

팔당호 유역에 대한 질소와 황의 건식 침적량 추정 Estimation of Nitrogen and Sulfur Dry Deposition over the Watershed of Lake Paldang

김진영 · 김영성* · 원재광¹⁾ · 윤순창¹⁾ · 우정현²⁾ · 조규탁³⁾
한국과학기술연구원 대기자원연구센터, ¹⁾서울대학교 지구환경과학부
²⁾Center for Global and Regional Environmental Research, University of Iowa
³⁾이앤위즈 (주) 부설 연구소
(2004년 3월 30일 접수, 2005년 1월 31일 채택)

J.Y. Kim, Y.S. Ghim*, J.-G. Won¹⁾, S.-C. Yoon¹⁾
J.-H. Woo²⁾ and K.-T. Cho³⁾
Air Resources Research Center, Korea Institute of Science and Technology
¹⁾*School of Earth and Environmental Sciences, Seoul National University*
²⁾*Center for Global and Regional Environmental Research, University of Iowa*
³⁾*E&WIS Institute*

(Received 30 March 2004, accepted 31 January 2005)

Abstract

Lake Paldang is a main resource of drinking water for 20 million people in the greater Seoul area. Dry deposition amounts of nitrogen and sulfur were estimated for three typical days in each season over the watershed of Lake Paldang. Models-3/CMAQ (Community Multiscale Air Quality) and MM5 (Mesoscale Model) were used to predict air quality and meteorology, respectively. Aerosols as well as gaseous pollutants were considered. Nitrogen was mainly deposited in the form of HNO₃ while most of sulfur was deposited in the form of SO₂. Contribution of secondary pollutants was the largest in fall since they were transported from the greater Seoul area. However, contribution of secondarily-formed particulate pollutants to the nitrogen deposition was the largest in winter because semi-volatile ammonium nitrate favors lower temperature. Annual deposition amounts of nitrogen and sulfur were 37% and 26% of their emission amounts, respectively, over the watershed of Lake Paldang. Higher value of the nitrogen deposition showed a more influence of pollutants emitted in the greater Seoul area.

Key words : Indirect deposition, Lake Paldang, Models-3/CMAQ, Nitrogen compounds, Seasonal variation

1. 서 론

환경오염에 대한 일반 인식이 높아지고 서울, 수도권의 대기오염에 대한 사회적 관심이 지속되는 가운데

* Corresponding author
Tel : +82-(0)2-958-5817, E-mail : ysghim@kist.re.kr

데 2000만 수도권 주민의 취수원인 팔당호의 수질이 대기오염으로 인하여 더욱 악화되는 것이 아니냐는 우려가 제기되고 있다. 실제 대기오염은 습식 침적과 건식 침적, 팔당호로의 직접 침적과 유역으로의 침적 후 팔당호로 유입되는 간접 침적 등 다양한 방식으로 팔당호 수질에 영향을 미칠 수 있다. 또한 산성물질은 수질을 산성화시키고, 질소산화물과 암모니아와 같은 질소성분은 부영양화의 원인이 될 수 있다.

다행히 우리나라 주요 하천과 호소는 적지 않은 양의 산성물질 침적에도 불구하고 (Streets *et al.*, 1999) pH는 1~3등급 환경기준인 6.5~8.5 사이로 양호하거나 (환경부, 2001) 오히려 높다. 이는 팔당호의 경우 Ca^{2+} 농도가 높게 나타나는 등 하천, 호수의 완충 능력이 크기 때문으로 추정되나 원인은 분명치 않다 (김영성 등, 2002). 그러나 질소 침적은 (1) 우리나라 대부분의 상수원수용 호수가 중영양 혹은 중부영양화 상태이고, (2) 부영양화의 두 요소 중 인은 감소하나 질소분은 증가 추세에 있으며 (김영성과 진현철, 제출), (3) 질소분이, 1990년대 중반 이후 서울, 수도권에서 특히 문제되고 있는 광화학 오염의 주요 산물이라는 점에서 유의가 필요하다.

습식 침적은 1980년대 산성비가 이슈가 되면서 측정 방법이 정립되었고 모델 예측도 구름 내 액상 반응 등에 관한 연구가 진전되면서 일정 계도에 진입되었다 (NAPAP, 1991). 반면 습식 침적에 비해 측정 기술이 뒤떨어져 있었던 건식 침적은 외국의 경우 1990년대 초부터, 국내의 경우 1990년대 중반부터 건식 침적 측정에 관한 논문들이 발표되고 있으나, 아

직까지는 측정이 충분치 않은 만큼 불확실성이 많아 모델에 의존하고 있다 (Wesely and Hicks, 2000). 습식 이든 건식이든 수체 (waterbody)에 미치는 영향을 조사하고자 할 때에는 간접 침적의 비중이 상당할 수 있으며 우리나라와 같이 지류가 많아 유역의 면적이 넓을 때에는 더욱 그러하다. 간접 침적의 이동 비율은 물질의 종류, 유역의 지표 형태에 따라 달라, 질소분이 수면에 침적되어 지류를 따라 이동할 때는 90%, 습지나 숲은 침적량의 3~5%만이 대상 수체에 도달하는 것으로 조사되는 등 변화폭이 크나 대략 7~15% 정도로 추산되고 있다 (USEPA, 2000).

국내에서도 최근 침적에 관한 연구가 활발하다. Park *et al.* (2000a, b)은 기상과 대기질 자료로부터 강우와 입자상 SO_4^{2-} 농도를, Park and Lee (2002)와 Park *et al.* (2002)은 회귀식과 간단한 화학메커니즘에 의하여 강우와 대기 중 질소성분의 농도를 추산하여 전국을 대상으로 황과 질소의 습식 및 건식 침적을 추정하였다. Ghim and Kim (2002)은 모델에 의하여 서울, 수도권의 기체상 질소산화물과 황의 건식 침적을 계산하였고, 김진영 등 (2003)은 황해 지역의 질소와 황성분을 대상으로, 강우 중 농도와 강우량을 이용하여 습식 침적을, 기체와 미세입자 측정값과 모델 계산에 의한 침적속도를 이용하여 건식 침적을 산정하였다.

본 연구에서는 2천만 수도권 주민의 취수원인 팔당호에 대한 대기오염의 영향을 알아보기 위하여 기상 모델과 미세먼지를 포함한 대기질 모델을 이용하여 팔당호 유역의 건식 침적량을 추정하였다. 팔당호

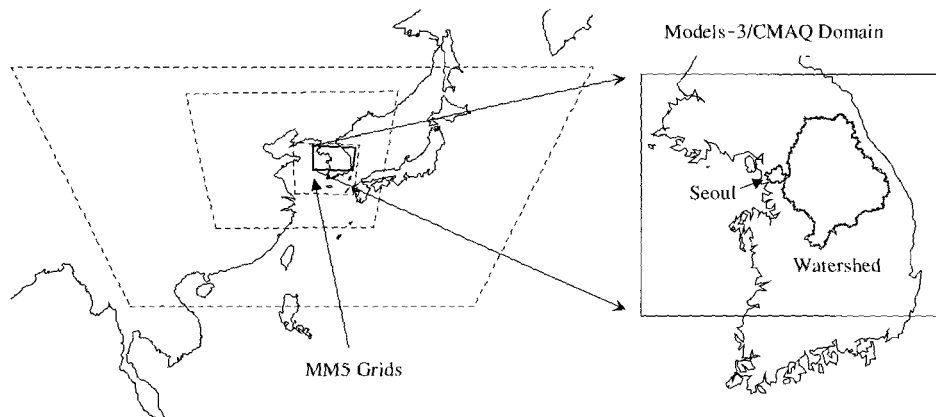


Fig. 1. Grids and the modeling domain. Location of the watershed of Lake Paldang is shown to the east of Seoul.

유역은 경기도, 강원도, 충청북도의 37개 시, 군을 포함하는 20,458 km²의 지역으로, 전체 한강수계 23,772 km² 중 잠실권역과 임진강 권역을 제외한 86% 영역이다(환경부, 1998; 그림 1). 부영양화의 주요 인자 중 하나로 질소성분을, 그리고 산성화가 직접적으로 문제되지는 않으나 질소성분으로 충분치 않은 인위적 오염물질의 영향을 살피기 위하여 황성분의 침적을 조사하였다.

2. 모델링

대기오염물질의 건식 침적은 미국 EPA의 Models-3/CMAQ (Models-3/Community Multiscale Air Quality)으로써 계산하였다(Byun and Ching, 1999; USEPA, 1999). 화학반응 메커니즘으로 기체상과 입자상 반응을 모두 고려하였는데, 기체상 반응으로는 CB4 (Carbon-Bond Chemical Mechanism Version IV) 메커니즘을(USEPA, 1990), 입자상 반응으로는 Models-3/CMAQ의 Aero3 모듈을 이용하였다. Models-3/CMAQ의 입력 자료로서 기상 자료를 산출하기 위한 기상 모델은 PSU/NCAR (Pennsylvania State University/National Center for Atmospheric Research)의 MM5 (Mesoscale Model)를 이용하였다(Dudhia *et al.*, 2003).

2.1 대상 영역과 사례 선정

기상 모델 영역은 동서남북으로 격자 간격이 일정하도록 Lambert Conformal Projection을 사용하였으며, 123° E, 37.5° N을 중심으로 그림 1과 같이 각각 격자 크기 108 km, 36 km, 12 km의 3개 격자를 배치하였다. 격자별 격자점수는 동서와 남북 방향으로 각각 51×38, 61×58, 64×64이었다. 대기질 모델 격자 크기는 기상 모델의 격자 3에 맞추어 12 km로 하였으며, 경계 영향을 감안하여 격자수가 각각 24개, 35개 적은 40×29로 하였다. 이와 같이 설정한 대상영역은 480×348 km으로, 오염물질의 배출이 많은 수도권 지역 및 팔당호 유역을 충분히 포함하였다. 기상모델에서는 연직 방향으로 24층을 구분하였으나 대기질 모델에서는 지표 변화에 중점을 두어 100 hPa 높이까지 6개의 층으로 구분하였다.

모델링 사례로는 Ghim and Kim (2002)에서와 같이

Table 1. Meteorological conditions at the Seoul weather station during the episode days in each season.

Season	Episode days	Average wind speed (m/s)	Average temperature (°C)	Precipitation (mm)
Spring	Apr. 21 to 23	3.2	14.9	-
Summer	Jul. 27 to 29	1.6	29.4	-
Fall	Sep. 29 to Oct. 1	1.3	18.2	-
Winter	Jan. 15 to 17	2.1	-1.8	0.0

1997년 기상 자료를 분석하여 계절별로 평년 기상 조건에 가까운 5일을 선택하여(기상청, 1991) 표 1과 같이 후반 3일을 대상으로 하였다. 이와 같은 선택은, 특정 사례보다는 보편적 사례에 대한 일반적 특성을 알아보기 위한 것으로, 국내외를 막론하고, 특히 미세먼지를 포함한 건식 침적은 시간적으로나, 공간적으로나 아직 윤곽을 파악하는 단계라고 판단하였기 때문이다. 건식 침적만을 고려하기 위하여 강우가 없는 기간을 선택하였으며, 대상 기간이 3일임에도 5일의 기상을 조사한 이유는 기상 및 대기질 모델링에 필요한 적응시간(spin-up time) 때문이었다.

2.2 배출 자료

배출량 자료는 미국 University of Iowa에서 ACE-ASIA (Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment) 프로젝트의 일환으로 산정한 2001년 기준 6'×6' 간격 자료를 이용하였다. 기체상 오염물질과 함께 입자상 반응을 위하여 암모니아, 원소 탄소, 유기 탄소, PM_{2.5}, PM₁₀의 배출까지를 고려하였다. NO_x는 NO 90%, NO₂ 10%가 배출된다고 가정하였다. VOC 배출은, USEPA의 SPECIATE 데이터베이스를 정리한 김동영(1998)을 참고하여 성분별로 분할하였다. 오염물질의 배출이 많은 수도권 지역과 강원도에 대해서는 1×1 km 간격의 상세 배출량 자료를 각 격자별로 할당하였는데, 배출 총량은 Park *et al.* (2002)을 이용하여 보정하였다. Isoprene과 terpene의 자연 배출량은 1990년 기준 GEIA (Global Emissions Inventory Activity, 2003)의 1°×1° 자료를 이용하였다. 점오염원 배출은 비중이 작을 뿐 아니라 불확실성이 많기 때문에 본 연구에서는 배제하였다.

인위적 오염물질의 배출은 각 계절별로 일정한 것으로 가정하였으나, isoprene과 terpene은 GEIA에서 제공하는 월별 자료를 이용하였다. 낮시간에 활동량

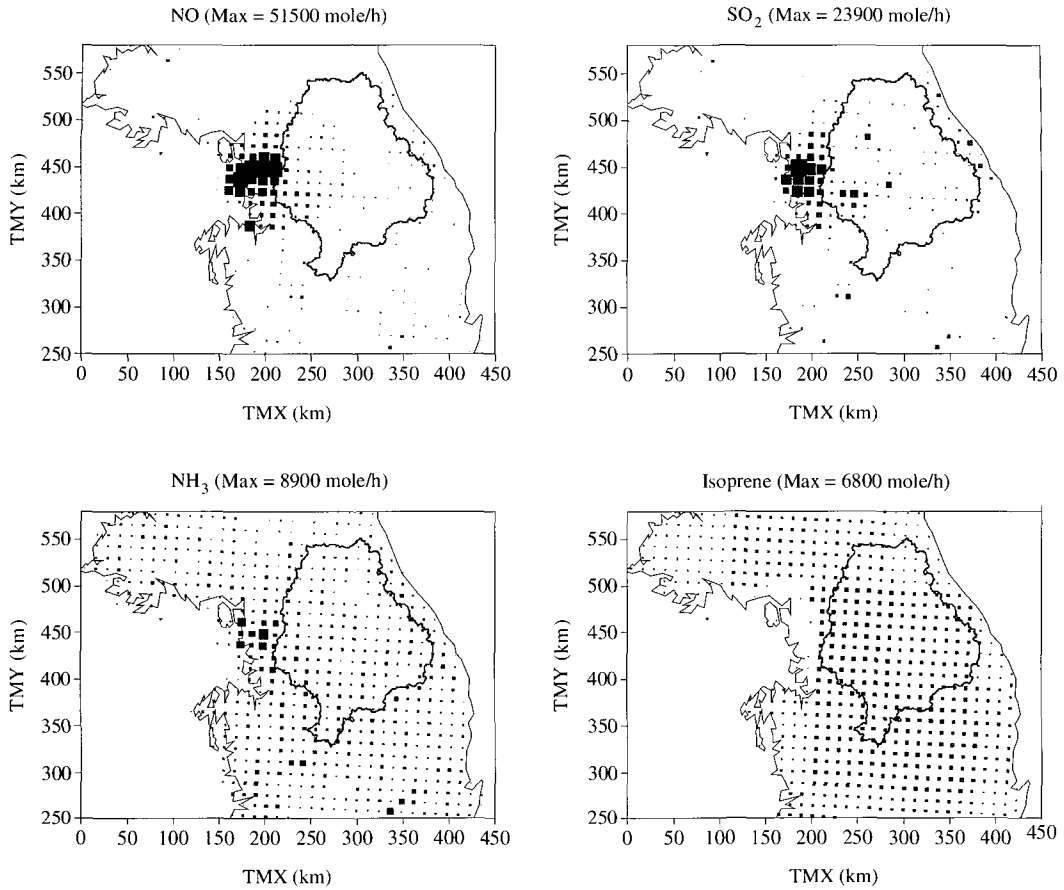


Fig. 2. Distribution of pollutant emissions.

이 많으므로 오전 7시부터 오후 7시까지는 일평균 배출량의 1.3배를, 오후 7시부터 다음 날 오전 7시까지 밤 시간대에는 일평균 배출량의 0.7배를 가정하였다.

그림 2에 대상영역 내 NO, SO₂, NH₃, isoprene의 배출량 분포를 나타내었다. NO, SO₂, NH₃와 같은 인위적인 오염물질은 수도권 지역에서의 배출이 가장 많으며, 생물학적 배출 비중이 큰 isoprene은 1° × 1° 자료를 이용하였기 때문에 배출량 분포가 자세하지 않으나 수도권보다 팔당호 유역의 배출이 많다.

표 2에서는 모델링 영역과 팔당호 유역의 질소 및 황 화합물의 배출량을 비교하였다. 또한 각 물질별 배출량을 질소 및 황 기준으로 환산하여 총량을 함께 나타내었다. 영역 내에서 배출량이 가장 많은 질

Table 2. Total amounts of nitrogen and sulfur emissions over the watershed of Lake Paldang compared with those over the modeling domain.

Compound	Emission over the modeling domain (ton/year) (A)	Emission over the watershed of Lake Paldang (ton/year) (B)	B/A (%)
NO ₂	9,304 (4.1) ^a	899 (3.0)	9.6
NO	83,739 (56.5)	8,088 (42.1)	9.7
NH ₃	33,097 (39.4)	5,979 (54.9)	18.1
Total nitrogen	69,166 (100)	8,971 (100)	13.0
SO ₂	61,935 (100)	10,602 (100)	17.1
Total sulfur	30,967 (100)	5,301 (100)	17.1

^aNumber in parentheses indicates the contribution of each compound to the total amount.

소 화합물은 NO로서, 질소 기준으로 환산한 경우에 총질소 배출량에 대한 기여율은 57%이다. 그러나 팔

당호 유역만을 본다면 NH₃ 배출이 55%로 NO 배출의 42%보다 많다. 질소와 황을 기준으로 할 때 팔당호 유역의 배출은 모델링 영역 전체 배출에 대해 질소는 13%, 황은 17%이다.

2.3 기상 자료

초기 및 경계조건은 6시간, 2.5°×2.5° 간격의 NCEP/NCAR (National Centers for Environmental Prediction/NCAR) 재해석 자료와 육지의 정규 관측소 자료와 선박 측정자료를 포함하는 NCEP ADP (Automated Data Processing) Global Surface Observations 자료, NCEP ADP Global Upper Air Observation 자료로써 구성하였다. NCEP ADP 관측자료는 FDDA (Four Dimensional Data Assimilation)에 의한 계산값 보정

에도 이용하였다. 지형과 토지이용 자료는 격자 크기를 고려하여 PSU/NCAR 자료 중 10분 자료를 사용하였으며, 해수표면 온도는 IGOSS (Integrated Global Ocean Services System)의 1°×1°, 1주일 평균자료를 이용하였다.

각 계절별로 대표적인 바람장을 그림 3에 나타내었다. 봄철은 사계절 중 풍속이 가장 강한 계절인데 (표 1), 전반적으로 서풍 계열의 바람이 강하면서 동해 쪽에서는 동풍이 불어서 태백산맥 근처에서 바람장의 수렴대가 형성되고 있다. 여름에는 풍속이 매우 약한데, 서해 쪽에서는 남풍 내지는 남서풍 계열의 바람이, 동해 쪽에서는 북풍 내지는 북동풍 계열의 바람이 불고 있다. 가을은 사계절 중 바람이 가장 약한 계절로서, 해상에서는 주로 남풍 계열의 바람이

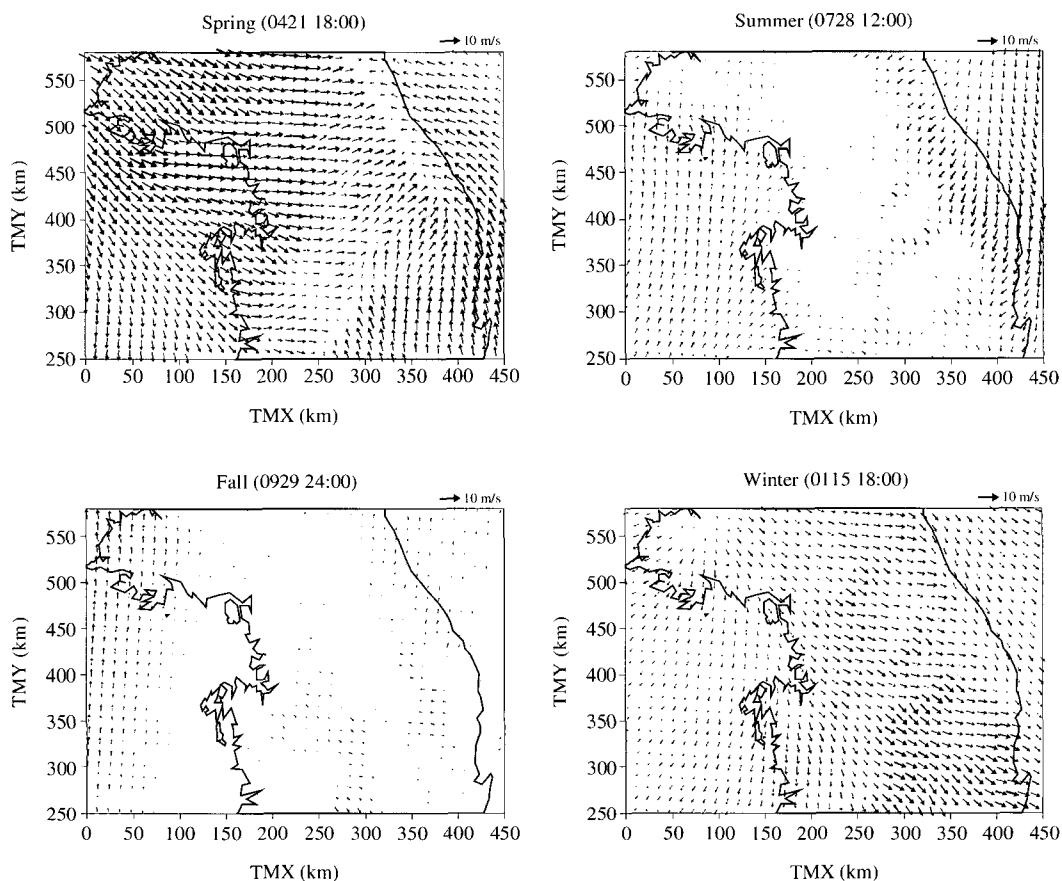


Fig. 3. Representative wind fields for each season (mmdd hh : mm, local time). Highest wind speeds are 8.7, 6.6, 5.5, 7.1 m/s in spring, summer, fall and winter.

불고, 수도권 지역부터 중서부 지역까지는 북서풍 계열의 바람이 약하게 불고 있다. 겨울은 계절적인 특성에 의해 영역 전반에 걸쳐서 북풍 또는 북서풍 계열의 바람이 부는 것을 볼 수 있다.

2.4 기타 설정

기상 모델은 3시간, 대기질 모델은 1시간 간격으로 계산하였다. 토지 이용도 자료는 MM5 모델의 입력 자료를 이용하였으며, 광해리 계수를 구하는데 필요한 입력 자료와 영역 내의 경계 및 초기 조건은 Models-3/CMAQ에서 기본으로 제공하는 청정 대기 조건 자료를 이용하였다. 초기조건으로 균일 농도를 가정하였기 때문에 초기조건의 불확실성을 배제하고, 또한 입자상 반응이 기체상 반응보다 느림을 감안하여 영역크기에 비하여 충분히 63시간을 초기 적응시간으로 할당하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 농도 비교와 일변화

모델링 결과의 검증을 위하여 측정값과 예측값을 비교하였다(그림 4). 측정값으로는 서울 지역에 위치한 20개 환경부 측정소의 농도를 시간별로 평균하였으며, 예측값은 서울 지역에 해당하는 4개 격자의 값을 평균하였다. 전체적으로 NO₂와 SO₂ 모두 예측값이 측정값에 비해 다소 예측되는 경향이 있으나, 농도 범위는 유사하다. 사계절 중 농도값이 가장 비슷한 것은 여름철이며, 겨울철에 농도차가 가장 컸다. 겨울철의 경우 혼합고 및 풍속 증가에 의하여 일반적으로 농도가 감소하는 낮시간 동안 오히려 측정 농도가 증가하는 현상이 나타남에 따라 특히 초반 2일 동안 예측값과 차이가 컸다. 봄철에는 NO₂의 경우 10~20 ppb, SO₂의 경우 5~10 ppb 정도 예측값

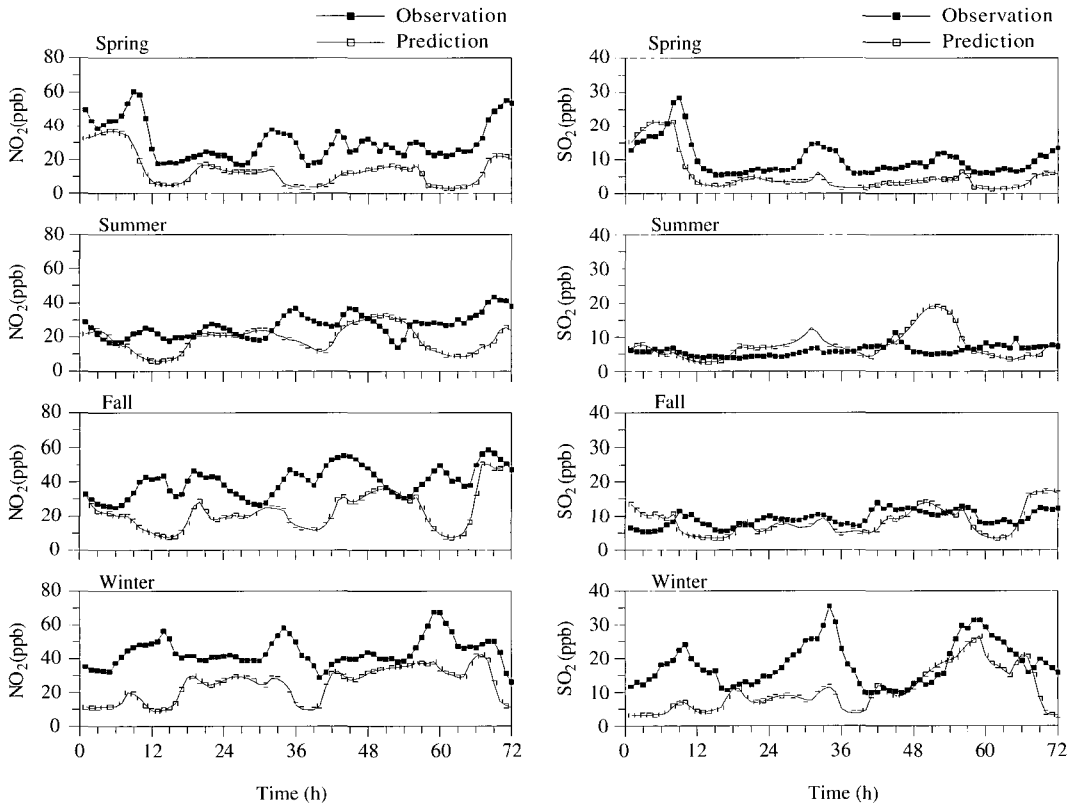


Fig. 4. Comparison of observed and predicted concentrations of NO₂ and SO₂ in Seoul.

이 측정값에 비해 계속 낮지만 모사기간 3일 동안 예측값과 측정값의 일변화 경향은 상당히 유사한 것을 볼 수 있다.

앞에서도 언급한 바와 같이 전반적으로 예측값이 측정값에 비해 낮은 가운데 특히 풍속이 낮은 여름과 가을철에 그 차이가 감소하는 것을 볼 수 있는데, SO₂의 경우 이와 같은 특성이 더 두드러지고 있다. 예측 농도가 낮은 원인으로는 여러 가지가 있을 수 있으나, 국지 기상보다 상대적으로 풍속이 빠른 지상 관측소 자료만을 이용하여 MM5 바람장을 동화시킴으로써 전반적으로 풍속이 빨라진 것이 중요한 원인의 하나로 추정된다(김진영 등, 2000).

그림 5는 팔당호 유역에서의 기체상 및 입자상 오염물질 예측 농도의 평균 일변화이다. NO₂와 SO₂는 혼합고와 높은 낮시간에 농도가 낮고, 혼합고와 풍속

이 낮아지는 밤시간대에 농도가 높다. 계절별로는 두 물질 모두 겨울에 농도가 가장 높는데, 겨울에는 혼합고가 낮아서 오염물질의 확산이 어려울 뿐만 아니라 기온이 낮아 화학반응이 느린 반면 여름철에는 그 반대이기 때문이다. HNO₃는 NO₂와 OH 라디칼의 반응에 의해 생성되는 것으로서(Finlayson-Pitts and Pitts, 1986), 일반적으로 OH 라디칼의 농도가 높아지는 여름철 낮시간에 농도가 높는데, 그림 5에서는 특이하게 가을철에 농도가 가장 높다. 이와 같은 현상은 가을철에 풍속이 약한 가운데 오염물질의 배출이 많은 수도권 지역부터 중서부 지역까지 북서풍이 지속되면서 수도권 지역에서 생성된 HNO₃가 이동하는 한편, 동해안 근처 동부 지역에서는 동풍 또는 남풍의 바람이 불면서(그림 3) 팔당호 유역으로 오염물질이 수렴되었기 때문이다. NH₃는 일차 오염물질

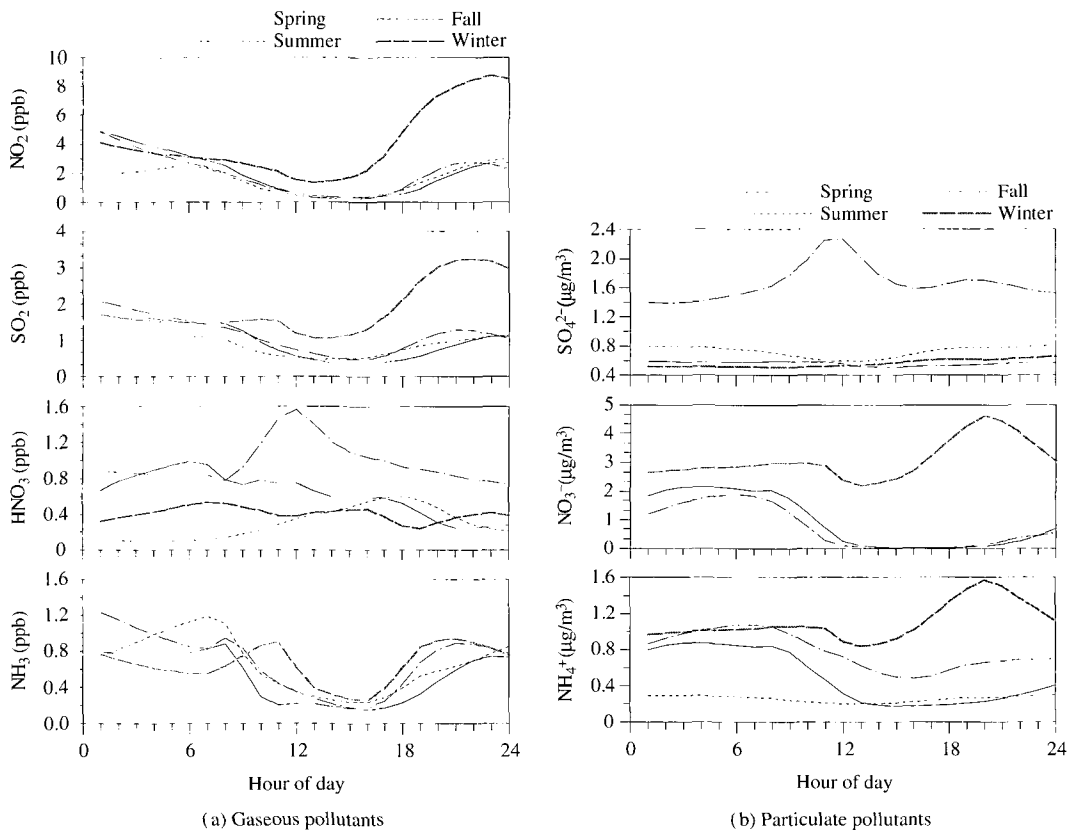


Fig. 5. Diurnal variations in the predicted concentration of major species in nitrogen and sulfur deposition averaged over the watershed of Lake Paldang.

인 NO₂, SO₂와 마찬가지로 밤시간에 농도가 높고 혼합고가 낮아지는 낮 시간대 농도 감소가 뚜렷하다.

입자상 오염물질 중 SO₄²⁻는 가을철에 농도가 가장 높은 반면, NO₃⁻와 NH₄⁺는, NO₂ 농도가 높은 겨울철에 농도가 가장 높다. SO₄²⁻ 농도가 가을에 가장 높은 것은 HNO₃와 마찬가지로 수도권 지역에서 생성된 SO₄²⁻가 가을철에는 주로 팔당호 유역으로 이동해왔기 때문이다. 앞의 HNO₃ 농도 변화에서 살펴 보았듯이 이차 질소 생성물은 기온이 그리 낮지 않은 가을철에는 주로 기체상인 HNO₃로 존재하기 때문에 가을철 NO₃⁻ 농도는 그리 높지 않은 반면에 기온이 낮은 겨울철에는 입자상으로 존재하면서 NO₃⁻ 농도가 특히 높아졌다. NH₄⁺는 NO₃⁻와 거의 유사한 일변화 형태를 보이는데, 계절별로는 겨울철 다음으로, SO₄²⁻ 농도가 높게 나타난 가을철에 농도가 높다.

3. 2 건식 침적속도와 침적속의 일변화

그림 6에 팔당호 유역에서의 건식 침적속도의 평균 일변화를 나타내었다. 건식 침적속도는 MM5 계산 결과를 이용하였기 때문에 3시간 간격 자료이다. 물질별로 건식 침적속도가 가장 큰 것은 HNO₃로서 봄철 낮시간에 약 4 cm/s까지 나타났으며, NO₂와 SO₂는 0.5 cm/s 이하, NH₃는 0.6 cm/s 이하이다. 하루 중 대기가 불안정해지고 난류가 발달하는 정오 전후에 침적속도가 가장 크게 나타났으며, 일사가 없는 시간대에는 NO₂, SO₂, NH₃ 모두 0.15 cm/s 이하이고, 침적속도가 가장 큰 HNO₃도 1.0 cm/s 이하로 침적속도가 낮았다. 계절별로 NO₂, SO₂, NH₃는 여름철에 침적속도가 가장 크고, 다음이 봄철이었으며, HNO₃는 봄철에 침적속도가 가장 컸다.

건식 침적속도 $v_d = 1/(r_a + r_b + r_c)$ 와 같이 공기역학적 저항 r_a , 준층류 하층 저항 r_b , 지표면 저항 r_c 의 합

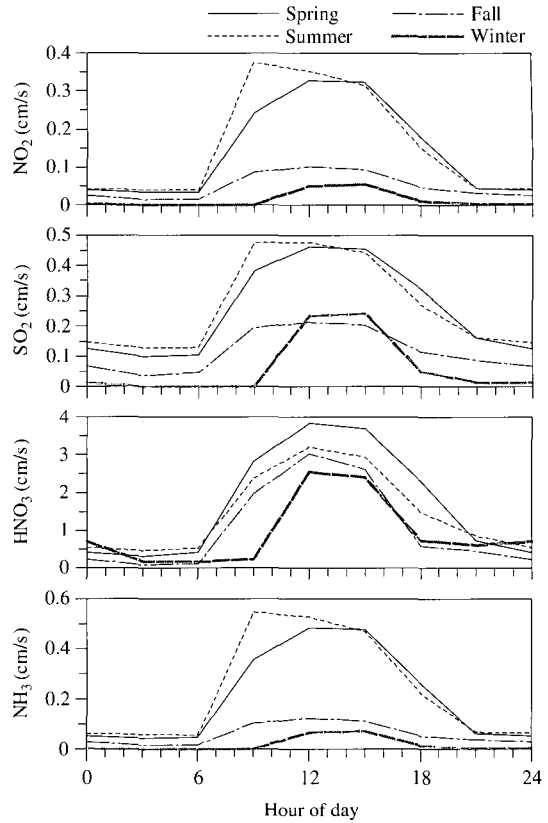


Fig. 6. Diurnal variations in the dry deposition velocity of major species in nitrogen and sulfur deposition averaged over the watershed of Lake Paldang.

의 역수로 표시될 수 있다(Wesely and Hicks, 2000). 여름철에 건식 침적속도가 높게 나타나는 원인은 지표면 거칠기 길이가 크고, 기온이 높아 대기가 불안정하기 때문에 공기역학적 저항 r_a 값의 감소에 의해 침적속도가 커지는 것이다(Chang *et al.*, 1987). 봄철

Table 3. Comparison of dry deposition velocity of major species (cm/s).

Source	NO ₂	SO ₂	HNO ₃
This study	0.0~0.7	0.0~1.8	0.0~6.0
Ghim and Kim (2002)	0.1~0.8	0.1~0.8	0.2~2.5
Park <i>et al.</i> (2000)		0.0~2.0	
Finlayson-Pitts and Pitts (1986)	0.30~0.80 (soil, cement), 1.90 (alfalfa)	0.1~4.5 (grass), 0.1~1.0 (pine forest)	1.0~4.7 (grassy field)
Brook <i>et al.</i> (1999)		0.1~2.5 (coniferous forest), 0.1~0.6 (deciduous forest), 0.04~3.4 (grassland)	0.0~11.0 (forest), 0.0~4.9 (grass)

에 건식 침적속도가 큰 이유는 풍속이 높기 때문에 마찰속도가 커지고 이에 따라 공기역학적 저항 r_a 및 준층류 하층 저항 r_b 값이 작기 때문이다. 한편 HNO_3 의 경우 다른 물질과 달리 봄철에 건식 침적속도가 가장 큰데, 이는 HNO_3 의 지표면 저항이 다른 물질에 비해 훨씬 적기 때문이다. 즉, HNO_3 의 경우 지표면 저항이 적어서 공기 역학적 저항이 건식 침적속도를 결정하는 주 인자가 되고 이에 따라 풍속의 영향이 다른 물질보다 높게 나타나는 것이다(Dentener *et al.*, 1996).

표 3에서는 모델링 영역에서 각 물질별 건식 침적속도를 국내의 각 문헌의 침적속도와 비교하였다. 수도권에서의 황과 질소의 건식 침적량을 추정된 Ghim and Kim (2002)의 결과와 비교할 때 NO_2 의 침적속도는 유사하며, SO_2 와 HNO_3 는 높는데, 실제로 Ghim and Kim (2002)에서 SO_2 와 HNO_3 의 건식 침적속도가 문헌과 비교하여 다소 낮은 경향이 있었다. 한반도에서 황의 침적량을 추정된 Park *et al.* (2000b)의 SO_2 건식 침적속도 범위는 0~2.0 cm/s로서 본 연구와 유사하다. Finlayson-Pitts and Pitts (1986)의 전형적인 건식 침적속도 범위나 여러 문헌들의 건식 침적속도를 정리한 Brook *et al.* (1999)의 자료와 비교하면, NO_2 , SO_2 , HNO_3 모두 어느 정도 비슷한 범위 내에 있다.

주요 질소화합물인 NO_2 , HNO_3 , NO_3^- , NH_4^+ 의 건식 침적속(deposition flux)을 그림 7(a)에 나타내었다. 건식 침적속은 대기 중 오염물질의 농도와 건식 침적속도의 곱으로 표현되는데, 그림 7(a)를 그림 5, 6과 비교하면 대체로 건식 침적속도가 높은 계절보다는 대기 중 농도가 높은 계절에 건식 침적속이 가장 높은 것을 알 수 있다. NO_2 와 SO_2 의 경우, 봄철과 여름철에 대기 중 농도는 낮으나, 건식 침적속도가 크기 때문에 봄철과 여름철의 건식 침적속이 높다. HNO_3 는 대기 중 농도 및 침적속도가 모두 낮 시간대에 높기 때문에 낮 시간대에 침적속이 크며, 농도가 높은 가을철의 침적속이 가장 크다. NO_3^- , NH_4^+ 의 침적속은 농도가 높은 겨울철에 가장 큰데, 두 물질의 침적속 일변화는 그림 5의 대기 중 농도 일변화에서와 마찬가지로 경향이 서로 매우 유사하다.

주요 황화합물인 SO_2 , SO_4^{2-} 의 건식 침적속을 그림 7(b)에 나타내었다. NO_2 와 마찬가지로 SO_2 의 건식 침적속은 봄과 여름에 크며, 농도가 높아지는 겨울철에도 크다. SO_4^{2-} 는 농도가 높아지는 가을철에 침적속이 가장 크며 시간별로는 오후 또는 밤 시간대에 침적속이 크게 나타났다. 팔당호 유역에서 평균

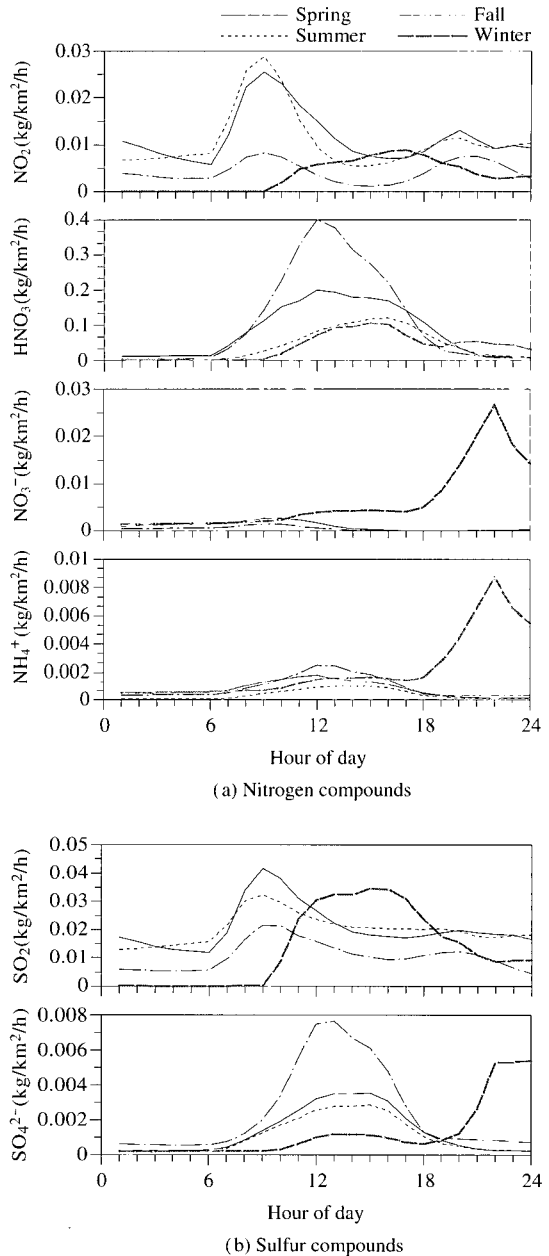


Fig. 7. Diurnal variations in the dry deposition flux of major species in nitrogen and sulfur deposition averaged over the watershed of Lake Paldang.

울철에도 크다. SO_4^{2-} 는 농도가 높아지는 가을철에 침적속이 가장 크며 시간별로는 오후 또는 밤 시간대에 침적속이 크게 나타났다. 팔당호 유역에서 평균

건식 침적속의 하한은 모두 0이나, 상한은 물질별로 달라 NO₂ 0.03, HNO₃ 0.4, NO₃⁻ 0.03, NH₄⁺ 0.01, NH₃ 0.009, SO₂ 0.05, SO₄²⁻ 0.008 kg/km²/h로 HNO₃가 가장 크다.

3.3 건식 침적량의 공간분포

각 계절별 침적속으로부터 모사기간 3일 동안의 격자당 건식 침적량을 계산하였다. 각각의 질소화합물 또는 황화합물 중 질소와 황 성분의 비율만을 계산하여 합산함으로써 총질소, 총황의 건식 침적량으로 나타내었다(그림 8, 9). 그림 8에서 총질소의 건식 침적량은 대체적으로 수도권 지역에서 많으나, 봄에는 수도권 지역에서 동쪽으로 더 확산된 모습이며, 여름에는 좀더 수도권에 집중되어 있다. 가을에는 수도권 지역에서 북쪽, 서쪽 그리고 남동쪽으로 침적량

분포가 약간씩 확산된 모습이며, 겨울에는 남동쪽으로 더 확산되어 오히려 수도권 지역의 침적량은 상대적으로 매우 낮으며 영역의 남동쪽 즉, 경상도 지역에서 침적량이 많다. 이에 따라 팔당호 유역에서의 총질소의 건식 침적량은 가을에 가장 많으며 봄, 여름, 겨울의 순으로 낮아진다.

이와 같이 침적량 분포가 계절별로 차이가 나는 원인은 그림 3의 계절별 바람장 분포에서 찾을 수 있다. 즉, 봄에는 강한 서풍에 의해 오염물질이 동쪽으로 이동해 가면서 침적되었기 때문에 수도권에서 동쪽으로 침적량이 많으며, 여름과 가을에는 풍속이 낮기 때문에 침적량 분포도 수도권 지역에 보다 집중된 형태를 갖는 것이다. 특히 가을에는 풍속이 낮은 가운데 수도권 지역부터 내륙쪽으로 북서풍 계열의 약한 바람이 불었기 때문에 수도권 지역에서 남

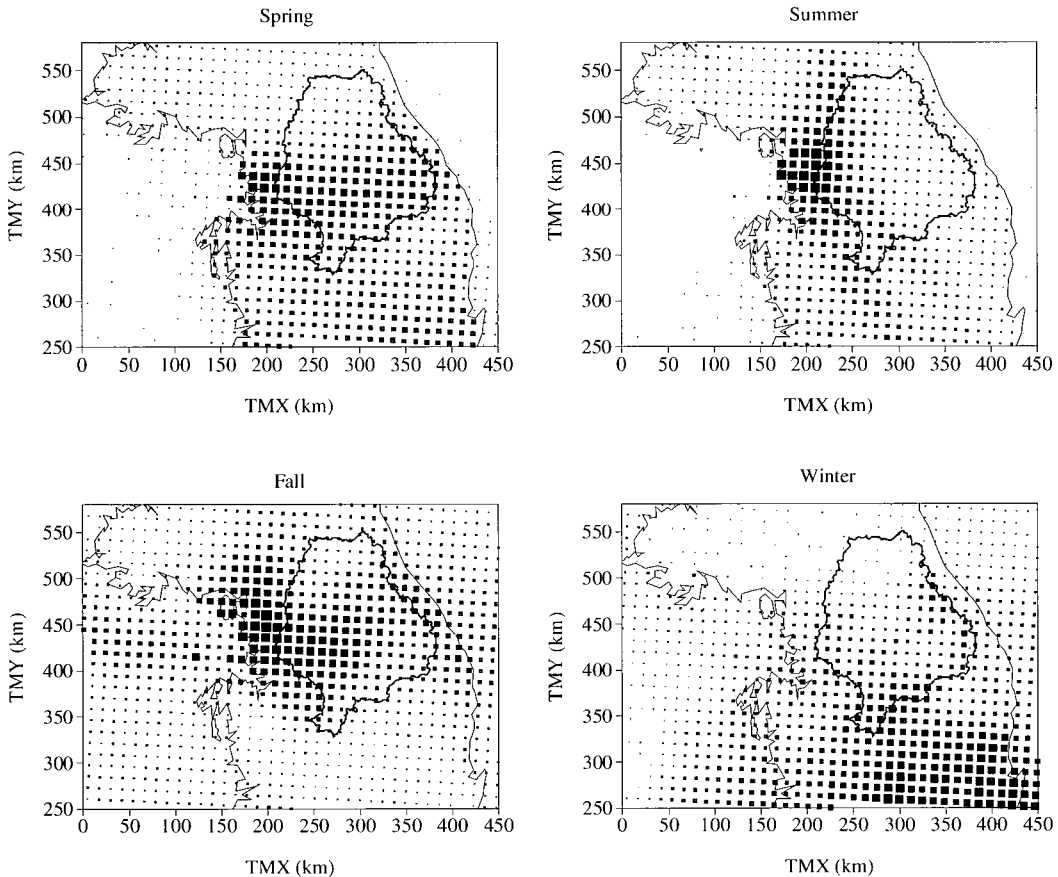


Fig. 8. Distribution of nitrogen deposition for three episode days in each season.

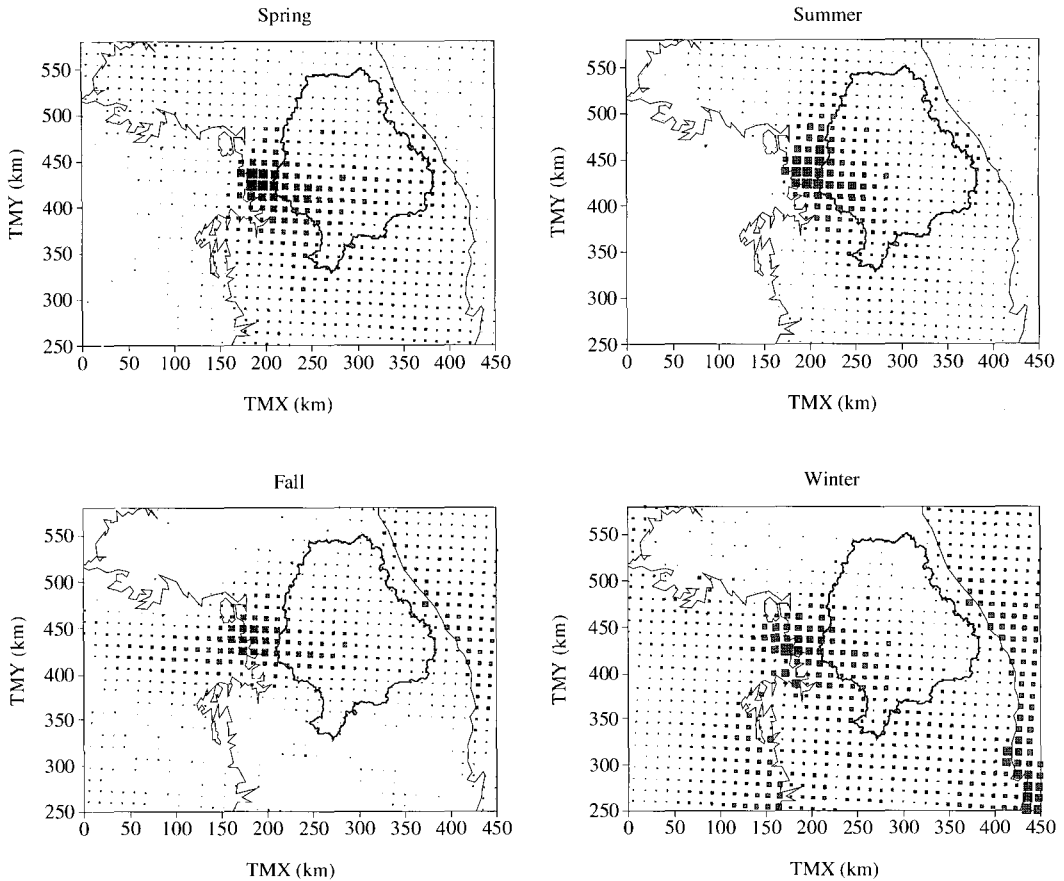


Fig. 9. Distribution of sulfur deposition for three episode days in each season.

동쪽 방향의 팔당호 유역에서 침적량이 많게 나타났다. 또한 겨울에는 계절적으로 북서풍이 지속되면서 침적량이 가장 많은 지역도 남동쪽으로 훨씬 이동하였다.

그림으로 제시하지는 않았지만 총질소의 건식 침적량을 산화성 질소와 환원성 질소로 구분하여 보면, 전체적으로 그림 8의 총질소의 분포와 유사하다. 그러나 산화성 질소의 침적량이 월등하게 많아 총질소의 분포도 대부분 산화성 질소에 의하여 결정된다.

그림 9는 총황의 건식 침적량 계절 분포이다. 총질소의 대부분이 육지로 침적된 봄과 여름철에는 총황의 건식 침적량 분포와 총질소의 건식 침적량 분포가 어느 정도 유사하다. 그러나 황해상에서의 침적량이 높은 가을철에는 총질소에 비해 침적량이 상대적

으로 낮으며, 동해상까지 침적량 분포가 확산되어 나타나는 겨울철에는 바다 위에서의 총황의 건식 침적량이 특히 높다. 이는 SO₂의 경우 용해도가 높아 바다 위에서의 건식 침적속도가 육지 위에서보다 크기 때문으로 이해할 수 있다.

총황의 계절별 침적량 분포에서 특이한 사항은 이동이 주요 변수인 총질소의 경우와 달리 바람장에 의하여 침적량 분포가 결정되지 않고 주로 배출원 주변에서 침적량이 높다는 점이다. 이에 따라 팔당호 유역에 대한 총황의 건식 침적량도 수도권 지역에 가까울수록 침적량이 높는데, 이는 황의 주요 물질인 SO₂와 SO₄²⁻의 침적속 차이가, 질소의 주요 물질인 NO₂, HNO₃, NO₃⁻의 침적속 차이와 다르기 때문이다. 즉, (1) NO₂, SO₂와 같은 일차 오염물질은 체류시

간이 짧아 주로 배출원 주변에서 농도가 높다. 반면, (2) HNO_3 , NO_3^- , SO_4^{2-} 와 같은 이차 오염물질은 반응에 필요한 시간 때문에 하류에서 농도가 높고 그만큼 이동의 영향이 크다. 그런데 (3) 기체상 물질인 HNO_3 는 질소화합물 중 침적속이 가장 큰 물질로서 총질소 침적량에 기여도가 큰 반면 (4) 입자상 물질인 SO_4^{2-} 의 침적속은 SO_2 의 1/10 이하로 매우 작아서 총황 침적량에 기여하는 부분이 미미하다. 결국, 총질소 침적량 분포에서는 HNO_3 의 비중이 커 이동의 영향이 큰데 비하여 총황 침적량 분포에는 SO_2 가 주로 기여함에 따라 배출원 주변에서 침적량이 많다.

그림 8을 보면 겨울철에는 북서풍의 영향에 의해 질소의 침적량이 배출이 많은 수도권보다 훨씬 남동쪽으로 치우쳐 있다. 이는 본 연구 사례의 특별한 경우일 수도 있으나, 겨울철이 시베리아 고기압의 영향으로 편서풍이 강한 계절임을 감안하면 겨울의 전형적 분포 특성일 가능성이 충분하다.

3.4 팔당호 유역에 대한 침적 총량

모델링 영역에서의 팔당호 유역에 대한 각 물질별 질소와 황의 배출총량을 표 4에 나타내었다. 모사기간 3일 동안 팔당호 유역에 대한 총질소의 침적량은 가을이 가장 많고, 봄, 여름, 겨울 순이다. 이는 여름철에 반응이 활발하여 질소 침적량의 상당부분을 차지하는 HNO_3 의 농도가 높고, 따라서 사계절 중 여름철에 질소 침적량이 가장 많다는 Ghim and Kim (2002)과는 다른 결과이다. 이와 같은 차이는, Ghim and Kim (2002)에서는 대상 영역이 배출이 많은 수

도권 지역이고, 모델링 영역 면적이 $60 \times 60 \text{ km}$ 로 좁은 반면 본 연구에서는 자체 배출이 상대적으로 적은 팔당호 유역이 대상이고, 영역도 넓어 이동의 영향이 커지면서 나타난 현상으로 이해된다.

물질별로 총질소 침적량에 가장 많이 기여하는 물질은 HNO_3 로서 가을에는 90%에 달하며, 가장 적은 여름에도 61%에 이른다. 여름과 봄에는 NO_2 의 기여율이 각각 21%, 15%로 비교적 크며, 특히 여름에는 NH_3 의 기여율도 약 16%로 크다. 겨울철에는 기온이 낮아 입자상 NO_3^- 와 NH_4^+ 의 기여율이 각각 11%, 13%로 높다. 총황의 침적량은 봄, 여름에 많고 가을, 겨울에 적다. 총황은 대부분 SO_2 형태로 침적되어 이의 비중이 가을에 87%로 다소 작을 뿐 94~96%로 매우 높은 반면 SO_4^{2-} 의 기여율은 낮다. 총질소와 황의 1일 침적량은 평균 9,970 kg과 4,250 kg으로 총질소가 총황보다 약 2.3배 많다.

강수의 영향을 배제하고 연간 건식 침적량을 추정하기는 쉽지 않다. 그러나 김영성과 진현철(제출)의 예에 따라 하루 강수량이 10 mm 이상인 날을 강수의 영향이 지배적이었던 날로 인정하여 날수를 조사하면 팔당호 유역의 중심인 홍천의 경우, 1997년 봄부터 겨울까지 각각 10, 12, 8, 3일 등 33일이다. 계절별로 이들 강수일을 제외하고 침적량을 산출하여 합산하면 총질소 3,300톤, 총황 1,400톤이 되며, 표 2의 팔당호 유역 배출량과 비교할 때 총질소는 37%, 총황은 26%에 해당된다. 총질소가 이동의 영향이 큰 HNO_3 형태로 주로 침적되고 총황이 배출원 주변에서 대부분 SO_2 형태로 침적됨을 감안할 때 배출에

Table 4. Total nitrogen and sulfur depositions on nitrogen and sulfur bases, respectively, over the watershed of Lake Paldang for three episode days in each season (kg/three days).

Compound	Spring	Summer	Fall	Winter
NO_2	5,175 (14.6) ^a	4,924 (21.2)	1,907 (4.6)	1,536 (7.8)
NO	0.3 (0.0)	0.2 (0.0)	0.2 (0.0)	0.2 (0.0)
HNO_3	26,740 (75.5)	14,276 (61.3)	37,270 (90.2)	13,179 (67.0)
NH_3	2,277 (6.5)	3,643 (15.7)	963 (2.3)	333 (1.7)
NO_3^-	323 (0.9)	1.1 (0.0)	152 (0.4)	2,108 (10.7)
NH_4^+	894 (2.5)	429 (1.8)	1,037 (2.5)	2,513 (12.8)
Total N	35,409 (100)	23,273 (100)	41,329 (100)	19,669 (100)
SO_2	15,270 (95.7)	14,817 (96.4)	7,876 (86.7)	9,894 (94.0)
H_2SO_4	48.1 (0.3)	18.4 (0.1)	10.6 (0.1)	7.8 (0.1)
SO_4^{2-}	645 (4.0)	541 (3.5)	1,195 (13.2)	622 (5.9)
Total S	15,963 (100)	15,376 (100)	9,081 (100)	10,523 (100)

^aNumber in parentheses indicates the percent fraction.

대한 침적 비율이 질소에서 더 높게 나타난 것은 수도권 오염물질 이동의 영향이 질소에서 더 컸기 때문으로 해석할 수 있다.

4. 결 론

계절별로 전형적 사례를 선정하여 팔당호 유역을 포함하는 480×348 km 영역에 대하여 12×12 km 격자 간격으로 건식 침적을 예측하였다. 대기질 모델로는 USEPA의 Models-3/CMAQ (Models-3 Community Multiscale Air Quality)을 이용하였고, 기상 모델로는 PSU/NCAR의 MM5 (Mesoscale Model)를 이용하였다.

모델 예측은 충분한 자료 확보가 가능한 NO₂, SO₂ 등 기준 물질에 대하여서만 측정값과 비교하였다. 대체적으로 변화 범위가 유사하였음에도 예측값이 낮은 경향을 보였는데, 중규모의 MM5 바람장 풍속이, 오염물질 이동에 실제로 유효한 국지 바람장보다 빠른 것이 중요한 원인의 하나로 생각되었다.

모사기간 3일 동안 팔당호 유역에 대한 총질소의 침적량은, 수도권에서 생성된 HNO₃가 팔당호 유역으로 이동하면서 가을철에 가장 많았다. 팔당호 유역의 질소 침적은 성분별로, HNO₃가 계절에 따라 60~90%로 많았으며, NH₄⁺의 침적 비율은 기체상과 입자상을 합하여도 대체로 20%에 미치지 못하였다.

총황은 총질소의 경우와 달리 바람에 따라서 침적량 분포가 결정되지 않고 주로 배출원 주변에서 침적량이 높았다. 이는 총질소가 주로 이차 오염물질인 HNO₃의 형태로 침적되는데 비하여 총황은 대부분 SO₂ 형태로 침적됨에 따라 침적량 분포도 일차 오염물질과 유사한 모습을 보이게 된 때문이다.

팔당호 유역에 대한 건식 침적량은 총질소가 총황에 비해 약 2.3배 많았다. 강우의 영향이 지배적인 날을 배제하고 연간 건식 침적량을 산출하여 팔당호 유역에서의 배출량과 비교하면, 총 질소는 37%, 총황은 26% 이었는데, 질소가 황보다 수도권으로부터 이동의 영향이 커 비율이 높아진 것으로 해석되었다.

감사의 글

본 연구는 한국과학기술연구원의 금수강산 21사업

과 21세기 프론티어 연구개발사업인 수자원의 지속적인 확보기술개발사업(연구번호 5-7-1)의 일환으로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

기상청(1991) 한국기후보.
 김동영(1998) 시간 및 격자단위 대기오염물질 배출모형의 개발 -수도권의 광화학스모그 선구물질을 중심으로-, 서울대학교 환경대학원, 박사학위 논문.
 김영성, 진현철, 팔당호로의 질소와 황성분 침적 측정, 한국 대기환경학회지, 21(1), 39-48.
 김영성, 진현철, 김진영, 임은정, 이시혜, 김용표, 심상규(2002) 팔당호로의 질소와 황성분 침적 측정, 한국 대기환경학회 추계학술대회, 11월 8-9일, 서라벌대학교, 논문 번호 2E3.
 김진영, 김영성, 정관영(2000) 서울·인천 지역 자동기상관측 바람 자료의 특성 분석, 한국기상학회지, 36(2), 153-166.
 김진영, 김영성, 이승복, 문길주(2003) 황해 지역의 질소와 황 침적 추정, 한국대기환경학회지, 19(2), 217-229.
 환경부(1998) 팔당호 등 한강수계 상수원 수질개선 특별종합대책(안), 10월 22일.
 환경부(2001) 환경통계연감, 제14호.
 Brook, J.R., L. Zhang, Y. Li, and D. Johnson(1999) Description and evaluation of a model of deposition velocities for routine estimates of dry deposition over North America. Part II: review of past measurements and model results, Atmospheric Environment, 33, 5053-5070.
 Byun, D.W. and J.K.S. Ching(1999) Science Algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System, EPA/600/R-99/030, Environmental Protection Agency, Research Triangle Park, NC.
 Chang, J.S., R.A. Brost, I.S. Isaksen, S. Madronich, P. Middleton, W.R. Stockwell, and C.J. Walcek(1987) A three-dimensional Eulerian acid deposition model: Physical concepts and formulation, J. Geophys. Res., 92, 14681-14700.
 Dentener, F.J., G.R. Carmichael, Y. Zhang, J. Lelieveld, and P.J. Crutzen(1996), Role of mineral aerosol as a reactive surface in the global troposphere, J. Geophys. Res., 101, 22869-22889.
 Dudhia, J., D. Gill, K. Manning, W. Wang, C. Bruyere, J.

- Wilson, and S. Kelly (2003) PSU/NCAR Mesoscale Modeling System Tutorial Class Notes and User's Guide: MM5 Modeling System Version 3, National Center for Atmospheric Research, <http://www.mmm.ucar.edu/mm5/documents/tutorial-v3-notes.html> (accessed in May 2001).
- Finlayson-Pitts, B.J. and J.N. Pitts, Jr. (1986) Atmospheric Chemistry: Fundamentals and Experimental Techniques, Wiley-Interscience, New York, N.Y.
- GEIA (Global Emissions Inventory Activity) (2003) <http://weather.engin.umich.edu/geia/> (accessed in Jan. 2003).
- Ghim, Y.S. and J.Y. Kim (2002) Dry Deposition of Reactive Nitrogen and Sulfur compounds in the Greater Seoul Area, *Korean J. Chem. Eng.*, 19, 52-60.
- NAPAP (National Acid Precipitation Assessment Program) (1991) 1990 Integrated Assessment Report, Washington, DC.
- Park, S.-U. and Y.-H. Lee (2002) Spatial distribution of wet desposition of nitrogen in South Korea, *Atmospheric Environment*, 36, 619-628.
- Park, S.-U., Y.-H. Lee, and H.-J. In (2000a) Estimation of wet deposition of sulfate using routinely available meteorological data and air-monitored data in Korea, *Atmospheric Environment*, 34, 3249-3258.
- Park, S.-U., H.-J. In, S.-W. Kim, and Y.-H. Lee (2000b) Estimation of sulfur deposition in South Korea, *Atmospheric Environment*, 34, 3259-3269.
- Park, S.-U., Y.-H. Lee, and E.-H. Lee (2002) Estimation of nitrogen dry deposition in South Korea, *Atmospheric Environment*, 36, 4951-4964.
- Streets, D.G., G.R. Carmichael, M. Amann, and R.L. Arndt (1999) Energy consumption and acid deposition in Northeast Asia, *Ambio*, 28, 135-143.
- USEPA (U.S. Environmental Protection Agency) (1990) User's Guide for the Urban Airshed Model, Volume I: User's Manual for UAM (CB-IV), EPA-450/4-90-007A, Research Triangle Park, NC.
- USEPA (U.S. Environmental Protection Agency) (1999) A User Manual for the EPA Third-Generation Air Quality Modeling System (Models-3 Version 3.0), EPA-600/R-99/055, Research Triangle Park, NC.
- USEPA (U.S. Environmental Protection Agency) (2000) Deposition of Air Pollutants to Great Waters, 3rd Report to Congress, EPA-453/R-00-005, Research Triangle Park, NC.
- Wesely, M.L. and B.B. Hicks (2000) A review of the current status of knowledge on dry deposition, *Atmospheric Environment*, 34, 2261-2282.