

광화학 확산모델 적용을 위한 수도권지역의 대기오염물질 배출량 산출

Estimation of Air Pollutant Emissions for the Application of Photochemical Dispersion Model in the Seoul Metropolitan Area

이종범 · 김용국 · 김태우 · 방소영 · 정유정

강원대학교 환경학과

(1996년 11월 1일 접수, 1997년 3월 18일 채택)

Chong Bum Lee, Yong Goog Kim, Tae Woo Kim, So Young Bang, Yu Jung Chung

Department of Environmental Science, Kangwon National University

(Received 1 November 1996; accepted 18 March 1997)

Abstract

An air pollutant emission inventory system for the input preparations of photochemical dispersion model was developed. Using the system, anthropogenic emissions as well as biogenic emissions in the Seoul metropolitan area were calculated. Anthropogenic emission by fuel combustion using regional consumption data, and the emission of VOC which was emitted from oil storage tanks, bulk terminals, gasoline service stations, and laundries and so forth was estimated. The biogenic emission was estimated based upon meteorological data and the distribution of land use type in the study area.

The anthropogenic emission of pollutants was highest in Seoul, and the second highest in Inchon. TSP and SO₂ were found large quantities during the winter due to increased consumption of heating oil. NOx and THC were emitted without seasonal variation.

Among biogenic emissions, PAR was very common while NO was the least common. PAR, OLE, and ALD2 were emitted in large volumes in coniferous forest areas, while ISOP was emitted in deciduous forest areas. Generally, most biogenic emissions increased during daytime, and peaked between one and two o' clock. Because of strong solar radiation, emission during the summer was high.

Biogenic NO emissions were found to be lower compared to anthropogenic emissions, and other VOC was indicated relatively high. In the study area, among biogenic emissions PAR was found to be 3 times, OLE 8 times, and ALD2 12 times more common than among anthropogenic emissions.

Key words : emission, 3-D photochemical model, biogenic emission

1. 서 론

대기오염물질의 배출량과 배출원의 분포는 대기의 기
상현상과 더불어 대기질에 직접 영향을 미친다. 대기질

개선을 위한 관리 측면에서 배출량 및 배출원의 파악은
연료의 대체, 방지시설의 확충 및 관계법령의 강화를 위
한 저감대책 마련을 위하여 중요하며, 대기오염 확산모
델을 이용한 대기오염농도 예측에도 반드시 필요하다.
특히 서울을 중심으로 한 수도권에는 많은 인구 및 산업

시설이 밀집되어 있어 다양하고도 막대한 양의 오염물질이 배출되므로 대기질 개선을 위한 기초자료가 충분히 마련되어야 한다.

지금까지 사용되어 온 대기확산 모델은 가우시안 풀룸, 또는 가우시안 퍼프식을 기초로 하는 확산방정식을 사용하므로 대기오염물질의 화학반응을 고려할 수 없는 단점이 있다.

따라서 대기 중에서 반응이 작은 아황산가스(SO_2)나 총 부유분진(TSP) 등 주로 1차오염물질을 대상으로 모델링이 수행되어 왔으며, 이를 위한 배출량 입력자료도 비교적 간단한 방법으로 산출된다.

그러나 도시지역에서 문제가 되고 있는 오존과 같은 오염물질을 대상으로 대기질관리를 위한 모델을 선정할 경우에는 복잡하고 비선형적인 광화학반응 메커니즘을 충분히 포함할 수 있는 광화학 확산모델을 선정해야 하며, 모델실행을 위해서는 질소산화물(NO_x)이나 탄화수소(HC) 등 광화학반응에 관련된 오염물질의 배출량 자료가 필요하다. 특히 HC 중에서도 휘발성 유기화합물(VOC)은 반응성이 크고 그 종류가 매우 많으므로 VOC에 대한 종별 배출량 자료가 마련되어야 한다.

최근 조사된 바에 의하면 수목으로부터 배출되는 물질로는 일산화질소(NO)를 비롯하여 여러 가지 VOC가 있으며(Corchnoy *et al.*, 1992; Fontan *et al.*, 1992; Lamb *et al.*, 1985), 그 배출량 또한 매우 많은 것으로 알려져 있다(Lamb *et al.*, 1987). 특히 대부분의 물질은 오존과 같은 광화학 오염물질의 생성에 있어서 빠른 반응을 나타낼 뿐만 아니라(Chameides, 1988) 인위적인 오염물질 배출이 적은 시골지역에서도 높은 오존농도를 나타내 그 지역에 피해를 미칠 수 있으므로(Trainer *et al.*, 1987) 광화학 오염물질을 대상으로 모델을 적용할 경우에는 수목에 의한 자연배출량도 반드시 고려되어야 한다.

한편, 대기 중에 존재하는 오염물질은 그 종류가 매우 많을 뿐만 아니라 반응과정이 매우 복잡하므로 광화학 확산모델에서는 광화학 반응과정을 포함시키기 위해 모델의 규모에 적당하도록 가급적 단순화된 화학반응 메커니즘을 사용한다. 이때 일반적인 배출량조사에서 언어지는 환경기준물질 이외에도 반응과정에 관여하는 VOC 등의 배출량이 필요하며, 더욱이 이들 배출량은 공간분포 및 시간변화가 고려되어야 한다. 또한 광화학 확산모델에서 사용하는 화학반응 메커니즘은 모델마다 다를 수 있으므로 VOC 등의 배출량 입력자료는 모델에서 요구하는 물질과 일치하여야 한다.

본 연구에서는 광화학 확산모델 중 UAM (Urban Airshed Model) (Morris and Myers, 1990)의 배출량 입력자료를 생성하는 배출량 산출시스템을 개발하고, 이를 이용하여 우리나라 중부지방의 배출량 특징을 조사하는 것을 목적으로 하였다. UAM은 3차원 광화학 확산모델로서 화학반응 메커니즘으로는 유기화합물의 탄소결합구조를 기초로 화학종을 분류하여 반응단계를 정리한 CB-IV (Carbon Bond IV chemical mechanism) (Gery *et al.*, 1988)를 사용한다. CB-IV는 81개의 기체상 화학반응, 33개의 화학종을 포함하고 있다.

본 연구에서는 1994년의 지역별 연료소비량 자료를 이용하여 연료의 연소에 의한 배출량과 정유사 및 저유소의 유류 저장시설과 주유소 및 세탁소 등으로부터 대기 중으로 배출되는 VOC 배출량을 산출하였고, 또한 수목으로부터 배출되는 자연배출량도 산출하였다. 한편, 각 물질은 연간 총 배출량으로 산정하되 광화학 확산모델에 사용하기 위하여 3차원 공간상의 각 격자에서 매시간별로 배출되는 오염물질을 산출할 수 있도록 시스템을 작성하였다.

2. 대 상

2.1 대상영역

본 연구에서는 우리나라 서울과 수도권을 충분히 포함할 뿐만 아니라 그 영향권역까지도 포함할 수 있는 그림 1과 같은 영역을 설정하였다. 배출량 산출 영역의 원점(남서쪽 코너)은 $36^{\circ}32'56''\text{N}$, $126^{\circ}03'47''\text{E}$ 이며, 수평크기는 동서로는 황해의 일부를 포함한 인천광역시로부터 강원도 일부지역까지, 남북으로는 충청도 일부지역으로부터 경기도 북부까지 $180\text{ km} \times 140\text{ km}$ 로 하였다. 각 격자의 크기는 4 km 이며, 총 격자의 수는 45×35 개이다.

2.2 대상오염물질

본 연구에서는 배출량 입력자료 중 인위적 배출량으로서 NO_x , SO_x , CO , TSP 및 THC 등의 배출량을 산출하였으며 이로부터 NO_2 , NO , CO , SO_2 등 4가지 기준 오염물질과 OLE, PAR, TOL, XYL, FORM, ALD2, ETH, MEOH, ETOH, ISOP 등 10가지 VOC 배출량을 계산하였다. 또한 자연배출량으로는 NO, PAR, OLE, ALD2, ISOP 등 5가지 VOC 배출량을 산출하였다. 표 1은 CB-IV에서 분류하고 있는 오염물질과 각 분자량을 나타낸 것이다.

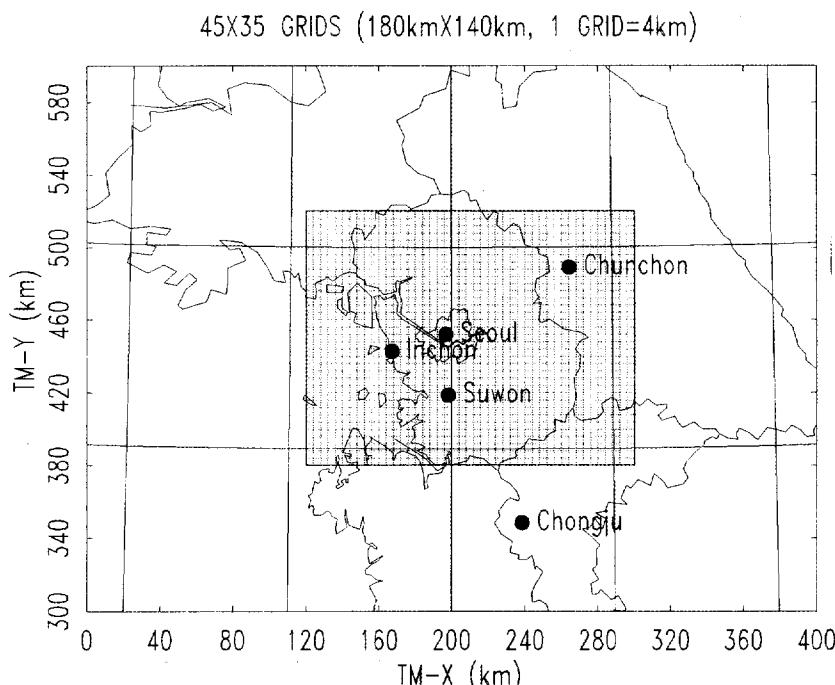


Fig. 1. Map of the central part of Korea and the study area (inner rectangle).

Table 1. Chemical species recognized by the CB-IV mechanism, with molecular weights (Gery et al., 1988).

UAM Species	Species Name	Molecular Weight (g/mole)
NO	Nitric Oxide	30
NO ₂	Nitrogen Dioxide	46
NOx	Total Nitrogen Oxides (NO+NO ₂ +N ₂ O ₅ +NO ₃)	46
CO	Carbon Monoxide	28
SO ₂	Sulfur Dioxide	64
SOx	Total Sulfur Oxides	64
THC	Total Hydrocarbons	16
TSP	Aerosols (Particulates)	1
OLE	Olefinic Carbon Bond (C=C)	32
PAR	Parafinic Carbon Bond (C-C)	16
TOL	Toluene (C ₆ H ₅ -CH ₃)	112
XYL	Xylene (C ₆ H ₅ -(CH ₃) ₂)	128
FORM	Formaldehyde (CH ₂ =O)	16
ALD2	High Molecular Weight Aldehydes (RCHO, R≠H)	32
ETH	Ethene (CH ₂ =CH ₂)	32
MEOH	Methanol	16
ETOH	Ethanol	32
ISOP	Isoprene	80

3. 인위적인 배출량 산출방법

인간의 활동에 의한 인위적 오염물질의 배출원은 크게

이동오염원과 고정오염원으로 나눌 수 있다. 이동오염원에는 자동차나 철도, 항공기 및 선박 등의 선오염원이 있으며, 고정오염원에는 발전소 및 산업공정과정, 연료

의 연소시설과 같은 점오염원과 가정이나 산업지역의 난방, 노천소각 및 휘발성 오염물질의 증발과 같은 면오염원이 있다. 산업용 연료의 대부분은 점오염원에서 사용되며, 점오염원에 대한 연료사용량은 환경부에서 작성한 '대기오염물질 배출시설 조사표'를 통하여 자료수집이 이루어지고 있다. 또한 이 조사자료에는 연료사용량 뿐만 아니라 굴뚝의 높이, 내경, 연기의 배출속도 및 배출온도 등이 포함되어 있으므로 배출시의 기상조건을 고려하여 굴뚝의 유효고도를 계산할 수 있다. 각 굴뚝의 유효고도가 계산되면 5층으로 나누어진 UAM의 연적 격자중 어느 높이의 격자에서 오염물질이 배출되는가를 정하게 된다. 그러나 일부를 제외하면 조사자료가 부족할 뿐만 아니라 작성된 자료의 신뢰도가 매우 낮아 실용적으로 활용하기에는 많은 문제가 있다. 따라서 모든 오염원은 면오염원과 같이 UAM의 최하층 격자에서 배출되는 것으로 취급하였다.

한편, UAM은 기상 및 오염물질 배출량 등의 입력자료를 산출하기 위하여 여러 가지 전처리시스템을 이용하도록 구현되어 있다. 이 중에서 배출량 산출을 위한 전처리시스템인 EPS 2.0 (Emission Preprocessor System Version 2.0) (SAI, 1992)은 대기 중으로 배출되는 오염물질의 인위적인 배출뿐만 아니라 자연배출량 까지도 산출할 수 있도록 설계되어 있다. 그러나 EPS 2.0은 미국의 배출목록 작성체계에 초점을 맞춘 것이기 때문에 그 구조가 복잡할 뿐만 아니라 국내에서 입력하기 어려운 많은 정보를 입력해야 하므로 현실적으로는 실행이 불가능하다. 따라서 독립적으로 각 오염원별 배출량을 산출하되, 국내에서 얻기 힘든 VOC 배출계수 등은 EPS 2.0을 참고하였다.

3. 1 면오염원 및 점오염원

3. 1. 1 연료사용량

면오염원 및 점오염원의 배출량조사를 위하여 필요한 각종 통계자료는 1994년을 대상으로 하여 행정구역별 자료를 수집하여 입력하였으며 대상지역내의 행정구역은 서울과 인천광역시는 구를 기본단위로, 그 이외는 시와 군을 기본단위(1995년 행정구역명 기준)로 조사하였다. 조사 지역내의 행정구역 기본단위(이하 소지역으로 표기함) 수는 북한지역 5개를 합하여 총 87개이다. 여기서 사용된 연료는 면오염원뿐만 아니라 대규모 점오염원에서 사용되는 연료도 포함되므로 별도의 점오염원 연료사용량자료는 사용하지 않았다.

유류에 대한 연간 사용량은 석유개발공사에서 집계한 시군별, 수요처별, 제품별 판매현황(1994년 전산출력 자료) 자료를 참고하였고, 석탄사용량은 1995년에 발행된 대한석탄협회의 연탄소비현황 자료를 참고하여 휘발유, 석유(동유), 경유, BC유, LPG 및 연탄 등 6가지 연료에 대하여 소지역별 연간 총 연료사용량을 조사하였다. 그러나 북한지역은 자료의 입수가 곤란하므로 연탄만을 사용한 것으로 간주하고 인근지역인 연천군의 단위 면적당 연탄사용량과 같은 양을 소비하는 것으로 가정하였다. 또한 각 연료에 대한 산업부문별 사용량은 서울, 인천, 경기, 강원, 충북, 충남의 6개 시도지역(이하 대지역으로 표기함)에 대하여 종합한 1994년 석유류 수급통계를 참고하여 4개 산업부문으로 나누었다.

한편, 조사된 자료는 1994년의 연간 총 사용량이므로 석유개발공사의 월간수급통계(1995년 5월)를 참고하여 대지역에 대한 연료종류별 월 사용량으로부터 월별비율을 산출하여 해당되는 소지역별로 월별 연료사용량을 산출하였다.

위의 산출과정은 다음의 식 (1) 및 (2)와 같다.

$$PMF_{ijk} = \frac{FML_{ij}}{\sum_{j=1}^{12} FML_{ij}} \times PF_{ik} \quad (1)$$

$$FM_{ijk} = FYS_i \times PMF_{ijk} \quad (2)$$

여기서 첨자 i, j, k 는 각각 연료의 종류, 월, 산업부문을 뜻한다. 식 (1)의 PMF 는 각 산업부문의 월별 연료사용 비율을 나타낸 것으로 대지역의 연간 연료사용량에 대한 월별 사용량(FML)의 비율에 산업부문별 연료사용비율(PF)을 곱하여 계산된다. 따라서 소지역의 산업부문별 월별 연료사용량(FM)은 식 (2)로부터 계산할 수 있다. 여기서 FYS 는 소지역의 연간 연료사용량이다. 또한 UAM 의 실행을 위해서는 시간별 배출량이 입력되어야 하므로 매월 사용량(FM)은 일별로 균등하게 배분되어 사용된다고 가정한 1일 사용량에 그림 2와 같이 산업부문별로 하루중의 t 시간에 대한 비율(HF)을 가정하여 식 (3)에 의하여 시간별 연료사용량을 계산하였다.

$$FA_{ikt} = \frac{FM_{ijk}}{ND_j} \times HF_{kt} \quad (3)$$

여기에서 FA 는 소지역별, 시간별, 산업부문별 연료사용량이며, ND 는 매월의 날짜 수에 해당된다.

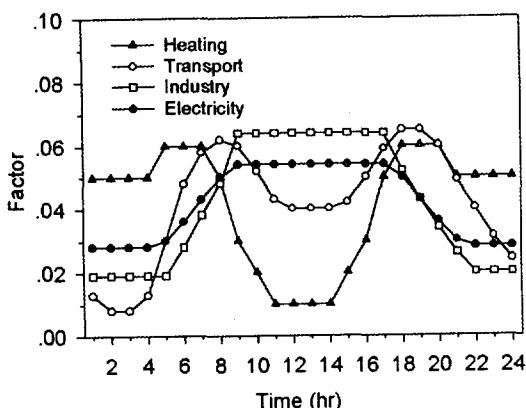


Fig. 2. Diurnal variations of fuel consumption for each industrial part.

3.1.2 대기오염물질 배출계수

연료의 연소에 의한 대기오염물질 배출계수는 배출량을 파악하는데 있어서 매우 중요하다. 우리나라에서는 국립환경연구원을 중심으로 1980년 이후부터 연구되기 시작했으며, 최근의 연구로는 홍민선 등(1993)의 교통시스템에 따른 배출량에 관한 연구, 조강래 등(1993)의 자동차 배출량에 관한 연구, 국립환경연구원(1994b)의 대기오염물질 배출량 허용기준설정을 위한 조사연구 등이 있다. 이를 대부분은 자동차나 대형 점오염원의 연구에 관한 것으로 앞으로도 다양한 오염원에 대해 다양하고 상세한 조사연구가 필요하다. 특히 사용하고 있는 연료의 성분이나 배출시설 등은 해마다 다를 수 있으므로 지속적인 조사연구 및 자료관리가 수행되어야 한다. 본 연구에서는 국립환경연구원(1995a)에서 작성한 1차 오염물질(SOx, NOx, TSP, THC, CO)의 8가지 연료별, 산업부문별 배출계수를 이용하였다. 이때 NO와 NO₂는 각각 NOx 배출의 90%와 10%를 차지하는 것으로 가정하였으며, SO₂는 SOx 배출의 97%라고 가정하였다(SAI, 1992).

한편, 오염원으로부터 배출되는 오염물질 중 VOC는 광화학반응에 관여하는 중요한 물질로 업종별 배출시설, 연료의 종류 등에 따라 매우 다양하다. 국내의 경우 이에 대한 VOC 배출계수는 조사된 자료가 없으므로 본 연구에서는 EPS 2.0에서 제공하고 있는 산업부문의 THC 배출에 대한 평균 VOC 분할계수를 적용하였다. 표 2는 THC에 대한 각 VOC 종류별 분할계수를 나타낸 것으로 그램단위 THC를 몰단위 VOC로 환산한다.

Table 2. Split factors of each VOC species for area and point source (SAI, 1992).

VOC Species	Split Factor
OLE	0.190E-02
PAR	0.264E-01
TOL	0.593E-03
XYL	0.398E-03
FORM	0.525E-03
ALD2	0.761E-03
ETH	0.129E-02
MEOH	0.437E-03
ETOH	0.295E-03
ISOP	0.587E-04

3.1.3 행정구역별, 격자별 배출량 산정

행정구역별 오염물질 배출량(QAR)은 다음의 식 (4)와 같이 해당구역에서 사용된 산업부문별 연료사용량(FA)에 산업부문별 오염물질 배출계수(EF)를 곱하여 계산할 수 있다. 이 과정을 모든 대상연료 및 산업부문에 대해 수행하면 p 오염물질에 대한 배출량이 산정된다.

한편, UAM에서는 몰단위의 배출량을 입력해야 하므로 배출량을 오염물질의 분자량(MW)으로 나누었다. 또한 각 VOC 배출량은 위에서 산정된 THC 배출량에 표 2의 분할계수를 곱하여 산출하였다.

$$QAR_{pt} = \frac{\sum_i \sum_k (FA_{ikt} \times EF_{ikp})}{MW_p} \quad (4)$$

격자별 오염물질 배출량(QAG) 산정은 식 (4)에서 계산된 행정구역별 오염물질 배출량과 격자내 행정구역 점유율로부터 다음의 식 (5)와 같이 계산할 수 있다. 여기서 AR 은 소지역 i 의 전체 면적이며, AG 는 격자 한 개의 면적이고, AF 는 소지역 i 에 해당 격자를 차지하고 있는 점유율이다.

$$QAG_{pi} = \sum_i (QAR_{ipt} \times \frac{AG}{AR_i} \times AF_i) \quad (5)$$

3.2 선오염원

자동차에서 배출되는 오염물질을 산출하기 위한 시간별 각 연료의 소비량은 식 (1)부터 식 (3)에 제시한 과정과 동일한 방법으로 구한다. 차종별로는 다음을 가정하였다. 수송부문의 연료는 모두 자동차에서 사용되는 것으로 가정하였으며, 자가용 및 오토바이는 모든 휘발유를, 택시는 모든 LPG를 사용하는 것으로 하였다. 경유는 트럭 및 버스가 모두 소비하되 각각을 소형 및 대

형으로 구분하고, 중형은 대형에 포함시켰다. 또한 해당 연료를 소비하는 전체 차량의 등록대수에 대한 차종별 등록대수 비율을 곱함으로써 차종별 연료사용량을 계산하였다.

식 (6)은 각 차종에 대한 연료사용량(FL)을 나타낸 것으로 FA_{it} 는 식 (3)에서 계산된 연료소비량 중 수송부문의 연료 i 에 대한 시간별 사용량을 나타낸 것이다. 또한 ΣVN_i 는 i 연료를 사용하는 자동차의 소지역별 전체 등록대수이고, VN_v 는 차종 v 의 등록대수이다.

$$FL_{vt} = \frac{VN_v}{\sum_i VN_i} \times FA_{it} \quad (6)$$

차종별 총 도로주행거리(VKT)는 식 (7)과 같이 위의 차종별 연료사용량에 차종별 연비(km/l) ($VKTL$)자료를 곱하여 계산하였다.

$$VKT_{vt} = FL_{vt} \times VKTL_v \quad (7)$$

지역별 선오염원 배출량(QLR)은 위의 식 (7)에서 계산된 차종별 총 도로주행거리에 식 (8)과 같이 차종별 오염물질 배출계수(g/km)를 곱하고 전체 차종의 배출량을 합한 후 몰단위로 변환하기 위하여 물질별 분자량으로 나누었다. 자동차의 배출계수는 국립환경연구원의 자료를 이용한 장영기 등(1995)의 연구를 참고하였다. 이때 배출계수는 자동차의 주행속도에 따른 함수가 되므로 서울 및 인천은 15.7 km/h를 사용하였고 기타지역은 24.4 km/h를 적용하였다(국립환경연구원, 1994a). 또한 자동차로부터 배출되는 VOC는 THC의 그램단위 배출량에 EPS 2.0에서 제공하는 표 3의 분할계수를 적용하여 산출하였다.

$$QLR_{pt} = \frac{\sum_i (VKT_{vt} \times EF_{vp})}{MW_p} \quad (8)$$

격자별 오염물질 배출량(QLG)은 위에서 계산한 지역별 오염물질 배출량에 행정구역의 총 차선길이(LR)에 대한 격자내 행정구역의 차선길이(LG) 비율을 곱하여 식 (9)로부터 계산하였다. 이때 차선의 길이는 지도로부터 측정하였으며, 왕복 2차선 도로로 환산하여 적용하였다.

$$QLG_{pt} = \sum_i \left(QLR_{ipi} \times \frac{LG_i}{LR_i} \right) \quad (9)$$

3.3 정유사, 저유소, 주유소 및 세탁소로부터의 VOC 배출량

국립환경연구원(1995b)에서는 1994년을 대상으로 하여 국내의 정유사 및 저유소의 유류저장시설과 주유소로부터 대기 중으로 배출되는 VOC를 산출하였으며, 본 연구에서는 이 연구결과를 이용하여 각 격자별 VOC 배출량을 산출하였다. 표 4는 본 연구의 영역을 포함하고 있는 광역시, 도별 VOC 배출량을 조사한 것으로 정유사 및 저유소에서의 배출량은 모델링 영역에 포함되는 지역 내에서 배출된 자료만을 제시하였다. 조사된 자료는 광역시, 도별 배출량 자료이므로 정유사 및 저유소, 주유소로부터의 소지역 배출량은 1994년 광역시, 도별 휘발유 총 판매량에 대한 소지역 판매량의 비율을 적용하였다. 한편, 세탁소로부터의 VOC 배출량은 인구의 밀집도와 관계가 를 것으로 사료되므로 광역시도별 총 인구에 대한 소지역 인구비율을 적용하여 소지역별로 배출량을 산출하였다. 이후 계산되는 격자별 오염물질 산출과정은 앞의 3. 1 면오염원 및 점오염원에서 기술한 산출과정과 유사하다. 이때 적용한 분할계수는 표 5에 제

Table 3. Split factors of each VOC species for line source (SAI, 1992).

VOC	Split Factor	
	Light Oil	Gasoline
OLE	0.188E-02	0.118E-02
PAR	0.224E-01	0.386E-01
TOL	0.166E-02	0.719E-03
XYL	0.211E-03	0.122E-02
FORM	0.287E-02	0.246E-03
ALD2	0.132E-02	0.118E-02
ETH	0.349E-02	0.140E-02
MEOH	-	-
ETOH	-	-
ISOP	-	0.103E-04

Table 4. Regional VOC emissions (ton/year) from storage tanks of oil refinery, bulk terminal, gasoline service station, and laundry shop in 1994 (after NIER, 1995b).

Region	Sources			
	Oil Refinery	Bulk Terminal	Gasoline Service Station	Laundry Shop
Seoul	0	2,127	6,267	3,067
Inchon	1,086	1,912	968	696
Kyoungki	0	0	4,184	1,587
Kangwon	0	86	920	358
Chungbook	0	0	918	410
Chungnam	0	0	933	366

Table 5. Split factors of each VOC species for emissions from oil refinery, bulk terminal, gasoline service station, and laundry shop (SAI, 1992).

VOC	Split Factor		
	Oil Refinery and Bulk Terminals	Gasoline Service Station	Laundry Shop
OLE	0.363E-03	0.392E-03	0.867E-04
PAR	0.612E-01	0.437E-01	0.129E-01
TOL	0.171E-03	0.127E-02	0.140E-02
XYL	0.578E-04	0.166E-02	0.125E-03
FORM	0.145E-03	0.129E-04	-
ALD2	0.121E-02	0.178E-03	0.516E-05
ETH	-	-	0.861E-03
MEOH	-	-	0.291E-02
ETOH	-	-	0.608E-03
ISOP	-	-	-

시하였으며, 그램단위의 THC를 폴단위의 각 VOC로 분할한다.

4. 자연 배출량 산출방법

UAM은 배출량 전처리시스템인 EPS 2.0 중에서 수목에 의한 자연배출량을 산출할 수 있도록 설계된 자연

배출량 산출시스템 (biogenic emission inventory system, BEIS)을 실행하도록 되어있다. 본 연구에서는 BEIS를 이용하여 NO, PAR, OLE, ALD2, ISOP 등 5가지 자연배출량을 산출하였다. BEIS를 실행하기 위해서는 대상지역의 기온, 풍속 및 운량, 운고 등의 기상자료와 토지이용도 자료가 필요하다. 토지이용도는 대상 영역의 식생분포를 조사하여 산출하였으며, 기상자료는 UAM의 기상전처리시스템의 출력결과 또는 서울기상대의 관측자료를 이용하였다. 인위적인 배출과는 달리 자연배출량의 산출과정에서 여러 가지 기상자료가 고려되어야 하는 이유는 수목으로부터 배출되는 대부분의 VOC는 일사량 및 기온 등의 합수가 되기 때문이다 (Yokouchi and Ambe, 1988).

4. 1 자연배출량 산정 과정

각 격자에서 배출되는 자연배출량은 식 (10)에 의해 결정된다(Pierce *et al.*, 1990).

$$ER_i = \sum_j [A_j EF_{ij} F_{ij}(S, T)] \quad (10)$$

여기서, ER_i 는 화학종 i 의 배출량 ($\mu\text{g}/\text{hr}$), A_j 는 식생 j 의 면적, EF_{ij} 는 배출계수 ($\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{hr}$), $F_{ij}(S, T)$ 는 일사량 (S)과 일의 온도 (T)의 함수로 결정되는 환경계수로서, S 는 대상일의 julian 자료와 대상지점의

Table 6. Land use types, NMHC emission fluxes, and species distribution used in the BEIS (after Roselle *et al.*, 1991).

Land Use Type	NMHC Flux ¹⁾ ($\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{hr}$)	Contribution by Mass (%)			
		Isoprene	α -Pinene	Monoterpene	Unidentified
Oak	4,258	73	3	3	21
Other Deciduous	3,353	63	5	6	26
Coniferous	3,106	24	21	23	32
Urban ²⁾	771	53	10	11	26
Peanuts/Rice	510	20	25	25	30
Tobacco	294	0	10	10	80
Grass/Pasture	281	20	25	25	30
Hay/Scrub/Range	189	20	25	25	30
Potato	48	0	25	25	50
Sorghum	39	20	25	25	30
Alfalfa Barley/Cotton/Oats/Rye etc.	38	50	10	10	30
Wheat	38	20	25	25	30
Soybeans	30	50	10	10	30
Corn	22	100	0	0	0
Water/Barren	0.5	100	0	0	0
	0	0	0	0	0

¹⁾ Fluxes are given for total non-methane hydrocarbons and percent contribution from individual chemical species, standardized to 30°C and full sunlight.

²⁾ Assumed to consist of 20% grassland and 20% trees (divided equally among oak, other deciduous, and coniferous).

위도, 경도와 시각으로부터 태양고도를 구하고 이로부터 매시간 총 일사량이 산출된다. 산출된 매시간의 총 일사량은 운량을 고려하여 지표면의 식생에 도달하는 실질적인 일사량 값으로 재 계산된다. T 는 Gates와 Papian(1971)이 제시한 일의 복사평형 관계식으로부터 계산되며(Roselle *et al.*, 1991) 이 식은 나뭇잎이 흡수한 복사에너지와 나뭇잎에서 복사되는 장파 에너지, 잠열, 혼열 flux의 관계를 나타내는 식이다.

표 6은 각 식생에 대한 화학종별 배출비율을 나타낸 것이며, 각 화학종에 대하여 BEIS에서는 다음과 같은 과정을 거쳐 VOC 배출량을 산출한다. 즉, 1몰의 isoprene은 1몰의 ISOP로, 1몰의 α -pinene 또는 monoterpenes은 0.5몰의 OLE, 6몰의 PAR, 1.5몰의 ALD2로 그리고 기타물질 1몰은 0.5몰의 OLE, 8.5몰의 PAR, 0.5몰의 비반응성 물질로 전환되어 자연배출량이 산출된다.

한편, NO의 배출량은 다음의 식 (11)과 같이 토양의 온도로부터 비교적 간단한 방법으로 산출된다(Williams and Fehsenfeld, 1991).

$$Q = A \times \exp(0.079 \times T_s) \quad (11)$$

여기에서, Q 는 NO의 배출량($\text{ng}/\text{m}^2/\text{sec}$), A 는 식생형태에 따른 계수, T_s 는 토양의 온도($^\circ\text{C}$), T_a 는 기온($^\circ\text{C}$)이다. 식생형태에 따른 계수 A 와 T_s 는 표 7로부터 구할 수 있다.

Table 7. Coefficient (A) and soil temperature (T_s) for grass and pasture, forest and agricultural crop (Williams and Fehsenfeld, 1991).

Vegetation	A	T_s
Grass and Pasture	0.90	$(0.67 \times T_a) + 8.8$
Forest	0.07	$(0.84 \times T_a) + 3.6$
Agricultural Crop	0.20	$(1.00 \times T_a) + 2.9$

4. 2 BEIS 입력자료의 산출

4. 2. 1 기상 자료

BEIS를 실행하기 위한 기상 입력자료 중 기온과 지표면 바람은 매시간 격자별로 입력되어야 한다. 본 연구에서는 이를 위하여 기상관측소에서 측정된 기온자료를 내삽하여 2차원 평면상의 격자별 기온자료를 산출하는 UAM의 기상전처리 시스템과 3차원 바람장을 산출하는 바람장모델의 결과 중 최하층격자의 매시간 출력결과를 이용하였다. 이외에도 대상 영역내 기상관측소의 위도

및 경도, 매시간의 상대습도, 운량, 운고 등의 자료가 필요하며, 본 연구에서는 서울기상대의 위치 및 측정자료를 이용하였다.

4. 2. 2 토지이용도

BEIS에서는 식생의 분류를 표 6과 같이 분류하고 있으며, 식생자료는 한 격자내에서 각 식생이 차지하는 면적으로 입력된다. 본 연구에서는 대상영역의 토지이용도를 산정하기 위하여 환경부에서 발행한 녹지자연도(환경부, 1991)를 이용하였다. 녹지자연도는 투영이 횡단 메르카토르도법인 1/250,000의 지세도를 이용하여 우리나라 남한 전역에 대해 1 km × 1 km 단위로 식생의 분포도를 조사한 것인데 여기서는 총 11가지의 식생으로 분류하고 있다(표 8). 그러나 녹지자연도는 식생의 나이 및 천이 과정을 기초로 분류하고 있으므로 표 6에 제시한 BEIS의 분류와 상이하다. 그러므로 자연배출량의 산정에 앞서 녹지자연도의 분류를 BEIS의 식생자료 구분에 맞게 재분류할 필요가 있다. 표 8은 우리나라 식생분포를 나타낸 녹지자연도의 식생분류를 표 6의 BEIS의 식생분류와 유사하도록 재분류한 것이다.

Table 8. The allocation of land use type in Korea to land use type in BEIS.

Land Use in Korea	Land Use in BEIS
Water	Water
City, Manufactured Land	Undefined
Farming Land	Rice
Orchard	Scrub
Secondary Grassland(A)	Urban Grass
Secondary Grassland(B)	Grass
Afforestation	Coniferous Forest
Secondary Forest(A)	Deciduous Forest
Secondary Forest(B)	Deciduous Forest
Natural Forest	Deciduous Forest
Alpine Meadow	Undefined

5. 결과 및 고찰

5. 1 인위적 배출량

5. 1. 1 배출량의 월변화

대상영역 전체에서 사용된 연료의 연소에 의한 오염물질 배출량 중 SO_2 , NO_x , THC , TSP 및 CO 의 월별 배출변화를 그림 3에 나타내었다. SO_2 및 TSP 는 난방 연료의 사용이 많은 겨울철에 많이 배출되는 것으로 나타났다. SO_2 의 배출량은 1월에 가장 많고 7월에 가장

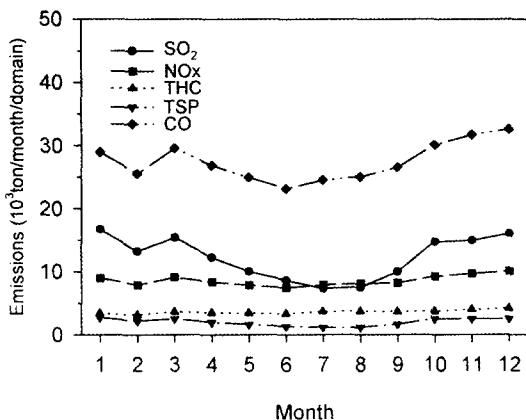


Fig. 3. Monthly variations of anthropogenic emissions in 1994.

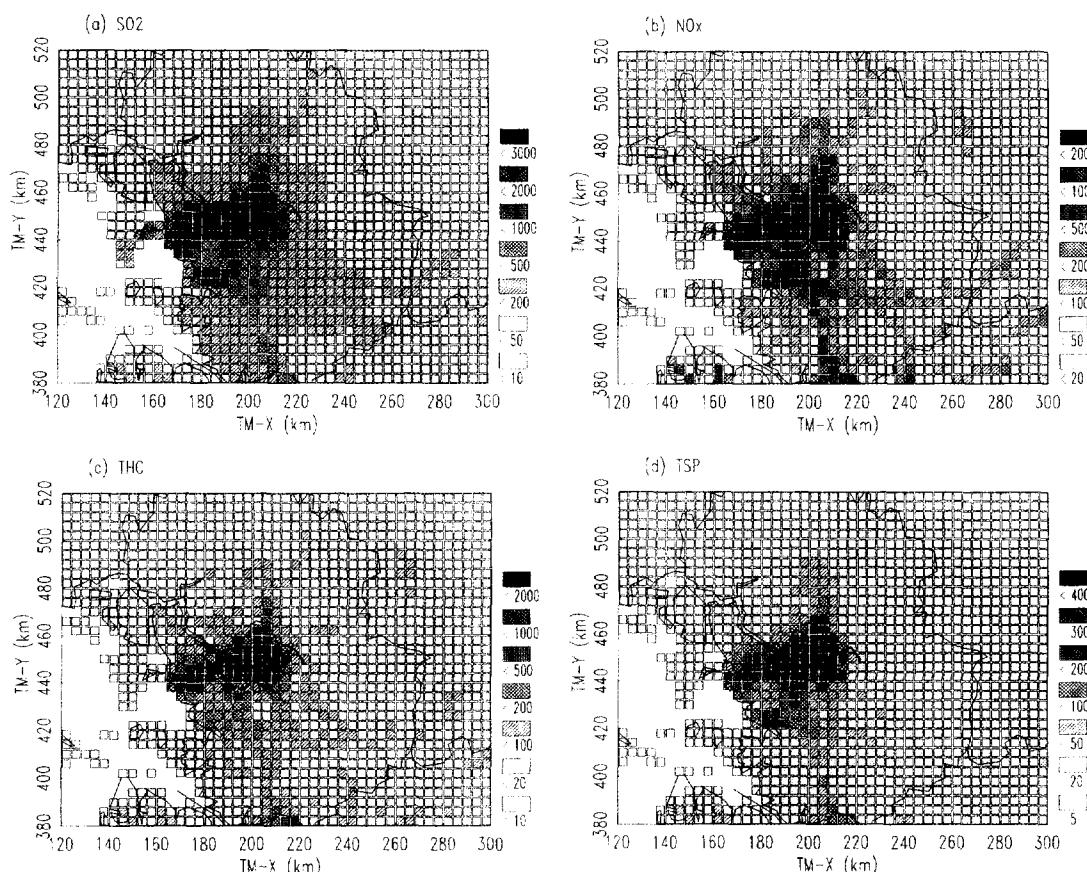


Fig. 4. Spatial distributions of anthropogenic SO_2 (a), NOx (b), THC (c), and TSP (d) emission (ton/year/grid) ($1 \text{ grid} = 4 \times 4 \text{ km}^2$) in 1994.

적으며, 각각 $16.7 \times 10^3 \text{ ton}$, $7.3 \times 10^3 \text{ ton}$ 으로 산정되었다. TSP 역시 여름보다는 겨울철에 많이 배출되며, 배출이 가장 많은 1월과 가장 적은 7월의 비는 약 2.4배에 이른다. CO는 12월에 $32.5 \times 10^3 \text{ ton}$ 으로 가장 많으며, 6월에는 $23.1 \times 10^3 \text{ ton}$ 이 배출되는 것으로 나타났다. 한편, NOx 및 THC는 계절적인 변화가 거의 없이 연중 고르게 배출되며, 배출이 가장 많은 달과 가장 적은 달의 비는 각각 1.4배, 1.3배로 나타났다. 이것은 자동차에 의한 배출이 대부분을 차지하고 있기 때문으로 판단된다.

위의 산출결과는 월별 연료판매량 자료로부터 산출한 것이므로 실제 배출량과는 다소 차이가 있을 수 있으나, 연간 연료소비량으로부터 월별 비율을 가정하여 구하는 방법에 비하면 보다 실제와 가까운 결과를 기대할 수 있을 것으로 사료된다.

5.1.2 연간 총 배출량의 수평분포

그림 4는 SO_2 , NOx , THC 및 TSP에 대한 배출량의 수평분포를 나타낸 것으로 1년간 사용된 연료의 연소에 의하여 배출된 각 오염물질의 격자별 총량을 산출한 것이다. 모든 오염물질은 서울지역에서의 배출이 가장 크며, 다음은 인천광역시에서의 배출이 크다. SO_2 및 TSP는 서울의 서쪽지역과 동쪽지역에서 배출이 큰 반면 NOx 와 THC는 중구 및 강남구를 중심으로 한 지역에서 많은 배출을 나타내며, 서로 유사한 배출분포를 보이고 있다. 또한 수원을 중심으로 한 지역과 경부고속도를 지나는 지역에서도 비교적 많이 배출되는 것으로 나타났다. 표 9는 전체 영역의 연간 총 배출량과 최대 배출을 나타낸 격자에서의 배출량을 제시한 것이다.

5.2 자연배출량

5.2.1 자연 배출량의 월변화 특징

자연배출량의 월변화 특징은 그림 5와 같다. 이는 매

Table 9. Total emissions from domain ($180 \times 140 \text{ km}^2$) and the maximum emissions in a grid ($4 \times 4 \text{ km}^2$) in 1994.

Pollutant	Emission	
	Domain Total(ton/year)	Maximum Grid (ton/year/grid)
SO_2	146,432.2	2,196.5
NOx	102,662.8	1,723.1
THC	43,156.3	1,412.0
CO	329,239.7	8,838.2
TSP	23,512.3	380.8

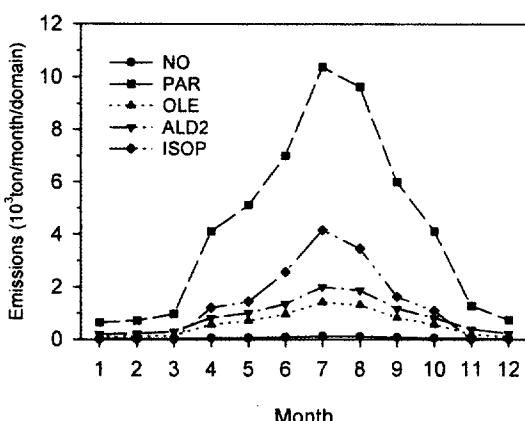


Fig. 5. Monthly variations of biogenic emissions in 1994.

월의 시간별 평균 기온, 풍속, 운량자료를 계산하여 월 평균 시간별 배출량을 구한 후 여기에 매월의 날짜 수를 곱한 것으로 대상영역의 총 배출량을 월별로 나타낸 것이다. 자연배출량의 월변화를 살펴보면 모든 물질은 기온이 높고 일사량이 강한 여름철에 많은 배출을 나타내고 있다. 물질별로는 PAR가 가장 많이 배출되는 것으로 나타났고, NO의 배출은 가장 적은 것으로 나타났다. 또한, 오존과 같은 2차 오염물질은 여름철에 주로 높은 농도를 나타내는데 수목에 의한 자연배출량 역시 여름철에 많고, 대부분의 물질이 오존의 생성과 깊은 관계를 나타내므로 식생에 의한 자연배출이 반드시 고려되어야 할 것으로 사료된다.

5.2.2 자연 배출량의 연평균 시간변화 특징

자연배출량의 연평균 시간변화 특징을 나타내기 위하여 월평균 24시간의 배출량을 평균하여 그림 6에 나타내었다. 자연배출량의 일변화 특징은 대체적으로 모든 자연배출물질들이 일출과 동시에 증가하다가 오후 1시 또는 2시를 기점으로 감소하는 경향을 나타내고 있으며 이는 식생의 자연배출량이 기온 및 일사량과 정상관의 관계를 나타내고 있기 때문이다(Roselle *et al.*, 1991). PAR는 다른 자연배출물질 보다 많은 배출율을 나타내고 있으며 특히 ISOP는 일출직전까지 배출이 없다가 일출을 시작으로 배출율이 증가하며, 일몰이 되면 다시 배출이 없게 되는데, 이는 일사가 존재하지 않은 경우 ISOP의 배출 또한 없는 것으로 간주하기 때문이다(Pierce *et al.*, 1990).

5.2.3 연간 총 자연배출량의 수평 분포

그림 7은 1994년 1년동안 각 격자에서 배출되는 4가

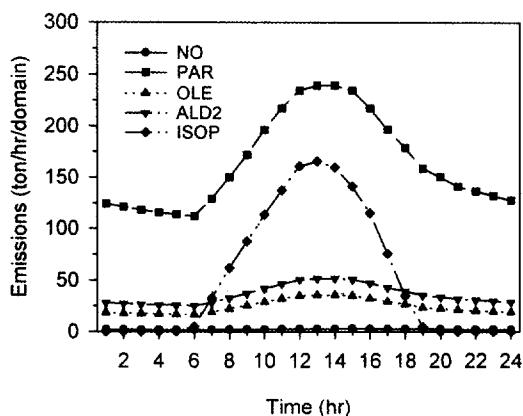


Fig. 6. Mean hourly variations of biogenic emissions in 1994.

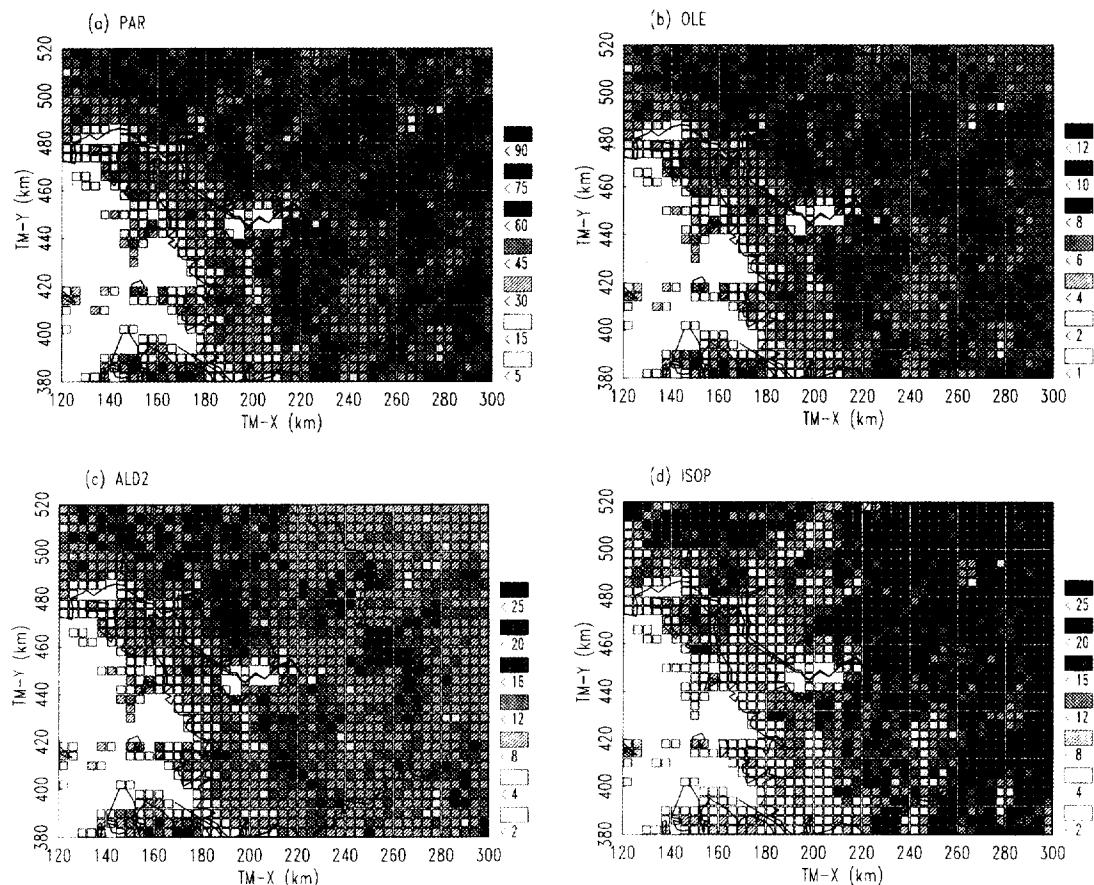


Fig. 7. Spatial distributions of biogenic PAR (a), OLE (b), ALD2 (c), and ISOP (d) emission (ton/year/grid) ($1 \text{ grid} = 4 \times 4 \text{ km}^2$) in 1994.

지(PAR, OLE, ALD2, ISOP) 자연배출물질의 총량을 수평 분포로 나타낸 것이다. NO는 배출량이 적으므로 그림에서 제외하였다. PAR, OLE, ALD2의 수평분포는 침엽수림이 많이 분포하고 있는 수도권 상부지역과 하부의 일부지역, 그리고 경기도와 강원도의 도경계 지역에서 다른 지역에 비해 상대적으로 많은 배출을 나타내고 있다. 그러나 ISOP는 대상영역의 오른쪽 지역에서 많은 배출을 나타내고 있는데 이 지역은 낙엽수림이 많이 분포하는 지역에 해당된다.

한편, 1994년 7월 11일부터 13일까지 3일(72시간) 동안 전체 대상영역에서 매시간 배출되는 자연배출량을 산출하였으며 이를 외국의 연구사례(Pierce *et al.*, 1990)와 함께 표 10에 제시하였다. NO의 자연배출량은 인위적인 배출에 비해 무시할 수 있는 적은 양이나

Table 10. Comparisons of estimated biogenic emission rates ($\text{g}/\text{km}^2/\text{hr}$) (Pierce *et al.*, 1990).

Chemical Species	NAPAP		This Study ³⁾	
	Anthropo- genic ¹⁾	Biogenic ²⁾	Anthropo- genic	Biogenic
NO	419,070(NOx)	0.510	247,496	5,910
PAR	451,968	391,616	182,607	551,824
OLE	47,776	101,152	9,276	75,360
ALD2	72,192	92,000	8,775	106,432
ISOP	-	1,289,280	0,147	279,760

¹⁾ Anthropogenic emissions are based on the 1980 NAPAP inventory.

²⁾ Average biogenic emissions in the Northeastern United States have been estimated for July 12~18, 1980.

³⁾ Average emissions in the Seoul Metropolitan Area have been estimated for July 11~13, 1994.

기타 VOC는 자연배출량이 많은 것으로 나타났다. 특히 ISOP는 인위적인 배출이 거의 없이 모두 자연배출에 의한 것이 대부분이다. 미국의 경우 대상영역이 정확히 일치하는 것은 아니라 PAR, OLE 및 ALD2의 자연배출량은 인위적인 배출량에 비해 각각 0.87배, 2.1배, 1.3배 많은 것으로 나타났다. 서울을 중심으로 한 수도권의 경우 인위적인 배출에 비해 PAR는 약 3배, OLE는 약 8배, ALD2는 약 12배 정도 자연배출이 많은 것으로 분석되었다.

그러나 자연배출량 산출결과는 추정상의 여러 문제로 인해 많은 불확실성을 포함할 수 있다. 이러한 불확실성의 가장 큰 이유로는 배출량의 추정 자체가 어렵다는 점을 들 수 있다. Roselle(1992)는 1988년 미국 북동부 지역을 대상으로 한 자연배출량의 불확실성에 의한 O₃의 민감도 분석 연구에서 이 지역의 자연배출량은 약 3배 정도의 불확실성이 있는 것으로 분석한 바 있다. 또한 우리나라의 식생과 다른 미국의 식생에 대한 배출계수를 그대로 적용했기 때문에 실제와 다르게 산출될 가능성도 있다. 한편, 1993년 현재 우리나라의 입목축적도는 44 m³/ha로서 미국(78 m³/ha)의 56.4%에 불과하므로(환경부, 1996), 미국과 같은 울창한 산림에 비해서는 우리나라 산림의 조밀도가 낮아 추정값보다 적게 배출될 가능성도 고려해볼 수 있다.

6. 결 론

본 연구에서는 광화학 화산모델의 입력자료로 활용할 수 있는 대기오염물질 배출량 산출모델을 개발하였으며, 우리나라 서울수도권 지역을 대상으로 하여 인위적인 배출량뿐만 아니라 식생으로부터 배출되는 자연배출량도 산출하였다. 인위적 배출량으로는 지역별 연료소비량 자료를 이용하여 연료의 연소에 의한 배출량을 산출하였으며, 또한 정유사 및 저유소의 유류 저장시설과 주유소 및 세탁소 등으로부터 대기 중으로 배출되는 VOC 배출량을 산출하였다. 자연적인 배출은 기상자료 및 대상영역의 식생 분포를 조사하여 산출하였다.

대상영역 전체에서 사용된 연료의 연소에 의한 오염물질 배출량 중 SO₂ 및 TSP는 난방연료의 사용이 많은 겨울철에 많이 배출되며, NOx 및 THC는 계절적인 변화가 거의 없이 연중 고르게 배출되는 것으로 나타났다. 또한 모든 오염물질은 서울지역에서의 배출이 가장 크며, 다음은 인천광역시에서의 배출이 크다. SO₂ 및 TSP는 서울의 서쪽지역과 동쪽지역에서 배출이 큰 반면 NOx와 THC는 중구 및 강남구를 중심으로 한 지역에

서 많은 배출을 나타내며, 서로 유사한 지역분포를 보이고 있다. 또한 수원을 중심으로 한 지역과 경부고속도를 지나는 지역에서도 비교적 많이 배출되는 것으로 나타났다.

식생으로부터 배출되는 물질 중에서는 PAR의 배출량이 가장 많았으며, NO가 가장 적은 배출량을 나타내었다. PAR, OLE, ALD2는 침엽수림을 이루는 지역에서 배출이 많으나 ISOP는 낙엽수림 지역에서 배출이 많은 것으로 나타났다. 대체적으로 모든 자연배출 물질들은 일출과 동시에 증가하여 1시 또는 2시경에 최대를 나타내고, 계절별로는 일사가 강한 여름철에 많은 배출을 나타내었다.

한편, NO의 자연배출량은 인위적인 배출에 비해 무시할 수 있는 적은 양이나 기타 VOC는 자연배출량이 많은 것으로 나타났다. 특히 ISOP는 인위적인 배출이 거의 없이 모두 자연배출에 의한 것이 대부분이다. 서울을 중심으로 한 수도권의 경우 인위적인 배출에 비해 PAR는 약 3배, OLE는 약 8배, ALD2는 약 12배 정도 자연배출이 많은 것으로 분석되었다. 자연배출량의 정확한 추정을 위해서는 아직 많은 연구가 필요하나 타 연구와 마찬가지로 많은 양이 배출될 뿐만 아니라 대부분이 대기의 광화학 반응에 관여하므로 그 중요성이 한층 부각된다.

감 사

본 연구의 일부는 한국학술진흥재단의 '94 학술연구조성비 공모과제인 "수도권 지역의 배출량 산출 시스템 개발"(과제번호 01E0011) 연구비 지원에 의하여 수행되었습니다.

본 연구의 수행중 식생에 관하여 조언하여 주신 강원대학교 생명과학부의 정연숙 교수께 감사드립니다.

참 고 문 헌

- 국립환경연구원(1994a) 수도권지역의 시정장애현상 규명을 위한 조사 연구(I): 시정감소 원인물질 및 메커니즘 규명, 국립환경연구원, No. 94-05-420, 200pp.
- 국립환경연구원(1994b) 대기오염물질 배출량 허용기준 설정을 위한 조사연구(II): SOx 및 NOx 배출시설 조사, 국립환경연구원, No. 94-04-419, 128pp.
- 국립환경연구원(1995a) 대기오염물질배출계수(I), 국립환경연구원, 9pp.

- 국립환경연구원 (1995b) 유해가스 배출량 산정에 관한 조사연구: 대기 중 휘발성 유기화합물 배출량 산정에 관한 조사연구, 국립환경연구원, No. 95-05-449, 164pp.
- 장영기, 김동영, 조규탁 (1995) 면 및 이동오염원 조사 방법 개발 및 지침서 작성에 관한 연구, 환경부, 136pp.
- 조강래, 엄명도, 김종춘, 홍유덕, 김종규, 한영출 (1993) 자동차에 의한 오염물질 배출계수 및 배출량 산출에 관한 연구, 한국대기보전학회지, 9(1), 69-77.
- 홍민선, 우환기, 최종인 (1993) 대도시 교통신호시스템에 따른 대기오염물질 배출량 변화에 관한 연구, 한국대기보전학회지, 9(1), 93-100.
- 환경부 (1991) 녹지자연도.
- 환경부 (1996) 환경보전 장기 종합계획: 환경비전 21, 환경부, 145pp.
- Chameides, W.L., R.W. Lindsay, J. Richardson, and C.S. Kiang (1988) The role of biogenic hydrocarbons in urban photochemical smog: Atlanta as a case study, *Science*, 241, 1473-1475.
- Crochnoy, S.B., J. Arey, and R. Atkinson (1992) Hydrocarbon emissions from twelve urban shade trees of the Los Angeles, California, air basin, *Atmospheric Environment*, 26B(3), 339-348.
- Fontan, J., A. Minga, A. Lopez, and A. Druilhet (1992) Vertical ozone profiles in a pine forest, *Atmospheric Environment*, 26A (5), 863-869.
- Gates, D. and L. Papian (1971) *Atlas of Energy Budgets on Plant Leaves*, Academic Press, San Diego, California.
- Gery, M.W., G.Z. Whitten, and J.P. Killus (1988) *Development and testing of the CBM-IV for urban and regional modeling*, SYSAPP-86/126, System Applications Inc., San Rafael, CA.
- Lamb, B., A. Guenther, D. Gay, and H. Westberg (1987) A national inventory of biogenic hydrocarbon emissions, *Atmospheric Environment*, 21, 1695-1705.
- Lamb, B., H. Westberg, and G. Allwine (1985) Biogenic hydrocarbon emissions from deciduous and coniferous trees in the United States, *J. Geophysical Research*, 90, 2380-2390.
- Morris, R.E. and T.C. Myers (1990) *User's Guide for the Urban Airshed Model Volume I: User's Manual for UAM (CB-IV)*, System Applications, Inc., San Rafael, CA., 259pp.
- Pierce, T.E., B.K. Lamb, and A.R. van Meter (1990) Development of a biogenic emissions inventory system for regional scale air pollution models, Proc. 83rd AWMA Annual Meeting, 16pp.
- Roselle, S.J. (1992) *Sensitivity of modeled ozone concentrations to uncertainties in biogenic emissions*. U.S. EPA, EPA/600/R-92/067, 193pp.
- Roselle, S.J., T.E. Pierce, and K.L. Schere (1991) The sensitivity of regional ozone modeling to biogenic hydrocarbons, *J. Geophysical Research*, 96(D4), 7371-7394.
- SAI (1992) *User's Guide for the Urban Airshed Model IV: User's Manual for the Emissions Preprocessor System 2.0*, System Applications, Inc., San Rafael, CA.
- Trainer, M., E.J. Williams, D.D. Parrish, M.P. Buhr, E.J. Allwine, H.H. Westberg, F.C. Fehsenfeld, and S.C. Liu (1987) Models and observations of the impact of natural hydrocarbons on rural ozone, *Nature*, 329(22), 705-707.
- Williams, E. and F. Fehsenfeld (1991) Measurement of soil nitrogen oxide emissions at three North American ecosystems, *J. Geophysical Research*, 96, 1033-1042.
- Yokouchi, Y. and Y. Ambe (1988) Diurnal variations of atmospheric isoprene and monoterpene hydrocarbons in an agricultural area in summertime, *J. Geophysical Research*, 93(D4), 3751-3759.