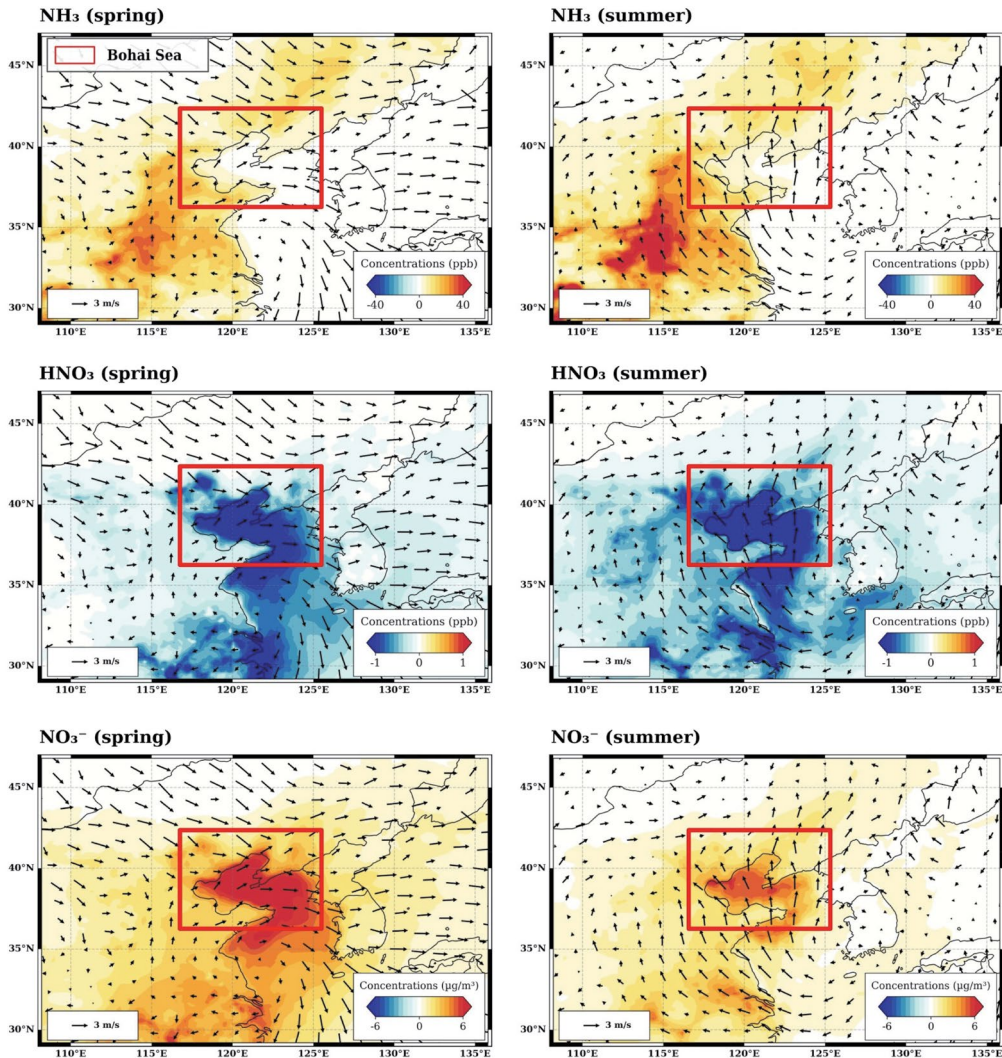


Fig. 6. Seasonal changes in NH₃, HNO₃, and NO₃⁻ concentrations in response to increased NH₃ emissions. Left panels show changes in spring, and right panels show changes in summer, with surface wind vectors overlaid to illustrate atmospheric transport. The red box indicates the Bohai Sea region.

다. AERO process는 대기 중 무기 에어로졸의 생성, 성장, 변환, 소멸을 포함하는 물리-화학적 과정을 의미하며, HADV process는 해당 물질의 수평 수송에 의한 농도 변화율을 계산하여 나타낸 결과이다(Shen *et al.*, 2020; Liu *et al.*, 2010). IPR 분석 결과, NH₃ 배출 증가에 따른 NO₃⁻ 생성 반응은 발해만에서 주로 뚜렷하게 나타났으며, AERO에 의한 HNO₃의 농도 변화율과 NO₃⁻의 농도 변화율은 봄철과 여름철 각각 0.81,

0.67의 상관계수를 보여 HNO₃의 농도 감소가 주로 NO₃⁻의 추가적인 생성 반응에 의한 영향을 알 수 있었다. 봄, 여름 모두 발해만에서 AERO에 의한 NO₃⁻의 변화율은 양의 값을 보였으며, 반대로 HADV에 의한 NO₃⁻의 농도 변화율은 음의 값을 보였다. 이러한 경향은 앞에서 언급한 바와 같이, 육지와 인접한 발해만에서 NO₃⁻의 생성 반응이 뚜렷하게 나타났음을 보여주며, 이로 인해 추가로 생성된 NO₃⁻가 다른 지역으

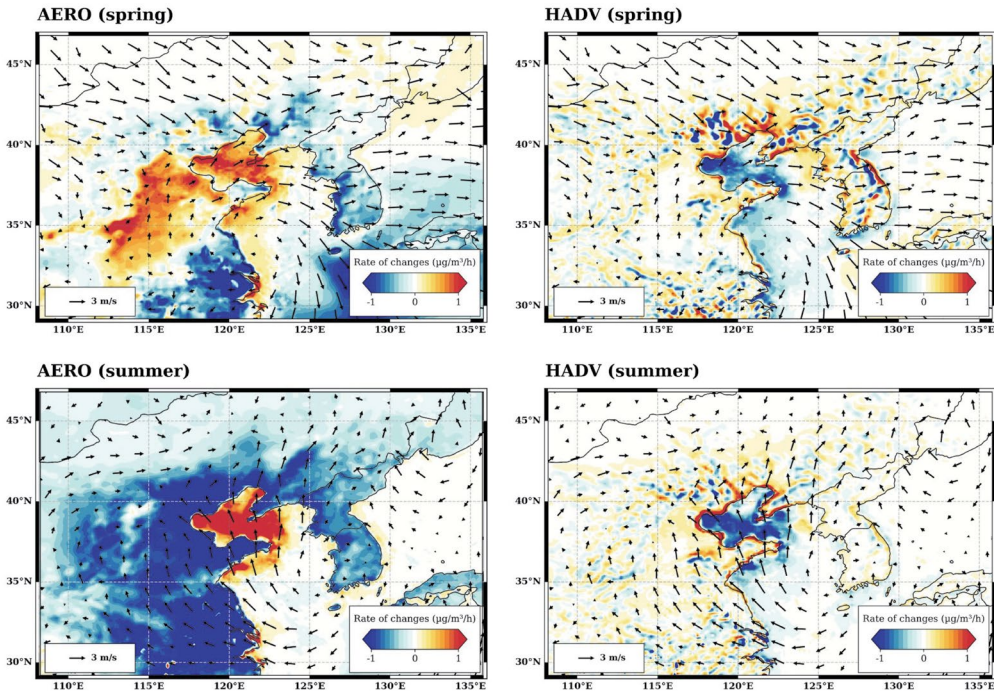


Fig. 7. Rates of concentration changes in NO_3^- induced by the AERO and HADV process. Top and bottom rows represent spring and summer, respectively. Surface wind vectors are overlaid to indicate the direction of pollutant transport.

로 수평 수송되었음을 의미한다. 이러한 특징은 PBL 이하 영역의 값을 평균하여 발해만과 남한 지역에서의 시간별 NO_3^- 농도 변화 기여율을 나타낸 그림 S2에서도 명확히 확인된다. 발해만에서의 농도 변화율에 가장 큰 영향을 미친 process는 AERO로 봄철: $0.44 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{h}$ 의 여름철: $0.84 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{h}$ 의 값을 나타냈다. 반면 HADV에 의한 농도 변화율은 봄철: $-0.27 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{h}$, 여름철: $-0.46 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{h}$ 로 특히 주간 생성된 NO_3^- 를 다른 지역으로 수송시키고 있음이 명확히 확인되었다. 그러나 남한에서 NO_3^- 의 농도 상승 경향이 뚜렷하게 나타났음에도 남한 지역에서의 HADV에 의한 NO_3^- 의 농도 변화율은 봄철: $0.04 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{h}$, 여름철: $0.07 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{h}$ 로 미미한 수준이었다.

이는 IPR 결과가 각 격자에서의 상대적인 생성-소멸 경향을 보여주는 지표에 불과하므로, 농도 변화율만으로는 물질의 수송 과정을 완전히 설명할 수 없기 때문에 판단된다(Seinfeld and Pandis, 2016; Liu et

al., 2010). 따라서 계절에 따른 남한으로의 NO_3^- 수송을 파악하기 위해 그림 6의 각 물질 농도 변화와 바람 벡터를 그림 7의 AERO에 의한 NO_3^- 농도 변화율과 비교하였다. 그림 6에서 NO_3^- 의 농도 변화는 봄철에는 발해만 지역 동쪽까지 뚜렷하게 나타난 반면, 여름철에는 봄철보다 좁은 영역에서 낮은 수준의 농도 증가를 나타냈다. 계절에 따라 이렇게 분포의 차이가 나타나는 이유는 봄 여름의 기상 조건 차이가 NO_3^- 의 생성-소멸에 영향을 미쳤기 때문으로 파악되었다. 선행 연구에 따르면, NH_4NO_3 는 NH_3 , HNO_3 와 평형 반응을 이루고 있으며, 이러한 평형 반응은 반응물과 생성물의 농도비율, 그리고 기온에 의해서 결정되는 것으로 알려져 있다. NO_3^- 는 고온 조건에서 불안정성이 증가하며, 온도가 높을수록 NH_4NO_3 의 해리 반응 ($\text{NH}_4\text{NO}_3 \rightleftharpoons \text{NH}_3 + \text{HNO}_3$)이 촉진된다(Seinfeld and Pandis, 2016; Saiz-Lopez et al., 2007). 본 연구에서 봄철 대비 여름철의 기온 상승 폭은 내륙에서 14.66°C

로, 해양의 상승 폭(7.05°C)보다 크게 나타났으며, 봄철의 기류가 주로 북서풍의 방향을 보인 반면, 여름철의 기류는 주로 남동풍의 방향을 나타내고 있다. 이러한 기상 조건의 차이는 봄철과 여름철 NO₃⁻ 농도 변화의 차이를 유발한 주요 원인으로 작용하였다. 봄철에는 NH₃의 배출 증가로 인해 중국 내륙 지역과 발해만에서의 NO₃⁻ 생성이 증가하였고, 이렇게 생성된 NO₃⁻는 상대적으로 원활하게 동쪽 해양으로 수송될 수 있었다. 반면, 여름철에는 기온 상승으로 내륙에서 추가적인 NO₃⁻ 생성이 나타나지 않았고, 오히려 발해만 등 해양 지역에서 추가 생성된 NO₃⁻가 내륙으로 수송되었다. 그러나 내륙으로 유입된 NO₃⁻는 높은 기온 조건에서 화학적 평형에 따라 NH₃와 HNO₃로 분해되었고, 여름철의 NO₃⁻ 농도 증가는 억제되어, 봄철과 여름철의 남한으로의 NO₃⁻ 수송량은 차이를 보이게 되었다.

한편, 남한 지역에서 AERO에 의한 NO₃⁻ 농도 변화율이 봄철: -0.48 µg/m³/h, 여름철: -0.64 µg/m³/h로 음의 값을 보인 것은 여러 요인이 복합적으로 작용한 결과로 해석된다. 그림 6에서 확인되듯이 HNO₃ 농도는 봄과 여름 모두에서 감소하였으며, 이는 남한에서의 NO₃⁻ 생성 반응을 제한하는 요인으로 작용하였다. 또한, 그림 S3에서 나타난 바와 같이, 두 계절 모두

NH₃ 농도는 증가했으나 HNO₃의 감소 폭은 줄어들었는데, 이는 남한 내륙에서 중국으로부터 수송된 NO₃⁻의 분해가 일어나고 있음을 시사한다. 따라서 남한 지역에서 NO₃⁻ 농도 변화율이 음의 값을 보이는 것은 HNO₃ 농도 감소로 인한 NO₃⁻ 생성 반응의 억제와 외부에서 유입된 NO₃⁻의 분해가 동시에 작용한 결과로 판단된다. 이로 인해서 내륙 지역에서는 해양 지역보다 낮은 수준의 NO₃⁻ 농도 증가가 나타났으며, 이는 전체 PM_{2.5} 농도 증가를 제한하는 효과를 보였다.

이렇듯, 계절에 따른 기상 조건의 차이는 남한에서의 계절 간 PM_{2.5} 농도 변화의 주요한 원인으로 작용하였다. 그림 8은 중국과 남한에서의 증가한 PM_{2.5} 농도를 평균하여 비교한 것으로, 각 지역의 값은 내륙 지역 전체의 농도 변화를 계절에 따라 평균하여 나타냈다. 앞서, 3.2절에서 남한의 PM_{2.5} 농도 증가가 봄철에 더 크게 나타난 것과 마찬가지로, 중국에서의 PM_{2.5} 농도 증가는 봄철에 더 크게 나타났으나, 그 계절 간 농도 차이는 남한에서 더욱 두드러졌다. 이러한 결과는 PM_{2.5}와 같이 대기 중 화학 반응을 거쳐 농도가 변하는 오염물질의 경우, 배출량 변화보다 계절적 기상 조건에 따른 대기 화학 반응과 수송 패턴이 더 큰 영향을 미칠 수 있으며, 이러한 영향은 풍하 지역에서 더욱 지배적으로 나타날 수 있음을 시사한다. 본 연구에서

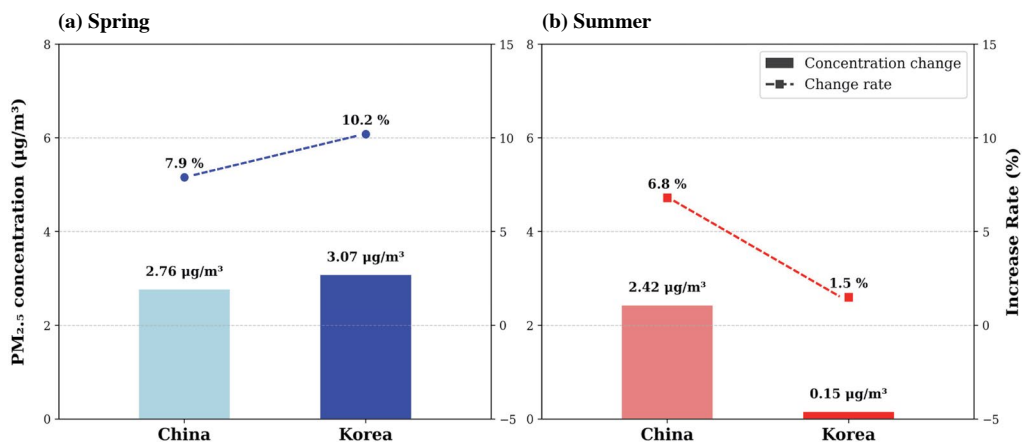


Fig. 8. Comparison of PM_{2.5} concentration changes (bars) and rates of increase (dashed lines) between the Default and Enhanced cases. Panels (a) and (b) show spring and summer, respectively, presenting average concentration changes and rates of increase in China and Korea.

증가시킨 중국의 NH_3 배출량은 여름철에 평균 72.4% 더 많았음에도 불구하고, 계절별 기류와 기온 조건의 차이로 인해 중국 지역에서의 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 증가는 봄철에 $0.34 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 더 높게 나타났다. 특히 중국의 동쪽에 위치한 남한에서는 이러한 계절적 차이가 $1.98 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 까지 확대되었으며, 봄철 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 증가는 중국 ($2.76 \mu\text{g}/\text{m}^3$)보다 더 높은 $3.07 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 나타났다. 반면, 여름철 남한의 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 증가는 $0.15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 에 불과하였으며, 이는 남동풍 기류로 인한 중국으로부터의 수송의 약화와 높은 기온 조건에서의 NO_3^- 분해 촉진이 동시에 작용했기 때문으로 해석된다.

3.4 중국의 배출량 변화에 따른 남한 대기의 전구물질 전환율 변화

앞선 절의 결과를 통해, 중국에서의 NH_3 배출 증가가 추가적인 NO_3^- 생성 반응을 유발하였으며, 이로 인해 남한의 $\text{PM}_{2.5}$ 농도가 증가할 수 있음을 확인하였다. 그러나 NO_3^- 은 단순히 $\text{PM}_{2.5}$ 의 구성 성분으로 존재하는 것이 아니라 대기 중에서의 가스-에어로졸 평형 시스템에 의해 NO_x 의 대기 중 전환율에 영향을 미칠 수 있다. 이에 따라 본 연구에서는 중국 NH_3 배출량 변화가 남한 대기에서의 가스상 전구물질 전환율에 미치는 영향을 분석하고자 하였으며, Enhanced case에서의 NOR, NHR, SOR의 변화를 비교함으로써 중국에서의 배출 변화가 남한 대기 산화 환경에 미치는 영향을 규명하고자 하였다.

그림 9는 봄철 Default case와 Enhanced case에서의 NOR, NHR, SOR 값을 평균하여 나타내었으며, 추가적으로 Default case 대비 Enhanced case에서의 변화량을 함께 제시하였다. NOR 분석 결과, Default case와 Enhanced case 모두 수도권 및 동남권 등 내륙의 주요 산업 지역에서 낮은 값을 보였으며, 황해 및 제주도 서쪽 해역 등 해양 지역에서는 최대 0.82의 높은 NOR 값을 보였다. 이는 내륙 산업 지역에서 NO_x 가 대량 배출되어, NO_3^- 로 전환되는 양보다 가스상으로 존재하는 비율이 상대적으로 높기 때문이며, 반대로 연근해 지역은 유입된 NO_x 가 낮은 온도와 높은 습도

에 의해 쉽게 NO_3^- 로 전환되기 때문으로 분석된다. NHR 또한 마찬가지로 내륙보다 해양에서 높은 값을 보였으나, NOR이 수도권과 동남권에서 낮은 값을 보인 것과는 반대로 경기 남부, 전라권, 그리고 서부 경남지역에서 낮은 값을 보였다. 이는 해당 지역에서 농업 활동이 활발하여 NH_3 배출이 많기 때문으로 파악되었으며, 전반적인 NHR의 값은 NOR보다 높은 수준을 보였다.

Enhanced case에서 남한의 NO_3^- 와 NH_4^+ 농도는 모두 증가하였으나, 가스상 오염물질의 전환율은 서로 다른 양상을 보였다. 전반적으로 NOR은 증가하였으나, NHR은 지역에 따라 증가와 감소가 혼재되었으며, 서쪽에서는 증가가, 해양 지역에서는 감소가 뚜렷하게 나타났다. 이러한 차이는 3.3절에서 언급한 NO_3^- 의 수송 및 내륙에서의 분해와 관련이 있다. 중국에서 추가 생성된 NO_3^- 는 북서풍을 타고 남한으로 수송되었으며, 이는 남한 인근 해양 지역에서의 NOR 증가를 유발하였다. 그러나, 봄철의 경우에도 내륙 지역에서는 NO_3^- 농도 증가가 제한되었으며, 이로 인해 내륙에서의 NOR 증가 폭은 해양과 비교하면 제한적으로 나타났다. 한편, NHR은 NH_4^+ 의 수송 효과뿐만 아니라, NO_3^- 분해에 따른 NH_3 의 재생산이 복합적으로 작용한 결과로 해석된다. 상대적으로 NHR이 높았던 해양 지역에서는 NH_3 재생성에 따른 NHR 감소가 우세하게 나타났으며, 반대로 NHR이 낮았던 서쪽 내륙 지역에서는 NH_4^+ 수송의 영향으로 NHR이 증가한 것으로 분석되었다.

그림 10은 여름철 NOR, SOR, NHR의 변화를 나타냈다. 봄철과 비교하여 모든 지표가 전반적으로 낮은 값을 보였으며, 이는 여름철이 봄철에 비해 낮은 에어로졸 농도를 보이기 때문으로 분석되었다. 특히 내륙에서의 NOR (봄철: 0.337, 여름철: 0.153) 감소가 두드러지게 나타났는데, 이는 앞에서 언급하였듯이 여름철 기온이 높아짐에 따라 NO_3^- 의 안정성이 감소해 내륙에서의 NO_3^- 의 농도 감소 폭이 크게 나타났기 때문으로 파악되었다.

여름철 Enhanced case에서의 NOR과 NHR 변화는

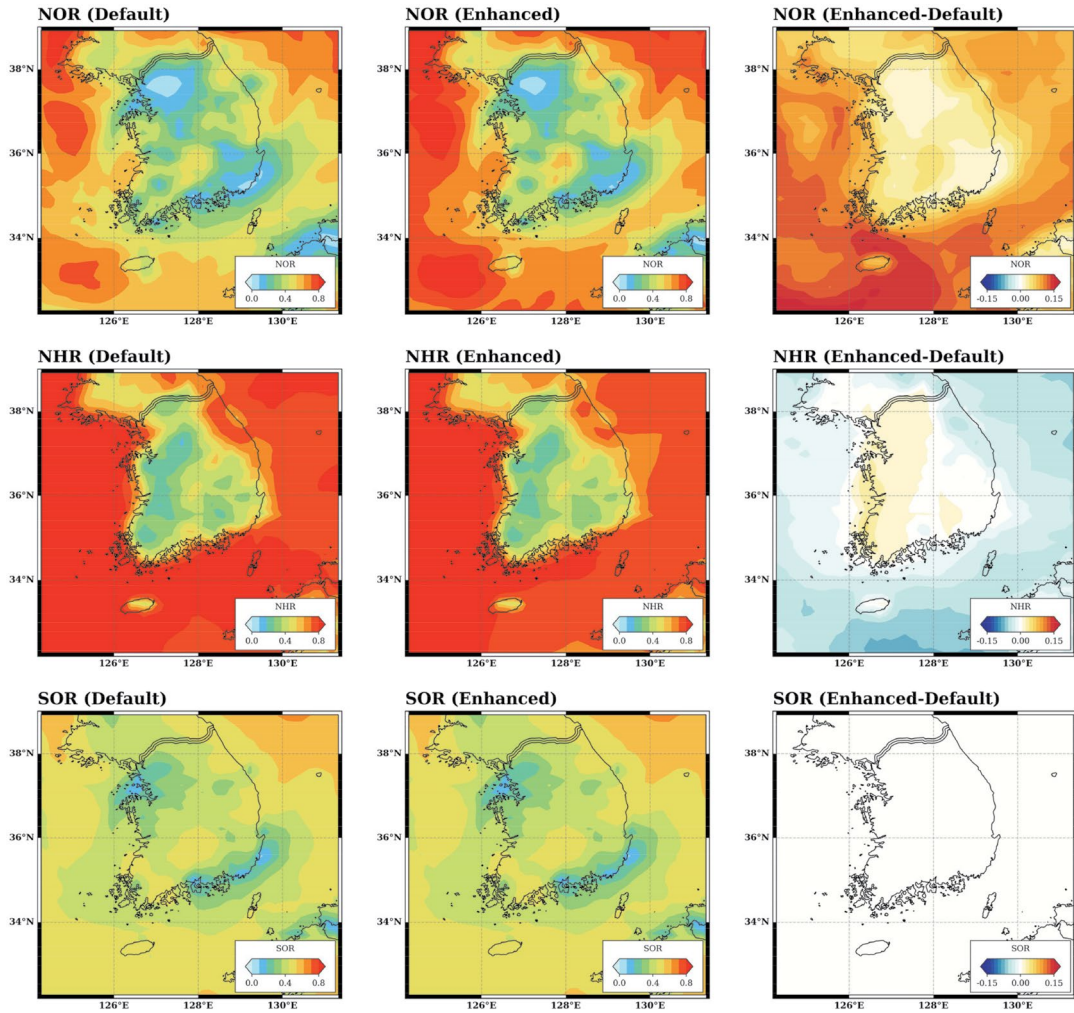


Fig. 9. Spatial distributions of precursor conversion ratios (NOR, NHR, and SOR) for the spring season under the Default and Enhanced cases, and their differences (Enhanced-Default).

봄철과 유사한 공간분포를 보였으나, 전반적으로 음의 방향으로 더 치우친 경향이 나타났다. NOR은 남해안과 동해 해상에서 평균 0.13 증가하였고, 제주도 및 남쪽 해역에서는 최대 0.193까지 상승하였으나, 내륙에서는 평균 0.014 증가하는 데 그쳐, 남한 내륙의 NOR에는 뚜렷한 영향을 미치지 못했다. NHR 변화폭 역시 제한적이었으며 봄철에 증가 경향이 보였던 서부 내륙 지역에서는 NHR의 증가 경향이 사라졌으며, 해양과 육지에서 모두 평균 전환율이 0.020 감소하였다. 한

편, 두 계절 모두에서 SOR은 ± 0.010 이내의 미미한 변화를 보였으며, 이는 동아시아 대기에서 NH₃ 배출 변화가 SO₂ 산화 반응(SOR)에는 상대적으로 제한적인 영향을 끼침을 시사한다.

이렇듯 중국의 NH₃ 배출량 변화는 단순히 남한의 PM_{2.5} 농도 증가에만 영향을 미치는 것이 아니라, PM_{2.5}를 구성하는 개별 성분들의 농도비율과 대기 중 전구물질의 산화 반응성에도 영향을 줄 수 있는 것으로 분석되었다. 이전 연구에서 NOR/SOR이 증가한 상

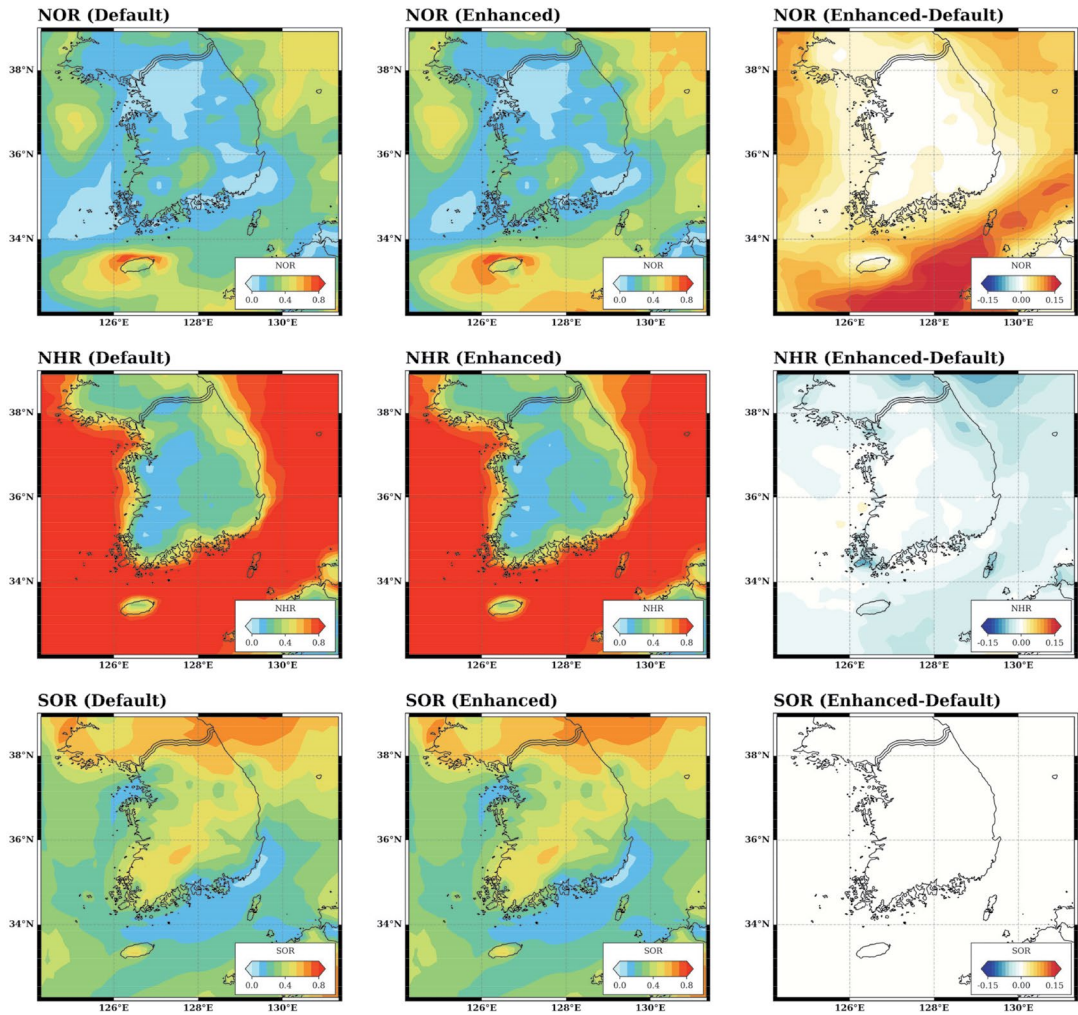


Fig. 10. Spatial distributions of precursor conversion ratios (NOR, NHR, and SOR) for the summer season under the Default and Enhanced cases, and their differences (Enhanced-Default).

태에서는 남한 배출량 감소에 의한 $PM_{2.5}$ 농도 감소 정책이 기존보다 더 크게 탄력을 받을 수 있다고 하였으며 (Kang and Kim, 2022), 이는 중국의 배출량이 증가하였을 때 남한의 배출량에 대한 관리정책이 더 면밀히 수행될 필요성을 의미한다. 본 연구에서는 배출량과 대기 순환의 차이가 뚜렷한 봄과 여름에 대해서만 수치 모의를 수행하였으나, NH_3 배출량 변화의 영향을 보다 포괄적으로 평가하기 위해서는 가을과 겨울철에 대한 추가적인 분석이 필요하다. 이는 향후 남한의 계절별 고농도 PM 발생 메커니즘을 정밀하게 이

해하고, 보다 효과적인 배출 저감 전략 수립에 기여할 수 있을 것으로 기대된다.

4. 결 론

본 연구에서는 중국 NH_3 배출량의 불확실성이 남한의 대기질에 미치는 영향을 평가하기 위해 3차원 광화학 대기질 모델인 CMAQ을 활용한 수치 모의실험을 수행하였다. NH_3 배출량의 계절적 변동성과 동아

시아 영역의 통계 차이를 고려하여 봄과 여름 두 계절을 대상으로 분석하였으며, EDGAR HTAP v3 배출 인벤토리를 적용한 Default case와 중국의 NH₃ 배출량을 75.7% 증가시킨 Enhanced case를 비교 분석하였다. 두 계절 모두에서 NH₃ 배출량의 증가는 PM_{2.5} 농도의 증가를 초래하는 것으로 나타났으며, 특히 NO₃⁻와 NH₄⁺의 농도 증가가 두드러졌다. 이는 중국에서 증가한 NH₃가 HNO₃와 반응하여 NH₄NO₃를 생성함으로써 남한의 PM_{2.5} 농도를 증가시켰음을 시사한다.

그러나, NH₃ 배출량 증가 폭은 여름철이 더 컸음에도 불구하고, PM_{2.5}의 농도 변화는 봄철에서 더 두드러지게 나타났다. 이에 대한 원인을 분석하기 위해, 전구물질의 농도 변화분포와 IPR 분석을 통해 NO₃⁻의 생성-소멸 메커니즘을 살펴보았다. 그 결과, 여름철 PM_{2.5} 농도 증가의 억제제는 NO₃⁻의 열적 안정성과 계절에 따른 기류의 방향 차이에 기인하는 것으로 나타났다. NO₃⁻는 고온에서 안정성이 낮아지며, 여름철 고온 환경에서는 NH₄NO₃가 다시 NH₃와 HNO₃로 분해되는 경향이 있다. Enhanced case와 Default case에서의 차이를 분석한 결과 NO₃⁻의 소멸 반응이 IPR의 AERO process에서 나타났으며, 이는 특히 기온이 높고 상대습도가 낮은 내륙 지역에서 두드러지게 나타났다. 또한, 계절에 따른 기류의 차이도 여름철 남한에서의 PM_{2.5} 농도 증가를 억제하였다. 봄철에는 북서풍의 영향으로 중국에서 생성된 NO₃⁻가 남한으로 원활히 유입되었으나, 여름철에는 남풍 계열의 기류가 형성되면서 이와 같은 유입이 제한되었다. 이로 인해, 남한에서의 PM_{2.5} 농도 증가율은 계절에 따라 큰 차이를 보였으며, 봄철 PM_{2.5}의 농도 증가율이 10.2%에 달한 반면, 여름철의 증가율은 1.5%에 불과하였다.

한편, 남한 내륙에서는 NO₃⁻ 분해로 인해 HNO₃와 NH₃의 추가적인 농도 증가가 유발되었으며, 이는 가스상 전구물질의 전구물질 전환율에도 영향을 주는 것으로 나타났다. 본 연구에서는 남한 지역에서의 전구물질 전환율 변화를 분석하기 위해 NOR, SOR, NHR를 추가적으로 분석하였는데, 이들 지표는 각각 상이한 공간적·계절적 특성을 나타내는 것으로 분석되었

다. NOR은 봄과 여름 모두에서 증가하였으며, 특히 해양 지역에서 증가 폭이 더 크게 나타났다. 반면, NHR은 오히려 해양에서 감소하는 분포를 보였는데, 이는 중국에서 생성된 NH₄NO₃가 남한으로 수송되면서 분해됨에 따라 NH₃ 농도가 증가한 영향으로 해석된다. 한편, SOR의 경우 SO₄²⁻ 농도에 유의미한 변화가 나타나지 않아 양 시나리오 간 차이는 약 0.01 수준으로 매우 미미하였으며, 이는 중국의 NH₃ 배출량 변화가 남한 내 SO₂ 전환율에는 거의 영향을 미치지 않음을 의미한다.

본 연구는 중국 NH₃ 배출량의 불확실성이 남한의 대기질, 특히 PM_{2.5} 농도 변화에 미치는 영향을 평가하는 데 중요한 시사점을 제공한다. NH₃ 배출량의 증가는 풍상 지역에서의 반응을 넘어, 계절별 기류 특성과 대기 화학 반응을 통해 풍하 지역인 남한의 미세먼지 농도 및 조성에도 영향을 미칠 수 있으며, 그 영향은 계절에 따라 뚜렷한 차이를 보이는 것으로 나타났다. NO₃⁻, SO₄²⁻, NH₄⁺와 같은 2차 무기 에어로졸 성분의 농도 변화는 PM_{2.5}의 농도 변화뿐 아니라, 가스상 오염물질의 전구물질 전환율 지표에도 영향을 미쳤으며, 이러한 전환율은 각 물질마다 다르게 나타나는 경향을 보였다.

다만, 본 연구는 중국 NH₃ 배출량의 불확실성에만 초점을 맞추었으며, 남한 배출원의 기여도와 불확실성은 고려하지 않았다. 또한, 중국 내 대기에서 이미 NH₃가 풍부하거나 포화 상태에 가까운 조건이 형성되어 있어, NH₃ 배출량을 75.7% 증가시켰음에도 남한 PM_{2.5} 농도 변화는 전반적으로 10% 미만의 변화를 보였다. 이러한 점은 중국 NH₃ 배출이 인벤토리에서 과소 산정되더라도 남한의 대기질에 미치는 영향이 제한적일 수 있음을 시사하지만, 동시에 향후 배출 저감 효과를 모델이 실제보다 과대평가할 가능성도 내포한다. 따라서, 향후 연구에서는 남한 내 배출원의 불확실성을 포함한 종합적인 기여도 분석이 필요하며, 이를 통해 동아시아 대기질 예측의 신뢰도를 높일 수 있을 것으로 판단된다.

감사의 글

이 논문은 부산대학교 기본연구지원사업 (2년)에 의하여 연구되었음.

References

- Appel, K.W., Bash, J.O., Fahey, K.M., Foley, K.M., Gilliam, R.C., Hogrefe, C., Hutzell, W.T., Kang, D., Mathur, R., Murphy, B.N. (2021) The Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model versions 5.3 and 5.3.1: system updates and evaluation, *Geoscientific Model Development*, 14(5), 2867-2897. <https://doi.org/10.5194/gmd-14-2867-2021>
- Backes, A.M., Aulinger, A., Bieser, J., Matthias, V., Quante, M. (2016) Ammonia emissions in Europe, part II: How ammonia emission abatement strategies affect secondary aerosols, *Atmospheric Environment*, 126, 153-161. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.11.039>
- 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), 48. <https://doi.org/10.3390/atmos11010048>
- Bari, A., Ferraro, V., Wilson, L.R., Luttinger, D., Husain, L. (2003) Measurements of gaseous HONO, HNO₃, SO₂, HCl, NH₃, particulate sulfate and PM_{2.5} in New York, NY, *Atmospheric Environment*, 37(20), 2825-2835. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(03\)00199-7](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(03)00199-7)
- Behera, S.N., Sharma, M., Aneja, V.P., Balasubramanian, R. (2013) Ammonia in the atmosphere: a review on emission sources, atmospheric chemistry and deposition on terrestrial bodies, *Environmental Science and Pollution Research*, 20(11), 8092-8131. <https://doi.org/10.1007/s11356-013-2051-9>
- Cao, Z., Zhou, X., Ma, Y., Wang, L., Wu, R., Chen, B., Wang, W. (2017) The concentrations, formations, relationships and modeling of sulfate, nitrate and ammonium (SNA) aerosols over China, *Aerosol and Air Quality Research*, 17(1), 84-97. <https://doi.org/10.4209/aaqr.2016.01.0020>
- Chen, J., Cheng, M., Krol, M., de Vries, W., Zhu, Q., Liu, X., Zhang, F., Xu, W. (2023) Trends in anthropogenic ammonia emissions in China since 1980: a review of approaches and estimations, *Frontiers in Environmental Science*, 11, 1133753. <https://doi.org/10.3389/fenvs.2023.1133753>
- Crippa, M., Guizzardi, D., Butler, T., Keating, T., Wu, R., Kaminski, J., Kuenen, J., Kurokawa, J., Chatani, S., Morikawa, T. (2023) The HTAP_v3 emission mosaic: merging regional and global monthly emissions (2000-2018) to support air quality modelling and policies, *Earth System Science Data*, 15(6), 2667-2694. <https://doi.org/10.5194/essd-15-2667-2023>
- Dong, W., Xing, J., Wang, S. (2010) Temporal and spatial distribution of anthropogenic ammonia emissions in China: 1994-2006, *Huanjing Kexue*, 31(7), 1457-1463. <https://doi.org/10.13227/j.hj.kx.2010.07.008>
- Emery, C., Liu, Z., Russell, A.G., Odman, M.T., Yarwood, G., Kumar, N. (2017) Recommendations on statistics and benchmarks to assess photochemical model performance, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 67(5), 582-598. <https://doi.org/10.1080/10962247.2016.1265027>
- Erisman, J., Schaap, M. (2004) The need for ammonia abatement with respect to secondary PM reductions in Europe, *Environmental Pollution*, 129(1), 159-163. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2003.08.042>
- Fang, C., Zhang, Z., Jin, M., Zou, P., Wang, J. (2017) Pollution characteristics of PM_{2.5} aerosol during haze periods in Changchun, China, *Aerosol and Air Quality Research*, 17(4), 888-895. <https://doi.org/10.4209/aaqr.2016.09.0407>
- Gu, B., Zhang, L., Van Dingenen, R., Vieno, M., Van Grinsven, H.J., Zhang, X., Zhang, S., Chen, Y., Wang, S., Ren, C. (2021) Abating ammonia is more cost-effective than nitrogen oxides for mitigating PM_{2.5} air pollution, *Science*, 374(6568), 758-762. <https://doi.org/10.1126/science.abf8623>
- Guenther, A., Jiang, X., Heald, C.L., Sakulyanontvittaya, T., Duhl, T., Emmons, L., Wang, X. (2012) The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature version 2.1 (MEGAN2.1): an extended and updated framework for modeling biogenic emissions, *Geoscientific Model Development*, 5(6), 1471-1492. <https://doi.org/10.5194/gmd-5-1471-2012>
- Hersbach, H., Bell, B., Berrisford, P., Hirahara, S., Horányi, A., Muñoz-Sabater, J., Nicolas, J., Peubey, C., Radu, R., Schepers, D. (2020) The ERA5 global reanalysis, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 146(730), 1999-2049. <https://doi.org/10.1002/qj.3803>
- Huang, P.-C., Hung, H.-M., Lai, H.-C., Chou, C.C.-K. (2024) Assessing the Effectiveness of SO₂, NO_x, and NH₃ Emission Reductions in Mitigating Winter PM_{2.5} in Taiwan Using

- CMAQ Model, EGUsphere, 2024, 1-30. <https://doi.org/10.5194/egusphere-2024-343>
- Jeon, W., Choi, Y., Lee, H.W., Lee, S.H., Yoo, J.W., Park, J., Lee, H.J. (2015) A quantitative analysis of grid nudging effect on each process of PM_{2.5} production in the Korean Peninsula, *Atmospheric Environment*, 122, 763-774. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.10.050>
- Jeon, W., Park, J., Choi, Y., Mun, J., Kim, D., Kim, C.H., Lee, H.J., Bak, J., Jo, H.Y. (2021) The mechanism of the formation of high sulfate concentrations over the Yellow Sea during the KORUS-AQ period: the effect of transport/atmospheric chemistry and ocean emissions, *Atmospheric Research*, 261, 105756. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2021.105756>
- Kai, Z., Yuesi, W., Tianxue, W., Yousef, M., Frank, M. (2007) Properties of nitrate, sulfate and ammonium in typical polluted atmospheric aerosols (PM₁₀) in Beijing, *Atmospheric Research*, 84(1), 67-77. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2006.05.006>
- Kaneyasu, N., Yamamoto, S., Sato, K., Takami, A., Hayashi, M., Hara, K., Kawamoto, K., Okuda, T., Hatakeyama, S. (2014) Impact of long-range transport of aerosols on the PM_{2.5} composition at a major metropolitan area in the northern Kyushu area of Japan, *Atmospheric Environment*, 97, 416-425. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.01.029>
- Kang, Y., Kim, S. (2022) Estimating Oxidation Rates of NO_x 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>
- Kim, C.-H., Lee, S.-H., Jang, M., Chun, S., Kang, S., Ko, K.-K., Lee, J.-J., Lee, H.-J. (2020) A Study on statistical parameters for the evaluation of regional air quality modeling results-Focused on fine dust modeling, *Journal of Environmental Impact Assessment*, 29(4), 272-285. <https://doi.org/10.14249/eia.2020.29.4.272>
- Kim, E., Kim, B.-U., Kim, H.C., Kim, S. (2021) 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, 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>
- Li, L., Huang, C., Huang, H., Wang, Y., Yan, R., Zhang, G., Zhou, M., Lou, S., Tao, S., Wang, H. (2014) An integrated process rate analysis of a regional fine particulate matter episode over the Yangtze River Delta in 2010, *Atmospheric Environment*, 91, 60-70. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.03.053>
- Li, T.-C., Yuan, C.-S., Huang, H.-C., Lee, C.-L., Wu, S.-P., Tong, C. (2016) Inter-comparison of seasonal variation, chemical characteristics, and source identification of atmospheric fine particles on both sides of the Taiwan Strait, *Scientific Reports*, 6(1), 22956. <https://doi.org/10.1038/srep22956>
- Li, X., Kuang, X., Yan, C., Ma, S., Paulson, S., Zhu, T., Zhang, Y., Zheng, M. (2018) Oxidative potential by PM_{2.5} in the North China Plain: Generation of hydroxyl radical, *Environmental Science & Technology*, 52(12), 6801-6810. <https://doi.org/10.1021/acs.est.8b05253>
- Liu, H.Y., Dunea, D., Iordache, S., Pohoata, A. (2018) A review of airborne particulate matter effects on young children's respiratory symptoms and diseases, *Atmosphere*, 9(4), 150. <https://doi.org/10.3390/atmos9040150>
- Liu, P., Ding, J., Liu, L., Xu, W., Liu, X. (2022) Estimation of surface ammonia concentrations and emissions in China from the polar-orbiting Infrared Atmospheric Sounding Interferometer and the FY-4A Geostationary Interferometric Infrared Sounder, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 22(13), 9099-9110. <https://doi.org/10.5194/acp-22-9099-2022>
- Liu, X., Sun, K., Qu, Y., Hu, M., Sun, Y., Zhang, F., Zhang, Y. (2015) Secondary formation of sulfate and nitrate during a haze episode in megacity Beijing, China, *Aerosol and Air Quality Research*, 15(6), 2246-2257. <https://doi.org/10.4209/aaqr.2014.12.0321>
- Liu, X.H., Zhang, Y., Xing, J., Zhang, Q., Wang, K., Streets, D.G., Jang, C., Wang, W.X., Hao, J.M. (2010) Understanding of regional air pollution over China using CMAQ, part II. Process analysis and sensitivity of ozone and particulate matter to precursor emissions, *Atmospheric Environment*, 44(30), 3719-3727. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2010.03.036>
- Mathur, R., Xing, J., Gilliam, R., Sarwar, G., Hogrefe, C., Pleim, J., Pouliot, G., Roselle, S., Spero, T.L., Wong, D.C. (2017) Extending the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system to hemispheric scales: overview of process considerations and initial applications, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(20), 12449-12474. <https://doi.org/10.5194/acp-17-12449-2017>
- Meng, Z., Xu, X., Lin, W., Ge, B., Xie, Y., Song, B., Jia, S., Zhang, R.,

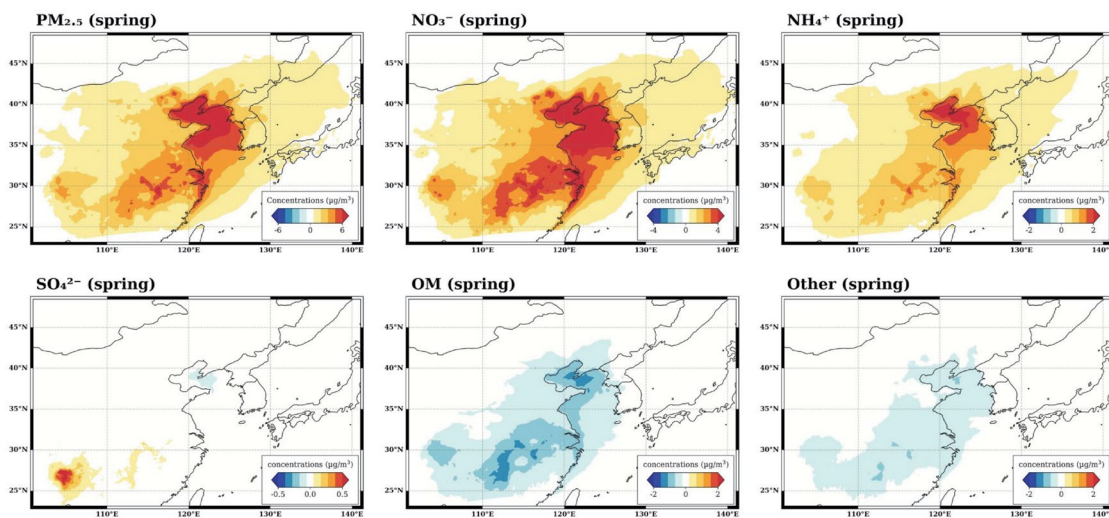
- Peng, W., Wang, Y. (2018) Role of ambient ammonia in particulate ammonium formation at a rural site in the North China Plain, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(1), 167-184. <https://doi.org/10.5194/acp-18-167-2018>
- Oh, H.R., Ho, C.H., Kim, J., Chen, D., Lee, S., Choi, Y.S., Chang, L.S., Song, C.K. (2015) Long-range transport of air pollutants originating in China: a possible major cause of multi-day high-PM₁₀ episodes during cold season in Seoul, Korea, *Atmospheric Environment*, 109, 23-30. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.03.005>
- Park, J., Kim, E., Oh, S., Kim, H., Kim, S., Kim, Y.P., Song, M. (2021) Contributions of ammonia to high concentrations of PM_{2.5} in an urban area, *Atmosphere*, 12(12), 1676. <https://doi.org/10.3390/atmos12121676>
- Park, J., Mun, J., Kim, D., Lee, H.W., Kim, C.H., Lee, H.J., Jo, H.Y., Koo, J.Y., Choe, H., Jeon, W. (2024) Assessing the impact of shipping emissions on ozone concentrations in East Asia: insights from KORUS-AQ and SIAQ 2021 campaign periods, *Atmospheric Environment*, 320, 120339. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2024.120339>
- Pinder, R.W., Adams, P.J., Pandis, S.N. (2007) Ammonia emission controls as a cost-effective strategy for reducing atmospheric particulate matter in the eastern United States, *Environmental Science & Technology*, 41(2), 380-386. <https://doi.org/10.1021/es060379a>
- Qiu, Y., Wu, Z., Man, R., Zong, T., Liu, Y., Meng, X., Chen, J., Chen, S., Yang, S., Yuan, B. (2023) Secondary aerosol formation drives atmospheric particulate matter pollution over megacities (Beijing and Seoul) in East Asia, *Atmospheric Environment*, 301, 119702. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2023.119702>
- Saiz-Lopez, A., Notario, A., Albaladejo, J., McFiggans, G. (2007) Seasonal variation of NO_x loss processes coupled to the HNO₃ formation in a daytime urban atmosphere: a model study, *Water, Air, and Soil Pollution*, 182, 197-206. <https://doi.org/10.1007/s11270-006-9332-6>
- Seinfeld, J.H., Pandis, S.N. (2016) *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*. John Wiley & Sons, Hoboken, NJ, USA, 1152 pp.
- Shen, J., Zhao, Q., Cheng, Z., Wang, P., Ying, Q., Liu, J., Duan, Y., Fu, Q. (2020) Insights into source origins and formation mechanisms of nitrate during winter haze episodes in the Yangtze River Delta, *Science of The Total Environment*, 741, 140187. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.140187>
- Skamarock, W.C., Klemp, J.B., Dudhia, J., Gill, D.O., Liu, Z., Berner, J., Wang, W., Powers, J.G., Duda, M.G., Barker, D.M. (2019) A description of the Advanced Research WRF model version 4. National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO, USA, 145 pp.
- Souri, A.H., Choi, Y., Jeon, W., Woo, J.H., Zhang, Q., Kurokawa, J.I. (2017) Remote sensing evidence of decadal changes in major tropospheric ozone precursors over East Asia, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 122(4), 2474-2492. <https://doi.org/10.1002/2016JD025663>
- U.S. Environmental Protection Agency (U.S. EPA) (2018) Seasonal average hemispheric CMAQ output for 2016 (CCTM_CONC_v53beta2_intel17.0_HEMIS_cb6r3m_ae7_kmtbr_m3dry_2016_quarterly_av.nc). CMAS Data Warehouse. Available at: <https://drive.google.com/file/d/15Vt6f5WuyN8RILRJTKeQUHjYbZ6QCra> (accessed on 18 June 2025).
- Wang, H., Wang, S., Zhang, J., Li, H. (2021) Characteristics of PM_{2.5} pollution with comparative analysis of O₃ in Autumn-Winter Seasons of Xingtai, China, *Atmosphere*, 12(5), 569. <https://doi.org/10.3390/atmos12050569>
- Zhang, X., Wu, Y., Liu, X., Reis, S., Jin, J., Dragosits, U., Van Damme, M., Clarisse, L., Whitburn, S., Coheur, P.-F. (2017) Ammonia emissions may be substantially underestimated in China, *Environmental Science & Technology*, 51(21), 12089-12096. <https://doi.org/10.1021/acs.est.7b02171>

Authors Information

- 최현식 (부산대학교 지구환경시스템학부 박사과정)
(lobert5125@pusan.ac.kr)
- 전원배 (부산대학교 대기환경과학과 부교수)
(wbjeon@pusan.ac.kr)
- 김우진 (부산대학교 대기환경과학과 학사과정)
(ujin03@pusan.ac.kr)
- 양채영 (부산대학교 지구환경시스템학부 박사과정)
(ycyeong@pusan.ac.kr)
- 허민 (부산대학교 지구환경시스템학부 석사과정)
(gjals1015@pusan.ac.kr)

Supplementary Materials

(a) Spring



(b) Summer

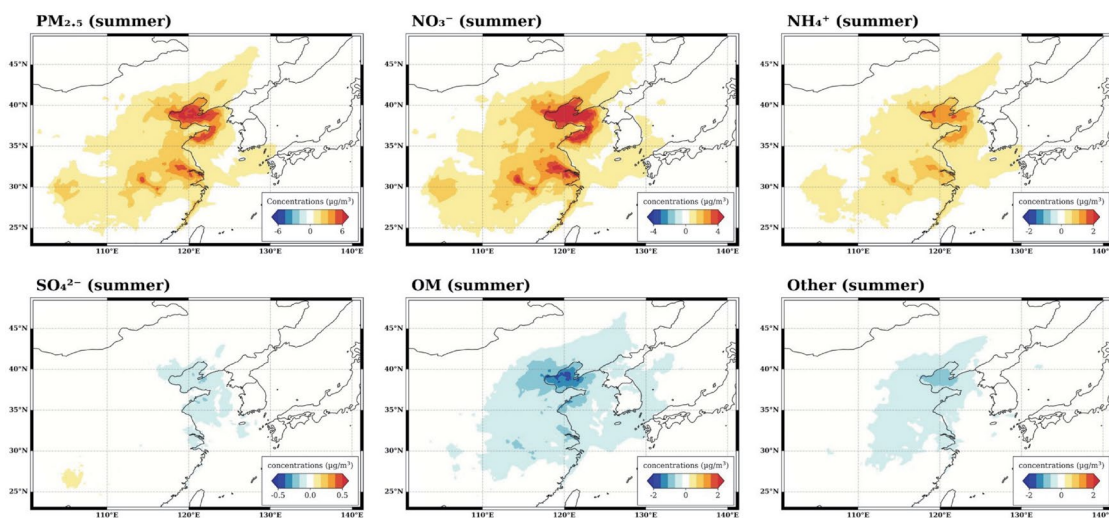


Fig. S1. Spatial distributions of changes in PM_{2.5} and its components over the entire model domain in response to increased NH₃ emissions from China. Panels in (a) represent spring, and those in (b) represent summer. Each map shows concentration changes for PM_{2.5}, NO₃⁻, NH₄⁺, SO₄²⁻, OM, and other components.

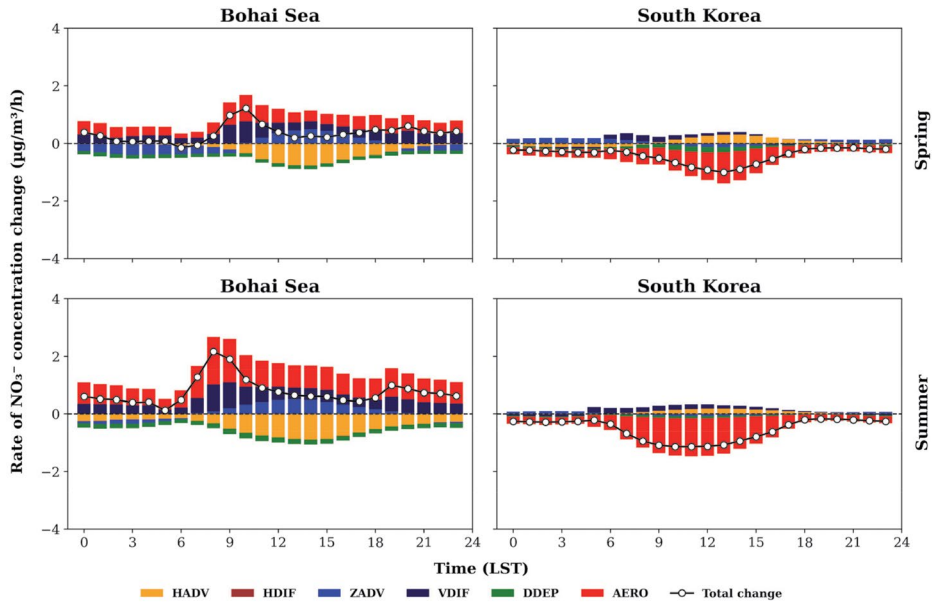


Fig. S2. Stacked bar plots show the diurnal variations of process contributions to NO_3^- concentration change rate ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{h}$) over the Bohai Sea and South Korea during spring and summer. Each color represents the contribution from individual processes (HADV, HDIF, ZADV, VDIF, DDEP, and AERO), and the black line indicates the total change. Positive values denote production tendencies, while negative values denote loss tendencies.

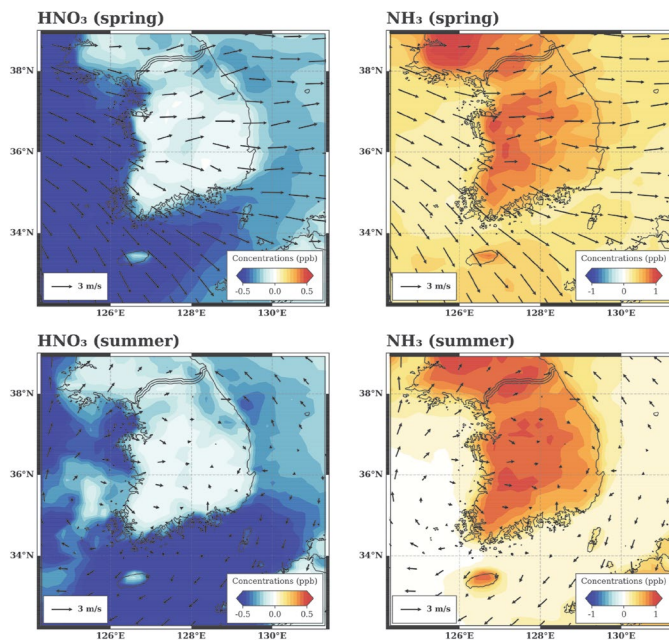


Fig. S3. Seasonal changes in NH_3 and HNO_3 concentrations around South Korea in response to increased NH_3 emissions. The left panels show spring concentration changes and the right panels show summer concentration changes, with surface wind vectors overlaid to illustrate atmospheric transport.