

2007년 6월 수도권 오존모사 V - 배출량 변화에 따른 오존농도 예측 시 민감도기법 적용

Ozone Simulations over the Seoul Metropolitan Area for a 2007 June Episode, Part V: Application of CMAQ-HDDM to Predict Ozone Response to Emission Change

김 순 태*

아주대학교 환경건설교통공학부

(2011년 8월 9일 접수, 2011년 8월 30일 수정, 2011년 10월 4일 채택)

Soontae Kim*

*Division of Environmental, Civil & Transportation Engineering, Ajou University,
Suwon, Korea*

(Received 9 August 2011, revised 30 August 2011, accepted 4 October 2011)

Abstract

In this paper, we use the HDDM (High-order Decoupled Direct Method)-driven ozone sensitivity to predict change in ozone concentrations in response to domain-wide NO_x (Oxides of Nitrogen) and VOC (Volatile Organic Compound) emission controls over the Seoul Metropolitan Area during June 11 ~ 19, 2007. In order to validate the applicability of HDDM to NO_x and VOC control scenarios, the HDDM results are compared to Brute Force Method (BFM). For VOC controls, NME (Normalized Mean Error) between BFM and HDDM remains less than 2% until the domain-wide VOC emissions are reduced by 80%. The NME for a 40% reduction in the domain-wide NO_x emissions is less than 5% but increases abruptly after further reductions in the NO_x emissions (i.e., 80% reduction). The results indicates that it may be inaccurate to use ozone sensitivity coefficients estimated at a given base emission condition in predicting ozone after NO_x reductions larger than ~50% of the domain total in the SMA. Therefore, HDDM application on piecewise emissions is desirable to predict ozone response to emission controls with accuracy (i.e., truck emissions rather than the domain total). For computational efficiency, HDDM shows approximately 30% faster than the BFM sensitivity approach.

Key words : VOC and NO_x emissions, Control strategy, Ozone response, Brute force method, High-order decoupled direct method

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

1. 서 론

오존 (Ozone) 농도는 NO_x (Oxides of Nitrogen)와 VOC (Volatile Organic Compounds) 등 전구물질 배출량 변화에 따라 달라진다 (Seinfeld and Pandis, 1998; Dodge, 1987). 배출량 변화에 따른 오존농도 예측은 전통적으로 Brute Force Method (BFM)가 많이 이용되어 왔다 (Environ, 2010). BFM은 배출량 변화에 따른 비선형적인 오존농도 변화를 예측할 수 있는 가장 확실한 방법으로 알려져 있다. 하지만, 동일한 오염원에 대해서도 삭감 또는 증가되는 배출량이 달라질 경우 비선형적인 오존변화를 고려하기 위해 배출량 변화에 따른 반복적인 대기질 모사가 필요한 단점이 있다 (Cohan *et al.*, 2003). 또한 BFM에서는 기본 배출량 외에 대조실험을 위한 추가적인 배출량을 준비하여야 하며, 많은 배출량 시나리오에 대한 오존농도 변화분석이 필요한 경우, 그에 해당하는 배출량 입력자료를 모두 준비해야 하는 번거로운 작업과정이 요구된다 (Cohan, 2004).

HDDM (High-order Decoupled Direct Method)은 오존 민감도를 이용하는 방법으로 기본 배출량 조건에서 오존 민감도 계수를 산정하고, 이를 Taylor expansion에 적용하여 배출량 변화에 따른 오존농도 변화를 예측한다 (Cohan *et al.*, 2005). 또한, HDDM을 활용한 오존농도 예측은 비교적 정확한 결과를 산출할 수 있고 계산시간이 효율적인 분석방법으로 알려져 있어 (Yang *et al.*, 1997), 최근 배출량 저감계획 수립 시나 예상되는 배출량 변화에 따른 오존농도 예측 등에 적용되고 있다 (Kim *et al.*, 2009; Environ, 2008). 또한 HDDM은 주어진 배출량 조건에서의 민감도 분석 외에 (Napelenok *et al.*, 2006), 배출량 저감에 따른 대상물질의 농도변화를 예측할 수 있으며 (Cohan, 2004), 오존의 경우 NO_x 와 VOC 배출량에 대한 isopleth를 작성할 수 있다 (Environ, 2008). 더욱이 ZOC (Zero-out Contribution)을 이용하여 특정 배출원의 기여도 분석 (i.e., Kim and Lee, 2011) 및 IR (Incremental Reactivity) 연구 등에 적용 가능하다 (Cohan *et al.*, 2005).

HDDM과 같이 민감도를 이용할 경우 비선형적인 오존농도 변화를 완전하게 재현할 수는 없으나, 비교적 작은 오차범위 내에서 오존농도 예측이 가능하다.

Cohan (2004)에 따르면 1차 및 2차 민감도를 이용할 경우 모사영역 전체에 대해 50% 내외로 배출량을 변화 시 오존 모사농도 오차범위는 BFM과 비교하여 10% 정도로 알려져 있다.

미 환경청 보고서 (U.S. EPA, 2007)에 따르면 HDDM 등을 이용한 민감도 및 기여도 분석은 대기질 모사에 이용되는 배출량 등 입력자료의 불확도를 진단하고, 개선하는 데 활용될 수 있다. 예를 들어 과다 산정된 배출량을 평가하기 위해 해당 배출량의 변화에 따른 대기 중 전구물질 및 오존농도의 변화를 살펴볼 수 있으며, A지역의 배출량 변화에 따른 B지역에서의 농도 변화, 그리고 서로 다른 오염원에 의한 오존생성 등 그 적용이 다양하다.

수도권의 경우 대기질 모사와 관련하여 현재로서는 배출량 등 모사 입력자료의 불확도를 검토하기 위한 많은 연구가 필요한 점을 (Lee *et al.*, 2009; Kim *et al.*, 2008a) 감안할 때, 이러한 HDDM의 민감도 기법을 적용할 경우 다양한 분석에 대해 시간효율적인 접근이 가능할 것으로 판단된다. 국외의 경우 HDDM을 이용하여 대기질 모사의 불확도 검토 등 다양한 연구가 최근 수행되고 있으나 (Tang *et al.*, 2011; Wang *et al.*, 2011; Napelenok *et al.*, 2011, 2006), 수도권을 비롯한 국내의 경우 아직 그 적용방안에 대한 검토가 필요한 상황이다.

이에 본 연구에서는 민감도 기법인 HDDM을 이용하여 수도권 지역의 배출량 변화에 대한 오존농도 변화를 오존 isopleth와 민감도 계수를 통해 예측하였다. 또한 HDDM 적용 시 제기될 수 있는 제한요소를 파악하고 그에 따른 해결방안을 모색하였다. HDDM 방법의 정확성을 평가하기 위해 배출량 삭감 단계별로 BFM 모사결과와 비교하였으며, 두 방법간의 계산시간 효율성에 대해서도 논의하였다.

2. 연구방법

2.1 대기질 모사

WRF (Weather Research and Forecasting) version 3.2 모델을 이용하여 기상자료를 준비하였으며, 27 km-9 km-3 km 수평 해상도의 모사영역을 동지격자화로 설정하였다. 지형자료는 1.1 km 간격으로 구성된 USGS DEM (Digital Elevation Model) 30초 자료를

사용하였다. 토지이용자료는 시가지지역, 농업지역, 산림지역, 초지, 습지, 나지, 수역의 7개의 대분류와 22개의 중분류로 이루어진 환경부 토지이용자료를 사용하였다. 기상 수치모사 기간은 2007년 6월 1일~20일이며, 대기질 수치모사 기간은 3일간의 ramp-up 기간을 포함한 2007년 6월 8일~19일이다. 기상 초기장의 경우 NCEP FNL 자료를 이용하였으며, WRF 모사결과는 MCIP (Meteorology-Chemistry Interface Processor) version 3.6을 통해 전환하고 배출량 준비 및 광화학 모사에 이용하였다. 3 km 수도권 모사영역에 대한 배출량 자료는 2007년 CAPSS (Clean Air Policy Supporting System) 자료를 SMOKE (Sparse Matrix Operation Kernel Emissions; Benjey *et al.*, 2001)를 통해 처리하였으며 (Kim *et al.*, 2008b), 국외 배출량의 경우 2006년 INTEX-B (2006 the International Chemical Transport Experiment-Phase B; Zhang *et al.*, 2009) 자료를 이용하였다. 자연 배출량은 MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature; Guenther *et al.*, 2006)을 이용하여 준비하였다. 표 1에 본 연구에서 이용된 대기질 모사방법을 정리하였으며, 그림 1에 대기질 모사영역과 대기질 모사결과 평가를 위하여 사용된 대기질 측정소를 표시하였다. 대상기간 선정, 기상 및 배출량 준비, 그리고 대기질 모사방법에 대한 보다 자세한 사항은 동반논문 (Kim, 2011a)을 참고할 수 있다.

2.2 배출량 변화에 따른 오존농도 예측

NO_x와 VOC 배출량 변화에 따른 오존농도 예측은 크게 1) 변화되는 배출량 입력자료를 준비하여 직접 오존농도를 모사하는 방법과 2) 기본 배출량 조건에서 산정된 민감도를 Taylor expansion에 적용하여 예측하는 방법 (i.e., HDDM)으로 구분할 수 있다. 앞서 설명한 바와 같이 전자의 경우 오존의 비선형적 변화를 고려할 수 있는 장점이 있는 반면, 다양한 배출량 변화에 따른 오존농도 변화예측이 필요한 경우 모든 시나리오에 대한 배출량 준비 및 모사를 개별적으로 수행해야 한다. HDDM의 경우 일종의 근사 (approximation) 방법으로 전자와 비교하여 100% 동일한 결과를 얻을 수는 없으나, 다양한 배출량 변화 단계별 예측이 통상 한 번의 모사로써 예측이 가능하며, 이로 인해 계산시간의 효율성을 기대할 수 있다. BFM 방법의 경우 두 가지 방법 모두 적용이 가능하며 (Environ, 2008; Cohan *et al.*, 2005), 본 연구에서는 BFM의 두 가지 방법을 구분하기 위해 편의상 배출량을 변화시켜 직접 오존을 모사하는 방법을 BFM (또는 BFM 배출량 방법)으로, 주어진 기본조건에서 민감도 계수를 산정하는 방법을 BFM 민감도 방법으로 표기한다.

Kim (2011b)은 HDDM을 이용하여 1차 및 2차 민감도 계수를 산정하였으며, 이를 이용할 경우 배출량 변화에 따른 오존농도 변화는 식 (1)과 같이 나타낼

Table 1. WRF and CMAQ configurations used in this study.

Meteorology	Physical parameterizations	Options
WRF Version 3.2	Short-wave radiation	Goddard shortwave radiation
	Long-wave radiation	RRTM scheme
	Land-surface option	Unified NOAH land-surface model
	Cumulus option	Kain-fritsch (new Eta) scheme
	Microphysics option	WSM 3-class simple ice scheme
	Boundary-layer option	YSU scheme
Air quality	Modules	Options
CMAQ Version 4.7.1	Chemical mechanism	SAPRC99
	Chemical solver	EBI
	Aerosol module	AERO5
	Boundary condition	Default profile for the 27-km domain
	Advection scheme	YAMO
	Horizontal diffusion	Multiscale
	Vertical diffusion	Eddy
	Cloud scheme	RADM
	Anthropogenic emissions	2006 INTEX-B and 2007 CAPSS
Biogenic emissions	MEGAN	

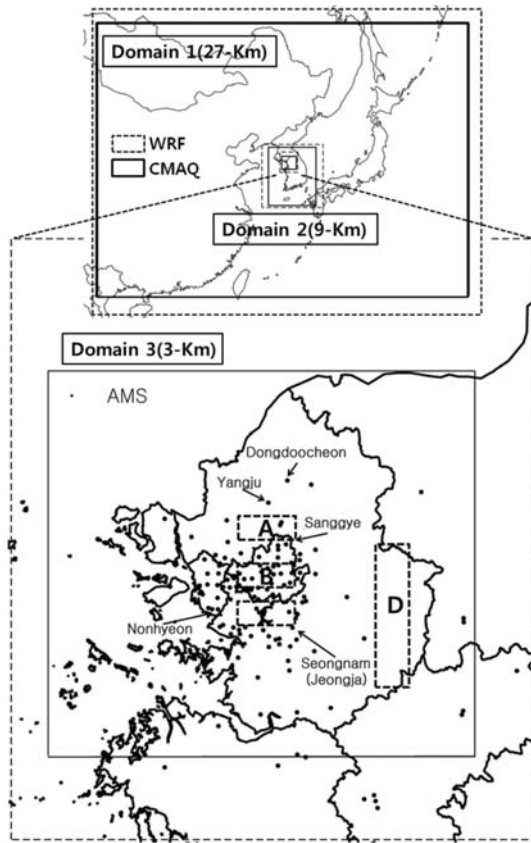


Fig. 1. WRF (dashed box) and CMAQ (Solid box) modeling domains at a horizontal resolution of 27 km, 9 km, and 3 km, respectively. Dots in the 3-km resolved domain represent Air quality Monitoring Stations (AMS) used to evaluate model performance. AMS selected to plot ozone isopleths are depicted in the 3-km domain. Regions A, B, C, and D are prepared to compare HDDM and BFM results for emission control scenarios.

수 있음을 설명하였다(Cohan *et al.*, 2005).

$$C_{\Delta\epsilon_j} \approx C_o + \Delta\epsilon_j S_j^{(1)} + \frac{1}{2} \Delta\epsilon_j^2 S_j^{(2)} \quad (1)$$

여기에서 C_o 와 $C_{\Delta\epsilon_j}$ 는 각각 기본 배출량과 변화된 배출량을 이용한 모사농도, $\Delta\epsilon_j$ 는 배출량 j (예를 들어 NO_x 또는 VOC)의 기본 배출량 대비 변화율을, $S_j^{(1)}$ 와 $S_j^{(2)}$ 는 배출량 j 에 대한 오존의 1차와 2차 민감도이다.

실제로 배출량 저감방안의 경우 NO_x 또는 VOC

배출량 중 하나만을 대상으로 마련될 수 있으나, 많은 경우 두 가지 배출량은 함께 변화한다. 예를 들어 자동차 배출량의 NO_x 저감장치를 적용할 경우 NO_x 배출량만의 변화가 기대되나, 자동차 운행제한 등을 적용할 경우 NO_x 와 VOC 배출량이 동시에 저감될 수 있다. 이 경우 NO_x 와 VOC 배출량에 대해 식(1)을 확장하면 2개의 배출량 j 와 k 에 대해 식(2)와 같이 나타낼 수 있다(Cohan *et al.*, 2005).

$$C_{\Delta\epsilon_j\Delta\epsilon_k} \approx C_o + \Delta\epsilon_j S_j^{(1)} + \frac{1}{2} \Delta\epsilon_j^2 S_j^{(2)} + \Delta\epsilon_k S_k^{(1)} + \frac{1}{2} \Delta\epsilon_k^2 S_k^{(2)} + \Delta\epsilon_j \Delta\epsilon_k S_{j,k}^{(2)} \quad (2)$$

여기에서 우변 둘째와 셋째 항, 그리고 셋째와 다섯째 항은 각각 배출량 j 와 k 변화에 대해 1차와 2차 민감도계수를 이용하여 오존농도 변화를 예측하기 위한 것이며, 우변 여섯째 항은 배출량 j 와 k 에 대한 교차 민감도(cross sensitivity)를 나타낸다. 교차 민감도를 이용할 경우 주어진 VOC/ NO_x 조건에서 VOC 배출량이 감소한다면 NO_x 배출량에 대한 오존의 민감도는 어떻게 변화하는지 등의 상호영향을 분석할 수 있다(Cohan *et al.*, 2005). 식(2)에서 3차 이상 교차항은 생략되어 오차항이 된다.

본 논문에서는 Kim(2011b)이 NO_x 와 VOC 배출량에 대해 산정된 오존 민감도 계수를 식(1)과 (2)에 적용하여 수도권 지역의 배출량 변화에 대한 오존농도 변화를 예측하였다. 배출량 변화에 따른 오존농도 변화에 대한 HDDM의 예측성을 평가하기 위하여 NO_x 와 VOC 배출량을 독립적으로 변화 후 모사한 BFM 결과와 민감도 계수를 식(1)에 적용한 HDDM 결과를 비교하였다. NO_x 와 VOC 배출량이 동시에 변하는 경우에 대해서도 BFM 모사와 HDDM 결과를 비교하였다. HDDM의 민감도 기법의 경우 NO_x 와 VOC 배출량이 함께 변할 경우 식(2)를 이용하며, 이때 필요한 교차 민감도 계수를 산정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 기본 대기질 모사

그림 2와 3은 모사된 1시간평균 오존과 NO_2 농도를 모사기간 동안 수도권 지역에서 이용 가능한 96개 모든 대기질 측정소에 대해 비교한 것이다. 6월

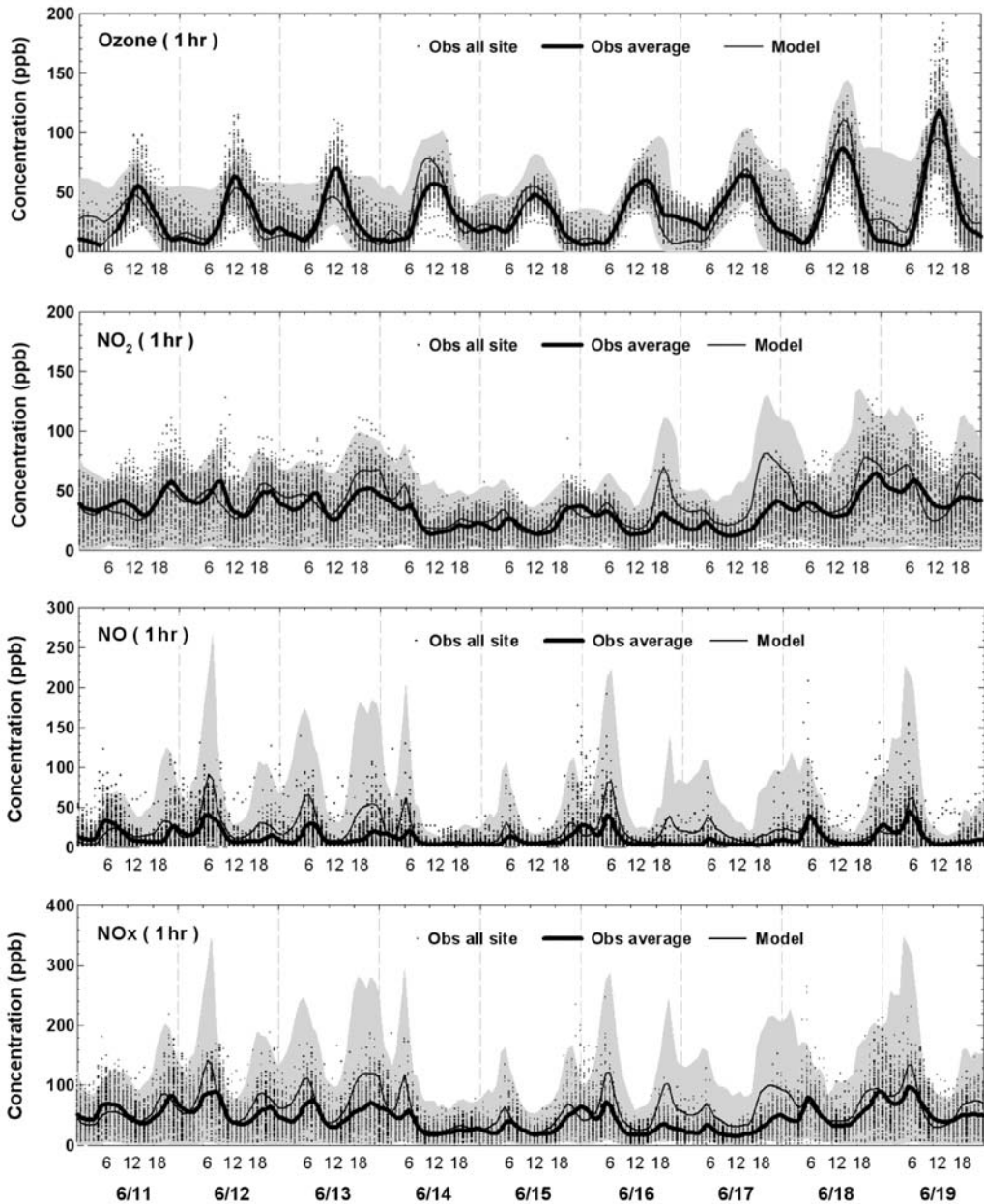


Fig. 2. Hourly ozone, NO₂, NO and NO_x over the SMA during the modeling period. Observations at 96 AMS inside the SMA are compared to the simulation. Dots are observed 1-hr concentrations, and grey area shows the simulated range. Thick and thin line represents observed and simulated average, respectively.

11일~13일에는 서울 및 경기 동부지역에서 100 ppb 내외의 오존이 관측되었으며, 낮 시간 모사농도 또한 유사한 범위를 보인다. 6월 18일에는 서울 동부지역

에서 131 ppb의 최고 오존농도가 관측되었으며, 수도권 지역에 대해 모사된 최고농도는 140 ppb 정도로 측정농도를 초과하고, 평균농도 또한 25 ppb 정도 과

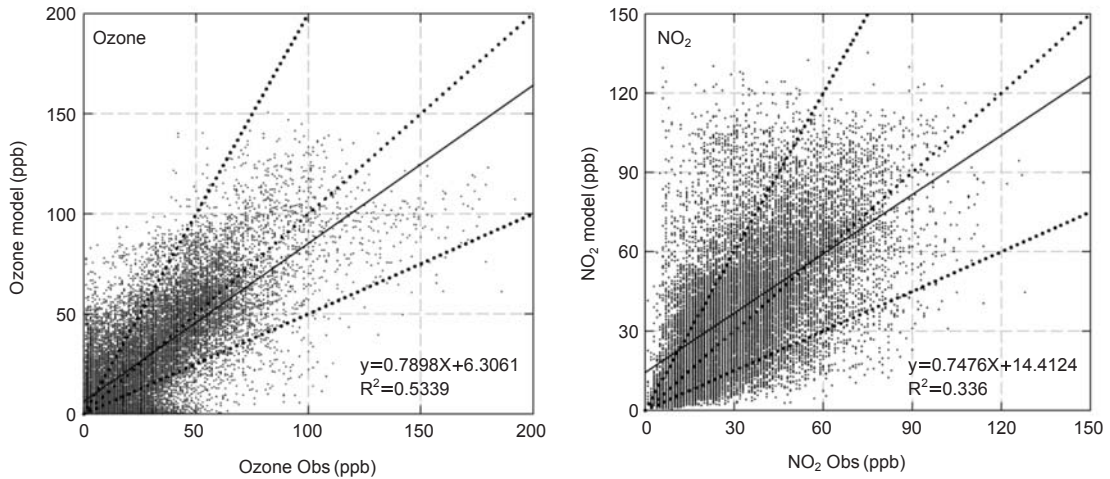


Fig. 3. Scatter diagram of hourly ozone and NO₂ during the modeling period. Observations at 96 AMS inside the SMA are compared to the simulation.

대평가하고 있다. 6월 19일에는 서울 북동지역에서 192 ppb의 최고 관측농도를 보였으나, 모사된 최고 오존농도는 150 ppb로 과소평가하고 있다. 그림 2의 NO₂ 농도는 전반적으로 측정농도와 유사한 시간변화를 보이나, 때때로 특히 야간 동안 과대평가가 두드러진다. 이러한 이유로는 야간 동안 대기 안정도가 실제보다 높게 모사되어 이류 및 확산이 제한되거나 (NIER, 2008), NO_x 배출량이 높게 산정되기 때문으로 추측된다 (i.e., Doraiswamy, 2007). NO_x 배출량에 대한 NO:NO₂ 분할비율은 일반적인 SAPRC99과 같이 90:10을 적용하였다. 이는 Shon *et al.* (2011)이 서울지역에 대해 제시한 NO₂/NO_x 배출비 0.11~0.19에 비해 다소 작은 값을 보인다. NO의 경우 오전 6시와 오후 6시 전후 과대평가가 종종 나타나는데, 이는 교통량에 따른 배출량 증가로 보인다. NO_x의 경우 NO, NO₂와 마찬가지로 모사기간 중 과대평가를 보이는 시간이 자주 나타난다. 대기 안정도와 관련하여 수직확산 제한에 따른 과대모사와 입력되는 NO_x 배출량에 따른 농도 변화 및 오존에 미치는 영향에 대해서는 별도의 논문에서 논의할 예정이다.

그림 3의 산포도에서 오존에 대한 R²는 0.55, 기울기는 0.78을 보이며, 오존에 대한 수행평가를 높이기 위해서는 고농도에 대한 과소평가와 함께 50 ppb 이하의 측정 및 모사농도에 대한 검토가 필요할 것으로 판단된다. NO₂의 경우 산포도 기울기는 0.75로

나타나, 전반적으로 과대평가를 하는 것으로 보인다. 전체적으로 볼 때 오존과 NO₂에 대한 모사결과를 측정치와 비교할 만 하나, SIP (State Implementation Plan) 수준의 대기질 모사(국립환경과학원, 2010)를 위해서는 기상 및 배출량 등 입력자료에 대한 평가와 개선이 향후 지속적으로 필요한 것으로 판단된다.

3. 2 오존 Isopleth

VOC-limited인 지역의 경우 NO_x 배출량 삭감은 일정 범위 내에서 오존을 증가시킬 수 있다(Chang, 2008). 따라서 배출량 변화에 따른 오존농도 변화를 예측하기 위해서는 해당지역이 NO_x-limited 인지 또는 VOC-limited 지역인지 우선적인 판단이 필요하다 (i.e., Environ, 2008). 식 (2)을 이용하면 오존 isopleth를 작성할 수 있으며 이를 통해 NO_x와 VOC 배출량 변화에 따른 오존농도 변화의 예측이 가능하다. 식 (2)를 보면 배출량 변화에 따른 오존의 비선형적인 변화는 산정된 1차, 2차, 그리고 교차 민감도 계수에 따라 달라지게 된다. 또한 NO_x와 VOC 배출량에 대한 오존 민감도는 기상, 배출량 및 초기/경계조건에 따라 지역별로, 날짜별로 달라진다(Environ, 2008; Blanchard and Fairley, 2001).

본 논문에서는 모사기간 중 고농도의 오존이 관측되었던 6월 18일과 19일에 대해 서울, 인천, 경기 북

부 및 남부지역에서 고농도 오존이 관측되었던 측정소를 중심으로 식(2)를 이용하여 오존 isopleth를 작성하였다. 이를 위해 우선 그림 4에 6월 18일과 19일에 대해 모사된 일최고 1시간평균 오존농도를 나타냈으며, 그림 2에서 보인 바와 같이 모사된 오존농

도는 6월 18일에 대해서는 전반적으로 과대평가를, 6월 19일에 대해서는 과소평가를 하고 있으나 다른 모사일에 비해 높은 오존농도를 모사하고 있다.

HDDM을 이용하여 산정된 1차 및 2차 오존 민감도는 별도의 연구(Kim, 2011b)에서 논의하였으며,

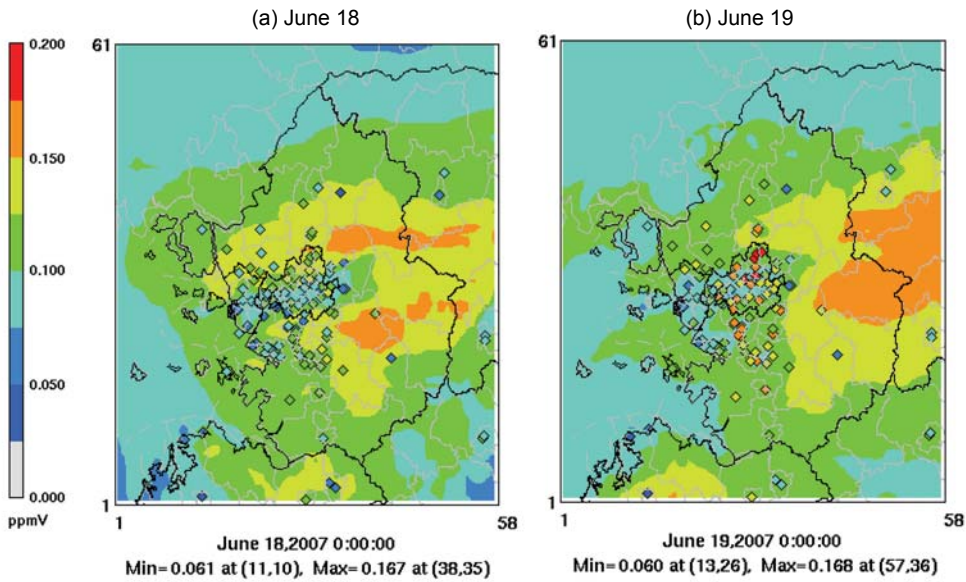


Fig. 4. Daily maximum 1-hr ozone over the Seoul Metropolitan Area for (a) June 18 and (b) June 19, 2007. Diamond symbol and color represent the location of AMS and observed ozone.

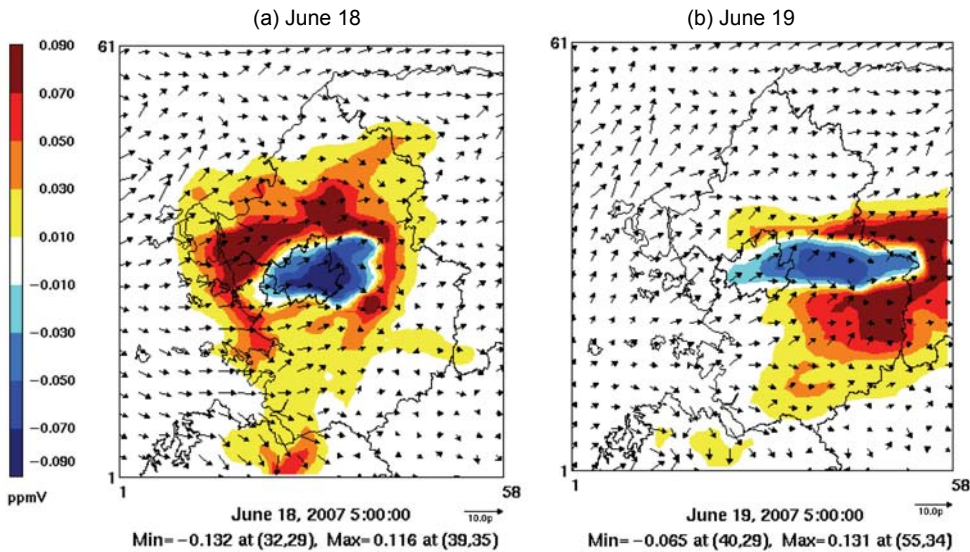


Fig. 5. Cross ozone sensitivity to domain-wide NO_x and VOC emissions for (a) June 18 and (b) June 19, 2007 at 15 KST.

그림 5에 NO_x와 VOC 배출량에 대한 HDDM의 교차 오존 민감도를 보였다. NO_x와 VOC 배출량에 대한 교차 민감도가 음수로 나타나는 경우, 해당 지역에서는 NO_x 배출량이 증가할 경우 VOC 배출량 변화에 따른 오존의 민감도는 감소하는 것을 의미한다. 또한 VOC 배출량이 감소할 경우 NO_x 배출량 변화에 대한 오존의 민감도는 증가함을 나타낸다. 이외는 다르게 교차 민감도가 양수일 경우에는 VOC 배출량

이 감소한다면 NO_x 배출량 변화에 대한 오존의 민감도가 감소하거나, 그 반대로 NO_x 배출량이 감소할 경우 VOC 배출량 변화에 대한 오존 민감도가 감소함을 의미한다. 그림 5 역시 날짜에 따라, 지역에 따라 오존 민감도가 달라지는 것을 보이고 있다.

그림 6과 7은 각 측정소별로 모사영역에 대한 NO_x와 VOC 배출량 변화에 따른 오존농도 변화를 보인 것이다. 식 (2)를 이용한 오존 isopleth의 경우

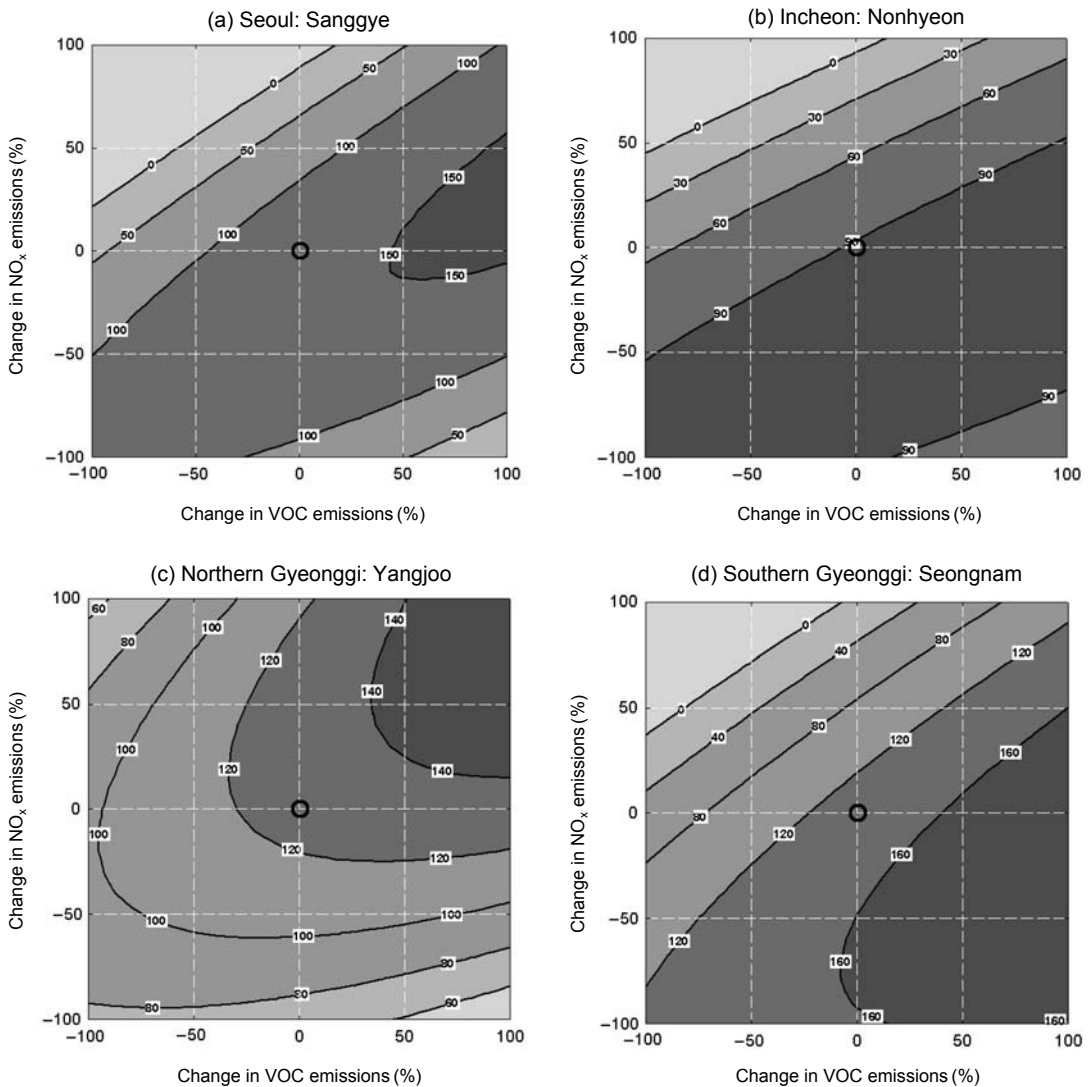


Fig. 6. Ozone response surfaces to domain-wide NO_x and VOC emissions for June 18, 2007. A cell in which the highest daytime (10~17KST) 1-hr ozone is observed for the day is selected for each region. Center circle represents ozone concentration predicted with base emissions.

기본 배출량 대비 +50% ~ -50% 범위의 NO_x와 VOC 배출량 변화에 대해서는 신뢰성이 높은 것으로 알려져 있다 (Environ, 2008). 6월 18일과 19일에 대한 오존 isopleth를 비교해 보면 날짜에 따라 NO_x와 VOC 배출량을 동일하게 저감하더라도 변화되는 오존농도의 크기는 다르다. 예를 들어 인천 논현측정소의 경우, 50%의 VOC 배출량 저감 시 6월 18일의 경우 15 ppb 이상 오존농도가 낮아지나(그림 6(b)), 6월 19일의 경우 같은 배출량 저감에 따른 오존저감 농도는 3 ppb 정도이다.

지역별로 보면 서울, 인천, 경기 남부의 측정소에서는 6월 18일과 19일 모두 VOC-limited인 특성을 보이나, 경기 북부의 경우 기본 배출량을 이용한 오존 모사농도는 6월 18일(양주)에는 isopleth의 마루선(ridge line)에 가깝게 위치하며(그림 6(c) 참조), 6월 19일(동두천)에는 NO_x-limited인 환경에 가깝게 위치한다(그림 7(c)). 이러한 지역별 차이는 경기 북부의 경우 다른 세 지역과 비교하여 배출 밀도가 상대적으로 낮아 풍향에 따라 서울 등 인접한 지역의 영향에 의해 날짜별로 VOC/NO_x 조건이 변하기 때문

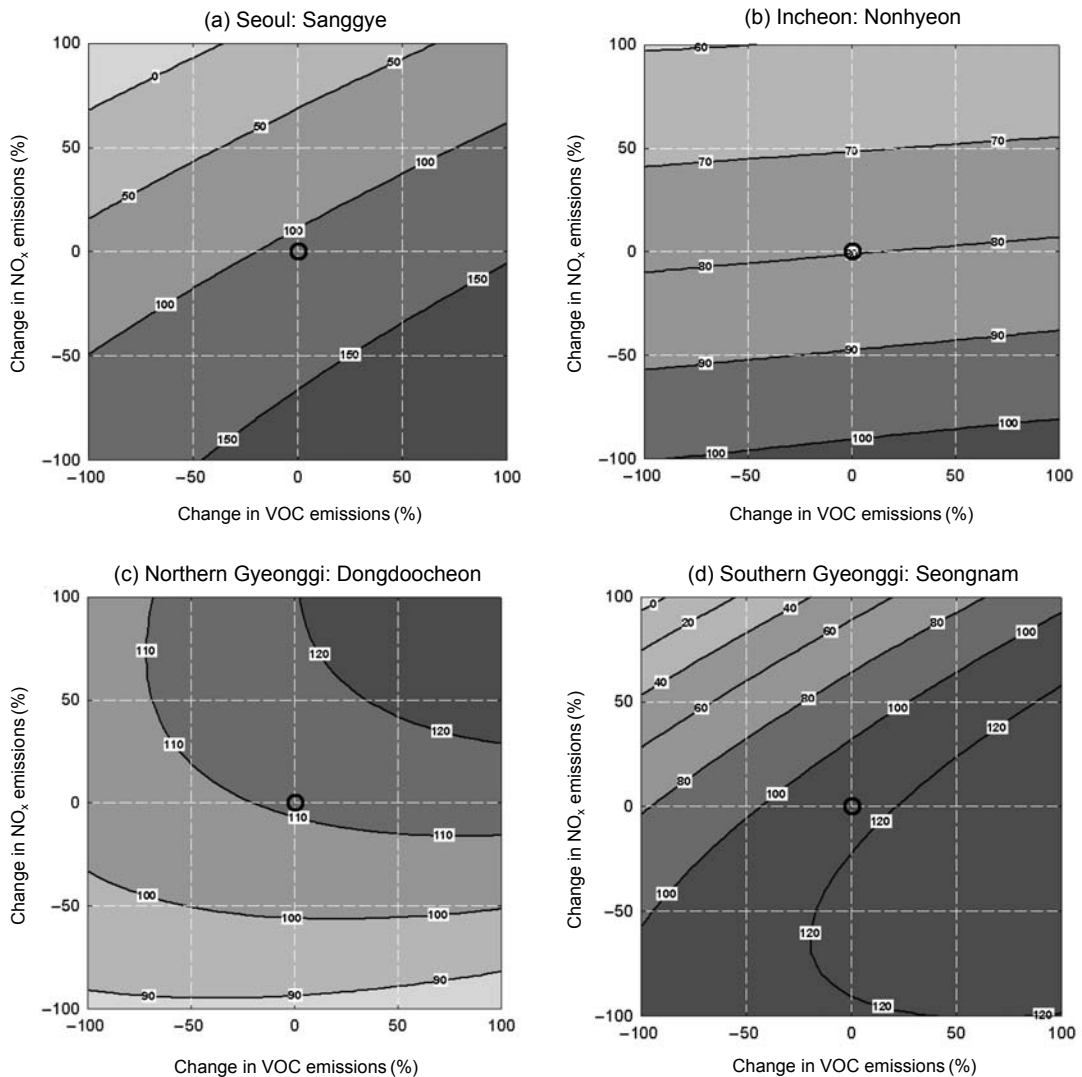


Fig. 7. The same with Fig. 6 except for June 19, 2007.

으로 판단된다. 오존 isopleth를 이용할 경우 주어진 배출량 조건에서 NO_x와 VOC 배출량 변화에 따른 오존농도 변화 경향을 예측할 수 있다. 그러나 앞서 언급한 바와 같이 본 연구에서 이용된 배출량 등 입력자료의 불확실성이 존재하고, 그림 6과 7은 제한된 기간에 대한 모사결과로써 수도권 지역의 일반적인 VOC-limited 또는 NO_x-limited 환경에 대한 설명은 어려운 실정므로, 향후 연관된 연구가 필요하다.

3.3 배출량 변화에 따른 오존농도 예측

그림 8~11은 HDDDM을 이용하여 배출량 변화에 따른 오존농도 예측의 정확성을 평가하기 위하여 BFM(배출량 방법)과 비교한 것이다. 지역별 오존농도 변화특성을 분석하기 위하여 그림 1과 같이 수도권 지역을 서울, 경기 북부와 남부, 그리고 풍하 지역 등 4개의 권역으로 구분하였다. 이들 지역은 그림 4~5와 같이 배출량이 많은 지역(예를 들어 서울, 인천의 NO_x), 서울과 인접하며 오존농도가 높게 모사되는 지역과 풍하 지역으로 구분할 수 있다. 그림 8에서 BFM의 경우 모사에 입력되는 실제 NO_x 배출량을 10%, 20%, 40%, 그리고 80%로 삭감하여 모사하였으며, HDDDM의 경우 민감도 계수를 식(2)에 대입하였다. 하나의 배출량 변화만을 고려할 경우 식(2)에서 Δε_i 또는 Δε_k는 0이 되어 식(1)과 같게 된다.

각각의 NO_x 배출량 삭감 시나리오별 BFM과 HDDDM을 이용한 오존 모사농도를 비교하였으며, 이와는 별도로 식(4)와 (5)의 NMB(Normalized Mean Bias)와 NME(Normalized Mean Error), 그리고 결정계수(R²)를 이용하여 HDDDM의 정합도를 평가하였다.

$$NMB = \frac{\sum(Ozone_{HDDM} - Ozone_{BFM})}{\sum Ozone_{BFM}} \quad (4)$$

$$NME = \frac{\sum |Ozone_{HDDM} - Ozone_{BFM}|}{\sum Ozone_{BFM}} \quad (5)$$

그림 8에서 주목할 점은 크게 두 가지로 나눌 수 있다. 첫 번째는 NO_x 배출량이 40%까지 감소할 경우 A권역을 제외한 나머지 세 권역에서는 오존농도가 증가하는 것으로 BFM과 HDDDM 모두 모사하고 있다. NO_x 배출량이 80% 감소한 경우 BFM 모사에서는 오존농도가 감소하나, HDDDM에서는 지속적인 오존농도 증가를 모사한다. 두 번째로 NO_x 배출량이 40% 삭감될 때까지는 NME가 5%를 넘지 않고 결정

계수 또한 0.95 이상으로 HDDM 모사결과가 BFM에 잘 부합되나, NO_x 배출량이 80% 삭감된 시나리오에 대해서는 NME가 증가하고 결정계수가 0.9 이하로 현저히 낮아진다. 특히 B권역(서울지역)의 경우 80% 삭감 시나리오 대해 NME가 30% 이상으로 나타나는 데, 이는 수도권 지역에서 NO_x 배출량 저감에 따른 오존농도의 비선형적인 변화가 크게 나타나고(Kim, 2011b), 그림 6과 7에 보인 바와 같이 NO_x 배출량이 크게 감소할 경우 오존 isopleth에서 VOC-limited인 환경이 NO_x-limited인 환경으로 전환되기 때문으로 추정된다.

그림 9는 그림 8과 마찬가지로 VOC 배출량 변화에 따른 오존농도 예측을 BFM과 HDDDM에 대해 비교한 것으로 VOC 배출량을 80% 삭감한 경우에도 예측되는 오존농도의 차이는 크지 않다. NME의 경우 VOC 배출량 감소폭이 증가할수록 커지나 80% VOC 배출량 삭감시나리오에 대해 모든 네 권역에서 1% 내외였으며, 결정계수 또한 0.98 이상을 보인다. 이는 수도권 지역에서 VOC 배출량 삭감에 따른 오존농도는 선형적인 변화를 보이기 때문으로 판단된다(Kim, 2011b).

NME와 NMB를 그림 8에서 비교해보면 NO_x 배출량 변화 시 모든 권역에서 NME와 NMB는 거의 동일한 값을 보이는데, 이는 NO_x 배출량 변화에 대한 오존 민감도는 HDDDM을 이용 시 BFM에서 산정된 실제값 보다 항상 더 큰 변화율을 예측하기 때문으로 판단된다. 그림 9에서 VOC 배출량에 대한 NME와 NMB는 지역에 따라 다른 값을 보이는 것을 알 수 있다.

그림 10에 NO_x와 VOC 배출량을 각각 40% 저감한 시나리오에 대해 BFM과 HDDDM을 이용한 오존 예측의 공간분포를 비교하였다. 모사영역에 대해 NO_x 배출량을 40% 저감할 경우 서울지역의 오존농도가 다른 지역에 비해 높게 모사되고 있다. BFM과 HDDDM 모두 유사한 오존 공간분포를 보이니, 그 차이를 보면 주로 서울과 인천, 그리고 풍하 지역에서 HDDDM에 의한 오존 예측농도가 BFM에 비해 많게는 5ppb 가량 높은 것을 볼 수 있다. 모사영역에 대한 VOC 배출량을 40% 저감한 경우에는 서울과 인천의 오존농도가 다른 지역에 비해 낮은 것을 볼 수 있으며, BFM과 HDDDM의 차이는 같은 비율의 NO_x 배출량 변화에 비해 작은 것을 알 수 있다.

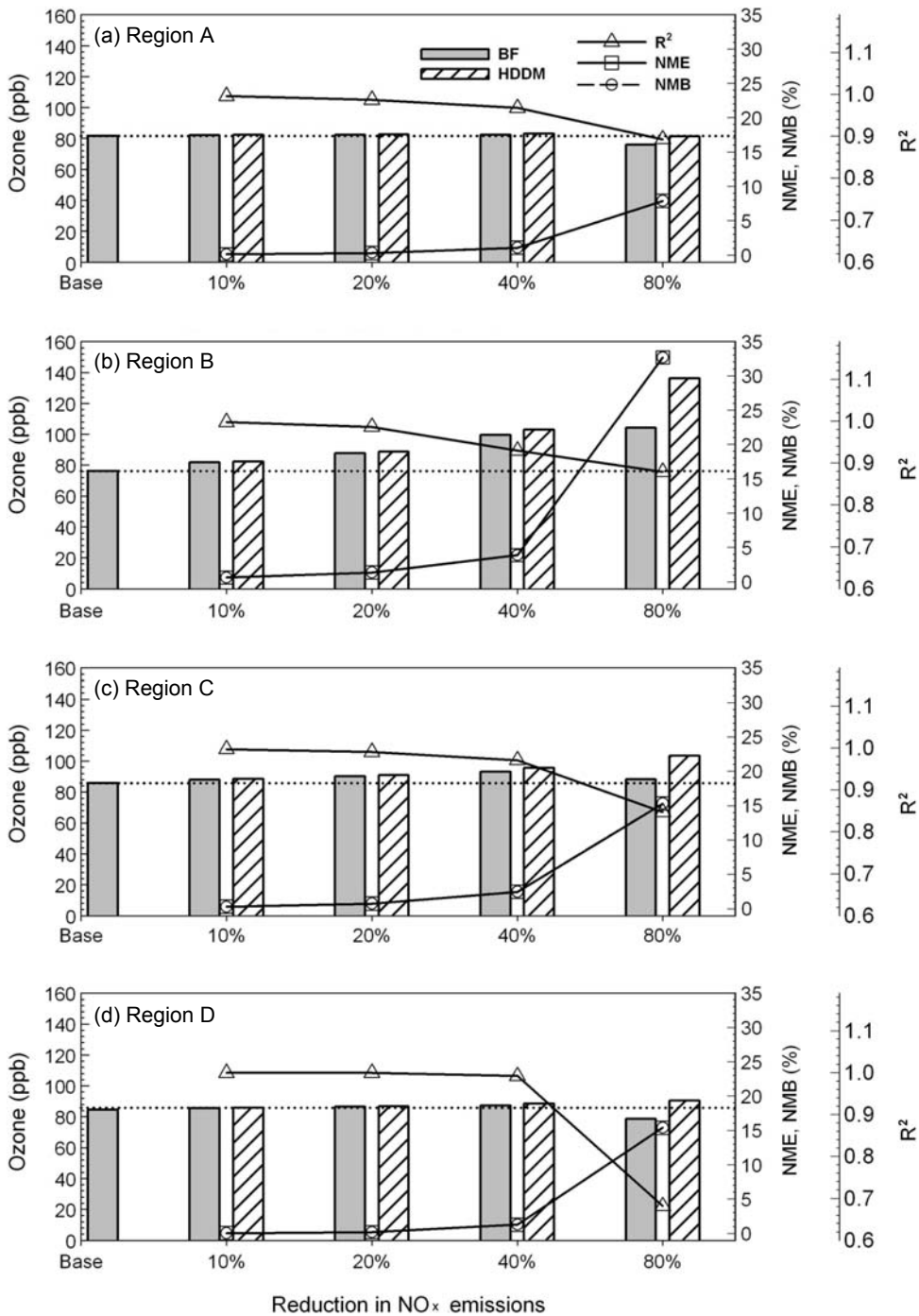


Fig. 8. Episode average ozone predictions with base emissions and after reductions in domain-wide NO_x emissions by 10%, 20%, 40%, and 80%. Regions A, B, C and D are depicted in Fig. 1. Ozone for each region is averaged for the hour when ozone predicted with base emissions is above 60 ppb. MNE and MNB are calculated with Equations 4 and 5.

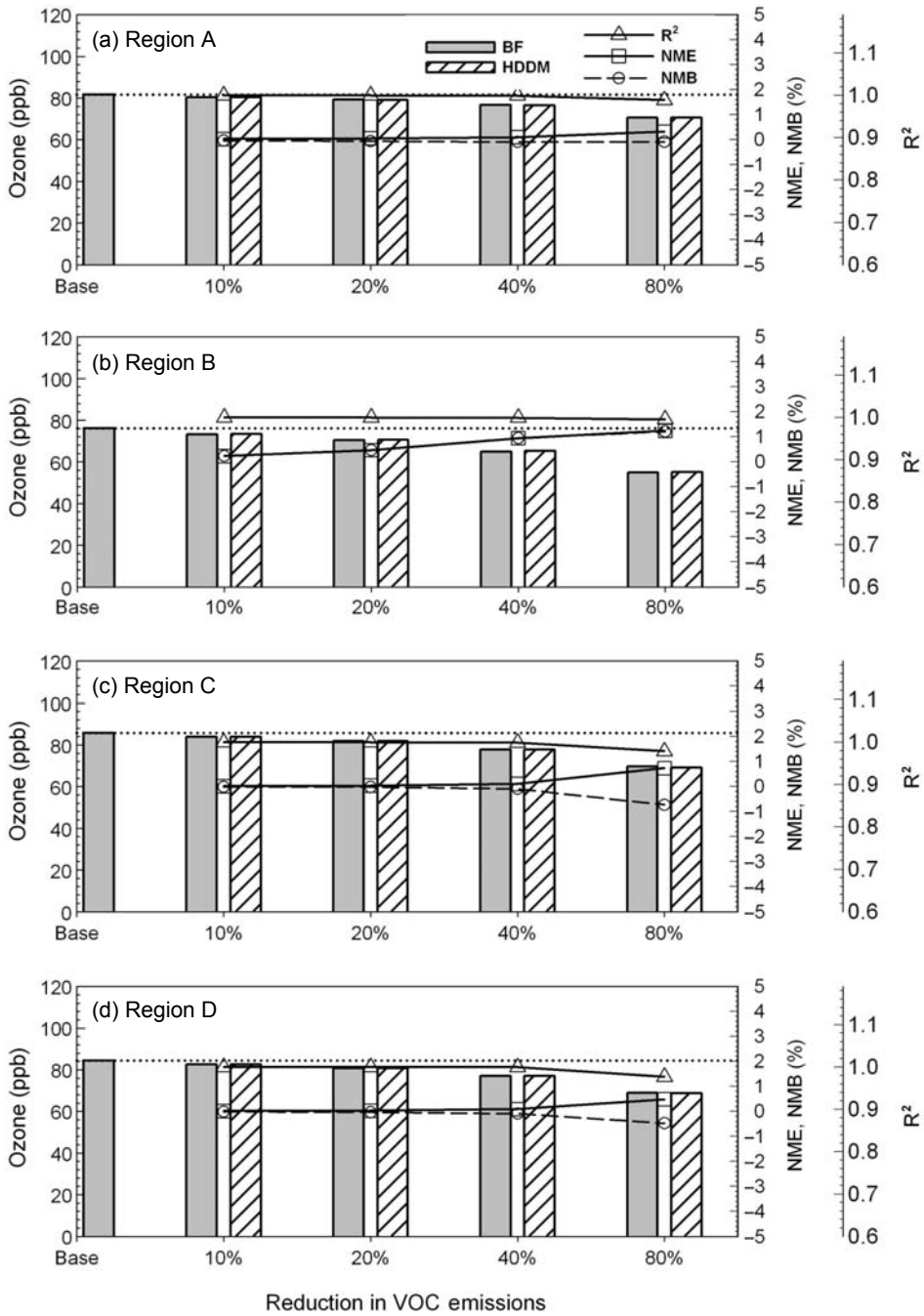


Fig. 9. The same with Fig. 8 except for domain-wide VOC emissions.

그림 11은 NO_x와 VOC 배출량을 동시에 저감시킨 시나리오에 대해 HDDM 결과를 BFM과 비교한 것

으로 기본 배출량 대비 NO_x와 VOC 배출량을 각각 10%, 30%, 그리고 50% 저감하였다. NO_x와 VOC 배

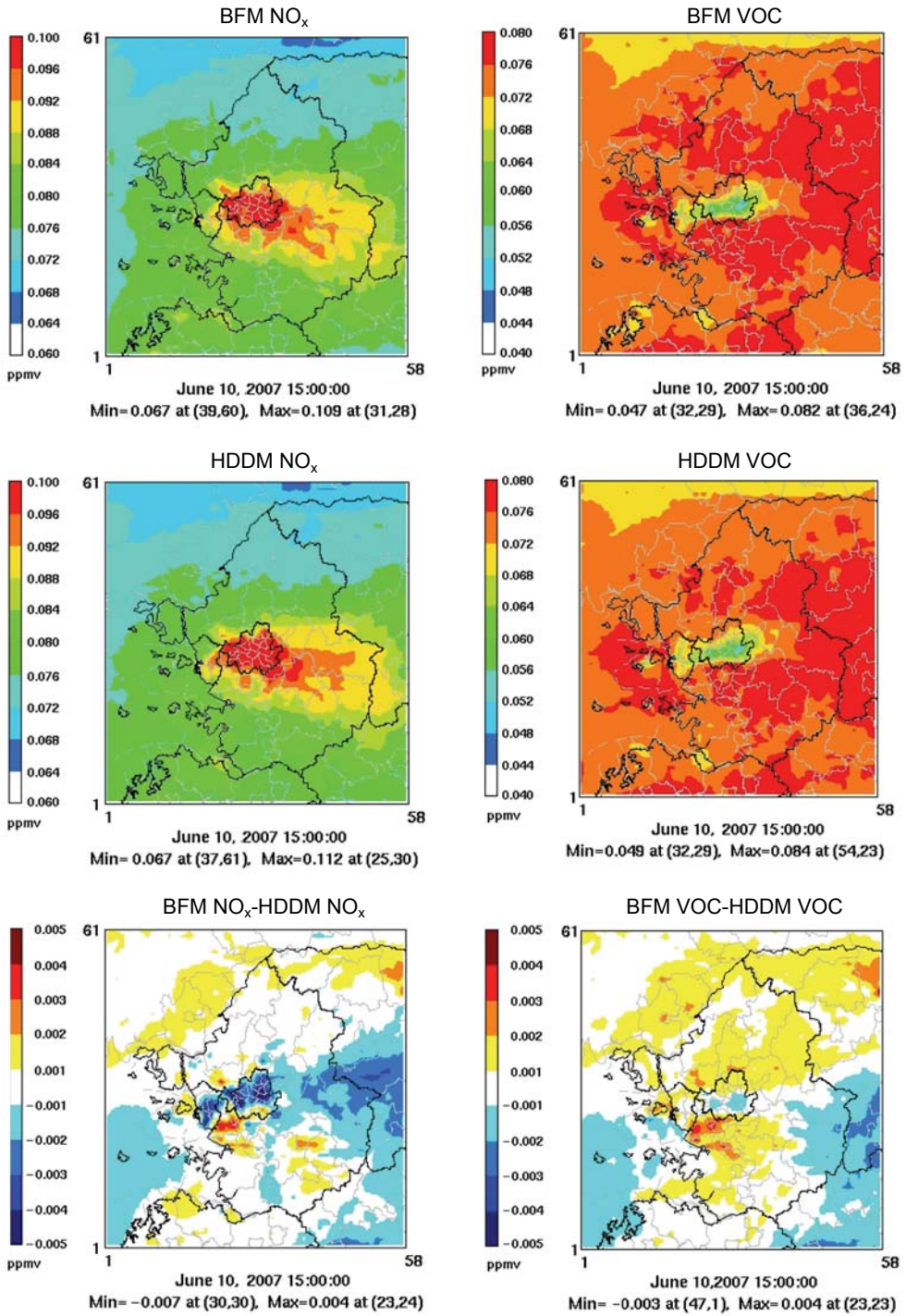


Fig. 10. Episode average ozone predictions after domain-wide NO_x (left) and VOC (right) reductions by 40%. Ozone with BFM (top) and HDDM (middle) are compared. Ozone is averaged for the hour when ozone predicted with base emissions is above 60 ppb.

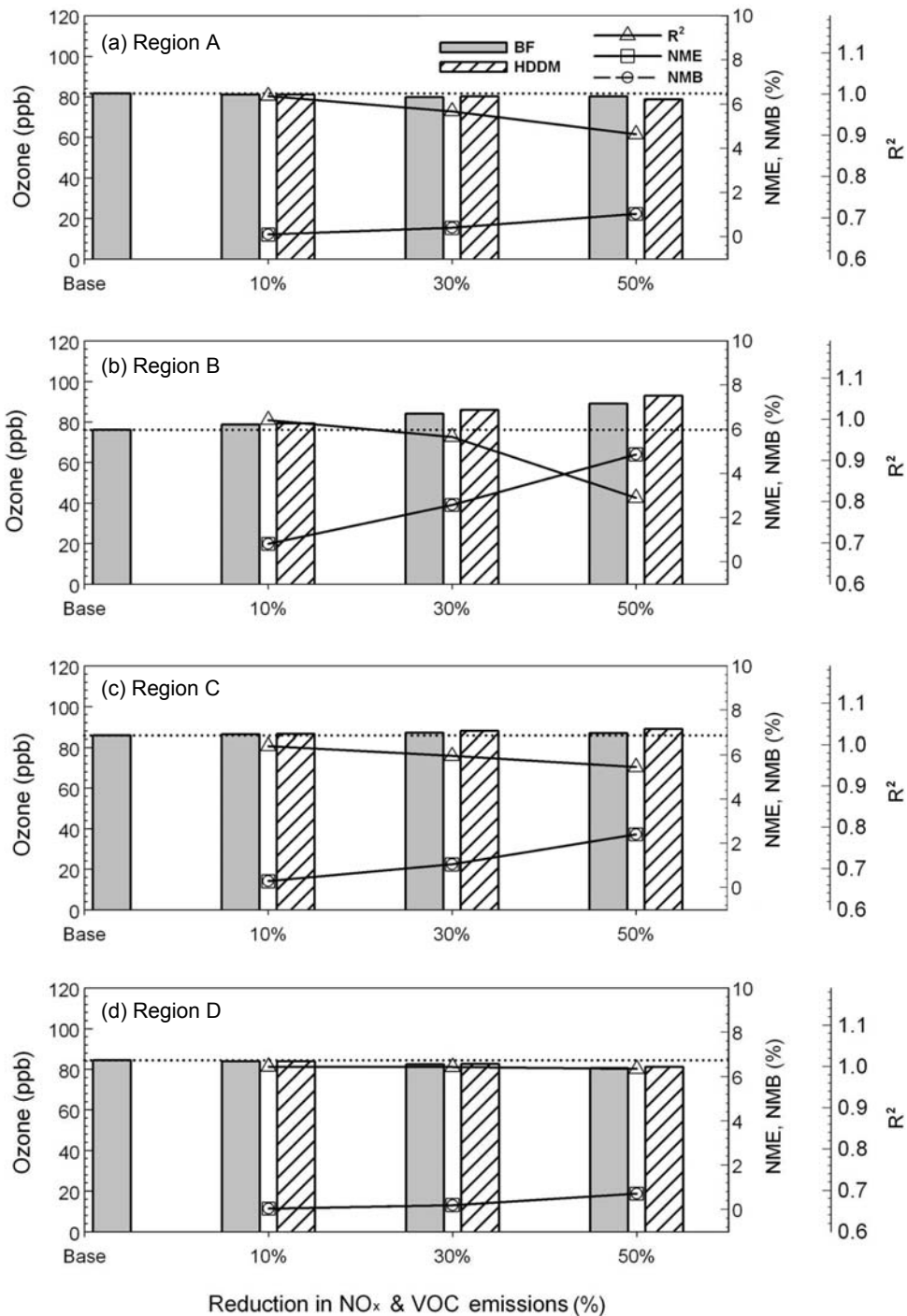


Fig. 11. Episode average ozone prediction with base emissions and after simultaneous reductions in domain-wide NO_x and VOC emissions by 10%, 30%, and 50%. Ozone for each region is averaged for the hour when ozone predicted with base emissions is above 60 ppb.

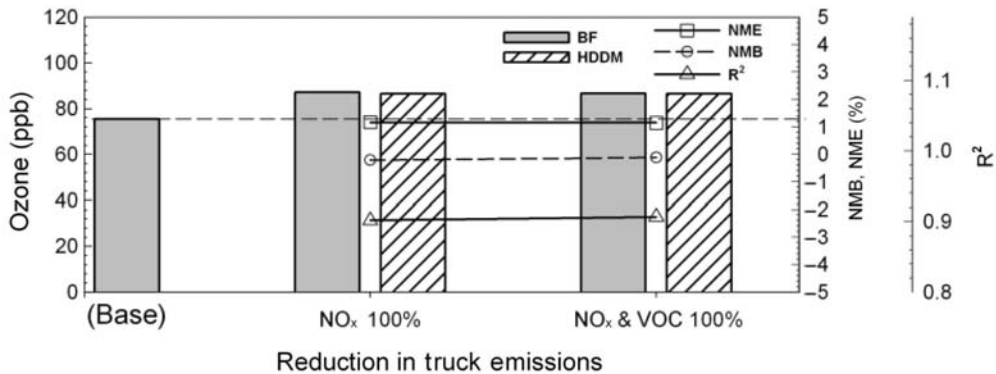


Fig. 12. Episode average ozone prediction for Region B with base emissions and after 100% reductions in NO_x alone and simultaneous NO_x and VOC emissions for trucks. Ozone is averaged for the hour when ozone predicted with base emissions is above 60 ppb.

출량을 10%와 30% 저감시킨 경우 NME는 2% 내외로 작게 나타나나, NO_x와 VOC 배출량을 50% 저감시키면 B권역에 대한 NME는 5% 정도로 높아지고, R²도 0.8 정도로 낮아진다. 이러한 배출량 변화에 따른 오존농도 예측성은 그림 8의 NO_x 배출량에 대한 경우와 유사한 것으로 사료된다. 따라서 NO_x와 VOC 배출량을 동시에 저감시킨 경우에도 NO_x 배출량에 대한 오존 민감도에 의해 전반적인 불확도가 나타나는 것으로 판단된다.

그림 8~11까지 결과를 종합해보면 VOC 배출량 변화에 따른 오존농도 예측은 BFM과 비교하여 HDDM은 매우 유사하게 나타나나, NO_x 배출량 변화에 대한 오존농도 예측은 배출량 변화가 기본 배출량 대비 50% 이상 커질 경우 NO_x 배출량에 대한 오존 민감도의 비선형적인 변화로 인해 BFM과 비교하여 5~10% 정도의 NME를 보일 것으로 예상된다. 따라서 기본 배출량 조건에서의 오존 민감도를 이용하는 HDDM을 수도권 지역에 대해 적용할 경우, 대상 배출량의 크기를 전체 NO_x 배출량 대비 50% 이내로 제한하는 것이 필요할 것으로 판단된다.

오존농도 개선을 위해서는 NO_x와 VOC 배출량 등 전구물질의 배출량 저감이 필요하나, 실제로 수도권 지역에서 배출량 저감계획을 수립 시 50% 이상의 저감 시나리오 마련은 쉽지 않을 것으로 사료된다. 이를 감안하면 배출량 변화에 따른 오존농도 변화를 HDDM 민감도 기법을 이용하여 예측 시, 예상되는 오차는 10%를 넘지 않을 것으로 판단된다.

NO_x 배출량의 경우 배출량 변화에 따른 오존농도는 비선형적인 변화를 보여 50% 이상 배출량 변화시 오차가 커지는 것으로 나타난다. 따라서 배출량 삭감 시나리오 작성 시 대상 오염원 또는 배출량을 전체 배출량 대비 30% 이내로(안정적인 분석을 위해 50% 보다 작게 구분) 한정한다면 그 오차를 최소화할 수 있을 것으로 기대된다. 예를 들어 2007년 CPASS 배출량 목록에서 수도권의 전체 NO_x 배출량을 SCC(Source Classification Code)별로 구분하였을 때 화물자동차에 의한 NO_x 배출량은 수도권 전체의 25% 정도로 가장 높게 나타난다. 그림 12는 화물자동차에 대해 NO_x 배출량을 100% 저감한 시나리오와 NO_x와 VOC 배출량을 동시에 100% 저감한 시나리오에 대해 BFM과 HDDM 모사결과 비교를 B권역(서울지역)에 대해 보인 것으로 NME와 NMB는 2% 이내로 매우 작은 것을 볼 수 있다.

따라서 위와 같이 전체 배출량을 30% 내외로 작게 구분하여 오염원 분류별 혹은 SCC별 배출량 변화에 따른 오존농도 변화를 예측한다면 HDDM 민감도 기법 적용 시 예상되는 오차는 2~3% 이내로 감소할 것으로 판단된다.

3.4 계산시간 효율성

그림 6과 같은 오존 isopleth 작성 시 NO_x와 VOC 배출량 변화를 +50% ~ -50%로 제한하더라도 BFM 배출량 방법(표 2에 Emissions method로 표기)을 이용하면 NO_x와 VOC 배출량을 10% 간격으로 변화시

Table 2. Average CPU time per a simulation day for different methods to estimate ozone response to emission change.

CPU time ¹ (sec)	Sensitivity method		Emissions method
	HDDM	BFM	BFM
Base simulation (T_o)	523	523	523
5 sensitivity parameters ²	2,901 ($=T_s \times 5$) ³	4,184 ($T_o \times 8$)	-
Total	3,424	4,707	-
5 sensitivity results	3,424	4,707	3,138 ($=T_o \times 6$)
10 sensitivity results	3,424	4,707	5,753
25 sensitivity results	3,424	4,707	13,598

¹ MPI run (4 × 2) with eight 2.92 GHz processors

² Five sensitivity parameters: $S_j^{(1)}$, $S_k^{(1)}$, $S_j^{(2)}$, $S_k^{(2)}$, and $S_{jk}^{(2)}$

³ Estimated using Equation 6

킬 경우 총 121번 (11 × 11)의 반복적인 모사가 필요하다. BFM 배출량 방법과는 달리 HDDM과 유사한 BFM 민감도 방법을 이용할 경우 부록에 보인 바와 같이 각 민감도 계수를 계산하기 위해서는 기본 배출량을 이용한 모사 외에 8번의 추가적인 모사가 필요하다. HDDM의 경우 식 (2)에 적용하는 다섯 개의 민감도 계수를 직접 산출할 수 있으며, 하나의 민감도 계수를 산정하기 위해 필요한 시간은 식 (6)과 같이 나타낼 수 있다(Environ, 2008).

$$T_s = \frac{T_n - T_o}{n} \tag{6}$$

여기에서 T_n 은 기본 모사와 n개의 민감도 계수를 산출하는데 걸리는 총 시간이며, T_o 는 기본 모사에 필요한 시간이다.

표 2에서 민감도 기법의 경우 NO_x 와 VOC 배출량에 대한 1차 민감도(각 1개)와 오존의 비선형적인 변화를 고려하기 위한 2차 민감도(NO_x 와 VOC 배출량에 대해 각 1개), 그리고 NO_x 와 VOC 교차 민감도 등 총 5개의 민감도 계수에 대해 비교한 것이다. 기본모사 기간은 모사기간 동안 1일 모사에 필요한 평균 모사시간을 보인 것으로 방법에 상관없이 동일하다(523초). HDDM의 경우 5개의 민감도 계수를 산정하기 위한 소요시간은 2,901초로 하나의 민감도 계수 산정에 평균 580초(T_s)가 필요하다(식 6 참조). 이에 반해 BFM민감도 방법은 NO_x 와 VOC에 대한 1차 및 2차 민감도 계수 산정을 위해 각 2번, 교차민감도 산정을 위해 4번 등 8번의 추가 모사가 필요하며(부록 참조), 한 번의 모사시간은 기본모사 시간과 동일하다고 가정하면 총 4,184초가 소요된다. 따라서

두 가지 민감도 방법을 대기질 모사시간에 대해 비교하면 HDDM이 BFM 민감도 방법에 비해 30% 가량 효율적이다. 더욱이 BFM 민감도 방법 역시 BFM 배출량 방법과 마찬가지로 배출량 변화별 입력자료를 별도로 모두 준비해야 하는 점을 고려하면 실제 소요시간은 HDDM보다 좀 더 길어질 것으로 판단된다. BFM 민감도 방법에 대해서는 Kim (2011b)의 연구를 참고할 수 있다.

직접 배출량을 변화시킨 후 모사하는 BFM 배출량 방법의 경우 작은 수의 배출량 시나리오 예측에는 효율적이거나, 배출량 분석 시나리오가 증가할수록 소요되는 시간은 배출량 시나리오 수에 비례하여 증가하는 것을 볼 수 있다. Napelenok *et al.* (2006)은 2개 이상의 민감도 계수 산정 시에는 BFM에 비해 HDDM이 효율적이고, HDDM의 경우 민감도 계수 증가에 따라 소요되는 시간은 선형적으로 증가하는 것으로 제시하였다.

4. 결 론

BFM과 HDDM의 방법론 비교에 있어 본 논문에서는 각기 산정된 오존 민감도를 기반으로 NO_x 와 VOC 배출량 변화에 따른 오존농도 변화 예측성에 대해 두 방법을 비교하였다.

수도권 지역에 적용에 있어 HDDM은 BFM과 비교하여 VOC 배출량 변화에 따른 오존농도 예측 시, 80% 배출량 삭감에 대해서도 NME가 2% 정도로 매우 유사한 결과를 보였다. 이는 동반논문에서 논의된 바와 같이 수도권에서 VOC 배출량 저감에 대해 오

존농도는 선형적인 변화를 보이기 때문에 판단된다. NO_x 배출량 삭감 시나리오에 대해서도 40% 변화까지는 NME가 5% 정도로 비교적 작은 오차를 보였으나, NO_x 배출량 변화가 그 보다 커질 경우에는(예를 들어 80% 삭감) 오차가 급격히 커지는 것으로 나타났다. 이는 수도권의 오존농도는 NO_x 배출량에 대해 비선형적인 변화가 크게 나타나기 때문에 판단된다(Kim, 2011b). 따라서 민감도 기법을 이용하여 배출량 변화에 따른 정확한 오존농도 예측을 위해서는 대상이 되는 NO_x 배출량을 전체 배출량 대비 30~50% 이내로 제한하는 것이(예를 들어 전체 배출량이 아닌 화물차 배출량에 대한 분석) 필요하다. 오존개선 대책마련에 있어 단기간 동안 50% 이상의 배출량 저감은 실제로 이뤄지기 어려운 바, 수도권 지역의 HDDM 적용 시 발생할 수 있는 오차는 작은 것으로 예상된다.

계산시간 비교에 있어 HDDM은 BFM 민감도 기법에 비해 수도권 지역의 오존농도 예측 시 30% 이상 효율적이며, 직접 배출량 입력자료를 수정 후 모사하는 BFM 배출량 방법과 비교할 경우 예상되는 배출량 변화 시나리오의 수에 따라 효율성이 달라지나, 5개 이상의 시나리오에 대한 검토 시에는 HDDM 방법이 보다 효율적인 것으로 판단된다. 특히 오존 isopleth와 같이 많은 수의 모사가 필요할 경우, HDDM 민감도 기법은 계산시간에 있어 효율적으로 이용될 수 있다.

위의 결과를 종합하면 수도권 지역에 적용 시 HDDM 결과는 배출량 변화에 따른 오존농도 변화 예측에 있어 BFM과 완전히 동일하지는 않으나, 작은 오차를 보인다. 따라서 HDDM 민감도 기법은 수도권 지역의 오존 저감계획 수립 또는 대기질 개선 작업 시 다양한 배출량 변화 시나리오에 대한 오존 및 전구물질 평가가 필요한 경우 계산시간을 줄일 수 있는 방법으로 평가할 수 있다.

본 연구의 대기질 모사에 이용된 배출량 및 기상 입력자료의 경우 많은 불확도가 존재할 것으로 판단된다. 또한 본 연구에서 산정된 민감도의 경우 한정된 사례에 국한된 바, 따라서 수도권 지역의 배출량 변화에 따른 정확한 오존농도 변화예측은 어려울 것으로 예상된다. 이를 보완하기 위해서는 추후 많은 연구를 통해 다른 사례 및 입력자료 변화에 따른 검토가 필요할 것으로 예상된다. 하지만, 민감도 분석방

법에 대한 적용성이 검증된다면 수도권 대기질 모사 결과 개선과 배출원 저감방안 마련 시 HDDM 민감도 기법의 활용성이 높다는 점에서 본 연구의 의미를 둘 수 있다.

Appendix

BFM를 이용한 오존 민감도 계수 산정은 아래와 같이 중앙차분을 이용하여 나타낼 수 있다(Tang *et al.*, 2011; Environ, 2008).

1차 오존 민감도 계수의 경우 식(a1)과 같으며,

$$S_j^{BF(1)} = \frac{C_{j+10\%} - C_{j-10\%}}{2\Delta\epsilon} \quad (a1)$$

여기에서, C_{j+10%}와 C_{j-10%}는 배출량 j의 변화 전후 모사농도로 본 연구에서는 배출량 변화크기는 10% (=Δε)로 정하였다.

2차 민감도 계수는 식(a2)와 같이 나타낼 수 있으며,

$$S_j^{BF(2)} = \frac{C_{j+10\%} - 2C_{j,base} + C_{j-10\%}}{\Delta\epsilon^2} \quad (a2)$$

여기에서 C_{j,base}는 기본 배출량을 이용한 모사농도를 나타낸다.

2개의 배출량 j와 k(예를 들어 NO_x와 VOC 배출량)에 대한 교차 민감도(cross sensitivity)는 식 아래와 같이 나타낼 수 있다.

$$S_{jk}^{BF(2)} = \frac{C_{j+10\%,k+10\%} - C_{j+10\%,k-10\%} - C_{j-10\%,k+10\%} - C_{j-10\%,k-10\%}}{4\Delta\epsilon_j\Delta\epsilon_k} \quad (a3)$$

식(a1)과 (a2)를 이용하여 1차, 2차 민감도 계수를 산정할 경우 기본 배출량을 이용한 모사 외에 NO_x와 VOC 배출량에 대해 각각 2번의 모사가 필요하며, 식(a3)을 이용하여 교차 민감도를 산정할 경우 4번의 모사가 추가적으로 필요하다.

감사의 글

이 논문은 2009학년도 아주대학교 정착연구비 지원에 의해 연구되었으며 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

- 국립환경과학원 (2010) 대기질 모델링 가이드 라인 (안) 마련 연구, 최종보고서.
- Benjey, W., M. Houyoux, and J. Susick (2001) Implementation of the SMOKE emissions data processor and SMOKE Tool input data processor in Models-3, U.S. EPA.
- Blancharda, C.L. and D. Fairley (2001) Spatial mapping of VOC and NO_x-limitation of ozone formation in central California, *Atmospheric Environment*, 35(22), 3861-3873.
- Chang, K.H. (2008) Modeling approach for emissions reduction of O₃ precursors in Southern Taiwan, *Atmospheric Environment*, 42(28), 6733-6742.
- Cohan, D.S. (2004) Applicability of CMAQ-DDM to Source Apportionment and Control Strategy Development, 3rd Annual CMAS Models-3 Users' Conference, October 18 ~ 20, 2004, Chapel Hill, NC.
- Cohan, D.S., A. Hakami, Y. Hu, and A.G. Russell (2005) Nonlinear response of ozone to emissions: Source apportionment and sensitivity analysis, *Environ. Sci. Technol.*, 39, 6739-6748.
- Cohan, D.S., Y. Hu, A. Hakami, and A.G. Russell (2003) Sensitivity Analysis of Ozone in the southeast, 2003 Models-3 User's Workshop, October 27 ~ 29, 2003, Research Triangle Park, NC.
- Dodge, M. (1987) Chemistry of Oxidant Formation: Implications for Designing Effective Control Strategies, U.S. Environmental Protection Agency, Washington, D.C. EPA/600/D-87/114 (NTIS PB87179990).
- Doraiswamy, P., C. Hogrefe, W. Hao, K. Civerolo, J.Y. Ku, R. Henry, and G. Sista (2007) Use of Air Quality Forecasting as a Diagnostic Tool over the Northeastern US, CMAS Conference, October 1 ~ 3, 2007, Chapel Hill, NC.
- ENVIRON (2008) Higher-Order Decoupled Direct Method (HDDM) for Ozone Modeling Sensitivity Analyses and Code Refinements, Final Report.
- ENVIRON (2010) User's guide to the Comprehensive Air Quality Model with Extension (CAMx) version 5.30. <http://www.camx.com>.
- Guenther, A., T. Karl, P. Harley, C. Wiedinmyer, P.I. Palmer, and C. Geron (2006) Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 3181-3210.
- Kim, J.Y., J.S. Kim, J.Y. Hong, D.I. Jung, S.J. Ban, and Y.M. Lee (2008a) Assessment of Changed Input Modules with SMOKE Model, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 24(3), 284-299. (in Korean with English abstract)
- Kim, S., N. Moon, and D.W. Byun (2008b) Korea Emissions Inventory Processing Using the US EPA's SMOKE System, *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 2(1), 34-46.
- Kim, S., D.W. Byun, and D. Cohan (2009) Contributions of inter- and intra-state emissions to ozone over Dallas-Fort Worth, Texas, *Civ. Eng. Environ. Syst.*, 26, 103-116.
- Kim, S. and C.-B. Lee (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*, submitted for publication. (in Korean with English abstract)
- Kim, S. (2011a) Ozone Simulations over Seoul Metropolitan Area for a 2007 June Episode, Part I: Evaluating Volatile Organic Compounds Emissions Speciated for the SAPRC99 Chemical Mechanism, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, submitted for publication. (in Korean with English abstract)
- Kim, S. (2011b) Estimating Ozone Sensitivity Coefficients to NO_x and VOC Emissions using BFM and HDDM for A 2007 June Episode, *Journal of Korean Environmental Sciences Society, Korea*, submitted for publication (in Korean with English abstract).
- Lee, Y.M., H.J. Lee, D.W. Lee, J.C. Kim, and J.H. Hong (2009) Sensitivity Analysis by Emission Control during the Episode of ozone in Seoul Metropolitan Areas, *Proceeding of 48th Meeting of KOSAE*, 529-530.
- Napelenok, S.L., D.S. Cohan, Y. Hu, and A.G. Russell (2006) Decoupled direct 3D sensitivity analysis for particulate matter (DDM-3D/PM), *Atmospheric Environment*, 40, 6112-6121.
- Napelenok, S.L., K.M. Foley, D. Kang, R. Mathur, T. Pierce, and S.T. Rao (2011) Dynamic evaluation of regional air quality model's response to emission reductions in the presence of uncertain emission inventories, *Atmospheric Environment*, 45, 4091-4098.
- NIER (2008) Air Quality Modeling System (II), Final report.
- Seinfeld, J.H. and S. Pandis (1998) *Atmospheric Chemistry and Physics*, Wiley Interscience, New York.

- Shon, Z.-H., K.-H. Kim, S.-K. Song (2011) Long-term trend in NO_2 and NO_x levels and their emission ratio in relation to road traffic activities in East Asia, *Atmospheric Environment*, 45, 3121-3131.
- Tang, W., D.S. Cohan, G.A. Morris, D.W. Byun, and W.T. Luke (2011) Influence of vertical mixing uncertainties on ozone simulation in CMAQ, *Atmospheric Environment*, 45, 2898-2909.
- U.S. Environmental Protection Agency (2007) Guidance on the Use of Models and Other Analyses for Demonstrating Attainment of Air Quality Goals for Ozone, $\text{PM}_{2.5}$, and Regional Haze, Office of Air Quality Planning and Standards, Air Quality Analysis Division, Air Quality Modeling Group, Research Triangle Park, North Carolina.
- Wang, X., Y. Zhang, Y. Hub, W. Zhou, L. Zeng, M. Hu, D.S. Cohan, and A.G. Russell (2011) Decoupled direct sensitivity analysis of regional ozone pollution over the Pearl River Delta during the PRIDE-PRD 2004 campaign, *Atmospheric Environment*, 45, 4941-4949.
- Yang, Y.J., J. Wilkinson, and A.G. Russell (1997) Fast, direct sensitivity analysis of multidimensional photochemical models, *Environ. Sci. Tech.*, 31, 2859-2868.
- Zhang, Q., D.G. Streets, G.R. Carmichael, K.B. He, H. Huo, A. Kannari, Z. Klimont, I.S. Park, S. Reddy, J.S. Fu, D. Chen, L. Duan, Y. Lei, L.T. Wang, and Z.L. Yao (2009) Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5131-5153.