Journal of Environmental Science International
34(2); 87~100; February 2025

pISSN: 1225-4517 eISSN: 2287-3503
https://doi.org/10.5322/JESI.2025.34.2.87

ORIGINAL ARTICLE

남동권 오존의 주/야간 연직 분포 특성: 2024년 1월 29~30일 오존존데 관측 사례 분석

백승희[1] · 박민준[1] · 이효정[1,2]* · 박주선[2] · 조유진[2] · 김종민[1] · 조현영[3] · 박상서[4] · 김주완[5] · 김철희[1,2]

[1]부산대학교 대기환경과학과, [2]부산대학교 환경연구원, [3]창원시정연구원, [4]울산과학기술원 지구환경도시건설공학과, [5]공주대학교 대기과학과

Diurnal Variation of Vertical Ozone Distribution in the Southeastern Region of Korea: A Case Study of Ozonesonde Observations on January 29–30, 2024

Seung-Hee Baek[1], Min-Jun Park[1], Hyo-Jung Lee[1,2]*, Juseon Bak[2], Yu-Jin Jo[2], Jong-Min Kim[1], Hyun-Young Jo[3], Sang Seo Park[4], Joowan Kim[5], Cheol-Hee Kim[1,2]

[1]Department of Atmospheric Sciences, Pusan National University, Busan 46241, Korea
[2]Institute of Environmental Studies, Pusan National University, Busan 46241, Korea
[3]Changwon Research Institute, Changwon 51500, Korea
[4]Department of Civil, Urban, Earth and Environmental Engineering, Ulsan National Institute of Science and Technology (UNIST), Ulsan 44919, Korea
[5]Department of Atmospheric Science, Kongju National University, Gongju 32588, Korea

Abstract

To analyze the altitude-dependent diurnal and nocturnal variations of ozone, four ozonesonde soundings were conducted in Ulsan on January 29-30, 2024. Ozonesonde measurements reveal a distinct diurnal variation in ozone within the planetary boundary layer (below 1 km) with daytime ozone concentrations around 0.06 ppm, dropping to around 0.03 ppm in early evening. In the free troposphere, ozone exhibited weak diurnal variations, except for a notable nighttime enhancement of 0.01 ppm or more above 1 km on January 30. Meterological factors were found to be less relevant in affecting the observed ozone enhancement. Meterological conditions, such as temperature, precipitation, and wind fields, were similar during the ozonesonde launches. Surface wind speeds were very low, suggesting minimal horizontal transport of ozone and its precursors from upwind regions. In this study, global (WACCM) and regional-scale (WRF-Chem) atmospheric chemical transport models were employed to link the observed ozone variations with the underlying dynamical and chemical factors as well as evaluate the consistency between simulation and observation. The global scale WACCM simulations indicate a higher contribution of stratospheric ozone intrusion to lower tropospheric ozone on January 30 than on January 29. The regional-scale WRF simulations well represent the vertical distribution of ozone on January 29, but exhibited a higher degree of uncertainty on January 30, highlighting the impact of stratospheric ozone on lower tropospheric air quality predictions. Continuous and more precise observations of the vertical distribution of ozone are expected to contribute significantly to air quality forecasting and studies utilizing ozone profile data.

Key words : Vertical ozone distribution, Ozonesonde measurement, Stratospheric ozone intrusion, Air quality prediction model

Received 22 January, 2025; **Revised** 9 February, 2025;
Accepted 10 February, 2025
***Corresponding author** : Hyo-Jung Lee, Department of Atmospheric Sciences, Pusan National University, Busan 46241, Korea
Phone : +82-51-510-7115
E-mail : hyojung@pusan.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. 서 론

지표 오존(O_3)은 전구기체인 질소산화물(NO_x), 일산화탄소(CO), 휘발성 유기화합물(VOCs)의 광화학반응에 의해 생성되는 대표적인 2차 대기오염물질이다. 성층권의 오존은 비교적 단파의 자외선을 흡수하는 특성으로 태양으로부터 유입되는 유해 자외선이 지표에 도달하는 것을 막아주는 역할을 하기에 보존되어야 하지만 대류권 오존은 오존 자체가 가진 높은 반응성에 의해 인간의 건강 및 생태계 등에 악영향을 줄 수 있어 유해물질로 관리되어오고 있다(Arneth et al., 2010; Nuvolone et al., 2018; Zhang et al., 2019). 최근, 전구물질 중 NO_x는 중국을 포함한 동아시아 인위적 배출량이 꾸준히 감소함에 따라 대기 중 농도가 감소하는 추세이며(Kim and Lee, 2018; Park et al., 2021), 다른 주요 전구 기체인 VOCs 또한 뚜렷한 증가 추세가 나타나지 않음에도 오존은 중국, 한반도, 일본, 태평양을 포함한 전 지구적으로 꾸준히 증가하고 있어 새로운 환경문제로 대두되고 있다(Li et al., 2019; Lee et al., 2021).

이러한 동아시아 오존 증가에 대해서는 원인 규명을 위한 다양한 관점의 연구들이 수행되어 오고 있다. 먼저, 오존이 전구물질들의 비선형적인 화학반응의 결과로 생성되는 것에 착안하여, 주로 NO_x-VOCs의 대기 중 농도 혹은 배출량의 비율을 통해 NO_x-limited regime과 VOC-limited regime을 분류하여 각 환경에서의 전구 기체 농도 저감이 오존 증감에 미치는 인과 관계를 분석하는 연구들이 수행되어왔다(Milford et al., 1989; Kleinman, 1994). 이러한 연구들에서는 NO_x-limited regime 환경에서는 NO_x 저감으로 오존을 효과적으로 저감할 수 있지만, VOC-limited regime 환경에서는 NO_x 저감이 오히려 오존을 증가시키는 결과를 초래할 수 있으며, 오존 저감을 위해서는 반드시 VOCs 배출량 저감이 필요하다는 결과들을 보고하였다(Jin et al., 2015; Baek et al., 2023; Ji et al., 2024). 최근에 VOCs 중 하나인 포름알데히드(HCHO)의 위성 측정자료와 이산화질소(NO_2) 위성자료를 활용한 Formaldehyde to NO_x Ratio (FNR) 분석을 수행하여 오존생성에 대한 전구물질의 민감도 분석이 수행되었으며, Lee et al.(2021, 2022)에서는 FNR 분석을 기반으로 주로 VOC-limited regime 혹은 NO_x-saturated 환경으로 구분되는 동아시아 주요 대도시에서는 최근 NO_x에 대한 활발한 규제 정책이 오히려 오존의 증가를 불러올 수 있음을 밝혔다. 또한, 한국 내에서도 서울과 부산 등 대도시에서의 질소산화물의 감소는 NO_x-VOCs 비율의 변화를 유도하여, 각 지역별 오존 생성 환경의 차이가 오존 농도 변화에 기여한다는 연구가 보고된 바 있다(Jang et al., 2023).

또한, 중국에서 배출되고 생성된 오존이 주변 지역으로 장거리 이동됨으로써 풍하 지역의 오존 증가에 영향을 줄 수 있다는 보고가 되어왔다(Parrish et al., 2004; Zhang et al., 2008; Cooper et al., 2010, 2011; Jaffe et al., 2018). 한국은 중국의 동쪽에 위치한 근접 국가로, 중국 오존의 꾸준한 증가는 서해상을 통과하여 한국의 상공 혹은 지표로 유입될 수 있으므로 이에 대한 감시 및 정확한 예측이 필요하다. 이 외에도 Bak et al.(2022)에서는 성층권 오존의 대류권 유입에 의한 대류권 오존의 변화에 대한 분석을 수행하였으며, 특히 Ryu et al.(2022), Koo et al.(2024)에서는 한국 안면도 지점에서 캠페인 기간 축적된 오존 존데 측정 자료의 분석을 통해 3-4일의 짧은 기간 동안 성층권 오존이 대류권 5 km 이상 고도의 오존 농도 증가를 유도한 분석 결과를 발표한 바 있다.

이러한 다양한 요인들에 의해 지표 오존 농도 뿐 아니라 오존의 연직 분포가 변화될 수 있음에도 불구하고, 대부분의 선행연구들은 오존의 지표 농도 증감 분석을 위해 하나의 요인 분석에 초점을 둔 제한된 결과들을 도출하였으며, 지표 화학과정의 변화, 장거리 이동의 영향, 성층권 오존의 유입, 기상 조건의 변화 등의 다양한 요인들이 반영될 수 있는 오존의 연직 분포 증감에 대한 분석은 거의 수행되지 않았다. 한반도 오존의 연직 분포는 포항에서 장기간 측정된 오존 존데 자료에 기반한 연구들이 있으나(Hwang et al., 2007; Park et al., 2019; Park et al., 2020), 포항 측정 자료는 주 1회 주간에 수행되어 오존 연직 분포의 주/야간 및 일별 변동을 파악하기에 한계가 있다.

이에, 본 연구에서는 다양한 요인이 반영된 오존의 연직 분포 분석을 수행하기 위해 2024년 1월 29일 12시 30분, 18시 30분, 2024년 1월 30일 12시 30분, 15시 30분 총 4회의 오존 존데 측정 실험을 수행하였으며, 대기화학모델링을 통해 주/야간 오존 거동 분석 및 국외 배출/생성 오존의 유입, 성층권 오존 유입, 기상조건에 따른 지표 생성 오존 증감 등에 대한 다양한 분석을 수행하고자 하였다. 뿐만 아니라, 이러한 시공간 해상도가 조밀한 오존의 연직 분포에 대한 측정 정보가 추후 지역규모 대기화학모델의 오존 모의 정확도 향상에 기여할 수 있는 부분에 대한 논의를 제시하였다.

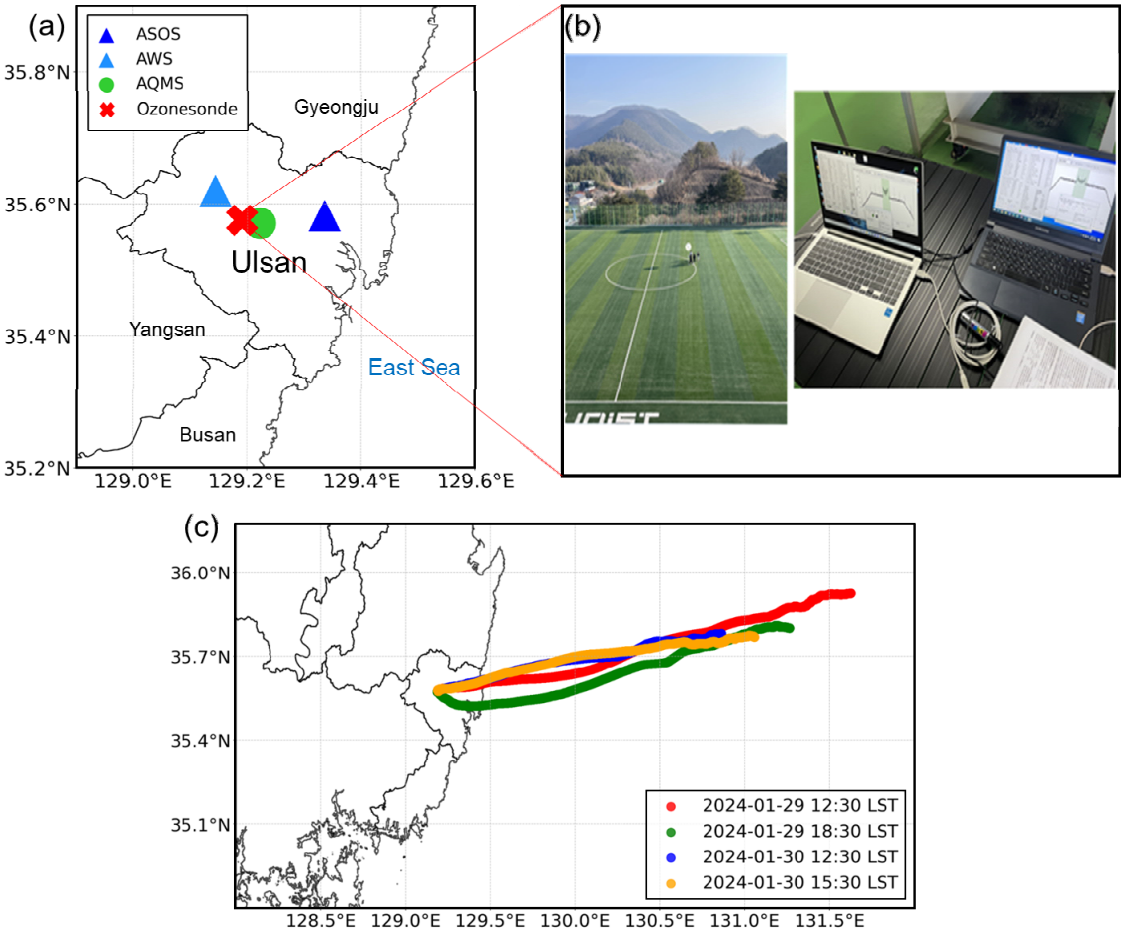


Fig. 1. (a) Locations of two meteorological observation sites (ASOS and AWS), an air quality measurement site (AQMS), and an ozonesonde launch site. (b) The stadium at UNIST where the ozonesondes were launched (Left) and the ground receiving system (Right). (c) Trajectories of four launched ozonesonde balloons.

2. 자료 및 방법

2.1. 오존 존데 측정 실험

한국에서는 포항에서 주 1회 측정한 장기간의 오존 존데 측정 자료가 축적되어있으며, Asian Summer Monsoon Chemical and Climate Impact Project (ACCLIP), Satellite Integrated Joint Monitoring of Air Quality (SIJAQ), Airborne and Satellite Investigation of Asian Air Quality (ASIA-AQ) 캠페인 집중 관측 기간에 대해서는 일 1회 측정이 수행된 바 있다. 그러나, 주/야간 오존 생성/소멸 화학 과정의 변화 및 시시각각으로 변화하는 기상 조건에 의해 오존의 축적 혹은 주변 지역으로의 이류/확산 영향을 파악할 수 있는 조밀한 시간 해상도의 오존 연직 분포 자료는 측정되지 않아 연속적인 거동을 확인하는 데에는 한계가 있다.

또한, 오존은 광화학반응의 결과로 발생하므로, 주간과 야간의 농도 변화가 뚜렷한 화학 생성 특성과 주간의 강한 일사로 연직 혼합 또한 활발해지고 야간에는 야간안정층의 고도가 낮아 상대적으로 지표에 대기오염물질의 농도가 축적될 수 있는 기상학적 특성을 고려하여, 주간과 야간의 오존의 연직 구조를 파악하고

자 하였으나 오존 존데를 주/야간으로 측정한 자료는 전무하여 본 연구에서는 야간을 포함한 일 2회 2일에 대한 오존 존데 측정 실험을 수행하였다.

이러한 주/야간의 오존 존데 측정에는 오존 존데 센서를 비양하기 위한 풍선의 크기를 고려하여 비행 금지 구역을 최대한 피하는 지점을 선택하여야 하며, 오조나이저 기기, 지상 수신 안테나, 풍선 비양에 필요한 헬륨가스 보관통 등의 많은 보조 장비들의 이동이 용이한 측정 장소를 선정하였다. 이에, 비행금지 구역과 거리가 있으며 장비 설치 및 공간 활용에 대한 허가를 쉽게 얻을 수 있었던 울산과학기술원 대운동장을 측정 지점으로 선정하여 오존존데 측정 실험을 수행하였다. 또한, 오존 측정 센서의 초기화, 중간 점검, 최종 점검 등의 사전 준비 기간을 가졌으며, 이러한 사전 준비부터 비양까지의 모든 과정은 Ryu et al.(2022)의 선행연구에서 기술된 오존 존데 측정 실험 지침에 기반하여 수행되었다. 오존존데 비양시에는 오존 측정 뿐 아니라, 연직 기상변수 확인을 위한 라디오존데도 함께 부착하여 비양하였다.

겨울철은 강한 하층 바람을 따라 오존의 수평이동 및 연직 대기 운동에 따른 오존 변화를 확인하기 적합할 것으로 판단되어, 2024년 1월에 연속 측정을 수행하였다. 총 4회의 측정은 1) 2024년 1월 29일 12시 30분 2) 2024년 1월 29일 18시 30분 3) 2024년 1월 30일 12시 30분 4)2024년 1월 30일 15시 30분의 기간에 대해 수행하였다(Fig. 1).

4회의 실험은 모두 수평은 울산~동해 인접 연안의 범위 내에서 연직으로 30 km 정도의 성층권 고도까지 측정이 잘 되었으며, 비양 시작 시간부터 약 2시간에 걸쳐 측정은 이루어졌다.

2.2. 지상 농도 측정망 및 지상 기상 관측 자료 수집 및 분석

대류권 상/하층의 오존 농도는 지상에서 배출되는 전구 기체 뿐 아니라, 광화학반응으로 형성된 지표 및 대류권 하층의 오존이 연직 혼합/확산을 통해 대류권 상부에 미치는 영향, 그리고 원거리에 위치한 고배출 지역의 오존이 장거리 수송을 통해 풍하지역에 미치는 영향 등 다양한 과정에 의해서 결정되므로, 이러한 구분을 위해 지상 농도 측정망 자료에서 측정된 지표 오존 농도도 함께 활용하였다. 뿐만 아니라, 오존 지상 농도 측정망 자료는 모델에서 모의된 오존 농도, 질소산화물의 농도에 대해, 시간 변화와 일변동을 정확하게 모의하였는지에 대한 모의 능력 평가 수행에 활용하였다.

사용된 지상 농도 측정망 자료는 오존의 주/야간 변동 및 일 변동을 파악하기 위한 사례분석에 활용하였으므로, 환경부 도시대기측정망(Air Quality Monitoring Station, AQMS) 중 오존 존데 측정 실험이 수행되었던 울산과학기술원과 가장 인접한 범서읍 지점(측정소 코드 238378, 북위 35.571°, 동경 129.222°)에서 1시간 단위로 측정된 농도 자료를 사용하였다. 또한, 상/하층 오존 농도 변화를 이해하기 위해서는 기온, 바람 등 오존 생성과 이류/확산에 영향을 줄 수 있는 기상인자에 대한 분석이 반드시 필요하다. 이를 위해, 오존 존데 측정 지점의 최근접 지상 방재기상관측(Automated Weather Stations, AWS) 지점인 두서 지점(기관지점번호 900번, 북위 35.620°, 동경 129.144°)과 울산 종관기상관측 (Automated Surface Observing System, ASOS) 지점(기관지점번호 152, 북위 35.582°, 동경 129.335°)에서 매 시간 측정된 풍향, 풍속, 기온, 강수 변수를 추가로 분석하였다.

2.3. 지역규모 대기화학모델 실험 설계

오존의 연직 분포 측정 자료 뿐 아니라, 대기화학 수송모델의 연직 분포 모의 정확도도 함께 분석하였다. 본 연구에서는 현업 대기질 예보 모델로 활용되고 있는 온라인 지역규모 대기화학모델인 Weather Research and Forecasting (WRF) model coupled with Chemistry (WRF-Chem) (Grell et al., 2005; Skamarock et al., 2019)을 활용하여 수치실험 및 결과 분석을 수행하였다. WRF-Chem 모델은 미규모부터 대규모의 현상을 모의할 수 있는 시·공간 고해상도를 구성할 수 있으므로, 본 연구에서는 동아시아 27 km 해상도-한반도 9 km 해상도의 둥지격자 체계의 모의 영역(Fig. 2)을 구성하여 수치모의 실험을 수행하였다. 자연 배출량 자료로는 Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature(MEGAN) v.2.04를 사용하였으며, 인위적 배출량 자료는 ASIA-AQ 배출량 인벤토리(https://espo.nasa.gov/asia-aq) 기반 자료를 활용하였다. 본 연구에 사용된 입력 자료 및 모델 실험의 물리 화학 스킴의 상세한 구성은 Table 1로 정리하였다.

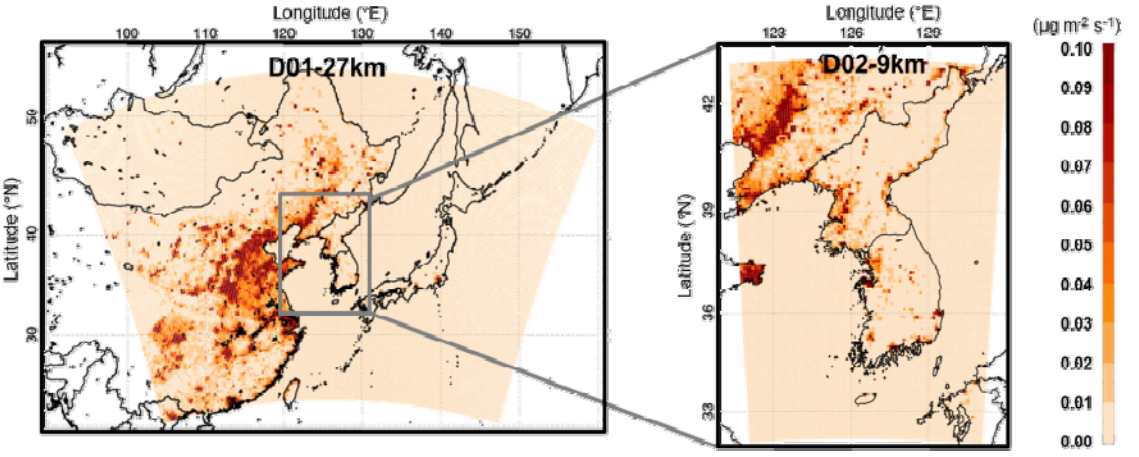


Fig. 2. WRF-Chem model domains with spatial distribution of $PM_{2.5}$ emissions used in this study.

Table 1. Summary of physical and chemical schemes used in WRF-Chem simulation

Meteorological IC & BC	NCEP/FNL 0.25° × 0.25° reanalysis data	
Physical options	Microphysics	Lin et al.
	Longwave radiation	RRTM
	Shortwave radiation	Goddard
	Surface layer	Monin-Obukhovsimilarity
	Land surface	Unified Noah Land surface model
	Planetary boundary layer	YSU
	Cumulus parameterizations	Grell3D ensemble
Chemical mechanisms	Gas phase	NOAA/ESRL RACM
	Aerosols	MADE/VBS
Emissions	Anthropogenic	ASIA-AQ v3.0
	Biogenic	MEGAN v.2.04

2.4. 전지구 대기화학모델 자료

지역규모 대기화학 수송모델의 오존 연직 구조 불확도의 다양한 원인을 분석하기 위해, 전지구 대기화학모델의 예측 자료도 함께 분석을 수행하였다. 현재 대기질 예보를 위한 현업에서 사용하는 3차원 지역규모 대기화학수송모델의 경우, 성층권의 정보를 포함하지 못하는 한계가 있으나, 전지구 대기화학모델은 성층권의 오존층 정보와 대류권 상부~성층권 하부에 이르는 대기 순환/교환을 적절히 모의할 수 있다.

따라서, 이러한 성층권 정보의 누락이 오존의 상층 모의 불확도에 미치는 영향을 확인하기 위해, 미국 National Center for Atmospheric Research (NCAR)의 Whole Atmosphere Community Climate Model (WACCM) 예측 자료를 수집하여 비교 분석에 활용하였다. WACCM 자료는 전지구 대기화학모델이므로, 1.25°의 수평해상도와 88개의 연직층, 6시간 간격으로 결과가 제공되어 상대적으로 시·공간 해상도는 낮은 편이지만, 성층권 오존과 관련된 많은 연구들에서 널리 활용되어오고 있어(Marsh et al., 2016; Tartaglione et al., 2020), 본 연구에서는 성층권 유입 오존 영향을 파악하기 위해 사용하였다.

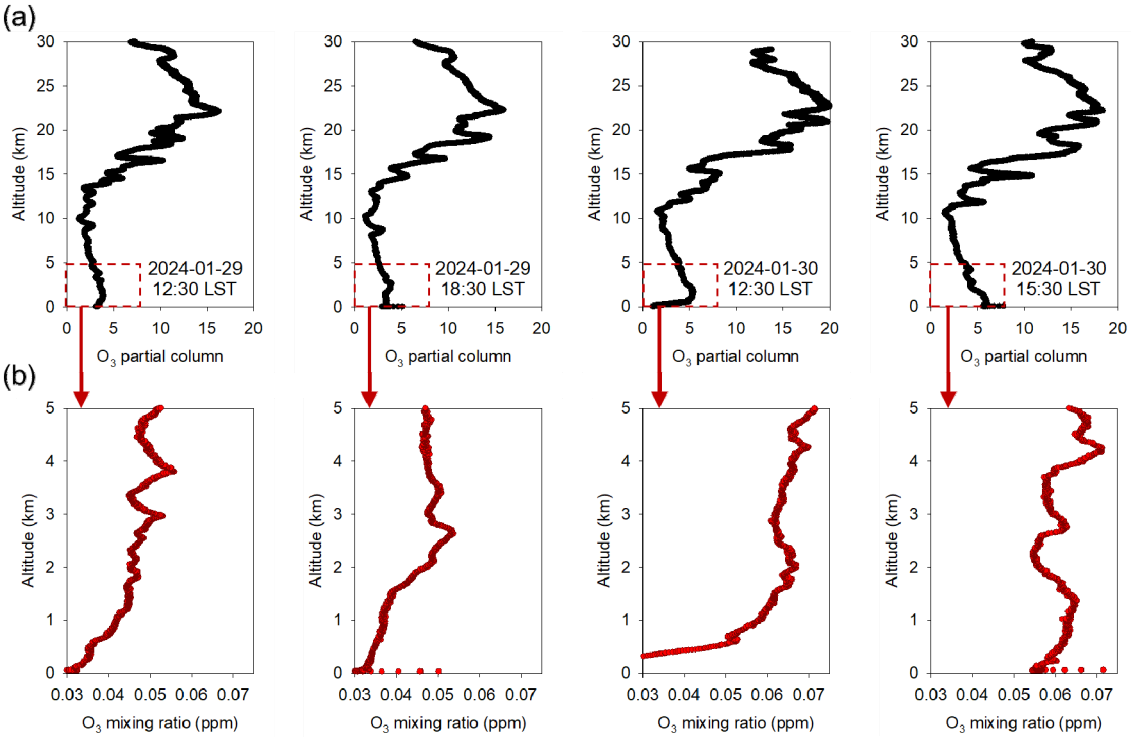


Fig. 3. Vertical distributions of ozone concentrations measured by four ozonesonde launches conducted from January 29 to 30, 2024. (Top) O_3 partial columns from the surface up to the balloon bursting altitude (~ 30 km). (Bottom) O_3 mixing ratios in the lower troposphere below 5 km.

3. 결 과

3.1. 오존의 주/야간 및 일변동 연직 구조

4회의 측정 실험 결과의 연직 분포를 살펴보면, 지표~ 성층권 범위의 전층의 오존 연직 분포가 측정되었으며 (Fig. 3(a)), 모든 측정에서 약 23 km에서 최댓값이 나타나는 15~30 km의 대기 상층 오존 분포의 대략적인 구조는 크게 변하지 않음을 확인할 수 있었다. 그러나, 약 15 km 부근의 오존 농도는 29일에 비해 30일에 대체로 증가한 추세를 보였으며, 30일의 2회의 측정 모두에서 2차 피크의 분포를 나타내어, 상층(성층권) 오존의 하부 유입 가능성을 보여주었다.

Fig. 3(b)의 대기 하층의 경우, 29일의 12시 30분부터 측정된 오존 분포에서는 1~3 km 사이의 고도에 오존이 잘 혼합이 되어져서 연직으로 유사한 농도 분포를 보이는 것을 확인할 수 있었으며, 29일 18시 30분 측정의 야간 오존 연직 분포는 2~3 km의 잔류층 혹은 수평이류로 추론되는 2~3 km 고도의 다소 높은 오존 농도 부분을 제외한 지표 부근 1 km 이내 오존은 농도가 감소된 것을 확인할 수 있었다. 또한, 1월 30일 12시 30분 측정과 비교하여 1월 30일 15시 30분 측정의 경우에는 하층에는 대기 경계층 내의 연직 혼합을 잘 측정한 것으로 확인되며, 3 km 부근에서 나타난 두 번째 피크의 경우 다른 지역에서의 유입과 관련이 있을 수 있으며, 이외에도 1~5 km 사이에서만 4개 정도의 피크가 확인되어 복잡한 연직 구조를 확인할 수 있었다.

뿐만 아니라, 1월 29일 12시 30분 측정과 1월 30일 동 시간대 측정된 오존 연직 분포 비교를 통해, 주/야간 차이 뿐 아니라 매일의 주요 기상 변수들의 일변화에 따른 상/하층 오존 농도 분포에 영향을 미치는 부분을 확인할 수 있다. 1월 29일 12시 30분 측정의 경우, 상/하층 농도의 경사도가 크지 않으며, 대기 경계층 내(약 1.5 km 이내) 농도가 0.05 ppm 이하로 비교적 낮은 수준이었으나, 1월 30일 12시 30분 측정 자료에서는

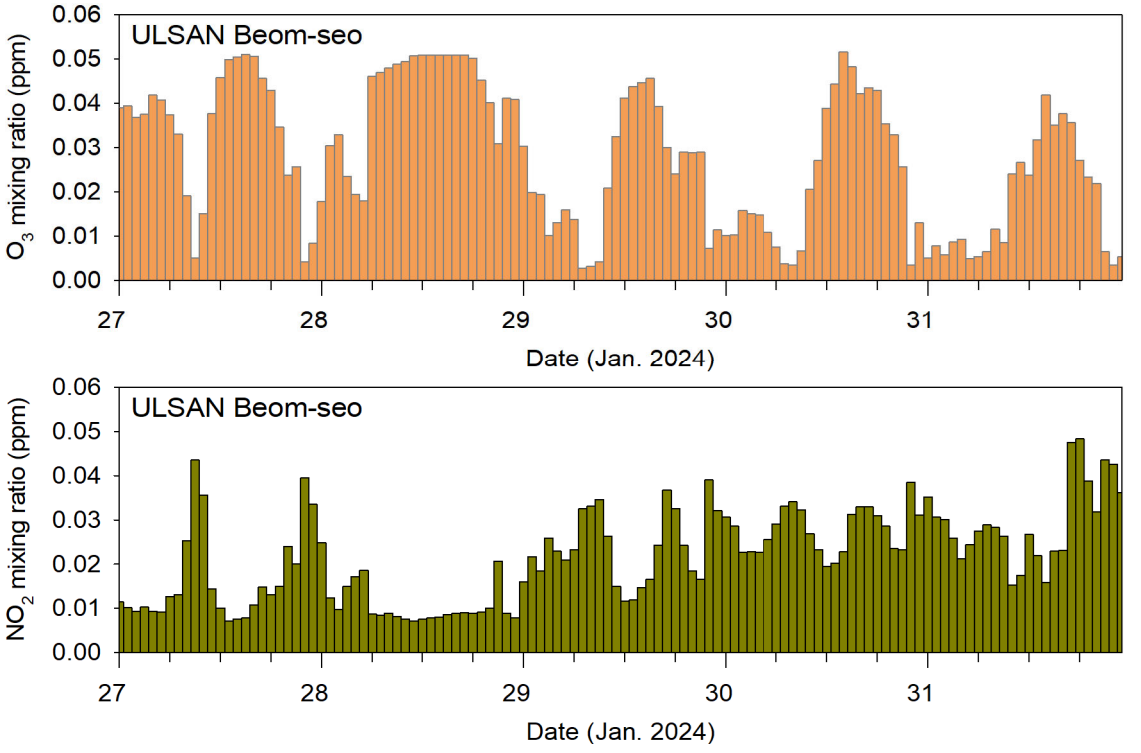


Fig. 4. In-situ surface concentrations of (Top) O_3 and (Bottom) NO_2 at Ulsan Beomseo-eup site from the Urban Air Quality Monitoring Station (AQMS).

0.07 ppm까지 증가한 결과가 나타났으며, 전반적으로 1 km ~ 5 km까지 전반적인 고농도 수준이 연직으로 유사하게 측정된 것을 확인할 수 있어, 대기 상층 오존 영향의 가능성을 보여주었다.

이러한, 매일의 주/야간의 변화하는 하층 오존의 거동을 상세하게 파악하기 위해, 지상 측정 오존의 시간 변화를 분석하였다(Fig. 4). 지상 측정 오존은 1월 27일~31일까지 오존의 농도 증감 패턴의 일변화가 나타났다. 1월 28일의 경우 야간까지 고농도 오존이 지속되었으며, 대체로 29일~31일까지는 오전 6~9시에 낮은 농도가 관측되었다가 10시부터 서서히 증가하여 저녁 20시 정도까지 고농도 수준이 유지가 되는 일 변화 경향이 나타났다. 특히, 29일의 15시에 일 최고 농도인 0.456 ppm 수준이 나타났으나, 18시에는 지표 오존이 0.240 ppm으로 급격하게 감소하였으며 이에 따라 앞서 29일 야간 오존 존데 측정에서 1 km 이하의 대기 하층에서의 오존 농도 감소와 일치하였다.

Fig. 4에 나타낸 것과 같이, 오존의 전구 기체인 이산화질소 농도의 일변화에서도 28일의 고농도 기간에서는 낮은 이산화질소 농도가 나타났으나, 29~31일까지는 유사한 수준의 농도 변화가 나타났다. 29일은 낮 시간에 이산화질소 농도가 낮아지고 오존이 증가하는 패턴이 두 물질의 측정 농도 변화에서 나타나지만, 30일 경우는 낮시간 이산화질소 농도 감소가 뚜렷하게 나타나지 않았음에도 높은 오존 농도가 나타났다. 결과적으로는 1월 29일과 30일의 지상 측정 오존 농도의 변화 패턴은 큰 차이를 보이지 않았으나, 오존 존데로 측정된 연직 구조는 큰 변동을 보였으므로, 이에 대해 기상학적 특성을 추가적으로 분석하고자 한다.

3.2. 기상 패턴의 변화가 상/하층 오존 연직 구조에 미치는 영향

오존 연직 분포의 주/야간 변동과 일 변화에 영향을 미치는 주요 요인들을 살펴보기 위해, 지상 기상 요소들을 분석하였다(Fig. 5). 1월 29일~30일의 주/야간 변화

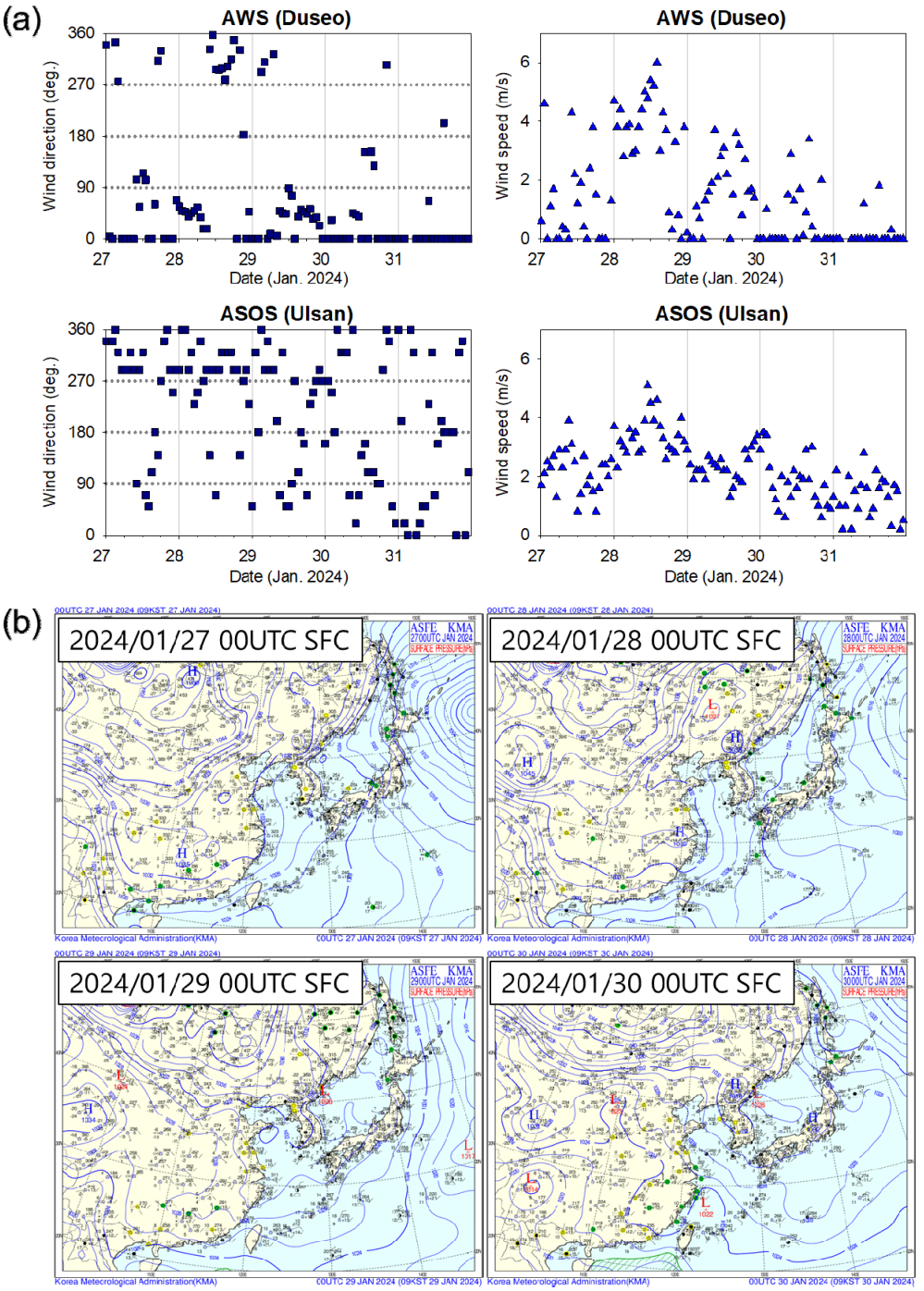


Fig. 5. (a) Time series of wind direction (degrees) and wind speed (m/s) observed at the AWS and ASOS stations closest to the UNIST main stadium. (b) Surface weather charts depicting atmospheric conditions from January 27 to 30, 2024.

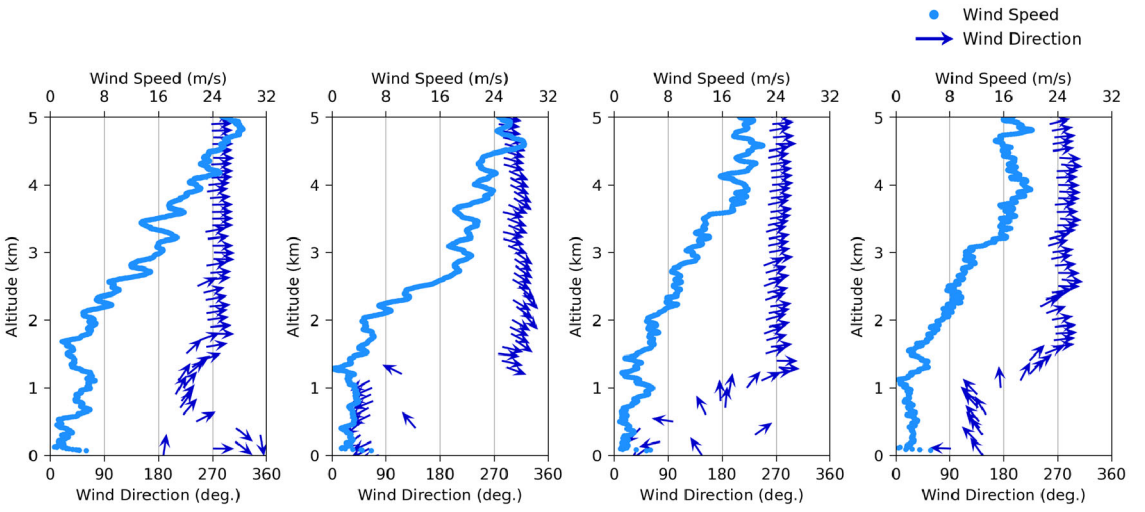


Fig. 6. Same as Fig. 3(b), but for radiosonde profiles of wind direction (blue arrow, unit: degree) and wind speed (light blue dot, unit: m/s).

를 제외한 기온 변화에서는 큰 차이가 없었으며, 양일간의 강수는 없었다. Fig. 5에 제시된 바와 같이, 두 지점에서 모두 28일에는 풍속이 두서 AWS 측정소는 최대 6.0 m/s, 울산 ASOS 측정지점은 5.1 m/s 수준으로 비교적 높은 편이었으나 1월 29일~30일에는 풍속이 전반적으로 감소하였으며, 특히 오존 존데 측정 지점과 가장 근접한 두서 측정소의 풍속은 30일에는 '고요(calm)' 수준의 풍속이 빈번히 측정되었다. 뿐만 아니라, 울산 ASOS 측정 지점과 두서 AWS 지점에서의 풍향은 차이를 보였으며, 이를 통해 이동성 고/저기압 통과에 따른 바람 변화보다는 각 지역 특성과 관계된 국지바람이 측정될 가능성을 확인하였다. 2024년 1월 29일~30일의 지상 일기도에서도 울산을 포함한 남동권은 등압선의 간격이 넓어 풍속이 약하고 국지 순환이 뚜렷할 것으로 추론되었다. 울산 ASOS 지점에서는 29~30일 기간 동안 야간은 북 혹은 북서 기류, 주간에는 남 혹은 남동 기류가 측정되는 뚜렷한 구분이 나타났다. 이에 비해, 두서 AWS 지점에서는 28일까지는 북 혹은 북/서 기류가 뚜렷하였으나, 29일에는 북 혹은 북/동풍 계열의 바람이 빈번히 측정된 것으로 나타났다. 오존존데 측정 지점을 기준으로 서쪽은 신불산과 언양 주변의 산업 시설들이 위치하며, 동쪽으로는 주거지역/도심 혹은 동해가 있으므로, 동/서 기류 변화에 따라 지상 오존 농도 변화가 클 것으로 추론된다. 28일은 앞서 살펴본 지상 오존의 높은 농도, 이산화질소의 낮은 농도로 미루어 강한 북서기류를 통해 주변에서 생성된 오존의 유입가능성이 있으며, 29일은 동풍을 따라 주거/도심지역에서 오존 유입의 영향, 30일은 풍속이 약하여 대기 정체 영향을 받을 수 있을 것으로 나타났다.

오존 존데와 함께 비양된 라디오존데 센서로부터 측정된 연직 바람장 또한 분석하였다(Fig. 6). 29일의 12시 30분와 18시 30분 측정 실험의 경우, 1 km 이하의 하층에서 뚜렷한 풍계의 변화가 나타났으며, 주간(12시 30분)에는 500 m 이하 대기층에서 고도 증가에 따라, 남풍 → 서풍 → 북풍의 풍계 변화를 겪었으나, 풍속은 5 m/s 이하로 낮은 수준이었으며, 1 km 이상의 고도에서는 서풍이 꾸준하게 측정되었다. 야간(18시 30분) 측정에서는 1 km 이하의 고도에서 동풍 혹은 북풍의 기류가 측정되었으며, 풍속은 주간과 마찬가지로 약한 바람 수준이었다. 30일의 12시 30분에는 하층에서 북풍 → 동풍 → 남풍 → 서풍으로 풍향이 급격하게 변화하였으며, 15시 30분에는 주로 남동 기류가 꾸준히 측정되었다. 대체로 모든 측정 실험에서 1.5 km 이상의 고도에서의 서풍은 동일하게 나타났으며, 지상 풍향은 빈번히 변화를 겪었으나 풍속이 낮아 지상 바람이 오존의 연직 구조 변화에 미치는 영향은 크지 않을 것으로 추론된다.

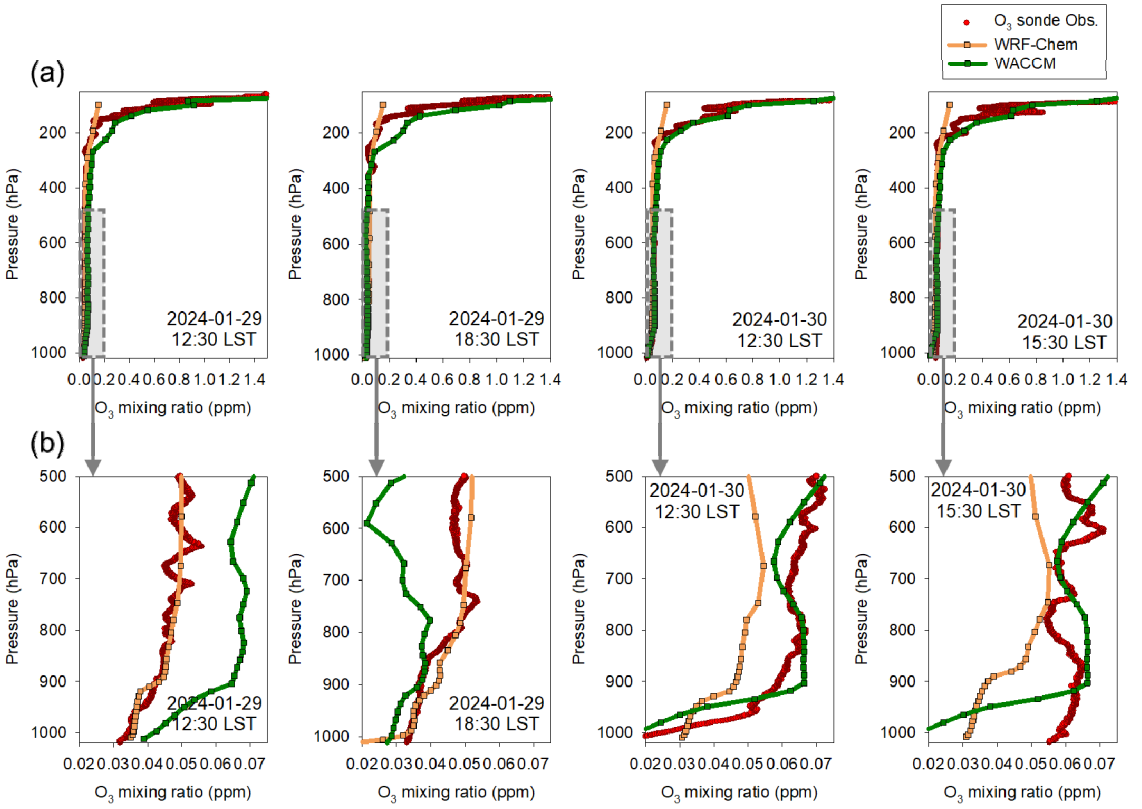


Fig. 7. Comparisons of WRF-Chem (orange) and WACCM (green) simulations with four ozonesonde soundings (red) from the surface up to the balloon bursting altitudes. The bottom panels are zoomed into the lower troposphere up to 500 hPa.

3.3. 오존 연직 분포 변동의 모의 불확도: 성층권 오존 유입의 영향

4회 측정에서 나타난 오존 연직 분포 변화에 영향을 주는 주요 요인이 지표에서 생성된 오존이 연직 혼합을 통해 연직 구조 변화에 기여한 것인지, 혹은 상층의 장거리 이동에 따른 영향인지, 혹은 성층권 오존의 유입의 효과인지에 대한 분석을 보다 상세하게 수행하고자 대기화학 수송모델을 활용하여 분석하고자 하였다. 특히, 지표 측정 오존의 농도가 거의 변화가 없었던 결과와 지표 부근 혹은 1 km 이하의 경계층 내 풍속이 낮았던 결과를 고려하면, 지표 오존의 연직 혼합으로 인한 오존 연직 분포의 큰 차이는 없었을 것으로 추론된다. 이에, 오존의 장거리 이동 혹은 상층 오존의 유입을 확인하기 위해 성층권 오존의 거동이 반영되었으나 수평해상도가 조밀하지 못해 하층 오존의 모의 불확도가 높은 전지구 화학 수송모델(WACCM)과 대기 상층 오존 유입은 포함하지 못하지만 지표 부근의 오존 생성 및 수평 이류/확산, 연직 혼합 등의 상세한 고려가 가능한 지역규모 대기화학수송모델(WRF-Chem) 수치 실험 결과를 비교 분석하였다.

Fig. 7(a)에서 나타난 대기 전층에 대한 오존 분포는 200 hPa 등압면 위의 상층에서는 WRF-Chem이 오존 농도를 과소모의하였고, WACCM은 고도에 따른 변화 경향을 잘 모의한 것으로 나타났다. 그러나 Fig. 7(b)에서 나타난 500 hPa 등압면의 하층에서 나타난 변화를 살펴보면, 두 모델간의 뚜렷한 차이와 오존 연직 분포의 모의 불확도를 확인할 수 있다. 특히, 주목할 부분은 1월 29일의 주간, 야간 측정과 WRF-Chem 연직 오존 모의 결과는 높은 일치도를 보인 반면, WACCM은 오존을 낮 시간 동안 2배 가량 과대모의, 야간에는 대기 중층(약 800~500 hPa 고도)에서 3배 이상 과소 모의

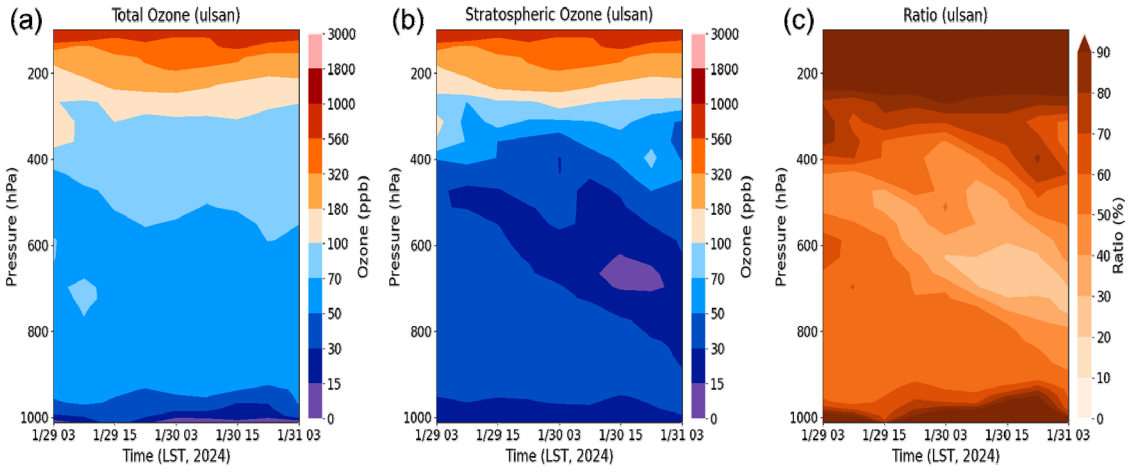


Fig. 8. WACCM simulations of ozone profiles (January 29-31, 2024) (a) with and (b) without the contribution of tropospheric origin, along with (c) the ratio (stratospheric ozone contribution).

하는 경향이 나타나 모델과 측정의 차이가 큰 것으로 나타났다. 이러한 WACCM의 낮은 모의 정확도는 6시간 간격의 모델 결과 제공의 특성상 12시 30분의 경우는 15시 자료를, 18시 30분의 경우는 21시의 WACCM 결과를 비교 분석에 활용한 것이 일부 오차에 기여했을 것으로 보여진다. 또한, 주간과 야간의 지표 부근 농도 증감 패턴을 잘 모의함으로써 지역규모 대기화학모델(WRF-Chem)이 오존의 주/야간 화학 과정, 연직 혼합과 관련된 대기경계층의 주/야간 변동 등을 잘 반영하고 있음을 확인할 수 있었다.

이와 반대로, 1월 30일의 경우는 두 번의 측정에 대해 WACCM 결과가 900 hPa 이하의 고도에서 0에 가까운 낮은 농도 수준을 모의한 것을 제외한 900 hPa 등압면 상부 고도에서는 관측 농도 수준을 잘 모의한 것으로 나타났다. 지표부터 900 hPa의 대기경계층 내의 오존 농도는 두 모델이 모두 모의 실패를 나타냈으며, 30일 사례에서의 대기경계층 하부의 기상 모의 불확도에 의한 영향으로 판단된다. 30일 12시 30분와 15시 30분의 약 700~800 hPa 등압면 인접 층에서는 WRF-Chem의 모델 오차가 감소하였으나, 700 hPa 위의 상부 고도에서는 2배 이상 과소모의된 결과가 나타나 29일에 비해 WRF-Chem의 상층 모의 불확도를 뚜렷하게 보여주었다.

30일 사례에 대해 WRF-Chem 결과에서 나타난 하층 500~700 hPa 고도의 오존 모의 불확도는 상층 오존 유입에 따른 모의 실패 사례로 추론되어, 이에 대해 WACCM 모델 결과에서 WACCM의 모의 결과에서 성층권 오존의 하층 오존 농도의 기여도를 추가로 분석하였다(Fig. 8). Fig. 8(c)에 제시된 성층권 오존의 기여도는 전체 오존 농도에서 차지하는 성층권 오존 농도의 비율을 계산함으로써 각 연직층의 성층권 오존 기여도를 확인하였다. 먼저, Fig. 8(b)에서 나타난 것과 같이, 1월 29일에 비해, 30일 3시부터 31일까지 400 hPa~600 hPa 사이에 성층권 오존이 대류권으로 유입되는 부분을 확인할 수 있었다. 특히, 1월 30일 600 hPa~800 hPa 근처에서는 성층권 영향이 20%로 낮게 나타났는데(Fig. 8(c)), 이 때 해당 고도에서 WRF-Chem은 오존 존데와 가장 유사한 농도를 모사한 것으로 미루어 30일 700 hPa 위의 층에서 나타난 WRF-Chem 모의 실패의 주요 원인은 성층권 정보의 누락에서 기인된 것으로 판단된다. 따라서, 지역규모 대기화학 모델의 오존 연직 구조는 성층권 오존의 기여도에 따라 오차가 크게 나타날 수 있음을 확인하였으며, 이는 각 날짜, 시간에 따라 다르게 나타날 수 있어, 전지구 규모 화학모델 결과에서 성층권 오존의 기여도가 크게 나타나는 연직층, 시간대를 고려하여 오차 보정에 고려하여야 함을 시사한다.

4. 결 론

오존의 연직 분포는 지표 부근에서 전구기체들의 광화학반응으로 생성되어 상층으로 연직 혼합되는 과정, 고농도 지역에서 풍하지역으로 대기경계층 위를 따라 수평 이동 하는 과정, 대기 상부 운동으로 인해 성층권 오존의 하부 유입 과정 등의 다양한 원인에 의해 영향을 받을 수 있다.

본 연구에서는 이러한 다양한 과정들이 오존의 연직 분포 주/야간 및 일변동에 미치는 영향을 분석하기 위해, 오존 존데 측정 실험을 수행/분석하고 결과를 활용하여 대기화학수송모델의 오존 연직 분포 모의 불확도를 평가하였다. 오존 존데 실험은 비양에 적절한 조건을 갖춘 울산 지역에서 수행되었으며, 존데 측정자료의 하층 오존 변동의 상세 분석을 위해 환경부 에어코리아의 대기오염 측정망 자료와 ASOS, AWS의 기상 데이터 관측 자료를 활용하였다. 대기화학수송모델의 연직 분포 모의 불확도 진단을 위해서는 성층권 오존 거동이 반영된 전지구 대기화학모델(WACCM) 결과와 상세 화학과정 및 기상 변화를 잘 반영할 수 있는 지역규모 대기화학모델(WRF-Chem) 모델 결과를 비교 분석하였다.

2024년 1월 29일과 30일 양 일간 총 4회 수행된 오존 존데 측정 결과에서는 4회 모두 주/야간 및 일변동에 따라 5 km 이하의 하층 오존의 연직 분포가 크게 달라지는 것을 확인할 수 있었다. 오존의 주간에 비해 야간에는 1 km 이하의 하층 오존은 뚜렷한 감소, 상층에는 잔류오존이 체류할 수 있음을 확인할 수 있었으며, 29일과 30일의 낮시간 측정 결과 비교를 통한 일변동에서는 5 km 이하의 전반적인 오존 농도 증감의 경도가 크게 달라 질 수 있음을 확인하였다. 오존 존데 측정 기간 동안 지표를 포함한 대기 하층 풍속은 낮은 수준이며, 풍향이 빈번히 바뀌어 특정 고배출 지역으로부터의 오존의 장거리 이동에 의한 영향은 적을 것으로 분석되었다.

이에, 대기화학수송모델의 연직 오존 모의 정확도 평가와 함께 모델로 모의된 성층권 오존의 거동 분석을 통해, 존데로 측정된 오존 연직 분포 일변동을 해석하고자 하였다. 먼저 WRF-Chem은 성층권 정보를 포함하지 못하는 한계가 있으므로, 200 hPa 이상의 고도에서는 성층권 오존 농도 수준을 WRF-Chem이 약 7배 이상 과소 모의하였고, WACCM 결과에서는 고도에 따라 급증하는 추세가 잘 모의된 것을 확인하였다. 또한 WACCM으로 모의된 오존 연직 분포에 성층권 오존의 기여도 분석에서는 29일에 비해 30일의 기여도가 높게 나타났으며, 이러한 영향으로 29일의 오존 연직 분포의 예측 정확도가 높았던 WRF-Chem 모델이 30일의 경우에는 측정 농도와 큰 차이를 보였으며, 성층권 오존 농도의 기여도가 낮은 연직 층에서 비교적 오차가 적게 나타난 결과를 확인하였다.

본 연구는 대류권 상부의 성층권 오존이 직·간접적으로 대류권 하부의 오존 농도 및 오존 연직 분포에 기여할 수 있는 가능성을 보여준 연구로, 향후 오존의 장기 변동 및 장거리 이동 거동 분석에 성층권 오존 유입에 대한 고려가 필요함을 제시할 수 있다. 향후, 본 연구와 같이 연속적인 오존 존데 실험을 추가로 수행함으로써 다수의 사례에 대한 오존의 연직 분포 정보를 축적하여 모델 검증을 충분히 수행하고자 한다. 이러한 결과들은 위성자료 산출 알고리즘 개발, 대기질 예보 개선 등 보다 정확한 오존의 연직 분포가 필요한 분야에서 하층의 지역규모 화학모델 결과와 상층의 전지구 화학모델의 결과를 함께 활용된 오존 연직 분포 제공을 통해 보다 정확한 상·하층 오존 농도 정보를 제공할 수 있을 것으로 판단된다.

감사의 글

이 논문은 부산대학교 기본연구지원사업(2년)에 의하여 연구되었습니다.

REFERENCES

Arneth, A., Harrison, S. P., Zaehle, S., Tsigaridis, K., Menon, S., Bartlein, P. J., Feichter, J., Korhola, A., Kulmala, M., O'donnell, D., Schurgers, G., Sorvari, S., Vesala, T., 2010, Terrestrial biogeochemical feedbacks in the climate system, Nat. Geosci., 3, 525–532.

Baek, S. H., Lee, H. Y., Kim, C. H., 2023, Analysis of photochemical ozone formation regime in Busan-comparative study on Busan vs. Seoul Metropolitan Arean (Ⅳ), Int. J. Environ. Sci., 32, 285-301.

Bak, J., Song, E. J., Lee, H. J., Liu, X., Koo, J. H., Kim, J., Jeon, W., Kim, J. H., Kim, C. H., 2022, Temporal variability of tropospheric ozone and ozone profiles in the Korean Peninsula during the East Asian summer monsoon: Insights from multiple measurements and reanalysis datasets, Atmos. Chem. Phys., 22, 14177-14187.

Cooper, O. R., Parrish, D. D., Stohl, A., Trainer, M., Nédélec, P., Thouret, V., Cammas, J. P., Oltmans, S. J., Johnson, B. J., Tarasick, D., Leblanc, T., McDermid, I. S., Jaffe, D., Gao, R., Stith, J., Ryerson, T., Aikin, K., Campos, T., Weinheimer, A., Avery, M. A., 2010, Increasing springtime ozone mixing ratios in the free troposphere over western North America, Nature, 463, 344–348.

Cooper, O. R., Oltmans, S. J., Johnson, B. J., Brioude, J., Angevine, W., Trainer, M., Parrish, D. D., Ryerson, T. R., Pollack, I., Cullis, P. D., Ives, M. A., Tarasick, D. W., Al-Saadi, I., Stajner, I., 2011, Measurement of western U.S. baseline ozone from the surface to the tropopause and assessment of downwind impact regions, J. Geophys. Res., 116, D00V03.

Grell, G. A., Peckham, S. E., Schmitz, R., McKeen, S. A., Frost, G., Skamarock, W. C., Eder, B., 2005, Fully coupled "online" chemistry within the WRF model, Atmospheric Environment, 39, 6957-6975.

Hwang, S. H., Kim, J., Cho, G. R., 2007, Observation of secondary ozone peaks near the tropopause over the Korean peninsula associated with stratosphere -troposphere exchange, J. Geophys. Res., 112, D16305.

Jaffe, D. A., Cooper, O. R., Fiore, A. M., Henderson, B. H., Tonnesen, G. S., Russell, A. G., Henze, D. K., Langford, A. O., Lin, M., Moore, T., 2018, Scientific assessment of background ozone over the U.S.: Implications for air quality management, Elem. Sci. Anth., 6, 56.

Jang, J., Lee, Y. G., Yu, J. A., Sung, K. H., Kim, S. M., 2023, Characteristic analysis of tropospheric ozone sensitivity from the satellite-based HCHO/NO_2 ratio in South Korea, Korean J. Remote Sens., 39, 563-576.

Ji, H. J., Lee, H. J., Jo, H. Y., Kim, J. M., Kim, C. H., 2024, Study on the relation of climate change-ozone in Seoul and Busan: Comparative study on Busan vs Seoul Metropolitan Area (V), Int. J. Environ. Sci., 33, 789-803.

Jin, X., Holloway, T., 2015, Spatial and temporal variability of ozone sensitivity over China observed from the Ozone Monitoring Instrument, J. Geophys. Res., 120, 7229–7246.

Kim, Y. P., Lee, G., 2018, Trend of air quality in Seoul: Policy and science, Aerosol Air Qual. Res., 18, 2141 –2156.

Kleinman, L. I., 1994, Low and high NOx tropospheric photochemistry, J. Geophys. Res. Atmos., 99, 16831 –16838.

Koo, J. H., Kim, J., Lee, D., Lee, N., Lee, D., Park, M., Lee, S. J., Kim, S. J., Kang, H., Kim, H. K., Park, J., Lee, W. J., 2024, The analysis of summertime tropospheric ozone at Anmyeon using ozonesonde measurements in 2021~2022, J. Korean Soc. Atmos. Environ., 40, 373-383.

Lee, H. J., Chang, L. S., Jaffe, D. A., Bak, J., Liu, X., Abad, G. G., Jo, H. Y., Jo, Y. J., Lee, J. B., Kim, C. H., 2021, Ozone continues to increase in East Asia despite decreasing NO_2: Causes and abatements, Remote Sens., 13, 2177.

Lee, H. J., Chang, L. S., Jaffe, D. A., Bak, J., Liu, X., Abad, G. G., Jo, H. Y., Jo, Y. J., Lee, J. B., Yang, G. H., Kim, J. M., Kim, C. H., 2022, Satellite-based diagnosis and numerical verification of ozone formation regimes over nine megacities in East Asia, Remote Sens., 14, 1285.

Li, K., Jacob, D. J., Liao, H., Shen, L., Zhang, Q., Bates, K. H., 2019, Anthropogenic drivers of 2013–2017 trends in summer surface ozone in China, Proc. Natl. Acad. Sci. USA, 116, 422–427.

Marsh, D. R., Lamarque, J. F., Conley, A. J., Polvani, L. M., 2016, Stratospheric ozone chemistry feedbacks arenot critical for the determination of climate sensitivity in CESM1 (WACCM), Geophys. Res. Lett., 43, 3928–3934.

Milford, J. B., Russell, A. G., McRae, G. J., 1989, A New approach to photochemical pollution control: Implications of spatial patterns in pollutant responses to reductions in nitrogen-oxides and reactive organic gas emissions, Environ. Sci. Technol., 23, 1290–1301.

Nuvolone, D., Petri, D., Voller, F., 2018, The effects of ozone on human health, ESPR, 25, 8074-8088.

Park, J., Kim, S. Y., Son, S. W., 2019, Evaluation of the troposphere ozone in the reanalysis datasets: Comparison with Pohang ozonesonde observation, Atmosphere, 29, 53-59.

Park, J., Shin, M., Lee, J., Lee, J., 2021, Estimating the effectiveness of vehicle emission regulations for reducing NOx from light-duty vehicles in Korea using on-road measurements, Sci. Total Environ., 767, 144250.

Park, S., Son, S. W., Jung, M. I., Park, J., Park, S. S., 2020, Evaluation of tropospheric ozone reanalyses with independent ozonesonde observations in East Asia, Geosci. Lett., 7, 12.

Parrish, D. D., Dunlea, E. J., Atlas, E. L., Schauffler, S., Donnelly, S., Stroud, V., Goldstein, A. H., Millet, D. B., McKay, M., Jaffe, D. A., Price, H. U., Hess, P. G., Flocke, F., Roberts, J. M., 2004, Changes in the photochemical environment of the temperate North Pacific troposphere in response to increased Asian emissions, J. Geophys. Res., 109, D23S18.

Ryu, H., Koo, J. H., Kim, H. G., Lee, N., Lee, W. J., Kim, J., 2022, The observation of ozone vertical profile in Yongin, Korea during the GMAP 2021 field campaign, Atmosphere, 32, 247-261.

Skamarock, W. C., Klemp, J. B., Dudhia, J., Gill, D. O., Liu, Z., Berner, J., Wang, W., Powers, J. G., Duda, M. G., Barker, D. M., 2019, A Description of the advanced research WRF model version 4, National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO, USA.

Tartaglione, N., Toniazzo, T., Orsolini, Y., Otterå, O. H., 2020, Impact of solar irradiance and geomagnetic activity on polar NOx, ozone and temperature in WACCM simulations, JASTP, 209, 105398.

Zhang, J., Wei, Y., Fang, Z., 2019, Ozone pollution: A Major health hazard worldwide, Front. immunol., 10, 2518.

Zhang, L., Jacob, D. J., Boersma, K. F., Jaffe, D. A., Olson, J. R., Bowman, K. W., Worden, J. R., Thompson, A. M., Avery, M. A., Cohen, R. C., Dibb, J. E., Flock, F. M., Fuelberg, H. E., Huey, L. G., McMillan, W. W., Singh, H. B., Weinheimer, A. J., 2008, Transpacific transport of ozone pollution and the effect of recent Asian emission increases on air quality in North America: An Integrated analysis using satellite, aircraft, ozonesonde, and surface observations, Atmos. Chem. Phys., 8, 6117-6136.

• Doctor's course. Seung-Hee Baek
Department of Atmospheric Sciences, Pusan National University
shb0531@pusan.ac.kr
• Doctor's course. Min-Jun Park
Department of Atmospheric Sciences, Pusan National University
alswns43215@pusan.ac.kr
• Professor. Hyo-Jung Lee
Department of Atmospheric Sciences, Pusan National University
hyojung@pusan.ac.kr
• Doctor. Juseon Bak
Institute of Environmental Studies, Pusan National University
juseonbak@pusan.ac.kr
• Doctor. Yu-Jin Jo
Institute of Environmental Studies, Pusan National University
yujinjo@pusan.ac.kr
• Doctor's course. Jong-Min Kim
Department of Atmospheric Sciences, Pusan National University
jm6449@pusan.ac.kr
• Doctor. Hyun-Young Jo
Changwon Research Institute
hyjo@chari.re.kr
• Professor. Sang Seo Park
Department of Civil, Urban, Earth and Environmental Engineering, Ulsan National Institute of Science and Technology (UNIST)
sangseopark@unist.ac.kr
• Professor. Joowan Kim
Department of Atmospheric Science, Kongju National University
joowan.k@gmail.com
• Professor. Cheol-Hee Kim
Department of Atmospheric Sciences, Pusan National University
chkim2@pusan.ac.kr