

제주도 고산 PM₁₀, PM_{2.5}, PM_{1.0} 중 OC와 EC의 계절별 변화 특성

Seasonal Variations of OC and EC in PM₁₀, PM_{2.5} and PM_{1.0} at Gosan Superstation on Jeju Island

임 세 희 · 이 미 해* · 강 경 식¹⁾

고려대학교 지구환경과학과, ¹⁾제주대학교 해양과학부

(2010년 5월 23일 접수, 2010년 7월 26일 수정, 2010년 8월 16일 채택)

Saehee Lim, Meehye Lee* and Kyeong-Sik Kang¹⁾

Department of Earth and Environmental Sciences, Korea University

¹⁾College of Ocean Science, Jeju National University

(Received 23 May 2010, revised 26 July 2010, accepted 16 August 2010)

Abstract

Organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) concentrations were determined for PM₁₀, PM_{2.5} and PM_{1.0} aerosols particles collected at Gosan Superstation on Jeju Island from August 2007 to September 2008. Aerosols were collected on quartz filters for 24 hours and then OC and EC were analyzed by TOR/IMPROVED method. Mean concentrations of OC and EC were 4.66 µg/m³ and 1.69 µg/m³ for PM₁₀, 3.95 µg/m³ and 1.69 µg/m³ for PM_{2.5}, and 3.16 µg/m³ and 1.42 µg/m³ for PM_{1.0}, respectively. The concentrations of OC and EC comprised 16.4% and 6.0% of PM₁₀, 22.9% and 9.8% of PM_{2.5}, and 23.0% and 10.0% of PM_{1.0}. OC and EC showed a clear seasonal variation with the highest in winter and the lowest in summer. The correlations between the two were also the best during the winter (R²=0.87, 0.94, and 0.95 for PM₁₀, PM_{2.5} and PM_{1.0}). The ratio of OC/EC exhibited the maximum (7.24) during an Asian dust event due to an increase of OC, which was possibly derived from soil. The mass fraction of both OC and EC was the highest in fall. When OC and EC concentrations were highly elevated, EC1 (the first EC fraction determined at 550°C) and pyrolyzed OC (POC) were dominant subcomponents in winter and OC3 (the third OC fraction determined at 450°C) and POC in spring.

Key words : PM₁₀, PM_{2.5}, PM_{1.0}, OC, EC

1. 서 론

대기중의 갈색구름 (Atmospheric Brown Clouds)은

*Corresponding author.

Tel : +82-(0)2-3290-3178, E-mail : meehye@korea.ac.kr

주로 화석연료연소와 생체연소에 의하여 생성된 탄소성 입자와 관련이 깊다 (Gustafsson *et al.*, 2009). 이러한 갈색구름은 빛을 흡수하는 입자와 빛을 산란시키는 입자로 구성되어 대기를 온난하게 만들기도 하고 지표면을 냉각시키기도 한다. 이 두 가지 기후변화의 기작은 결과적으로 기후의 냉각화를 야기한다

고 알려져 있다(Ramanathan *et al.*, 2007). 그러나 탄소성 입자에 의한 기후변화의 기작에 관하여 알려진 바는 매우 적다(IPCC, 2007).

탄소성 입자는 흔히 Elemental Carbon (무기탄소, 이하 EC)와 Organic Carbon (유기탄소, 이하 OC)로 분류된다. EC는 Black Carbon (BC) 혹은 숯검댕 (soot) 이라고도 알려져 있으며 주로 화석연료와 생체 (biomass)의 불완전연소로부터 대기 중으로 직접 방출되고 토양과 육상퇴적물에는 항상 존재한다(Schmidt and Noack, 2000). 이러한 EC는 비휘발성과 빛을 흡수하는 성격을 가지고 있다(Han *et al.*, 2007; Chow *et al.*, 2005). EC와 같은 빛을 흡수하는 탄소성 입자는 이산화탄소에 이어 기후의 온난화에 기여도가 가장 높은 물질이다(Ramanathan and Carmichael, 2008). 다양한 분자 형태로 존재하는 OC는 대기 중으로 직접 방출되기도 하고 가스상 물질의 광화학반응을 통하여 이차적으로 생성되기도 한다. 가스상 전구물질의 변형에 의하여 이차적으로 생성되기도 하는 OC, 즉 Secondary Organic Aerosols (이차 유기탄소, 이하 SOA)는 주로 생물 기원 유기탄소의 광화학반응에 의하여 주로 생성되는 것으로 알려져 있다(Ng *et al.*, 2008; Dommen *et al.*, 2006; Guenther *et al.*, 2006; Kroll *et al.*, 2006; Surratt *et al.*, 2006).

탄소성 입자는 주로 $PM_{1.0}$ 이하의 미세입자에 분포하고 전 지구적으로 배출되는 submicrometer 입자의 약 37%를 차지한다(Yang *et al.*, 2005; Andrews *et al.*, 2000; Gray *et al.*, 1986; Shah *et al.*, 1986). 그러나 탄소성 입자에 대한 이해도는 매우 낮다(Gard *et al.*, 1998). 특히 입자상 유기물질 중 오직 10~30%의 화합물만이 밝혀져 있다(Simoneit *et al.*, 2004).

전 지구적 혹은 지역적인 기후변화에 대한 탄소성 입자의 역할과 특성을 파악하기 위해서는 먼저 탄소성 입자의 발생원을 규명하는 과정이 필요하다. Streets *et al.* (2003)에 의하면 중국의 BC 배출량은 아시아 배출량(2.54 Tg yr⁻¹)의 41.3%로 SO₂, NH₃에 이어 아시아 배출량 중 중국의 기여도가 가장 높은 성분이다. 이 중 석탄과 생체연료 연소에 의한 주거활동 부문에서 74%로 가장 높았다. 또한 중국의 OC 배출량(3.38 Tg yr⁻¹) 역시 주거활동 부문에서 76%로 가장 높은 것으로 보아 중국에서 배출되는 탄소성 입자는 주거활동에서 일어나는 석탄과 생체연료의 연소 과정이 가장 중요한 것으로 나타났다.

제주도 고산 배경 농도 측정소에서는 최근 $PM_{2.5}$ 탄소성분의 관측이 여러 차례 수행되었고(Wang *et al.*, 2009; Moon *et al.*, 2008; Lee *et al.*, 2007) PAHs의 측정이 이루어졌다(Lee *et al.*, 2008). 그러나 기존 연구에서 $PM_{1.0}$ 과 같은 미세입자의 관측은 매우 미미하였다(Lim, 2009). 기후변화의 복사강제력 결정에 입자의 입경은 매우 민감한 요소이고(Brink *et al.*, 2009), 특히 대기오염에 의한 입자가 기후변화에 미치는 영향과 그 기작을 이해하기 위해서는 1 μ m 이하의 입자 연구가 필수적이다. 또한 최근에 들어 여러 차례의 집중 관측이 실시되었지만 장기간의 상시 관측 자료의 부족으로 탄소성 입자의 농도 분포와 계절적 변화에 대하여 알려진 바는 매우 적다.

본 연구에서는 OC와 EC의 입경별 관측 자료를 바탕으로 제주 고산의 탄소성 입자의 계절적 농도 분포와 기원 특성을 파악하고자 한다. 이를 통하여 동아시아의 기후변화와 대기오염에서 중요한 역할을 하는 탄소성 입자에 대한 이해도를 높이고자 한다.

2. 측 정

2007년 8월부터 2008년 9월까지 제주도 고산(33.17°N, 126.10°E, 70 m ASL)에서 PM_{10} , $PM_{2.5}$, $PM_{1.0}$ 을 측정하였다. 약 10 m 높이의 철재 탑에 low volume sampler (16.7 LPM)를 장착하였다. 테플론으로 코팅된 알루미늄 싸이클론(URG, USA)을 이용하여 각 10 μ m, 2.5 μ m와 1.0 μ m 세 세트의 시료를 37 mm Quartz 필터에 채취하였고(Pall Corp.) dry gas-meter로 누적유량을 측정하였다.

시료 채취는 오전 09시에서 익일 오전 09시까지 24시간 동안, 6일에 한 번 상시관측을 기본으로 하였고, 황사와 오염 사례 경우에는 추가로 시료 채취가 이루어졌다. PM_{10} , $PM_{2.5}$, $PM_{1.0}$ 을 한 세트로 하여 총 41 세트를 채취하였으며 월별 시료의 개수는 표 1과 같다.

포집된 Quartz 필터는 시료 채취 후 즉시 냉동 보관하였고 DRI (Desert Research Institute)에서 TOR/IMPROVED (Thermal Optical Reflectance/Interagency Monitoring of Protected Visual Environments) protocol 방법(Chow *et al.*, 1996)에 의해 탄소성분을 분석하였다. OC는 다섯 가지(OC1, OC2, OC3, OC4

Table 1. The number of sample sets of PM₁₀, PM_{2.5} and PM_{1.0} from Aug. 2007 to Sep. 2008.

Year	2007					2008								Total
	Aug.	Sep.	Oct.	Nov.	Dec.	Jan.	Feb.	Mar.	Apr.	May	Jun.	Aug.	Sep.	
No.	1	0	5	4	2	5	3	4	8	4	1	2	2	41

Table 2. Summary of OC and EC measurements.

	(Unit in $\mu\text{g}/\text{m}^3$)					
	PM ₁₀		PM _{2.5}		PM _{1.0}	
	OC	EC	OC	EC	OC	EC
Mean	4.66	1.69	3.95	1.69	3.16	1.42
Max.	10.90	5.30	12.39	5.69	8.10	3.81
Min.	0.77	0.21	0.47	0.21	0.57	0.19
S.D	2.50	1.16	2.50	1.25	1.82	0.76

와 POC)로, EC는 세 가지(EC1, EC2와 EC3)로 분류된다. 휘발성의 OC 성분을 온도에 따라 분류하여 측정 후 EC를 측정한다. 먼저 헬륨 조건 하의 120°C에서 OC1, 250°C에서 OC2, 450°C에서 OC3, 550°C에서 OC4의 분석이 이루어진다. OC4 측정 후, pyrolyzed carbon에 의하여 EC가 과대평가되지 않도록 550°C에서 2%의 산소와 98%의 헬륨 공기 안에서 필터를 산화시킨다. 이 때 발생하는 탄소성분을 Pyrolyzed Organic Carbon (열분해 유기탄소, 이하 POC)라 한다. 그 후 550°C에서 EC1, 700°C에서 EC2, 850°C에서 EC3 항목을 각각 측정한다. $\text{OC}=\text{OC1}+\text{OC2}+\text{OC3}+\text{OC4}+\text{POC}$, $\text{EC}=\text{EC1}+\text{EC2}+\text{EC3}+\text{EC4}-\text{POC}$ 로 정의된다(Chow *et al.*, 2005).

기상자료는 기상청의 온도, 상대습도, 풍향, 풍속의 지상관측 자료를 사용하였다. 1시간 평균의 기상자료를 하루 동안 측정된 PM₁₀, PM_{2.5}, PM_{1.0}과 비교하기 위하여 하루 평균하여 사용하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 PM₁₀, PM_{2.5}와 PM_{1.0}의 OC와 EC

PM₁₀, PM_{2.5}, PM_{1.0} 중 OC의 평균 농도는 4.66 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 3.95 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 3.16 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이었고 EC 평균 농도는 1.69 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 1.69 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 1.42 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이었다(표 2와 그림 1). 전체적으로 OC의 농도가 EC보다 2.3~2.8배 높았는데, 특히 PM₁₀에서 OC의 농도가 EC의 농도보다 2.8

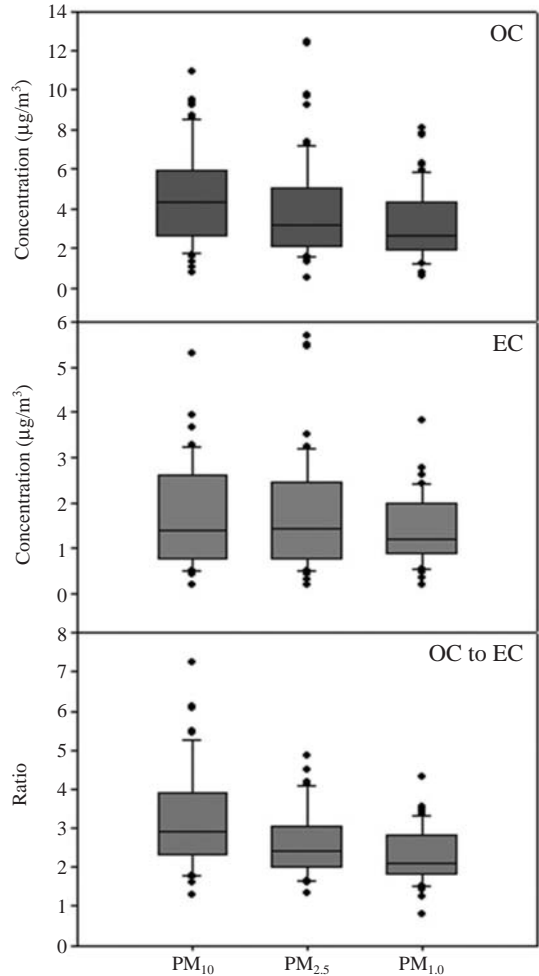


Fig. 1. Concentrations of OC and EC, and the ratios of OC to EC. A solid line within the box marks the median value of the data. The bottom and top of the box represent the 25th and the 75th percentiles. Whiskers above and below the box indicate the 90th and the 10th percentiles, and solid circles are outliers.

배 높았다. 질량에 대한 OC와 EC의 함량비는 PM₁₀에서 16.4%와 6.0%, PM_{2.5}에서 22.9%와 9.8%, PM_{1.0}

에서 23.0%와 10.0%로 OC와 EC 모두 작은 입경에서의 함량비가 컸다. 한편, EC에 비하여 OC의 표준편차가 크게 나타났는데, 이는 OC의 배출원과 생성 과정이 EC에 비하여 다양하기 때문인 것으로 간주된다. 즉, EC는 화석연료 연소, 생체 연소와 자동차 디젤 연소 등 연소 과정에서 1차적으로 생성되지만, OC는 EC와 비슷한 연소 과정에 의하여 생성되는 입자 외에도 1차적으로 대기 중에 배출되는 식물, 토양, 해양 성분의 입자와 대기 중에서 광화학 반응에 의하여 2차적으로 생성되는 SOA를 포함한다(Szidat *et al.*, 2009). 또한 OC는 보통 표면 반응률(Surface reactivity)이 높다고 알려져 있기 때문에 대기 중에서의 화학 반응에 민감하여 농도의 편차가 클 수 있을 것이다(Maria *et al.*, 2004; Russell *et al.*, 2002).

본 연구에서의 PM_{2.5}의 OC와 EC 농도는 홍콩의 Top Mun 배경대기지역에서 측정된 PM_{2.5} 중의 OC (4.9 µg/m³)보다는 낮고 EC (0.8 µg/m³)보다는 2배 이상 높았다(Hagler *et al.*, 2006). EC의 경우 모든 입경에서 영국의 Harwell 배경대기지역에서 측정된 PM₁₀ EC (0~1 µg/m³)보다 높았다(Jones and Harrison, 2005). 서울의 PM_{2.5} 중 OC, EC와 비교했을 때, 고산의 농도가 1/2~1/5 가량 낮았지만 OC의 함량비는 유사한 반면, EC의 함량비는 약 2배 낮아 OC/EC 비는 2배 가량 높았다(Park *et al.*, 2001). 한편 중국의 도시지역인 Pearl River Delta Region과 Xi'an에서 측정된 OC와 EC의 농도는 본 연구에서보다 월등히 높았으나 PM_{2.5} OC/EC는 2.4로 본 연구에서의 OC/EC (2.3)와 비슷하였다(Cao *et al.*, 2003). 즉 고산은 내부의 인위적인 오염원이 적은 청정한 지역이지만 다른 배경대기지역에 비하여 EC의 농도는 높고, OC/EC 비는 중국의 도시지역과 유사하였다. 따라서 고산의 탄소성 입자, 특히 EC는 외부의 영향을 크게 받고 있는 것으로 보인다.

3.2 OC와 EC의 계절별 특성

3.2.1 OC와 EC의 농도 특성

OC와 EC의 농도를 결정하는 주 요인을 파악하고자 먼저 기상 특성을 살펴보았다(표 3). 계절별 OC와 EC의 농도는 온도와 습도 그리고 풍향과 풍속 등 계절별 기상 인자의 영향이 큰 것으로 나타났다. 기상 특성을 근거로 3~5월을 봄, 6~9월을 여름(9월에는 초순에 시료 채취가 이루어져 여름으로 분류하였다), 10~11월을 가을, 그리고 12~2월을 겨울로 구분하였다. OC와 EC의 계절별 평균농도는 PM₁₀에서 3.0~5.3 µg/m³와 0.9~2.2 µg/m³, PM_{2.5}에서 2.2~4.9 µg/m³와 0.8~2.2 µg/m³, PM_{1.0}에서 2.1~3.8 µg/m³와 0.9~1.7 µg/m³로 변화했다.

고농도의 OC와 EC는 주로 겨울에 관측되었고 봄, 가을, 여름 순으로 농도가 높았다. 특히 PM₁₀, PM_{2.5}, PM_{1.0} 모든 입경에서 OC와 EC의 월 평균 최대농도는 2월에 나타났다. 이러한 월 변화는 풍속과 대체로 비례하였으며 월 평균 최대농도와 월 평균 최대풍속이 2월로 일치하였다. 실제 바람이 많은 것으로 유명한 제주도에서도 고산은 연간 최대 풍속이 13.9 m/s를 넘는 날이 80일을 초과할 정도로 바람이 가장 강하다(권태태 등, 2004). 또한 겨울과 봄의 주 풍향은 북서풍이었으며, OC와 EC의 농도가 가장 높았던 겨울 중 OC와 EC의 최소값이 관측된 1월 21일에는 강수가 관측되었다. 연소활동으로 인하여 발생하는 오염물질의 중요한 추적자로 이용되는 CO 역시 2월에 최대값을 나타내었고 SO₂의 경향성도 CO와 유사하였다(Kim *et al.*, 2008). 한편 질량, 수용성 이온 성분 중 가장 높은 함량을 차지하는 질산염과 황산염도 월 평균 최대농도가 2월에 나타났다(Lim, 2009). 따라서 아시아대륙에서 불어오는 빠른 북서풍이 겨울철 OC와 EC 농도의 증가를 증가시킨 것으로 볼

Table 3. Seasonal variations of meteorological parameters, OC, EC and mass.

Season	Meteorological parameters					Mass			EC			OC		
	WD (mode)	WS (m/s)	TEMP (°C)	RH (%)	RN (mm)	PM ₁₀	PM _{2.5}	PM _{1.0}	PM ₁₀	PM _{2.5}	PM _{1.0}	PM ₁₀	PM _{2.5}	PM _{1.0}
Winter	NW	9.8±4.4	7.4±2.8	60.3±13.3	3.1±5.6	29.0±16.7	20.3±11.5	16.3±8.8	2.2±1.6	2.2±2.0	1.7±1.2	5.3±3.0	4.9±3.6	3.8±2.2
Spring	NW	7.3±4.3	13.3±3.1	67.4±10.5	0.9±2.6	35.2±14.3	19.4±7.3	15.1±7.4	1.8±1.0	1.8±0.9	1.5±0.6	5.1±2.7	4.1±2.4	3.2±2.0
Summer	SE*	3.1±0.5	23.8±2.0	73.4±5.0	0.02±0.0	20.9±3.7	13.5±3.2	12.3±7.3	0.9±0.2	0.8±0.1	0.9±0.3	3.0±0.5	2.2±0.2	2.1±0.4
Fall	NE*	6.4±2.8	15.3±4.3	60.0±12.0	0.1±0.3	20.6±9.6	12.9±9.8	9.4±6.5	1.5±0.9	1.5±0.9	1.3±0.6	4.3±1.8	3.8±1.4	3.1±1.3

*Air reached Gosan, passing through China and the Yellow Sea.

수 있다. OC/EC 비는 탄소성 입자의 기원에 관한 정보를 제공한다(Cao *et al.*, 2005; Chow *et al.*, 1996). OC/EC 비는 1) 배출원, 2) 이차적 입자의 생성, 3) deposition에 의한 OC/EC 제거율 차이(Cachier *et al.*, 1996)에 영향을 받는다. 본 연구에서 OC/EC의 기울기는 대체로 작은 입경 (PM_{1.0})으로 갈수록 증가하여 작은 입경에서 이차적으로 생성된 OC의 함량이 보다 많음을 지시하였다. OC와 EC의 상관관계는 여름을 제외하고 모든 계절에서 대체로 좋았고 특히 겨울, 가을, 봄의 순으로 상관계수(R²)가 컸다. 다음에서는 OC와 EC의 변화특성을 계절별로 나누어 이들의 비를 통하여 살펴보았다.

3.2.2 겨울과 봄의 OC/EC 비

PM₁₀, PM_{2.5}, PM_{1.0}의 겨울철 OC/EC의 상관계수는 0.87, 0.94, 0.95로 높게 나타나(그림 2) OC와 EC의

배출원이 매우 유사함을 지시하였다(Cao *et al.*, 2005, 2003; Yang *et al.*, 2005; Dan *et al.*, 2004). 특히 겨울철 OC와 EC는 주로 난방연료 연소와 같은 인위적 배출에 의한 것으로 보인다. Yang *et al.* (2005)은 북경과 상해에서 1년간 OC와 EC를 측정하였는데, 본 연구에서와 같이 겨울철 농도가 가장 높고 상관성도 가장 컸다. 한편 PM₁₀에 비하여 상대적으로 높은 PM_{2.5}와 PM_{1.0}의 상관계수는 작은 입경에서 OC와 EC의 배출원이보다 유사함을 지시한다. 또한 PM₁₀에서는 OC 농도 증가로 인하여 OC와 EC의 상관성이보다 낮아졌다. 12~2월 기상 특성은 북서풍이 주풍으로 평균 풍속은 10.2 m/s, 일 평균 최대풍속은 18.9 m/s이었다. 아시아대륙에서 불어오는 빠른 북서풍이 영향을 미쳤다. 이는 배출원이 유사한 공기가 아시아대륙에서 빠르게 이동된 것을 의미하며, 그 결과 OC와 EC의 상관성이 높아진 것으로 보인다.

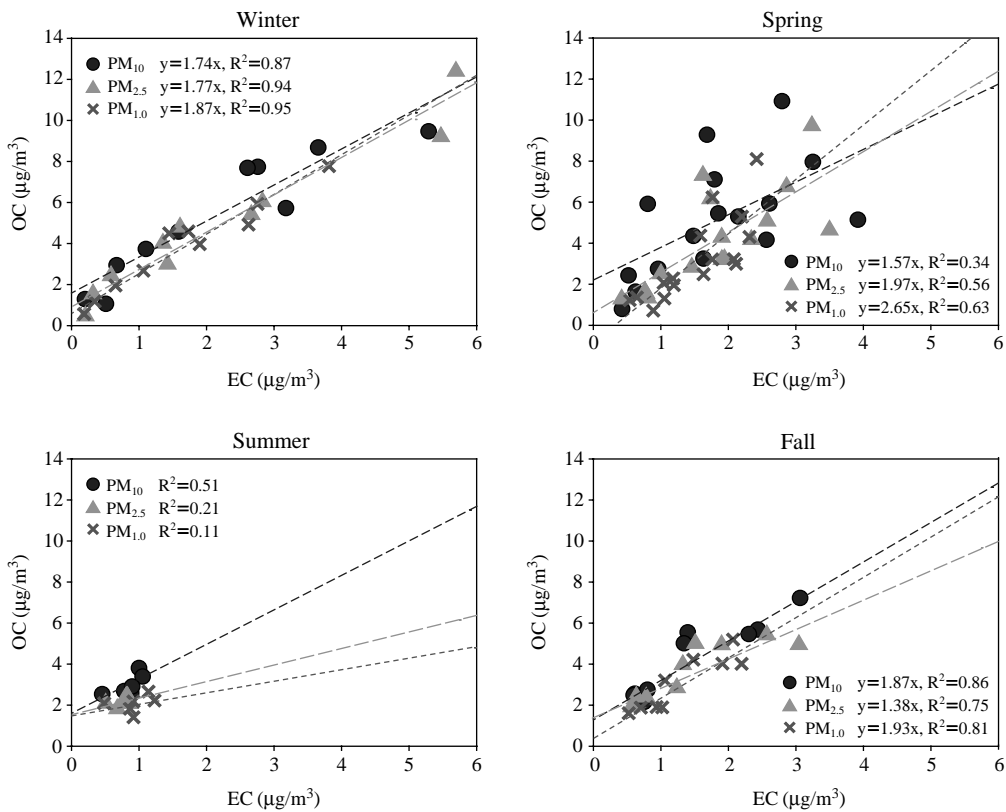


Fig. 2. Correlations of OC and EC concentrations. Dotted lines stand for linear regression fittings, of which slope and R² values are given.

봄철 OC와 EC의 농도는 겨울철 다음으로 높았으나 OC와 EC의 상관성은 낮았다. 특히 PM₁₀에서의 상관계수가 가장 낮았는데, 이는 봄철의 다양한 사례의 영향으로 간주된다. 봄이 되면서 빠른 북서 계절풍이 약화되고 북동풍, 남동풍과 같은 동풍의 영향이 증가하는 동시에 풍속이 2.6~17.0 m/s로 변화폭이 커졌기 때문으로 보인다. 3월(11일)에 관측된 황산염 고농도사례시에는 EC가 증가였고, 4월(23일과 26일)에는 OC가, 5월(30일) 황사의 영향권에서도 OC 고농도가 관측되었다. Yang *et al.* (2005)의 연구에서 봄철 북경의 OC와 EC는 높은 상관성을 보였으나, 상해에서는 상관성이 나타나지 않았다. 겨울철에 고산으로 유입되는 공기는 주로 상해보다 높은 위도에서 이동해오지만, 봄이 되면 상해를 포함하여 다양한 지역에서 공기가 이동되어 오히려 봄철 고산의 OC와 EC의 상관성이 낮은 것으로 판단된다.

OC와 EC의 고농도사례, 즉 상위 10 percentile 사례는 전체 측정기간 중 겨울과 봄에 관측되었다(표 4). 1월과 2월에는 OC와 EC의 농도 증가 경향이 비슷하였으나 3~5월 봄철은 OC와 EC의 사례일이 다르고 입경별 특성도 달랐다. 한편 OC와 EC의 고농도 사례는 뚜렷한 차이를 보였다. EC의 경우, 큰 입자의 사례기간에는 느린 동풍이 불어왔지만 작은 입자의

사례기간에는 풍속이 증가하고 북서풍의 비율이 높아지는 특성이 관측되었다. 반면 OC의 사례기간은 입경에 상관없이 빠른 북서풍의 영향을 받았다. PM₁₀ OC와 EC 고농도사례 기간의 평균 질산염 농도가 OC 사례 기간에 조금 더 높은 것을 제외하면, 모든 입경의 질량, 질산염과 황산염 농도는 OC보다 EC의 고농도사례 기간에 더 높았다. 화석연료연소 등의 인위적인 배출에서 주로 기인하는 EC, 질산염, 황산염에 비하여 OC는 인위적인 배출의 비율이 적기 때문이다. 또한 EC의 넓은 표면적으로 인하여 가스상, 입자상 물질과의 반응률이 OC보다 월등하였을 수 있다. 2008년 1월 9일과 2월 20일은 OC, EC, 질량, 질산염과 황산염 모두 고농도가 관측되었다. 1월 9일은 EC와 황산염의 농도가 더 높았고 2월 20일은 OC, 질량과 질산염의 농도가 높았다. EC의 고농도 사례 기간에 포함되는 2008년 3월 11일의 경우, 황산염이 모든 입경에서 최고농도가 관측되었다. 2008년 4월 23일에는 PM_{1.0}과 PM₁₀ OC의 농도는 평균보다 약 2배 증가하였으나 EC의 농도는 평균과 같았고 질산염과 황산염을 비롯한 수용성 이온성분도 평균농도였다. 이는 이차적으로 생성된 OC의 함량이 높음을 지시한다. 이러한 사례들의 차이를 구분하기 위하여 NOAA HYSPLIT MODEL을 이용하여 500 m 공기의

Table 4. The averaged mass, nitrate, and sulfate concentrations and meteorological parameters for the upper 10 percentile of OC and EC episodes.

	OC			EC		
	PM ₁₀	PM _{2.5}	PM _{1.0}	PM ₁₀	PM _{2.5}	PM _{1.0}
Date (MM-dd)		01-09		01-09	01-09	01-09
		02-20		02-20	02-20	02-20
				03-11	03-11	
		04-26			04-26	04-26
		04-23		05-21		01-03
Mass ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	44.58	29.36	23.05	47.58	33.36	24.32
Nitrate	5.06	2.82	1.82	4.88	3.10	2.12
Sulfate	9.41	9.13	8.08	12.31	11.47	8.05
WS (m/s)		9.2		4.9	5.6	7.4
WD		NE (25%) NW (75%)		NE (25%) NW (25%) SE from continent (50%)	NE (25%) NW (50%) SE from continent (25%)	NE (25%) NW (75%)
Temp. ($^{\circ}\text{C}$)		10.5		12.2	10.7	9.8
RH (%)		57.2		62.1	58.1	54.4

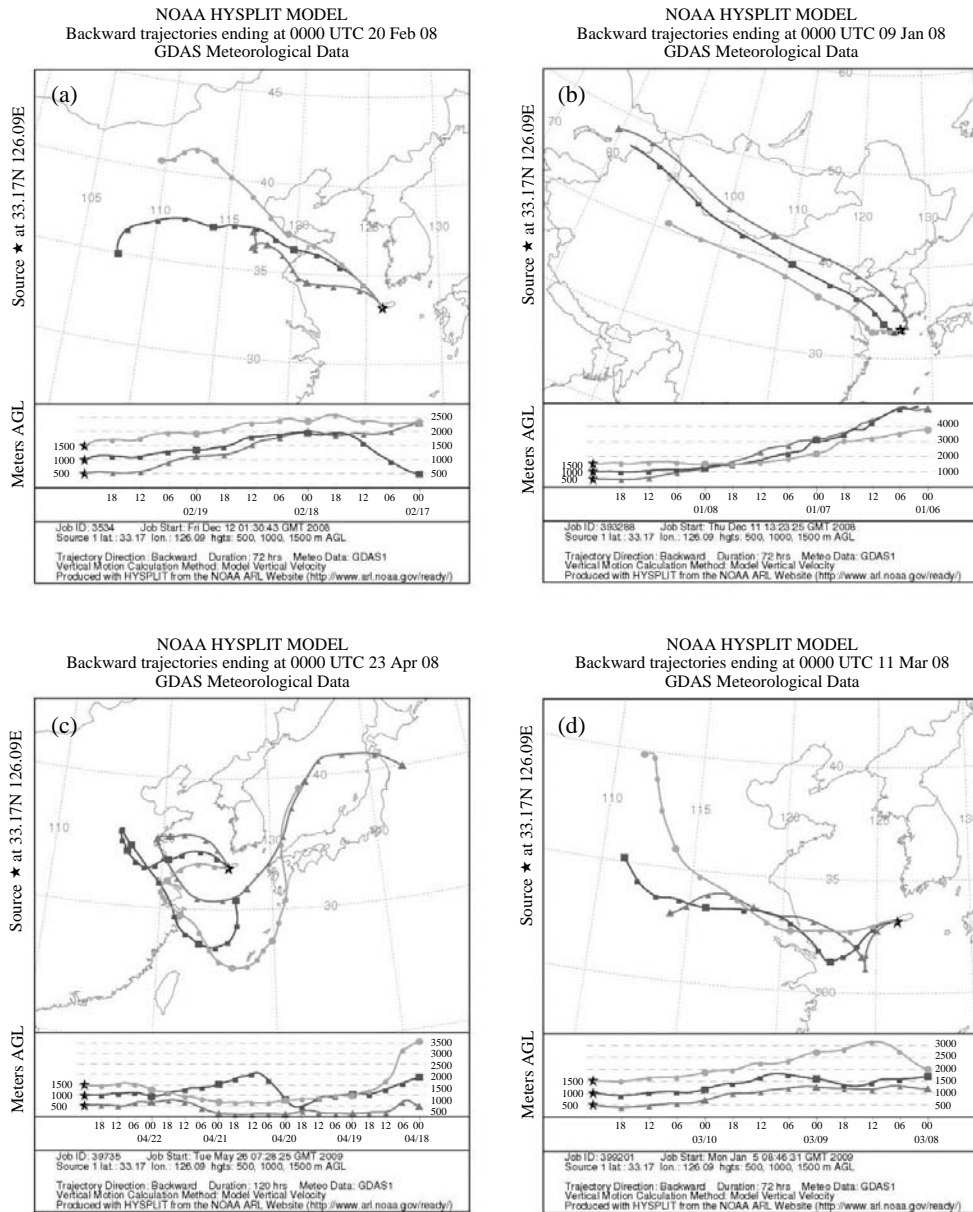


Fig. 3. Backward air-mass trajectories of the high OC and EC episodes (the upper 10 percentile) for 3 days (a) 2008-01-09, (b) 2008-02-20 and (c) 2008-03-11, and 5 days (d) 2008-04-23.

역궤적을 분석하였다(그림 3). 1월 9일은 공기궤가 고비사막과 북경 부근을 빠르게 지나왔고 2월 20일은 산둥반도 이남에서 느리게 이동해왔다. 3월 11일은 공기궤의 위도가 더욱 낮아져 상해 부근을 지나 중국 동부해안에 오래 정체되었다. 4월 23일은 오전

에는 일본을 지나 동해상에서 이동해온 공기가 중국 남동부해안을 통해 이동하였으나 오후에는 바람의 방향이 바뀌며 북서쪽에서 빠르게 유입되었다.

황사의 영향권에 있었던 5월 30일의 경우, PM₁₀ OC/EC 비가 7.24로 최대값을 나타내었다. 이때 PM₁₀

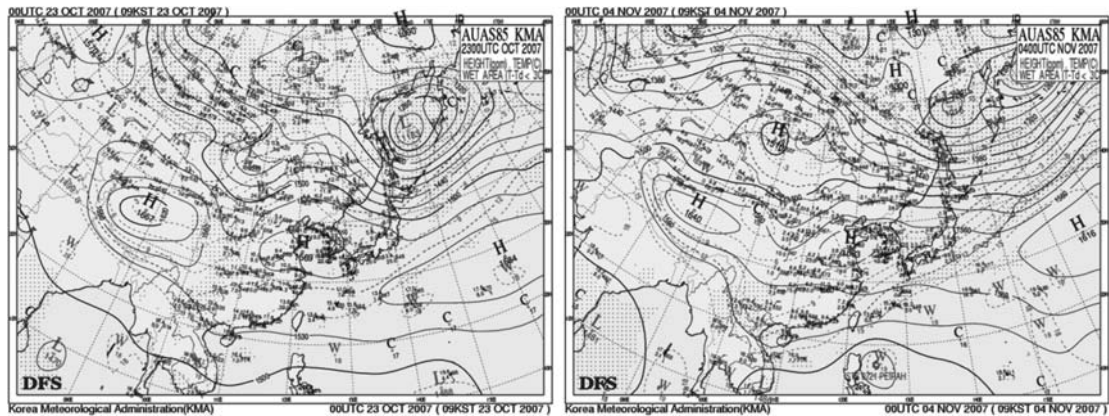


Fig. 4. 850 hPa weather map for 23 Oct. (left) and 4 Nov. (right).

질량에 대한 EC의 함량비는 1.2%로 평균 EC 함량비 (6.0%)에 비하여 큰 폭으로 줄어든 반면, PM₁₀ 질량에 대한 OC의 함량비는 8.4%로 평균 OC 함량비 (16.4%)에 비하여 감소율이 적었다. 반면 PM_{1.0} OC와 EC는 비슷한 폭으로 줄어들어 OC/EC 비는 2.10로 평균 OC/EC 비와 유사하였다.

EC는 주로 char와 soot으로 분류될 수 있다. Char-EC는 주로 나무 등 생체연소에 의하여 상대적으로 낮은 온도에서 형성되고(직경 1~100 μm) soot-EC는 디젤 엔진 등에서의 연소 반응에 의하여 높은 온도에서 배출된 증기가 응결된 입자를 일컫는다(직경 0.1~1 μm) (Han *et al.*, 2007). 토양 입자와 같은 refractory 입자는 일반적으로 직경이 1 μm 이상이지만, non-refractory 입자는 PM_{1.0}에 존재한다(Kondo *et al.*, 2007). 따라서 황사 발원지에서 공기가 이동해온 5월 30일은 char-EC 혹은 soot-EC의 배출이 비교적 적은 반면 토양 성분의 OC는 발원지에서부터 빠른 바람을 타고 이동해온 것으로 보인다. 또한 황사사례일 외에도 중국 내륙지역 토양입자의 발원지역에서 공기가 자주 이동해왔다. 따라서 OC/EC 비의 증가는 이차적 입자의 영향 외에 토양기원 등 일차적인 OC의 영향이 있었을 것이다.

대기 중의 OC는 직접적으로 배출되는 일차적 입자와 휘발성유기화합물(Volatile Organic Compounds)의 화학적 반응에 의하여 대기 중에서 형성되는 이차적 입자를 모두 포함하는 반면, 대기 중의 EC는 일차적으로만 생성된다. 일차적 OC와 이차적 OC를 정

량적으로 구분하기 힘들기 때문에 흔히 EC가 일차적 OC의 지시자로서 사용된다. 그러나 고산과 같은 배경대기지역은 OC/EC 비율이 외부에서 유입되는 인위적인 오염물질, EC의 농도 변화에 의하여 주로 좌우되고(Shin *et al.*, 2002; Kim *et al.*, 1998) 이차적 입자가 아니더라도 황사 등에 의하여 토양 성분의 OC 농도가 증가할 수 있기 때문에 단순히 OC/EC의 크고 작음으로 이차적 생성과 일차적 생성을 구분하기 어렵다. OC와 EC의 개별 농도와 이동경로, 기상장 특성 등 다양한 요인을 비교 분석함으로써 보다 정확히 구분할 수 있을 것이다.

3.2.3 여름철의 OC/EC의 비

여름철 OC와 EC 농도는 모든 계절 중 가장 낮았다. 이는 OC와 EC의 1차적 배출의 감소뿐 아니라, 북태평양기단과 측정 전후 강수에 의한 세정효과의 영향일 것이다. OC와 EC의 상관성도 거의 없었다. 여름철은 화석연료 사용량과 생체연소 발생의 감소로 특히 EC의 배출이 감소한 데다 북서풍의 유입이 적어 아시아대륙의 영향력이 줄어든 반면, 대기 중 광화학반응에 의하여 이차적으로 생성되는 OC의 비율이 증가하기 때문에 상관성이 낮은 것으로 보인다. Kim *et al.* (2000)은 1994년과 1995년 여름 세 차례 PM_{2.5}를 집중 관측하였는데, 한 차례를 제외하고 본 연구에서와 같이 OC와 EC의 상관성이 낮은 결과를 얻었다. 본 연구보다 높은 OC 농도가 관측되었으나, OC/EC 비가 높은 유사성이 있었고 상대적으로 높은

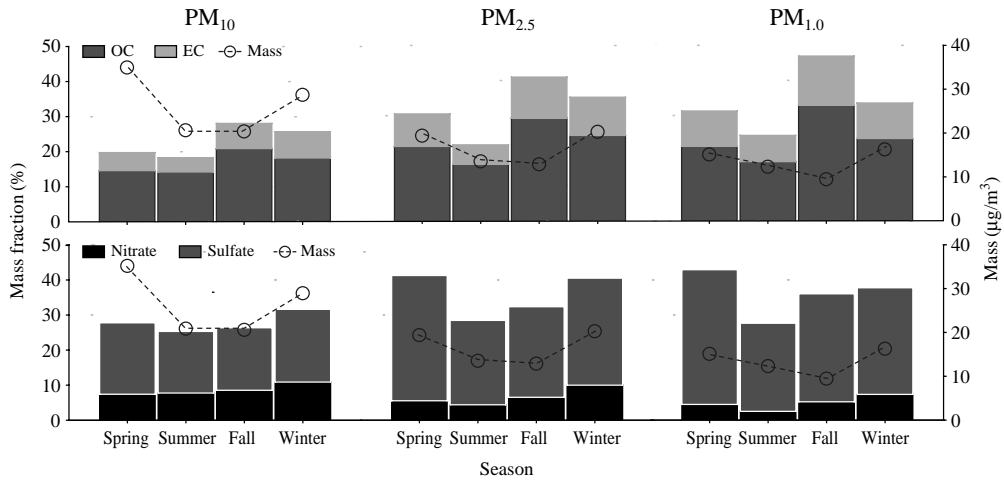


Fig. 5. Seasonal mass fractions (%) of OC, EC, nitrate and sulfate in PM₁₀, PM_{2.5} and PM_{1.0}.

OC는 생물학적인 배출(biogenic emission)로 인한 것으로 해석하였다. 여름철 OC 농도 증가에 대한 구체적인 연구가 필요하다.

3.2.4 가을철의 OC/EC 비

가을철 OC와 EC의 농도는 봄과 겨울에 비하여 낮았지만 질량에 대한 함량비는 높았다(그림 5). 특히 PM_{1.0}에서 OC, EC의 함량비가 높았다. OC와 EC의 농도가 가장 높은 겨울철에는 질산염과 황산염의 농도도 가장 높은 반면, 가을철에는 질산염과 황산염의 농도가 높지 않은 것이 한 요인이다(그림 5). 또한 OC와 EC는 겨울철 다음으로 높은 상관성을 나타내었다.

다른 계절과 달리 가을철에 OC, EC 모두 질산염과의 상관성이 좋았는데(모든 입경에서 R²=0.8~0.9), 특히 황산염과의 상관성보다 더 좋았다. 가을철 질산염의 농도는(0.7~2.4 µg/m³) 평균보다 조금 낮았지만 황산염은(4.6~5.6 µg/m³) 평균의 절반 수준으로 농도가 낮았다. 질량농도 또한 낮았으므로 질량에 대한 질산염의 함량비는 겨울철 다음으로 높았지만, 황산염의 함량비는 여름철과 비슷하게 낮았다(그림 5). 황산화물에 대한 질소산화물의 비는 중국과 우리나라 또는 일본의 영향을 구분하는데 유용한 지시자 역할을 하는데, 이는 중국의 질소산화물에 대한 황산화물 배출이 우리나라나 일본에 비해 상대적으로 높

기 때문이다(Streets *et al.*, 2003). 또한 가을철 공기 이동 궤적은 중국의 북부와 남부 그리고 발해만 지역에서부터 이동해 황해를 지날 때 주로 우리나라 해안선을 따라 비교적 느리게 제주도로 유입되었다. 따라서 이러한 결과들은 가을철에 제주도 에어러솔에 우리나라의 영향이 다른 계절에 비해 상대적으로 크게 포함된 것을 시사한다.

가을철은 시베리아 고기압의 영향과 세력이 남아 있는 북태평양 고기압의 영향이 공존하는 지상 기압계 패턴으로 인하여 공기가 정체되는 경우가 빈번하다. 시료채취 기간 중 평균 풍속은 6.4 m/s로 봄과 겨울에 비하여 느렸고, 일 평균 풍속이 3 m/s 이하인 날이 1회, 4 m/s 이하인 날이 2회 있었다. 정체성 고기압계의 영향으로(그림 4) 공기가 황해상에서 느리게 이동하였으므로 가까운 우리나라의 영향이 상대적으로 크게 나타났을 것이다. 이는 또한 이차 입자 생성에 좋은 조건으로 가을철에 작은 입경으로 갈수록 EC/질산염에 비하여 OC/질산염의 기울기 증가폭이 컸던 이유로 여겨진다.

3.3 고농도사례기간 중 OC와 EC성분들의 농도 변화

OC와 EC는 다양한 분자구조를 지니고 있는 여러 종으로 이루어져 있고, 발생원이 다양하다. OC와 EC의 고농도발생 원인을 파악하기 위하여 온도에 따라

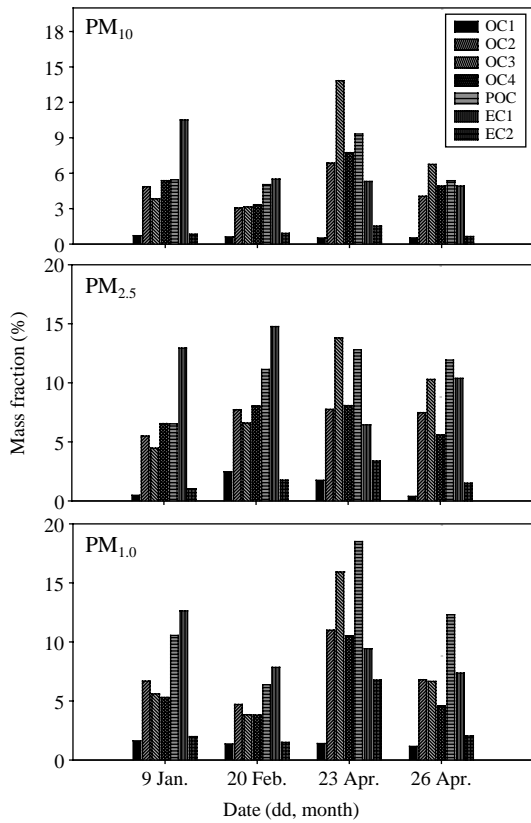


Fig. 6. Mass fractions (%) of OC and EC components: OC1, OC2, OC3, POC, EC1 and EC2, for days of the upper 10 percentile of both OC and EC concentrations.

구분된 하부 구성요소(OC1, OC2, OC3, OC4, POC, EC1, EC2, EC3)의 증가 양상을 비교하였다. 1월 9일은 모든 입경에서 EC1의 증가가 가장 크게 나타났다(그림 6). 질량에 대한 EC1의 함량비는 8~9%로 모든 사례일의 EC1 증가율 중 가장 컸다. 이 날 모든 입경의 질산염 농도는 평균 농도의 2배 가량 높았다. EC1은 자동차의 디젤 연료와 화석연료 연소, 산업공정에서 주로 기원한다고 보고되고 있다(Lee *et al.*, 2009; Zhao and Hopke, 2006). 이날 공기에는 인구와 산업이 밀집되고 자동차에 의한 오염도가 높은 북경 부근과 산둥반도를 빠르게 지나오면서 EC1과 질산염의 농도가 증가하였을 것이다. 겨울철인 1월 9일과 2월 20일은 공통적으로 EC1과 POC의 농도 증가가 크게 나타났다. 반면, 봄철인 4월 23일과 26일은 OC3와 POC의 농도가 가장 높았다. 특히 23일은 OC3가, 26일은 POC의 농도가 보다 높았다. 26일은 특히 PM_{1.0}에서 POC 농도가 가장 높았으며 황산염의 농도 증가가 관측되었는데, 이전의 연구에서 POC와 황산염의 고농도가 여러 차례 관측되었다(Kim *et al.*, 2005; Kim and Hopke, 2004a, b; Kim *et al.*, 2004). 본 연구에서 26일 사례 외에도 황산염의 농도가 증가할 때, POC도 대체로 농도가 크게 증가하였다. 이러한 POC와 황산염의 농도 증가는 산성의 황산염과 가스상 OC의 heterogeneous 반응(Jang *et al.*, 2003)에 의한 이차입자의 생성 또는 황산염 입자에 반휘발성 유기화합물(Semi-Volatile Organic Compounds)이나

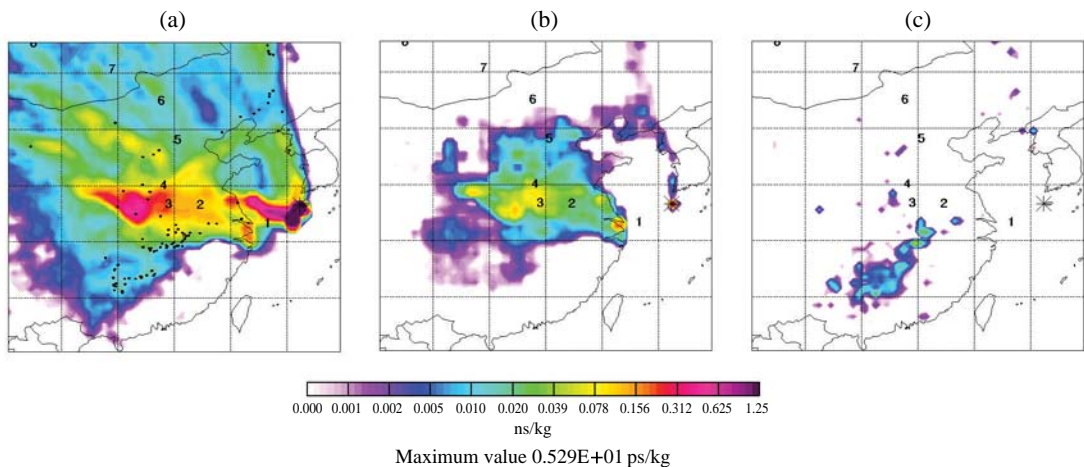


Fig. 7. The Lagrangian particle dispersion model FLEX-PART on 11 March 2008: (a) footprint emission sensitivity, (b) BC source contribution, and (c) fire CO.

휘발성이 낮은 유기화합물이 응결되었기 때문일 것이다(Zhao and Hopke, 2006). 고산에서 고농도의 황산염은 주로 북경 근처의 중국 북서부 지역과 중국의 남동 해안지역에서 공기가 이동해올 때 증가하는 경향을 보였다(Lim, 2009). 4월 26일은 시베리아 지역 생체연소 영향을 받은 공기가 북경 근처를 지나 왔으므로 유기탄소와 함께 황산염의 농도가 증가할 수 있었다. 본 연구에서 POC는 작은 입경에서 질량에 대한 함량비가 높았으므로 황산염 입자가 휘발성이 낮은 가스상 유기화합물의 응결을 위한 표면을 제공했을 것으로 생각된다.

EC 고농도사례일의 경우, 질량에 대한 EC의 최대 함량비가 나타나는 EC1의 증가만이 두드러졌다. 2008년 3월 11일은 EC의 상위 10 percentile 사례에 포함되었고 OC, 질량, 질산염과 황산염도 고농도가 관측되었다. 특히 PM₁₀ EC와 PM₁₀ 황산염의 농도가 높았고, 황산염은 모든 입경에서 최고농도가 관측되었다. The Lagrangian particle dispersion model FLEX-PART (Stohl *et al.*, 2005)의 fire CO plot에서 대규모의 연소가 중국 남부 내륙에서 발생했음이 나타났고, 이 때 BC의 농도도 크게 증가하였다(그림 7). 공기의 역궤적분석 결과, 공기체가 중국 남부 내륙에서 5일 이상 정체되면서 이동해왔고(그림 3), 이 날 고산에서 측정된 CO 농도는 CO 농도가 높은 다른 날들의 1/2~2/3 수준으로 상대적으로 높지는 않았다. 따라서 고농도의 EC, 질량과 무기성분은 연소 지역에서 바로 발생한 연소 플룸(fresh burning plume)을 반영했기 보다는, 오래된 연소 플룸(old burning plume)의 영향을 받은 것으로 간주된다. 풍계로 살펴보았을 때, 고농도의 PM₁₀과 PM_{2.5} EC는 PM_{1.0} EC에 비하여 남동풍의 영향을 많이 받는 것으로 나타났으나(Lim, 2009), 실제 공기체가 이동해온 경로를 살펴본 결과 초대입자의 EC도 아시아대륙으로부터의 장거리이동에 큰 영향을 받는 것으로 파악된다.

4. 결 론

제주 고산에서 2007년 8월부터 2008년 9월까지 PM₁₀, PM_{2.5}, PM_{1.0}을 채취하여 이온과 탄소 성분을 분석하였다. 세 입경 모두에서 주요 구성 성분은 OC, EC, 질산염, 황산염이었다. 탄소 성분의 함량은 세 입

경 중 PM_{1.0}에서 가장 높아 OC는 23%, EC는 10%를 차지하였다. OC는 EC에 비하여 2.3~2.8배 높은 농도를 나타내었다. 두 성분은 겨울철에 농도가 가장 높았으며 상관관계도 가장 좋았다. 겨울철에는 강한 북서풍이 우세하므로 비교적 유사한 배출원을 가지는 입자상 물질이 온도가 낮은 가운데 빨리 이동하므로 대기 중 변환작용을 적게 받았기 때문인 것으로 판단된다. 또한 겨울철은 OC와 EC의 구성 요소 중 EC1과 POC의 농도 증가가 두드러졌으며 이 두 성분은 모두 황산염과의 관련성이 높았다. 반면 봄철에는 OC와 EC의 농도가 겨울철 다음으로 높았지만, 둘의 상관성은 낮았다. 북서풍과 더불어 남서풍과 동풍 계열의 풍계가 나타나며 풍속이 느려지면서 다양한 기원의 배출원과 이동중의 변환 과정에 의한 기여도가 상대적으로 커졌기 때문이다. 특히, 2008년 5월 30일 황사 사례 기간에 OC의 농도가 상대적으로 높았었는데, 이는 토양에서 기원한 것으로 생각된다. 봄철 고농도 사례 기간 동안에는 POC와 상대적으로 입자의 크기가 큰 OC3의 농도 증가가 뚜렷했다. 여름철의 OC와 EC의 농도와 상관성은 모두 낮았다. 가을철에는 둘 사이의 상관성이 높아졌는데, 이 때 질량에 대한 탄소성분의 함량비가 모든 계절 중 가장 높았으며 특히 입경이 작을수록 OC의 함량비가 증가했다. 질산염의 농도는 낮았으나 탄소 성분과의 상관성이 좋았으며 기상특성과 이동 경로를 함께 고려할 때 가을철에는 중국과 더불어 우리나라의 영향을 함께 받았으며 공기가 느리게 이동되는 동안 이차적인 생성이 가장 두드러진 것으로 판단된다. 제주도 고산의 OC와 EC는 종관 기상장의 변화에 따라 다양한 배출원과 이차적 입자뿐 아니라 황사 등에 의한 토양 기원의 OC에도 영향을 받는 것으로 나타났다.

감사의 글

본 연구는 기상지진기술개발과제 (CATER 2007-3204)의 지원으로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

권원태, 김 준, 류상범, 민경덕, 민승기, 신임철, 양진석, 엄향

- 회, 오재호, 이동규, 이승호, 이우진, 이장렬, 이현영, 전종갑, 조영순, 최영은, 허창희(2004) 한국의 기후, 기상청 기상연구소, 417.
- Andrews, E., P. Saxena, S. Musarra, L.M. Hildemann, P. Koutrakis, P.H. McMurry, I. Olmez, and W.H. White (2000) Concentration and composition of atmospheric aerosols from the 1995 SEAVS experiment and a review of the closure between chemical and gravimetric measurements, *J Air & Waste Manage. Assoc.*, 50, 648-664.
- Brink, H., R. Otjes, P. Jongejan, and G. Kos (2009) Monitoring of the ratio of nitrate to sulphate in size-segregated submicron aerosol in the Netherlands, *Atmos. Res.*, 92(2), 270-276.
- Cachier, H., C. Liousse, M.-H. Pertuisot, A. Gaudichet, F. Echalar, and J.-P. Lacaux (1996) African fine particulate emissions and atmospheric influence, in: biomass burning and global change, edited by Joel S. Levine, The MIT Press, Cambridge, 430-440.
- Cao, J.J., J.C. Chow, S.C. Lee, Y. Li, S.W. Chen, Z.S. An, K. Fung, J.G. Watson, C.S. Zhu, and S.X. Liu (2005) Characterization and source apportionment of atmospheric organic and elemental carbon during fall and winter of 2003 in Xi'an, China, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 5, 3561-3593.
- Cao, J.J., S.C. Lee, K.F. Ho, X.Y. Zhang, S.C. Zou, K. Fung, J.C. Chow, and J.G. Watson (2003) Characteristics of carbonaceous aerosol in Pearl River Delta Region, China during 2001 winter period, *Atmos. Environ.*, 37(11), 1451-1460.
- Chow, J.C., J.G. Watson, P.K. Louie, L.W. Chen, and D. Sin (2005) Comparison of PM_{2.5} carbon measurement methods in Hong Kong, China, *Environ Pollut*, 137(2), 334-344.
- Chow, J.C., J.G. Watson, Z. Lu, D.H. Lowenthal, C.A. Frazier, P.A. Solomon, R.H. Thuillier, and K. Magliano (1996) Descriptive analysis of PM_{2.5} and PM₁₀ at regionally representative locations during SJVA-QS/AUSPEX, *Atmos. Environ.*, 30(12), 2079-2112.
- Dan, M., G. Zhuang, X. Li, H. Tao, and Y. Zhuang (2004) The characteristics of carbonaceous species and their sources in PM_{2.5} in Beijing, *Atmos. Environ.*, 38, 3443-3452.
- Dommen, J., A. Metzger, J. Duplissy, M. Kalberer, M.R. Alfarra, A. Gascho, E. Weingartner, A.S.H. Prevot, B. Verheggen, and U. Baltensperger (2006) Laboratory observation of oligomers in the aerosol from isoprene/NO_x photooxidation, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L13805, doi:10.1029/2006GL026523.
- Gard, E.E., M.J. Kleeman, D.S. Gross, L.S. Hughes, J.O. Allen, B.D. Morrical, D.P. Fergenson, T. Dienes, M.E. Gälli, R.J. Johnson, G.R. Cass, and K.A. Prather (1998) Direct observation of heterogeneous chemistry in the atmosphere, *Science*, 279(5354), 1184-1187.
- Gray, H.A., G.R. Cass, J.J. Huntzicker, E.K. Heyerdahl, and J.A. Rau (1986) Characteristics of atmospheric organic and elemental carbon particle concentrations in Los Angeles, *Environ. Sci. Technol.*, 20, 580-582.
- Guenther, A., T. Karl, P. Harley, C. Wiedinmyer, P.I. Palmer, and C. Geron (2006) Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3181-3210.
- Gustafsson, Ö., M. Kruså, Z. Zencak, R.J. Sheesley, L. Granat, E. Engström, P.S. Praveen, P.S.P. Rao, C. Leck, and H. Rodhe (2009) Brown clouds over South Asia: biomass or fossil fuel combustion?, *Science*, 323(5913), 495-498.
- Hagler, G.S., M.H. Bergin, L.G. Salmon, J.Z. Yu, E.C.H. Wan, M. Zheng, L.M. Zeng, C.S. Kiang, Y.H. Zhang, A.K.H. Lau, and J.J. Schauer (2006) Source areas and chemical composition of fine particulate matter in the pearl river delta region of China, *Atmos. Environ.*, 40(20), 3802-3815.
- Han, Y., J. Cao, J.C. Chow, J.G. Watson, Z. An, Z. Jin, K. Fung, and S. Liu (2007) Evaluation of the thermal/optical reflectance method for discrimination between char- and soot-EC, *Chemosphere*, 69(4), 569-574.
- IPCC (2007) in *Climate Change 2007: The Physical Science Basis* (Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change) Edited by Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M. Tignor and H.L. Miller, Cambridge Univ. Press, New York, 131-217.
- Jang, M., S. Lee, and R.M. Kamens (2003) Organic aerosol growth by acid-catalyzed heterogeneous reactions of octanal in a flow reactor, *Atmos. Environ.*, 37, 2125-2138.
- Jones, A.M. and R.M. Harrison (2005) Interpretation of particulate elemental and organic carbon concentrations at rural, urban and kerbside sites, *Atmos. Environ.*,

- 39(37), 7114-7126.
- Kim, E. and P.K. Hopke (2004a) Source apportionment of fine particles at Washington, DC utilizing temperature resolved carbon fractions, *J. Air Waste Manage. Assoc.*, 54, 773-785.
- Kim, E. and P.K. Hopke (2004b) Improving source identification of fine particles in a rural northeastern U.S. area utilizing temperature-resolved carbon fractions, *J. Geophys. Res.*, 109, D09204.
- Kim, E., P.K. Hopke, D.M. Kenski, and M. Koerber (2005) Sources of in a rural Midwestern U.S. area, *Environ. Sci. Technol.*, 39, 4953-4960.
- Kim, E., P.K. Hopke, and E.S. Edgerton (2004) Improving source identification of Atlanta aerosol using temperature resolved carbon fractions in positive matrix factorization, *Atmos. Environ.*, 38, 3349-3362.
- Kim, I., S. Li, and K.-R. Kim (2008) Variations of trace gases concentrations and their relationship with the air mass characteristic at Gosan, Korea, *Korean J. of Atmos. Environ.*, 24(5), 584-593. (in Korean with English abstract)
- Kim, Y.P., J.H. Lee, N.J. Baik, J.Y. Kim, S.G. Shim, and C.H. Kang (1998) Summertime characteristics of aerosol composition at Cheju Island, Korea, *Atmos. Environ.*, 32(22), 3905-3915.
- Kim, Y.P., K.-C. Moon, and J.H. Lee (2000) Organic and elemental carbon in fine particles at Kosan, Korea, *Atmos., Environ.*, 34(20), 3309-3317.
- Kondo, Y., Y. Miyazaki, N. Takegawa, T. Miyakawa, R.J. Weber, J.L. Jimenez, Q. Zhang, and D.R. Worsnop (2007) Oxygenated and water-soluble organic aerosols in Tokyo, *J. Geophys. Res.*, 112, D01203, doi: 10.1029/2006JD007056.
- Kroll, J.H., N.L. Ng, S.M. Murphy, R.C. Flagan, and J.H. Seinfeld (2006) Secondary organic aerosol formation from isoprene photooxidation, *Environ. Sci. Technol.*, 40, 1869-1877.
- Lee, H.-W., T.J. Lee, and D.S. Kim (2009) Identifying ambient PM_{2.5} sources and estimating their contributions by using PMF : Separation of gasoline and diesel automobile sources by analyzing ECs and OCs, *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, 25(1), 75-89. (in Korean with English abstract)
- Lee, J.Y., Y.P. Kim, G.N. Bae, S.M. Park, and H.C. Jin (2008) The characteristics of particulate PAHs concentrations at a roadside in Seoul, *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, 24(2), 133-142. (in Korean with English abstract)
- Lee, M., M. Song, K.J. Moon, J.S. Han, G. Lee, and K.-R. Kim (2007) Origins and chemical characteristics of fine aerosols during the northeastern Asia regional experiment (Atmospheric Brown Cloud-East Asia Regional Experiment 2005), *J. Geophys. Res.*, 112, D22 S29, doi:10.1029/2006JD008210.
- Lim, S. (2009) Source signature of ions and carbonaceous compounds in submicron and supermicron aerosols at Gosan-super site, Jeju, South Korea. Master's thesis, Korea University, 32-33.
- Maria, S.F., L.M. Russell, M.K. Gilles, and S.C.B. Myneni (2004) Organic aerosol growth mechanisms and their climate-forcing implications, *Science*, 306 (5703), 1921, doi: 10.1126/science. 1103491.
- Moon, K.J., J.S. Han, Y.S. Ghim, and Y.J. Kim (2008) Source apportionment of fine carbonaceous particles by positive matrix factorization at Gosan background site in East Asia, *Environ. Int.*, 34(5), 654-664.
- Ng, N.L., A.J. Kwan, J.D. Surratt, A.W.H. Chan, P.S. Chhabra, A. Sorooshian, H.O.T. Pye, J.D. Crounse, P.O. Wennberg, R.C. Flagan, and J.H. Seinfeld (2008) Secondary organic aerosol (SOA) formation from reaction of isoprene with nitrate radicals (NO₃), *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 4117-4140.
- Park, S.S., Y.J. Kim, and K. Fung (2001) Characteristics of PM_{2.5} carbonaceous aerosol in the Sihwa industrial area, Korea, *Atmos. Environ.*, 35(4), 657-665.
- Ramanathan, V., M.V. Ramana, G. Roberts, D. Kim, C. Corrigan, C. Chung, and D. Winker (2007) Warming trends in Asia amplified by brown cloud solar absorption, *Nature*, 448, 575-578.
- Ramanathan, V. and G. Carmichael (2008) Global and regional climate changes due to black carbon, *Nature Geoscience*, 1, 221-227.
- Russell, L.M., S.F. Maria, and S.C.B. Myneni (2002) Mapping organic coatings on atmospheric particles, *Geophys. Res. Lett.*, 29(16), 1779, doi:10.1029/2002GL014874.
- Schmidt, M. and A. Noack (2000) Black carbon in soils and sediments: analysis, distribution, implications, and current challenges, *Global Biogeochem. Cycles*, 14(3), 777-793.
- Shah, J.J., R.L. Johnson, E.K. Heyerdahl, and J.J. Huntzicker (1986) Carbonaceous aerosol at urban and rural sites in the United States, *J. Air Pollut. Control Assoc.*, 36, 254-257.
- Shin, H.J., J. Kim, B.C. Choi, S.N. Oh, J. Yu, and K. Bower (2002) Concentrations of air pollutants measured at Kosan during ACE-Asia intensive observation peri-

- od, *Korean J. of Atmos. Environ.*, 18(6), 487-501. (in Korean with English abstract)
- Simoneit, B.R.T., M. Kobayashi, M. Mochida, K. Kawamura, M. Lee, H.-J. Lim, B.J. Turpin, and Y. Komazaki (2004) Composition and major sources of organic compounds of aerosol particulate matter sampled during the ACE-Asia campaign, *J. Geophys. Res.*, 109, D19S10, doi:10.1029/2004JD004598.
- Stohl, A., C. Forster, A. Frank, P. Seibert, and G. Wotawa (2005) The Lagrangian particle dispersion model FLEX-PART version 6.2, *Atmos. Chem. Phys.*, 5(9), 2461-2474.
- Streets, D.G., T.C. Bond, G.R. Carmichael, S.D. Fernandes, Q. Fu, D. He, Z. Klimont, S.M. Nelson, N.Y. Tsai, M.Q. Wang, J.-H. Woo, and K.F. Yarber (2003) An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000, *J. Geophys. Res.*, 108(D21), 8809, doi:10.1029/2002JD003093.
- Surratt, J.D., S.M. Murphy, J.H. Kroll, N.L. Ng, L. Hildebrandt, A. Sorooshian, R. Szmigielski, R. Vermeulen, W. Maenhaut, M. Claeys, R.C. Flagan, and J.H. Seinfeld (2006) Chemical composition of secondary organic aerosol formed from the photooxidation of isoprene, *J. Phys. Chem. A*, 110, 9665-9690.
- Szidat, S., M. Ruff, N. Perron, L. Wacker, H.-A. Synal, M. Hallquist, A.S. Shannigrahi, K.E. Yttri, C. Dye, and D. Simpson (2009) Fossil and non-fossil sources of organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) in Göteborg, Sweden, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1521-1535, doi:10.5194/acp-9-1521-2009.
- Wang, G.H., K. Kawamura, and M. Lee (2009) Comparison of organic compositions in dust storm and normal aerosol samples collected at Gosan, Jeju Island, during spring 2005 *Atmos. Environ.*, 43(2), 219-227.
- Yang, F., K. He, B. Ye, X. Chen, L. Cha, S.H. Cadle, T. Chan, and P.A. Mulawa (2005) One-year record of organic and elemental carbon in fine particles in downtown Beijing and Shanghai, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1449-1457, doi:10.5194/acp-5-1449-2005.
- Zhao, W. and P.K. Hopke (2006) Source identification for fine aerosols in Mammoth Cave National Park, *Atmos. Res.*, 80(4), 309-322.