

ORIGINAL ARTICLE

제주시 도로변에서의 에어로졸의 입경별 분포 특성

이기호 · 김수미¹⁾ · 허철구*

제주대학교 환경공학과, ¹⁾제주특별자치도 보건환경연구원 대기환경과

Roadside Aerosols Size Distribution Characteristics in Jeju City

Ki-Ho Lee, Su-Mi Kim¹⁾, Chul-Goo Hu*

Department of Environmental Engineering, Jeju National University, Jeju 63243, Korea

¹⁾Air Environmental Division, Jeju Special Self-Governing Province Research Institute of Health & Environment, Jeju 63142, Korea

Abstract

Measurements on mass size distribution of roadside aerosols were obtained in downtown Jeju City from July 2018 to May 2020 using an 8-stage cascade impactor sampler and the compositions of aerosols were analyzed. The mass size distribution of total aerosols was bimodal with aerosols existing in both the fine and coarse modes. The mass size distributions of Na^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^- , NH_4^+ and SO_4^{2-} were unimodal, whereas that of K^+ was bimodal. For NO_3^- , the size distribution in winter and spring was bimodal with the peaks in both fine and coarse modes, whereas for summer and autumn the distribution was unimodal with a peak in the coarse mode. NH_4^+ was found to co-exist with SO_4^{2-} in the fine mode with an average molar ratio of $[\text{NH}_4^+]/[\text{SO}_4^{2-}]$ equal to 2.05. Good correlation was observed between NO_3^- and NH_4^+ in the fine mode particles in spring and winter. Based on the value of the marine enrichment factor for Cl^- , Mg^{2+} , K^+ , Ca^{2+} and SO_4^{2-} , it may be inferred that a major part of the roadside aerosols in downtown Jeju City was largely contributed by terrigenous sources, although the influence of sea salt was normally present.

Key words : Roadside aerosol, Mass size distribution, Chemical composition, MMAD, Jeju

1. 서론

전 지구적인 차원의 기후변화 혹은 인체 건강과 지구 생태계에의 영향 등과 같이 장래에 그 중요성이 커지고 있는 많은 환경문제들은 에어로졸과도 밀접하게 연관되어 있다. 따라서 에어로졸의 물리적 및 화학적 특성을 파악하는 것이 필수적인 과학적인 과제가 되고 있다(Fröhlich et al., 2015).

전 세계적으로 도시지역에 거주하고 있는 600 백만 명 이상이 자동차에서 발생된 대기오염물질에 위험한 수준으로 노출되어 있다고 한다(Han and Naehar, 2006). 또한 UN의 발표에 의하면(UN, 2018), 2018년 전 세계 인구의 55%가 도시지역에서 살고 있으며, 2050년에는 68%까지 증가할 것이라고 한다. 세계적으로 산업화되면서 도시가 확장되고 도로교통체계가 지속적으로 확대되면서, 도로교통은 입자상물질의 직접적인 배출원으로써

Received 14 July, 2021; Revised 26 August, 2021;

Accepted 3 September, 2021

*Corresponding author: Chul-Goo Hu, Department of Environmental Engineering, Jeju National University, Jeju 63243, Korea
Phone:+82-64-754-3443
Email: huchulgo@jeju.ac.kr

© The Korean Environmental Sciences Society. All rights reserved.

© This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

아주 큰 비중을 차지하게 되었다(Pey et al., 2009; Hu et al., 2017). 따라서 도시지역에서 배출되는 입자상물질의 50% 이상은 도로교통에서 유발된다고 한다(Wróbel et al., 2000). 그리고 전 세계적으로 도시 대기 중 PM_{2.5}는 25%가 교통, 15%가 산업 활동, 20%가 가정 연료의 연소, 22%가 인간에 기인한 불특정 배출원, 그리고 18%는 자연적인 먼지와 염(salts)에 의한 것이라고 한다(Karagulian et al., 2015). 또한 교통수단에 의한 영향이 직접적으로 나타나는 도로변 환경에서의 오염수준은 다른 도시 배경지역에 비해서 더욱 심각하다고 알려져 있고(Shields et al., 2007; Zavala et al., 2009), 농도 뿐 아니라 입자의 화학적 조성, 입경분포 그리고 오염 특성의 시공간적 변동 등에 있어서도 차이를 보인다고 한다(Duan et al., 2009; Hu et al., 2017).

국내적으로 보면, 서울시에서는 6차선 이상인 도로에 있어서 미세먼지의 농도는 도로 중앙부보다는 인도에서 낮은 수준이지만 주변의 일반 대기질보다는 높은 농도 수준이고(Ha, 2011), 대구시에서는 도로변과 주거지역 모두 입경 0.3~1.0 μm 에서는 질량 농도가 유사하지만 입경 1.0 μm 이상인 영역에서는 도로변이 주거지역에 비해 농도가 20% 정도 높은 것으로 나타났으며(Cho et al., 2019), 부산시의 간선도로에서 측정된 재비산 먼지의 공기역학적 질량중위입경(Median Mass Aerodynamic Diameter, MMAD)은 대형차량의 통행이 많은 도로변에서는 0.95 μm 시내 간선도로 중앙부에서는 0.44 μm 수준이라고 했다(Yoo et al., 2009). 그 동안 국내 대도시를 중심으로 도로변에서의 에어로졸에 관한 다수의 연구들이 진행된 바 있지만, 제주도 지역은 청정한 지역으로 인식되어 미세먼지를 포함한 대기질의 악화에 대한 대비가 거의 없었으며, 도로교통을 포함하여 에어로졸의 배출원과 그 배출 특성에 대한 실태 파악도 제대로 이루어진 바 없었다. 이로 인해 제주에서의 각종 에어로졸 발생원을 추정하고 그 기여도를 산정하기 위한 각종 수단(예를 들면, 수용모델 등)을 적용하는데 제약이 따르게 된다. 그렇지만 최근 정부의 발표에 의하면(MOLIT, 2019), 제주도민 10명 중 9명은 도시지역에 살고 있다고 한다. 따라서 제주지역에서도 에어로졸을 포함한 도시 대기질에 대한 관심은 날로 증대될 것으로 판단된다.

따라서 제주도 도심지역을 중심으로 에어로졸의 농도와 화학적 특성에 대한 실제적인 조사를 통해 에어로졸

의 기원과 화학적 생성경로에 대한 이해를 제공해야 할 필요성이 제기되고 있다. 또한 에어로졸 특성에서 입자의 크기는 오염원과 위해성을 평가함에 있어서 가장 중요한 물리적인 인자이므로(Cho et al., 2019) 입경별 분포특성을 함께 파악하려는 노력도 필요하다. 이에 본 연구에서는 제주도 도심지역의 도로변에서 에어로졸을 입자크기별로 채취하고, 이를 분석하여 제주도 도로변에 에어로졸의 농도, 조성 그리고 입경분포 등의 특성을 파악하고자 하였다. 이로써 향후 제주지역의 생활환경 속에서의 미세먼지 관리방안을 마련에 기초적인 근거가 제공될 수 있을 것이다.

2. 재료 및 방법

2.1. 측정 지점 및 시료 채취

본 연구에서는 도로변 에어로졸을 채취하고자 차량 왕래가 많은 원형 로타리를 측정지점으로 선정하고, 원형 로타리 내부에 시료채취장치를 설치하여 시료를 채취하였다. 로타리 주변 지역은 제주시의 대표적인 도심지역으로 제주도청, 도의회, 교육청, 경찰청 등의 관공서 건물, 각종 상업용 건축물 그리고 소규모 공동주택들이 밀집해 있다(Fig. 1).

본 연구에서 도로변 에어로졸을 입경별로 구분하여 포집하기 위해서 8단 입경분리장치 (8-stage cascade impactor, Series 20-800, Anderson)를 사용했으며, 포집 시 MFC (Digital Mass Flow Controllers, CMQ-V, Azbil Co., Japan)를 장착하여 공기 유량을 28.3 L/min로 유지하여 공기역학적 입경 범위를 만족하도록 했다. 시료 채취 시 강우, 바람 및 주변 환경으로부터의 직접적인 영향을 배제할 수 있도록 입경분리장치와 MFC 등의 주요 장비는 알루미늄 재질로 제작된 shelter 내부에 설치하였다. 제작된 shelter에서 시료 공기의 유입부는 지면으로부터 1.5 m 높이에 위치하였다.

Table 1에는 도로변 미세먼지 시료의 채취기간과 그 당시의 날씨 상태를 나타냈다. 시료채취 기간은 2018년 8월부터 2020년 4월까지였으며, 시료채취를 위한 공기 흡입은 중단없이 3일(72시간) 동안 이루어졌다. 본 조사에서 사용한 입경분리장치는 공기 유입부로부터 총 8단으로 구성되었는데, 최초 분리단에서는 9 μm 이상의 입자가 분리되며, 아래로 가면서 5.8~9.0 μm , 4.7~5.8 μm ,

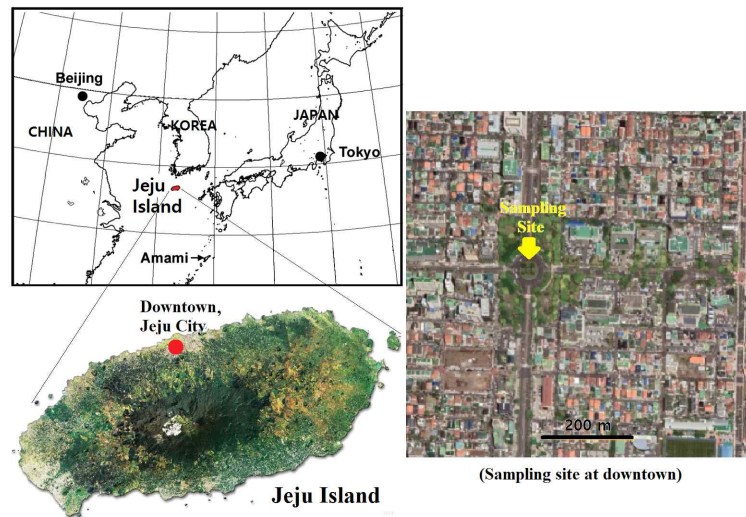


Fig. 1. The sampling site in this study.

Table 1. Sampling period and weather conditions

Run No.	Sampling period		Weather conditions			
	(Start - Stop)	Temp. ¹⁾ (°C)	R.H. ²⁾ (%)	W.S. ³⁾ (m/s)	Rainfall ⁴⁾ (mm)	
1	2018. 7.18 - 7.21	27.7-28.8	67.3-73.8	1.5-2.8		
2	2018. 7.24 - 7.27	29.1-29.2	75.4-80.9	2.0-2.2		
3	2018. 8.26 - 8.29	27.8-28.4	79.1-83.0	1.7-2.1	[8.5/-/-]	
4	2018. 10.8 -10.11	18.3-20.3	51.8-68.0	1.9-3.4		
5	2018. 10.12-10.15	15.4-17.6	57.6-74.8	2.0-2.8		
6	2019. 1.9 - 1.12	4.5-7.9	55.5-70.9	2.3-3.3	[-/1.7]	
7	2019. 1.15 - 1.18	3.1-7.0	56.4-63.5	4.1-4.3		
8 ^{*)}	2019. 5.1 - 5.4	14.7-18.9	40.9-74.6	2.6-3.5		
9	2019. 5.7 - 5.10	15.6-17.4	42.5-48.4	1.8-2.6		
10	2019. 7.2 - 7.5	22.3-23.3	82.3-86.1	1.7-2.0		
11	2019. 8.8 - 8.11	29.5-31.1	65.0-72.6	3.0-4.7		
12	2019. 8.13 - 8.16	27.1-29.2	81.1-88.5	2.4-4.1	[-/1.2/-]	
13	2019. 10.15-10.18	17.4-19.3	61.1-71.4	2.3-3.1	[3.2/-/-]	
14	2019. 10.22-10.25	20.1-20.8	69.0-78.9	2.9-3.4	[0.5/0.6/2.3]	
15	2020. 1.14 - 1.17	4.8-6.3	55.8-73.5	1.9-3.5	[4.6/-/-]	
16	2020. 1.18 - 1.21	7.0-8.6	50.3-58.0	4.0-4.6		
17	2020. 3.31 - 4.3	11.6-13.9	57.4-66.8	2.1-3.7	[0.6/3.4/-]	
18	2020. 4.6 - 4.9	10.7-13.4	45.5-56.8	2.4-2.8		
19	2020. 4.13 - 4.16	11.6-13.4	44.1-60.4	1.8-4.5		

¹⁾: temperature, ²⁾: relative humidity, ³⁾: wind speed

Weather condition data were daily average between 1st day and 3rd sampling day.

⁴⁾: [-/-/-] indicate rainfall data on the 1st, 2nd, and 3rd sampling day, respectively.

^{*)}: Asian dust event occurred on the 2nd sampling day

Every sampling was starting between 07:00 and 07:20 AM.

3.3-4.7 μm , 2.1-3.3 μm , 1.1-2.1 μm , 0.7-1.1 μm , 0.4-0.7 μm 입자가 분리되어 포집되고, 마지막으로 backup 필터에는 0.4 μm 이하의 입자들이 포집된다. 그리고 각 단의 충돌판에는 여지(직경 81 mm, pore size 0.43 μm , PTFE, Adventec)를 사용하여 각 단에서 입자가 튀기는 현상이 최소화되게 했다.

따라서 본 연구에서는 각 분리단의 유효 전단 입경 (Effective Cut-off Diameter, ECD)을 근거로 미세입자 (fine particles)와 조대입자(coarse particles) 영역 사이의 경계를 2.1 μm 로 사용하였다. 즉, 최초분리단에서 4단 까지를 조대입자($\text{PM}_{\text{Coarse}}$), 5단부터 backup까지를 미세입자(PM_{Fine})로 구분하였으며, PMT는 impactor의 모든 분리단에 포집된 에어로졸을 모두 합한 것을 의미한다.

2.2. 시료의 분석

시료 채취 전과 후의 여지는 항온항습 상태에서 3일간 보관하여 항량시킨 후 감도가 0.01 mg인 전자저울 (Mettler Toledo, XS205)로 무게를 측정하였다. 시료 포집 전·후의 무게 차이를 이용하여 포집된 시료의 농도를 산출하였다.

무게 측정이 끝난 여지는 밀봉하여 -20°C로 냉동 보관하였다. 화학분석을 위해 여지는 시료 성분의 손실은 물론 오염이 되지 않도록 주의하면서 2등분으로 절단하여 한 부분을 사용하여 수용성 이온성분을 분석하였다. 수용성 이온성분(Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^- , SO_4^{2-} , NO_3^-)의 분석을 위해 먼저 여지를 추출 용기에 넣고 20 mL의 초순수를 가해 60분간 초음파 추출을 실시하고, 추출용액은 syringe filter (PVDF, 0.45 μm)로 여과한 후 ion chromatography (ICS-3000, Dionex)로써 분석하였다. 분석기기의 분석조건은 이전 연구에 자세히 나타났다(Hu et al., 2020).

2.3. 농축 계수

일반적으로 대기 중 에어로졸에 함유된 성분들은 지각(crust), 해양(ocean) 그리고 각종 인위적인 과정에서 유래된다. 특히 제주시는 연안에 위치한 도시이므로 대기 중 에어로졸에 대한 해양의 영향은 주요 고려사항이다. 따라서 본 조사에서는 도로변 에어로졸에 대한 해양의 기여도를 파악하고자 했다. 이를 위해서 널리 사용되는 해양농축계수(marine enrichment factor)를 산출하였다. 일반적으로 해양농축계수는 다음의 식 (1)로 나타

낼 수 있다.

$$EF_{\text{marine}}(-) = \frac{(X/\text{Na}^+)_{\text{aerosol}}}{(X/\text{Na}^+)_{\text{seawater}}} \quad (1)$$

여기서 X_{aerosol} 은 에어로졸에 함유된 이온(X)의 측정 농도이고, $(X/\text{Na}^+)_{\text{aerosol}}$ 은 에어로졸 시료 중에서의 Na^+ 에 대한 X의 농도비, $(X/\text{Na}^+)_{\text{seawater}}$ 는 해수에서의 비를 의미하며, 본 연구에서는 문헌에 제시된 해수의 조성비를 활용하였다(Parmar et al., 2001).

3. 결과 및 고찰

3.1. 도로변 에어로졸의 질량농도

Table 2에는 도로변 에어로졸의 질량농도와 질량농도의 비를 계절별로 나타낸 것이다. 제주도 도심지역의 도로변에서 총 에어로졸의 농도(PM_{T})는 봄>겨울>여름>가을의 순으로 나타났는데, 봄, 여름 그리고 겨울의 농도는 28.4~30.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 의 범위로 비슷한 수준이었으나 가을철에는 크게 낮은 농도 수준을 나타냈다. 특히, 9.0 μm 보다 큰 입자를 제외한 PM_{10} 에 있어서도 봄, 여름, 겨울에는 비슷한 농도 수준(26.8~27.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)을 보이지만 가을철에는 크게 낮아지는 것을 볼 수 있다.

도로변 에어로졸 입자 중에서 조대입자($\text{PM}_{\text{Coarse}}$) 영역의 농도는 봄>여름>겨울>가을 순으로 높게 나타났고, 미세입자(PM_{Fine}) 영역에서는, 조대입자 영역과는 반대로, 겨울>여름>봄>가을의 순이었으며, 가을에는 조대입자와 미세입자 모두에서 가장 낮은 농도를 나타냈다. PM_{T} 에 대한 조대입자의 비율($\text{PM}_{\text{Coarse}}/\text{PM}_{\text{T}}$)은 봄>가을>여름>겨울의 순이었고, 그 값은 가을과 봄에 0.5 이상 그리고 여름과 겨울에는 0.5 이하로 나타났다. 반대로 PM_{T} 에 대한 미세입자의 비율($\text{PM}_{\text{Fine}}/\text{PM}_{\text{T}}$)은 겨울>여름>가을>봄 순으로써 조대입자 영역의 경우와는 정반대의 계절적 경향을 보였고, 가을과 봄에는 그 값이 0.5 이하 그리고 여름과 겨울에는 0.5 이상으로 나타났다. 따라서 제주도 도심의 도로변 에어로졸에 있어서는 봄과 가을철에는 조대입자의 비중이 높고, 여름과 겨울에는 미세입자의 비중이 증가함을 알 수 있다. 이러한 결과는 부산시 주요 간선도로의 도로변에서 측정된 결과(조대입자 51.0%, 미세입자 49.0%)와 유사함을 알 수 있다(Yoo et

Table 2. Mass concentration and the ratio between the given size classes in roadside aerosols at Jeju City

Item		Average	Spring	Summer	Autumn	Winter
Mass ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	PM _T *	26.6±10.7	30.1±18.0	28.4±5.1	17.1±1.7	29.1±7.5
	PM ₉	24.9±9.7	27.6±15.9	26.8±4.9	16.0±1.5	27.5±7.4
	PM _{Coarse}	12.8±7.4	17.9±12.9	12.7±4.1	8.9±2.4	11.2±3.8
	PM _{Fine}	13.9±5.5	12.3±5.2	15.7±3.9	8.2±0.9	17.9±5.7
	PM _{1.1}	10.1±3.7	8.9±2.7	11.1±3.3	6.5±1.1	13.2±3.9
Ratio (-)	PM ₉ /PM _T	0.94	0.92	0.94	0.93	0.94
	PM _{Coarse} /PM _T	0.48	0.59	0.45	0.52	0.38
	PM _{Fine} /PM _T	0.52	0.41	0.55	0.48	0.62
	PM _{1.1} /PM _T	0.38	0.30	0.39	0.38	0.45
Mass fraction (%)	PM<2.1	52.0	40.7	55.3	47.9	61.6
	2.1<PM<4.7	24.6	30.2	22.7	28.0	19.5
	4.7<PM<9.0	16.9	20.8	16.4	17.5	13.4
	PM>9.0	6.5	8.3	5.6	6.7	5.5
	Total	100	100	100	100	100

*: PM_T : Total roadside aerosols (the sum of all stages)

al., 2009). 그렇지만 이러한 결과는 입자의 측정 위치, 도로를 운행하는 차량속도, 차종 등에 따라 이들의 비율은 큰 차이를 보이게 될 것이다.

또한 본 연구에서는 입경 2.1 μm 이하인 영역(PM<2.1), 2.1 μm 에서 4.7 μm 사이의 영역(2.1<PM<4.7), 4.7 μm 에서 9.0 μm 사이의 영역(4.7<PM<9.0), 그리고 9.0 μm 이상의 영역(9.0<PM)으로 구분하여 계절별 농도 비중을 살펴 보았는데(Table 2), PM<2.1 영역에서는 겨울에 61.6%로 가장 높고, 여름 55.3%, 그리고 봄과 가을에는 각각 40.7%와 47.9%의 수준이었다. 2.1<PM<4.7 영역, 4.7<PM<9.0 영역 및 9.0<PM 영역에서는 봄철과 가을철이 여름과 겨울철에 비해 높게 나타났다. 특히 9.0<PM 영역에서는 봄철의 비중이 다른 계절보다는 특히 높게 나타났다. 제주도 도심의 도로변 에어로졸 중에서 4.7 μm 이하인 입자의 비중이 겨울철 81.1%, 여름철 78.0%, 가을철 75.9% 그리고 봄철 70.9% 수준으로 나타났다. 에어로졸 입자 중 5.0 μm 이하인 입자는 호흡기계에 침투가 용이하다고 알려져 있으므로(Shekunov et al., 2007; Ohsaki et al., 2019), 제주도 도심지역의 도로변에 있어서도 미세먼지에의 노출에 따른 보건학적 측면의 대기질 관리정책은 필요할 것으로 예상된다.

3.2. 수용성 이온성분의 질량농도

도로변 에어로졸 입자에 함유된 이온성분들의 구성비를 미세입자와 조대입자 영역으로 구분하여 계절별로 Fig. 2에 나타냈다. 미세입자를 구성하는 이온 성분 중에서는 SO₄²⁻와 NH₄⁺의 점유율이 높게 나타났고, NO₃⁻의 점유율은 계절에 따른 변동이 큰 것을 볼 수 있다. 조대입자를 구성하고 있는 이온 성분 중에서는 NO₃⁻, SO₄²⁻, Na⁺, Cl⁻의 점유율이 다른 이온들에 비해 큰 것으로 나타났다. 그리고 미세입자 영역에서의 이온들의 점유율과 비교했을 때, NH₄⁺와 SO₄²⁻의 점유율은 조대입자 영역에서는 낮아지는데 비해 NO₃⁻, Na⁺, Cl⁻, Ca²⁺의 점유율은 오히려 높아진 것을 볼 수 있다.

또한 계절별로 보면, 미세입자 영역에서는 모든 계절에서 SO₄²⁻의 점유율이 아주 높는데, 특히 여름과 가을에 아주 높았다. 그리고 봄과 겨울에는 NO₃⁻의 점유율이 크게 높아지면서 상대적으로 SO₄²⁻는 여름과 가을에 비해 감소하는 경향을 보였다. 그렇지만 NH₄⁺는 모든 계절에서 거의 비슷한 점유율을 유지하는 것으로 나타났다. 조대입자 영역에서는 NO₃⁻ 점유율이 모든 계절에서 가장 높게 나타났으며, SO₄²⁻의 점유율은 계절별로 크나큰 변동은 없이 비교적 일정한 수준을 보이지만 미세입자의 경우와 비교하면 모든 계절에서 크게 낮은 점유율을

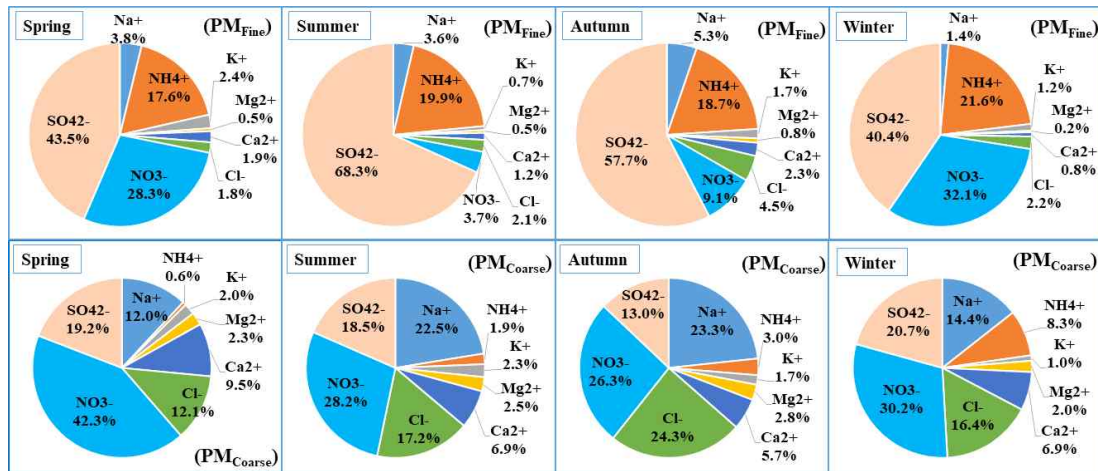


Fig. 2. Composition ratio of ionic species in coarse mode and fine mode aerosols.

보였다. 그리고 Na^+ 와 Cl^- 의 점유율은 봄과 겨울에 비해 여름철과 가을철에 크게 높았으며, 특히 가을철에 가장 높게 나타났다.

제주시 도심지역 도로변 에어로졸 입자에서 이온 성분이 차지하는 비율은 미세입자 영역에서는 평균 50.7% (49.0~53.5%)였으나 조대입자 영역에서는 평균 34.1% (24.0~43.0%)로 나타났다.

3.3. 입경별 분포 및 질량중위입경

Fig. 3에는 도로변 에어로졸에 대해서 입경별로 분류된 농도를 근거로 log-normal 분포를 전체 에어로졸 (PM_{10})에 대해서 $dC/d\log(D_p)$ 로 표현하였다. Fig. 3에서 보면, 전체적으로는 중앙입경 $0.9 \mu\text{m}$ ($0.7\text{--}1.1 \mu\text{m}$)와 $4.0 \mu\text{m}$ ($3.3\text{--}4.7 \mu\text{m}$)에서 극값을 지니는 양극(bimodal) 분포를 나타내고 있다. 계절별로 보면 여름철에는 가장 큰 극값이 $0.9 \mu\text{m}$ 에서 나타나고 $2.7 \mu\text{m}$ 에서 낮은 극값이 나타났으며, 겨울철에는 가장 큰 극값이 $0.9 \mu\text{m}$ 에서 그리고 낮은 극값이 $4.0 \mu\text{m}$ 에서 나타났고, 봄철과 가을철에는 $4.0 \mu\text{m}$ 에서 가장 큰 극값이 나타나고 $0.9 \mu\text{m}$ 에서 낮은 극값을 지니는 것을 볼 수 있다. 그림에서 보면, 미세입자 영역에서는 겨울철과 여름철에 그리고 조대입자 영역에서는 봄철에 아주 큰 극값이 나타나는 것을 볼 수 있다.

Table 3에는 에어로졸 입자에 대한 MMAD를 계절별로 나타냈다. MMAD는 넓은 입경분포를 지닌 대기 중 에어로졸 입자에 대한 대표 입경을 표현하기 위한 한

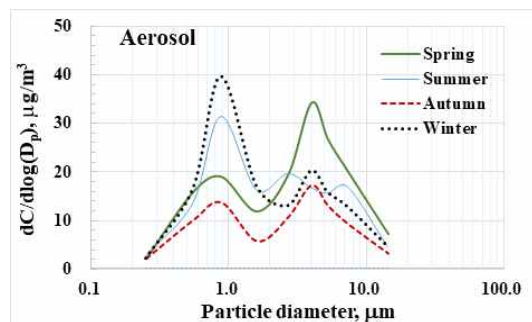


Fig. 3. Size distribution of roadside aerosols.

방법이며, 선행 연구에서의 방법과 같은 방법으로 산출하였다(Hu et al., 2020). 표에서 보면, 제주시 도심지역 도로변 에어로졸 입자의 연평균 MMAD는 $1.9 \mu\text{m}$ 로 나타났다으며, 계절별로는 봄철($2.1 \mu\text{m}$)에 가장 크고, 다음으로 가을철($1.9 \mu\text{m}$), 그리고 여름철($1.8 \mu\text{m}$)과 겨울철($1.8 \mu\text{m}$)에는 비슷한 크기를 보였다. 과거 제주시 함덕 바닷가에서 측정된 에어로졸의 MMAD는 $1.8 \mu\text{m}$ 였고(Lee et al., 2003), 고산리 바닷가에서 봄철에 측정된 에어로졸에서는 $2.0 \mu\text{m}$ 로 발표된 바도 있다(Kim et al., 1999).

Fig. 4에는 각 이온성분의 입경별 질량농도분포를 나타냈다. 이온들의 입경별 질량농도분포를 보면, Na^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} 및 Cl^- 은 조대입자 영역에서 큰 극값을 보이면서 계절에 따라 단극(unimodal) 또는 양극 분포를 보였다. 또한 다른 성분들과 달리, Na^+ , Mg^{2+} , Cl^- 의 입경

Table 3. Mass median aerodynamic diameter (MMAD) of ionic species contained in roadside aerosols

	MMAD (μm), σ_g				Average & σ_g	Gosan*	
	Spring	Summer	Autumn	Winter			
PM _T	2.1±0.6	1.8±0.4	1.9±0.4	1.8±0.3	1.9±0.4	5.7±1.1	~2.0
Na ⁺	3.0±0.8	3.0±0.8	3.5±0.4	4.0±0.3	3.3±0.7	8.8±1.4	~4.0
NH ₄ ⁺	0.8±0.1	1.0±0.2	0.9±0.2	1.2±0.2	1.0±0.2	2.4±0.8	~0.4
K ⁺	1.5±0.3	2.4±0.6	2.1±0.6	1.6±0.4	1.9±0.6	5.5±1.8	~2.0
Mg ²⁺	3.3±0.2	3.0±0.9	3.5±0.3	3.5±0.6	3.3±0.6	8.8±1.3	~4.0
Ca ²⁺	3.4±0.4	3.6±0.3	3.1±0.5	3.7±0.6	3.5±0.5	9.8±1.8	~4.0
Cl ⁻	4.3±0.5	3.5±0.5	4.1±0.7	4.0±0.6	3.9±0.7	12.0±2.2	~4.0
NO ₃ ⁻	2.2±0.4	3.2±0.9	3.0±0.4	1.7±0.2	2.4±0.9	6.3±2.8	~3.0
SO ₄ ²⁻	1.2±0.3	1.0±0.4	1.1±0.3	1.4±0.2	1.2±0.3	3.2±0.8	~0.8

Gosan*: ion concentrations measured at Gosan in April, 1998 (Kim et al., 1999)

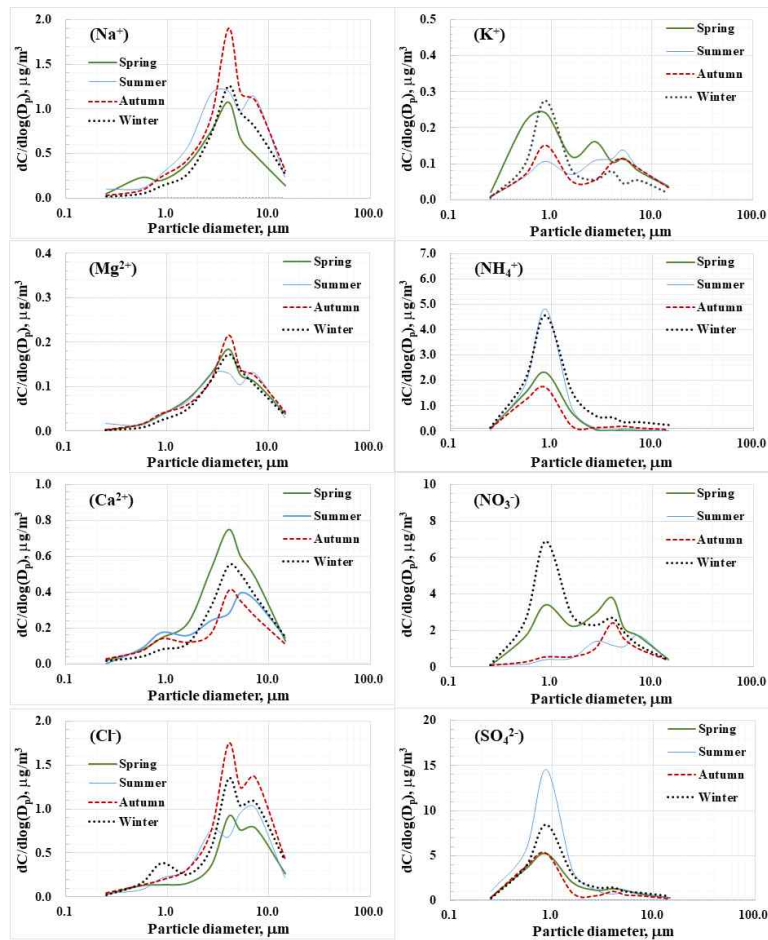


Fig. 4. Size distribution of each ionic species contained in roadside aerosols.

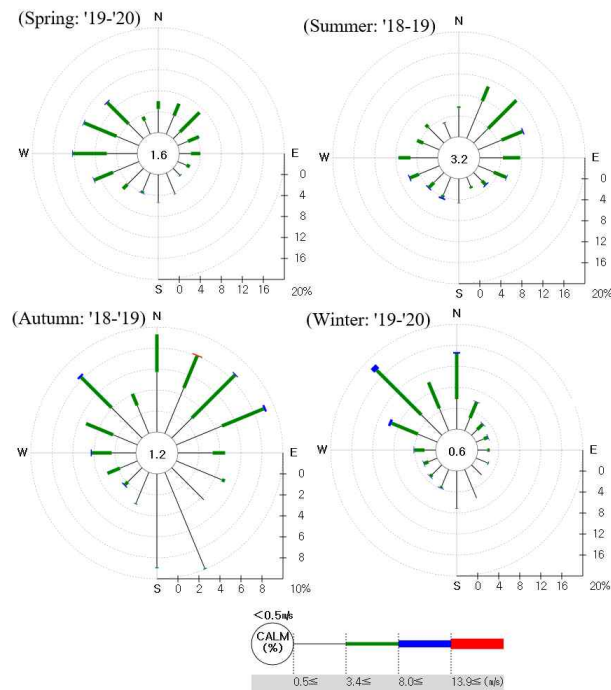


Fig. 5. Wind data measured at Jeju City.

분포에서 가을철의 극값이 가장 크게 나타났고 이런 경향은 Na^+ 와 Cl^- 에서 더욱 분명하게 나타났다. 이는 측정 지점에서 가까운 북측 인근에 폭넓게 위치한 바다의 영향이 지속적으로 나타난 것으로 판단된다. 즉, 본 조사 기간 중 가을철(2018년과 2019년의 10월)에 북풍 계열의 바람이 상시적으로 불고 있음을 볼 수 있었다(Fig. 5). 그리고 다른 계절에 비해 가을에는 에어로졸의 농도가 극히 낮아 상대적으로 해양의 영향이 크게 나타난 것으로 보인다. K^+ 는 미세입자 및 조대입자 영역에서 극값을 지니는 양극 분포를 나타내는데, 봄철, 가을철 그리고 겨울철에는 미세입자 영역에서 상대적으로 큰 극값이 나타났으나 여름철에는 조대입자 영역에서의 극값이 미세입자 영역에 비해 약간 크게 나타났다. NH_4^+ 와 SO_4^{2-} 의 입경별 분포곡선은 비슷한 형태를 보이는데, $0.9 \mu\text{m}$ 를 중심으로 한 미세입자 영역에서 큰 극값을 지니는 단극 분포를 나타냈다. NH_4^+ 는 여름철과 겨울철에 비슷한 크기의 큰 극값을 보였고 SO_4^{2-} 는 여름철에 특히 큰 극값을 나타냈다. NO_3^- 의 분포곡선은 다른 이온과는 다르게 나타나는

데, 겨울철에는 미세입자 영역에서 아주 큰 극값을 보이고 조대입자 영역에서는 작은 극값을 지니는 양극 분포를 보이지만 여름철과 가을철에는 극값이 미세입자 영역에는 나타나지 않고 조대입자 영역에서만 나타나며, 봄철에는 미세입자 영역에서도 조대입자 영역에 못지않게 큰 극값을 지니는 양극 분포를 보였다. 미세입자 영역의 NO_3^- 는 주로 NH_3 와 HNO_3 와의 반응에 기인하는데, 특히 기온이 낮으면 기체상에서 입자상으로 분배되는데 우호적인 조건이 되며(Calvo et al., 2013; Jiang et al., 2019), 기온이 높으면 NO_3^- 입자의 해리(dissociation)가 일어나게 된다(Tai et al., 2010; Jiang et al., 2019). 일반적으로 NO_3^- 는 해양 조건에서는 조대입자 영역에 존재하게 되지만(Gao et al., 1996), 인위적 기원에 의한 영향이 클 때는 미세입자 영역에서도 존재할 수 있는데, 이런 경우 미세입자 영역에서의 NO_3^- 는 인위적 영향에 의한 NH_3 로 인한 생성으로 설명될 수 있다(Gao et al., 1996; Kim et al., 1999). 대서양의 버뮤다 섬에서의 NO_3^- 는 미세입자 영역에 1/3, 조대입자 영역에 2/3가 분포

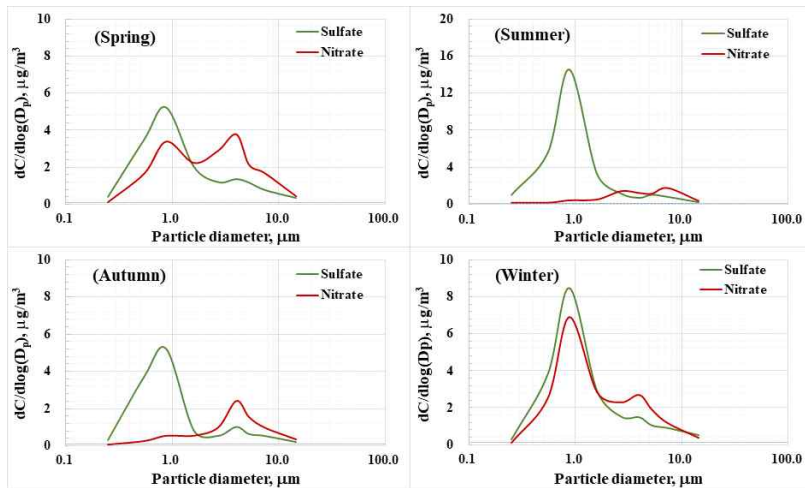


Fig. 6. Size distributions of SO_4^{2-} and NO_3^- contained in roadside aerosols.

한다고 했으나(Wolff et al., 1986), 본 연구에서는 일반적인 해양 청정지역에서의 입경별 농도분포 결과와는 다르게 연평균 50:50 수준을 보였다. 그렇지만 여름철과 가을철에서는 버뮤다에서 보고된 결과와 유사한 결과를 보임을 알 수 있다.

제주시 도로변 에어로졸에 함유된 이온성분들에 대해 산출된 MMAD를 다른 연구 결과와 함께 Table 3에 나타냈다. SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ 의 연평균 MMAD는 각각 1.2 μm , 2.4 μm , 1.0 μm 로 나타났으며, K^+ 는 1.9 μm , 그리고 Na^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^- 는 각각 3.3 μm , 3.3 μm , 3.5 μm , 3.9 μm 로 나타났다. 이 결과를 1998년 4월(봄철)에 제주도 고산리 해안가에서 측정된 에어로졸 성분의 입경분포와 비교하면(Kim et al., 1999), Na^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^- , NO_3^- 는 해안가에 비해 다소 작고, NH_4^+ 와 SO_4^{2-} 는 해안가보다는 조금 크게 나타났다.

3.4. NO_3^- 와 SO_4^{2-} , NH_4^+ , Na^+ 사이의 상관관계

Fig. 6에는 네 계절에 측정된 SO_4^{2-} 와 NO_3^- 의 입경분포를 비교하여 나타냈다. SO_4^{2-} 는 모든 계절마다 중앙경 0.9 μm (0.7~1.1 μm)에서 최대의 극값을 가지는 단극 분포를 나타내는데, 이는 aqueous/cloud processing을 따라서 전형적인 droplet mode에 속하는 입자를 생성하기 때문으로 볼 수 있다(Seinfeld and Pandis, 2006; Jiang et al., 2019). SO_4^{2-} 와는 달리, NO_3^- 의 분포는 계절에 따라 입경별 분포 형태에서 차이를 보이는 것을 알 수 있다.

여름철과 가을철에는 조대입자 영역에서만 극값이 나타나는 분포를 보이는데, 이 크기 영역의 NO_3^- 는 주로 soil/dust와 관련이 있다고 알려져 있다. 봄철과 겨울철의 NO_3^- 의 입경별 농도분포는 미세입자 영역(0.7~1.1 μm 범위)에 크나큰 극값이 추가된 명백한 양극 분포를 보인다. 중국의 광저우(Guangzhou)에서도 이러한 입경분포가 관찰한 바 있다(Jiang et al., 2019). 그리고 NO_3^- 의 입경별 분포에서 여름철과 가을철에는 미세입자 영역에서 극값이 나타나지 않는 것은 온도가 높아 입자상 NH_4NO_3 의 해리가 일어나기 때문으로 설명할 수 있다(Tai et al., 2010; Jiang et al., 2019). NO_3^- 와 NH_4^+ 사이의 결정계수(R^2)를 보면(Table 4), 미세입자 영역에서 봄철과 겨울철에 명백하게 큰 것을 볼 수 있다. 따라서 봄철과 겨울철에 미세입자 영역에 속하는 크기의 입자에서는 NO_3^- 가 NH_4^+ 와 공존하고 있을 가능성이 큰 것으로 판단된다. 도심지역에서 자동차 운행에 따른 배출과 관련이 있는 NO_3^- 는 NH_4^+ 뿐 아니라 해염입자와의 상호작용도 가능한데, Table 4에서 입경별로 산출된 NO_3^- 와 NH_4^+ 그리고 NO_3^- 와 Na^+ 사이의 R^2 값을 계절별로 보면 서로 상반되는 경향을 보임을 알 수 있다. 즉, 가을철에는 두 입자 영역 어디에서도 상관성이 거의 나타나지 않지만, 봄철과 겨울철에는 미세입자 영역에서는 $\text{NO}_3^-:\text{NH}_4^+$ 에서 그리고 조대입자 영역에서는 $\text{NO}_3^-:\text{Na}^+$ 에서 큰 상관성이 있는 것으로 나타나고 있다. 또한 여름철에는

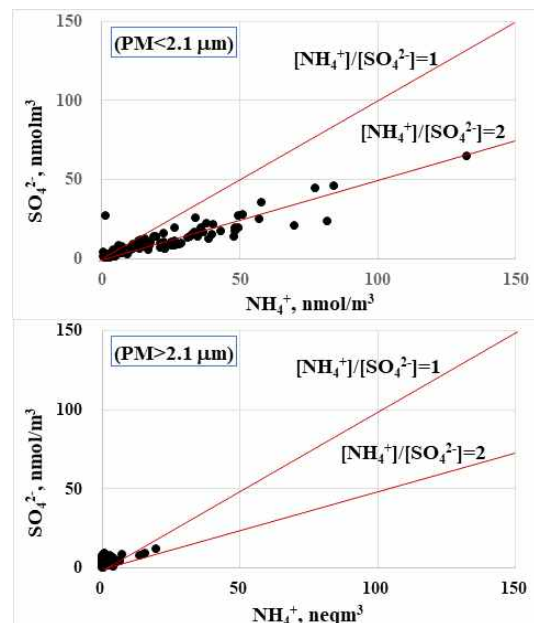
Table 4. Correlation analysis between NO_3^- and other two species in fine mode and coarse mode aerosols

Ion	Size range (μm)	Coefficient of determination (R^2)			
		Spring	Summer	Autumn	Winter
$\text{NO}_3^- : \text{NH}_4^+$	$<2.1 \mu\text{m}$	0.6602	0.0133	0.0857	0.9496
	$2.1-9.0 \mu\text{m}$	0.1150	0.0484	0.1534	0.0554
$\text{NO}_3^- : \text{Na}^+$	$<2.1 \mu\text{m}$	0.0387	0.6595	0.3036	0.1406
	$2.1-9.0 \mu\text{m}$	0.6952	0.4659	0.1216	0.5729

$\text{NO}_3^- : \text{NH}_4^+$ 에서는 상관성이 보이지 않는 데 반해 $\text{NO}_3^- : \text{Na}^+$ 에서 꽤 높은 상관성을 보였다. 이는 NO_3^- 와 Na^+ 모두 여름철의 입경별 농도분포가 아주 유사한 패턴을 지니므로 인해 나타난 결과로 판단된다. 이들 두 성분 사이의 상호작용에 대해서는 원소 성분의 분석 자료 등을 함께 고려하여 면밀한 검토를 할 필요가 있다고 판단된다.

Fig. 7에는 에어로졸에 함유된 NH_4^+ 와 SO_4^{2-} 사이의 상관성을 미세입자와 조대입자 영역으로 구분하여 나타낸 것이다. NH_4^+ 는 주로 인위적 기원에 의해서 생성되어 미세입자 영역에 존재하는 것으로 알려져 있다. 미세입자 영역에 존재하는 NH_4^+ 는 산성 입자의 표면에서 암모니아 가스와의 반응(또는 응축)으로 생성되고(Zhuang et al., 1999), 때로는 암모니아 가스가 산성가스(황산, 질산, 염산 등)와의 비균질 핵화과정에 의해 생성되기도 한다. 이러한 기체들의 반응에서 생성되는 생성물 중에서는 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 가 가장 안정하므로 암모니아는 황산 혹은 황산염과 반응하려는 경향이 크다. 따라서 미세입자 영역에서 NH_4^+ 와 SO_4^{2-} 사이의 상관관계를 살펴보면 에어로졸 내에서 그들의 공존 여부를 쉽게 파악할 수 있다. Fig. 7에서 보면, 미세입자 영역에서는 NH_4^+ 와 SO_4^{2-} 사이에서 이론적인 양론비와 잘 일치하고 있으며, $[\text{NH}_4^+]/[\text{SO}_4^{2-}]$ 의 평균 몰비 (molar ratio)는 2.05 ± 0.96 으로 나타났다. 따라서 이러한 크기 영역에서는 NH_4^+ 와 SO_4^{2-} 가 함께 공존함으로써 절대 농도 간에도 양호한 상관관계를 보이는 것으로 판단된다. $1.1 \mu\text{m}$ 이하의 입자들에 대한 이의 몰비는 1.87 ± 0.70 이었는데, 이는 과거 제주시의 도심지역(지상 12 m)에서 봄철부터 가을철까지 관측한 결과(1.91 ± 0.35)와 상당히 유사하였다(Lee et al., 2003). 홍콩의 해안지역에서 측정된 미세입자 영역에 대한 $[\text{NH}_4^+]/[\text{SO}_4^{2-}]$ 몰비는 약 1.5 수준으로 보고된 바 있다(Zhuang et al., 1999). 제주도 도로변 에어로졸

입자에 함유된 총 NH_4^+ 질량 중에서 $1.1 \mu\text{m}$ 이상의 큰 입자 영역에 포함된 비율은 23.6%(18~32%)로 나타났다. 이런 결과는 과거 제주도 도심지역(지상 12 m)에서 측정된 결과(9~13%)보다는 높은 수준인 것으로 알 수 있다.

**Fig. 7.** Comparison of molar ratio of NH_4^+ to SO_4^{2-} for fine mode and coarse mode aerosols.

3.5. 해양의 영향

Fig. 8에는 해양과 관련이 있는 이온들에 대해 식 (1)로써 계산한 해양농축계수(EF)를 입경별로 나타냈다. 그림에서 보면, Cl^- 와 Mg^{2+} 는 대부분의 입경에서 1보다 작거나 1과 가까운 수준에서의 EF를 보였으며, 이러한 경향은 계절적으로 큰 차이를 보이지는 않았다. 나머지 이온들(K^+ , Ca^{2+} , SO_4^{2-})은 모든 입경에서 1보다 큰 EF를 나타냈는데, K^+ 와 SO_4^{2-} 에 대한 EF 값은 모든 계절에서

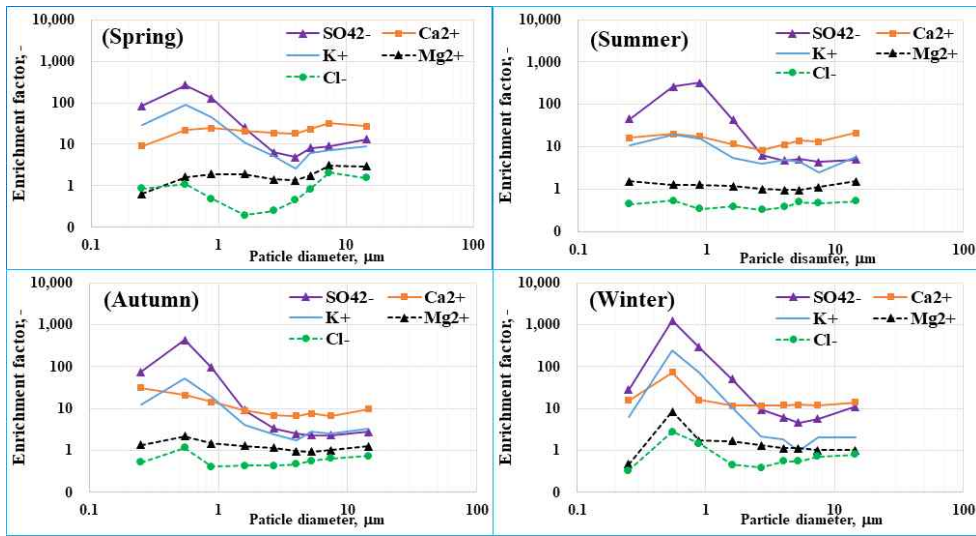


Fig. 8. Size distribution of enrichment factor in roadside aerosols.

0.6 μm 과 0.9 μm 의 입경에서 아주 큰 값을 보인 후 조대입자 영역에서는 EF 값이 10 이하로 가파르게 낮아지는 패턴을 나타냈다. 또한 Ca^{2+} 에 대한 EF는 모든 계절에서 대체로 10 이상의 큰 값을 보이지만 입경별로는 거의 비슷한 수준인 것으로 나타났다. 이들 K^+ , Ca^{2+} , SO_4^{2-} 에 대한 입경별 EF 분포 형태는 계절적으로 뚜렷한 차이점을 보이지는 않으나, 겨울철에 미세입자 영역에서의 EF 값이 증가하는 경향을 보였다. 이는 본 측정 지점이 위치한 제주시 도심지역에서는 도로변 에어로졸에 대해 해양의 영향이 일정한 수준으로 미치고 있으며, 또한 해양이 아닌 다른 원인으로부터 기인된 성분(비해양 성분)들도 에어로졸에 혼입되고 있는데, 해양보다는 육상 기인 오염원의 영향이 크게 나타나는 것으로 판단된다(Hu et al., 2020).

4. 결론

본 연구에서는 제주시 도심지역의 도로변 대기 중 에어로졸을 입경별로 측정하여 도로변 에어로졸 및 그에 함유된 수용성 이온성분들의 질량농도와 입경별 분포 특성을 계절별로 구분하여 비교하였다.

제주시 도심지역 도로변에서 측정된 총 에어로졸 농도는 봄, 여름 겨울은 비슷한 수준이고 가을에는 크게 낮

은 수준을 보였다. 그리고 총 에어로졸의 입경별 구성비율을 보면, 봄과 가을에는 $\text{PM}_{\text{Coarse}}$ 의 비율이 높고, 여름과 겨울에는 PM_{Fine} 의 비율이 증가하였다. 또한 제주시 도로변 에어로졸에서는 입경 4.7 μm 이하인 입자의 비율이 연평균 76.6%(계절별로 70.9~81.1%)로 모든 계절에서 높은 비율을 나타냈다.

제주시 도심지역의 도로변 에어로졸에 함유된 수용성의 이온성분 구성비를 계절별로 보면, 미세입자 영역에서는 SO_4^{2-} 의 비율이 모든 계절에서 아주 높으며, NO_3^- 는 봄과 겨울에는 비율이 높아지고, NH_4^+ 는 모든 계절에서 거의 비슷한 수준을 유지하는 것을 볼 수 있었다. 조대입자 영역에서는 NO_3^- 비율이 모든 계절에서 가장 높게 나타났고, SO_4^{2-} 는 계절별로 비교적 일정한 수준을 보이지만 미세입자 영역에 비하면 모든 계절에서 비율은 크게 낮게 유지됨을 볼 수 있었다.

도로변 에어로졸 입자의 입경별 농도분포는 전체적으로는 미세입자 영역과 조대입자 영역에서 극값을 지니는 양극 분포를 보였으며, 전체 에어로졸 입자의 MMAD는 연평균 1.9 μm 로 나타났으며, 봄(2.1 μm) > 가을(1.9 μm) > 여름(1.8 μm) > 겨울(1.8 μm)의 순이었다.

제주시 도심의 도로변에서는 전체 에어로졸 질량에 대한 총 이온성분이 차지하는 비율이 미세입자 영역에서는 평균 51%, 조대입자 영역에서는 약 32% 수준으로

나타났다. 수용성 이온성분 중에서 Na^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} 및 Cl^- 는 조대입자 영역에서 극값을 지니는 단극 분포를 보였고, SO_4^{2-} 와 NH_4^+ 는 미세입자 영역에서 극값을 지니는 단극 분포를 보였다. NO_3^- 는 여름철과 가을철에는 미세입자 영역에서 극값이 보이지 않으나 봄철과 겨울철에는 오히려 미세입자 영역에서 큰 극값이 나타나는 양극 분포를 보였다. 이들 이온성분들의 MMAD를 보면, SO_4^{2-} 와 NH_4^+ 는 각각 $1.2 \mu\text{m}$ 와 $1.0 \mu\text{m}$ 였고, Na^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^- 는 $3.3\sim 3.9 \mu\text{m}$ 범위로 비슷한 크기를 나타냈으며, NO_3^- 는 $2.4 \mu\text{m}$ 그리고 K^+ 에서는 $1.9 \mu\text{m}$ 로 나타났다.

또한 미세입자 영역에서의 NO_3^- 와 NH_4^+ 사이에서는 봄과 겨울에 큰 상관관계를 보였는데, 이로써 봄과 겨울에는 미세입자 크기로 생성된 NO_3^- 는 NH_4^+ 와 함께 공존하고 있을 가능성이 크다는 것을 보이고 있다. 또한 미세입자 영역에서는 $[\text{NH}_4^+]/[\text{SO}_4^{2-}]$ 의 평균 몰비가 2.05를 나타냄으로써 NH_4^+ 와 SO_4^{2-} 도 함께 공존하고 있음을 알 수 있었다.

에어로졸의 구성에 대한 해양의 영향을 해양농축계수로써 유추해 보면, 북쪽에 바다가 위치하고 있는 제주도 심지역의 도로변 에어로졸에서는 해양의 영향이 일부 존재하고 있으나 육상 기인 오염원의 영향도 상당히 큰 것으로 보인다.

감사의 글

이 연구는 2020학년도 제주대학교 교원성과지원사업의 지원으로 수행되었습니다.

REFERENCES

- Calvo, A. I., Alves, C., Castro, A., Pont, V., Vicente, A. M., Fraile, R., 2013, Research on aerosol sources and chemical composition: Past, current and emerging issues, *Atmos. Res.*, 120-121, 1-28.
- Cho, B. Y., Shin, S. H., Jung, C. S., Ju, M. H., Yoon, M. H., Ahn, J. E. Bae, G. S., 2019, Characteristics of particle size distribution at the roadside of Daegu. *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, 35, 16-26.
- Duan, J., Li, X., Tan, J., Chai, F., 2009, Size distribution and source apportionment of atmospheric particle number concentration in winter in Beijing, *Res. Environ. Sci.*, 22, 1134-1140.
- Fröhlich, R., Cubison, M. J., Slowik, J. G., Bukowiecki, N., Canonaco, F., Croteau, P. L., Gysel, M., Henne, S., Herrmann, E., Jayne, J. T., Steinbacher, M., Worsnop, D. R., Baltensperger, U., Prévôt, A. S. H., 2015, Fourteen months of on-line measurements of the non-refractory submicron aerosol at the Jungfraujoch (3580 m.a.s.l.) - chemical composition, origins and organic aerosol sources, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 11373-11398.
- Gao, Y., Arimoto, R., Duce, R. A., Chen, L. Q., Zhou, M. Y., Gu, D. Y., 1996, Atmospheric non-sea-salt sulfate, nitrate and methnsulfonate over the China Sea, *J. Geophys. Res.*, 101, 12601-12611.
- Ha, H. J., 2011, Comparative evaluation of the air quality at the center lane and roadside in the exclusive median bus lane, Ph. D. Dissertation, University of Seoul, Seoul, Republic of Korea.
- Han, X., Nacher, L. P., 2006, A Review of traffic-related air pollution exposure assessment studies in the developing world, *Environmental International*, 32, 106-120.
- Hu, C. H., Kim, S. M., Lee, K. H., 2020, Composition of size-segregated atmospheric aerosol collected at an urban roadside environment in Jeju area, *J. Environ. Sci. Int.*, 29, 79-93.
- Hu, H., Lia, T., Chen, X., 2017, The concentration distribution of exposures to particulate air pollution on different road sections, *Transportation Research Procedia*, 25, 3343 - 3353.
- Jiang, F., Liu, F., Lin, Q., Fu, Y., Yang, Y., Peng, L., Lian, X., Z hang, G., Bi, X., Wang, X., Sheng, G., 2019, Characteristics and formation mechanisms of sulfate and nitrate in size-segregated atmospheric particles from Urban Guangzhou, China, *Aerosol Air Qual. Res.*, 19, 1284-1293.
- Karagulian, F., Belis, C. A., Dora, C., F., C., Prüss-Ustün, A. M., Bonjour, S., Adair-Rohani, H., Amann, M., 2015, Contributions to cities' ambient particulate matter (PM): A systematic review of local source contributions at global level, *Atmos. Environ.*, 120, 475-483.
- Kim, Y. P., Bae, G. N., Ji, J. H., Jin, H. C., Moon, K. C., 1999, Aerosol size distribution and composition at Kosan, Cheju island: measurements in April 1998, *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, 15, 677-685.
- Lee, K. H., Yang, H. J., Hu, C. G., 2003, Size distribution of ambient aerosol measured at a coastal site in Jeju island, *J. Environ. Sci. Int.*, 12, 1043-1054.

- MOLIT (Ministry of Land, Instructure and Transport), 2019, 2018 Statistics of urban planning; <http://upis.go.kr/upispweb/statsmgmt/viewListdown.do>.
- Ohsaki, S., Mitani, R., Fujiwara, S., Nakamura, H., Watano, S., 2019, Effect of particle - wall interaction and particle shape on particle deposition behavior in human respiratory system, *Chem. Pharm. Bull.*, 67, 1328-1336.
- Parmar, R. S., Satsangi, G. S., Kumari, M., Lakhani, A., Srivastava, S. S., Prakash, S., 2001, Study of size distribution of atmospheric aerosol at Agra, *Atmos. Environ.*, 35, 693-702.
- Pey, J., Querol, X., Alastuey, A., Rodríguez, S., Putaud, J. P., Van Dingenen, R., 2009, Source apportionment of urban fine and ultra-fine particle number concentration in a Western Mediterranean city, *Atmos. Environ.*, 43, 4407-4415.
- Seinfeld, J. H., Pandis, S. N., 2006, *Atmospheric chemistry and physics: From air pollution to climate change*, 2nd ed., John Wiley & Sons, New Jersey, 368-384.
- Shekunov, B. Y., Chattopadhyay, P., Tong, H. H. Y., Chow, A. H. L., 2007, Particle size analysis in pharmaceuticals: principles, methods and applications, *Pharmaceutical Research*, 24, 203-227.
- Shields, L. G., Suess, D. T., Prather, K. A., 2007, Determination of single particle mass spectral signatures from heavy-duty diesel vehicle emissions for PM_{2.5} source apportionment, *Atmos. Environ.*, 41, 3841-3852.
- Tai, A. P. K., Mickley, L. J., Jacob, D. J., 2010, Correlations between fine particulate matter (PM_{2.5}) and meteorological variables in the United States: Implications for the sensitivity of PM_{2.5} to climate change, *Atmos. Environ.*, 44, 3976-3984.
- UN, 2018, World Urbanization Prospects, <https://esa.un.org/unpd/wup/Download/>.
- Wróbel, A., Rokita, E., Maenhaut, W., 2000, Transport of traffic-related aerosols in urban areas, *Sci. Total Environ.*, 257, 199-211.
- Wolff, G. T., Ruthkosky, M. S., Stroup, D. R., Korsog, P. E., Ferman, M. A., Wendel, G. R., Stedman, D. H., 1986, Measurement of SO_x, NO_x, and aerosol species on Bermuda, *Atmos. Environ.*, 20, 1229-1239.
- Yoo, E. C., Dou, W. G., Cho, J. G., 2009, Study for the control of re-suspended dust from paved road, *The Annual Report of Busan Metropolitan City Institute of Health and Environment*, 19, 177-186.
- Zavala, M., Herndon, S. C., Wood, E. C., Onasch, T. B., Knighton, W. B., Marr, L. C., Kolb, C. E., Molina, L. T., 2009, Evaluation of mobile emissions contributions to Mexico City's emissions inventory using on-road and cross-road emission measurements and ambient data, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6305-6317.
- Zhuang, H., Chan, C. K., Fang, M., Wexler, A. S., 1999, Size distributions of particulate sulfate, nitrate, and ammonium at a coastal site in Hong Kong, *Atmos. Environ.*, 33, 843-853.

-
- Professor. Ki-Ho Lee
Department of Environmental Engineering, Jeju National University
leekiho@jejunu.ac.kr
 - Research official. Su-Mi Kim
Air Environmental Division, Research Institute of Health & Environment, Jeju Special Self-Governing Province
droopy78@naver.com
 - Professor. Chul-Goo Hu
Department of Environmental Engineering, Jeju National University
huchulgo@jejunu.ac.kr