

기체상 질소산화물을 포함한 2012~2014년도 대한민국 질소수지 연구

이한욱 · 어세연 · 박재우*

한양대학교 건설환경공학과

Nitrogen Budget of South Korea Including Gaseous Nitrogen Oxides from 2012 to 2014

Hanuk Lee · Seyeon Oa · Jae-Woo Park*

Department of Civil and Environmental Engineering, Hanyang University

ABSTRACT

This study estimated the nitrogen budget, including gaseous nitrogen oxides (NO_x), of South Korea in 2012~2014. The nitrogen budget was classified into three categories: agricultural and livestock, forest, and city. To estimate the nitrogen budget, several input and output parameters were investigated, including deposition, fixation, irrigation, chemical fertilizer use, compost, fuel, denitrification, volatilization, runoff, crop uptake, leaching, and NO_x emissions. The annual nitrogen inputs from 2012 to 2014 were 6,202,828, 6,137,708, and 6,022,379 ton/yr, respectively. The corresponding annual nitrogen outputs were 1,393,763, 1,380,406, and 1,360,819 ton/yr, respectively, signifying a slight decrease from 2012 to 2014. NO_x was the parameter contributing to the nitrogen budget to the greatest extent. The annual ratios of NO_x emissions by vehicles, power plants, and businesses were 0.31, 0.31, and 0.30 in 2012, 2013, and 2014, respectively. A change in government policy that prohibited the disposal of livestock manure and sewage sludge in the ocean from 2012 affected nitrogen budget profile. As a result, the ocean disposal ratio completely diminished, which differs from previous studies.

Key words : Nitrogen, Nitrogen budget, Nitrogen oxides, South Korea

1. 서 론

질소는 질소고정(Nitrogen fixation), 무기화(Nitrogen mineralization), 질산화(Nitrification), 질소동화(Nitrogen assimilation), 탈질화(Denitrification)의 과정을 통하여 질소 기체(N₂), 암모늄 이온(NH₄⁺), 암모니아(NH₃), 아질산성 질소(NO₂⁻) 등의 형태로 순환한다(Aneja et al., 2012; Mosier, 2002; Rosswall and Paustian, 1984; Brentrup et al., 2000). 하지만 최근 질소질 화학비료의 과잉사용으로 인한 토양으로의 질소화합물의 유입, 화석연료 소비에 따른 공장 등의 고정 발생원, 자동차 등의 이동 발생원으로부터 발생하는 질소산화물의 유입 등에 의하여 대기오염이 심화되어 자연계의 질소 순환은 크게 변화하고 있는 실정이다(Candfield et al, 2010; Vitousek et al, 1997; Scolow, 1999; Kim and Dale, 2008). 과량의 질소질 화

학비료의 투입은 잔여분의 토양 집적 또는 수계 유출 등으로 인하여 부영양화를 유발할 수 있으며, 대기로 배출되는 아산화 질소(N₂O)는 지구온난화에 중요한 요인으로 작용될 수 있다(Goolsby et al, 2001; EPA Inventory of U.S.).

국내 질소 유출입량을 결정하는 방법으로는 하천 등으로부터 바다로 유출되는 유량 및 농도를 실측하여 산출하는 방법과 환경부의 원단위법을 이용하여 배출부하량을 산정하는 방법이 있으나, 강우, 토지이용도, 시비시기 등으로 인하여 지역과 유역에 따라 질소 배출의 편차가 증대되어 합리적이고 세부적인 배출부하 특성에 대한 정량화가 요구되고 있다(Choi and Kim, 2004). 물질수지분석 방법은 합리적인 질소유출입을 분석하기 위하여 전세계적으로 많이 사용되고 있으며, 분석하고자 하는 공간적 영역의 설정에 따라 다양한 질소수지분석이 이루어지고 있

*Corresponding author : jaewoopark@hanyang.ac.kr

Received : 2017. 7. 3 Reviewed : 2017. 8. 16 Accepted : 2017. 8. 22

Discussion until : 2017. 10. 31

다(Xing and Zhu, 2002; Kang et al, 2006). 이러한 물 질수지분석방법은 우리나라의 총 질소 유출입량을 매년 발간되는 각종 통계 및 문헌 자료 등을 이용하여 추정하고, 국내 현실을 고려하여 유출되는 질소의 양을 추정하는 방법으로 배출기원 및 질소순환을 효율적으로 이해할 수 있다(Nam et al, 2011).

국내 질소수지 연구는 주로 농업지역 또는 단위 유역별 규모로 진행되었으며, 국가적인 규모에서의 질소수지 연구가 꾸준히 진행되고 있다. 1994년부터 1997년 사이에는 우리나라 남한과 황해의 질소수지 연구가 진행되었으며, 2001년도에는 농축산업 및 생활계, 임야를 대상으로 질소 유출입 연구가 진행되었다(Bashkin et al, 2002; Choi and Kim, 2004). 2005년도에는 우리나라 전체 질소수지 연구가 진행되어 연간 1,442,254 ton/yr의 질소가 유입되었고 814,415 ton/yr의 질소가 유출된 것으로 산정되었다(Yun et al, 2008). 또한 2010년도에는 농업 및 축산업지역을 중심으로 시도별 질소발생량에 대한 연구를 통하여 그간 대한민국의 질소수지를 비교 및 분석하였으며, 2011년도에는 시도별 질소 유출입량 현황 분석을 통하여 현실적인 질소관리와 정책에 도움이 될 수 있는 연구가 진행되었다(Nam et al, 2012; Shin et al, 2014).

국내에서는 자동차와 공장, 소각로 등의 연소시설에서의 질소산화물 배출량이 꾸준히 증가하고 있는 실정이다. 유럽의 경우 도로 부문에서 발생하는 질소산화물이 전체 배출량의 40%를 차지하는 것으로 조사되었으며, 중국의 경우 에너지 및 발전, 사업장 부문에서의 발생량이 주를 이루고 있었다(Vestring et al, 2009; Fu et al, 2001; Hao et al, 2002). 또한 중국의 경우 국가의 경제규모 및 현황에 따라 질소배출양상에 상당한 차이가 있는 것으로 나타났다(Holland et al, 1999; Misselbrook et al, 2011). 하지만 국내의 경우 질소 배출기원 및 배출량에 대한 체계적인 연구가 부족한 실정이며, 연구가 농경지 및 특정 지역의 질소수지 연구에 집중되어 있다. 따라서 질소산화물의 거동을 포함한 보다 자세하고 정확한 연구는 아직 기초단계에 머물고 있다.

따라서 본 연구는 2012년부터 2014년까지의 국내 질소수지 경향을 파악하기 위하여 배출특성이 서로 상이한 도시지역, 농업 및 축산업지역, 임야지역으로 구분하여 질소수지를 조사 및 분석하였으며, 가장 큰 영향을 미치는 질소산화물에 대해서는 시도별 특성을 파악하여 질소 유출입의 기원을 도출하여 이를 줄이기 위한 대책 등을 제시하였다. 또한 기존의 질소수지 연구결과를 보완하고 수정하는 것과 더불어, 기존의 연구와 상호 비교 및 분석함으

로써 우리나라의 질소 수지 경향을 파악하고 정부의 정책 변화로 인해 발생하는 질소수지를 파악하는 것을 목표로 하였다. 본 연구는 2005년부터 진행한 대한민국 질소수지 분석의 연속 연구로서, 앞으로도 지속적으로 국내 질소수지를 체계적으로 파악하여 농축산업 지역 질소 관리 등의 정책 및 방안에 있어 추구하여야 할 목표를 수립하는데 도움을 줄 것으로 사료된다.

2. 연구방법

2.1. 자료 수집

국가적인 규모의 질소수지 산정을 위하여 통계청, 환경부, 농림축산식품부, 한국농어촌공사, 국토교통부, 한국보건산업진흥원, 국립환경과학원, 교통안전공단, 국가교통데이터베이스, 한국전력공사, 에너지경제연구원 등에서 조사하여 발표한 통계 자료를 적극 활용하였으며, 그 외 침착율, 휘산율, 탈질률 등은 문헌에 보고된 자료를 취합하여 평균값 및 중간값을 질소수지 인자값으로 사용하였다. 우리나라 전체 지역에 대한 질소 유입과 유출량을 조사하기 위하여 배출특성이 서로 상이한 도시지역, 농업 및 축산업지역, 임야지역으로 구분하여 질소수지를 조사하였다. 사람이 생활할 수 있는 모든 공간을 도시지역으로 가정하였으며, 대다수 포장도로와 건물 등으로 밀집되어 있기 때문에 질소의 침착과 고정 발생하지 않는다고 가정하였다. 총 질소의 물질 수지량의 단위는 기존 연구에서 많이 사용하는 kg/ha-yr와 ton/yr로 나타내었다.

2.2. 질소 유입 산출

도시지역에 유입되는 질소는 농작물에 의한 질소 발생량(crop)과 식료품(grocery), 연료(fuel) 등으로 구분하였다. 농업지역은 질소 화학비료에 의한 토양 내 유입(fertilizer)과 건식 및 습식을 포함한 대기로부터의 질소 침착량(deposition), 질소 고정 박테리아에 의한 질소 고정량(fixation), 관개용수에 의한 발생량(irrigation), 미처리된 가축분뇨에 의한 유입 및 퇴비에 의한 재사용량(compost)을 질소 유입 요소로 조사하였다. 축산업지역에의 유입량은 국내에서 가장 많이 사육되는 젓소, 한우, 육우, 돼지, 닭, 오리 등 10개 축종들이 소비한 총 사료량(feedstuff)을 추가하여 조사하였으며, 임야지역은 발전소로 유입되는 연료를 추가로 조사하였다.

2.3. 질소 유출 산출

농업지역에서 질소 유출은 생산된 농작물 내에 포함된

질소량과 화학비료에 의한 탈질량(denitrification) 및 휘발량(volatilization), 지하수로 유출(runoff)되는 양으로 구분하였다. 축산업지역에서는 퇴비로 재사용되는 양, 가축분뇨에서의 탈질량과 휘발량으로 추정하였으며, 임야지역에서는 탈질량과 흡수량(uptake)으로 산정하였다. 도시지역은 하수슬러지 발생량(sewage disposal), 생물반응조의 탈질량 및 수계로 유출되는 하수 배출량(drainage)으로 추정하였다. 우리나라 대기오염배출량은 에너지산업 연소, 비산업 연소, 제조업 연소, 생산공정, 에너지수송 및 저장, 유기용제 사용, 도로 및 비도로 이동오염원 등으로 구분하여 산정되고 있다. 총 대기오염배출량 중, 질소산화물의 발생량을 추정하기 위하여 교통안전공단의 차량의 주행거리 및 실태분석을 통한 지역별, 용도별, 차종 별 평균주행거리를 추정한 통계자료와 환경부에서 고시된 자동차 차종 별 배출계수를 참고하였다. 또한, 사업장에 관해서는 국립환경과학원의 사업장별 배출량 통계 자료를 활용하였으며, 발전소의 경우 산업통상자원부와 에너지관리공단의 통계자료를 이용하여 질소산화물의 배출량을 추정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 주요 통계 및 문헌자료

2012년부터 2014년까지 우리나라의 국토면적은 해마다 조금씩 증가하는 경향을 보였다(Table 1). 이는 간척농지 개발사업, 대단위 농업 개발 사업 공유수면 매립지 등이 새로이 국토에 편입되면서 매해 증가하는 양상을 보이는 것으로 조사되었다. 지목별 이용현황 중 논과 밭, 그리고 임야의 면적은 지속적으로 감소하는 경향을 보였다. 2014년의 논과 밭, 그리고 임야의 면적은 2012년 대비 각각 1.5%, 1%, 0.2% 감소하였다. 이에 반해 도시지역의 2014년 빌딩면적은 2012년 대비 3.6%로 크게 증가된 것으로 조사되었다. 우리나라의 총 인구수는 5년마다 인구

총조사를 실시하기 때문에 정확한 자료를 알 수는 없지만 통계청의 연령별 추계인구자료를 통하여 연도별 인구수의 추정은 가능하다. 이를 통한 우리나라 총 인구는 2012년부터 꾸준히 증가하여 2014년에는 51,327,916명으로 추정되었다. 하지만 매년 증가하는 인구수는 점차 줄어드는 추세를 보여 인구성장률이 둔화되고 있는 것이 확인되었다. 인천을 포함한 수도권의 인구는 매년 증가하여 2014년에는 총 인구의 49.4%를 차지하였으며, 이를 통해 인구의 수도권 집중현상이 매우 높은 것으로 판단된다. 우리나라에 등록된 차량은 꾸준히 증가하여 2014년에는 2,011만 여대로 조사되었다. 반면 화력발전소에서 사용하는 연료는 감소하는 경향을 보였으며, 등록된 사업장의 수는 2013년에 일부 감소되었다가 2014년에 크게 증가한 것으로 나타났다.

질소수지를 산출하기 위한 인자들은 주요 문헌에서 보고된 수치를 조사하여 평균값 및 중간값으로 설정하여 본 연구에 적용하였다. 주요 인자들은 침착율, 탈질율, 고정율, 휘발율 등 질소의 거동관련 인자를 비롯하여 관계용수의 속도, 단백질 내 질소 함유량 등 질소를 간접적으로 계산하기 위한 인자들도 포함되어 있다(Table 2).

3.2. 질소 유입

우리나라의 2012년부터 2014년까지의 각 지역별 질소 유입 및 유출량을 조사 및 산출하여 Table. 3에 나타내었다. 우리나라 총 질소 유입량은 2012년부터 2014년까지 각각 6,202,828, 6,137,708, 6,022,379 ton/yr로 산출되었으며 해마다 감소하는 경향을 보이는 것으로 나타났다. 총 질소 유입량 중 가장 큰 비중을 차지하는 항목은 임야지역에서 발전소로 유입되는 연료이며 그 다음으로는 사업장에서 사용하는 에너지, 화학비료, 퇴비사용 등이 큰 영향을 미치는 것으로 나타났다(Fig. 1(a)).

세부항목별로 살펴보면 농업지역의 경우 무기화학비료

Table 1. Statistical data used in this study

	2012	2013	2014
Total area (ha)	10,018,808	10,026,625	10,028,390
Paddy (ha)	1,168,982	1,161,990	1,151,780
Upland (ha)	779,595	775,886	771,580
Forest (ha)	6,421,639	6,417,570	6,408,070
Livestock manure ($\times 10^3$ ton/yr)	64,643	63,164	64,113
Population ($\times 10^3$ person)	50,948	51,141	51,328
Vehicle registration ($\times 10^3$ count)	18,871	19,348	20,118
Fuel use in power plant ($\times 10^3$ ton/yr)	84,477	82,440	81,395
Business place (count)	46,014	45,814	46,716

Table 2. Notable application rates for nitrogen in this study

Item	Application rate	Reference
Fixation	Paddy	35.0 kg/ha/yr
	Upland	15.0 kg/ha/yr
	Forest	6.7 kg/ha/yr
Deposition	Paddy and upland	11.0 kg/ha/yr
	Forest	17.0 kg/ha/yr
	Paddy	51.0 kg/ha/yr
Denitrification	Upland	30.0 kg/ha/yr
	Forest	5.0 kg/ha/yr
Irrigation flow rate	43.8 kg/ha/yr	Yun et al. (2008)
Forest absorption	4.9 kg/ha/yr	Idol et al. (2003)
Protein in feed	15.0%	Yun et al. (2008)
Nitrogen in Protein	16.0%	Yun et al. (2008)
Livestock manure of waste	27.6%	Yun et al. (2008)
Crop uptake	61.7%	Salvagiotti et al. (2009)
Volatilization of agriculture	16.0%	Zhang et al. (2011)
Leaching	2.5%	Roh et al. (2009)

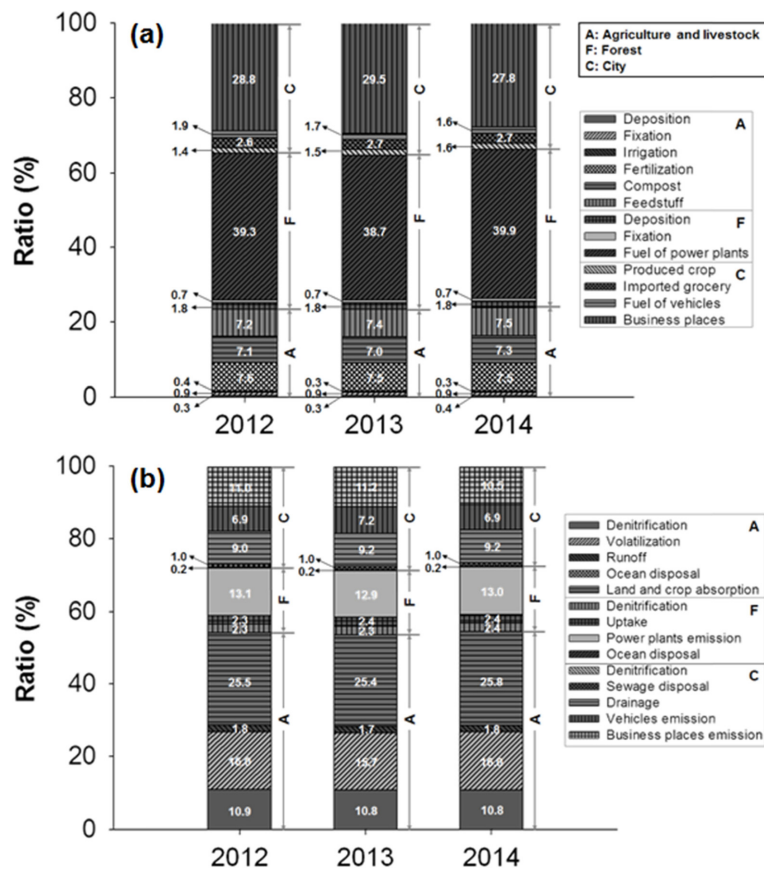


Fig. 1. Comparison of the compositions of (a) input and (b) output nitrogen budgets from 2012 to 2014.

사용과 가축분뇨 퇴비사용으로 인한 질소 유입이 주된 요인으로 조사되었으며, 이외에도 대기로부터의 침착, 생물

학적 질소 고정, 관개용수 사용에 따른 유입 등도 영향을 미치는 것으로 조사되었다. 최근 우리나라는 급격한 도시

화 및 쌀 소비량 감소에 따라 경지면적이 감소하고 있으며, 유기농 농업의 보급 확대, 맞춤형 화학비료에 대한 정부의 지원 및 가축분뇨 해양투기가 2012년부터 전면 금지됨에 따라 분뇨의 퇴비화 비율이 증가하였다. 이로 인하여 농업지역에서의 무기화학비료 사용으로 인한 질소유입이 2012년부터 2014년까지 각각 472,000, 458,760, 452,987 ton/yr로 점차 감소하고 있는 추세인 것으로 나타났다. 해마다 논과 밭의 면적이 감소함에 따라 대기의 침착과 생물학적 질소 고정에 의한 질소 유입량이 감소하는 경향을 보였으며, 관개용수 또한 사용량이 감소하여 해가 지남에 따라 관개용수에 의한 질소유입량이 감소하였다. 관개용수의 수원으로는 하천, 저수지, 지하수 등으로 나뉘며 관개용수의 T-N 농도는 국가수자원관리종합정보시스템 자료를 바탕으로 2012년부터 2014년까지 각각 1.5, 1.3, 1.3 mg/L로 조사되었다(Water Resources Management Information System). 관개용수 사용량과 총 경지면적을 고려한 관개용수에 의한 질소 유입비율은 2012년부터 2014년까지 각각 12.6, 11.0, 10.9 kg/ha/yr로 산출되었다. 이는 기존 문헌에서 조사된 15.2~49.9 kg/ha/yr보다 낮은 수치인데, 과거 평균 T-N 농도가 2.8 mg/L였던것에 비해 관개용수 수원의 T-N 농도가 수질기준에 부합되도록 지속적으로 관리함에 따라 평균 T-N농도가 감소하였고 이와 더불어 유입되는 질소의 함량 또한 감소한 것으로 사료된다. 앞서 언급하였듯이 가축분뇨의 해양투기가 2012년부터 전면금지됨에 따라 이를 자원화하기 위한 노력이 더욱 강조되었다(Ministry of Agriculture, Food and Rural Affairs, 2013). 이로 인해 가축분뇨의 자원화 시설의 수는 꾸준히 증가하는 경향을 보였으며, 가축분뇨의 자원화를 또한 증가하는 경향을 보이는 것으로 나타났다(Fig. 2). 따라서 가축분뇨 퇴비로 인한 질소유입은 2011년에 313,090 ton/yr이었던 질소 유입이 2012년에는 440,706 ton/yr로 40.8% 증가하였으며, 이후 비슷한 수준을 유지하는 것으로 조사되었다. 한편 가축분뇨는 비점오염원(Non-point source, NPS)으로써 관리되는 항목으로 처리시설을 갖추지 않고 소규모의 전통적인 방식의 사육을 하는 가구가 많아 관리가 어려운 오염원이지만, 이와 같이 양질의 비료로 퇴비화함으로써 자원순환형 친환경 축산기반 구축이라는 측면에서 매우 중요한 역할을 하기 때문에 이에 대한 제도적인 관심이 지속적으로 필요하다고 판단된다.

축산업에서의 질소유입은 가축사료에 의한 유입을 주 대상으로 산출하였다. 2012년부터 2014년까지 소비된 사료량은 각각 18,479,550, 18,936,306, 18,868,021 ton/yr

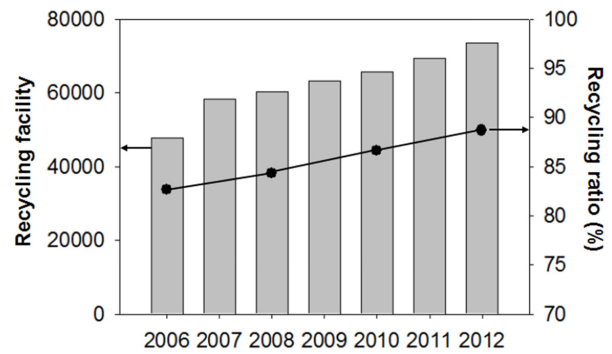


Fig. 2. Livestock manure recycling facility and recycling ratio of South Korea from 2006 to 2012.

이며, 사료 내 단백질 함량 15%와 단백질 내 질소함량 16%를 고려하여 축산업으로 유입된 질소량을 산출하였다. 축산업의 사료 소비량은 가축두수의 증가로 인해 해마다 증가하는 경향을 보이는 것으로 나타났지만 2014년 구제역과 AI로 인한 대대적인 가축 살처분으로 인해 잠시 주춤한 것으로 조사되었다.

임야지역에서는 질소고정 박테리아에 의한 생물학적 질소 고정량과 대기 중으로부터 강우나 분진의 형태로 침착되는 양, 그리고 발전소에 유입되는 연료가 주된 질소 유입원이다. 질소 고정량과 대기로부터 침착되는 질소량은 임야의 면적이 해마다 감소함에 따라 지속적으로 감소하는 경향을 보였다. 발전소에서 연료형태로 유입된 질소량은 2012년부터 각각 2,440,442, 2,377,271, 2,402,102 ton/yr로 임야지역으로 유입되는 질소량의 대부분을 차지하였으며, 우리나라 총 질소 유입량의 39% 이상을 차지하였다. 따라서 발전소에서 주된 연료원인 화석연료 사용을 줄이는 것이 매우 시급한 실정이며, 이와 더불어 화석연료의 대체재 개발, 연료의 품질강화 및 에너지 고효율 시스템 개발 등이 필요하다고 판단된다.

도시지역의 경우 대표적인 질소 유입원은 생산된 농작물, 수입 식료품의 소비, 자동차의 연료 및 각종 연소시설을 갖춘 사업장에서 사용되는 연료로 조사되었다. 생산된 농작물 및 수입 식료품의 소비는 해마다 증가하는 경향을 보였는데, 이는 인구의 증가와 더불어 도시지역의 인구밀집 현상으로 인하여 소비량이 증가하는 것으로 판단된다. 자동차 연료로 인한 질소 유입량은 해마다 등록 차량수가 약 5%씩 증가하였음에도 불구하고 2014년에는 자동차 연료로 인한 질소 유입량은 2012년 대비 16.9% 감소하였다. 이는 자동차의 평균연비가 2012년 13.8 km/L에서 2014년 16.2 km/L로 크게 증가하였고, 일평균이동거리는 2012년 43.6 km에서 2014년 40.2 km로 감소하였기 때문

인 것으로 조사되었다. 사업장의 경우 전체사업장의 수는 2014년이 46,716 개소로 가장 많았지만 질소 유입량은 1,673,008 ton/yr로 가장 적은 것으로 나타났다. 이는 등록되어 있는 사업장 중 에너지산업 및 제조업 관련 기관에서 소비되는 연료가 사업장의 질소 유입량에 매우 큰 비율을 차지하고있는데, 2014년의 경우 다른 년도에 비해 에너지산업 및 제조업 관련 기관의 수가 다른 해에 비해 약 3.5% 감소함에 따라 질소 유입량 또한 감소한 것으로 조사되었다.

3.3. 질소 유출

우리나라 총 질소 유출량은 2012년부터 2014년까지 각각 1,393,763, 1,380,436, 1,360,819 ton/yr로 산출되었으며 해마다 감소하는 경향을 보이는 것으로 나타났다(Table 3). 총 질소 유출량 중 가장 큰 비중을 차지하는 항목은 농업지역에서 농작물과 농경지에 흡수량이며, 그 다음으로는 농업지역에서의 휘발량, 발전소와 사업장에서 에너지 사용에 따라 배출되는 질소산화물 등이 큰 영향을 미치는 것으로 나타났다(Fig. 1(b)).

농업지역의 경우 무기화학비료 사용에 의해 생산된 작물에 함유되는 양, 가축사료에 의하여 가축분뇨의 형태로 배출되는 양, 비료와 가축분뇨로부터 대기 중에 암모니아 질소로 휘발되거나 탈질되는 양, 그리고 나머지는 잔류되

거나 축적되어 비점오염으로 유출되는 양으로 인해 주로 질소가 유출되는 것으로 조사되었다. 농업지역에서의 탈질량은 농경지에서의 탈질량과 질소질 화학비료사용량 대비 탈질되는 양의 산술평균으로 산출하였으며, 2012년부터 2014년까지 농경지에서의 탈질량은 152,423, 149,077, 147,396 ton/yr로 지속적으로 감소하는 경향을 보였다. 이는 앞서 질소 유입량에서 설명한 바와 같이 농경지가 감소함에 따라 농경지에서의 탈질량 또한 감소한 것으로 판단된다. 농업지역에서 휘발되는 양은 질소질 화학비료에 의한 휘발, 가축분뇨에 의한 휘발량 등이 있으며 그 외에 발생할 수 있는 질소 휘발량은 극히 미량이므로 무시하였다. 2012년부터 2014년까지 농업지역에서 휘발된 질소 유출량은 75,520, 73,402, 72,478 ton/yr로 나타났으며, 뚜렷한 경향성이 나타나지 않은 이유는 사용되는 비료의 양은 꾸준히 감소하였으나 가축분뇨에 의한 퇴비사용량이 해마다 상이하기 때문인 것으로 보인다. 토양표면으로 유입된 질소가 토양을 통해 지하수로 유출되는 양은 유입된 총 질소의 1.6~3.3% 정도라고 보고되고 있으며, 이에 따라 평균값인 2.5%를 이용하여 지하수 유출량을 산출하였다. 2012년부터 2014년까지 지하수로 유출된 질소는 24,777, 24,116, 24,110 ton/yr로 농경지 감소로 인하여 토양에 유입되는 질소가 감소하였고 이에 따라 지하수로 유출되는 양 또한 감소한 것으로 사료된다. 농작물 및 농경지에 대

Table 3. Nitrogen budget from 2012 to 2014 (unit: ton/yr)

		Input			Output			
		2012	2013	2014	2012	2013	2014	
Agriculture and livestock	Deposition	21,435	21,317	21,157	Denitrification	152,423	149,077	147,396
	Fixation	52,608	52,308	51,886	Volatilization	222,422	216,942	218,174
	Irrigation	24,552	21,317	20,965	Runoff	24,777	24,116	24,110
	Fertilization	472,000	458,760	452,987	Ocean disposal	-	-	-
	Compost	440,706	430,620	437,088	Land and crop absorption	355,900	350,353	351,376
	Feedstuff	443,509	454,471	452,833				
Forest	Deposition	109,168	109,099	108,937	Denitrification	32,108	32,088	32,040
	Fixation	43,025	42,998	42,934	Uptake	33,393	33,371	33,322
	Fuel of power plants	2,440,442	2,377,271	2,402,102	Power plants emission	182,403	177,785	176,819
City	Produced crop	87,827	93,379	95,572	Ocean disposal	-	-	-
	Imported grocery	162,383	162,999	163,591	Denitrification	2,255	2,264	2,272
	Fuel of vehicles	119,450	106,206	99,319	Sewage disposal	125,129	126,523	124,870
	Business places	1,785,723	1,806,963	1,673,008	Drainage	13,590	13,817	13,695
					Vehicles emission	96,700	99,621	93,720
				Business places emission	152,663	154,479	143,025	

한 질소 흡수량은 연간 생산된 농산물 내 질소함량과 경작지의 질소 흡수량을 이용하여 평균 질소 흡수량을 산정하였다. 2012년부터 2014년까지 농산물 및 경작지에 의한 질소 흡수량은 355,900, 350,353, 351,376 ton/yr로 나타났으며 뚜렷한 경향성이 나타나지 않았는데, 이는 농경지는 감소하였지만 농업기술의 발달로 인하여 농산물 생산량이 증가함에 따라 상호간 미치는 영향 때문인 것으로 판단된다.

축산업에서의 질소유출은 퇴비에 의한 휘발량이 주요 요인이며, 가축분뇨를 자원화하는 과정에서 약 40%의 질소양분이 휘산되는 것으로 추정하였다. 2012년부터 2014년까지 발생한 가축분뇨는 64,643,325, 63,163,980, 64,112,615 ton/yr로 조사되었으며, 이에 따른 휘발된 질소 유출량은 146,920, 143,540, 145,696 ton/yr로 나타났다. 이전 연구에서는 가축분뇨의 해양투기에 의한 질소 유출량을 고려하였지만 2012년부터 가축분뇨의 해양투기가 전면 금지됨에 따라 해양투기가 이루어 지지 않아 본 연구에서는 이 부분은 무시하였다.

임야지역에서의 질소 유출량은 임야의 흡수량과 탈질량 그리고 발전소에서 배출되는 질소산화물을 고려하여 산출하였다. 임야지역에서의 탈질에 대한 연구결과는 크게 차이가 나는 경향을 보이며, 본 연구에서는 중간 값인 5.0 kg/ha/yr를 사용하여 탈질량을 산출하였다. 이를 이용하여 2012년부터 2014년까지 산출한 임야지역에서의 탈질량은 32,108, 32,088, 32,040 ton/yr로 조금씩 감소하는 경향을 보였다. 임야지역에서 줄기와 가지의 생장을 고려한 2012년부터 2014년까지 평균 질소 흡수량은 33,393, 33,371, 33,322 ton/yr로 조사되었다. 발전소에서 배출되는 질소 산화물에 의한 질소 유출량은 2012년부터 2014년까지 182,403, 177,785, 176,819 ton/yr로 나타났다. 2013년의 경우 2014년과 비교하여 연료로 인한 질소가 유입이 적었음에도 불구하고 더 높은 질소 유출량을 보였는데, 이는 질소 함량이 높은 중유의 사용량이 2013년에 더 높았기 때문인 것으로 조사되었다.

도시지역에서의 질소 유출량은 하수 슬러지의 탈질량, 하수처리장으로 유입된 질소 및 수계로의 유출, 자동차 및 사업장에서 배출되는 질소산화물 등을 고려하여 산출하였다. 이전 연구까지는 하수슬러지의 해양투기에 의한 질소 유출량을 고려하였지만 2012년부터 하수슬러지의 해양투기가 전면 금지됨에 따라 해양투기가 이루어 지지 않아 본 연구에서는 이 부분은 무시하였다. 하수슬러지의 탈질에 의해 유출된 질소는 2012년부터 2014년까지 2,255, 2,264, 2,272 ton/yr로 조금씩 증가하는 경향을 보였으며,

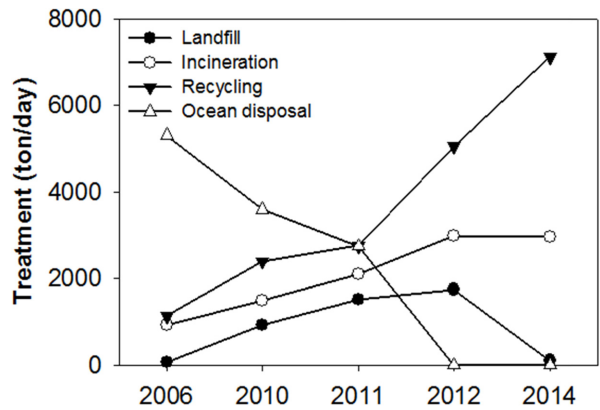


Fig. 3. The present state of sewage sludge treatment.

하수처리시설에 유입된 질소 및 수계로 직접 유출되는 양은 125,129, 126,523, 124,870 ton/yr 및 13,590, 13,817, 13,695 ton/yr로 나타났다. 이후 탈수된 하수슬러지는 최종 처분, 재활용, 자원화시설과 연계하여 처리되고 있으며, 특히 최근 자원화의 일원으로 하수슬러지를 연료화 함으로써 슬러지를 줄이고 에너지 자립도가 매우 낮은 우리나라 특성에 맞춰 안정적인 에너지자원을 확보할 수 있는 잠재 에너지원으로서 활용하고자 노력하고 있다(Ministry of Environment, 2012). 이와 같은 정부의 노력에 의해 하수슬러지 처리현황을 살펴보면 해양매립이 금지된 2012년부터 배출량이 0로 나타났고 2012년 이후 육상매립 또한 크게 감소한 것에 반해 자원화 비율은 2012년 이후로 크게 증가하는 경향을 보였다(Fig. 3). 자동차에서 배출되는 질소산화물에 의한 질소 유출량은 2012년부터 2014년까지 99,700, 99,621, 93,720 ton/yr로 나타났으며, 사업장에서 배출되는 질소산화물에 의한 질소 유출량은 152,663, 154,479, 143,025 ton/yr로 나타났다. 자동차의 경우 연비 향상과 질소를 많이 함유하고 있는 경우 사용이 줄어들에 따라서 배출되는 질소산화물에 의한 질소 유출량이 꾸준히 감소하는 경향을 보인 것으로 조사되었으며, 사업장의 경우 질소산화물에 가장 큰 영향을 미치는 에너지 및 제조관련 업체의 수가 감소함에 따라 배출되는 질소산화물에 의한 질소 유출량이 감소한 것으로 나타났다.

3.4. 총 질소 균형 수치

2012년부터 2014년까지 우리나라의 질소 유출입 수치를 Fig. 4에 정리하여 나타내었다. 농업 및 축산업지역에 유입된 총 질소량은 2012년부터 2014년까지 각각 1,454,810, 1,438,793, 1,436,916 ton/yr으로 산정되었다. 이중 휘발 또는 탈질에 의하여 직접적으로 대기 중으로 배출된

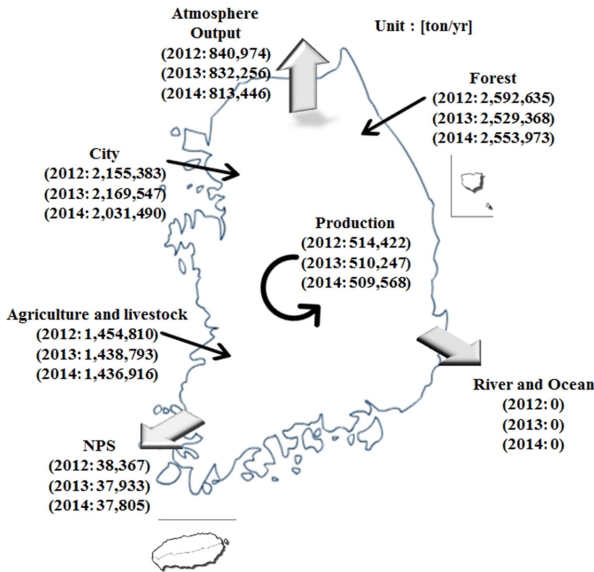


Fig. 4. Total input and output nitrogen budget from 2012 to 2014.

질소량이 각각 374,845, 366,019, 365,570 ton/yr이었으며, 비점오염원으로서 지하수 또는 수계로 직접적으로 배출된 질소량은 각각 24,777, 24,116, 24,110 ton/yr로 나타났다.

임야지역에 유입된 총 질소량은 2012년부터 2014년까지 각각 2,592,635, 2,529,368, 2,553,973 ton/yr으로 산정되었다. 이중 탈질 및 발전소 배기가스로 인하여 직접적으로 대기 배출된 질소량이 각각 214,511, 209,873, 208,859 ton/yr로 나타났다.

도시지역에 유입된 총 질소량은 2012년부터 2014년까지 각각 2,155,383, 2,169,547, 2,031,490 ton/yr으로 산정되었다. 이중 탈질과 자동차 및 사업장의 배기가스로 인하여 직접적으로 대기 배출된 질소량이 각각 251,618, 256,364, 239,017 ton/yr이었으며, 비점오염원으로서 지하수 또는 수계로 직접적으로 배출된 질소량은 각각 13,590, 13,817, 13,695 ton/yr로 나타났다. 해양으로 직접 유출되는 질소의 경우 가축분뇨와 하수슬러지의 해양투기가 2012년부터 전면 금지됨에 따라 해양투기에 의한 영향이 없는 것으로 나타났다.

휘발 또는 탈질에 의하여 대기 직접적으로 배출되는 질소량과 비점오염원으로서 지하수 또는 수계로 직접적으로 배출되는 질소량을 제외한 질소 유출량은 생산(Production)으로 명시하였으며, 농작물에 의한 질소 흡수, 산림에 의한 질소 흡수 및 하수슬러지 매립 등이 여기에 속한다. 각 항목에 대한 질소 유출량은 해마다 소폭 감소하는 경향을 보임에 따라 전체 수치가 소폭 감소하는 경향을 보이는 것으로 나타났다.

비점오염원의 경우 농경지 및 화학비료 사용량 감소와 하수보급을 증가로 인하여 수계로 유출되는 질소량이 감소하는 경향을 보이고 있지만 아직까지 상당한 양이 배출되고 있는 실정이며, 따라서 이를 효과적으로 관리하기 위한 대책을 마련하는 것이 필요하다고 판단된다. 대기로 직접 유출되는 질소의 경우 대부분 휘발, 탈질 및 화석연료 사용에 따른 배기가스에 의한 것으로서, 아직까지도 많이 사용되고 있는 무기화학비료의 사용량을 줄이기 위한 여러가지 대책들이 마련되어야 할 것으로 판단되며 발전소, 자동차 및 사업장에서 화석연료를 연소함으로써 발생하는 질소생성물을 줄이기 위한 노력도 필요하다고 판단된다.

3.5. 시도별 기체상 질소산화물

우리나라 총 질소수지 중 질소산화물에 의한 질소 유입은 총 질소 유입의 약 68%를, 질소산화물에 의한 질소 유출은 총 질소 유출의 약 31%를 차지하는 등 기체상 질소산화물은 우리나라 전체 질소수지에 큰 영향을 미치는 요인이다. 따라서 시도별로 유입 및 배출하는 질소산화물에 대해 추가적으로 조사하였다. 배출되는 질소산화물은 2012년부터 2014년까지 꾸준히 감소하는 경향을 보였으며, 시도별 배출 비율은 거의 비슷하게 유지되고 있었다. 따라서 Fig. 3은 2014년을 기준으로 각 시도별 질소산화물 배출량을 조사하였으며, 질소산화물 배출 요인별로 세분화하여 나타내었다. 질소산화물의 배출량이 가장 높은 지역은 충청남도로 전체 배출량의 27.9%를 차지하고있으며, 그 다음지역은 경상남도 17%, 경기도 14%로 각각 나타났다. 충청남도에서 가장 많은 질소산화물이 배출된 원인은 압도적으로 많은 화력발전소 때문이며, 전체 화력발전소의 49%가 충청남도에 위치해 있다. 두번째로 질소산화물 배출량이 높은 경상남도 역시 화력발전소가 많은 지역 중 하나이며 전체 화력발전소의 32%가 위치하여 있다. 3번째로 높은 경기도의 경우에는 자동차로 인한 질소산화물 배출량이 전국에서 가장 높은 것으로 나타나 이로 인한 원인이 가장 큰 것으로 판단된다.

배출 원인별로 살펴보면 발전소가 전체 배출량의 42.1%를 차지하였으며, 그 다음으로 사업장 35.3%, 자동차 22.6% 순으로 질소산화물 배출에 기여한 것으로 나타났다. 이 수치는 2011년에 조사한 발전소 43.6%, 사업장 34.1%, 자동차 22.3%와 유사한 수치이나, 전반적으로 발전소의 비율이 줄어들고 사업장과 자동차의 비율이 증가한 것을 확인할 수 있었다. 이는 2011년에 발전소에서 배출된 질소산화물 배출량이 601,437.2 ton/yr이었던 것에 반해 2014년에는 588,151.9 ton/yr로 크게 감소하였고, 자동

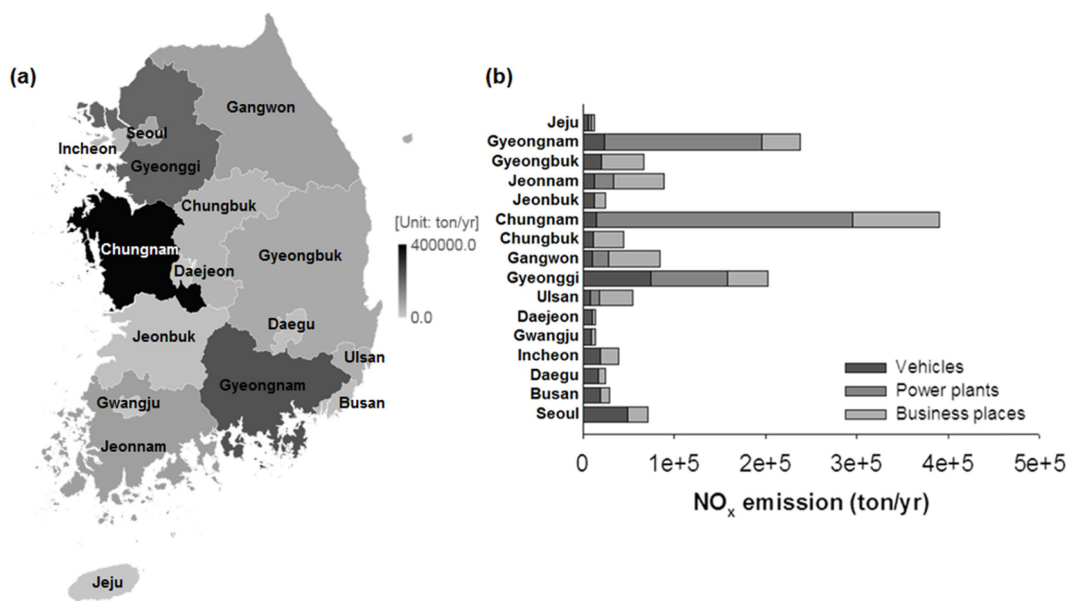


Fig. 5. NO_x emissions in 2014 by region, (a) NO_x emissions map and (b) NO_x emission sources.

차에서 배출된 질소산화물 배출량이 2011년에는 308,207 ton/yr이었던 것에 반해 2014년에는 316,544.2 ton/yr로 증가한 영향으로 인함이라 판단된다.

발전소에서 배출되는 질소산화물의 양은 해마다 꾸준히 감소하고 있는 추세이긴 하지만 아직까지도 가장 높은 비율을 차지하고 있기 때문에, 총 전력생산 중 발전소에 의한 의존도를 더욱더 낮출 필요가 있다고 판단된다. 또한 자동차로 인한 질소산화물의 배출량은 해마다 증가하는 추세이며 이를 줄이기 위하여 차량의 연비 향상은 물론, 전기자동차와 같이 화석연료를 사용을 줄일 수 있는 친환경 자동차 보급, 질소함량이 높은 경유를 사용하는 경유 차량 감소 등과 같은 대책이 국가 정책적인 사항으로 반드시 고려되어야 할 것으로 판단된다.

4. 결 론

본 연구에서는 2012년부터 2014년까지 우리나라에 유입 및 유출된 질소수지를 파악하고 이를 보완 및 개선하기 위한 방안들을 제시하고자 하였다. 2012년부터 2014년까지 우리나라로 유입된 총 질소량은 6,202,828, 6,137,708, 6,022,379 ton/yr이었으며, 유출된 총 질소량은 1,393,763, 1,380,406, 1,360,819 ton/yr로 조사되었다. 이 중 화석연료 사용으로 인한 질소유입이 전체 유입량의 약 70%를 차지하여 다른 질소 유입의 요소들보다 매우 큰 영향을 미치는 것으로 나타났으며, 질소산화물 배출에 의

한 질소유출이 전체 유출량의 약 30%를 차지하여 다른 질소유출의 요소들보다 큰 영향을 미치는 것으로 나타났다.

토지이용에 따른 질소 유출입수지를 살펴보면 2012년부터 2014년까지 농업 및 축산업지역에서의 질소유입은 1,454,810, 1,438,793, 1,436,916 ton/yr이었으며, 질소유출은 755,522, 740,488, 741,056 ton/yr으로 나타났다. 질소 비료 사용에 의한 유입량은 농업 및 축산업지역에 유입된 질소량의 약 32%로 2011년에 35%였던 것보다는 감소하였으나 여전히 가장 높은 비중을 차지하는 것으로 나타나 이에 대한 관리가 지속적으로 필요한 것으로 판단된다. 2012년부터 2014년까지 임야지역으로 유입된 질소량은 2,592,635, 2,529,368, 2,553,973 ton/yr이었으며, 유출된 질소량은 247,904, 243,244, 242,181 ton/yr로 나타났다. 화석연료로 인한 질소유입이 임야지역 총 질소 유입량의 약 94%를, 질소산화물에 의한 질소유출이 임야지역 총 질소 유출량의 약 73%를 차지하고 있어 임야지역 질소수지의 대부분을 차지하는 화석연료 사용에 대한 심도 있는 논의가 시급한 것으로 판단된다. 2012년부터 2014년까지 도시지역으로 유입된 질소량은 2,155,383, 2,169,547, 2,031,490 ton/yr이었으며, 유출된 질소량은 390,337, 396,704, 377,582 ton/yr로 나타났다. 화석연료로 인한 질소유입이 도시지역 총 질소 유입량의 약 88%를, 질소산화물에 의한 질소유출이 도시지역 총 질소 유출량의 약 64%를 차지하고 있어 도시지역도 임야지역과 마찬가지로 화석연료 사용 및 질소산화물 배출이 질소수지의 대부분

을 차지하는 것으로 나타났다.

질소산화물의 경우 지역별 유출 경로를 살펴보면 발전소가 집중되어 있는 충청남도과 경상남도가 전국에서 가장 많은 질소산화물을 배출하고 있었으며, 발전소에 의한 질소산화물 유출이 다른 요소들보다 높은 비율을 차지하였다. 이동수단이 집중되어 있는 경기도 서울지역은 자동차 연료사용에 의한 질소산화물 배출이 가장 높은 비율을 보였다. 대기 중으로 배출되는 질소산화물의 저감을 위해서는 적절한 연소온도 및 공연비 유지 등이 필요할 것으로 판단되며, 지역별로 질소산화물 배출양상이 상이하기 때문에 이를 파악하여 배출특성별 질소산화물 관리대책을 마련해야 할 것으로 판단된다.

이전까지의 질소수지와 달리 2012년부터는 정부정책에 따라 가축분뇨 및 하수슬러지의 해양투기가 전면 금지되었으며 이로 인해 해양투기에 의한 질소 유출이 사라졌다. 이에 대한 대책으로 가축분뇨의 경우 대부분 자원화시스템에 의해 퇴비화되거나 에너지화되어 가축분뇨로 인한 질소유출이 크게 감소하였으며, 하수슬러지의 경우 하수처리시설 및 하수슬러지 자원화시설 증가함에 따라 이로 인한 질소유출이 크게 감소하고 있는 추세이다.

끝으로, 질소순환의 교란은 생물학적 영양 공급을 변화시켜 비정상적인 현상들이 발생할 수 있는 등 환경적인 불확실성이 증가하기 때문에, 지속적으로 우리나라 질소수지에 대한 연구를 진행하여 이와 같은 불확실성을 줄이는 노력이 중요하다고 사료되며, 특히 시도별 배출양상이 상이하기 때문에 이에 따른 맞춤형 관리가 필요할 것으로 판단된다.

사 사

This study was supported by the Basic Science Research Program through the National Research Foundation of Korea (NRF) funded by the Ministry of Science, ICT, & Future Planning (NRF-2015R1A2A1A09005838).

References

Aneja, V.P., Schlesinger, W.H., Erisman, J.W., Behera, S.N., Sharma, M., and Battye W., 2012, Reactive nitrogen emissions from crop and livestock farming in India, *Atmos. Environ.*, **47**, 92-103.

Bashkin, V.N., Park, S.U., Choi, M.S., and Lee, C.B., 2002,

Nitrogen budgets for the Republic of Korea and the Yellow Sea region, *Biogeochem.*, **57**(58), 387-403.

Brenttrup, F., Küsters, J., Lammel, J., and Kuhlmann, H., 2000, Methods to estimate on-field nitrogen emissions from crop production as an input to LCA studies in the agricultural sector, *Int. J. Life Cycle Assoc.*, **5**(6), 349-357.

Canfield, D.E., Glazer, A.N., and Falkowski, P.G., 2010, The evolution and future of Earth's nitrogen cycle, *Science*, **330** (6001), 192-196.

Cao, B., He, F.Y., Xu, Q.M., Yin, B., and Cal, G.X., 2006, Denitrification losses and N₂O emissions from nitrogen fertilizer applied to a vegetable field, *Pedosphere*, **16**(3), 390-397.

Choi, E. and Kim, T., 2004, Estimated Nitrogen Discharge by a mass balance approach, *J. Environ. Policy*, **3**(1), 95-117.

U.S. Environmental Protection Agency, 2016, Inventory of U.S. greenhouse gas emissions and sinks: 1990-2014.

Fu, L., Hao, J., He, D., He, K., and Li, P., 2001, Assessment of vehicular pollution in China, *J. Air Waste Manage. Assoc.*, **51**(5), 658-668.

Goolsby, D.A., Battaglin, W.A., Aulenbach B.T., and Hooper, R.P., 2001, Nitrogen input to the Gulf of Mexico, *Environ. Qual.*, **30**(2), 329-336

Hao, J., Tian, H., and Lu, Y., 2002, Emission inventories of NO_x from commercial energy consumption in China, 1995-1998, *Environ Sci Technol.*, **36**(4), 552-560.

Holland, E.A., Dentener, F.J., Braswell, B.H., and Sulzman, J.M., 1999, Contemporary and pre-industrial global reactive nitrogen budgets, *Biogeochem.*, **46**(1-3), 7-43.

Idol, T., Pope, P., Jr, F., 2003, N mineralization, nitrification, and N uptake across a 100-year chronosequence of upland hardwood forests, *For. Ecol. Manage.*, **176**(1-3), 509-518.

Kang, P.G., Lee, S.W., Park, H.K., Byeon, M.S., and Kong, D.S., 2006, Study on the release of Phosphorus and Nitrogen from sediment in Lake Chungju, *Proceedings of the Co-Conference of Korean Society of water and wastewater and Korean Society on Water Environment*, Daegu, Korea, p.1231-1232.

Kim, S.D. and Dale, B., 2008, Effects of nitrogen fertilizer application on greenhouse gas emissions and economics of corn production, *Environ. Sci. Technol.*, **42**, 6028-6033.

Lee, Y.H., 2001, Estimation of nitrogen deposition in South Korea, Thesis (doctoral), Seoul national university.

Leip, A., Britz, W., Weiss, F., and Vries, W., 2011, Farm, land, and soil nitrogen budgets for agriculture in Europe calculated with CAPRI, *Environ. Pollut.*, **159**(11), 3243-3253.

Ministry of Agriculture, Food and Rural Affairs, 2013, Plan of Long-Term livestock manure recycling.

- Ministry of Environment, 2012, Plan of application of biogas production and sewage sludge reduction.
- Misselbrook, T.H., Cape, J.N., Cardenas, L.M., Chadwick, D.R., Dragosits, U., and Hobbs, P.J., 2001, Key unknowns in estimating atmospheric emissions from UK land management, *Atmos. Environ.*, **45**(5), 1067-1074.
- Mosier, A.R., 2002, Environmental challenges associated with needed increases in global nitrogen fixation, *Nutr. Cycl. Agroecosyst.*, **63**(2), 101-116.
- Mosier, A., Kroeze, C., Nevison, C., Oenema, O., Seitzinger, S., and Van Cleemput, O., 1998, Closing the global N₂O budget: nitrous oxide emissions through the agricultural nitrogen cycle, *Nutr. cycl. Agroecosyst.*, **52**(2), 225-248.
- Nam, Y.H., An, S.W., Jung, M.S., and Park, J.W., 2012, Nitrogen budgets of agriculture and livestock in South Korea at 2010, *J. Kor. Soc. Environ. Eng.*, **34**(3), 204-213.
- Nam, Y.H., An, S.W., and Park, J.W., 2011, Nitrogen Budget of South Korea in 2008: Evaluation of Non-point Source Pollution and N₂O Emission, *J. Kor. Soc. Environ. Eng.*, **33**(2), 103-112.
- Ortiz-zayas, J.R., Cuevas E., Mayol-Bracero, O.L., Donoso, L., Trebs, I., Figueroa-Nieves, D., and Mcdowell, W.H., 2006, Urban influences on the nitrogen cycle in Puerto Rico, *Biogeochem.*, **79**, 109-133.
- Parfitt, R.L., Schipper, L.A., Baisden, W.T., and Elliott, A.H., 2006, Nitrogen inputs and outputs for New Zealand in 2001 at national and regional scales, *Biogeochem.*, **80**, 71-88.
- Roh, K.A., Kim, M.K., Ko, B.G., Kim, G.Y., Shim, K.M., and Lee, D.B., 2009, Estimation of rice cultivation impacts on water environment with environmental characteristics and agricultural practices by nitrogen balances, *Korean J. Soil Sci. Fert.*, **42**(6), 439-446.
- Rosswall, T. and Paustian, K., 1984, Cycling of nitrogen in modern agricultural systems, *Plant Soil*, **76**(1), 3-21.
- Salvagiotti, F., Castellari, J.M., Miralles, D.J., and Pedrol, H.M., 2009, Sulfur fertilization improves nitrogen use efficiency in wheat by increasing nitrogen uptake, *Field Crops Res.*, **113**(2), 170-177.
- Scolow, R.H., 1999, Nitrogen management and the future of food: Lessons from management of energy and carbon, *Proceedings of National Academy of Sciences of the United States of America, Natl. Acad. Sci.*, California, U.S., **96**, 6001-6008.
- Shin, J.H., Yoo, C.W., An, S.W., and Park, J.W., 2014, 2011 Nitrogen Budget of South Korea Including Nitrogen Oxides in Gas Phase, *J. Kor. Soc. Environ. Eng.*, **36**(2), 75-83.
- Vestreng, V., Ntziachristos, L., Semb, A., Reis, S., Isaksen, I., and Tarrasn, L., 2009, Evolution of NO_x emissions in Europe with focus on road transport control measures, *Atmos. Chem. Phys.*, **9**(4), 1503-1520.
- Vitousek, P.M., Aber, J.D., Howarth, R.W., Likens, G.E., Matson, P.A., and Schindler, D.W., 1997, Human alteration of the global nitrogen cycle: sources and consequences, *Ecol. Appl.*, **7**(3), 737-750.
- Water Resources Management Information System, <http://www.wamis.go.kr/> [accessed 17.06.01]
- Xing, G.X. and Zhu, Z.L., 2002, Regional nitrogen budgets for china and its major watersheds, *Biogeochem.*, **57**(58), 405-427.
- Yun, D.M., Park, S.H., and Park, J.W., 2008, Nitrogen Budgets for South Korea in 2005, *J. Kor. Soc. Environ. Eng.*, **30**(1), 97-105.
- Zhang, Y., Luan, S., Chen, L., and Shao M., 2011, Estimating the volatilization of ammonia from synthetic nitrogenous fertilizers used in China, *J. Environ. Manage.*, **92**(3), 480-493.