

ORIGINAL ARTICLE

CMAQ 모델의 화학메커니즘(SAPRC99, CB05) 적용에 따른 수도권 오존농도 모의결과 비교

강윤희 · 오인보^{1)*} · 정주희²⁾ · 방진희¹⁾ · 김유근²⁾ · 김순태³⁾ · 김은혜³⁾ · 홍지형⁴⁾ · 이대균⁵⁾

부산대학교 환경연구원, ¹⁾울산의대 환경보건센터, ²⁾부산대학교 대기환경과학과, ³⁾아주대학교 환경공학과,

⁴⁾국립환경과학원 기후대기연구부, ⁵⁾국립환경과학원 기후대기연구부 대기질통합예보센터

Comparison of CMAQ Ozone Simulations with Two Chemical Mechanisms (SAPRC99 and CB05) in the Seoul Metropolitan Region

Yoon-Hee Kang, Inbo Oh^{1)*}, Ju-Hee Jeong²⁾, Jin-Hee Bang¹⁾, Yoo-Keun Kim²⁾,
Soontae Kim³⁾, Eunhye Kim³⁾, Ji-Hyung Hong⁴⁾, Dae-Gyun Lee⁵⁾

The Institute of Environmental Studies, Pusan National University, Busan 609-735, Korea

¹⁾*Environmental Health Center, University of Ulsan College of Medicine, Ulsan 682-714, Korea*

²⁾*Department of Atmospheric Sciences, Pusan National University, Busan 609-735, Korea*

³⁾*Department of Environmental Engineering, Ajou University, Suwon 443-749, Korea*

⁴⁾*Climate and Air Quality Research Department, National Institute of Environmental Research, Incheon 404-708, Korea*

⁵⁾*Air Quality Forecasting Center, Climate and Air Quality Research Department, National Institute of Environmental Research, Incheon 404-708, Korea*

Abstract

A comparison of ozone simulations in the seoul metropolitan region (SMR) using the community multiscale air quality (CMAQ) model with SAPRC99 and CB05 chemical mechanisms (i.e. EXP-SP99 and EXP-CB05) has been conducted during four seasons of 2012. The model results showed that the differences in average ozone concentrations between the EXP-SP99 and EXP-CB05 were found to be large in summer, but very small in the other seasons. This can be attributed that the SAPRC99 tends to produce more ozone than the CB05 in urban area like the SMR with low VOC/NO_x ratio under high ozone conditions. Through quantitative comparison between two mechanisms for the summer, it was found that the average ozone concentrations from the EXP-SP99 were about 3 ppb higher than those from the EXP-CB05 and agreed well with the observations. Horizontal differences in ozone concentrations between SAPRC99 and CB05 showed that significant differences were found in southern part of the SMR and over the sea near the coast in summer.

Key words : Ozone, CMAQ model, SAPRC99, CB05, Chemical mechanism

Received 22 July, 2015; Revised 16 November, 2015;

Accepted 17 November, 2015

*Corresponding author : Inbo Oh, Environmental Health Center,
University of Ulsan College of Medicine, Ulsan 682-714, Korea
Phone: +82-52-209-0050
E-mail: oinbo@ulsan.ac.kr

© The Korean Environmental Sciences Society. All rights reserved.

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

1. 서론

광화학 대기오염물질의 수치모델링에 있어 화학메커니즘의 선택은 모델 결과에 유의한 차이를 가져올 수 있다(Luecken et al., 2008; Appel et al., 2007). 지난 수십여 년 간 대기질 모델의 개발과 함께 모델에 고려되는 화학반응에 대한 많은 연구가 진행되었지만 여전히 물질과 반응에 대한 불확실성이 크다(Dodge, 2000; NRC, 1991). 대표적인 대기질 모델인 CMAQ(the Community MultiScale Air Quality)과 CAMx(Comprehensive Air Quality Model with Extensions)의 화학메커니즘에서도 복잡한 유기화학반응(organic chemical reaction)을 모두 고려하지 못하고 있다(Chen et al., 2010; Faraji et al., 2008). 현재까지도 다양한 챔버 실험과의 비교를 통해 이들 화학메커니즘에 대한 개선 및 평가 연구가 진행 중이다.

국내 대기정책 수립 및 대기환경 연구에 가장 많이 적용되는 CMAQ 모델(버전 5.0.1 기준)의 경우, SAPRC(Statewide Air Pollution Research Center) 화학메커니즘인 SAPRC99(Cater, 2000), SAPRC07(Cater, 2007)과 CB(Carbon Bond) 화학메커니즘인 CB05(Yarwood et al., 2005) 중 선택 가능하다. SAPRC 화학메커니즘은 유기화합물에 대해 VOCs를 비슷한 물질끼리 나누는 lumped molecule 방식을 사용하는 반면, CB 화학메커니즘은 탄소결합 형태에 따라 분류하는 lumped structure 방식을 사용한다(Dodge, 2000). 이들 메커니즘들은 유기화합물 분류방법 외에도 화학 반응식, 반응물질, 모수화 및 근사방법이 다르게 적용되며, 메커니즘별 화학 반응식과 반응률은 Yu et al.(2010)에 상세히 제시되어 있다.

SAPRC과 CB 화학메커니즘 적용에 따른 대기질 모델링 결과 차이에 대한 연구는 CMAQ 모델을 중심으로 국외에서 다양하게 시도되어 왔다. 이러한 연구는 특정 지역 및 대기오염물질의 모델링 정확도를 향상시킬 수 있는 적절한 화학메커니즘 선택에 대한 정보를 제공해 준다. Luecken et al.(2008)은 미국전역을 대상으로 2001년 7월 한달에 대해 CB4, CB05, SAPRC99를 각각 CMAQ 모델에 적용하여 계산된 오존, NO_x, 알데하이드, H₂O₂ 농도를 비교하였고, Yu et al.(2010)은 같은 방법으로 2004년 ICARTT(International Consortium

for Atmospheric Research on Transport and Transformation) 연구 사례의 CMAQ 모델링 결과를 비교하였다. 그 밖에도 Gilliland et al.(2008)는 미국 SIP(State Implementation Plan) NO_x 배출량 저감정책 실행 전후인 2002년과 2004, 2005년에 대해 CB4, CB05, SAPRC99를 각각 CMAQ 모델에 적용하여 배출량변화에 따른 오존농도 변화 차이를 평가하였다. 선행연구 결과를 종합해보면 평균적으로는 도시지역에서 SAPRC99가 CB05보다 오존농도를 다소 높게 모의하는 경향이 제시되었으나, 지역의 배출환경에 따라 그 차이의 정도가 다르게 나타났고(Luecken et al., 2008), 관측값과의 일치도에서도 오존농도 수준에 따라 상이한 결과를 보여주었다(Yu et al., 2010).

국내의 경우, KEI(2007), Sung(2005)이 CMAQ 모델의 SAPRC99와 CB4 화학메커니즘 비교연구를 수행하여 CB4보다는 SAPRC99가 오존농도를 더 높게 예측하는 결과를 보여주었으나 이들 모두 여름철 사례중심의 단기 분석 결과로 화학메커니즘 선택에 따른 평균적인 차이를 파악하지 못하는 연구의 한계가 있었다. 또한 최근 CMAQ 모델을 이용한 대기질 및 환경영향(보건)평가 연구가 빈번히 이루어지고 있으나 화학메커니즘의 선택(특히 최근 CMAQ에 포함된 CB05 등)과 모델링 결과의 정확도 문제는 충분히 평가되지 못했다.

따라서 본 연구에서는 CMAQ를 이용하여 기존의 연구와는 달리 계절별 장기간의 모델링을 통해 CB05와 SAPRC99 화학메커니즘 적용에 따른 평균적인 모델결과 차이를 정량적으로 분석하였다. 연구대상 영역은 우리나라 약 절반의 인구가 거주하고 대기오염도가 높은 수도권지역이며, 대상 물질은 화학메커니즘 선택에 따른 영향이 크고 대표적인 광화학대기오염물질로 수도권지역에서 고농도가 빈번히 나타나는 오존(O₃)으로 하였다.

2. CMAQ 모델링 방법

2.1. 모델링 도메인

수도권지역 CMAQ 모델링을 위해 설정한 도메인은 국립환경과학원 CAPMOS(Clean Air Policy Modeling System, <http://capmos.nier.go.kr>)에서 제공되는 대기질모델링 도메인(동아시아, 한반도, 수도권)과 동일하다(Fig. 1). CMAQ 모델링의 기상입력 자료는 기상모델인

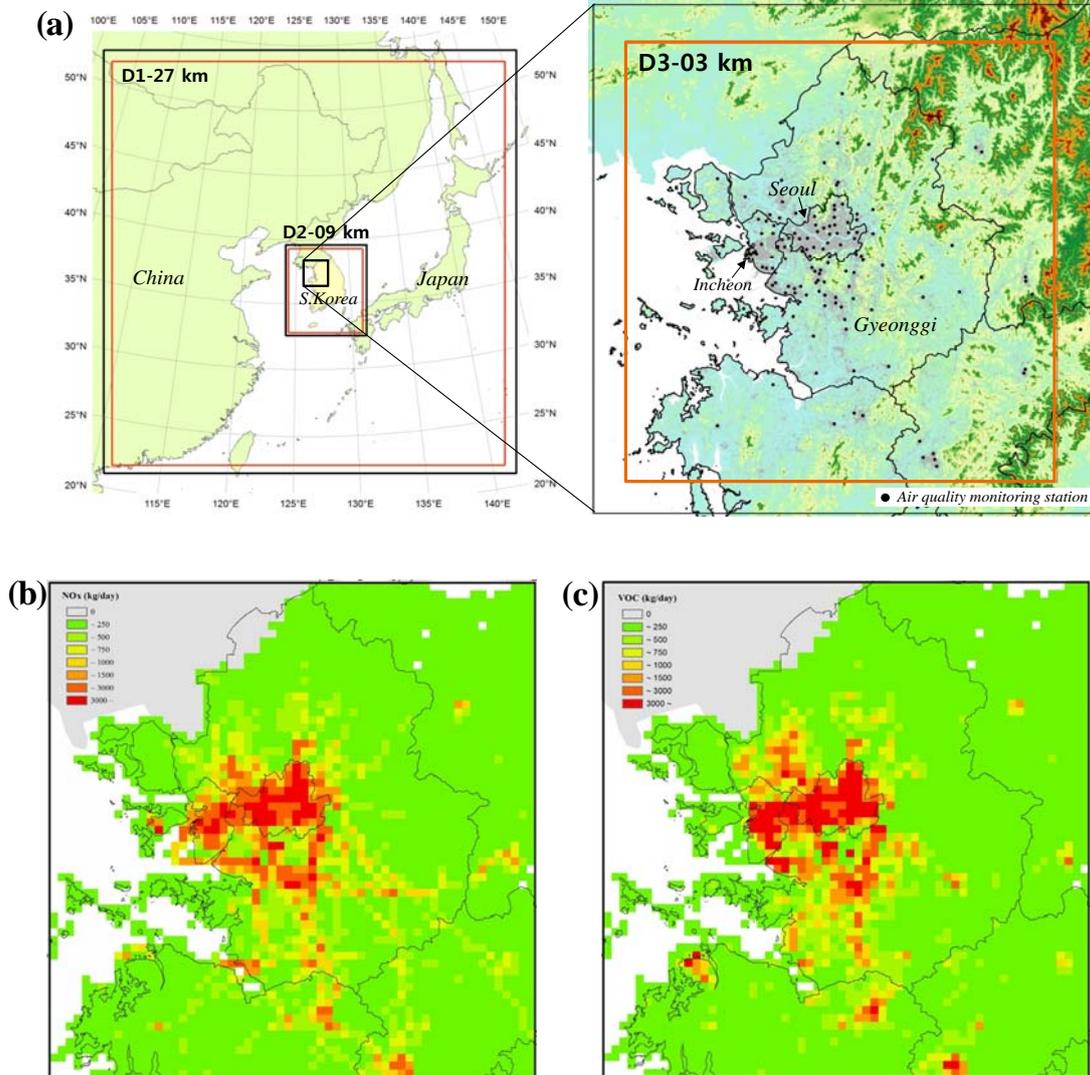


Fig. 1. (a) The WRF-SMOKE-CMAQ modeling domains and location of air quality monitoring stations within the 3-km domain and spatial distribution of (b) NO_x, (c) VOC land-based emissions.

WRF(Weather Research Forecast)를 통해 생성되었으며 해당 도메인 역시 CAPMOS의 기상모델링 도메인 정보와 일치한다. 모델링 결과 분석의 주 대상이 되는 수도권 도메인의 경우 다양한 배출원 분포와 특징 있는 지리적 환경(바다, 복잡해안선, 산지)을 가지는 영역으로 서울과 경기도 지역을 충분히 포함한다. 3 km 수평해상도를 가지며 WRF는 70×73 격자, CMAQ은 60×63 격자로 구성되어 있다.

수도권 모델링 도메인 내의 대기오염물질 배출량 분포는 Fig. 1 (b)와 (c)에 제시되었다. 서울, 인천과 함께 경기남부에 위치한 도시(수원, 용인, 안산 등)와 주요 고속도로를 따라 1.5 ton day⁻¹ 이상의 많은 NO_x, VOC 오염물질 배출분포가 뚜렷하다. NIER(2010)의 대기오염물질 배출량조사에 따르면 인위적 배출에 의한 VOC/NO_x 배출량 비는 서울, 인천, 경기 각각에 대해 1.13, 1.18, 1.02로 NO_x 배출량이 VOC 배출량과 비슷하거나

Table 1. Statistical summary of observed ozone and meteorological conditions during CMAQ modeling periods

Season	CMAQ modeling periods (Analysis periods)	Observed daily max. ozone concentrations ^a (mean±S.D., ppb)	Daily max. temperature ^b (mean±S.D., °C)	Number of precipitation day /average of precipitation (mm) ^b
Spring	2012/03/31 - 2012/04/22 (2012/04/03 - 2012/04/22)	52.3±7.1	16.2±4.6	5/17.0
Summer	2012/06/08 - 2012/06/30 (2012/06/11 - 2012/06/30)	69.6±8.7	29.7±2.3	4/22.5
Autumn	2012/10/29 - 2012/11/20 (2012/11/01 - 2012/11/20)	27.9±4.4	10.6±2.9	10/6.5
Winter	2012/01/08 - 2012/01/30 (2012/01/11 - 2012/01/30)	25.9±4.6	1.7±4.5	7/0.3

^a130 sites in the CMAQ domain³^bSeoul ASOS station

VOC 배출량의 약 85~88% 수준인 것으로 조사되었다.

2.2. 모델링 기간

모델링 기간은 CMAQ 모델의 SAPRC99와 CB05 화학메커니즘의 평균적인 오존 모사능력 비교를 위해 2012년 사계절을 대상으로 각각 20일씩 선정하였다. 계절별 대표기간을 선정하기 위해 수도권 지역 내 위치한 ASOS(Automatic Synoptic Observation System) 15개 지점에서 관측된 기상자료와 도시대기질측정망 130개 지점에서 수집된 대기오염물질 농도 자료를 분석하였다. 장마, 태풍, 황사현상과 같은 비정기적이며 단기간에 오존농도 변화가 크게 나타날 수 있는 기간은 제외하였으며, 계절의 오존농도 특징이 뚜렷하면서도 다양한 기상현상으로 인한 농도변화가 포함되는 기간을 선정하였다.

Table 1은 각 계절별 선정된 CMAQ 모델링 기간을 제시한 것으로 기간 중 측정된 오존농도와 기온 및 강수량 정보를 간략히 보여준다. 일 최고 1시간 평균 오존농도의 경우, 봄과 여름에 50 ppb 이상의 상대적 고농도가 나타났고 특히, 여름 사례기간에는 오존주의보(120 ppb h⁻¹ 이상) 발령일수가 4일(6/18, 6/21, 6/23, 6/24), 대기환경 기준 초과일(1시간 평균 기준 100 ppb 이상)은 15일로 고농도현상이 빈번하였다. 이는 높은 평균기온과 적은 강수현상의 영향으로 설명할 수 있다.

2.3. 모델구성과 실험설계

CMAQ(ver. 5.0.1)은 미국 EPA에서 개발한 3차원 광화학 수송 모델로 대류권 내 오존, 미세먼지를 포함한 주요 가스상/입자상 대기오염물질을 모의할 수 있으며 다양한 규모(multi-scale)에 대한 동시 수치모의가 가능하다(Byun and Ching, 1999; <http://cmascen.org/cmaq/>). 본 연구에서 수행한 CMAQ 모델링의 초기/경계조건은 CMAQ 모델 내 제공되는 대기오염물질 프로파일 자료(Stockwell et al., 1990)와 상위 도메인의 모델 결과를 입력으로 하는 ICON/BCON 프로세스를 통해 생성하였다. CMAQ 모델의 기상입력자료는 WRF(Weather Research Forecast ver. 3.5) 모델링을 통해 계산된 시간/격자별 기상자료(기온, 풍향, 풍속, U, V, PBL, 등)를 전처리 프로세스인 MCIP(Meteorology-Chemistry Interface Processor ver. 4.1)에 입력하여 생성하였으며, 상세한 WRF 모델링 구성은 NIER(2014)에 기술되어 있다.

인위적 배출량 처리는 SMOKE(Sparse Matrix Operator Kernel Emissions) 모델을 이용하였으며, 점, 선, 면 배출량은 국내에 대하여는 국립환경과학원 제공의 CAPSS(Clean Air Policy Support System)를, 중국 등 국외에 대하여는 MICS-Asia(Model Inter-Comparison Study for Asia) 자료를 이용하였다. CAPSS 자료의 경우 SMOKE 입력 형식으로서의 전환을 위하여 KEI-EIPS(Korea Environment Institute-Emissions Inventory

Preprocessing System; KEI, 2006)을 활용하였으며, 국내 SCC(Source Classification Code)와 EPA의 SCC를 매핑하여 시·공간 할당 및 화학종 분류를 수행하였다. 자연 배출량의 산정을 위하여는 MEGAN(Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature; Guenther et al., 2006) 모델을 이용하였다. 식생분포, 식종, 배출계수 등이 입력자료로 이용되었으며, 인위적, 자연적 배출량은 SAPRC99 화학 메커니즘에 대하여 화학종을 재분류하였다. 자연배출량 산정과 점오염원에 수직 할당을 위해 기상자료가 입력되었다. 상기 제시한 배출량 입력 자료 생성 방법에 대한 자세한 내용은 KEI(2006)에 제시되어 있다.

본 연구의 목적인 CMAQ 모델의 화학메커니즘 선택에 따른 오존농도의 차이를 분석하기 위해 SAPRC99와 CB05를 각각 적용하여 CMAQ 모델링 실험(EXP-SP99와 EXP-CB05)을 구성하였다. EXP-SP99는 SAPRC99 화학메커니즘이 적용된 실험으로 'saprc99_ae5_aq' 옵션을 선택하였고, EXP-CB05는 CB05 화학메커니즘이 적용된 실험으로 톨루엔 관련 화학메커니즘이 업데이트된 'cb05tucl_ae5_aq'를 선택하였다. 'saprc99_ae5_aq'는 88개 물질에 대해 224개의 반응식을 고려하고 있으며 'cb05tucl_ae5_aq'는 72개 물질에 대해 187개의 반응식을 포함한다. 가스상 물질 화학메커니즘 외 CMAQ 모델링에 필요한 기타 모듈들에 대한 옵션은 NIER (2014) 연구결과에 제시되어 있다.

3. CMAQ 모델링 결과 비교

3.1. 계절별 평균 오존농도

본 연구에서 설정한 두 실험(EXP-SP99와 EXP-CB05)을 통해 얻어진 수도권 도메인의 계절별 오존농도(1시간 평균값) 모델링 결과를 정량적으로 비교 평가하였다. 모델값의 정확도 평가를 위해 주요 통계지표(Mean Bias, MB; Mean Absolute Gross Error, MAGE; Mean Normalized Bias, MNB; Mean Normalized Gross Error, MNGE; Unpaired Peak prediction Accuracy, UPA)(Yu et al., 2006; Zhang et al., 2006)를 이용하였고 검증결과를 Table 2에 나타내었다.

두 실험의 CMAQ 모델링 결과는 계절에 따라 다소의 차이는 있지만 측정값과 비교적 잘 일치함을 대부분의

통계지표 검증에서 볼 수 있다(실험별 MB: -3.3 ppb ~ +6.0 ppb 범위). Fig. 2에 제시된 1시간 평균 모델값과 측정값의 시계열변화에서도 모델이 측정 농도 변화를 잘 재현함을 알 수 있다. 여름을 제외하고는 두 실험 모두 모델값이 측정값보다 높게 나타났고(양의 편향(MB)) 특히 겨울에 뚜렷하였다. 겨울의 오존농도 과대모의 경향은 야간의 지상 저농도를 모델이 적절히 계산하지 못한 결과로 판단되며 기상모델링을 통해 얻어진 야간의 풍속 환경과 대기경계층 높이에 대한 불확실성이 주요 원인으로 고려될 수 있다(Eder et al., 2006; Pérez et al., 2006; Sokhi et al., 2006). 야간의 강한 풍속은 연직 혼합과정을 통해 지표부근 오존농도를 상승시킬 수 있는데(Oh and Kim, 2004) 겨울철 WRF 모델링 결과에서 야간시간대(00~05 LST) 10 m 풍속은 관측치와 비교해 비교적 큰 차이로 높게 나타났다(MB: +0.5 ms^{-1} , MAGE: +1.0 ms^{-1}). 하지만 평균적 농도수준이 높고(여름 관측평균 오존농도 37.6 ppb), 오존 고농도가 빈번히 관측되었던 여름은 EXP-SP99와 EXP-CB05 모두 음의 MB를 나타내었고 특히, EXP-CB05에서 과소모의 경향이 뚜렷하였다(1시간 평균 오존농도 MB: EXP-SP99: -0.2 ppb, EXP-CB05: -3.3 ppb).

Table 2에 제시된 EXP-SP99와 EXP-CB05 실험결과의 비교에서 SAPRC99 화학메커니즘의 적용이 CB05와 비교해 오존농도를 높게 계산함을 알 수 있는데 이러한 경향은 기존 선행연구 결과와 유사하다(Yu et al., 2010; Luecken et al., 2008; Pan et al., 2008). SAPRC99는 NO에서 NO₂로의 전환되는 반응률(reaction rates)을 CB05보다 큰 값으로 가정하므로(예로, O+NO→NO₂ 반응률: 2.48E-12 s⁻¹(SAPRC99), 1.66E-12 s⁻¹(CB05), 조건: 298 K, 1 기압) 오존 생성에 유리하며, 특히 NOx 배출이 많고 VOC/NOx가 낮은 도시 지역에서 VOC와 OH와의 반응을 CB05와 비교해 더 활발하게 고려한다(Yu et al., 2010). 인위적 배출량의 VOC/NOx 비가 매우 낮은 수도권 대도시(서울, 인천, 수원 등)의 경우 SAPRC99 화학메커니즘의 적용이 CB05와 비교해 CMAQ의 오존농도를 높일 수 있다.

두 메커니즘 적용에 따른 오존 모델링 결과의 차이는 계절별 다소 다르게 나타났다. 봄의 경우, EXP-SP99가 EXP-CB05 보다 평균 0.8 ppb 높게 계산되었고 측정값과의 편향과 오차가 두 실험간 비슷하였다. 여름의 경우

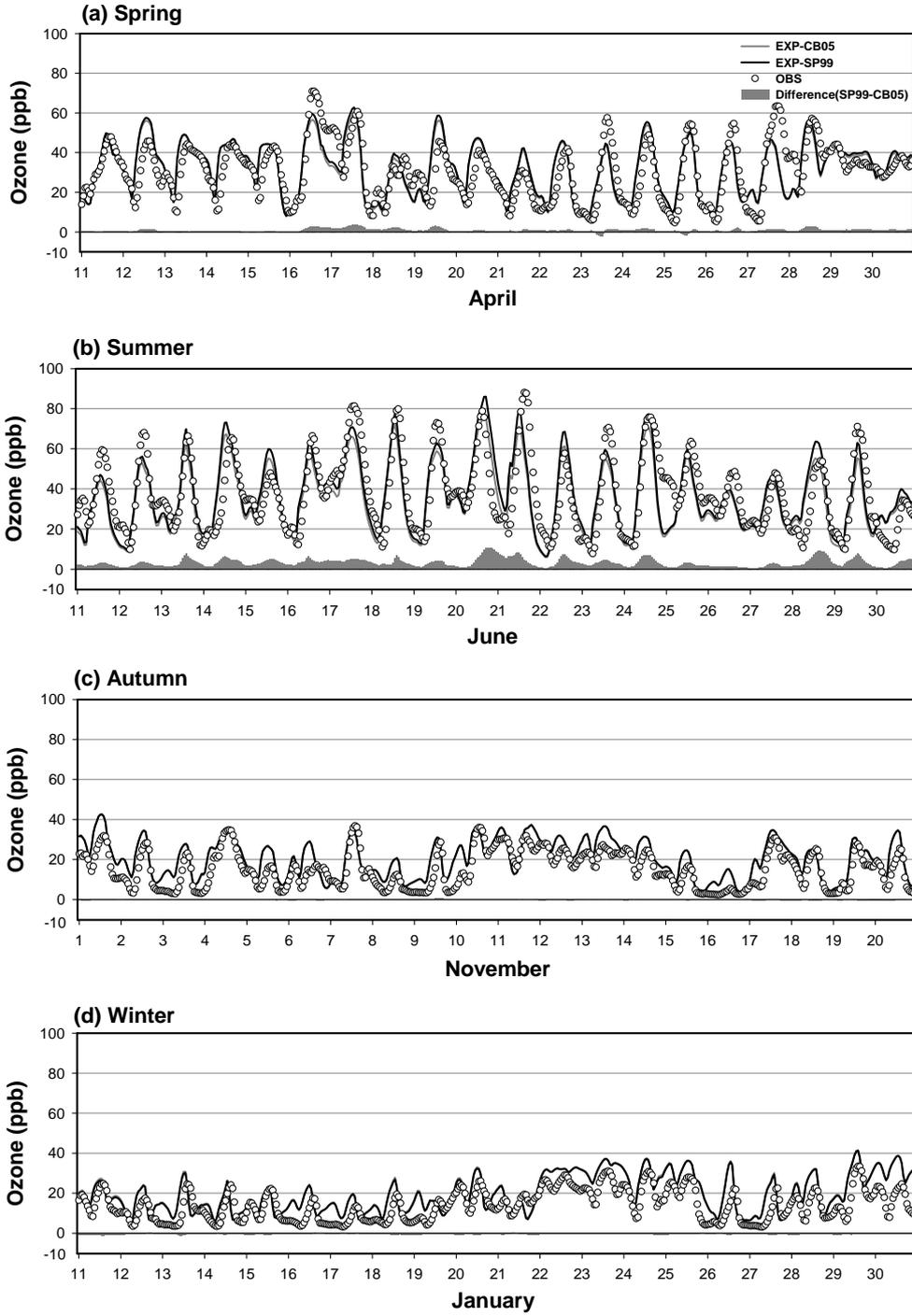


Fig. 2. Time series plots of observed and CMAQ predicted (EXP-SP99 and EXP-CB05) ozone concentrations for four seasons.

Table 2. Statistical evaluation between the observed and predicted average 1-h O₃ concentrations for EXP-99 and EXP-CB05 during four seasons

	Spring			Summer			Autumn			Winter		
	EXP-SP99	EXP-CB05										
Mean Obs. ^a	30.7 ± 5.7	30.7 ± 5.7	37.6 ± 5.0	37.6 ± 5.0	15.0 ± 3.4	15.0 ± 3.4	15.0 ± 3.4	15.0 ± 3.4	13.9 ± 3.9	13.9 ± 3.9	13.9 ± 3.9	13.9 ± 3.9
Mean Pre. ^b	32.2 ± 7.0	31.4 ± 6.9	37.4 ± 4.9	34.2 ± 4.9	20.3 ± 6.2	20.3 ± 6.2	20.3 ± 6.2	20.4 ± 6.2	19.5 ± 6.6	19.5 ± 6.6	19.9 ± 6.7	19.9 ± 6.7
MB ^c	1.5 ± 6.3	0.7 ± 6.2	-0.2 ± 5.9	-3.3 ± 5.9	5.3 ± 5.2	5.3 ± 5.2	5.3 ± 5.2	5.3 ± 5.2	5.7 ± 5.5	5.7 ± 5.5	6.0 ± 5.6	6.0 ± 5.6
MAGE ^d	12.0 ± 2.0	11.9 ± 2.0	14.1 ± 1.8	13.8 ± 2.0	9.1 ± 3.2	9.1 ± 3.2	9.1 ± 3.2	9.1 ± 3.3	9.8 ± 3.4	9.8 ± 3.4	10.0 ± 3.5	10.0 ± 3.5
MNB ^e	48.5 ± 58.0	44.6 ± 57.0	28.7 ± 43.6	17.1 ± 39.9	106.8 ± 135.1	106.8 ± 135.1	107.7 ± 136.1	107.7 ± 136.1	123.3 ± 124.2	123.3 ± 124.2	128.1 ± 126.5	128.1 ± 126.5
MNGE ^f	84.6 ± 47.1	82.5 ± 45.6	64.5 ± 34.7	59.4 ± 29.9	149.3 ± 118.6	149.3 ± 118.6	150.0 ± 119.5	150.0 ± 119.5	161.8 ± 109.6	161.8 ± 109.6	165.6 ± 112.0	165.6 ± 112.0
UPA ^g	-12.8 ± 15.3	-18.0 ± 14.5	2.7 ± 20.0	-9.3 ± 17.2	8.5 ± 14.7	8.5 ± 14.7	7.9 ± 14.7	7.9 ± 14.7	22.3 ± 18.9	22.3 ± 18.9	23.3 ± 19.0	23.3 ± 19.0
Total ^h	59,751(98.0%)	59,751(98.0%)	59,300(98.0%)	59,300(98.0%)	59,163(97.8%)	59,163(97.8%)	59,163(97.8%)	59,163(97.8%)	59,704(97.9%)	59,704(97.9%)	59,704(97.9%)	59,704(97.9%)

^a Mean of observed O₃ concentrations (ppb) = $\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N Obs$

^b Mean of predicted O₃ concentrations (ppb) = $\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N Model$

^c Mean bias (ppb) = $\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (Model - Obs)$

^d Mean absolute gross error (ppb) = $\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N |Model - Obs|$

^e Mean normalized bias (%) = $\sum_{i=1}^N \frac{(Model - Obs)}{Obs} \times 100\%$

^f Mean normalized gross error (%) = $\sum_{i=1}^N \frac{|Model - Obs|}{Obs} \times 100\%$

^g Unpaired peak prediction accuracy (%) = $\frac{Model_{max} - Obs_{max}}{Obs_{max}} \times 100\%$

^h Number of data (*Obs* and *Model*) are observed and simulated data, respectively, and *N* is the total number of data.

두 실험간 계산된 오존농도 차이가 가장 뚜렷한 시기로 3.2 ppb의 큰 차이를 보였다. EXP-SP99가 EXP-CB05와 비교해 측정값과 비슷하며 적은 평균 MB값이 나타났으나 오차 통계지표에서는 반대의 경향을 보였다(MNBE, MNGE에서 EXP-SP99가 EXP-CB05와 비교해 3~11% 높음). 이러한 결과는 특정 화학메커니즘의 선택에 대한 모델링 적합도 평가가 검증 통계지표에 따라 달라 질 수 있음을 보여준다. 가을은 EXP-SP99와 EXP-CB05가 유사한 농도수준을 모의하였고(0.1 ppb 차이), 통계검증 결과도 두 실험간 차이가 비슷하였다(MB 1 ppb, 오차 통계지표 1% 범위 이내). 평균 오존농

도가 가장 낮은 겨울은 봄, 여름과는 반대로 EXP-SP99가 EXP-CB05보다 0.4 ppb 낮게 모의하였고 MNBE와 MNGE에서도 약 2~4% 정도 낮은 오차를 보여 SAPRC99 화학메커니즘이 측정값의 변화를 상대적으로 잘 재현하였음을 알 수 있다.

3.2. 일 최고 1시간/8시간 평균 오존농도

Fig. 3은 수도권 지역 내 계절별 측정된 일 최고 1시간 평균 오존농도와 해당 모델격자에서의 계산된 농도를 두 실험(EXP-SP99, EXP-CB05)간 비교한 산포도이다. 전체 계절 나타난 측정값과 모델값 간의 상관도(Pearson 상관계수, r)는 0.40~0.67 수준이었다. 봄과 여름의 경

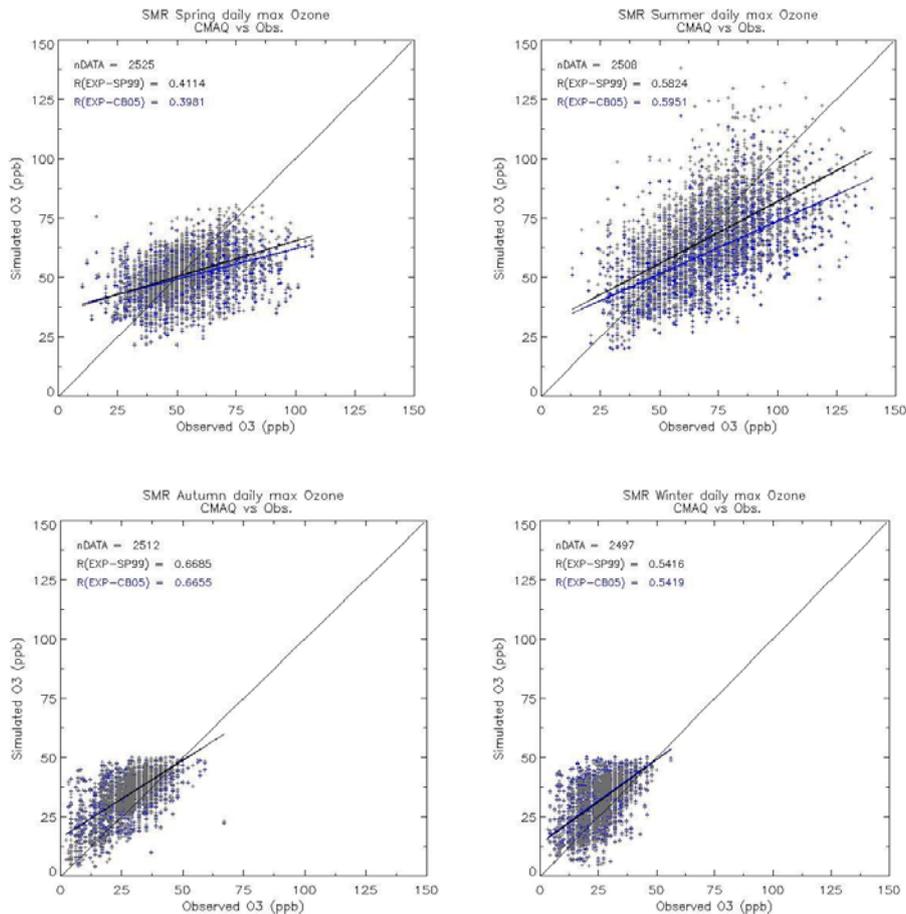


Fig. 3. Scatter plots of daily max. 1-hr averaged ozone concentrations for all AQM stations in the 3 km domain during four seasons (gray and blue dots indicate EXP-SP99, EXP-CB05, respectively).

우, 두 실험 모두 비교적 높은 농도값(약 50 ppb 이상)에 대한 모델의 과소모의 경향이 뚜렷하고 그 정도는 EXP-CB05가 EXP-SP99보다 더 크게 나타났다. 반면 가을과 겨울은 저농도 구간(약 0~30 ppb)에 대한 과대모의 경향이 크게 나타났으나 두 실험간 차이는 적었다. 일 최고 오존농도에 대한 화학메커니즘별 차이는 Table 2의 통계지표 중 UPA 값에서 알 수 있다. UPA 값은 모델링영역 내 최고농도에 대한 모델의 모시능력을 평가할 수 있는 수치이다. 봄과 여름에 대해 CMAQ 모델이 일 최고 오존농도를 과소모의 하는 경향(음의 UPA 값)을 보였고(여름 EXP-SP99만 제외) EXP-CB05가 EXP-SP99보다 봄과 여름에 대해 각각 6%, 12% 정도 더 낮은 UPA 값을 보여 과소모의 경향이 더 크게 나타났다.

일 최고 8시간 평균 오존농도에 대한 평가에서도 계절별 오존 농도수준에 따라 과대/과소모의 경향이 다르게

나타났다. Fig. 4는 일 최고 8시간 평균 오존농도 구간별 EXP-SP99와 EXP-CB05의 MNB 값을 계절별로 제시한 것이다. 오존농도 구간은 측정된 일 최고 8시간 평균 농도를 기준으로 40 ppb 이하, 40-60 ppb, 60-75 ppb, 75 ppb 초과로 구분하였다. 사계절 공통적으로 40 ppb 이하의 저농도에서 CMAQ 모델이 측정값보다 과대모의 하는 경향(MNB 31~54%)을 보였고, 농도수준이 높아질수록 과소모의 하는 경향(최대 -36%, EXP-CB05, 봄사례)이 뚜렷하였다. 이러한 저농도/고농도 오존구간에서 나타난 CMAQ 모델의 과대/과소 모의하는 경향은 여러 CMAQ 모델평가 연구에서 이미 제시된 바 있다 (Appel et al., 2007; Tong et al., 2006).

오존농도 구간에 따른 CMAQ 모델의 과소/과대모의 경향과 함께 EXP-SP99와 EXP-CB05 실험에 따른 MNB 값도 계절과 농도수준에 따라 다르게 나타났다.

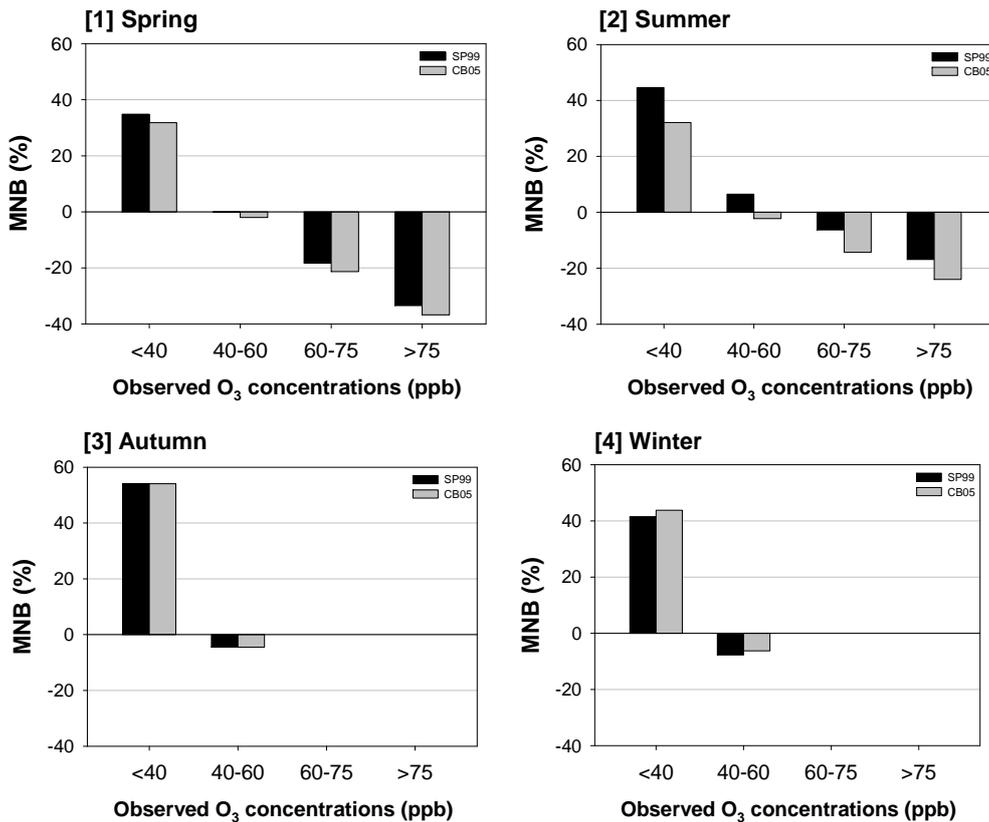


Fig. 4. The MNB(mean normalized bias) values of EXP-SP99 and EXP-CB05 as a function of the observed daily max. 8-hr averaged O₃ concentration ranges during four seasons.

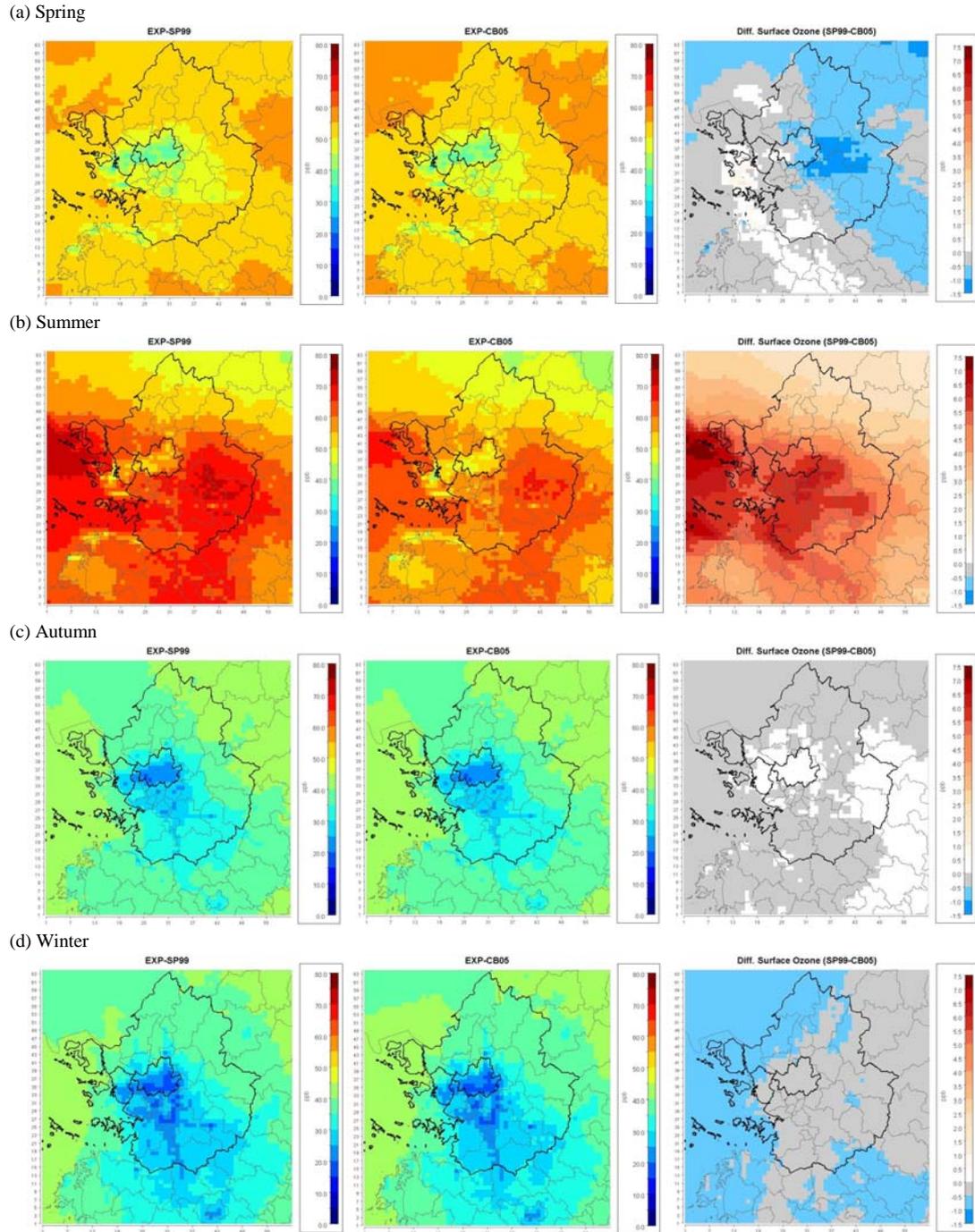


Fig. 5. Horizontal ozone distributions of EXP-SP99 (left), EXP-CB05 (middle) and differences between EXP-SP99 and EXP-CB05 (right) at 1500 LST during four seasons. Positive difference (orange/red color) means that ozone concentrations of EXP-SP99 are higher than those of EXP-CB05.

여름사례의 경우, CMAQ 과대모의 구간(< 40 ppb)에서는 EXP-CB05 보다 EXP-SP99의 MNB가 크게 나타났고, 과소모의 구간(> 60 ppb)에서는 EXP-SP99에서 오존농도가 상대적으로 높게 계산되어 MNB 값이 적었다. 반면 겨울사례는 EXP-CB05 보다 EXP-SP99에서 오존농도가 낮게 계산되었고 여름 사례와 비교해 농도 구간별 MNB 값의 차이도 반대 경향을 보였다. 이는 SAPRC99와 CB05가 기온/기압 조건에 따라 다른 반응상수를 제공하기 때문에 모델링 결과가 다르게 나타날 수 있음을 보여준다.

3.3. 오존농도의 수평분포 비교

Fig. 5는 EXP-SP99와 EXP-CB05 실험에서 계산된 계절별 평균 오존농도와 두 실험의 공간적 차이를 나타낸 것으로, 일반적으로 광화학반응이 활발하고 오존농도가 높게 나타나는 1500 LST의 수평분포 차이를 제시하였다. 봄은 EXP-CB05와 EXP-SP99가 비슷한 수평 농도분포(NO_x 배출이 큰 서울지역의 낮은 농도 분포)를 보였고 오존농도 차이(EXP-SP99에서 EXP-CB05을 뺀 값)가 ± 1.3 ppb 이내로 큰 차이를 볼 수 없다. 다만 서울의 동쪽 일부지역(남양주, 광주, 성남 등)에서 EXP-CB05가 EXP-SP99보다 약 1 ppb 이상 오존농도를 높게 모의 하는 결과를 볼 수 있다. 여름은 EXP-SP99와 EXP-CB05 모두 경기 남서부지역과 서해 앞바다에서 고농도가 나타나는 비슷한 분포를 보였으나 두 실험 간의 농도차이는 타 계절과 비교해 뚜렷하였다. 특히 한강 이남 수도권 남부지역과 인천 앞 서해상에서 뚜렷한데(최대 +7.1 ppb) 이는 EXP-SP99가 도시 오염공기괴의 풍하지역으로의 이동과정에서 오존의 광화학적 생성이 더 활발하고 NO에 배출에 의한 오존 소멸이 없는 해상 위에서 보다 많은 오존을 축적함을 의미한다.

상대적으로 오존농도의 수준이 낮은 가을과 겨울에서는 SAPRC99와 CB05 적용에 따른 CMAQ 모델링 결과의 차이가 거의 없어 화학메커니즘 선택에 따른 모델의 민감도는 크지 않다(가을: -0.2 ~ +0.2 ppb, 겨울: -0.7 ~ -0.1 ppb). 하지만 겨울은 수도권 전 지역에서 EXP-CB05가 EXP-SP99보다 오존농도를 높게 모의하는 경향이 약하게 나타났다. 계절별 두 실험간 지역적 분포 차이에 대한 보다 정확한 해석을 위해서는 지역의 배출량과 기상(특히, 바람)에 대한 자세한 분석이 필요하

고, IPR(Integrated Process Rate), IRR(Integrated Reaction Rate) 분석을 통한 오존 생성/수송/침적 및 광화학반응 과정에 대한 상세 정보가 추가로 요구된다.

4. 결론

본 연구에서는 CMAQ 모델을 이용하여 수도권지역을 대상으로 계절별 SAPRC99와 CB05 화학메커니즘 적용에 따른 오존농도의 차이를 정량적으로 비교하였다. 두 실험(EXP-SP99와 EXP-CB05)간 평균 농도차이는 고농도 오존현상이 빈번한 여름철에 가장 뚜렷하였고, SAPRC99를 적용한 모델결과가 CB05를 적용한 것 보다 평균적으로 약 3 ppb 정도 오존농도가 높았다. 이러한 여름철 SAPRC99의 고농도 모의경향은 일 최고 농도에 대한 비교에서도 유사하게 나타났다. 특히 오존농도 구간별 화학메커니즘 적용 결과 비교에서는 SAPRC99 화학메커니즘의 적용이 오존 고농도 현상에 대한 CMAQ 모델의 과소모의 경향을 보완해줄 수 있음을 보여 주었다. 공간적으로는 오존의 광화학 생성이 활발한 1500 LST에 수도권 남부지역과 인천 앞바다 해상에서 SAPRC99가 CB05와 비교하여 최대 7 ppb까지 오존농도를 높게 모의하였다. 여름을 제외한 나머지 계절에 대해서는 SAPRC99와 CB05간 오존농도 차이가 적어 화학메커니즘 선택이 오존농도 결과 해석에 중요한 변수로 작용하지는 못할 것으로 판단된다.

CMAQ 모델의 화학메커니즘 선택에 따른 다양한 계절별/지역적 오존농도 차이는 지역 간의 오존/전구물질 농도 수준 차이, VOC/ NO_x 배출의 차이, 기상조건의 차이 등이 원인이 될 수 있다. 따라서 연구목적, 모델링기간 및 대상지역을 고려한 화학메커니즘의 적절한 선택은 오존 모델링의 정확도를 높일 수 있을 것으로 판단된다. 본 연구에서 제시한 계절별 SAPRC99, CB05 화학메커니즘에 따른 CMAQ 모델의 수도권 오존예측 특성은 국내 대기질 진단 및 개선과 관련된 대기질 모델링의 올바른 결과해석을 위한 참고자료로 활용될 수 있으리라 기대한다.

감사의 글

이 연구는 국립환경과학원 연구용역사업("대기질 모

텔링 정확도 향상을 위한 최적화 방안 연구”의 지원으로 수행되었습니다.

REFERENCES

- Appel, K. W., Gilliland, A. B., Sarwar, G., Cilliam, R. C., 2007, Evaluation of the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model version 4.5: Sensitivities impacting model performance Part I-Ozone, *Atmos. Environ.*, 41, 9603-9615.
- Cater, W. P. L., 2000, Documentation of the SAPRC-99 chemical mechanism for VOC reactivity assessment, Final Report to California Air Resources Board.
- Cater, W. P. L., 2007, Development of the SAPRC-07 chemical mechanism and updated ozone reactivity scales, Final Report to the California Air Resources Board Contract No. 03-318.
- Chen, S., Ren, X., Mao, J., Chen, Z., Brune, W. H., Lefer, B., Rappenglück, B., Flynn, J., Olson, J., Crawford, J. H., 2010, A comparison of chemical mechanisms based on TRAMP-2006 field data, *Atmos. Environ.*, 44, 4116-4125.
- Dodge, M. C., 2000, Chemical oxidant mechanisms for air quality modeling: critical review, *Atmos. Environ.*, 34, 2103-2130.
- Eder, B., Kang, D., Mathur, R., Yu, S., Schere, K., 2006, An operational evaluation of the Eta-CMAQ air quality forecast model, *Atmos. Environ.*, 40, 4894-4905.
- Faraji, M., Kimura, Y., McDonald-Buller, E., Allen, D., 2008, Comparison of the carbon bond and SAPRC photochemical mechanisms under conditions relevant to southeast Texas, *Atmos. Environ.*, 42, 5821-5836.
- Gilliland, A. B., Hogrefe, C., Pinder, R. W., Godowitch, J. M., Foley, K. L., Rao, S. T., 2008, Dynamic evaluation of regional air quality models: Assessing changes in O₃ stemming from changes in emissions and meteorology, *Atmos. Environ.*, 42, 5110-5123.
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P., Geron, C., 2006, Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3181-3210.
- Korea Environment Institute (KEI), 2006, Air Quality Modeling System I, KEI 2006 RE-11.
- Korea Environment Institute (KEI), 2007, Air Quality Modeling System II, KEI 2007 RE-19.
- Luecken, D. J., Phillips, S., Sarwar, G., Jang, C., 2008, Effects of using the CB05 vs. SAPRC99 vs. CB4 chemical mechanism on model predictions: Ozone and gas-phase photochemical precursor concentrations, *Atmos. Environ.*, 42, 5805-5820.
- National Institute of Environmental Research (NIER), 2010, National air pollutants emission 2008.
- National Institute of Environmental Research (NIER), 2014, Studies on the optimization method for improving the accuracy of air quality modeling. (in Korean with English Abstract)
- National Research Council (NRC), 1991, Rethinking the ozone problem in urban and regional air pollution, National Academy Press, Washington, D.C.
- Oh, I. B., Kim, Y. K., 2004, The influence of long-range transport on springtime nocturnal ozone enhancement in Seoul, *J. Kor. Soc. Atmos. Environ.*, 20(4), 503-514. (in Korean with English Abstract)
- Pan, Y., Zhang, Y., Sarwar, G., 2008, Impact of gas-phase chemistry on WRF/CHEM predictions of O₃ and PM_{2.5}: Mechanism implementation and comparative evaluation, the 7th Annual CMAS Conference, Chapel Hill, NC, 10, 6-8.
- Pérez, C., Jiménez, P., Jorban, O., Sicard, M., Baldasano, J. M., 2006, Influence of the PBL scheme on high-resolution photochemical simulations in an urban coastal area over the Western Mediterranean, *Atmos. Environ.*, 40, 5274-5297.
- Sokhi, R. S., San José, R., Kitwiroon, N., Fragkoua, E., Pérez, J. L., Middleton, D. R., 2006, Prediction of ozone levels in London using the MM5-CMAQ modelling system, *Environ. Model. Softw.*, 21, 566-576.
- Stockwell, W. R., Middleton, P., Chang, J. S., Tang, X., 1990, The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling, *J. Geophys. Res.*, 95, 16343-16347.
- Sung, K. H., 2007, Sensitivity analysis of air quality modeling according to the application of photochemical reaction mechanism, Thesis for the degree of master, Pusan National University. (in Korean with English Abstract)

- Tong, D. Q., Mauzerall, D. L., 2006, Spatial variability of summertime tropospheric ozone over the continental United States: Implications of an evaluation of the CMAQ model, *Atmos. Environ.*, 40, 3041-3056.
- Yarwood, G., Rao, S., Yoche, M., Whitten, G. Z., 2005, Updates to the carbon bond mechanism: CB05, Final Report to the US EPA, RT-0400675.
- Yu, S., Eder, B., Dennis, R., Chu, S., Schwartz, S. E., 2006, New unbiased symmetric metrics for evaluation of air quality models, *Atmos. Sci. Let.*, 7, 26-34.
- Yu S., Mathur, R., Sarwar, G., Kang, D., Tong, D., Poulot, G., Pleim, J., 2010, Eta-CMAQ air quality forecasts for O₃ and related species using three different photochemical mechanisms (CB4, CB05, SAPRC-99): Comparisons with measurements during the 2004 ICARTT study, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 3001-3025.
- Zhang, Y., Liu, P., Pun, B., Seigneur, C., 2006, A comprehensive performance evaluation of MM5-CMAQ for the Summer 1999 Southern Oxidants Study episode—Part I: Evaluation protocols, data-bases, and meteorological predictions, *Atmos. Environ.*, 40, 4825-4838.