한국대기환경학회지 제 29 권 제 2 호
J. KOSAE Vol. 29, No. 2 (2013) pp. 186～198
Journal of Korean Society for Atmospheric Environment
DOI: http://dx.doi.org/10.5572/KOSAE.2013.29.2.186

동아시아지역에서 GEOS-Chem에 의한 경계조건이 CMAQ 모사 결과에 미치는 영향에 대한 평가

An Evaluation of the Influence of Boundary Conditions from GEOS-Chem on CMAQ Simulations over East Asia

최 대 련 · 구 윤 서*
안양대학교 환경에너지공학과
(2013년 1월 3일 접수, 2013년 2월 6일 수정, 2013년 3월 14일 채택)

Dae-Ryun Choi and Youn-Seo Koo*
Department of Environmental & Energy Engineering, Anyang University
(Received 3 January 2013, revised 6 February 2013, accepted 14 March 2013)

Abstract

The present work is an attempt to improve the performance of a regional air quality model by means of liking it with a global chemistry transport model. The global chemical transport model of GEOS-Chem is used to provide BC (Boundary Condition)s which reflect temporal and spatial variations at boundaries of regional chemical transport model of CMAQ over East Asia.

First, GEOS-Chem outputs are evaluated by comparing predicted concentrations with observed monthly data of gas phase species and secondary inorganic aerosols from EANET (Acid Deposition Monitoring Network in East Asia) sites. The results show that predicted PM10 concentrations are in good agreement with the observations. This implies that GEOS-Chem outputs could be used to provide BCs to CMAQ.

Simulated daily and monthly mean PM10 concentrations of CMAQ with the linkage of GEOS-Chem's BCs and constant BCs are then evaluated by comparing predicted concentrations with observations at API (Air Pollution Index) sites in China as well as EANET sites in Korea. CMAQ with the GEOS-Chem outputs improves model simulation in depicting observed PM10 concentrations comparing with those with constant BCs. It is also found that influence of aerosol species are largely dependent on the BCs over East Asia and Korea. Mean biases between simulated versus observed daily and monthly mean concentrations of PM10 with the GEOS-chem were improved by 1～8 $\mu g/m^3$ in China region, 3.26 $\mu g/m^3$ in Korea.

Key words : CMAQ, GEOS-Chem, Boundary condition, EANET, API, PM10

*Corresponding author.
Tel : +82-(0)31-467-0893, E-mail : koo@anyang.ac.kr

1. 서 론

지역규모 대기질 모델링에 있어 보다 합리적인 대기질 모사를 위해 정확한 경계조건을 설정하는 것은 중요한 요소 중 하나이다(Borge *et al*., 2010; Tomboru *et al*., 2009; Appel *et al*., 2007). 이러한 경계조건을 생성하는데 사용되는 방법은 모델에서 제공하는 기본 프로파일(default profile)을 이용하여 시간변화에 관계없이 일정한 경계조건을 적용하는 방법, 측정자료 및 위성자료를 활용하여 경계조건을 추출하는 방법, 그리고 전구규모 모델을 수행하여 경계조건을 산출하는 방법 등이 있다.

기본 프로파일을 사용하는 것은 간편하나, 실제 경계를 통해서 유출입 되는 오염물질을 모사하는데 한계가 있고, 측정치에 의한 경계조건 설정은 경계에서 측정치 확보(특히, 고도에 따른 측정치)가 어렵기 때문에 실제 지역규모 모델링의 경계를 설정하는데 일반적으로 적용되는 방법은 아니다(Hong *et al*., 2012).

한편, 지역규모 모델링에서 전 지구 모델에 의한 경계조건을 적용하는 방법은 최근 많이 적용되고 있는 방법이다. Lam and Fu (2010)는 전 지구 모델중 하나인 GEOS-Chem을 CMAQ과 연결하여 대류권계면 사이에 오존이 과대 입력되는 것을 개선하였다. Tombrou *et al*. (2009)은 전 지구 모델인 GEOS-Chem과 지역규모 모델인 UAM-V을 연결하여 월경성 물질인 Carbon monoxide (CO)와 Ozone (O_3)에 대해 연구를 진행하였다. 또한 Borge *et al*. (2010)는 스페인 지역을 대상으로 (1) CMAQ default profile, (2) netsted down 경계조건 (3) GEOS-Chem의 경계조건을 생성하여 가스상 물질과 입자상 물질에 대해 정합도를 비교 분석하였으며, 경계조건에 민감한 O_3과 Particle Matter (PM)성분이 GEOS-Chem을 경계조건으로 입력되었을 때 측정치와 정합도가 향상되는 것을 볼 수 있었으나 상대적으로 경계조건에 민감하지 않은 SO_2와 NO_2 성분은 다른 경계조건이 입력되었을 때의 결과와 정합도 차이가 미미하게 나타났다. 그리고 Lee *et al*. (2012)는 The Realtime Air Quality Modeling System (RAQMS) 모델을 CMAQ과 연결하여, 모델 상층과 중간층의 오존 모사능력을 개선하는 것을 보였으며, In *et al*. (2007)는 경계를 통해서 지역규모 모델의 영역내로 유입되는 biomass burning에 의한 BC 및 OC가 고려됨으로써 모델의 정합도가 향상되는 결과를 제시한 바가 있다. 또한 Fu *et al*. (2008)은 동아시아지역을 대상으로 지역규모 모델 수행 시 GEOS-Chem으로부터 경계조건을 계산하여 SO_2, NO_2 및 O_3의 가스상 물질을 모사한 바가 있다. 그러나 동아시아 지역을 대상으로 진행된 연구들은 상대적으로 미흡하며, 특히 가스상 물질에 대한 연구는 일부 진행된 바가 있으나 입자상 물질에 대한 경계조건 설정에 대한 연구는 없는 것으로 파악되었다.

현재 지역규모 경계조건 설정에 많이 활용되는 전 지구 모델인 GEOS-Chem은 월경성 오염물질의 영향 및 산불에 의한 시정악화, 그리고 전구물질의 변화에 따른 오존의 변화 등을 모사할 수 있다(Park *et al*., 2009, 2004, 2003). 또한 GEOS-Chem은 대기에서 오존을 포함한 여러 기체상 화학물질들과 SO_4^{2-}, NO_3^- 등을 포함한 무기 에어로졸, 탄소 성분 에어로졸 그리고 해염과 먼지 입자와 같은 다양한 종류의 에어로졸의 시공간적 분포를 모사하는데 적절한 모델로 알려져 있다(Park *et al*., 2004; Bey *et al*., 2001).

따라서 본 연구는 전 지구 모델 중 하나인 GEOS-Chem을 활용하여 경계조건을 계산하고, 지역규모 모델인 CMAQ과 연결하여 그 영향을 파악하고자 한다. 이를 위해서 먼저 동아시아지역을 대상으로 측정망 자료를 활용하여 GEOS-Chem에 정합도를 평가하였고, GEOS-Chem에서 제공된 경계조건과 기존에 사용되던 CMAQ default 값과의 상호 비교분석을 통해 GEOS-Chem에 경계조건설정에 따른 입자상물질의 CMAQ 모사 개선효과를 중국과 우리나라 지역에서 집중 분석하였다.

2. 모델링 방법

본 장에서는 전 지구규모 모델인 GEOS-Chem과 지역규모 모델인 Model-3/Community Multiscale Air Quailty Model (CMAQ)에 모델링 조건과 기상 및 배출량 입력자료에 대해서 자세히 설명하고, 두 모델을 연결하는 프로그램에 대해 아래에 기술하였다.

2.1 지구규모 대기화학 수송모델링 (GEOS-Chem)

GEOS-Chem을 수행하는데 필요한 3차원 기상자료

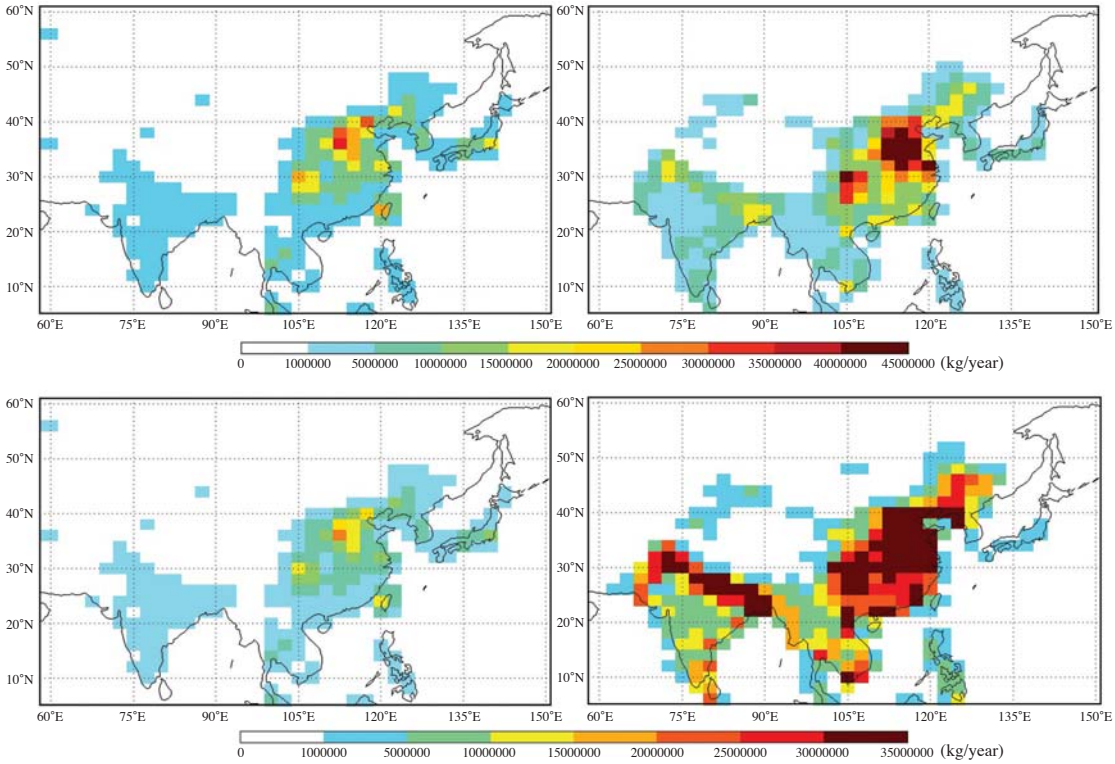

Fig. 1. Anthropogenic emissions (fossil fuels) of BC (top) and OC (bottom) aerosols in East Asia for 1996 from Bond *et al.* (2004) (left) and for 2006 from INTEX-B inventory (right).

는 미국 National Aeronautics and Space Administration (NASA)의 Global Modeling and Assimilation Office (GMAO) 그룹에서 제공하는 자료동화 기상자료인 Goddard Earth Observing System (GEOS5)를 사용하였다. 사용한 기상자료는 풍속, 이류 질량 플럭스, 혼합고, 온도, 강우량, 그리고 표면 속성 등을 포함하고, 6시간 간격으로 모델에 공급되고 있으며, 기상장의 수평격자는 위경도 2° × 2.5°, 수직으로는 47개 층을 가지고 있다. 수직 격자층의 표면 2 km까지는 14층 (70 m, 200 m, 330, 470, 600, 740, 880, 1020, 1160, 1300, 1450, 1600, 1770, 2000 m)이고, 0.01 hPa까지 모델링 영역으로 하였다.

GEOS-Chem은 80가지 이상의 화학종과 300개 이상의 반응식을 포함하며, 구체적인 화학반응모사를 위하여 O_3-NOx-VOC-Oxidant (Full-Chemistry) 화학반응기구를 본 연구에서 적용하였으며, 무기이온 에어로졸 화학평형모델은 ISORROPIA II scheme을 사용하였다 (Fountoukis and Nenes, 2007).

GEOS-Chem Secondary Organic Aerosol (SOA)는 biogenic 배출량, 인위적인 배출량에 의해서 배출되는 VOCs를 탄화수소 4개로 분류하여 OH, O_3, NO_3^-와의 산화반응을 통해 생성되고 (Chung and Seinfeld, 2002), isoprene의 OH에 의한 광화학 산화반응이 보완 되어졌으며 (Henze and Seinfeld, 2006), 최근에 toluene, benzene, xylene의 광화학 산화반응이 GEOS-Chem에 보완되어진 것을 적용하였다 (Henze *et al.*, 2008).

한편 먼지 에어로졸은 Fairle *et al.* (2007)에서 기술한 대로 Zender *et al.* (2003a, b)의 Dust Entrainment and Deposition (DEAD) scheme을 이용하여 네 개의 다른 크기로 (유효 반경: 0.1 ~ 1.0, 1.0 ~ 1.8, 1.8 ~ 3.0 그리고 3.0 ~ 6.0 μm) 나누어 입력되고, GOCART (The Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport) 모델의 Source Function을 적용한 모델을 사용하였다. 해염 에어로졸은 미세입자 (유효반경: 0.1 ~ 2.5 μm)와

Table 1. Category of anthropogenic emissions of GEOS-Chem (http://acmg.seas.harvard.edu/geos/doc/man/).

	INVENTORY	BASE YEAR	REGION	NO_x	CO	VOCs								SO_2	SO_4	NH_3	BC/OC
						PRPE	C_3H_8	ALK	C_2H_6	ACET	MEK	ALD_2	CH_2O				
GLOBAL	GEIA	1985	GLOBAL	○	○	○	○	○	○	○	○			○	○	○	
	EDGAR	2000	GLOBAL	○	○									○			
	BOND	1996	GLOBAL														○
REGIONAL	CAC	2005	CANADA	○	○									○		○	
	EMEP	2005	EUROPE	○	○	○		○	○		○	○		○			○
	EPA/NEI05	2005	USA	○	○	○	○	○	○	○	○		○	○	○	○	
	VISTAS	2002	USA	○													
	BRAVO	1999	MEXICO	○	○									○			
	STREETS	2000	S.E. ASIA													○	
	(INTEX-B)	2006		○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○			○

조대입자(유효반경: 2.5～10 μm)로 나누고 각각의 배출은 지상 10 m 풍속을 이용하여 경험식을 통해 계산되는 값을 적용하였다(Alexander *et al*., 2005).

에어로졸에 대한 습윤 침적(wet deposition)과 건성침적(dry deposition)은 Liu *et al*. (2001) 및 Wang *et al*. (1998)의 방법을 적용하였다.

본 연구에서는 전 지구 3차원 대기화학 수송모델인 GEOS-Chem version 9-1-2 (http://acmg.seas.harvard.edu/geos/index.html)을 사용하였고 총 모델링 기간은 2007년 8월부터 2008년 11월까지 수행하였으며, 초기 4개월은 spin-up 기간으로 설정하여, 실제 분석은 2007년 12월부터 1년간 결과를 이용하여 동아시아지역에서 GEOS-Chem의 정합도를 분석하였다.

표 1은 GEOS-Chem에 입력되는 전 지구 인위적 배출량에 대해서 나타낸 것이다. 전 지구 배출량은 2000년을 기본년도로 한 Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGAR) 배출량을 사용하였다(Olivier and Berdowski, 2001). 한편 국가 인위적 배출량 자료가 있는 경우에는 EDGAR 배출량을 지역 국가 배출량으로 교체 입력한다. 미국의 경우 U.S EPA에서 제공하는 National Emissions Inventory (NEI05) 배출량을 사용하였고(US EPA, 2010), 유럽은 European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) 배출량(Vestreng *et al*., 2007), 캐나다는 The Criteria Air Contaminants (CAC) 배출량 (http://www.ec.gc.ca/pdb/cac/cac_home_e.cfm), 멕시코는 Big Bend Regional Aerosol and Visibility Observational (BRAVO) 배출량(Kuhns *et al*., 2003), 아시아는 Intercontinental Chemical Transport Experiment-Phase B (INTEX-B) 배출량(Zhang *et al*., 2009)를 각각 교체하여 사용한다(표 1).

산불에 의한 생체소각(Biomass burning) 배출자료는 Global Fire Emission Database version 3 (GFED v3)에서 제공하는 자료를 이용하였다(van der Werf *et al*., 2010). 또한 생물학적 배출량(Biogenic emission)은 Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature version 2.1 (MEGAN v2.1)을 사용하여 VOCs 배출량이 입력되었다(Barkley *et al*., 2010; Guenther *et al*., 2006).

한편, 동아시아지역 BC/OC 배출량은 기존의 GEOS-Chem에서는 기본적으로 Bond *et al*. (2004) 자료를 적용하는데, 본 연구에서는 INTEX-B에서 제공되는 BC와 OC의 배출량으로 교체하였다. 그림 1과 같이 기존에 사용되어진 Bond *et al*. (2004)와 INTEX-B의 BC와 OC 배출량의 공간 분포를 살펴보면, 동아시아 지역에서 저평가 되던 BC,OC 배출량을 INTEX-B에서 보완하는 것을 볼 수 있었다. 또한 위에 업데이트한 BC,OC 배출량은 지역규모 모델의 경계조건에 영향을 줄 것이라 판단된다. 따라서 본 연구에서는 INTEX-B의 BC 및 OC를 동아시아 배출량으로 적용하였다.

2. 2 지역규모 모델링

본 연구에서 입자상 물질을 모사하기 위한 지역규모 화학수송모델은 미국 EPA에서 개발된 Model-3/Community Multiscale Air Quailty Model (CMAQ) version 5.0 (http://www.cmascenter.org/)을 적용하였다(Byun and Ching, 1999). 기상모델은 Weather Research Forecast version 3.2.1 (WRF v3.2.1)을 사용하였고

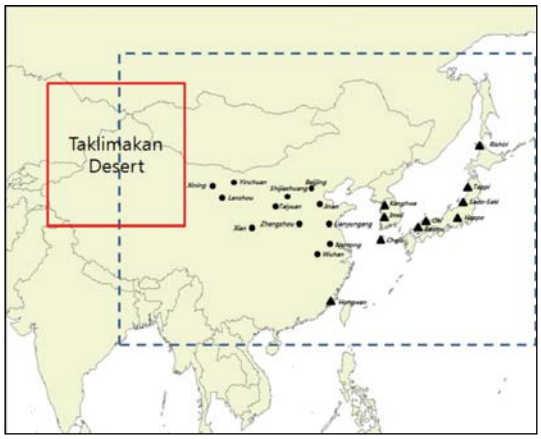

Fig. 2. A map presents modeling domain, desert region near-by the model boundary and observation stations. Rectangle dashed box is modeling domain for WRF and CMAQ. Rectangle full line presents Taklimakan desert. Circles are Air Pollution Index (API) montoring stations in China and triangles are EANET sites in East Asia.

(Skamarock and Klemp, 2008; Borge *et al*., 2008), 배출량 데이터는 Sparse Matrix Operator Kernel Emissions (SMOKE) version 2.7에 의해 처리하였다.

WRF의 모델링 영역은 아시아지역으로 (82°~149°E, 18°~53°N) 그림 2와 같다. 모델링 격자는 27×27 km^2 이고, 격자수는 177×147로 구성 하였으며, 서쪽 모델 경계면 근처에는 타클라마칸 사막이 위치한 것을 알 수 있다. 연직 35층으로 입력되었으며, 모델 최상층 고도는 100 mb으로 설정하였다.

기상모델인 WRF의 주요 물리과정으로는 미세물리과정은 WRF Single-Moent 6-class (WSM6) scheme, 장파, 단파 대기복사 과정은 Rapid Radiative Transfer Model (RRTM), Dudhia short radiation scheme, 행성경계층 모수화 scheme으로는 Yonsei University (YSU) scheme, 그리고 적운 모수화 방법은 Kain-Fritsch (KF) scheme을 사용하였다. 또한 WRF 모델링에서 초기 및 경계조건은 National Centers for Environmental Prediction (NCEP)의 재분석자료를 사용하여 지역규모 모델링을 위한 기상입력자료를 작성하였으며, 기상장 모의능력을 향상시키기 위하여 WRF 영역 내에 Grid nudg-ing을 수행하였고, 지역규모 모델링의 수치모의 기간은 각 계절을 대표하기 위하여 2008년 1, 4, 8, 11월 총 4개월을 선정하였다.

한국을 제외한 동아시아지역의 배출량자료는 INTEX-B 2006 자료가 기본적으로 적용되었고, 국내 배출량은 국립환경과학원에서 개발된 대기보전정책지원시스템 (Clean Air Policy Support System: CAPSS)을 사용하였다 (Lee *et al*., 2011). 국내에서 CAPSS에서 지원되지 않는 비산먼지와 생체소각 배출량을 한국에서 보충한 자료가 입력되었다. 비산먼지 생체연소 보완 배출량에 대한 자세한 내용은 Jang and Kim (2011)에 자세히 설명되어져 있다.

화학수송모델은 기상모델인 WRF의 35층을 CMAQ의 연직 층인 17개 층으로 내삽하고, CMAQ의 첫 번째 층 (35 m)을 WRF와 동일하게 입력하였다. 모델의 가스상 화학반응은 Carbon Bond-V (CBO5)을 입력하였고, 이류과정에서 질량보전방법은 Piecewise-Parabolic Method (PPM)을 사용하였다. 또한 입자상물질 역학은 AERO6 모듈을 적용하였다. 마지막으로 해양으로부터 해염의 배출량은 De Leeuw *et al*. (2000)과 Gong (2003)의 매개변수를 사용하여 CMAQ에서 계산하였다.

2. 3 GEOS-Chem과 CMAQ 연계 방법

CMAQ과 GEOS-Chem은 수평 및 연직 격자 체계와 화학 메커니즘이 서로 다르므로 두 모델을 연결해 줄 수 있는 역학적, 화학적 Linking 프로그램이 필요하다. 따라서 본 연구에서는 GEOS-Chem의 연직 47개 층을 CMAQ의 17개 층에 해당하는 비율을 구하여 각층에 농도를 연직으로 내삽하고, 위경도 좌표로 지원되는 GEOS-Chem를 Labert Comformal 좌표로 변환하여 CMAQ에 수평 내삽하였다. 또한, GEOS-Chem에서 고려하는 화학종들과 CMAQ이 고려하는 화학종들이 서로 일치하지 않기 때문에 표 2와 같이 CMAQ의 화학적 가스상 메커니즘 CBO5와 입자상 역학 모듈인 AERO6의 GEOS-Chem mapping table을 통해 처리하였으며, 화학종들에 대한 설명은 Yarwood *et al*. (2005)와 GEOS-Chem online manual (http://acmg.seas.harvard.edu/geos/doc/man/appendix_1.html)에 자세히 설명되어져 있다. 최종적으로 1시간 간격으로 CMAQ의 경계조건 및 초기조건이 생성된다. 이때 초기조건은 매달 첫 시간에 한번 초기장으로 입력되며, 이후 초기조건은 전 시간에 CMAQ 농도에서 입력받는다. 반면, 경계조건은 매시간 GEOS-Chem에서 계

Table 2. Chemical mapping table between CMAQ and GEOS-Chem to set up chemical lateral boundary condition of CMAQ (http://wiki.seas.harvard.edu/geos-chem/index.php/GEOS-Chem_to_CMAQv5.0).

CMAQ (CB-V)	GEOS-Chem	CMAQ (CB-V)	GEOS-Chem
O3	Ox-NOx	ALDX	RCHO
NO2	NOx	ASOIL	0.95995×(DST2+DST3+DST4)
N2O5	N2O5	AALJ	0.05695×DST1
HNO3	HNO3	ASIJ	0.19435×DST1
PNA	HNO4	ATIJ	0.0028×DST1
H2O2	H2O2	AMNJ	0.00115×DST1
NTR	R4N2	AOTHRJ	0.50219×DST1
FORM	CH2O	APOCJ	0.999×(OCPI+OCPO)+0.01075×DST1
ALD2	0.5×ALD2	APOCI	0.001×(OCPI+OCPO)
CO	CO	AECJ	0.999×(BCPI+BCPO)
MEPX	MP	AECI	0.001×(BCPI+BCPO)
PAN	PAN	NH3	NH3
PANX	PPN+PMN	AXYL1J	0.03×SOA5
OLE	0.5×0.5×PRPE	AXYL2J	0.01×SOA5
IOLE	0.5×0.25×PRPE	AXYL3J	0.11×SOA5
TOL	1/7×TOLU	ATOL1J	0.04×SOA5
XYL	1/8×XYLE	ATOL2J	0.04×SOA5
ISPD	MACR+MVK	ATOL3J	0.29×SOA5
SO2	SO2	ABNZ1J	0.12×SOA5
ETHA	1/2×C2H6	ABNZ2J	0.04×SOA5
ASO4K	0.0776×SALC+0.02655×(DST2+DST3+DST4)+SO4s	ABNZ3J	0.32×SOA5
ASO4J	0.99×SO4+0.0776×SALA+0.0225×DST1	ATRP1J	0.33×(SOA1+SOA2)
ASO4I	0.01×SO4	ATRP2J	0.67×(SOA1+SOA2)
ANH4J	0.99×NH4+0.00005×DST1	AISO1J	0.75×SOA4
ANH4I	0.01×NH4	AISO2J	0.25×SOA4
ANO3J	0.99×NIT+0.00020×DST1	ASQTJ	SOA3
ANO3I	0.01×NIT	APNCOMI	0.4×0.001×(OCPI+OCPO)
ACLK	0.5538×SALC+0.01190×(DST2+DST3+DST4)	APNCOMJ	0.4×0.999×(OCPI+OCPO)+0.0043×DST1
ACLJ	0.5538×SALA+0.00945×DST1	ANO3K	NITs+0.0016×(DST2+DST3+DST4)
ANAJ	0.3086×SALA+0.03935×DST1	ASEACAT	0.3685×SALC
AMGJ	0.0386×SALA	NH3	NH3
AKJ	0.0114×SALA+0.03770×DST1	BENZENE	1/6×BENZ
ACAJ	0.0118×SALA+0.07940×DST1	ISOP	1/5×ISOP
AFEJ	0.03355×DST1	PAR	1.5/3×C3H8+ALK4+ACET+MEK+1/6×BENZ

산되는 입력장을 CMAQ에 입력한다.

3. 모델 평가

3장에서는 BC에 따른 CMAQ 농도를 평가하기에 앞서, 전 지구 모델인 GEOS-Chem이 BC를 생성하는데 적합한 모델인지를 Acid Deposition Monitoring Network (EANET) 자료 (http://www.eanet.cc/)와 비교하여 검증을 하였다. 그리고 생성된 BC의 지표층과 최상층의 농도 분포를 살펴보고, BC의 영향에 따른 CMAQ의 농도를 EANET 관측자료와 중국지역의 API 측정자료를 통해 평가하였다.

3.1 전 지구 모델 동아시아 모사 검증

먼저 GEOS-Chem의 정합도를 평가하기 위해서 동아시아지역을 대상으로 가스상 물질 (SO_2, NO_2, NH_3, HNO_3), 2차 입자상물질 및 PM10 모사결과를 평가하였다. EANET은 동아시아에서 산성우의 침적을 관측하기 위해 1998년부터 시작하였으며 대부분의 관측소들이 국지적인 오염원에 의한 영향을 제거하기 위해서 섬이나 산악 등의 청정 지역에 위치한다. 본 연구에서 평가에 적용한 측정소의 위치는 그림 2에 나타내었다. 위의 측정소를 선택한 이유는 모델 비교

평가에 필요한 기체상 물질 및 2차상 에어로졸 항목에 대한 측정값이 모두 제공되기 때문이다. 그림 3은 본 연구의 분석 기간인 2007년 12월에서 2008년 11월까지의 EANET에서 측정한 가스상물질 및 2차상 에어로졸의 월평균 관측값와 GEOS-Chem 모델값에 대한 비교를 나타낸 것이다. 가스상물질인 SO_2, NO_2, NH_3, HNO_3의 모델간의 상관계수(R^2)는 각각 0.50, 0.17, 0.50, 0.014이고 기울기는 1.52, 1.18, 0.87, −0.10이다. SO_2의 농도의 경우 약 52% 과소모의하는 것으로 나타났으며 모델은 약 0.2 ppbv 정도의 bias를 가지는 것으로 나타났다. NO_2의 농도의 경우 약 18% 과소모의하는 것으로 나타났으며 모델은 약 0.0016 ppmv bias를 가지는 것으로 나타났다. NH_3 농도의 경우 NO_2, SO_2와 유사하게 모델이 과소모의하고 있는 것으로 나타났다. 마지막으로 HNO_3는 모델이 약 2배 과대모의하는 것으로 나타났다. 이러한 HNO_3의 과대모사는 전 지구 모델에서 주로 발생되는 문제로서 선행연구에서 많이 지적된 바 있다(Fairlie *et al.*, 2010; Bey *et al.*, 2001). Fairlie *et al.* (2010)은 전 지구 모델에서 HNO_3 과대 모사 문제를 개선하기 위하여 HNO_3의 에어로졸 흡수반응계수(uptake of reaction rate by aerosol)를 적용 및 수정하였는데, 에어로졸 흡수반응계수가 커지면서, HNO_3의 농도는 감소하나, 반대로 NO_3^-의 농도가 증가하는 경향을 보였다. 따라서 전 지구 모델의 HNO_3의 과대평가는 NOx 배출량의 과대입력, 또는 가스상 물질과 에어로졸간의 비균질 반응과 전구물질인 NO_x와 HNO_3의 균질반응에 대해서 세밀한 검토가 필요하다고 판단된다.

또한, 그림 3에서 2차 생성 입자상 물질인 SO_4^{2-}, NO_3^-, NH_4^+, PM10의 측정농도와 모델치간의 상관계수(R^2)는 각각 0.31, 0.39, 0.41, 0.70이고, 기울기는 1.39, 0.42, 0.57, 1.22이다. SO_4^{2-}의 농도의 경우 약 39% 과소모의하고 있고, 모델치가 약 1.39 μg/m^3 정도의 bias를 가지는 것으로 나타났다. NO_3^-의 농도의 경우 약 58% 과대모의하고, 모델치는 약 0.03 μg/m^3 bias를 가지는 것으로 나타났다. NO_3^- 과대모의의 이유는 앞에서 설명한 것과 같이 전구물질인 HNO_3의 과대모의로 NO_3^-의 농도에 영향을 미치는 것으로 사료된다. NH_4^+ 농도의 경우 약 43% 과대모의하는 것으로 나타났으며 모델은 약 0.18 μg/m^3 bias를 가지는 것으로 나타났다. 마지막으로 PM10는 약 22% 과소모의하는 것으로 나타났으며, 모델은 약 −11.58 μg/

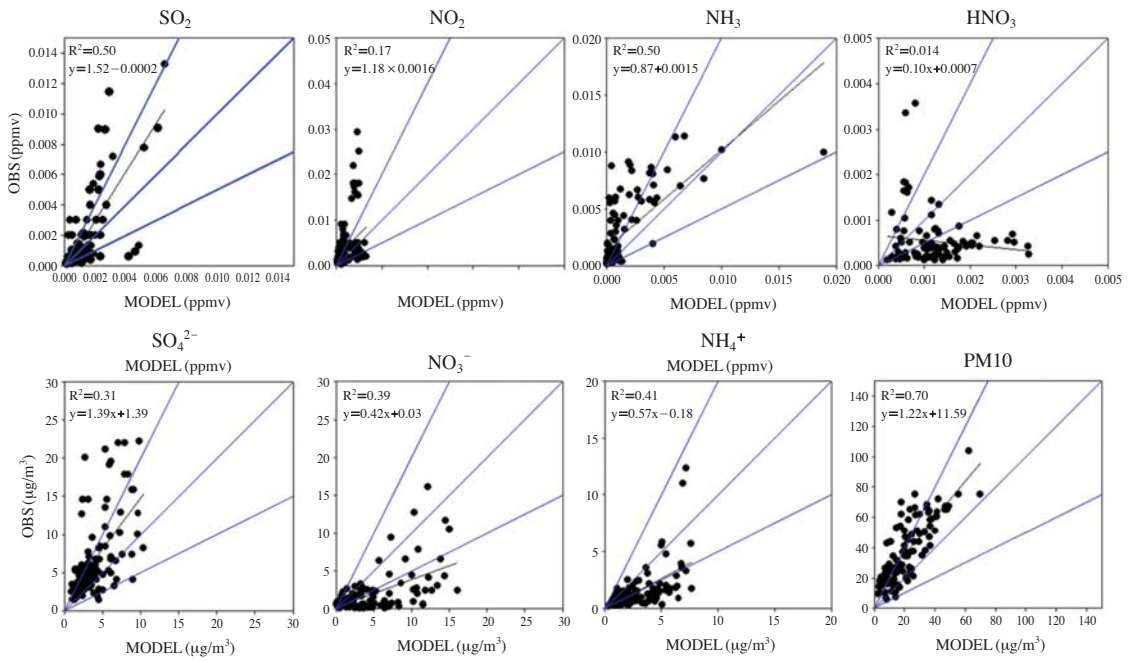

Fig. 3. Scatter plot of simulated versus observed SO_2, NO_2, NH_3, HNO_3, SO_4^{2-}, NO_3^-, NH_4^+ and PM10 at EANET sites. Values are monthly average for 2008.

m^3 bias를 가지는 것으로 나타났다.

따라서 GEOS-Chem은 입자상 및 가스상 반응이 서로 복합적으로 연계되어 있고, 반응기구에 대한 불확실성이 HNO_3 및 NO_3^-를 제외하면 EANET 측정치와 비교적 양호한 상관관계를 갖고 있기 때문에 지역규모 모델인 CMAQ에 경계조건을 제공하는데 적절한 것으로 판단된다.

3. 2 경계조건 비교

그림 4는 지역규모 모델링 영역의 경계면에서 고도에 따른 PM10농도의 월평균농도를 나타낸 것이다. CMAQ에서 제공되는 Default profile인 경우, 네 개의 경계면에서 위경도와 시간에 상관없이 낮고 일정하게 입력된다. 그러나 전 지구 모델인 GEOS-Chem을 통해 생성된 경계조건은 모든 경계면에서 지표부근에서 가장 높은 PM10 농도를 보이고 있고, 고도에 따라서 감소하는 추세를 보이고 있다. 서쪽 경계면을 제외한 다른 3개의 경계면은 고도 2000 m까지는 그 영향이 있는 것으로 나타났으나, 최대농도는 지표면에서 20 μg/m^3 내외의 값을 가지는 것을 알 수 있다.

한편, 서쪽경계는 경계 외부에 위치한 타클라마칸 사막에서 발생되는 사막먼지 영향을 반영하기 때문에 4월과 8월에 PM10 농도가 뚜렷하게 증가하는 것으로 나타났다. 4월과 8월의 지표에서 PM10의 농도는 각각 121.74, 84.07 μg/m^3로 지역규모 모델링 결과에서 타클라마칸 사막의 영향이 크게 나타날 것으로 판단된다.

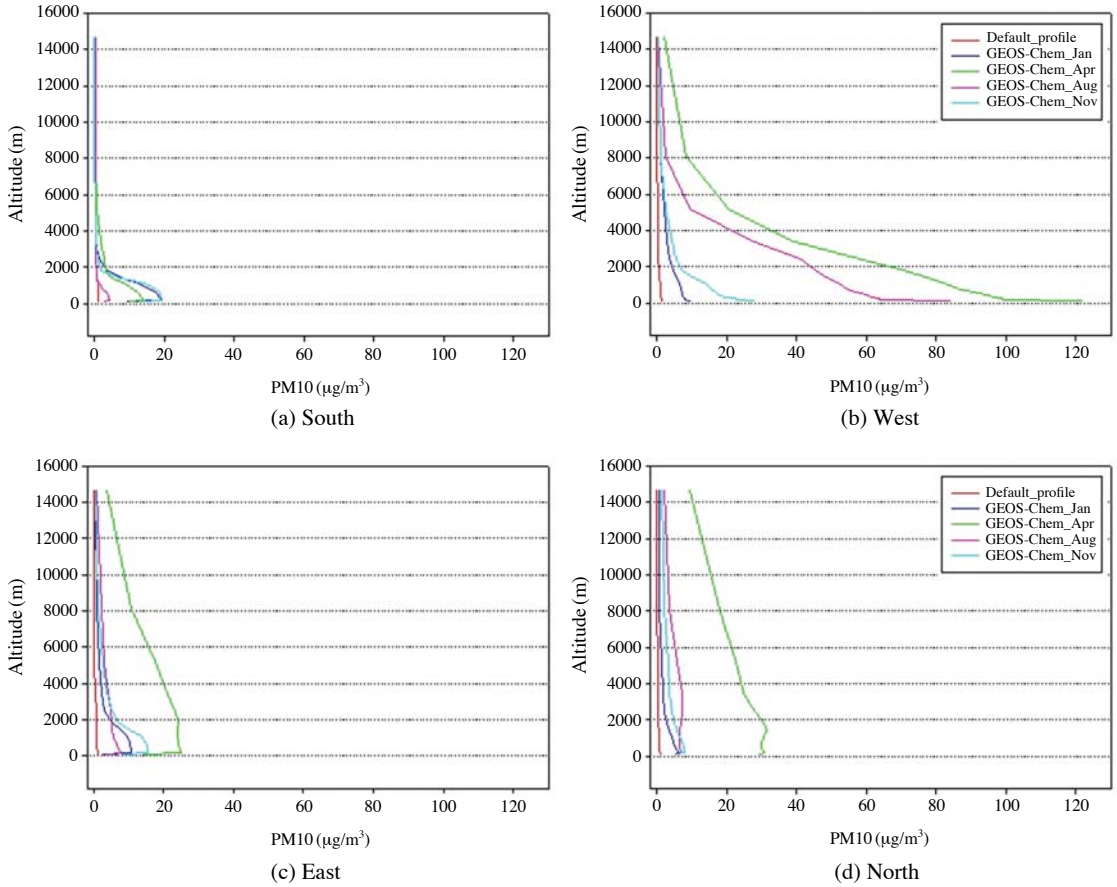

Fig. 4. Mean PM10 vertical profile of boundary conditions on default_profile and GEOS-Chem at southern, western, eastern and northern boundaries of CMAQ on January, April, August and November in 2008.

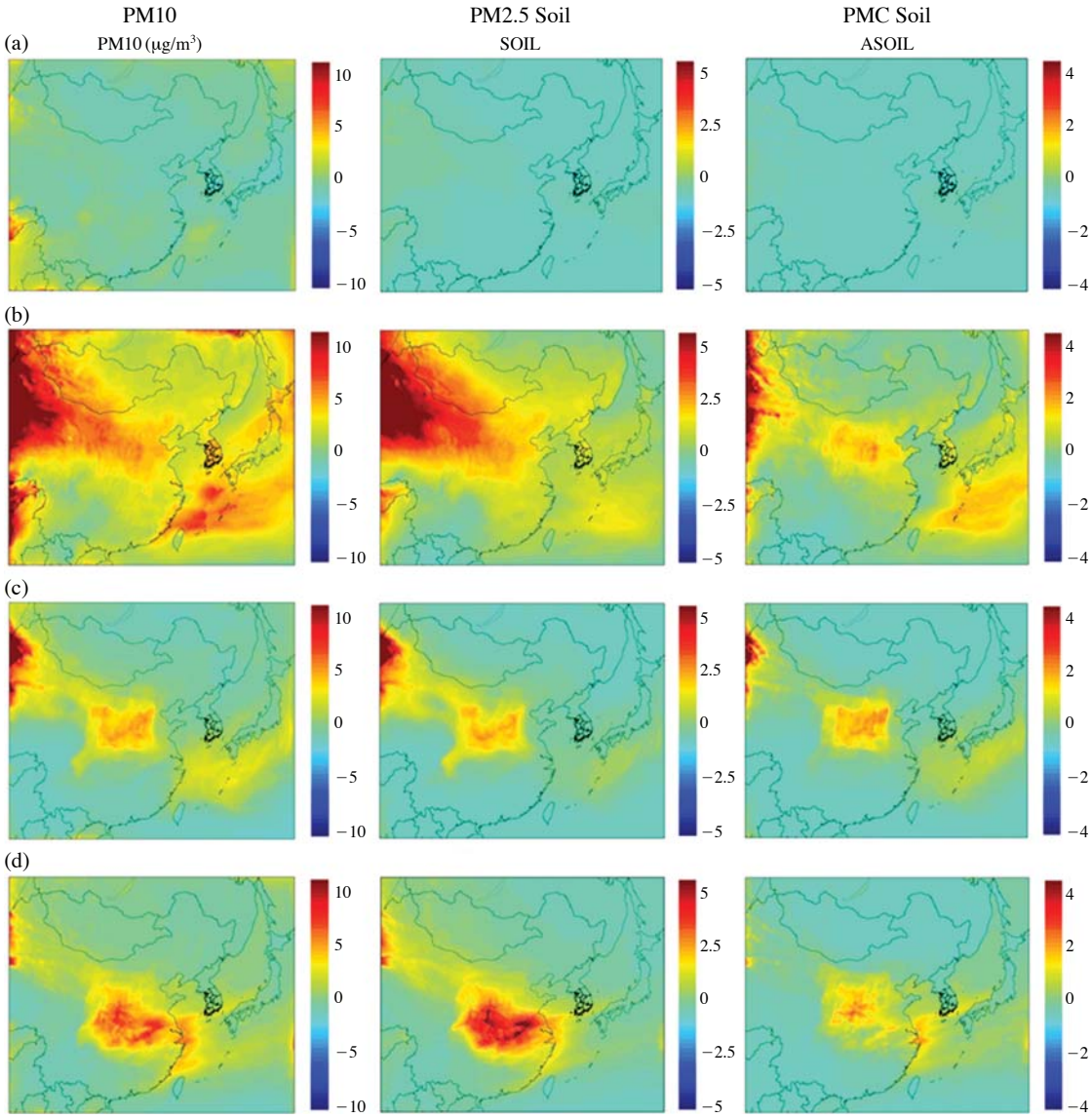

Fig. 5. Difference of simulated PM10, PM2.5 soil and PMC soil concentration in model domain for (a) January, (b) April, (c) August, and (d) November (CMAQ-GEOS - CMAQ-Profile).

3. 3 CMAQ 결과 비교

경계조건의 영향을 살펴보기 위하여 CMAQ default profile과 GEOS-Chem에 의해 생성된 BC를 이용하여 지역규모 모델인 CMAQ을 수행하여 각각의 모델치를 측정값과 비교하였다. 비교검증을 위한 측정소는 중국 지역인 경우에 API (http://www.aqicn.info/)를 국내에서 자료 확보가 가능한 총 41개소 중 11개 측정소의 값을 PM10으로 환산하였으며, 측정소 위치는 경계면으로부터 유입되는 오염물질의 풍하거리에 위치한 측정 지점으로 선정하였다. 우리나라 지역은 EANET자료를 활용하였다 (그림 2). 측정치와 모델 예측치의 정량적 평가에는 Mean Bias (MB), Normal-

Table 3. Aggregated statistics for PM10 predictions by different boundary conditions at API observation stations.

		OBS	MODEL	MB ($\mu g/m^3$)	IOA	RMSE ($\mu g/m^3$)	NMB (%)
Jan.	CMAQ-default	121.17	62.27	−58.90	0.499	86.75	−48.61
	CMAQ-GEOS	121.17	63.21	−57.96	0.509	85.91	−47.83
Apr.	CMAQ-default	111.15	29.06	−82.09	0.394	103.13	−73.85
	CMAQ-GEOS	111.15	35.86	−75.29	0.404	97.23	−67.74
Aug.	CMAQ-default	67.29	37.39	−29.89	0.361	51.63	−44.43
	CMAQ-GEOS	67.29	44.78	−22.51	0.276	58.50	−33.45
Nov.	CMAQ-default	105.51	51.49	−54.02	0.425	81.83	−51.19
	CMAQ-GEOS	105.51	57.00	−48.51	0.431	79.97	−45.97

Table 4. Aggregated statistics for PM10 of EANET observation stations including only Korea region.

	Average			MB		IOA		RMSE		NMB (%)	
	OBS	CMAQ -Profile	CMAQ -GEOS	CMAQ -Profile	CMAQ -GEOS	CMAQ -Profile	CMAQ -GEOS	CMAQ -Profile	CMAQ -GEOS	CMAQ -Profile	CMAQ -GEOS
PM10 ($\mu g/m^3$)	44.83	22.09	25.35	−26.75	−23.49	0.450	0.492	30.88	27.34	−54.77	−48.10

ized Mean Bias (NMB), Root Mean Squared Error (RMSE) 그리고 Index Of Agreement (IOA) 통계값을 활용하였다 (US EPA, 2007; Willmott, 1982, 1981).

3. 3. 1 중국지역 비교

경계조건의 영향은 모델 경계에 근접해 있는 지역일수록 영향을 많이 받게 되므로 (Borge *et al*., 2010), 중국은 경계조건의 영향을 검증하기 타당한 지역이다.

그림 5는 CMAQ default profile으로 계산된 BC로 모의한 지표 PM10 농도 (CMAQ-default)와 GEOS-Chem으로 계산된 BC로 모의한 농도 (CMAQ-GEOS)의 차이를 각 기간 별로 나타낸 것이다. 서쪽 경계에서 유입되는 다량의 PM10 물질 및 중국지역 내에 입력된 초기장의 영향으로 중국 란저우, 베이징 부근에서 4월과 8월에 PM10 농도 차이가 크게 나타났으며, 약 5～6 $\mu g/m^3$의 지상 PM10 농도 증가를 보였다. 특히 8월과 11월의 경우, 모델링지역 중앙부근인 중국지역에서 농도차이를 나타나는 것은 GEOS-Chem의 모델링결과가 CMAQ의 모델에 초기장으로 입력되면서 GEOS-Chem의 높은 초기장 PM10 농도가 8월과 11월의 CMAQ 농도차이를 크게 한 것으로 판단된다. 이와 같이 전구모델의 초기장이 지역규모 모델의 PM 성분 모델농도에 영향을 미치는 것은 Samaali *et al*. (2009)의 연구에서도 언급된 바가 있다.

또한 PM10 농도 중 어떠한 성분이 농도 증가에 원인을 일으키는지 살펴보기 위하여, PM2.5 soil 성분과 Particle Matter Coarse (PMC) soil 성분을 계절별로 경계조건의 차이에 따른 동아시아지역에서 농도분포를 그림 5에 나타내었다. 특히 4월의 경우 PM2.5 soil 성분과 PMC soil 성분이 그림 2에 표시한 Taklimakan 사막지역에서 배출된 토양먼지의 영향으로 중국지역에 각각 약 2～4 $\mu g/m^3$, 1～2 $\mu g/m^3$가 증가하는 것을 알 수 있다.

표 3은 중국 API 측정값과 CMAQ PM10 농도를 통계분석 한 것이다. Bias (MN, NMB)의 경우 모델결과가 전체적으로 실측에 과소평가하고 있지만 GEOS-Chem으로 계산된 BC를 적용한 후 PM10 농도의 약 1～8 $\mu g/m^3$ 정도가 경계로부터 유입되는 것을 알 수 있다.

3. 3. 2 우리나라지역 비교

표 4는 우리나라 지역에 영향을 살펴보기 위하여 그림 2에 나타난 EANET 측정소 중 강화, 임실, 제주지역을 선정하여 통계분석하였다. EANET 자료는 월평균 자료를 활용하였다.

CMAQ의 모델결과가 전체적으로 실측에 과소평가하고 있지만, GEOS-Chem으로 계산된 BC를 적용한 후 약 3.26 $\mu g/m^3$ (MB), 6% (NMB) 개선되었으며,

IOA, RMSE값은 측정값과 모델치의 정합도가 향상되었다.

따라서 중국, 우리나라 지역에서 GEOS-Chem으로 계산된 경계조건을 활용하는 것은 저평가되고 있는 PM10 농도를 보완하고 모델치의 정합도를 향상시키기 때문에 지역규모 모델에서 활용되어야 할 것으로 판단된다.

4. 요약 및 결론

지역규모 모델에서 경계조건은 모델 결과에 중요한 영향을 미치는 입력자료 중 하나로서, 본 연구에서는 경계조건의 영향을 알아보기 위해 전 지구 모델 중 하나인 GEOS-Chem으로 계산된 BC를 지역규모 모델인 CMAQ에 적용하여 동아시아 지역에 입자상 물질의 모사를 분석 하였다.

경계조건에 영향을 분석하기에 앞서, 우리는 전 지구모델인 GEOS-Chem이 경계조건 생성에 타당한지를 검증하기 위하여 EANET 측정망 자료와 정합도를 분석하였다. 비교항목은 가스상 물질인 NO_2, SO_2, NH_3, HNO_3과 입자상물질인 SO_4^{2-}, NO_3^-, NH_4^+, PM10이었다. 가스상 물질은 대부분 모델이 과소평가하고 있었으나 HNO_3의 경우 모델이 약 2배 과대모의하고 있었으며, 입자상물질은 모델이 과소모의하고 있는 경향을 보이고 있으나 모델의 상관계수는 양호한 것으로 평가되었다. 따라서 경계조건으로 GEOS-Chem을 활용하기에 적절한 것으로 판단되었다.

지역규모 모델인 CMAQ의 경계조건에 영향을 알아보기 위하여 (1) CMAQ default profile (2) 전 지구모델에서 추출한 GEOS-Chem 경계조건을 비교 분석하였다.

CMAQ default profile은 계절에 따라 각 경계면에서 PM10 농도의 변화가 없었으며, GEOS-Chem 경계조건은 4월과 8월에 지표면으로부터 각각 약 121.74, 84.07 $\mu g/m^3$이 유입되는 것을 볼 수 있었다.

위의 영향으로 인하여, 경계지역에 인접하고 풍하지역에 위치한 중국지역은 GEOS-Chem 경계조건을 입력 하였을 때 PM10 농도가 4, 8, 11월에 약 5~6 $\mu g/m^3$이 증가되는 것을 볼 수 있었다. 또한 우리나라 지역은 약 3 $\mu g/m^3$이 증가되는 것을 볼 수 있었으며, PM10 농도 증가에 기여하는 성분은 PM2.5 soil 성분과 PMC soil이었다.

따라서 지역규모 모델에 경계조건으로 전 지구 모델인 GEOS-Chem의 사용은 CMAQ에서 입력되지 않는 먼지 농도가 시간에 따라서 변하는 경계조건으로 입력되기 때문에 입자상 물질 농도의 증가가 나타났으며, 기존에 저평가되던 모델의 농도가 측정자료와 정합도가 향상되었다. 그러므로 지역규모 모델 수행 시 개선된 결과를 얻기 위해서는 기존 CMAQ에서 지원하는 상수 값 형태의 경계조건을 사용하는 것 보다는 전 지구 모델을 수행하여 시공간적인 해상도를 갖는 경계조건을 사용하는 것이 보다 바람직한 것으로 판단된다.

감사의 글

본 연구는 환경부 “차세대 핵심환경기술개발사업”으로 지원받은 과제임.

참 고 문 헌

Alexander, B., R.J. Park, D.J. Jacob, Q.B. Li, R.M. Yantosca, J. Savarino, C.C.W. Lee, and M.H. Themens (2005) Sulfate formation in sea-salt aerosol: Constraints from oxygen isotopes, J. Geophys. Res., 110, D10307.

Appel, W., A. Gilliland, G. Sarwar, and R.C. Gilliam (2007) Evaluation of the community multiscale air quality (CMAQ) model version 4.5: sensitivities impacting model performace: part I - ozone, Atmos. Environ., 41, 9603-9613.

Barkley, M. (2010) Description of MEGAN biogenic VOC emissions in GEOS-Chem.

Bey, I., D.J. Jacob, R.M. Yantosca, J.A. Logan, B. Field, A.M. Fiore, Q. Li, H. Liu, L.J. Mickley, and M. Schultz (2001) Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: model description and evaluation, J. Geophys. Res., 106, 23, 073-23, 096.

Bond, T.C., D.G. Streets, K.F. Yarber, S.M. Nelson, J.H. Woo, and Z. Klimont (2004) A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion, J. Geophys. Res., 109, D14203.

Borge, R., V. Alexandrov, J.J. del Vas, J. Lumbreras, and M.E. Rodríguez (2008) A comprehensive sensitivity an-

alysis of the WRF model for air quality applications over the Iberian Peninsula, Atmos. Environ., 42, 8560-8574.

Borge, R., J. Lopez, J. Lumbreras, A. Narros, and E. Rodriguez (2010) Influence of boundary conditions on CMAQ simulations over the Iberian Peninsula, Atmos. Environ., 44, 2681-2695.

Chung, S.H. and J.H. Seinfeld (2002) Global distribution and climate forcing of carbonaceous aerosols, J. Geophys. Res., 107(D19), 4407.

De Leeuw, G., F.P. Neele, M. Hill, M.H. Smith, and E. Vignati (2000) Production of sea spray aerosol in the surf zone, J. Geophys. Res., 105(D24), 29397-29409.

Fairlie, T.D., D.J. Jacob, and R.J. Park (2007) The impact of transpacific transport of mineral dust in the United States, Atmos. Environ., 41, 1251-1266.

Fairlie, T.D., D.J. Jacob, J.E. Dibb, B. Alexander, M.A. Avery, A. van Donkelaar, and L. Zhang (2010) Impact of mineral dust on nitrate, sulfate, and ozone in transpacific Asian Pollution plumes, Atmos. Chem. Phys., 10, 3999-4012.

Fountoukis, C. and A. Nenes (2007) ISORROPIA II: A computationally efficient thermodynamic equilibrium model for K^+-Ca^{2+}-Mg^{2+}-NH_4^+-Na^+-SO_4^{2-}-NO_3^--Cl^--H_2O aerosols, Atmos. Chem. Phys., 7(17), 4639-4659.

Fu, J.S., C.J. Jang, D.G. Streets, Z. Li, R. Kwok, R.J. Park, and Z. Han (2008) MICS-Asia II: Modeling gaseous pollutants and evaluating an advanced modeling system over East Asia, Atms. Environ., 42, 3571-3583.

Gong, S.L. (2003) A parameterization of sea-salt aerosol source function for sub- and super-micron particles, Global Biogeochemical Cycles, 17(4), 1097-1103.

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), Atmos. Chem. Phys., 6, 3181-3210.

Henze, D.K. and J.H. Seinfeld (2006) Global secondary organic aerosol from isoprene oxidation, Geophys. Res. Lett., 33, L09812.

Henze, D.K., J.H. Seinfeld, N.L. Ng, J.H. Kroll, T.M. Fu, D.J. Jacob, and C.L. Heald (2008) Global modeling of secondary organic aerosol formation from aromatic hydrocarbons: high- vs. Low-yield pathways, Atmospheric Chem. Phys., 8, 2405-2420.

Hong, S., J. Lee, J. Choi, K. Moon, H. Lee, D. Hong, S. Lee, and C. Song (2012) The Effect of the Chemical Lateral Boundary Conditions on CMAQ simulations of Tropospheric Ozone for East Asa, J. KOSAE, 28(5), 581-594.

In, H.J., D.W. Byun, R.J. Park, N.K. Moon, S. Kim, and S. Zhong (2007) Impact of trans-boundary transport of carbonaceous aerosols on the regional air quality in the Unite States: A case study of the South American wildland fire of May 1988, J. Geophys. Res., 112, D07201.

Jang, Y.G. and J. Kim (2011) Developing the PM emission inventories in Korea, Air Quality Modeling in Asia 2011, 24-25.

Kuhns, H., M. Green, and V. Etyemezian (2003) Big bend regional aerosol and visibility observational (BRAVO) study emissions inventory.

Lam, Y.F. and J.S. Fu (2010) A novel downscaling technique for the linkage of global and regional air quality modeling, Atmos. Chem. Phys., 10, 4013-4031.

Lee, D., J. Wang, X. Jiang, Y. Lee, and K. Jang (2012) Comparison between atmospheric chemistry model and observations utilizing the RAQMS-CMAQ linkage, Atmos. Environ., 61, 85-93.

Lee, D., Y. Lee, K. Jang, C. Yoo, K. Kang, J. Lee, S. Jung, J. Park, S. Lee, J. Han, J. Hong, and S. Lee (2011) Korean National Emissions Inventory System and 2007 Air Pllutant Emissions, Asian Journal of Atmospheric Environment, 5(4), 278-291.

Liu, H., D.J. Jacob, I. Bey, and R.M. Yantosca (2001) Constraints from 210Pb and 7Be on wet deposition and transport in a global three-dimensional chemical tracer model driven by assimilated meteorological fields, J. Geophys. Res., 106(D11), 12,109-12,128.

Oliver, J.G.J. and J.J.M. Berdowski (2001) Global emissions sources and sinks. In: Berdowski, J., *et al.* (Eds.), The Climate System. A.A, Balkema Publishers/ Swets & Zeitlinger Publishers, Lisse, the Netherlands, 33-78.

Park, R.J., D.J. Jacob, M. Chin, and R.V. Martin (2003) Sources of carbonaceous aerosols over the United States and implications for natural visibility, J. Geophys. Res., 108(D12), 4355.

Park, R.J., D.J. Jacob, B.D. Field, R.M. Yantosca, and M. Chin (2004) Natural and transboundary pollution influences on sulfate-nitrate-ammonium aerosols in the Unitied States: implications for policy, Geophys. Res., 109, D15204.

Park, R.J., D.J. Jacob, N. Kumar, and R.M. Yantosca (2006) Regional visibility statistics in the United States:

natural and transboundary pollution influences, and implications for the Regional Haze Rule, Atmos. Environ., 40(28), 5405-5423.

Park, R.J., J.I. Jeong, and D. Youn (2009) A study of the effects of Siberian wildfires on ozone concentrations over East Asia in Spring 2003, J. Korean of Korean Met. Soc., 19(3), 227-235.

Samaali, M., M.D. Moran, V.S. Bouchet, R. Pavlovic, S. Cousineau, and M. Sassi (2009) On the influence of chemical initial and boundary conditions on annual regional air quality model simulations for North America, Atmos. Environ., 43, 4873-4885.

Skamarock, W.C. and J.B. Klemp (2008) A time-split non-hydrostatic atmospheric model for weather research and forecasting applications, J. Computational Physics, 227, 3465-3485.

Tombrou, M., E. Bossioli, A.P. Protonotariou, H. Flocas, C. Giannakopoulos, and A. Dandou (2009) Coupling GEOS-CHEM with a reional air pollution model for Greece, Atmos. Environ., 43, 4793-4804.

US Environmental Protection Agency (2007) Guidance on the Use of Models and Other Analyses for Demonstrating Attainment of Air Quality Goals for Ozone, PM2.5 and Regional Haze, EPA454-B-07-002.

US Environmental Protection Agency (2010) Technical Support Document: Preparation of Emissions Inventories for the Version 4, 2005-based Platform, 73 pp.

van der Werf, G., J.T. Randerson, L. Giglio, G.J. Collatz, M. Mu, P.S. Kasibhatla, D.C. Morton, R.S. DeFries, Y. Jin, and T.T. van Leeuwen (2010) Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fires (1997～2009), Atmos. Chem. Phys. Discuss., 10, 16153-16230.

Vestreng, V., K. Mareckova, S. Kakareka, A. Malchykhina, and T. Kukharchyk (2007) Inventory Review 2007: Emission Data reported to LRTAP Convention and NEC Directive.

Wang, Y., D.J. Jacob, and J.A. Logan (1998) Global simulation of tropospheric O_3-NO_x-hydrocarbon chemistry, 1. Model formulation, J. Geophys. Res., 103(D9), 10,713-10,726.

Yarwood, G., S. Rao, M. Yocke, and G. Whitten (2005) Updates to the carbon bond chemical mechanism: CB05. Final report to the U.S. EPA, RT-0400675.

Zhang, Q., D.G. Streets, G.R. Carmichael, K.B. He, H. Huo, A. Kannari, Z. Klimont, I.S. Park, S. Reddys, J.S. Fu, D. Chem, L. Duan, Y. Lei, L.T. Wang, and Z.L. Yao (2009) Asian emission in 2006 for the NASA INTEX-B mission, Atmos. Chem. Phys., 9, 5131-5153.

Zender, C.S., H. Bian, and D. Newman (2003a) Mineral dust entrainment and deposition (DEAD) model: description and 1990s dust climatology, J. Geophys. Res., 108(D17), 4416.

Zender, C.S., D. Newman, and O. Torres, (2003b) Spatial heterogeneity in aeolian erodibility: uniform, topographic, geomorphic, and hydrologic hypotheses, J. Geophys. Res., 108(D14), 4543.