

Study of Retrieving the Aerosol Size Distribution from Aerosol Optical Depths

Dukhyeon Kim[†]

School of Basic Science, Hanbat National University, 125, Dongseo-daero, Yuseong-gu, Daejeon 34158, Korea

(Received June 5, 2018; Revised July 6, 2018; Accepted July 6, 2018)

In this study, aerosol size distributions were retrieved from aerosol optical depth measured over a range of 10 wavelengths from 250 to 1100 nm. The 10 wavelengths were selected where there is no absorption of atmospheric gases. To obtain the solar spectrum, a home-made solar tracking system was developed and calibrated. Using this solar tracking system, total optical depths (TODs) were extracted for the 10 wavelengths using the Langley plot method, and aerosol optical depths (AODs) were obtained after removing the effects of gas absorption and Rayleigh scattering from the TODs. The algorithm for retrieving aerosol size distributions was suggested by assuming a bimodal aerosol size distribution. Aerosol size distributions were retrieved and compared under various arbitrary atmospheric conditions. Finally, we found that our solar tracking spectrometer is useful for retrieving the aerosol size distribution, even though we have little information about the aerosol's refractive index.

Keywords: Sunphotometer, Aerosol optical depth, Aerosol volume size distribution, Bimodal size distribution
OCIS codes: (010.1100) Aerosol detection; (010.1310) Atmospheric scattering; (010.3920) Meteorology

에어로졸 광학깊이를 이용한 에어로졸 크기분포 추출 연구

김덕현[†]

한밭대학교 기초과학부

Ⓣ 34158 대전광역시 유성구 동서대로 125

(2018년 6월 5일 받음, 2018년 7월 6일 수정본 받음, 2018년 7월 6일 게재 확정)

본 연구에서는 250 nm와 1100 nm 사이에 있는 10개의 파장에서의 에어로졸 광학 깊이를 이용하여 에어로졸의 크기분포를 역산하는 연구를 수행하였다. 10개의 파장은 주요 대기 가스의 흡수선과 밴드를 피한 파장을 찾아서 선택하였다. 태양의 스펙트럼을 얻기 위해서 태양 추적시스템과 분광기를 구축하고 자체적으로 장치를 검정하였다. 본 장치를 이용해서 총 광학 깊이를 구하고 가스의 흡수나 공기의 산란을 제거하여 에어로졸의 광학 깊이를 구했다. 이점 분포를 지닌 에어로졸 크기 분포를 역산하는 알고리즘을 제안하였고, 장치를 통해서 구한 에어로졸의 광학 깊이를 이용하여 다양한 입자의 대기 조건에서 그 크기분포를 역산하고 비교하였다. 이를 통하여 본 연구에서 사용한 방법론과 장치들이 미지의 입자 크기 분포를 추출하는데 매우 유용할 것으로 판단하였다.

Keywords: 선포토메터, 에어로졸 광학깊이, 에어로졸 부피 크기분포, 이점점 크기 분포
OCIS codes: (010.1100) Aerosol detection; (010.1310) Atmospheric scattering; (010.3920) Meteorology

I. 서 론

미세먼지는 건강과 기후에 대한 영향으로 모든 사람의 관심의 대상이 되고 특히 지역규모에서 발생하는 미세먼지는 그 구성성분이 다르고 그 크기분포도 달라서 연직 방향으로 그 총량을 관측하고 그 특성을 분석하는 것은 기후 효과를 밝히고, 오염원을 규명하는 데에도 매우 중요하다. 미세먼지의 크기에 따른 분포 특성이 총량보다 기후학^[1], 기상학^[2] 그

리고 환경적/보건학적으로 더 중요도가 커서^[3] 그 크기를 측정하는 것은 매우 중요한 것으로 판단되고 있다. 이러한 이유로 최근엔 단위 부피당 미세먼지의 질량 표현이 PM₁₀, PM_{2.5}으로 그리고 가장 최근에 PM₁ 등으로 그 표시 방법도 달라지고 있는 것은 작은 입자의 중요성이 더 증대되고 있기 때문이다^[4]. 이는 같은 질량이 단위 부피에 존재하더라도 입자의 크기(면적)에 따라 보건학적, 구름 물리적 영향이 달라지기 때문이다. 특히 기후학에서 미세먼지는 직접적으로는

[†]E-mail: dhkim7575@hanmail.net, ORCID: 0000-0002-1322-0032

Color versions of one or more of the figures in this paper are available online.

태양광을 산란시켜 냉각효과를 가지기도 하지만 숯 검댕이 (soot)의 경우 흡수성이 강하여 가열효과가 있기도 하며, 구름의 응결핵 역할도 동시에 하기 때문에 미세먼지의 물리적 (크기) 및 화학적(광학적 굴절률) 특성을 측정하는 것도 매우 중요한 일이다⁵⁾.

미세먼지의 이러한 기여도를 살펴 보건데, 한 지점에서 미세먼지의 양을 측정하는 것보다는 연직 방향 전체의 미세먼지 총량 및 크기 분포가 광역적인 기후변화나 기상에서 더 의미 있는 값이라 할 수 있다. 즉 지표면 정보는 최소한 경계고도 층 이상에서 일어나는 기상변화에 대한 정보를 주기엔 미흡하여 경계고도나 대류권에서의 미세먼지 총량과 그 크기분포를 아는 것은 지표면 측정과 달리 영향력이 있는 독립된 중요 정보를 제공한다고 할 수 있다.

라이다와 같은 원격탐측 장비는 다양한 고도에서 미세먼지의 정보를 제공할 수 있으나, 고가이고 전국적인 규모로 촘촘하게 구축할 수 없는 단점이 있다. 라이다만으로는 전지구적 수준의 광역적 정보를 제공할 수 없으므로, 미세 먼지의 실시간, 연속적, 광역적 감시를 위한 새로운 관측기법을 개발하는 것은 활용도를 극대화시키는데 있어서도 중요한 기술이다.

태양광을 이용한 미세먼지 크기 측정법은 NASA⁶⁾에서 운영하고 있는 AERONET에서 주도적으로 이루어졌으며, H/W (CIMEL 318 혹은 CIMEL318-T)⁷⁾와 S/W⁸⁾ 모두 동일한 것들을 권장하고 있다. 즉 AERONET에서 제공하는 프로그램과 알고리즘을^{9,10)} 그대로 사용하고 있으며, 이러한 이유 때문에 미세 먼지 추출법을 향상시키거나, 미세먼지의 종류나 미세먼지 측정 크기 범위 확장 등 좀 더 구체적인 새로운 변수를 새로운 측정법으로 추출하고자 하는 경우, H/W 상으로는 측정 파장의 한계를 가져와 최소 입자 크기 측정에 한계를 주고 프로그램을 개선하여 다른 분야에 적용함에 있어서도 애로점을 느끼거나 불가능하게 된다. 이러한 면에서 자체 알고리즘을 개발/분석하고 이를 활용하여 새로운 정보를 얻는 방법을 개발하는 것은 차후에 새로운 기술로 접근하는데 매우 필요한 일이라 할 수 있다. 본 연구에서는 차후 파장의 범위와 측정 크기 및 미세먼지의 물리화학적 특성 범위를 넓히기 위하여 필요한 각 단계의 기술들을 소개하며, 특히 자체 개발한 H/W 시스템과 S/W를 소개하고 그 특성을 밝히고자 한다.

본 연구는 지표면의 미세먼지 정보보다는 기후나 기상 등에 직접적인 상관관계가 있는 높은 고도의 미세먼지까지를 포함하는 대기 최고층에서 지표면까지의 영역에 존재하는 미세먼지의 총량과 입자의 크기를 측정하는 방법론에 관한 것이다. 이를 위하여 2장에서는 태양 스펙트럼으로부터 미세먼지의 광학 깊이(Aerosol Optical Depth, AOD)를 얻는 H/W 장치 및 정보 획득과 처리 과정을 기술하고, 다음으로는 AOD로부터 미세먼지의 크기를 추출하는 방법론에 관한 이론적인 방법 두 가지를 기술하며, 3장에서는 황사가 존재하는 날과 그렇지 않는 날 얻은 파장에 따른 AOD로부터 미세먼지의 크기분포를 역산한 결과 분석을 기술하고 4장에서 결론을 맺는다.

II. 파장의 선택 및 장치의 검정(calibration)

현재 전 세계적으로 구축되어 운영되고 있는 AERONET에서는¹¹⁾ 주로 440 nm, 675 nm, 870 nm, 1020 nm 파장에서 직달광의 신호를 받고 또한 산란된 신호를 주요면(Principal plane)과 등고도면(Almucantar plane)에서 받아 분석하여 에어로졸의 크기분포를 측정하고 있다. 그러나 AERONET 방법은 태양광이나 산란광의 특정 파장을 수신하기 위하여 필터를 사용하기 때문에 회전 속도나 가격 측면에서 문제가 발생하여 다양한 파장을 이용하지 못하고 적은 수의 파장만을 사용한다.

태양광을 이용하는 기술은 24시간 모니터링에 한계를 가져오기 때문에 태양광뿐만 아니라, 달빛을 이용하여 그 스펙트럼을 측정하여 24시간 측정이 가능하도록 하는 연구도 진행 중에 있다¹²⁾. 본 연구에서는 모터에 의하여 제어되는 두 개의 거울¹³⁾과 회절판으로 구성된 분광기를 이용하기 때문에 파장 선택에 비교적 한계가 없고 태양뿐만 아니라 달의 위치도 추적이 가능하기 때문에 활용도가 더 넓다고 할 수 있다. 그러나 AERONET과 달리 본 연구에서는 산란된 신호를 사용하지 않고 직달광의 신호만 이용하기 때문에 가능한 많은 파장에서 미세먼지의 광학적 깊이 정보를 얻을 필요가 있다. 이를 위하여, 본 연구에서 사용한 분광기는 분해능이 0.5 nm이고 측정 범위가 250~1100 nm인 OCEAN OPTICS사의 MAYA2000 상용 장비를 분광기로 사용하였으며, 태양 추적 장치는 자체 제작한 것을 사용하였다.

그림 1은 자체 제작한 시스템으로 얻은 태양광의 직달 신호와 주변의 산란 신호를 받은 실례를 보여준 것이다. 그림에서 알 수 있듯이 산란광의 신호가 직달광의 신호보다 짧은 파장 영역에서 더 많은 신호를 보이고 있음을 알 수 있다. 그림은 분광기의 신호 적분 시간(CCD integration time)을 고려하지 않고 그대로 나타낸 것으로, 실제 적분 시간을 고려하여 규격화시키면 직달광의 신호가 산란 신호보다 월등히 크다. 실제 계산에서는 적분 시간을 규격화시켜서 사용한다.

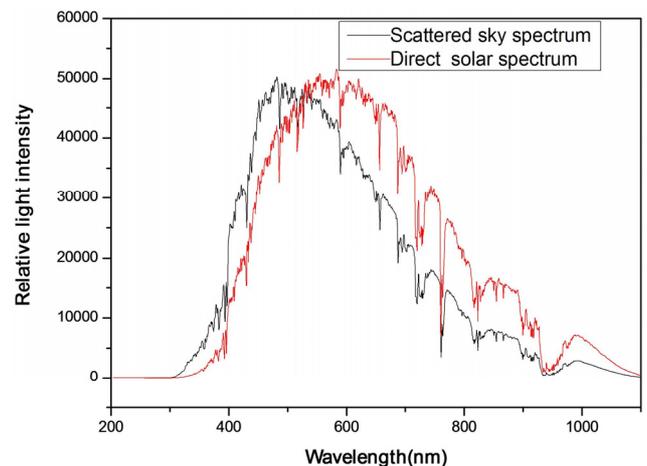


Fig. 1. Direct and scattered solar spectrum.

또한 그림에서 볼 수 있듯이 940 nm 근처에서는 수증기에 의하여 강한 흡수가 일어나서 빛의 세기가 크게 줄어든 것도 볼 수 있고, 또한 860 nm 근처에서는 산소에 의하여 강한 흡수가 일어난다는 것도 알 수 있다. 실제로 산소와 수증기에 의한 이러한 흡수선의 변화만으로도 대기 중의 수증기량을 측정할 수 있으므로 다양한 분야에 응용이 가능하다. 그밖에도 파장에 따른 신호 세기가 심한 요동을 보여주고 있음을 고려한다면, 다양한 가스가 대기 중에 존재하며, 그 흡수선도 매우 다양하게 존재한다는 것을 알 수 있다. 그러나 대기 가스에 의한 흡수선뿐만 아니라, 태양 자체의 스펙트럼이 태양 자체에 존재하는 각종 원소 등에 의하여 불연속적인 흡수가 일어나기 때문에 태양 자체의 스펙트럼도 흑체(black body) 처럼 연속적이지 않고^[14], 이러한 불연속적인 흡수선이 대기의 주요 분자에 의한 회전라만 산란이나 형광^[15,16] 때문에 흡수선이 무더져서 대기를 투과하게 되기 때문에 이러한 모든 상황을 고려하여 이러한 효과가 덜 받는 파장을 선택해야 한다. 미세먼지의 산란에 의한 효과만을 얻기 위해서는 가능한 한 이러한 흡수선에서 벗어나는 것이 좋으나, 그림에서 볼 수 있듯이 현실적으로 모든 파장 영역에서 그러한 흡수선이 존재하기 때문에 모든 흡수선을 배제하기는 힘들다.

그림 2는 대기 중의 주유가스만을 고려하여 얻은 흡수 스펙트럼을 나타낸 것이다. 각 가스의 흡수선의 세기 및 스펙트럼은 HITRAN^[17]에서 제공한 모든 흡수선을 흡수선의 세기(line intensity), 선폭확대(line broadening) 그리고 이동(line shift)을 대기 상황을 고려하여 계산한 것이다. 본 연구에서는 온도나 압력에 따른 흡수선의 이동, 확장, 그리고 세기 변화를 계산할 때는 계절별 표준데이터의 온도 및 압력을 이용하였다. 이러한 계산을 통한 흡수 단면적의 계산은 차후 계절적 기상 변수 변화에 따라 다르게 적용하기 위함이다. 원하는 파장영역에서 사용한 주요 가스로는 O₃, O₂O₂, O₂, O₂N₂, HCHO, NO₂, SO₂에 의한 흡수와 공기분자의 Rayleigh 산란이 그것이다. 본 계산에 사용한 가스를 제외하고도 다양한 가스가 있으나, 본 연구에서 이용하는 파장 범위(250~1100 nm)

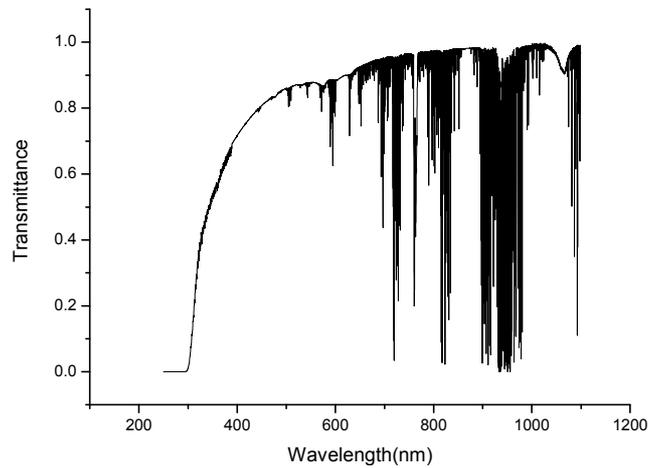


Fig. 2. Atmospheric transmittance characteristics of atmospheric gases from 200 nm to 1100 nm.

에서는 수증기, 산소 그리고 오존이 흡수선의 변화에 가장 중요한 역할을 하는 것으로 나타났다. 그 중에서도 넓은 범위에 걸쳐서 존재하는 수증기의 흡수선과 오존의 흡수선이 전체 파장영역에서 투과도에 영향이 제일 크게 작용하는 것으로 나타났다. 이러한 계산 결과와 14채널을 이용하는 다른 기관들의 장비(AATS-14)^[18]의 파장 채널을 고려하여 결정하였다. 본 연구에서 결정된 파장은 354 nm, 380 nm, 453 nm, 499 nm, 519 nm, 604 nm, 675 nm, 778 nm, 865 nm, 그리고 1019 nm 등 10가지 파장으로 구성된다.

그림 3에서 중간 부분의 3차원 색 그래프는 맑고 대기의 요동이 거의 없다고 생각하는 날(2017년 2월 2일) 오전 10시 20분부터 오후 17시 20분까지 얻은 데이터를 색그래프로 표시한 것이다. 그림에서 x축은 측정시간을 대신해서 나타낸 것이고 y축은 파장을 나타낸 것이다. 그림에서는 y축의 아래 부분은 200 nm를 나타내고, 가장 위쪽 y값은 1100 nm를 나타낸다. 그림의 왼쪽/오른쪽 그래프는 중앙부 3차원 색그래프의 단면을 나타낸 것으로 왼쪽은 x방향으로의 단면을, 오

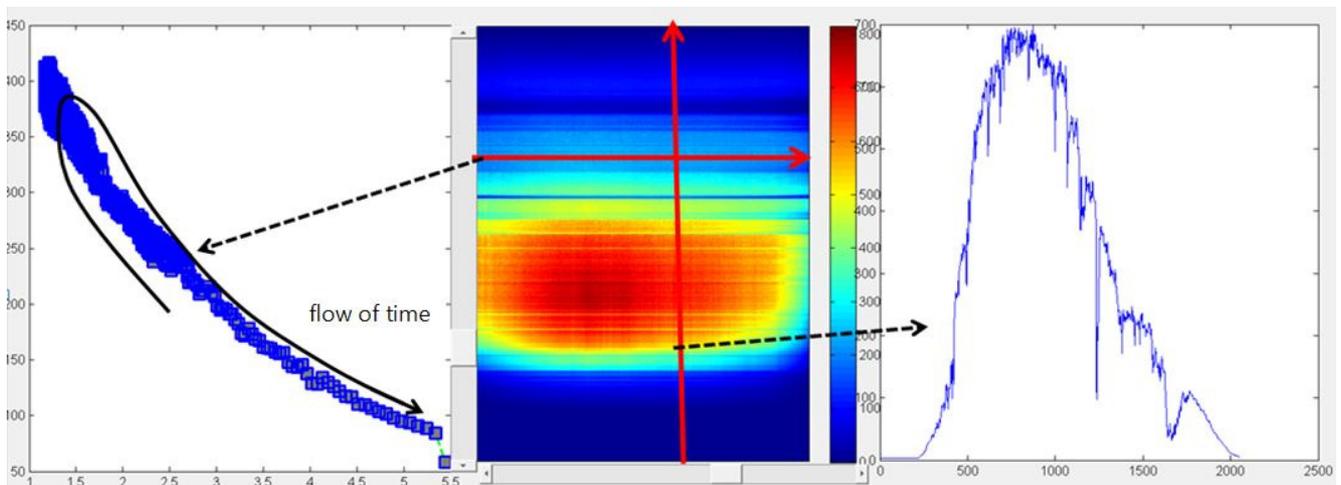


Fig. 3. Time and spectral characteristics of solar radiance for a clean day.

른쪽은 y축 방향의 단면을 나타낸다. 중앙의 그림과 왼쪽 그림에서 확인되듯이 측정 시간 내내 구름이나 미세먼지의 변화는 거의 없다는 것을 알 수 있다(그림 4에서 다시 확인 가능). 즉 주어진 파장에서 시간에 따른 그림인 왼쪽 그림은 하나의 직선상에 놓여 있다는 것을 볼 수 있다. 태양이 남중고도를 이루는 시간을 반환점으로 다시 그 천정 고도각이 감소하기 때문에 신호의 크기가 오전에서 남중고도까지 증가하다가 다시 감소하였지만, 시간이 흘러도 같은 곡선 상으로 움직이는 것을 보여준다. 이러한 대기 상태에서는 식 (1)과 같이 Langley Plot 방법으로 자체 검정할 수 있다는 것을 의미한다. 측정지점(한밭대)을 고려한다면, 오전 중에는 태양이 도시 하늘에 있고 오후엔 태양이 도심을 벗어난 산악지대 방향으로 존재한다. 그렇지만 그림에서 보듯이 왼쪽 그래프의 빛의 세기는 유사한 크기를 나타내고 있다. 이는 대기가 매우 안정적이고 공간적으로도 균일함을 말한다. 또한 y축 방향의 단면 그래프인 오른쪽 그림에서도 알 수 있듯이 모든 시간과 파장에서 수증기와 산소의 흡수선이 확연히 나타남을 보여준다.

그림 4는 그림 3의 왼쪽 그래프를 임의의 특정 두 파장(λ_1, λ_2)에서 그림 3의 왼쪽 그림에서 태양의 고도를 고려하여 정량적으로 다시 정리하여 그린 것이다. 그림의 x축은 AMF (Air Mass Factor)를 나타내며, AMF는 태양의 천정 고도각(Solar Zenith Angle, SZA)의 코사인 값의 역수이다. AMF가 1이면 태양이 연직 방향으로 존재한다는 뜻이며, 현실적으로 국내의 경우는 1보다 항상 큰 값이다. 그림에서 볼 수 있듯이 모든 시간에 특정 파장에서 측정된 빛의 세기는 태양 빛의 경사도를 고려한 즉 AMF를 고려한 관점에서 볼 때 하나의 직선상에 있는 것처럼 보인다. 이것은 대기 중의 가스나 미세먼지의 밀도가 시간이 지나도 변하지 않는다는 것을 다시 의미하며, 아래 식 (1)을 이용하여 대기상단(Top of Atmosphere, TOA)에서 빛의 세기($I_\lambda(0)$)와 대기에 의한 대기상단에서 지표면까지의 소산(Total Optical Depth $TOD = \alpha_\lambda s$) 정도를 식 (1)을 통하여 알 수 있다.

$$I_\lambda(z) = I_\lambda(0)e^{-\alpha_\lambda z / \cos(\theta_{sza})} \tag{1a}$$

$$\log(I_\lambda(z))_{z=s} = \log(I_\lambda(0)) - \alpha_\lambda s / \cos(\theta_{sza}) = \log(I_\lambda(0)) - TOD_\lambda \cdot \mu_{AMF} \tag{1b}$$

여기서 $z=s$ 는 지표면에서의 빛의 세기를 말하며, α_λ 는 주어진 파장에서 에어로졸의 소산계수(extinction coefficient), θ_{sza} 는 태양의 천정각(solar zenith angle)을 각각 의미한다. 그러므로 그림 4의 그래프에서 기울기는 그 파장에서의 TOD_λ 를 의미하며, y절편은 대기 상단에서의 태양광 세기의 로그 값을 의미한다. 이렇게 구한 TOD로부터 공기분자의 Rayleigh 산란과 가스의 흡수 효과를 빼면 AOD를 구할 수 있다. 무엇보다도 대기상단에서의 태양광의 세기가 변하지 않는다면, 그리고 광학계 투과도와 센서의 감도가 변하지 않는다면 (실제로 미세먼지의 변화에 비하여 광학계와 태양 빛 자체의 세기 변화는 무시할 정도로 작다) 임의의 시간에(즉 주어진 태양의 고도각) 주어진 파장에서 빛의 세기만 구하면 식 (1)의 역과정으로 TOD를 구할 수 있고, 또한 이로부터 AOD를 구할 수 있다.

그림 5는 실제로 이러한 광학계나 태양의 신호가 어떻게 변하는지를 알아보기 위하여 일정한 시간 간격을 두고 대기상단에서의 빛의 세기를 구하였다. 그림은 14일 및 일 년 간격으로 측정된 태양광의 대기상단에서의 빛의 세기 변화를 나타낸 것이다. 1년이 지난 후 태양 대기 상단의 빛의 세기는 모든 파장에서 그 값이 줄어드는 것을 볼 수 있는데, 이는 태양 추적 장치에 있는 두 개의 거울 중 하나는 태양을 마주보고 있어서, 1년 동안 먼지가 쌓여서 그 투과도가 줄어들었기 때문이다. 반면에 2주 정도의 시간 간격에서는 추출되는 값의 변화가 거의 없는데, 이는 대기가 안정적인 경우 Langley plot 방식으로 즉 식 (1b)를 이용해서 장비자체를 검정할 수 있다는 것을 보여준다. 물론 이러한 광학계나 센서의 내구성 저하는 현재 AERONET에서 사용하고 있는 장치

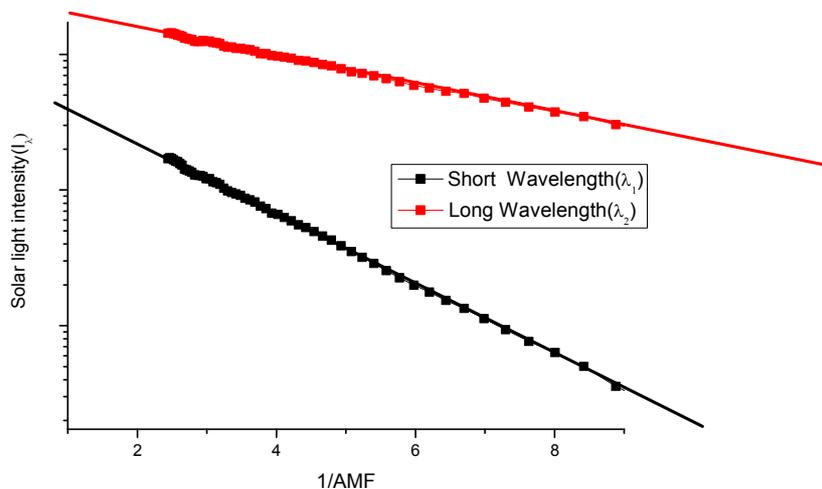


Fig. 4. Langley plots of solar radiance measured on a clean-stable day for two arbitrary short and long wavelengths.

에서 같은 현상이기 때문에 NASA에서도 1년 혹은 6개월마다 주기적으로 검정을 할 것을 추천한다.

그림 6은 이렇게 검정한 장치를 이용하여 얻은 미세먼지의 AOD를 구한 것이다. 2018년 4월 6일은 기상청에서 황사가 올 것으로 예보가 된 날이며, 본 장치는 한밭대학교에서 자체 제작한 장치를 이용하여 측정된 AOD이다. 환경부 관측망 중에서 측정소에서 가장 가까운 유성구 노은동 측정소의 결과는 오전 11시 14분 전후의 미세먼지 총량은 $65 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이고 오후 14시 21분에 얻은 측정값은 $170 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이다. 두 측정 시간 간격에 약 2.5배의 미세먼지 농도가 증가했음을 볼 수 있다. 본 측정 장치로 얻은 AOD 값도 519 nm에서 0.62와 1.05를 기록하고 있어 유사한 결과를 보이고 있다고 할 수 있다. 본 장치와 환경부 측정치에서 차이가 나는 이유로는, 포인트 측정 장치가 한 지점만을 측정하기 때문에 지표면에서는 황사나 기타의 인위적인 요인으로 생긴 값에 따라 크게

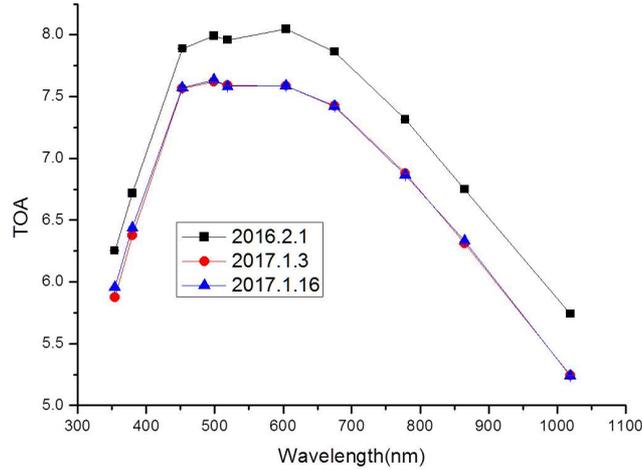


Fig. 5. Changes of calculated solar spectrum at the top of atmosphere due to the changes of system optical transmittance during one year.

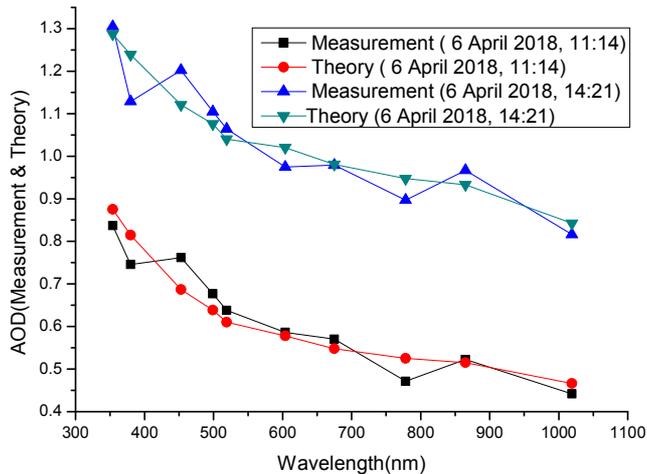


Fig. 6. Time dependent aerosol optical depths measured on 6 April 2018.

바뀌지만 전체 총량의 변화는 크지 않다는 것을 우리는 알 수 있기 때문이다. 크기 정보는 기울기로 판단이 가능한데, 정확한 입자의 크기분포는 그림처럼 기울기 값만으로는 판단할 수 없다. 그러나 신호의 간단한 특성 분석만으로도 미세먼지의 광학적 특성과 크기를 정성적으로 예측할 수 있다.

III. 미세먼지 크기 역산 이론 및 결과

3.1. 미세먼지 크기 역산 이론

파장에 따른 입자의 소산계수 혹은 소산계수에서 광경로를 곱하여 모두 더한 AOD ($AOD = \int \alpha(z) dz$)는 입자의 크기 분포, 총량, 그리고 입자의 굴절률에 따라 변한다. 즉 AOD는 태양광이 TOA에서 대기권에 진입하여 지표면에 도달하는 중간 과정에 있는 모든 대기층에 존재하는 모든 미세먼지(입자)의 소산계수를 모두 합한 것으로 미세입자의 광학 깊이를 말한다. 입자의 크기 분포($N(r)$) 혹은 부피분포 ($V(r) = N(r) \frac{4\pi}{3} r^3$)와 소산계수(α)의 관계는 식 (2)와 같이 기술된다^[19].

$$\begin{aligned} \alpha(\lambda) &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{K_{\alpha}(\lambda, m, r)}{g_n} X_n(r) d(\ln r) \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} K_{new}(\lambda, m, r) X_n(r) d(\ln r) \end{aligned} \quad (2)$$

여기서 $X_n(r)$ 은 입자의 크기(r)에 따른 분포 특성을 나타내는 것으로 $n=1$ 인 경우 크기분포, $n=2$ 인 경우는 면적 분포, $n=3$ 인 경우는 부피분포를 나타낸 것으로, 본 연구에서는 입자의 부피분포를 적용하였다.

식 (3)은 두 개의 모드를 가지는 부피분포의 표현을 나타낸 것이다. 그러므로 우리가 구하고자 하는 값($\vec{X} = (r_1, r_2, N_1, N_2, \sigma_1, \sigma_2)^T$)들은 모두 6개가 된다.

$$\begin{aligned} X_3(\ln r) &= \frac{dR^3(r)}{d \ln(r)} = \frac{dV(r)}{d \ln r} \\ &= \sum_{i=1}^2 \frac{N_i}{\sqrt{2\pi} \sigma_i} \exp\left(-\frac{(\ln(r) - \ln(r_i))^2}{2\sigma_i}\right) \end{aligned} \quad (3)$$

식 (2)에서 g_n 도 입자의 크기, 면적, 부피에 따라 달라지며, 부피의 경우 $g_3 = \frac{4\pi}{3} r^3$ 로 나타난다. 마지막으로 커널($K_{\alpha}(\lambda, m, r)$)은 Mie 산란 이론에 의하여 구해지며, 입자의 크기와 굴절률 그리고 파장에 따라 계산되는 이론 함수인데, 주요 변수는 굴절률과 입자의 크기를 파장으로 나눈 값이 되는데, 식 (4)와 같이 표현된다^[19,20].

$$K_{\alpha}(\lambda, m, r) = \pi r^2 Q_{ext}(m, 2\pi r/\lambda) \quad (4)$$

여기서 Q_{ext} 는 소산효율을 의미하며 Mie 산란 이론에 의하여 구해진다.

식 (2)에서 미세먼지의 소산계수는 입자의 크기분포와 입자의 굴절률만 알면 구할 수 있는 값이고, 소산계수의 총거리(총거리)에 대한 가중 합(weighted sum)이 미세먼지의 광학깊이에 해당하므로 미세먼지의 AOD와 대기에 존재하는 미세먼지의 소산계수평균과의 관계는 다음의 식 (5)와 같이 표현될 수 있다.

$$\langle \alpha_\lambda \rangle = \int_0^\infty \alpha_\lambda(z) dz / \int_0^\infty dz \quad (5)$$

여기서 우리가 실험적으로 측정하는 것은 AOD 값인데, 식 (5)에 의하면 그 값은 대기 중의 소산계수 평균값에 대기층 거리(L_{eff})를 곱한 것이다($AOD = \langle \alpha_\lambda \rangle L_{eff}$). 측정값과 이론값을 연결하는 매개 변수 굴절률(m)과 미지수(\vec{X})는 이론적으로 구해진 AOD ($\vec{F}(\vec{X}, m)$) 값과 측정값을 비교하면서 측정값(\vec{Y})의 오차가 최소화되는 값으로 정하면 된다. 수학적으로는 오차는 식 (6)과 같이 표현된다.

$$\chi^2 = (\vec{F}(\vec{X}, m) - \vec{Y})^T C^{-1} (\vec{F}(\vec{X}, m) - \vec{Y}) \quad (6)$$

여기서 C 는 측정값의 오차 정도를 나타내는 공분산 행렬을 의미하며, 본 연구에서는 10개의 파장에서 AOD를 측정하므로, 10×10 행렬이 되고, 일반적으로 측정되는 AOD 값의 오차는 신호의 크기에 반비례하고, 또한 그 농도를 알 수 없는 가스의 흡수효과가 AOD 측정값에 영향을 미치므로, 본 연구에서는 공분산 행렬 C 를 정함에 있어서 UV 파장에 해당하는 354 nm (오존의 영향으로 그 값이 변동적임)와 신호의 크기가 작은 1019 nm 파장에서 오차의 크기를 높게 정하였다. 또한 675 nm 근처에서도 수증기의 흡수 효과가 강하게 작용하므로 675 nm 영역에서도 오차가 큰 것으로 공분산 행렬을 정하였다.

식 (6)으로 표현되는 오차를 최소화시키는 미지수(\vec{X})는 기본적으로 미지수 각 요소(element)에 대하여 미분한 값이 0이 되도록 하는 방정식을 통하여 얻어지며, 식 (6)의 해^[21]는 주어진 조건에서 다양한 방법으로 구할 수 있다. 많은 연구자들의 연구 결과를 정리한 Rodgers^[22]의 해법을 따라 뉴턴-가우스 회기법(iteration)을 사용하였으며, 다음의 식으로 표현된다.

$$\vec{X}_{i+1} = \vec{X}_i + (K_i^T C_e^{-1} K_i)^{-1} [K_i^T C_e^{-1} (\vec{Y} - \vec{F}(\vec{X}_i))] \quad (7)$$

여기서 K_i 는 i 번째 되먹임 해가 구해졌을 경우, 미지변수에 대한 측정치(혹은 이론값)의 기울기를 나타내는 것으로 변수가 4개이고, 계산되는 이론값의 수가 10개이므로 (K_i) _{m,n} = $\frac{\partial F_m(\vec{X}_i)}{\partial X_n}$ 는 10×4 행렬을 나타낸다.

이론적인 광학 깊이를 계산하는 함수 $\vec{F}(\vec{X}, m)$ 는 입자의 크기 분포를 결정하는 4개의 요소뿐만 아니라 굴절률(m)에 대한 정보도 필요하다. 그러나 Gobbi^[23] 등의 연구 결과에 의하면 AE (Ångström exponent)는 굴절률이 변해도 크게 변하지 않고, 대부분의 연구 결과는 미세먼지의 크기 분포는 파장에 따른 AOD나 소산계수가 더 중요하며, 그 값의 절댓값은 입자 크기 분포에 영향을 미치지 않는 것으로 알려져 있다. 그러나 BrC (Brown Carbon)처럼 굴절률의 허수부가 UV영역에서 가시광선 파장 영역으로 바뀌면^[24] 급격히 적어지는 ($0.2 \Leftrightarrow 0.001$) 경우엔 파장이 소산계수 값에 큰 영향을 주어서 그 값의 변화가 커질 수 있어 파장에 따른 굴절률 변화가 심한 미세먼지에는 적용이 불가능하다. 즉 잘못된 굴절률의 값을 입력하면 다른 입자 크기 분포 값을 얻을 수 있다는 뜻이다. 이러한 특별한 경우를 제외하고는 입자의 산란에 의한 소산의 정도는 굴절률에 민감하지 않다.

미세먼지의 파장에 따른 굴절률에 대한 정보는 많은 데이터베이스^[25]에서 확인이 가능한데, 가시광선 영역에서 파장에 따른 굴절률의 변화가 큰 미세먼지를 제외하면, 임의의 굴절률을 넣고 AOD를 계산하여도 입자의 크기 분포엔 영향을 주지 않는다. 즉 소산 계수는 오직 입자의 크기나 형태(morphology)에 민감하다는 것을 보여 준다. 이러한 것을 구체적으로 확인하기 위하여 그림 7은 입자의 크기에 따라 식 (2)의 커널(K_{new}) 값이 어떻게 변하는지 보여준다. 그림에서 알 수 있듯이 입자의 크기에 따라 각 주어진 파장에서 반응하는 감도가 다르다는 것을 볼 수 있다. 그림에서 알 수 있듯이, 입자가 작은 경우엔 짧은 파장에서 소산의 효과가 크고, 반경이 큰 입자는 큰 파장에서 그 소산의 효과가 크다. 그리고 그 값은 $x = \frac{2\pi r}{\lambda}$ 가 6이 되는 정도에서 가장 민감도가 높다. 또한 그림에서 알 수 있듯이 입자의 크기가 1 μm 보다 클 경우 모든 파장에서 민감도가 떨어지고, 반대로 0.01 μm 보다 작을 경우엔 감도가 거의 없다는 것을 알 수 있다.

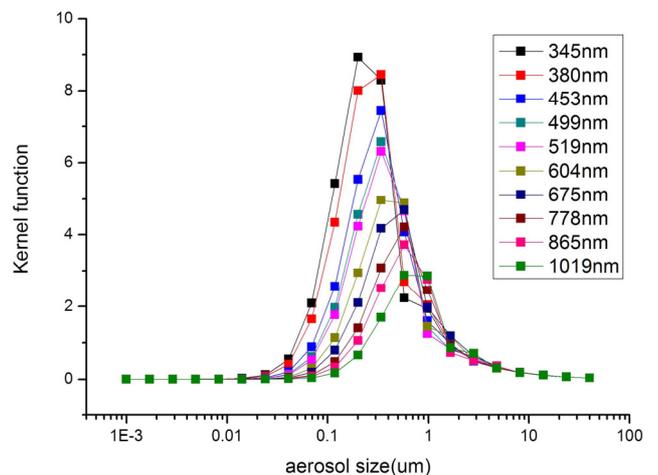


Fig. 7. Characteristics of kernel functions dependent on the aerosol sizes and wavelengths.

이러한 분석의 결과에서 알 수 있듯이 광학적인 방법은 0.01 μm 에서 1 μm 사이의 입자에 대한 감도가 우수하다는 것을 보여 준다. 만약에 더 큰 입자를 측정하고자 하는 경우엔 더 긴 파장을 선택하고, 더 작은 입자의 크기를 측정하고자 한다면, 더 파장이 짧은 UV 영역을 선택해야 한다. 그러나 파장이 더 길면 각종 가스(수증기)에 의한 흡수가 일어나서 그 가스의 밀도도 동시에 관측하여야 하며, 반대로 짧은 파장을 사용한다면, 산소나 오존에 의한 흡수를 고려하여야 한다. 특히 오존은 하루 중에도 많이 변하기 때문에 이를 고려하는 것은 매우 중요하다.

3.2. 미세먼지의 크기 추출 결과

그림 8은 식 (6)에서 논의된 것과 같이 측정값의 공분산 행렬을 다르게 하면서 얻은 이점 분포(bimodal distribution)에서 이론적으로 구한 AOD와 실험적으로 구한 AOD 값을 나타낸 것이다. 제시한 그림은 황사가 국내에 유입된 2017-4-12일 날짜의 데이터를 이용한 것이다. 앞에서 언급한 것처럼 345 nm 근처의 파장에서는 하루를 주기로 오존의 흡수가 변하기 때문에 측정 오차가 클 수 있기 때문에 공분산 행렬에서 그 가중치를 낮게 설정하여야 한다. (a)의 결과는 345 nm 파장에서 측정 오차를 10%로 정한 것으로 다른 파장에서의 측정 오차와 동일하게 주고 계산한 것이며, (b)의 그래프는 345 nm에서 오차가 더 크다고(80%) 가정하고 얻은 AOD를 그린 것이다. 그림에서 보듯이 (a)의 경우는 345 nm에서 실험값과 이론치가 비교적 잘 일치하고 있으나, (b)의 경우는 실험값과 이론값의 차이가 더 커졌다는 것을 알 수 있다. 그러나 현실적으로 측정값에 어떤 오차가 존재하는지에 대한 정보는 다른 장비와 비교 측정하거나 실제 데이터와 비교하는 방법을 통하여 분석하기까지는 알 수 없으므로, 공분산 행렬의 각 요소에 해당하는 값은 다양한 가스와 각 파장에서

의 신호의 크기 등을 고려하여 앞으로 연구를 통하여 점진적으로 개선할 필요가 있다. 그림에서 보듯이 이론적인 AOD 특성과 실제 측정값이 일치하지 않는 것은 황사의 경우 이점 분포 특성에서 벗어나 있거나, 여러 가지 다른 종류의 입자들이 황사와 함께 국내에 유입되었을 경우도 있기 때문이다. 또한 황사입자는 구형이 아니라서 산란 이론을 적용하기 어려운 점도 이러한 불일치의 원인에 해당한다고 할 수 있다.

그림 9는 이러한 의심되는 황사가 대전지역을 지나가고 난 다음 날의 미세먼지 AOD를 다시 이론적으로 추출한 것이다. 예측하는 것처럼 일반 미세먼지의 경우 그림 8의 황사와 달리 계산 값과 이론적인 값이 비교적 잘 일치하는 것을 볼 수 있다. 즉, 앞에서 예측된 것처럼 황사는 자연 상태에 존재하는 일반적인 경우와 다르게 다른 여러 가지 모드의 입자들이 동시에 존재한다고 추측할 수 있으나, 황사의 유입이 없는 일반적인 날(2017년 4월 13일)의 경우 AOD 값은 전날 대비 더 큰 값을 보이고 있다. 즉 AOD의 크기와 관계없이 미세먼지의 종류나 유입경로 등에 따라서 본 이점 분포 모형이 더 유용하게 적용될 수 있다는 것을 보여준다. 또 한 가지 원인은 언급한 것처럼 황사의 경우 입자의 모양이 원형이 아니고 비구형이기 때문에 본 연구에서 사용되는 이론인 Mie 산란 이론이 적용되지 않는다는데 있다. 비구형의 경우 산란 특성은 Mishchenko^[26] 등을 필두로 많은 연구가^[27]들에 의해 연구가 이루어지고 있으나, 해석함수(analytic function)를 바탕으로 한 계산이 아니고 유한 요소법^[28] 등 시간을 많이 필요로 하는 계산과정을 거쳐야하기 때문에 입자의 크기 분포를 되먹임방식으로 산출하는 곳에는 입자의 형태나 모양 자체도 고려해야 하므로 시간 소요의 문제로 적용하기 곤란하다.

그림 10은 황사가 온 날을 기준으로 전날(2017년 4월 11일)과 그 다음날(2017년 4월 13일)에 얻은 미세먼지의 부피 크기 분포 곡선의 특성을 나타낸다. 그림에서 x축은 입자 크기에

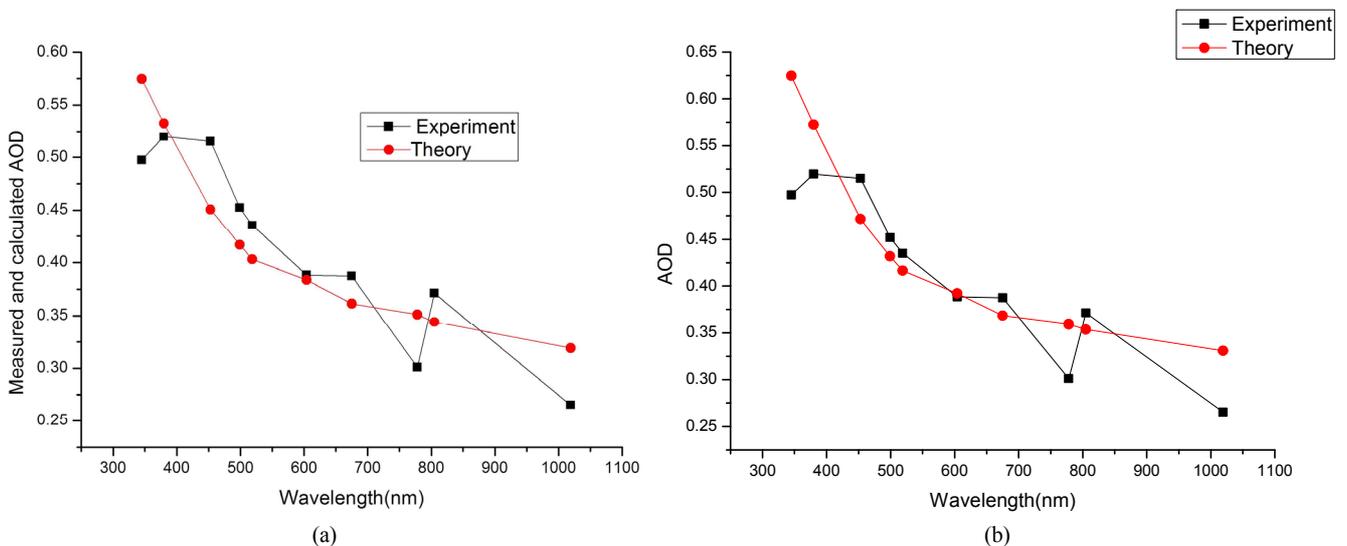


Fig. 8. Nonlinear regressive fitting results with different error covariance matrices. (a) 10% experimental error at 345 nm, (b) 80% experimental error at 345 nm.

로그를 취한 값이고(일반적으로 대기의 입자의 분포는 로그 크기로 가우시안 분포를 한다), y축은 부피크기 수에 로그를 취하여 나타낸 것이다. 그림에서 볼 수 있듯이 황사가 유입한 날의 경우는 다른 날에 비하여 큰 입자들이 상대적으로 훨씬 많이 존재한다는 것을 볼 수 있다. 11일의 경우에도 13일에 비하여 상대적으로 큰 입자들이 많이 존재하는데, 그것

은 10일에 황사가 유입되고 11일에는 잠시 황사의 공백기가 있으나, 10일 도달한 황사 중 큰 입자들은 시간 지연을 두고 도달한 것으로 판단할 수 있다. 황사가 유입한 12일의 경우 최대 부피크기 분포를 보이고 있는데, 구체적으로는 큰 모드의 입자의 중심 크기는 $1.55 \mu\text{m}$ 정도이고, 작은 모드는 $0.041 \mu\text{m}$ 크기에서 최댓값을 보이고 있다. 반면에 황사가 지

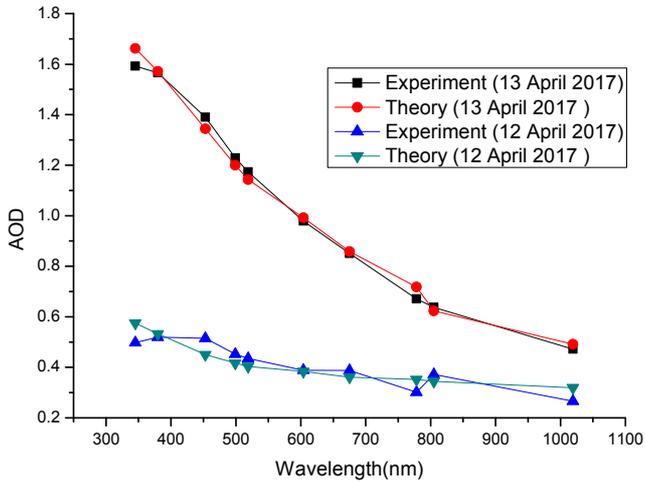


Fig. 9. Results of regressive nonlinear AOD fitting for two atmospherically different days.

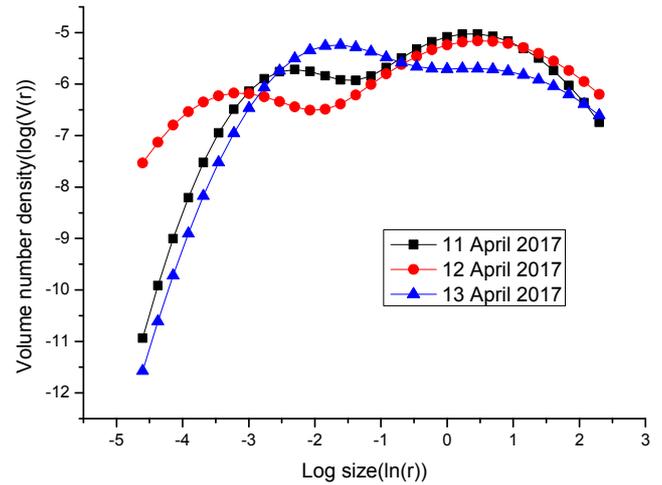


Fig. 10. Aerosol volume size distributions calculated in normal and yellow sand atmospheric aerosol conditions.

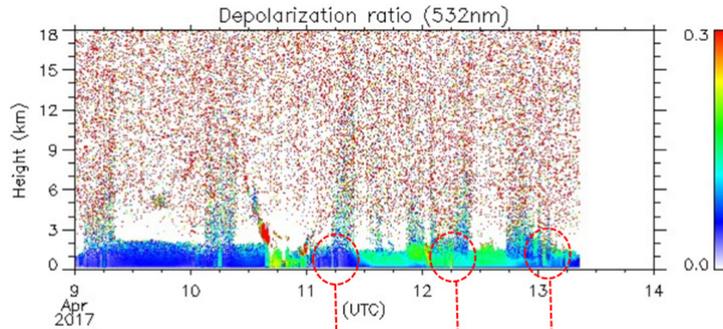


Figure (b) Figure (c, d) Figure (e)

(a)

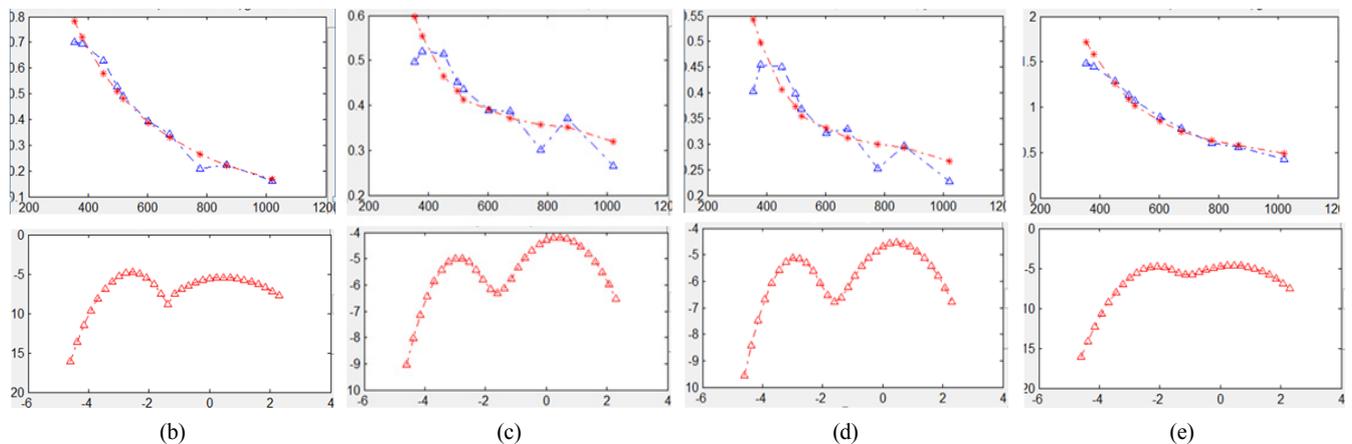


Fig. 11. Polarization characteristics, AOD, and aerosol size distributions during yellow sand aerosol conditions.

나간 평시(13일) 대기 상태에서는 0.19 μm 와 2.4 μm 에서 각각 최댓값을 보인다. 1차 황사(10일)가 유입되고 2차 황사가 유입되기 전 중간 날(11일)은 0.09 μm 와 1.3 μm 에서 최댓값을 보인다.

그림 10의 미세먼지 부피 크기분포 특성 모양을 설명하기 위하여 편광라이다를 이용하여 측정된 비편광도를 그림 11에 나타내었다. 그림 11(a)는 대기 입자에 대해서 감도가 좋은 532 nm의 파장에서 편광라이다의 비편광도를 색으로 나타낸 것이다. 황사의 유무는 일반적으로 라이다 신호의 비편광도를 이용하여 나타낼 수 있다²⁹⁾. 그러나 비편광도가 높아도 미세먼지의 수 농도가 높은 것은 아니다. 이러한 판단 기준으로 판단하면, 그림에서 볼 수 있듯이 4월 10일에 약간의 황사가 유입되었으며, 11일과 13일엔 황사가 존재하지 않으며, 12일에 다시 황사가 유입되었음을 알 수 있다. 그림 11의 (b), (c), (d), (e)는 황사가 유입되기 전과 후에 측정된 AOD와 이를 이용하여 구한 입자 크기분포이다. (b), (c), (d), (e) 그래프의 상단은 앞에서 언급한 10개 파장에서 측정된 AOD를 나타내고, 하단은 황사가 유입되기 전후에 다른 날짜를 택해서 입자 크기를 구한 것이다. (c)와 (d)는 굴절률에 따라 입자의 크기 분포가 어떻게 역산되는지 알아보기 위한 것으로, (c)는 임의의 굴절률에서 (d)는 황사의 굴절률로 계산한 것이다. 또한 그림에서 알 수 있듯이 (c)와 (d)는 유사한 결과를 보이는데, 굴절률을 임의로 주는 경우에도 굴절률로서 황사의 굴절률을 이용하는 경우와 유사한 모양의 크기 분포를 보이고 있음을 알 수 있다. 즉 입자의 크기 분포는 굴절률에 민감하지 않다는 것을 보인다. 그리고 황사가 유입되기 전과 후 즉 (b)와 (e)에서는 황사가 유입된 경우와 달리 작은 입자의 크기가 우세한 것으로 역산됨을 알 수 있는데, 이는 대부분의 다른 연구자들의 결과와 일치하는 결과이다.

IV. 결 론

본 연구에서는 태양 추적 장치와 분광기를 이용하여 미세먼지의 부피 크기분포를 추출하는 시스템을 제안하고 실증한 논문이다. 일반 대기모델에서 미세먼지는 이점점 분포를 하고 있음이 여러 논문에서 밝혀졌으며, 본 연구 결과도 일반적인 대기 상태에서는 측정된 AOD 값과 거의 일치하는 미세먼지의 부피 크기분포를 구할 수 있었다. 황사와 같이 비구형의 입자가 다량으로 존재하여 크기 및 형태의 분포 특성이 일반 대기 상태와 크게 달라지는 경우엔 계산에 의한 AOD 값과 실측한 AOD 값에 차이를 보이고 있다. 이는 본 모델이 Mie 산란 모델이고, 또한 황사와 자연 상태의 미세먼지, 오염된 미세먼지 등이 다량으로 존재하는 경우 두 가지 모드로만 입자크기 분포를 설명할 수 없다는 것을 나타낸다. 그러나 입자의 크기 역산 결과에서는 황사의 경우 큰 입자들로 구성된 것이라는 것을 확연히 알 수 있었다. 이러한 결과는 입자의 굴절률 값을 알 수 없는 경우에도 본 알고리즘을 적용할 수 있다는 것을 알 수 있으며, 결국 입자의 크기분포는 잘 알려진 것처럼 파장에 따른 AOD의 변화 특징을 대표

하는 AE 값에 의하여 결정된다는 것을 볼 수 있다.

앞으로 개발된 장치와 알고리즘을 이용하여 다양한 경우에 대하여 실험을 수행하고, 다양한 미세먼지 상태, 예를 들어 해양성 미세먼지나 공단 지역에서 방출되는 각종 숯 검댕이(soot) 미세먼지에 적용하여 기존 크기 분포와 더불어 미세먼지와 굴절률도 추출하는 방법을 개발할 필요가 있다. 이를 위하여 굴절률의 변화에 민감한 파장을 더 선택하여(예를 들어 숯 검댕이나 갈색 검댕(brown carbon) 먼지의 경우 UV 영역에서 굴절률이 크게 다르다) 굴절률도 함께 추출하는 연구를 진행할 예정이다.

감사의 글

본 논문은 기상청 기상지진기술개발사업(KMI 2017-6030, KMIPA 2015-2031)의 지원으로 수행되었습니다. 또한 황사의 존재 유무를 밝히기 위하여 라이다의 편광신호를 보내주시는 목원대학교의 박찬봉 교수님께 감사를 드립니다.

References

1. J. Haywood and O. Boucher, "Estimation of the direct and indirect Radiative forcing due to tropospheric aerosol: A review," *Rev. Geophys.* **38**, 513-543 (2000).
2. E. Jung, B. A. Albrecht, G. Feingold, H. H. Jonsson, P. Chuang, and S. L. Donaher, "Aerosols, clouds, and precipitation in the North Atlantic trades observed during the Barbados aerosol cloud experiment - Part 1: Distributions and variability," *Atmos. Chem. Phys.* **16**, 8643-8666 (2016).
3. Z. Ren-Jian, H. Kin-Fai, and S. Zhen-Xing, "The role of aerosol in climate change, the environment, and human health," *Atmos. Oceanic Sci. Lett.* **5**, 156-161 (2012).
4. G. Chen, S. Li, Y. Zhang, W. Zhang, D. Li, X. Wei, Y. He, M. L. Bell, G. Williams, G. B. Marks, B. Jalaludin, M. Abramson, and Y. Guo, "Effects of ambient PM1 air pollution on daily emergency hospital visits in China: an epidemiological study," *Planet. Health* **1**, 221-229 (2017).
5. V. F. McNeill, "Atmospheric Aerosols: Clouds, Chemistry, and Climate," *Annu. Rev. Chem. Biomol. Eng.* **8**, 427-444 (2017).
6. <https://aeronet.gsfc.nasa.gov/>
7. https://aeronet.gsfc.nasa.gov/new_web/equipment_details.html
8. <https://aeronetsoftware.com/>
9. O. V. Dubovik, T. V. Lapyonok, and S. L. Oshchepkov, "Improved technique for data inversion: optical sizing of multicomponent aerosols," *Appl. Opt.* **34**, 8422-8436 (1995).
10. M. Dubovik and M. King, "A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from Sun and sky radiance measurements," *J. Geophys. Res.* **105**, 20673-20696 (2000).
11. B. N. Holben, T. F. Eck, I. Slutsker, D. Tanre, J. P. Buis, K. A. Setzer, E. Vermote, J. A. Reagan, Y. J. Kaufman, T. Nakajima, F. Lavenue, I. Jankowiak, and A. Smirnov,

- “AERONET - A federated instrument network and data archive for aerosol characterization,” *Remote Sens. Environ.* **66**, 1-16 (1998).
12. A. Herber, L. W. Thomason, H. Gernandt, U. Leiterer, D. Nagel, K. H. Schulz, J. Kaptur, T. Albrecht, and J. Notholt, “Continuous day and night aerosol optical depth observations in the Arctic between 1991 and 1999,” *J. Geophys. Res. Atmos.* **107**, 1984-2012 (2002).
 13. S. Volkov, I. Samokhvalov, H. Cheong, and D. Kim, “Optical model and calibration of a sun tracker,” *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **180**, 101-108 (2016).
 14. K. Chance and R. L. Kurucz, “An improved high-resolution solar reference spectrum for earth’s atmosphere measurements in the ultraviolet, visible, and near infrared,” *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **111**, 1289-1295 (2010).
 15. K. V. Chance and R. J. D. Spurr, “Ring effect studies: Rayleigh scattering, including molecular parameters for rotational Raman scattering, and the Fraunhofer spectrum,” *Appl. Opt.* **36**, 5224-5230 (1997).
 16. C. E. Sioris, G. B. C. Lacoste, and M. P. Stoll, “Filling in of Fraunhofer lines by plant fluorescence: Simulations for a nadir-viewing satellite-borne instrument,” *J. Geophys. Res.* **108**, 4133-4138 (2003).
 17. <http://hitran.org/lbl/>
 18. https://geo.arc.nasa.gov/sgg/AATS-website/AATS6_AATS14/AATS6_AATS14.html
 19. H. C. van de Hulst, *Light Scattering by Small Particle* (John Wiley, New York, 1957), p. 370.
 20. C. F. Bohren and D. R. Huffman, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (John Wiley & Sons, New York, 1983), p. 550.
 21. S. Twomey, *Introduction to the Mathematics of Inversion in Remote Sensing and Indirect Measurements* (Elsevier, 1977) p. 243.
 22. C. D. Rodgers, *Inverse Methods for Atmospheric sounding theory and practices* (University of Oxford), Chapter 5.
 23. G. P. Gobbi, Y. J. Kaufman, I. Koren, and T. F. Eck, “Classification of aerosol properties derived from AERONET direct sun data,” *Atmos. Chem. Phys.* **7**, 453-458 (2007).
 24. G. L. Schuster, O. Dubovik, and A. Arola, “Remote sensing of soot carbon: Part I: Distinguishing different absorbing aerosol species,” *Atmos. Chem. Phys.* **16**, 1565-1585 (2016).
 25. S. T. Massie and M. Hervig, “HITRAN 2012 refractive indices,” *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **130**, 373-380 (2013).
 26. M. I. Mishchenko, “Light scattering by size-shape distributions of randomly oriented axially symmetric particles of a size comparable to a wavelength,” *Appl. Opt.* **32**, 4652-4666 (1993).
 27. S. N. Volkov, I. V. Samokhvalov, and D. Kim, “Assessing and improving the accuracy of T-matrix calculation of homogeneous particles with point-group symmetries,” *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **123**, 169-175 (2013).
 28. F. Borghese, P. Denti, and R. Saija, *Scattering from Model Nonspherical Particles* (Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2007).
 29. S. Shin, D. Shin, K. Lee, and Y. Noh, “Classification of dust/non-dust particle from the aisan dust plules and retrieval of microphysical properties using Raman lidar systems,” *J. Kor. Soc. Atmos. Environ.* **28**, 688-696 (2012).