

CCMI-1 모형에서의 동아시아 전량오존 및 대류권오존 평가

김서연* · 박선민**† · 손석우***

*서울대학교 지구환경과학부 박사과정학생, **고려대학교 오정리질리언스연구원 연구교수, ***서울대학교 지구환경과학부 교수

Evaluation of the Total Column Ozone and Tropospheric Ozone in the CCMI-1 Models over East Asia

Kim, Seo-Yeon*, Park, Sunmin**† and Son, Seok-Woo***

**Doctoral Student, School of Earth and Environmental Sciences, Seoul National University, Seoul, Korea*

***Research Professor, OJEong Resilience Institute (OJERI), Korea University, Seoul, Korea*

****Professor, School of Earth and Environmental Sciences, Seoul National University, Seoul, Korea*

ABSTRACT

We assess Total Column Ozone (TCO) and Tropospheric Ozone (TRO) reproduced by the Chemistry Climate Model Initiative phase 1 (CCMI-1) project using ground-based observations and reanalysis datasets from 2003 to 2010 for East Asia. Five models, CESM1-WACCM, CESM1-CAM4Chem, HadGEM3-ES, MRI-CGCM3, and GEOSCCM, are evaluated. The multi-model mean of the five models reproduces a spatial distribution and seasonal cycle of TCO similar to the observation and reanalysis results. CCMI-1 models present a relative bias of TCO in the range of -4.22 to 0.47% against the observation data. Contrary to TCO, TRO shows a comparatively large inter-model spread in spatial pattern and seasonality. Indeed, the relative bias of TRO from the models is from -8.37 to 13.71% compared to the observation data. While CESM1-CAM4Chem and MRI-ESM1r1 produce reasonable spatial and temporal variability of TCO and TRO, HadGEM3-ES and GEOSCCM exhibit a bias with substantially lower and higher TRO in most seasons, respectively. Long-term trends in TCO and TRO are not significant in either reanalysis or CCMI models. These results suggest that TCO and TRO reproduction from CCMI-1 models requires caution and further evaluation, particularly for regional analysis.

Key words: Total Column Ozone, Tropospheric Ozone, East Asia, CCMI-1

1. 서론

대기 중의 오존은 그 농도에 따라 기후 및 인간 생활에 미치는 영향이 다르기 때문에 이들의 시공간적 특징을 이해하는 것은 필수적이다. 특히, 오존은 성층권과 대류권에서 서로 다른 역할을 하므로 이들을 나누어 살펴볼 필요가 있다. 대기 중의 오존은 대부분 성층권에 존재하며, 이는 태양 자외선을 흡수하므로 지표면의 생태계를 보호하는 역할을 한다(Madronich et al., 1998). 특히, 극지 성층권 오존은 대류권 순환에도 큰 영향을 미치는 것으로 알려져

있다(Smith et al., 2014). 대류권 오존은, 그 농도는 성층권 오존에 비해 상대적으로 적지만, 지표 근처에서 단기 체류 기후변화 유발물질(SLCP: short-lived climate pollutant)로 작용하며 날씨 및 기후 시스템에 큰 영향을 끼친다(Scott et al., 2018; Monks et al., 2015). 따라서, 성층권 및 대류권 오존의 시공간적 특징을 파악하고, 나아가 미래에서 오존의 변화를 예측하는 것은 인류 및 지표 생태계 보전에 있어 주요한 문제로 대두되고 있다(Scott et al., 2018; Monks et al., 2015; Fishman et al., 2010).

동아시아는 세계적으로 오존 전구물질(ozone precursor)

†Corresponding author : mireiyoo@korea.ac.kr (02841, OJEong Resilience Institute, 145, Anam-ro, Seongbuk-gu, Seoul, Republic of Korea. Tel. +82-2-880-8152)

ORCID 김서연 0000-0002-6372-5194
박선민 0000-0002-9610-8133

손석우 0000-0003-2982-9501

이 많이 배출(emission)되는 지역 중 하나이다(e.g., Cooper et al., 2014). 특히 최근 북미 동부와 유럽에서는 대류권오존 전구물질 배출이 감소하는 추세임에도 불구하고, 동아시아 부근에서는 지속적으로 배출되고 있다는 것이 알려졌다(Gaudel et al., 2018; Chang et al., 2017; Hayashida et al., 2015; Parrish et al., 2012). 그러나, 동아시아에서 10년 이상 오존존데 관측을 진행해 온 지점은 다섯 개에 불과하다. 따라서, 동아시아 오존은 제공되는 오존 관측 자료의 기간이 충분하지 못하고, 공간 해상도가 낮아 그 특징을 분석하고 이해하는 데 있어 어려움이 있다(e.g., Park et al., 2020).

최근 여러 기관에서 오존 지점 관측, 위성 자료 및 장기 고해상도 재분석 자료를 제공하고 있으며, 이를 활용하여 동아시아 오존의 특성과 경향성을 이해하는 연구가 진행되고 있다(Park et al., 2020; Han et al., 2019; Chang et al., 2017; Cooper et al., 2014). Han et al. (2019)는 동아시아 오존 전망의 절댓값이 위도가 높을수록 변동성이 크며, 1990년대 초반까지 감소하고 이후 증가하는 경향성이 뚜렷하게 나타남을 밝혔다. 이처럼 관측과 재분석 자료를 사용한 연구들은 동아시아 오존의 주요 특성을 잘 드러내나, 공간 해상도가 낮거나 자료의 범위가 제한되는 등의 한계점이 존재한다(Park et al., 2020; Wargan et al., 2017).

오존의 변화를 감시하고 미래 기후변화에 따른 예측을 하기 위해서는 관측 및 재분석 자료뿐만 아니라, 화학기후 모형(Chemistry-Climate model) 분석이 요구된다. 특히, 최신 화학기후모형 프로젝트인 CCMI-1 (Chemistry-Climate Model Initiative phase 1; Morgenstern et al., 2017; Eyring et al., 2013)는 높은 시공간적 해상도를 가진 장기 오존값을 전 지구 단위로 제공하므로, CCMI-1 모형 분석을 통해 오존의 특성을 이해하고 미래의 변화를 예측할 수 있을 것으로 기대된다. 단, 이러한 모형은 역학 및 물리학 과정 및 오존 화학 과정에서 불확실성이 존재하므로(Kunze et al., 2020; Dhomse et al., 2018) 관측 및 재분석과의 비교 검증

이 필수적이다. 또한, 단일 모형의 검증은 큰 불확실성을 야기할 수 있으므로 다양한 모형을 사용한 검증과 분석이 중요하다(Silva et al., 2013; Post et al., 2012). 최근 일부 선형연구에서 CCMI-1 모형들의 오존전량 및 대류권오존 모의 정확도를 확인하였으나(Hakim et al., 2019; Revell et al., 2018), 동아시아에 집중한 연구는 아직 수행된 바가 없다.

따라서, 본 연구는 동아시아의 오존전량과 대류권오존의 분포와 변동성을 이해하고 예측하는데 필수적인 화학기후모형 자료의 신뢰성을 관측 및 재분석 자료를 사용하여 평가하고, 동아시아 오존 연구에 있어 적합한 화학기후모형을 제시하고자 한다. 이를 위하여 재분석 및 모형 자료에서 동아시아 오존의 시공간적 특성을 분석하여, 동아시아 오존전량과 대류권오존의 특성을 보다 이해하고자 한다. 2장에서는 본 연구에 사용한 관측, 재분석, 그리고 모형 자료를 설명하고, 3장에서는 각각 오존전량과 대류권오존에 대해 관측 및 재분석자료를 이용하여 모형을 평가한 결과를 보여주었다. 마지막으로 4장에서는 결과를 요약하여 서술하였다.

2. 자료 및 분석 방법

2.1 관측 자료

본 연구에서는 모형을 평가하기 위해 세계 오존 및 자외선 자료 센터(World Ozone and Ultraviolet Radiation Data Centre, WOUDC; <http://www.woudc.org/>)에서 제공하는 동아시아 지역의 오존전량과 오존존데(ozonesonde) 자료를 사용하였으며, 동아시아 도메인(95~165°E, 20~50°N)에 해당하는 지점 자료들을 선정하여 사용하였다. WOUDC는 직달 관측과 산란 관측을 이용하는 돕슨(Dobson) 오존 분광광도계와 브루어(Brewer) 오존 분광광도계를 사용하여 측정된 오존전량을 제공한다. 본 연구에서는 동아시아의 총 9개의 지점 관측 자료, Seoul (SEO), Pohang (POH),

Table 1. Observation stations of total column ozone in East Asia. The period in parentheses indicates missing period

Station name	SEO (Seoul)	POH (Pohang)	MNM (Minamitorishima)	NAH (Naha)	SAP (Sappro)	TKB (Tateno)	KUN (Kunming)	LFS (Longfengshan)	XIA (Xianghe)
Latitude(°)	37.57	36.03	24.29	26.20	43.05	36.10	25.03	44.75	39.98
Longitude(°)	126.95	129.38	153.98	127.70	141.33	140.10	102.68	127.60	116.37
Observation period	1984.05-2018. 12	1994.01-20 15.06	1958.01-2016.10 (1963.07-1996.12)	1974.04-2018. 01	1958.02-2018. 01	1957.06-2018. 01	1980.01-2014. 12	1993.07-2016. 12	1979.01-2018. 03

Table 2. Ozonesonde stations for tropospheric ozone in East Asia

	China	Japan			Korea
Station name	HKO (Hongkong)	NAH (Naha)	SAP (Sapporo)	TKB (Tsukuba)	POH (Pohang)
Latitude (°)	22.31	26.21	43.06	36.06	36.03
Longitude (°)	114.17	127.68	141.33	140.13	129.38
Altitude (m)	66	28	26	31	2.5
Observation period	2000.06 ~ 2017.12	1989.01 ~ 2018.01	1969.01 ~ 2018.01	1968.01 ~ 2018.05	1995.01 ~ 2017.12

Longfenshan (LFS), Xianghe (XIA), Kunming (KUN), Sapporo (SAP), Tateno (TKB), Naha (NAH), 그리고 Minamitorishima (MNM)에서 제공되는 월평균 자료 중 관측 기간이 10년 이상인 자료만을 이용하였다(Table 1).

대류권오존은 Hongkong (HKO), Naha (NAH), Sapporo (SAP), Tsukuba (TKB), 그리고 Pohang (POH)의 5개 지점 자료를 사용하였다(Table 2). 이 중 HKO, NAH, SAP, 그리고 TKB의 4개 지점 자료는 WOUDC에서 제공하는 오존존데 관측값을 사용하였다 (Table 2). WOUDC에서 더 많은 지점 자료들이 제공되지만, 자료 제공 기간이 10년 이상이 되지 않거나 10년 이상의 자료가 제공되어도 결측 기간이 전체 자료 기간의 30% 이상을 차지하는 지점들은 제외하고 사용하였다. 한국 지점 자료인 POH 지점 자료는 기상청에서 제공받은 관측 자료를 사용하였다. 모든 지점들은 지역 기상 조건이 극단적인 경우를 제외하고 오존을 측정하여 매달 1~13개의 오존 연직 프로파일(Vertical Profile)을 WOUDC는 평균 월 2.4회, 기상청 기반 POH 지점은 평균 월 2.2회 측정하여 제공한다. 오존의 연직 프로파일 중, 850-hPa 등압면은 지표 근처 하층 대류권의 오존의 특성을 잘 보여주면서도 지형의 영향을 덜 받기 때문에, 대류권 오존을 대표할 수 있는 층이다(e.g., Park et al., 2020). 때문에 본 연구에서는 850-hPa 등압면에서 오존 농도를 대류권오존의 농도로 정의, 오존존데 관측자료를 월평균하여 사용하였다.

2.2 재분석자료

CCMI-1 모형에서 나타나는 오존의 공간 분포 및 장기 변화를 평가하기 위해 관측 자료 뿐만 아니라 동아시아를 비롯한 전구에 대해 오존전량, 대류권오존의 자료를 제공하는 재분석 자료도 함께 사용하였다(Table 3). 오존전량의 경우 7개 재분석자료를 평균하여 모형과 비교하였다. 자료는 1) European Centre for Medium-Range Weather

Forecasts Interim (ERA-Interim; Dee et al., 2011), 2) European Centre for Medium-Range Weather Forecasts Reanalysis 5th (ERA5; Hersbach et al., 2019), 3) Monitoring Atmospheric Composition and Climate Reanalysis (MACCRA; Inness et al., 2013), 4) Copernicus Atmosphere Monitoring Services Reanalysis (CAMSRA; Inness et al., 2019), 5) the Modern-Era Retrospective analysis for Research and Applications (MERRA2; Gelaro et al., 2017), 6) Climate Forecast System Reanalysis (CFSR; Saha et al., 2010), 그리고, 7) Japanese 55-year Reanalysis (JRA-55; Kobayashi et al., 2015)다. 위 7개 재분석 자료는 선행연구(Han et al., 2019)에서 관측자료와 오차가 크지 않았다. 또한, 본 연구에서 7개 재분석자료의 2003~2010년 평균 동아시아 오존전량을 WOUDC 관측 자료와 비교해 본 결과, 재분석 자료 평균은 각 관측지점에서 관측값과 -0.93~1.11%의 매우 작은 오차를 보였다. 따라서 본 7개 재분석자료의 평균은 CCMI-1 모형을 평가하는 지표로 사용하기 적합한 것으로 판단된다.

대류권 오존의 경우, MACCRA, CAMSRA, 그리고 updated Tropospheric Chemistry Reanalysis(TCR-2; Miyazaki et al., 2020; 2019)를 사용하여 분석하였다 (Table 3). Park et al. (2020)에 따르면 이 세가지 재분석자료는 화학 수송 모델이 통합되어 있는 최신 재분석 자료로서 관측 자료와 비교했을 때 화학 수송 모델이 통합되어 있지 않은 다른 재분석 자료에 비해 동아시아 850-hPa 대류권 오존의 공간 분포, 연주기, 그리고 수직분포 등을 관측과 가장 유사하게 나타낸다. 또한, Park et al. (2020)은 7개 재분석자료 중 MACC, CAMSRA, 그리고 TCR-2가 동아시아 대류권오존에 대해 관측 대비 가장 적은 오차를 보임을 밝혔다. 본 연구에서 분석한 2003-2010년에 대해 각 관측지점에서 위 3개 재분석 자료 평균 대류권오존 값을 관측 자료와 비교한 결과, 3개 재분석 자료(MACC,

CAMSRA, 그리고 TCR-2) 평균은 -2.0에서 14.2%의 오차를 보였다. 사전 연구결과와 본 연구에서 본 오차 범위를 고려했을 때 위 세가지 재분석 자료로 동아시아 지역의 대류권 오존을 평가하기에 적절하다고 사료된다.

사용된 모든 재분석 자료는 월평균 자료를 확보하여 분석하였으며, 각 재분석 자료가 서로 다른 해상도로 제공되므로, $1.5^{\circ} \times 1.5^{\circ}$ 의 수평 해상도로 내삽하여 사용하였다. 본 연구에서는 3개 재분석 자료의 평균값을 이용하여 CCMI-1 모형을 평가하였다.

2.3. 모형 자료

본 연구에서는 최신 화학기후모형인 CCMI-1에 해당하는 총 22개 모형 중에서 월평균 오존전량, 대류권오존, 변수 자료를 제공하는 다음 5개 모형을 사용하였다(Table 4): CESM1-WACCM (the Community Earth System Model version 1-Whole Atmosphere Community Climate Model; Marsh et al., 2013), CESM1-CAM4Chem (the Community Earth System Model-community atmosphere model version 4 chemistry; Tilmes et al., 2016), HadGEM3-ES (Hadley Centre Global Environmental Model version 3-Earth System model; Hardiman et al.,

2017), GEOSCCM (Goddard Chemistry climate model; Oman et al., 2011; Rienecker et al., 2008), 그리고 MRI-ESM1r1 (Meteorological Research Institute-Earth System Model Version 1; Adachi et al., 2013). 본 연구에서 사용된 5개 모형은 모두 성층권과 대류권이 화학접합된 모형이다. 본 연구에서는 1960년부터 2010년까지의 자료를 제공하는 CCMI-1의 reference (REF)-C1 실험 자료를 사용하였다. REF-C1 실험에는 CMIP5 (Coupled Model Intercomparison Project phase 5; Taylor et al., 2012)의 과거 기후 모사 실험(historical run)과 같은 강제력이 부과되었으며, 지표 해수 온도가 HadISST (The Hadley Centre Global sea Ice and Sea Surface Temperature; Rayner et al., 2013) 자료로 처방되어 있다.

모형 자료를 관측 자료와 비교하기 위하여, 각 관측 지점과 가장 가까운 모형 자료의 격자 1개의 값을 이용하여 분석하였다. 해당 1개 격자 분석뿐만 아니라, 위경도 방향으로 1 격자씩 영역을 늘려 총 9개의 모형 격자 자료를 영역평균하여 관측 자료와 비교 분석하여도 결과는 유사하였다(결과 나타내지 않음). 모형 자료가 2010년까지 제공되기 때문에, 장기 경향 분석을 제외한 공간 분포, 연주기 등의 분석에서는 재분석 자료와 모형의 공통 기간인 2003

Table 3. Reanalysis datasets used in this study. The variables analyzed in this study are denoted with "O." The variables not analyzed are denoted with "-"

Dataset	Horizontal resolution ($^{\circ}\text{lat} \times ^{\circ}\text{lon}$)	Vertical resolution	Available period	Available data	
				Total Column Ozone (TCO)	Tropospheric ozone (TRO)
ERA-Interim (ERA-I)	$0.75^{\circ} \times 0.75^{\circ}$	L37	1979.01 ~ 2019.05	○	-
ECMWF Reanalysis 5th (ERA5)	$0.25^{\circ} \times 0.25^{\circ}$	L37	1979.01 ~ present	○	-
Monitoring Atmospheric Composition and Climate Reanalysis (MACCRA)	$0.75^{\circ} \times 0.75^{\circ}$	L22	2003.01 ~ 2012.12	○	○
Copernicus Atmosphere Monitoring Services Reanalysis (CAMSRA)	$0.75^{\circ} \times 0.75^{\circ}$	L25	2003.01 ~ 2017.12	○	○
The Modern-Era Retrospective analysis for Research and Applications, version 2 (MERRA2)	$0.5^{\circ} \times 0.625^{\circ}$	L42	1980.01 ~ 2018.06	○	-
NCEP Climate Forecast System Reanalysis (CFSR)	$0.5^{\circ} \times 0.5^{\circ}$	L37	1979.01 ~ 2010.12	○	-
Japanese 55-year Reanalysis (JRA-55)	$0.5^{\circ} \times 0.5^{\circ}$	L60	1958.01 ~ present	○	-
Tropospheric Chemistry Reanalysis (TCR-2)	$1.1^{\circ} \times 1.1^{\circ}$	L27	2005.01 ~ 2017.12	-	○

Table 4. Descriptions for CCMI models used in this study

Model	Institution	Horizontal resolution (°lat×°lon)	Vertical resolution	References
CESM1-WACCM	NCAR, USA	1.9° × 2.5°	L66	Marsh et al., 2013
CESM1-CAM4Chem	NCAR, USA	1.9° × 2.5°	L26	Tilmes et al., 2015
HadGEM3-ES	Met Office and Univ. of Cambridge, UK	1.25° × 1.875°	L38	Hardiman et al., 2017
MRI-ESM1r1	Meteorological Research Institute, Japan	2.7° × 2.8°	L80	Adachi et al., 2013
GEOSCCM	NASA Goddard Spaceflight Centre, USA	2° × 2.5°	L72	Oman et al., 2011; Rienecker et al., 2008

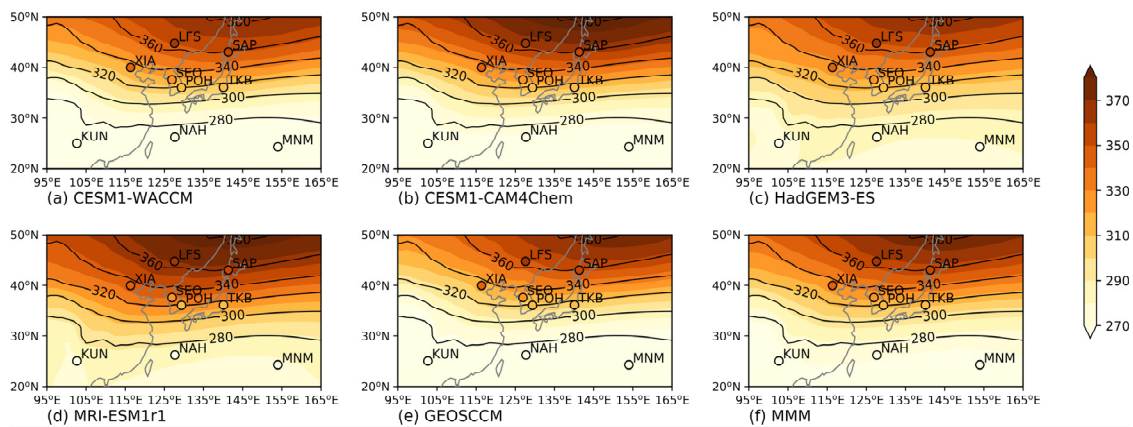


Fig. 1. Time-mean total column ozone (unit: DU) from nine observation datasets (marks) and (a~e) CCMI models and (f) their multi-model mean (MMM) from 2003 to 2010 (shading). Contours indicate the total column ozone in the mean of reanalysis data

년부터 2010년을 중심으로 분석하였다. 장기 추세 분석에 있어서는 재분석 자료의 공통 기간이 아닌 가용 가능한 기간을 모두 사용하고자 하였다. 오존전량의 경우 7개의 재분석 자료 중 4개의 자료(ERA1, ERA5, CFSR, 그리고 JRA-55)가 자료를 제공하는 1979년부터 분석을 수행하였으며, 대류권오존은 3개의 재분석 자료 중 MACCRA와 CAMSRA가 2003년부터의 자료를 제공하기 때문에 2003년부터 장기 추세를 분석하였다.

3. 결과

3.1 오존전량

9개 관측 지점에서의 동아시아 오존전량과 CCMI-1 모형의 오존전량을 비교하였다(Fig 1). 그 결과, CCMI-1 모형 오존전량은 관측 자료와 유사하게 위도에 따른 오존전량

농도의 차이를 보였다. 관측에서는 저위도(약 ~20°N 지역: MNM, KUN, NAH)에서는 265.4~270.5 DU를 나타내고, 고위도(약 ~45°N: SAP, LFS)는 354.7~363.2 DU를 보였다. 이는 선행연구 결과와도 일치한다(Han et al., 2019). 모형의 경우, 모형평균에서 ~20°N 지역 저위도(MNM, KUN, NHA)에서 264.911.2~270.210.0 DU를 나타내고, 45°N 부근(SAP, LFS)에서는 상대적으로 저위도 지역보다 높은 356.87.6~357.58.7 DU 값을 나타냈다. 모형별로 살펴보면, 북위 45 이상의 고위도에서 CESM-WACCM, HadGEM3-ES, 그리고 GEOSCCM은 오존전량을 관측보다 과소모의하는 반면, CESM1-CAM4Chem과 MRI-ESM1r1에서는 과대모의하는 경향이 나타났다(Fig. 1). 관측과 모형에서 나타나는 오존전량의 공간 분포는 재분석자료에서도 나타난다(contours in Fig. 1). 이후 오존전량의 공간 분포 및 장기 변동성, 계절성분석은 재분석 자료를 중심으로 진행되었으며 7개 재분석 자료의 최근 7년(2003~2010) 평균 자료가 사용되었다.

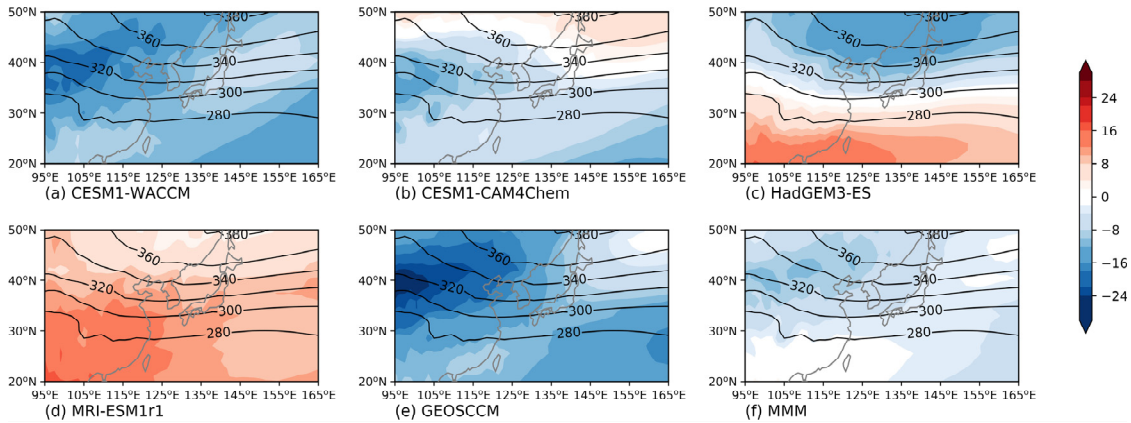


Fig. 2. (Contours) Time-mean total column ozone (unit: DU) and (shading) difference between each model and the mean of reanalysis from 2003 ~ 2010

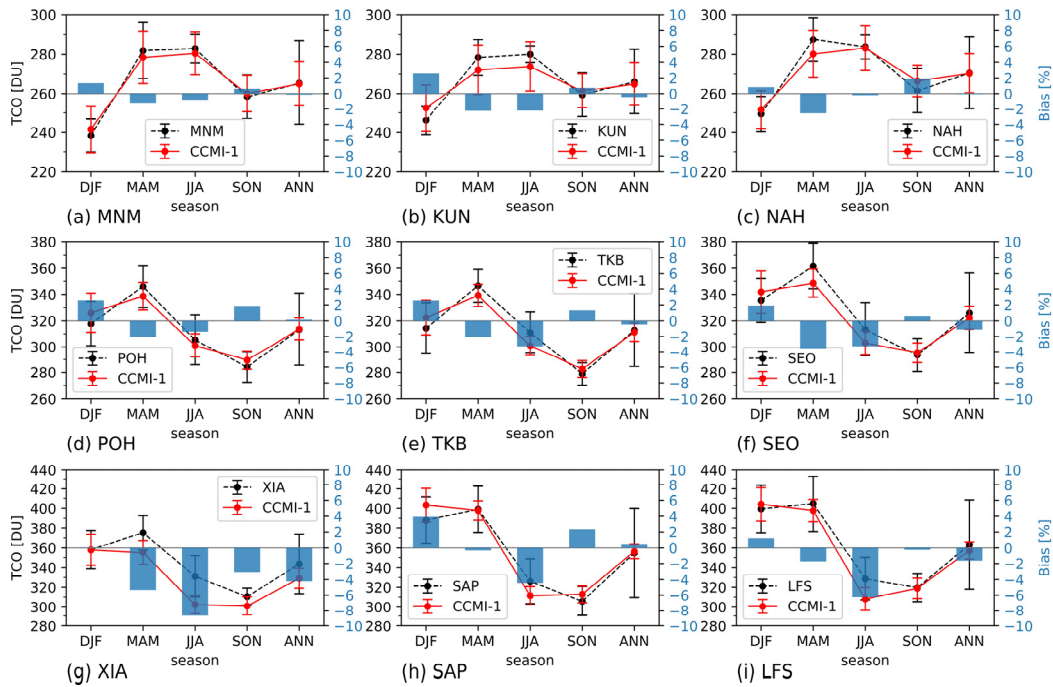


Fig. 3. Total column ozone during 2003 ~ 2010 at each observation station in East Asia (black marks) and five CCMI multi-model mean (red marks) and with its relative bias (blue bars) compared to the observation in DJF (December–January–February), MAM (March–April–May), JJA (June–July–August), SON (September–October–November), and ANN (annual-mean)

모형의 공간 분포를 보다 자세히 평가하기 위하여, CCMI-1 모형과 7개 재분석자료의 공간 분포를 비교하였다(Fig. 2). 모형 평균은 약 10 DU 이하의 음의 오차를 보였으며(Fig. 2(f)), 오차의 양상은 모형마다 상이하였다

(shading, Fig. 2). HadGEM3-ES와 MRI-ESM1r1는 35°N 이하의 지역에서 10 DU 이상의 양의 오차가 두드러지며(Fig. 2(c) and Fig. 2(d)), CESM1-WACCM과 GEOSCCM의 경우 중국 내륙을 중심으로 6% 이상의 음의 오차가 나

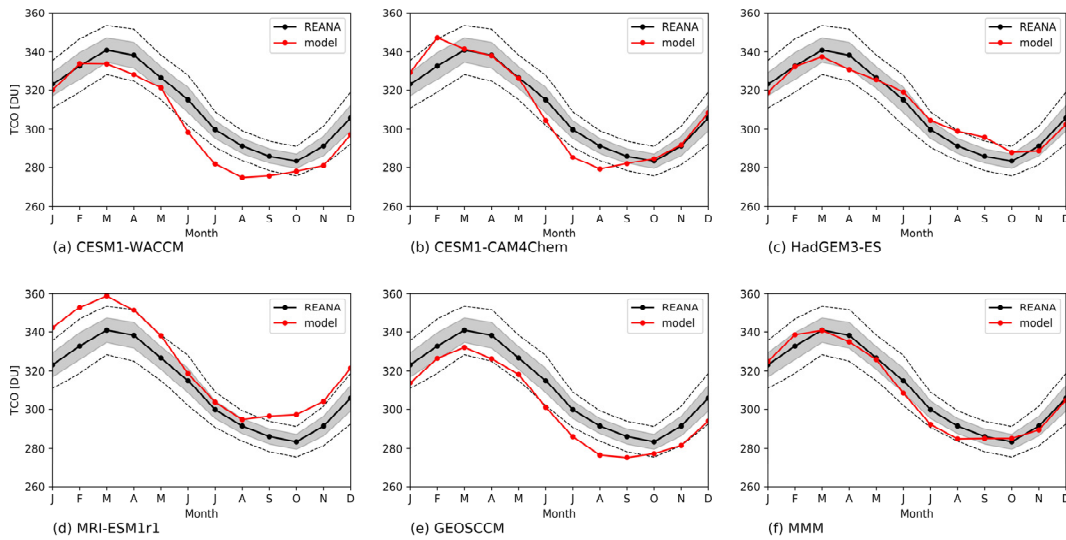


Fig. 4. The seasonal cycle of total column ozone (unit: DU) from each model (red) and reanalysis (black) from 2003–2010. Gray shading and gray dashed lines indicate one and two standard deviations of seven reanalysis datasets, respectively

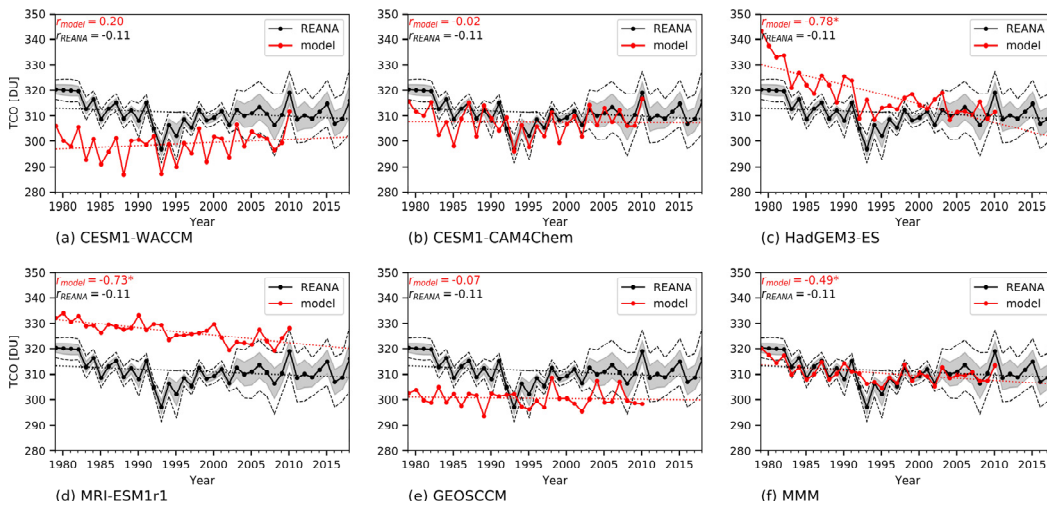


Fig. 5. Time series of total column ozone (unit: DU) from each model (red, 1979 ~ 2010) and reanalysis (black, 1979 ~ 2018). Gray shading and gray dashed lines indicate one and two standard deviations of seven reanalysis datasets, respectively. Black and red dotted lines mean the linear regression line for reanalysis and model, respectively. The regression coefficient r that is statistically significant at the 95% confidence levels is denoted with an asterisk

타났다(Fig. 2(a) and Fig. 2(e)). 모형들 중 재분석 자료와의 편차가 가장 작은 모형은 CESM1-CAM4Chem이며, 동아시아에서 재분석 자료와 약 4% 이내의 오차를 가졌다(Fig. 2(b)).

동아시아 오존전량은 큰 계절성을 가지므로, 이들의 계절 변화를 함께 살펴보았다. 먼저 CCMI-1 모형 오존전량의 계절성을 각 관측지점에서 관측자료와 비교하였다(Fig. 3). 모든 계절에서 모형은 관측 자료의 1 표준편차 이내

서 전량오존 값을 모의하였으며, 계절별로 서로 다른 오차 양상을 보였다. 모형의 상대 오차는 연평균 -4.22 ~ 0.27% 였으며, 계절별로 살펴보면 봄철 -5.35 ~ -0.32%, 여름철이 -8.69 ~ -0.21%로 음의 오차를 보였고 겨울철에는 -0.03 ~ 3.94%로 주로 양의 상대 오차를 가졌다. 가을철에는 -3.09 ~ 2.33%로 관측지점마다 상이한 오차를 보였다. 다음으로, 재분석 자료와 모형의 동아시아 지역 평균(95 ~ 165 °E, 20 ~ 50 °N) 오존전량 연주기(annual cycle)를 비교하였다(Fig. 4). 재분석 자료 평균에서 오존전량은 겨울철에는 약 340 DU까지 증가하여 2월에 최댓값을 보이며, 이후 봄

철 및 여름철에 지속적으로 감소하여 가을철 270 DU 가량의 최솟값을 갖는다(black solid lines, Fig. 4). 모든 CCMI-1 모형들이 이러한 동아시아 오존전량의 계절성 및 연주기를 정성적으로 유사하게 모의하였다(Fig. 4(a), Fig. 4(b), Fig. 4(c), Fig. 4(d), and Fig. 4(e)). 그러나 모형별로 살펴보면, CESM1-WACCM과 CESM1-CAM4Chem은 대부분의 계절에서 재분석 자료 표준편차 1 이내로 모의하였으나, 여름철에는 2 표준편차가 넘게 과소 모의하였다(Fig. 4(a) and Fig. 4(b)). 또한, 이 두 모형은 동아시아 오존전량의 최댓값을 2월이 아닌 1월로 모의하였다. HadGEM3-ES는 늦여름에서 초가을

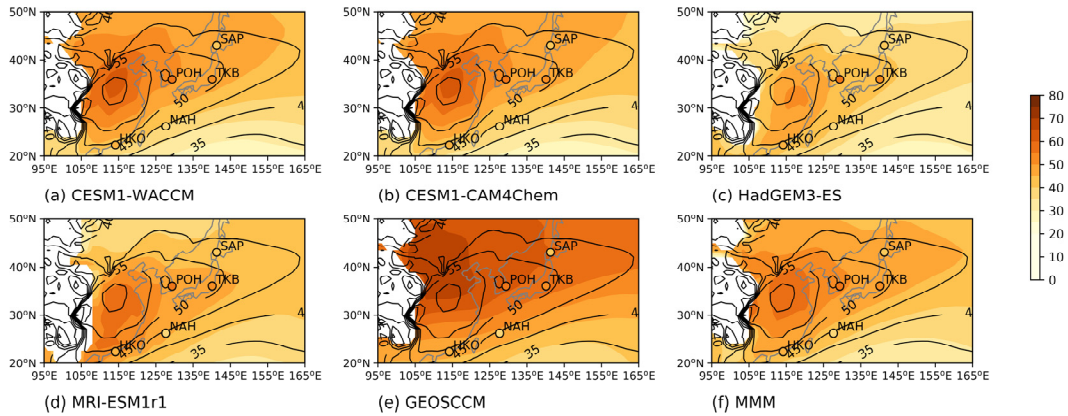


Fig. 6. Time-mean tropospheric ozone (unit: ppbv) from five observation datasets (marks) and (a ~ e) CCMI models and (f) their multi-model mean (MMM) from 2003 ~ 2010 (shading). White shading represents the underground missing values. Contours indicate the tropospheric ozone in the mean of reanalysis data

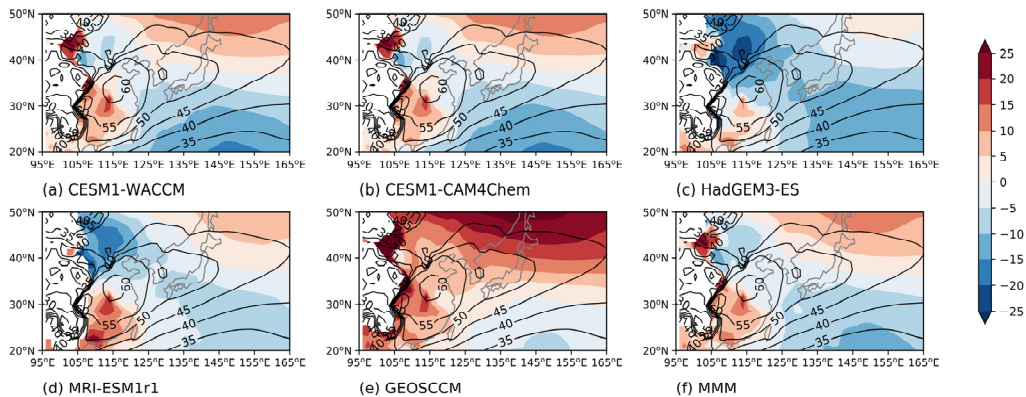


Fig. 7. (Contours) Time-mean tropospheric ozone (unit: ppbv) and (shading) difference between each model and the mean of reanalysis from 2003 ~ 2010. White shading represents the underground missing values

인 8, 9월을 제외하고는 모두 재분석 자료의 1 표준편차 이내로 모의하였다(Fig. 4(c)). 반면, MRI-ESM1r1은 대부분의 계절에서 2 표준편차 가량 과대모의, GEOSCCM은 모든 계절에서 2 표준편차 이상 과소모의하는 모습을 보였다(Fig. 4(d) and Fig. 4(e)).

동아시아 오존전량의 장기 변화를 확인하기 위해 모형(1960~2010년)과 재분석 자료(1979~2018년) 각각의 자료 공통 가용 기간(2003~2010년)에서 동아시아 영역평균값을 Fig. 5에서 비교하였다. 재분석 자료는 1980년대 초 약 320 DU의 오존전량 값을 가지나, 1990년대 초에 이르기까지 약 300 DU까지 감소하고(black lines in Fig 5), 1990년대 중반부터 2000년대까지 다시 증가 후 2018년까지 약 310 DU의 값을 유지하는 양상을 보인다. 여기서 2000년 이후 재분석 자료의 표준편차가 가장 크게 나타나는데, 이는 오존전량을 제공하는 재분석자료의 개수가 가장 많기 때문이다.

CCMI-1 모형들은 모형 평균(MMM) 관점에서 이러한 동아시아 오존전량의 1979년부터 2018년까지의 장기 시계열을 대체로 잘 모의하는 것으로 보이며, 유의한 감소 경향성을 나타낸다(Fig. 5(f)). 그러나 모형 평균은 각 모형의 오차가 상쇄되어 나타난 결과로, 모형별로 살펴보면 약 10 DU 이상의 편차를 보이기도 한다. CESM1-CAM4Chem는 1980년대 초를 제외한 대부분 기간에서 재분석 자료의 1 표준편차 이내로 동아시아 평균 오존전량을 모의하면서 재분석 자료와 가장 적은 오차를 보인다(Fig. 5(b)). HadGEM3-ES 모형의 경우 1980년대 초반에 동아시아 오존전량을 최대 20 DU까지 과대모의하는 경향을 보였으나, 1990년대 중반부터 재분석 자료와 유사하게 모의하였다(Fig. 5(c)). 나머지 CESM1-WACCM과 MRI-ESM1r1, 그리고 GEOSCCM은 그 변동성은 유사하게 모의하였으나, 오존전량 농도를 재분석 자료의 표준편차 내로 거의 모의하지 못하는 모습을 보였다(Fig. 5(a), Fig. 5(d), and Fig. 5(e)). 모형별 추세를 살펴보면, HadGEM3-ES, MRI-ESM1r1 모형이 유의한 오존전량의 감소 추세를 보였으나, 이는 두 모형의 1980년대 오존전량 과대모의에서 기인한 것으로 보인다(Fig. 5(c) and Fig. 5(d)). 두 모형의 오존전량 장기 변동성 과대모의는 선행연구에서도 알려진 바 있다. 예를 들어, HadGEM3-ES 모형의 경우, 전 지구 평균 오존전량이 1980년대에 관측보다 10 DU 이상 과대모의되며, 이러한 오차는 모형의 성층권 기상장 모의 오차로 인해 발생할 수 있다고 보고되었다(Hardiman et al., 2017). MRI-ESM1r1에서 나타나는 1980년대의 높은 오존전량 농도는, MRI-ESM1r1이 1850~1960년간 급격히 증가한 오존전구물질에 따른 오존의 증가

를 관측보다 과대모의해서 나타난 결과로 사료된다(Adachi et al., 2013).

3.2 대류권오존

대류권오존은 850-hPa 등압면에서의 오존 농도로 정의되었으며, 각 모형의 대류권오존은 HKO, NAH, POH, TKB, 그리고 SAP의 총 5개 지점의 오존농도 관측 자료와 비교되었다(Table 2). 관측자료에서 대류권오존(2003~2010년)은 동아시아 5개 지점 평균 46.5 ppbv의 값을 보였으며, 중위도인 POH, TKB 지점에서는 평균 53.95 ppbv로 보다 높은 농도를 보였다. CCMI-1 모형은 5개 관측 지점에서 평균 약 44.74 ppbv로 모의하였다.

공간 분포 비교 결과, 모형 평균은 SAP 및 NAH 지점에서 대류권오존을 과대모의하는 반면, POH 지점에서는 과소모의하였다(Fig. 6(f)). 이는 대부분의 모형에서 유사하게 나타났다(Fig. 6(a), Fig. 6(b), Fig. 6(c), and Fig. 6(d)). CCMI-1의 모든 모형은 재분석 자료와 중국 내륙에서 대류권오존이 가장 높고 서쪽으로 수송되는 동아시아의 대류권오존 공간 분포를 관측과 유사하게 모의하였다(shading in Fig. 6).

Fig. 7은 CCMI-1와 재분석 자료의 850-hPa 대류권 오존을 비교한 결과를 보여준다. 재분석 자료는 중국 내륙에서 최댓값을 갖고 동쪽으로 전파되는 분포를 보였다(contours in Fig 7). CCMI-1 모형 평균(MMM)은 재분석 자료와 최대 약 35%의 오차를 보이며, 화학기후모형이 재분석 자료에서 나타난 동아시아 대류권오존 공간 분포는 유사하게 모의하나 그 농도값을 잘 모의하지 못하는 것을 보여준다(Fig. 7(f)). 대부분의 모형(CESM1-WACCM, CESM1-CAM4Chem, HadGEM3-ES 그리고 MRI-ESM1r1)이 18% 이하의 상대 오차를 나타낸 반면, GEOSCCM은 동아시아 평균 약 28%로 타 모형들과 비교할 때 상대적으로 큰 오차를 보였다(Fig. 7(e)). HadGEM3-ES를 제외한 네 모형(CESM1-WACCM, CESM1-CAM4Chem, MRI-ESM1r1 그리고 GEOSCCM)이 40°N 이상 고위도에서 양의 오차, 40°N 이하 태평양 지역에서 음의 오차를 보였으며(Fig. 7(a), Fig. 7(b), Fig. 7(d), and Fig. 7(e)), HadGEM3-ES의 경우 북중국 내륙과 태평양에서 모두 음의 오차를 보였다(Fig. 7(c)). 대류권오존 농도가 최댓값을 갖는 중국 내륙 지역에서는 모든 모형이 약 20~30%의 양의 편차를 보였다. 이는 동아시아에서 대류권오존 농도의 최댓값인 중국 내륙에서의 대류권오존 농도를 잘 모의하지 못함을 시사한다.

대류권오존 계절성을 확인하기 위해, 각 관측지점에서

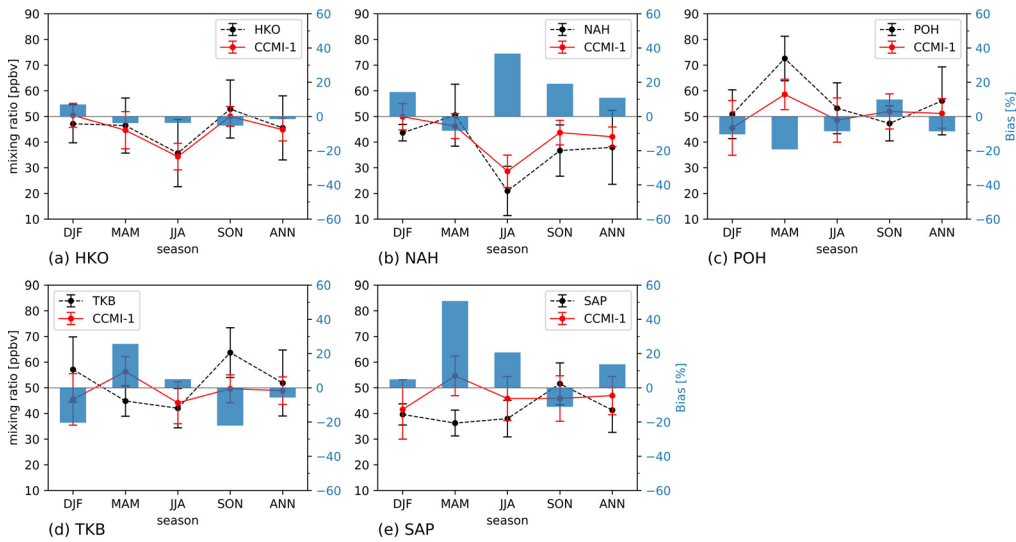


Fig. 8. Tropospheric ozone during 2003 ~ 2010 at each observation station in East Asia and five CCMI-1 multi-model mean (MMM, unit: ppbv) with its relative bias (%) compared to the observation in DJF (December-January-February), MAM (March-April-May), JJA (June-July-August), SON (September-October-November), and ANN (annual-mean)

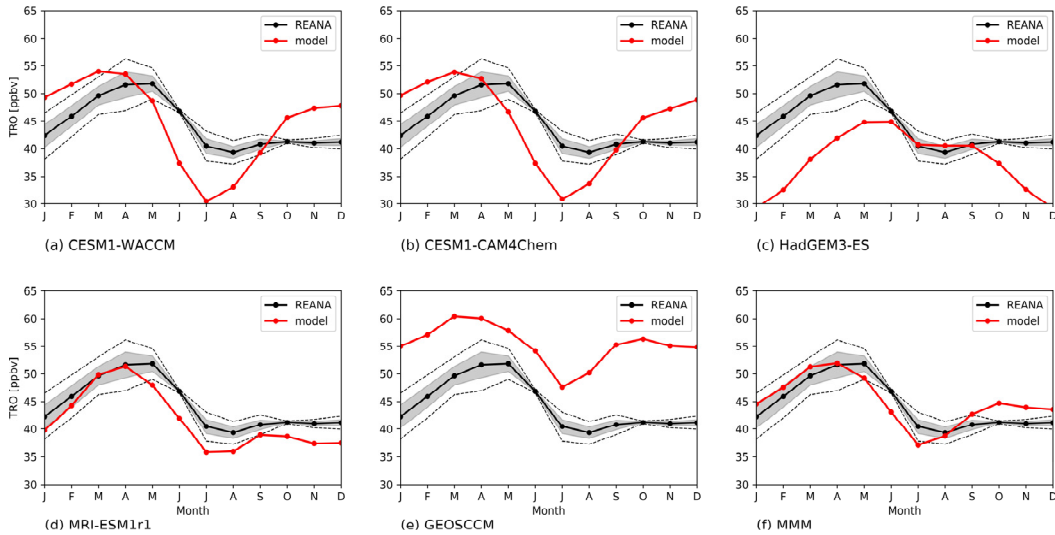


Fig. 9. The seasonal cycle of tropospheric ozone (unit: ppbv) from each model (red) and reanalysis (black) from 2003 ~ 2010. Gray shading and gray dashed lines indicate one and two standard deviations of three reanalysis datasets, respectively

CCMI-1 모형 평균 대류권오존의 계절성을 각 지점의 관측값과 비교하였다(Fig. 8). 관측과의 비교에서는 연평균 기준 약 -8.7 ~ 13.7% 범위의 상대 오차를 보였으며, 가장 고위도 및 가장 동쪽에 위치하는 SAP 지점에서 약

13.71%로 가장 큰 상대 오차가 나타났다(Fig. 8(e)). 연평균 기준으로는 모형 자료는 재분석자료를 1 표준편차 내에서 모의하였으나, 계절별로는 큰 차이를 보였다. 특히, NAH 지점에서 여름철(JJA) 36.7% (Fig. 8(b)), SAP 지점

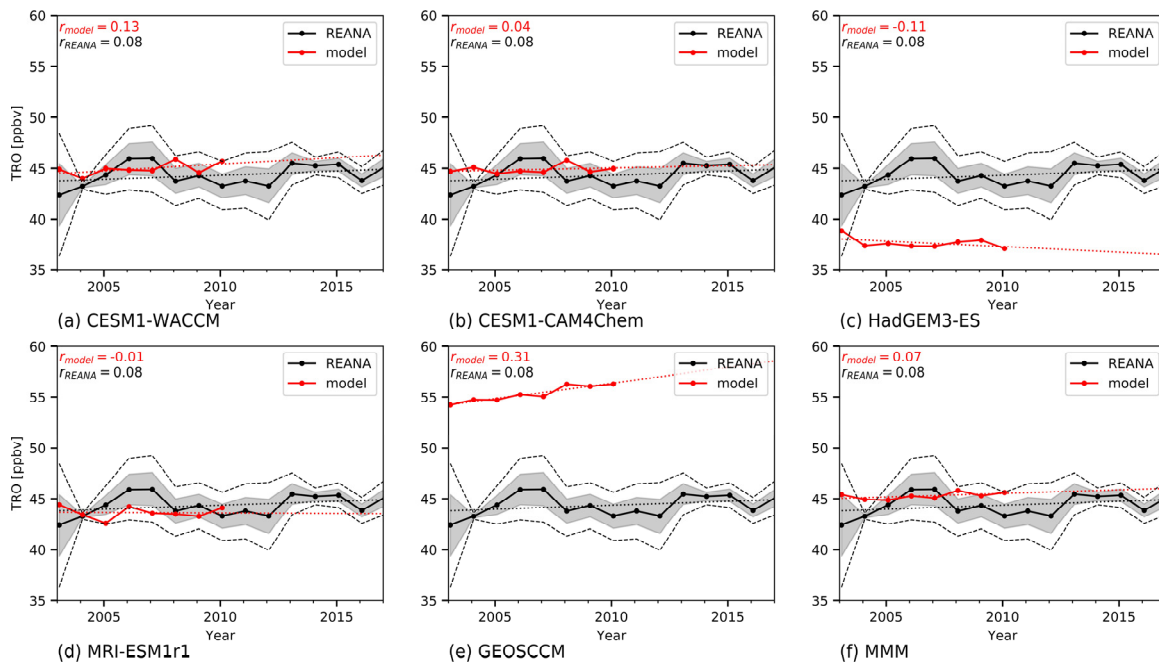


Fig. 10. Time series of tropospheric ozone (unit: ppbv) from each model (red, 2003 ~ 2010) and reanalysis (black, 2003–2017). Gray shading and gray dashed lines indicate one and two standard deviations of three reanalysis datasets, respectively. Black and red dotted lines mean the linear regression line for reanalysis and model, respectively. The regression coefficient r that is statistically significant at the 95% confidence levels is denoted with an asterisk

에서는 봄철(MAM) 약 50.7% (Fig. 8(e))의 큰 오차를 보이며 주로 봄철 및 여름철에 큰 오차를 보였다. 이는 추후 재분석자료와의 비교에서도 계절별로 오차가 상이할 수 있음을 보여준다. 모형별 대류권오존의 연주기는 재분석 자료와도 비교되었다(Fig. 9). 먼저 재분석 자료가 나타내는 대류권오존의 연주기를 살펴보면, 봄철 약 50 ppbv의 최댓값을 가지며 여름철 감소하여 최솟값이 나타나고, 가을·겨울철에도 이와 유사한 값을 보이며 유지된다(black lines in Fig. 9). 이러한 대류권오존의 계절성은 대류권오존이 광화학적 과정으로 생성되는 것과 연관이 있는데, 봄철 태양복사의 증가로 대류권오존의 생성이 증가하여 최댓값을 가지며, 여름철 몬순으로 인한 태양복사 감소로 대류권오존 또한 최솟값을 보이는 것으로 알려져 있다(e.g., Zhao et al., 2010).

모형별로 살펴보면, MRI-ESM1r1는 재분석자료의 대류권오존 연주기 패턴을 가장 유사하게 모의하였으며, 겨울철과 봄철에는 이를 2 표준편차 이내로 모의하여 CCMI-1 5개 모형 중 대류권오존 계절성을 가장 잘 모의하였다

(Fig. 9(d)). 반면, 타 모형들의 경우 동아시아 대류권오존의 연주기의 특성을 모의하지 못하거나, 그 값을 MRI-ESM1r1에 비해 상대적으로 과소/과대모의하였다. 예를 들어, CESM1-WACCM, CESM1-CAM4Chem은 최댓값을 초봄인 3월로 모의하였으며, 최솟값 또한 30 ppbv로 모의하여 재분석 자료의 값보다 10 ppbv 가량 더 작게 여름철 동아시아 최솟값을 모의했으며, 겨울철에는 5 ppbv 가량 동아시아 대류권오존을 과대모의했다(Fig. 9(a) and Fig. 9(b)). HadGEM3-ES는 동아시아 대류권오존의 최댓값을 6월로 모의할 뿐만 아니라 겨울철에는 동아시아 대류권오존을 약 30 ppbv로 크게 과소모의하여, 대류권오존의 계절성의 특징을 거의 모의하지 못하였다(Fig. 9(c)). GEOSCCM의 경우 모든 계절에서 재분석 자료의 평균에 대해 약 10 ppbv 가량 과대모의하였다(Fig. 9(e)). 이러한 CCMI-1 모형들의 동아시아 대류권오존 모의에서 나타나는 약 10% 정도의 오차는 선행연구에서 나타나는 이전 세대 화학기후모형들의 결과와도 일치한다(Young et al., 2018).

Fig. 10은 2003년부터 2017년까지 850-hPa 대류권오존

의 장기 변화를 보여준다. 재분석 자료에서 동아시아 대류권오존은 2003년부터 2017년까지 유의하게 증가하거나 감소하는 추세를 보이지 않았다(black dashed lines in Fig. 10). 이러한 경향성은 모형 평균(MMM)뿐만 아니라, 각 모형의 장기 추세에서도 나타났다(red dots in Fig. 10). 대부분의 모형들은 재분석 자료의 표준편차 2 내의 대류권오존 농도를 모의하는 모습을 보였다. 단, HadGEM3-ES와 GEOSCCM은 각각 동아시아 대류권오존을 5 ppbv 가량 과소모의, 과대모의했다(Fig. 10(c) and Fig. 10(e)). 이는 앞서 공간 분포에서 확인된 결과와도 일치한다(Fig. 7(c) and Fig. 7(e)). 추세를 살펴보면, 재분석자료에서 대류권오존은 약한 양의 상관관계를 보였으나 그 상관계수가 0.08로 유의하지 않았다. 마찬가지로, 모든 모형에서 동아시아 대류권오존은 통계적으로 유의한 증가 혹은 감소 추세를 보이지 않았다(red dotted lines, Fig. 10). HadGEM3-ES와 GEOSCCM는 전구 대류권오존은 비교적 잘 모의하기 때문에(Revell et al., 2018), 상대적으로 동아시아 대류권오존 모의 성능이 떨어진 것은 동아시아에서 오존 전구물질의 종류가 다양하고 그 배출량이 많은 것과 관련이 있는 것으로 보인다. 실제로 화학접합모형은 서로 다른 비메탄계 휘발성 유기화합물(non-methane volatile organic compound)을 가지고 있기 때문에(Revell et al., 2018), 이와 같이 동아시아에서 오차가 큰 것은 오존 전구물질의 배출이 서로 다르게 적용되었기 때문일 것으로 생각할 수 있다.

4. 결론 및 토의

본 연구에서는 동아시아에서 오존전량과 대류권오존을 제공하는 5개의 화학기후모형 자료를 이용하여 모형에서 나타나는 동아시아 오존의 특성을 확인하였으며, 이를 관측 및 재분석 자료와 비교하여 평가하였다. 특히 최신 재분석 자료를 포함하는 7개의 재분석 자료 중, 동아시아 오존전량과 대류권오존을 신뢰할 수 있는 재분석 자료만을 검증하여 모형 자료 평가에 사용하였다. 동아시아 오존전량에 대해서는 CESM1-CAM4Chem이 오존전량의 공간 분포 및 연주기를 유사하게 모의했고, 1979년부터의 장기 추세 또한 재분석 자료의 표준편차 내에서 유사하게 모의했다. 대류권오존의 경우, 동아시아에서 가장 신뢰할 수 있는 화학기후모형은 MRI-ESM1r1로 나타났다. 타 모형들은 동아시아 대류권오존 공간 분포는 유사하게 모의하였으나, 연주기를 잘 모의하지 못하였다. 특히, HadGEM3-ES과 GEOSCCM의 경우 동아시아 대류권오존의 기후값을 유의하게 모의하

지 못하여, 모형별로 동아시아 대류권오존 모의가 상이함을 보였다. 따라서, CCM1-1 모형 중에서 동아시아에서 오존전량 및 대류권오존을 가장 잘 모의하는 모형은 각각 CESM1-CAM4Chem과 MRI-ESM1r1이라고 할 수 있다.

CCM1-1 모형들은 동아시아 오존전량의 공간 분포 및 연주기는 비교적 잘 모의한 반면, 대류권오존의 경우 공간 분포와 연주기를 모의하는데 있어 보다 큰 오차를 보였다. 이는 최신 세대 화학기후모형들이 성층권오존이 주를 이루는 오존전량보다 대류권오존을 모의하는 데 있어 보다 어려움을 겪고 있음을 의미한다. 화학기후모형이 오존을 잘 모의하는 데 있어 주요한 요인으로는 오존 전구물질의 배출 및 소멸(sink), 모형의 기상장 모의와 관련된 오존의 수송(transport), 그리고 접합된 화학 모형의 화학작용(chemistry reaction)이 있다. 대류권오존의 경우 오존전량보다 오존 전구물질의 배출 및 수송에 보다 민감하게 반응하기 때문에, 보다 큰 오차를 보인 것으로 생각된다. 이러한 화학기후모형이 나타내는 대류권 오존의 큰 오차는 선행연구에서도 확인된 바 있다(Hakim et al., 2019). 특히, 동아시아 대류권오존의 변화는 몬순 등 동아시아의 특징적인 기후 및 날씨와도 밀접하게 관련되어 있기 때문에 동아시아 기후를 면밀히 고려한 화학기후모형 연구의 필요성을 시사한다.

동아시아의 오존전량 및 대류권오존의 증가 추세 여부는 크게 주목받아왔으나, 본 연구 결과에 따르면 재분석 자료 및 화학기후모형에서 동아시아 오존전량과 대류권오존은 뚜렷한 증가나 감소 추세를 보이지 않는다. 그러나 본 연구에서는 동아시아에서 오존 자료를 제공하는 모형을 사용하기 위해 5개의 모형만을 분석하였기 때문에, 결과를 해석하는 데 있어 주의할 필요가 있다. 추후 보다 많은 모형들에서 동아시아 오존 자료를 제공하여 이를 검증한다면, 모형 자료를 이용하여 미래 동아시아 오존전량 및 대류권오존의 신뢰할만한 예측 또한 가능할 것으로 기대된다.

사사

본 연구는 고려대학교 오정리질리언스연구원의 지원과 2021년도 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(2017R1E1A1A01074889).

References

- Adachi Y, Yukimoto S, Deushi M, Obata A, Nakano H, Tanaka TY, Hosaka M, Sakami T, Yoshimura H, Hirabara M, Shindo E, Tsujino H, Mizuta R, Yabu S, Koshiro T, Ose T, Kitoh A. 2013. Basic performance of a new earth system model of the Meteorological Research Institute. *Pap. Meteorol. Geophys.*, 64, 1-19, doi:10.2467/mripapers.64.
- Chang KL, Petropavlovskikh I, Cooper OR, Schultz MG, Wang T. 2017. Regional trend analysis of surface ozone observations from monitoring networks in eastern North America, Europe and East Asia. *Elem Sci Anth.* 5:50. <https://doi.org/10.1525/elementa.243>
- Cooper OR, and Coauthors. 2014. Global distribution and trends of tropospheric ozone: An observation-based review. *Elem. Sci. Anth.*, 2, 29, doi:10.12952/journal.elementa.000029.
- Dee DP, and Coauthors. 2011. The ERA-Interim reanalysis: Configuration and performance of the data assimilation system. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 137(656), 553-597.
- Dhomse SS, Kinnison D, Chipperfield MP, Salawitch RJ, Cionni I, Hegglin MI, Abraham NL, Akiyoshi H, Archibald AT, Bednarz EM, Bekki S. 2018. Estimates of ozone return dates from Chemistry-Climate Model Initiative simulations. *Atmospheric Chemistry and Physics.* 18(11):8409-38.
- Emberson LD, and Coauthors. 2009. A comparison of North American and Asian exposure-response data for ozone effects on crop yields. *Atmos. Environ.*, 43, 1945-1953. doi:10.1016/j.atmosenv.2009.01.005.
- Eyring V., Lamarque JF, Hess P, Arfeuille F, Bowman K, Chipperfield MP, Duncan B, Fiore A, Gettelman A, Giorgetta MA, and Granier C. 2013. Overview of IGAC/SPARC Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI) community simulations in support of upcoming ozone and climate assessments. *SPARC newsletter*, 40, 48-66.
- Fishman J, Creilson JK, Parker PA, Ainsworth EA, Vining GG, Szarka J, Booker FL, and Xu X. 2010. An investigation of widespread ozone damage to the soybean crop in the upper Midwest determined from ground-based and satellite measurements. *Atmos. Environ.*, 44, 2248-2256, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.01.015.
- Gelaro R, McCarty W, Suárez MJ, Todling R, Molod A, Takacs L, Randles CA, Darmenov A, Bosilovich MG, Reichle R, Wargan K. 2017. The modern-era retrospective analysis for research and applications, version 2 (MERRA-2). *J. Clim.*, 30, 5419-5454. <https://doi.org/10.1175/JCLI-D-16-0758.1>
- Gaudel A, Cooper OR, Ancellet G, Barret B, Boynard A, Burrows JP, Clerbaux C, Coheur PF, Cuesta J, Cuevas Agulló E, Doniki S. 2018. Tropospheric ozone assessment report: present-day distribution and trends of tropospheric ozone relevant to climate and global atmospheric chemistry model evaluation. *Elem Sci Anth.* 6:39. <https://doi.org/10.1525/elementa.291>
- Han BR, Oh JY, Park S, and Son SW. 2019. Evaluation of the Total Column Ozone in the Reanalysis Datasets over East Asia. *Atmosphere*, 29(5), 659-669 (in Korean)
- Hakim ZQ, Archer-Nicholls S, Beig G, Folberth GA, Sudo K, Abraham L, Ghude S, Henze D, and Archibald A. 2019. Evaluation of tropospheric ozone and ozone precursors in simulations from the HTAPII and CCMI model intercomparisons—a focus on the Indian subcontinent. *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 6437-6458, <https://doi.org/10.5194/acp-19-6437-2019>.
- Hardiman SC, Butchart N, O'Connor FM, and Rumbold ST. 2017. The Met Office HadGEM3-ES chemistry-climate model: evaluation of stratospheric dynamics and its impact on ozone. *Geoscientific Model Development*, 10(3), 1209-1232.
- Hayashida S, Liu X, Ono AY, Yang K, and Chance K. 2015. Observation of ozone enhancement in the lower troposphere over East Asia from a space-borne ultraviolet spectrometer. *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 9865-9881, <https://doi.org/10.5194/acp-15-9865-2015>.
- Hersbach H, and Coauthors. 2019. Global reanalysis:

- goodbye ERA-Interim, hello ERA5. ECMWF Newsletter, 159. <https://doi.org/10.21957/vf291hehd7>. <https://www.ecmwf.int/node/19027>
- Huijnen V, Miyazaki K, Flemming J, Inness A, Sekiya T, and Schultz MG. 2020. An intercomparison of tropospheric ozone reanalysis products from CAMS, CAMS interim, TCR-1, and TCR-2. *Geosci. Model Dev.*, 13, 1513-1544. <https://doi.org/10.5194/gmd-13-1513-2020>.
- Inness A, Baier F, Benedetti A, Bouarar I, Chabrilat S, Clark H, Clerbaux C, Coheur P, Engelen RJ, Errera Q, Flemming J. 2013. The MACC reanalysis: an 8 year data set of atmospheric composition. *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 4073-4109. <https://doi.org/10.5194/acp-13-4073-2013>
- Inness A, Ades M, Agusti-Panareda A, Barre J, Benedictow A, Blechschmidt AM, Dominguez JJ, Engelen R, Eskes H, Flemming J, Huijnen V. 2019. The CAMS reanalysis of atmospheric composition. *Atmos. Chem. Phys.* 19:3515-3556. <https://doi.org/10.5194/acp-19-3515-2019>
- Kobayashi S, Ota Y, Harada Y, Ebata A, Moriya M, Onoda H, Onogi K, Kamahori H, Kobayashi C, Endo H, Miyaoka K, Takahashi K. 2015. The JRA-55 Reanalysis: general specifications and basic characteristics. *J. Meteor. Soc. Japan.* 93:5-48. <https://doi.org/10.2151/jmsj.2015-001>
- Kunze M, Kruschke T, Langematz U, Sinnhuber M, Reddmann T, Matthes K. 2020. Quantifying uncertainties of climate signals in chemistry climate models related to the 11-year solar cycle-Part 1: Annual mean response in heating rates, temperature, and ozone. *Atmos. Chem. Phys.* 12:20(11):6991-7019.
- Madronich S, McKenzie RL, Bjorn LO, Caldwell MM. 1998. Changes in biologically active ultraviolet radiation reaching the Earth's surface. *J. Photoch. Photobio. B*, 46, 5-19.
- Marsh DR, Mills MJ, Kinnison DE, Lamarque JF, Calvo N, Polvani LM. 2013. Climate change from 1850 to 2005 simulated in CESM1(WACCM), *J. Climate*, 26(19), 7372-7391, doi:10.1175/JCLI-D-12-00558.1.
- Miyazaki K, Bowman K, Sekiya T, Eskes H, Boersma F, Worden H, Livesey N, Payne VH, Sudo K, Kanaya Y, Takigawa M. 2020. An updated tropospheric chemistry reanalysis and emission estimates, TCR-2, for 2005-2018. *Data Discuss, Earth Syst Sci Data.* <https://doi.org/10.5194/essd-2020-30>
- Monks PS, Archibald AT, Colette A, Cooper O, Coyle M, Derwent R, Fowler D, Granier C, Law KS, Mills GE, Stevenson DS. 2015. Tropospheric ozone and its precursors from the urban to the global scale from air quality to short-lived climate forcer. *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 8889-8973. <https://doi.org/10.5194/acp-15-8889-2015>
- Morgenstern O, Hegglin MI, Rozanov E, O'Connor FM, Abraham NL, Akiyoshi H, Archibald AT, Bekki S, Butchart N, Chipperfield MP, Deushi M. 2017. Review of the global models used within phase 1 of the Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI). *Geosci. Model Dev.*, 10, 639-671, <https://doi.org/10.5194/gmd-10-639-2017>, 2017.
- Oman LD, Ziemke JR, Douglass AR, Waugh DW, Lang C, Rodriguez JM, Nielsen JE. 2011. The response of tropical tropospheric ozone to ENSO, *Geophys. Res. Lett.*, 38(13), doi:10.1029/2011GL047865.
- Park JK, Kim SY, Son SW. 2019. Evaluation of the Troposphere Ozone in the Reanalysis Datasets: Comparison with Pohang Ozonsonde Observation. *Atmosphere*, 29(1), 53-59 (in Korean).
- Park S, Son SW, Jung MI, Park J, Park SS. 2020. Evaluation of tropospheric ozone reanalyses with independent ozonsonde observations in East Asia. *Geoscience Letters*, 7(1):1-12.
- Parrish DD, and Coauthors. 2012. Long-term changes in lower tropospheric baseline ozone concentrations at northern mid-latitudes. *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 11485-11504, doi:10.5194/acp-12-11485-2012.
- Post ES, Gramsch A, Weaver C, Morefield P, Huang J, Leung LY, Mahoney H. 2012. Variation in estimated ozone-related health impacts of climate change due to modeling choices and assumptions. *Environ Health Perspect* 120:1559-1564

- Rayner NA, Parker DE, Horton EB, Folland CK, Alexander LV, Rowell DP. 2003. Global analyses of SST, sea ice, and night marine air temperature since the late nineteenth century. *J. Geophys. Res.*, 108 (D14).
- Revell, LE, Stenke A, Tummon F, Feinberg A, Rozanov E, Peter T, Abraham NL, Akiyoshi H, Archibald AT, Butchart N, and Deushi M. 2018. Tropospheric ozone in CCMI models and Gaussian process emulation to understand biases in the SOCOLv3 chemistry-climate model. *Atmospheric chemistry and physics*, 18(21), 16155-16172.
- Rienecker MM, Suarez MJ, Todling R, Bacmeister J, Takacs L, Liu HC, Gu W, Sienkiewicz M, Koster RD, Gelaro R. 2008. The GEOS-5 Data Assimilation System Documentation of Versions 5.0.1, 5.1.0, and 5.2.0, Tech. Rep. Ser. Glob. Model. Data Assim., doi:10.1016/j.socscimed.2011.06.006.
- Saha S, Moorthi S, Pan HL, Wu X, Wang J, Nadiga S, Tripp P, Kistler R, Woollen J, Behringer D, Liu H. 2010. The NCEP climate forecast system reanalysis. *Bull. Amer. Meteorol. Soc.*, 91, 1015-1058. <https://doi.org/10.1175/2010BAMS3001.1>
- Silva RA, West JJ, Zhang Y, Anenberg SC, Lamarque JF, Shindell DT et al. 2013. Global premature mortality due to anthropogenic outdoor air pollution and the contribution of past climate change. *Environ Res Lett* 8:034005
- Smith KL, Polvani LM. The surface impacts of Arctic stratospheric ozone anomalies. *Environmental Research Letters*. 2014 Jul 28;9(7):074015.
- Scott CE, Monks SA, Spracklen DV, Arnold SR, Forster PM, Rap A, Äijälä M, Artaxo P, Carslaw KS, Chipperfeld MP, Ehn M. 2018. Impact on short-lived climate forcers increases projected warming due to deforestation. *Nat. Commun.*, 9(157). <https://doi.org/10.1038/s41467-017-02412-4>
- Tanimoto H, Ohara T, Uno I. 2009. Asian anthropogenic emissions and decadal trends in springtime tropospheric ozone over Japan: 1998-2007. *Geophys. Res. Lett.*, 36, L23802, doi:10.1029/2009GL041382.
- Tilmes S, Lamarque JF, Emmons LK, Kinnison DE, Marsh D, Garcia RR, Smith AK, Neely RR, Conley A, Vitt F, Val Martin M. 2016. Representation of the community earth system model (CESM1) CAM4-chem within the chemistry-climate model initiative (CCMI). *Geosci. Model Dev. Discuss.*
- Wargan K, Labow GS, Frith S, Pawson S, Livesey N, Partyka G. 2017. Evaluation of the ozone fields in NASAs MERRA-2 reanalysis. *J Climate*. 30:2961-2988. <https://doi.org/10.1175/JCLI-D-16-0699.1>
- Young, PJ, and Coauthors. 2018. Tropospheric Ozone Assessment Report: Assessment of global-scale model performance for global and regional ozone distributions, variability, and trends. *Elem Sci Anth*, 6(10). DOI: <https://doi.org/10.1525/elementa.265>
- Zhao C, Wang Y, Yang Q, Fu R, Cunnold D, Choi Y. 2010. Impact of East Asian summer monsoon on the air quality over China: View from space. *J. Geophys. Res.*, 115, D09301, doi:10.1029/2009JD012745.