수반모형을 이용한 한반도 남동지역의 오존 전구물질의 오존 생성 민감도에 관한 수치연구

박순영¹ · 이순환^{2,*} · 이화운¹ · 김동혁¹

¹부산대학교 지구환경시스템학부, 609-735, 부산광역시 금정구 부산대학로 63번길 2

²부산대학교 지구과학교육과, 609-735, 부산광역시 금정구 부산대학로 63번길 2

Numerical Study on the Ozone Formation Sensitivity of Precursors Using Adjoint Model around the South-eastern Area of the Korean Peninsula

Soon-Young Park¹, Soon-Hwan Lee^{2,*}, Hwa Woon Lee¹, and Dong-Hyeok Kim¹

¹Division of Earth Environment System, Pusan National University, Busan 609-735, Korea

²Department of Earth Science Education, Pusan National University, Busan 609-735, Korea

Abstract: Ozone sensitivity analysis with respect to NO_x is conducted around the south-eastern area of the Korean Peninsula. WRF-CMAQ modeling system is used to simulate a local circulation and high ozone episode day. To analyze the sensitivity, the adjoint model for CMAQ is adopted in this study. The purpose of current study is to investigate the location that affects a day time ozone concentration of these receptors on the high ozone episode day. Adjoint sensitivity analysis for Daegu shows two areas of influence. One is the range from the neighboring location to Pohang and it affects mainly on the same day as receptor time. The other is the remote south-eastern area from Daegu. This remote influence area suggests that NO_x emitted on the previous day can change the ozone concentration at receptor time. The influence area for Busan, on the other hand, is originated only from the emission on the previous day because the sea-breeze occurred on the episode day makes low influence of surrounding emission. The cross sectional analysis reveals that NO_x advection is important not only near the surface of land but also around the height of boundary layer.

Keywords: adjoint sensitivity analysis, adjoint model, ozone, NO_x , WRF, CMAQ

요약: 한반도 동남 지역에서 고농도 오존이 발생한 사례에 대해 NO_x 에 대한 오존의 수반민감도를 살펴보았다. 사례일에 지배적이었던 국지 순환과 고농도 오존을 모의하기 위해 WRF-CMAQ 모델을 사용하였다. 수반민감도 분석을 위해 CMAQ의 수반 모델을 적용하였다. 본 연구의 목적은 고농도 오존에 주변지역이 미친 영향을 살펴본 수용지 중심의 민감도 분석이다. 또한, 행정 구역별 기여도를 정량적으로 산정하였는데, 대구를 수용지로 하는 민감도 분석 결과 영향지역은 대구에 인접하여 포항으로 이어지는 영역과 남동쪽으로 떨어진 넓은 지역으로 나타났다. 첫 번째 영역은 고농도 사례일 당일에 배출된 NO_x 의 민감도가 주로 나타났고 두 번째 영역은 전 날 배출에 의한 영향이었다. 반면, 부산을 수용지로 한 경우 사례일 당일 주간의 해풍의 영향으로 같은 날의 NO_x 배출 효과 보다는 전 날 배출되었던 농도에 대한 민감도가 더 중요하였다. 민감도 영향지역에 대한 단면도 분석 결과 지표부근의 NO_x 수송과 함께 상층에서 이루어지는 영향도 중요하였다.

주요어: 수반민감도 분석, 수반 모델, 오존, 질소산화물, WRF, CMAQ

*Corresponding author: withshlee@pusan.ac.kr

Tel: +82-51-510-2706

Fax: +82-51-510-2706

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

서 론

수도권을 비롯한 전국의 주요 산업단지 및 주거도시들은 대기오염 저감정책을 적극적으로 추진하고 있지만, 오존의 경우에는 환경 기준치를 초과하는 사례가 빈번하게 발생하고 있다. 특히, 다른 오염물질과 달리 2000년대 이후 오존의 평균농도는 증가하는 추세이다(National Institute of Environmental Research, 2011).

대기오염 저감 정책을 위해 수치모델의 활용은 필수적이다. 부족한 관측 자료를 보완하고 고농도 사례에 대한 이해를 도울 뿐 아니라 대기질 예보에도 적극 활용 중이다. 하지만 배출량의 불확실성과 대기질 모델의 예측 능력의 한계 등으로 그 결과에 수많은 오차를 포함하고 있다. 특히, 우리나라와 같이 대규모 산업단지가 연안에 집중되어 있고 대도시간 거리가 짧은 영역에서 발생하는 고농도 오염 사례는 국지 배출원의 기여만으로 이해하기는 무리가 따른다(Lee et al., 2008; Lee et al., 2011; Park et al., 2011a). 그리고 이러한 연구 결과를 정책에 반영하는 단계에서 과학적 근거자료를 제시하지 못하고 단지 현상의 이해와 분석에 그치기 마련이다. 그러므로 고농도 오염에 대한 국지 배출원과 주변지역에서 미친 영향을 구분하여 정량적인 기여도를 제시하여야 한다.

대기질 농도에 대한 오염 배출원별 민감도 분석 방법 중 직접 민감도 분석(direct sensitivity analysis)은 한 번에 하나의 초기 모델 섭동에 대한 모델 결과의 변화율을 계산하는 방법으로 배출원 중심의 민감도 분석이다(Dunker, 1984; Dunker et al., 2002; Hakami et al., 2003; Cohan et al., 2005; Kim and Lee, 2011). 이 방법은 몇 개의 초기값에 대한 계산 영역 전체의 농도 결과에 대한 민감도 분석을 하고자 하는 경우 효과적인 방법이다. 반면, 수반민감도 분석(Adjoint Sensitivity Analysis)은 하나의 수용지 중심에서 모델 적분의 역순으로 변화량을 계산하는 방법으로 모든 초기 파라미터에 대한 변화량 분석이 한 번에 가능하다(Sandu et al., 2005). 직접 민감도 분석의 어려움은 수용지 중심의 변화율을 계산하기 위해서는 모든 격자점에 대한 농도에 관한 민감도를 계산해야 하는 점이다. 그러므로 직접 민감도 분석은 많은 수의 파라미터에 대한 민감도를 한 번에 파악하기는 적절하지 못하다(Zhang et al., 2008). 이러한 점에서 수용지 중심의 민감도 분석, 즉 수반민감도

Fig. 1. Schematic diagram for forward (direct) and backward (adjoint) sensitivity (Pinder and Hakami, 2011).

분석이 배출량 규제에 관한 정책을 결정하기에 보다 적절한 방법이라고 할 수 있다(Hakami et al., 2006).

본 연구에서는 한반도 남동지역에서 발생한 고농도 오존 사례에 대해 내륙의 대구와 연안의 부산을 수용지로 하는 수반민감도 분석을 실시하여 고농도 오존이 발생한 주변지역의 영향을 살펴보았다.

연구 방법

수반민감도 분석

민감도 분석(sensitivity analysis)은 모델을 이용한 연구에서 모델의 초기값이나 파라미터에 대한 결과의 변화량을 살펴보기 위한 방법이다. 민감도 분석 방법은 직접민감도(forward), 예를 들어, Decoupled Direct Method (DDM)와 수반민감도(backward)로 크게 두 가지로 나눌 수 있다(Fig. 1). Backward 방법의 하나인 수반민감도 분석은 모델의 최종 결과인 특정 수용지에서 섭동이 수반모델을 통해 모델 적분의 역순으로 진행되면서 민감도에 대한 분석을 수행한다. 결과적으로 수반민감도 분석은 모든 배출원과 초기 파라미터에 대한 특정 수용지에 대한 민감도를 제공한다.

수반민감도 분석은 기상 및 해양모델의 변분 자료 동화과정에서 널리 사용된 방법으로 관측과 모델의 차이에 대한 비용함수의 변화량을 계산하기 위한 기법이다. 대기질 모델에 수반모델(Adjoint model)이 개발될 경우 자료동화는 물론 수반민감도는 배출원과 수용지 관계로 해석이 가능하다.

Zhang et al. (2008)이 설명한 수반민감도 분석을 간단히 정리하면 다음과 같다. 일반적으로 화학수송모델은 시간과 공간에 대해 불연속적인 편미분 방정식이 결합된 시스템으로 아래와 같이 표현이 가능하다.

$$y^k = M(t^{k-1}, y^{k-1}, p) \quad y^0 = y(t^0, p); \quad k = 1, 2, \dots, F \quad (1)$$

Fig. 2. Configure of WRF domains and topographic characteristics of the interested area. Black dots indicate the major cities in the south-eastern part of Korean Peninsula, and the location where the vertical wind data is assimilated is marked by arrow. Two red boxes represent the receptors used for adjoint sensitivity analysis.

y^k 는 상태벡터로서 t^k 시간의 오존농도를 의미하며 M 은 이류, 확산, 화학반응에 대한 이산해이다. 모델 적분간격 기준으로 한 단계 앞의 상태벡터에 의한 함수로 정의할 수 있다. p 는 모델 파라미터(예를 들어 초기농도, 배출 비율 등)의 벡터형태이다. 그러므로 위 식을 통한 모델 결과는 초기농도 y^0 와 모델의 파라미터인 p 로써 유일하게 결정된다($y=y(t, p)$).

i 번째 파라미터에 대한 모델 결과의 민감도는 아래와 같이 표현한다.

$$S_i^k = \frac{\partial y^k}{\partial p_i} \quad (2)$$

여기서 모델 결과와 설정한 파라미터의 산술적 크기가 다르거나 다른 단위를 사용한다면 다음과 같은 표현으로 민감도를 백분율로 표현 가능하다.

$$\hat{S}_i^k = \frac{\partial y^k p_i}{\partial p_i y^k} \quad (3)$$

이것은 무차원 민감도 계수이며 파라미터가 1% 변화에 대한 모델 결과 변화의 백분율로 해석이 가능하다.

모델의 계산이 적분간격에 대해 이루어지기 때문에 연쇄법칙과 수반행렬을 적용하여 적분 방향의 역으로 수반민감도가 계산된다. 동일한 수반민감도 변수가 모든 파라미터에 대해 사용되기 때문에 수반 모델을 역으로 한번만 적분할 경우 모든 파라미터에 대한

민감도를 얻을 수 있다. 역방향 수반모델 계산을 위해 오존 농도에 대한 기본 순방향 CMAQ결과를 10분 간격으로 상태벡터를 저장하였다. 수반민감도 분석은 단순히 기상장의 역제적에 대한 의미를 포함하는 것이 아니라 난류 확산과 복잡한 화학 반응식에 의한 영향이 동시에 고려되는 것으로 수송의 효과와 화학반응의 영향을 다각적으로 분석할 수 있다. 보다 자세한 이해를 돕기 위한 이론적 배경은 Errico (1997)에 잘 정리되어 있다.

실험설계

연구에 사용된 기상 수치모형은 WRF (Weather Research and Forecasting model) V3.2 (Skamarock et al., 2008)로서 수평으로는 Arakawa-C 격자체계를 사용하는 압축성 비정수 모형이다. 이 모델은 다양한 규모의 기상현상을 재현하는 데 적용되며, 예측 안정성은 이전 연구를 통하여 확인되었다(Lee and Yun, 2011; Lee, 2012; Moon et al., 2013). 모델의 도메인 설정은 Fig. 2에 나타내었다. 모델의 초기장과 경계 자료에 사용된 입력 자료는 NCEP (National Centers for Environmental Prediction)의 재해석 자료이며 6시간 간격의 $1^\circ \times 1^\circ$ 자료를 사용하였다. 해풍 진입에 대한 경로와 강도에 대한 정확도를 위해 창원의 윈드 프로파일러 자료(Fig. 2의 화살표 지점)를 자료동화하였다.

대기질 수치모형은 CMAQ (Community Multi-

Table 1. Configuration of WRF modeling system

WRF	D01	D02	D03	D04
Horizontal Grid	80×80	100×100	112×112	190×190
Horizontal resolution	27 km	9 km	3 km	1 km
Vertical layers	33 layers (top: 50 hPa)			
Physical options	WSM5 scheme Kain-Fritsch scheme Noah LSM Yonsei University PBL RRTM Longwave Dudhia Shortwave			
Initial data	NCEP FNL data			
Time period	2008.08.02.18 UTC~2008.08.06.00 UTC			

scale Air Quality) V4.5 (Byun and Ching, 1999)를 사용하였다. WRF의 도메인 3과 4의 영역을 따르는 범위로 도메인 설정을 하여 각각 기상장 결과를 대기질 모델에 적용하였다. 최종 도메인은 한반도 남동 지역으로 연안에 포항, 울산, 부산, 창원 등의 산업도시와 내륙의 대구를 포함하는 영역이다. 네스팅을 통해 최종도메인으로 유입되는 오염물질에 대한 경계 자료를 마련하였다. 자세한 모델 구성은 Table 1과 2에 정리하였다. 배출량 자료의 경우 국립환경과학원의 2007년 CAPSS (Clean Air Policy Supporting System)자료를 사용하여 배출량 모델인 SMOKE에서 산출된 시간 및 공간 할당 계수를 적용하였다. 모델링 기간 동안 적용된 NO_x와 VOCs의 배출량 공간분

Table 2. Configuration of CMAQ modeling system

CMAQ	Coarse	Fine
Horizontal Grid	99×99	177×177
Horizontal resolution	3 km	1 km
Vertical layers	15 layers (top: 20 km)	
Other options	CB IV Chemical Mechanism PPM Advection Multiscale Horizontal Diffusion Eddy Vertical Diffusion RADM Cloud scheme	
Time period	2008.08.02.18 UTC~2008.08.05.06 UTC	
Sensitivity calculation	2008.08.04.15 UTC~2008.08.05.06 UTC	

포는 Fig. 3에 나타내었다. NO_x의 배출원은 연안도시인 포항, 울산, 부산, 창원 등의 지역과 내륙의 대구에 위치한 산업시설 및 차량 배출원에 집중되어 있으며 각 도시를 연결하는 국도중심으로 분포한다. VOCs도 마찬가지로 대규모 배출원은 앞서 언급한 도심지에 분포하지만 교외지역의 산림에 의한 식생 VOCs에 의한 배출량도 나타난다. CMAQ의 수반모델은 HARC/TERC (Houston Advanced Research Center/Texas Environmental Research Consortium)의 프로젝트 H98(University of Huston, 2009)의 일환으로 Virginia Tech에서 개발한 수반코드를 사용하였다 (Hakami et al., 2007).

수치모의 기간은 다음 절에 설명할 고농도 오존사례인 2008년 8월 4일과 5일을 대상으로 하며 36시간

Fig. 3. Spatial distributions of (a) NO_x and (b) VOCs emission in the fine domain of CMAQ model.

Fig. 4. Surface synoptic charts provided by Korea Meteorological Administration at 00 UTC 4 and 5 August 2008.

의 기상과 대기질 모델의 spin-up시간을 포함한다. 수반민감도 분석은 8월 5일 15시에 발생한 고농도에 대한 주변지역의 효과를 보기 위해 8월 4일 15시부터 24시간에 대해서 수행하였다.

수반민감도 분석을 위한 수용지는 대구와 부산으로 설정(Fig. 2)하였다. 내륙과 연안에 미치는 해륙풍 순환계의 영향이 다르기 때문에 두 도시에 대한 민감도를 비교분석하였다. 오존농도에 영향을 미치는 민감도 대상물질로 NO_x 를 설정하였다. 비록 VOCs가 오존의 광화학 반응에 미치는 영향도 매우 중요하지만 인간의 활동에 의한 배출원이 대부분인 NO_x 의 영향을 살펴보는 것이 배출량 저감정책과 관련하여 더 중요하다.

결과 및 고찰

고농도 오존사례와 수치모의 결과

8월 4일 발달한 북태평양 고기압은 일본과 한국을 넘어 중국 내륙까지 그 세력이 확장되었다. 8월 5일이 되면서 중국 대륙에서 발달한 열적 저기압에 의해 북태평양 고기압은 세력이 약해졌지만 한반도는

여전히 고기압의 영향권에 있다. 또한, 북태평양 고기압의 가장자리에서 등압선 간격이 넓게 유지되었는데, 그 결과 약한 기압경도로 종관풍의 영향은 미비하였다(Fig. 4). 또한, 약한 종관 기압장하에 해륙풍순환이 연속적으로 발달하였다. 이러한 기상조건과 함께 남동지역의 광범위한 전구물질 배출로 고농도 오존이 발생하였다. Table 3에 남동지역 주요도시에서 관측한 오존농도에 대한 분석을 정리하였다. 대기환경 기준인 8시간 평균 60 ppb를 초과한 시간을 각 도시의 관측소 개수로 평균한 값을 나타내었다. 대구의 경우 3일 모두 5시간 이상의 초과사례가 나타났으며 최고농도 역시 1시간 기준치인 100 ppb를 초과하였다. 8월 5일은 남동지역의 모든 지역에서 오존농도의 8시간 기준을 초과하였으며 61개 관측 지점의 최고농도 평균은 81 ppb로 매우 높았다.

CMAQ의 기본 모사능력을 살펴보기 위해 대구 지역내 4개 지점의 8월 4일-6일의 오존 관측치와 비교하였다(Fig. 5). 3일 모두 일사의 일변화에 의한 전형적인 오존의 일변화 패턴이 나타났으며 수치모의를 통해 이러한 경향성을 잘 모의하였다. 비록 야간의 오존농도를 부분적으로 낮게 모의하지만 인체에 더 유

Table 3. The number of exceeding 60 ppb for ozone concentration averaged during every 8 hours. This value was normalized by the number of observational sites at each city. The values in parenthesis indicate the maximum concentration of ozone

city	number of sites	4 Aug. (hr (ppb))	5 Aug. (hr (ppb))	6 Aug. (hr (ppb))
DG	11	5.7 (110)	8.4 (136)	6.0 (118)
PH	4	0.0 (41)	0.8 (85)	0.0 (38)
US	13	0.0 (55)	0.5 (113)	0.0 (46)
BS	17	4.2 (139)	1.0 (91)	0.0 (84)
CW	7	6.9 (88)	8.9 (108)	4.3 (113)
JJ	3	9.3 (130)	10.7 (132)	7.7 (107)

Fig. 5. Diurnal variations of ozone concentration in Daegu area. The shaded area and red circle indicate observed and CMAQ simulated results, respectively.

해한 주간 오존의 모의는 관측과 유사하였다. 기상모델의 야간 혼합층 모의의 부정확성과 일사가 끝난 직후 오존의 과도한 적정효과 등으로 야간 오존 농도의 정확성이 낮다. 남동지역 모든 관측지점과 모델의 오존 농도에 대한 통계분석 결과 RMSE는 20.7 ppb이고 IOA는 0.881로 나타나 통계적으로 유의한 결과이다.

8월 5일 주간의 오존농도 수평분포를 3시간 간격으로 Fig. 6에 나타내었다. 09 LST는 울산의 온산공단을 제외하면 대부분 지역에서 낮은 오존농도를 보인다. 한반도 중심에 자리한 고기압의 영향으로 해상에는 북동풍이 불었고 울산에서 오전에 발생한 오존이 남서쪽으로 이동하는 모습이다. 12 LST부터 연안의 산업도시와 대구를 중심으로 국지 배출원에 의한 고농도가 나타나기 시작하였다. 오후에 발달한 해풍으로 오존은 해안선을 따라 내륙으로 이동하며 이후 15 LST와 18 LST까지 계속해서 이루어졌다.

NO_x 농도에 대한 시간별 민감도 분석

지상 관측 결과와 모델 수치모의에서 확인된 고농도 오존사례에 대한 주변지역의 NO_x 기여도 분석을 위해 10분마다 계산된 수반민감도 값을 시간별로 살펴보았다. Fig. 7은 대구(사각형 점선)를 수용지로 한 결과이며 제시한 값은 식 (3)을 사용하여 기여농도를 %로 표시하였다. 시간항의 음수값은 8월 5일 15 LST를 기준으로 시간의 역순으로 그 시간과 장소에 존재하는 NO_x 농도가 미치는 영향을 의미한다. -6시에는 3% 미만의 기여도를 가지는 영향지역이 대구의 인접지역에서 나타난다. -12시에는 영향지역이 확대되어 5%이상 기여하고 있으며 북쪽의 도메인 영역 밖에서 유입되는 NO_x 농도에 의한 민감도가 나타났다. -6시와 -12시의 경우 고농도 사례 당일에 배출된 NO_x 농도에 의한 영향으로 해석할 수 있으며 주로 대구 인접지역의 배출원에 의한 영향이 주로 나타났다. -18시가 되면서 대구를 포함하는 인접지역과 동

Fig. 6. Horizontal distributions of surface ozone during day time on 5 August.

Fig. 7. Instantaneous areas of influence of the NO_x concentration with respect to O_3 in Daegu receptor area (dotted square) at -6 h, -12 h, -18 h, and -24 h from the receptor time, 15 LST 5 August.

쪽방향으로 포항까지 이어지는 영역으로 영향지역이 확대되었다. -24시에는 대구 인접지역의 영향보다는 연안지역의 포항과 울산 그리고 내륙의 넓은 지역에서 민감도를 보였다. 특히, 남쪽 연안에서는 부산보다

는 창원과 진주에서 약한 기여도를 보였다. -24시에 나타나는 음의 민감도는 그 지역의 NO_x 농도가 줄어들면 대구의 오존농도는 증가한다고 해석할 수 있다. NO_x 는 주간 광화학 반응으로 오존을 증가시키기도

Fig. 8. Same as Fig. 6 but for Busan as a receptor.

하지만 야간에 적정효과로 감소시키는 역할을 동시에 한다. 그러므로 고농도 사례일 전 날의 NO_x 농도에 의한 오존의 증가와 감소에 영향을 미치는 민감도 지역이 동시에 나타났다. 도시에서 배출된 오염물질은 NO_x 가 풍부하지만 풍하지역에서 희석되고 자연 배출 VOC 등에 의해 VOC-limited로 전환이 일어난다. 이러한 regime 변화에 의해 오존에 대한 기여도가 양에서 음으로 전환되는 영역이 나타난다. 특히, 부호가 전환되어 0이 나타나는 지역은 잠재적인 최대 민감도 지역으로 볼 수 있다(Hakami et al., 2006).

부산(사각형 점선)을 수용지로 설정하여 민감도 분석을 실시한 결과를 Fig. 8에 제시하였다. -6시에는 영향지역이 나타나지 않았고 -12시에는 포항에서 국지적인 민감도를 보였다. 하지만 -18시와 -24시에 포항에서 울산으로 이어지는 지역에서 민감도가 나타나 주로 사례일 전 날 배출된 NO_x 의 영향이 더 중요함을 알 수 있다. -24시에 음의 민감도는 나타나지 않았다.

대구의 오존에 영향을 미치는 지역은 모든 시간대에서 민감도를 보여 고농도 사례일과 전날의 배출원에 의한 영향이 동시에 나타났다. 하지만 부산을 수용지로 할 경우 사례일 당일의 배출효과는 거의 없었다. 이것은 8월 4일과 5일에 나타난 해륙풍순환과

관련이 있다. 두 지역에 모두 4일에 배출된 NO_x 가 5일의 오존에 영향을 미치는 것은 해풍과 육풍이 반복되어 전구물질이 잔류층에 존재하거나 해상으로 빠져나간 뒤 다음날 해풍진입으로 영향을 주기 때문이다. 5일에 배출된 전구물질의 영향은 대구의 경우 내륙에 위치하여 연안의 NO_x 가 해풍에 의해 수송되어 광화학 반응에 참여한다. 하지만 부산은 연안에 위치하여 해풍에 의해 오염물질이 대부분 내륙으로 수송되기 때문에 주변지역에서 당일 배출된 NO_x 의 영향은 거의 없다.

대부분의 오염 배출원이 지표부근에 위치하지만 대기경계층의 일변화와 연직 혼합에 의해 상층에서 수송되는 효과도 중요하다. 입체적인 민감도 분석을 위해 남-북 및 동-서 단면으로 영향지역을 살펴보았다. Fig. 9는 대구를 중심으로 남-북(a)와 동-서(b)단면에 대한 영향지역 분포이다. 수용지 대구는 화살표로 표시하였다. 먼저 남북 단면의 -1 h결과는 14시에 발달한 경계층과 고기압 침강효과로 대구지역 상층에서 영향지역이 약 2 km 고도까지 나타난다. -6시인 5일 오전 9시에는 수평 분석에서 나타난 경계 유입에 대한 민감도가 크게 나타났다. -18시가 되면 북쪽과 남쪽으로 영향지역이 확대된다. 수평 분석에서 대구의 남동쪽으로 큰 민감도를 보였기 때문에 여기서는 남

Fig. 9. Cross-sectional distributions for instantaneous areas of influence of the NO_x concentration with respect to O_3 in Daegu receptor area (dotted square) at -1 h, -6 h, -12 h, and -18 h from the receptor time, 15 LST 5 August. (a) Left and (b) right panel indicate latitude-height and longitude-height cross section from south to north and west to north, respectively. The receptor area are marked by wide arrow.

쪽으로 크게 확대된 모습이 안보이지만 단면을 동쪽으로 이동할 경우 넓은 범위에서 영향지역이 양과음으로 분포하였다(그림 생략). 동-서 단면에서 -1 h에 남-북단면의 그것과 같은 원인으로 민감도가 나타나며 -6시는 포항배출원의 수송효과가 5일 15시에 대구까지 미치지 못하여 동쪽으로 큰 민감도는 나타나지 않았다. 하지만 -12시인 5일 03 LST에 대구의 인접지역 지표 부근의 NO_x 농도에 대해 높은 민감도를 보였다. 야간 대기 안정으로 낮은 경계층이 영향지역을 지표 근처에 국한시킨 원인으로 이해할 수 있다. 4일 21 LST(-18시)의 결과를 보면 대구의 지표 근처에서는 거의 민감도가 나타나지 않고 경계층 고도 근처와 동쪽과 연직으로 넓은 지역에서 약 5%

이상으로 높은 기여를 하였다. 이상의 결과를 볼 때, 대구의 지표 오존농도에 영향을 미치는 NO_x 농도 효과는 지표부근 수송뿐 아니라 경계층 발달의 일변화와 함께 나타나는 상층의 수송과 경계에서 유입되는 NO_x 의 영향도 중요하다.

분석 대상 사례일에는 남서 및 서풍이 발달하지 않아 부산의 서쪽으로 광양, 진주, 창원등의 배출원에 의한 민감도는 나타나지 않았다. 그래서 Fig. 10에 동-서 단면은 생략하고 남-북 단면만 분석하였다. -1 h에는 부산에 해풍이 발달하여 부산에서 약간 떨어진 지역의 상층에서 매우 약한 민감도를 보인다. -6시에는 부산의 북쪽으로 오전시간에 지배적이었던 북동풍에 의한 NO_x 수송으로 영향지역이 나타난다. 하

Fig. 10. Same as Fig. 8 but for Busan as a receptor. Only the latitude-height cross section is displayed because there were no sensitive area in longitude-height cross section.

지만 대구에 비해 1% 미만으로 매우 낮은 기여도를 보인다. 수평 분석에서는 이 시간까지 영향지역이 나타나지 않았지만 단면 분석에서 비록 기여정도는 낮지만 8월 5일 오전의 북동풍과 오후의 해풍 발달에 대한 영향이 상층에서 나타났다. -12시부터 북쪽으로 영향지역이 넓어지며 -18시에 5% 이상의 높은 민감도가 나타나 4일에 배출된 NO_x 영향이 더 기여도가 높았다.

행정구역별 기여도 평가

이상의 결과에서 매 시간별 NO_x 농도에 대한 민감도를 분석하였다. 하지만, 이는 해륙풍순환에 의한 기류의 영향이 고려된 것으로 계산영역에서 나타난 영향지역은 배출된 NO_x 농도의 순간적인 위치에 따른 민감도가 반영된다. 그러므로 식 (2)와 (3)에서 파라미터를 고정된 격자에 대한 배출량으로 설정할 경

우 NO_x 배출량 (Fig. 3(a))에 대한 수용지에서 오존에 대한 민감도를 분석할 수 있다.

내륙과 연안의 고농도 오존에 대한 NO_x 배출량의 민감도를 행정구역별로 산정해 보았다. 계산 영역 전체의 민감도 계수를 %로 나타낸 결과에 대해 행정구역별 총합이 차지하는 비율을 제시하였다. 공간적인 분포는 Fig. 11에 나타내었고 기여도 순위별 % 값은 Table 4에 정리하였다. 대구를 수용지로 한 결과에서 포항시의 기여도가 54.0%로 가장 높았으나 부산을 수용지로 할 경우 울주군에서 52.1%로 두 실험 모두 한 지역의 배출원이 절반 이상의 기여도를 나타낸다. 포항의 국가산업단지 및 제철소와 울주군에 위치한 온산 석유화학단지의 고정 배출원에 의한 기여가 가장 컸다. 나머지 행정구역별 기여도에서 대구에 영향을 미친 지역은 경주(10.1%)와 양산(7.9%)순이며 부산의 오존에 대한 기여도는 울주군을 제외한 울산이 (27.1%)와 경주(13.2%)를 기록하였다. 산업시설이 비교적 적은 경주의 기여도가 두 수용지 모두에 영향을 미친 이유는 포항과 울산 사이의 고속국도의 이동오염원 NO_x 배출량이 해륙풍 순환으로 부산과 대구에 공통적으로 기여했기 때문이다.

요약 및 결론

본 연구에서는 한반도 남동지역에서 발생한 고농도 오존사례에 대해 내륙의 대구와 연안의 부산을 각각 수용지로 하여 NO_x 에 대한 수반민감도 분석을 실시하였다. 민감도 분석을 통해 각 수용지의 고농도 오존을 유발한 공간적인 영향지역을 파악하였고 시군구별 기여도를 정량적으로 평가하였다.

사례일은 여름철 북태평양 고기압의 영향으로 한반도에 고기압 중심이 자리하며 남동 연안으로 북동풍의 종관풍이 약하게 불었다. 연안으로는 해륙풍 순환이 발생하여 풍향과 풍속의 일주기가 연속적으로 나타났다. 이러한 기상상태에서 강한 일사와 함께 남동 지역의 대부분의 산업도시에서 오존의 환경 기준치를 초과하였다. WRF-CMAQ 모델링 시스템은 연안과 내륙의 국지풍계를 잘 모의하였으며 오존의 주간 최고농도 역시 관측과 유사한 결과를 보여 통계적으로도 유의하였다.

NO_x 에 대한 오존 민감도 분석으로 사례일 기준 -24 시간동안의 영향지역 변화를 살펴보았다. 대구를 수용지로 한 경우 사례일 당일과 전날에 대한 민감도

Fig. 11. Distributions of the contribution rate which is the ratio of sensitivity for each administrative district to total sensitivity of all domain area. Two dotted boxes indicate the receptor area, (a) Daegu and (b) Busan. The administrative districts showing the highest contribution rate are bounded by bold black line.

Table 4. Same value as Fig. 10, and sorted in descending order of contribution rate for each administrative district

No.	Daegu		Busan	
	administrative district	contribution rate (%)	administrative district	contribution rate (%)
1	Pohang	54.0	Ulsan	52.1
2	Gyeongju	10.1	Buk-gu, Ulsan	15.0
3	Yangsan	7.9	Gyeongju	13.2
4	Ulsan	5.0	Jung-gu, Ulsan	11.5
5	Buk-gu, Ulsan	4.7	Pohang	4.5
6	Gimhae	4.1	Yangsan	1.1
7	Miryang	3.0	Miryang	0.7
8	Jung-gu, Ulsan	2.5	Nam-gu, Ulsan	0.5
9	Gyeongsan	1.9	Gimhae	0.4
10	Nam-gu, Ulsan	1.6	Changwon	0.1

지역에 모두 나타났으며 영역이 구분되는 특징이 있었다. 반면, 부산을 수용지로 한 민감도 분석은 해풍의 직접적인 영향으로 사례일 당일 보다는 전 날인 8월 4일의 NO_x 농도에 대한 영향지역이 더 중요하였다. 이 두 지역의 민감도차이는 향후 기류변화에 대한 화학반응 특징을 좀 더 살펴봐야 할 것이다. 수평 분포와 함께 연직의 영향지역 분포를 살펴봄으로써 대기경계층의 일변화와 고기압 침강 등에 의한 연직 방향에 대한 민감도 지역의 변화를 볼 수 있었다. 또한, 지표 근처의 전구물질 수송과 함께 상층의 이류 현상에 의한 오존 농도의 민감도 역시 중요함을 수반민감도의 연직분석을 통해 밝혔다.

전체 기여정도에 대한 각 시군구별 NO_x 배출량의 정량적 기여정도를 백분율로 제시하였다. 그 결과 대

구를 수용지로 할 경우 포항의 기여도가 가장 높았으며 부산의 경우 울주군의 영향이 가장 컸다. 북동-남동-남으로 순환하는 해륙풍의 영향으로 경주의 이동 배출원은 대구와 부산 모두에 각각 10.1%와 13.2% 기여하였다. 비록 하나의 고농도 사례를 통한 연구지만 정체성 고기압 영향으로 발달하는 해륙풍 순환은 한반도 남동지역에서 고농도 오존 사례를 유발하는 전형적인 기상조건이다. 이상의 결과들을 통해 수용지 중심의 민감도 분석을 기상학적인 전구물질의 수송과 더불어 제시하였으며 내륙과 연안에 영향을 주는 시간 규모가 다름을 밝혔다. 또한 행정구역별 기여도를 정량적으로 제시하여 지자체별 배출량 저감정책에 필요한 구체적인 참고자료로 활용 가능하다.

또한 본 연구는 초기 전구 물질 중 민감도가 크며,

관측 자료의 정확도가 높은 NO_x 를 중심으로 이루어졌다. 그러나 NO_x 와 함께 오존 생성 광화학 반응에 참여하는 VOCs에 대한 민감도 역시 고려되어야 한다. 또한 수반 모형의 장점 중에 하나인 관측 자료를 통한 배출원 정보 정확도 향상이라는 측면에서, 남동 지역의 배출원을 관측 자료를 통하여 역추적하여 배출원 정확도를 향상시키는 연구가 병행되어야 할 것이다.

감사의 글

본 연구는 2012년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업(2012R1A1A4A01012223)입니다.

References

- Byun, D.W. and Ching, J.K.S., 1999, Science algorithms of the EPA models-3 Community Multi-scale Air Quality (CMAQ) modeling system. EPA report, EPA/ 600/R-99/030, NERL, Research Triangle Park, NC.
- Cohan, D.S., Hamami, A., Hu, Y., and Russell, A.G., 2005, Nonlinear response of ozone to emissions: source apportionment and sensitivity analysis. *Environmental Science & Technology*, 39, 6739-6748.
- Dunker, A.M., 1984, The decoupled direct method for calculating sensitivity coefficients in chemical kinetics. *Journal of Chemical Physics*, 81, 2385-2393.
- Dunker, A.M., Yarwood, G., Ortman, J.P., and Wilson, G.M., 2002, Comparison of source apportion and source sensitivity of ozone in a three-dimensional air quality model. *Environmental Science & Technology*, 36, 2953-2964.
- Errico, R.M., 1997, What is an adjoint model? *Bulletin of the American Meteorological Society*, 78, 2577-2591.
- Hakami, A., Odman, M.T., and Russell, A.G., 2003, High-order, direct sensitivity analysis of multidimensional air quality models. *Environmental Science & Technology*, 36, 2442-2452.
- Hakami, A., Seinfeld, J.H., Chai, T., Tang, Y., Carmichael, G.R., and Sandu, A., 2006, Adjoint sensitivity analysis of ozone nonattainment over the continental United States. *Environmental Science & Technology*, 40, 3855-3864.
- Hakami, A., Henze, D.K., Seinfeld, J.H., Singh, K., Sandu, A., Kim, S., Byun, D., and Li, Q., 2007, The adjoint of CMAQ. *Environmental Science & Technology*, 41, 7807-7817.
- Kim, S. and Lee C.-B., 2011, Estimating influence of local and neighborhood emissions on ozone concentrations over the Kwang-Yang bay based on air quality simulations for a 2010 June episode. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 25, 504-522. (in Korean)
- Lee, S.-H., 2012, Analysis of the Impact of QuikSCAT and ASCAT Sea Wind Data Assimilation on the Prediction of Regional Wind Field near Coastal Area. *Journal of Korean Earth Science Society*, 33, 309-319. (in Korean)
- Lee, S.-H., Lee, H.-W., Kim, Y.-K., Jeon, W.-B., Choi, H.-J., and Kim, D.-H., 2011, Impact of continuously varied SST on land-sea breezes and ozone concentration over south-western coast of Korea. *Atmospheric Environment*, 45, 6439-6450.
- Lee, S.-H., Sung, K.-H., and Lee, H.W., 2008, Impact of regional trans-boundary ozone associated with complex terrain on urban air quality. *Atmospheric Environment*, 42, 7384-7396.
- Lee, S.-H., and Yun, S.-H., 2011, Impact of Meteorological Wind Fields Average on Predicting Volcanic Tephra Dispersion of Mt. Baekdu. *Journal of Korean Earth Science Society*, 32, 360-372. (in Korean)
- Moon, Y.-S., Lim, Y.-K., Hong, S.-W., and Chang, E.-M., 2013, Verification and Estimation of the Contributed Concentration of CH_4 Emissions Using the WRF-CMAQ Model in Korea, 34, 209-223. (in Korean)
- National Institute of Environmental Research, 2011, Annual report of air quality in Korea 2010. Ministry of Environment, 33 p. (in Korean)
- Park, S.-Y., Lee, H.W., Lee, S.-H., Lee, K.O., and Ji H., 2011, Impact of the variation of sea breeze penetration due to terrain complexity on PBL development. *Journal of the Environmental Sciences*, 20, 275-289. (in Korean)
- Pinder, R. and Hakami, A., 2011, Development and applications of CMAQ adjoint. 10th Annual CMAS Workshop, 25 Oct.
- Sandu, A., Daescu, D.N., and Carmichael, G.R., 2005, Adjoint sensitivity analysis of regional air quality models. *Journal of Computational Physics*, 204, 222-252.
- Skamarock, W.C., Klemp, J.B., Dudhia, J., Gill, D.O., Barker, D.M., Duda, M.G., Huang, X.Y., Wang, W., and Powers, J.G., 2008, A description of the advanced research WRF version 3, NCAR Technical Note, NCAR/TN-475+STR.
- University of Houston, 2009, Air quality modeling of TexAQs-II episodes with data assimilation, TERC Project H98.

2013년 10월 25일 접수

2013년 11월 12일 수정원고 접수

2013년 11월 25일 채택