



## 제주-대한해협 해역에서 에어로졸의 화학적 특성과 침적

김석현<sup>1\*</sup> · 이현미<sup>1</sup> · 문덕수<sup>2</sup>

<sup>1</sup>한국해양과학기술원 해양환경·기후연구본부 해양환경연구센터  
(49111) 부산광역시 영도구 해양로 385

<sup>2</sup>한국해양과학기술원 부설 선박해양플랜트연구소 해양에너지연구본부 해수에너지연구센터  
(24747) 고성군 죽왕면 심층수길 124-32

### Chemical Characteristics and Deposition of Aerosols in the Cheju-Korea Straits

Suk Hyun Kim<sup>1\*</sup>, Hyunmi Lee<sup>1</sup>, and Deok-Soo Moon<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Marine Environmental Research Center, Marine Environmental & Climate Research Division,  
Korea Institute of Ocean Science & Technology, Busan 49111, Korea

<sup>2</sup>Seawater Energy Plant Research Center, Marine Renewable Energy Research Division,  
Korea Research Institute of Ships & Ocean Engineering, Gangwon 24747, Korea

**Abstract** : To understand the chemical composition of aerosols in the Cheju-Korea Straits and their contribution to the ocean by deposition, aerosol samples were collected on board R/V Eardo from November 1997 to May 1999. The average concentrations of Al, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, non-sea-salt (nss)-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, and NH<sub>4</sub><sup>+</sup> in aerosols were 2.19, 5.59, 6.16 and 2.08 μg m<sup>-3</sup>, respectively. The Al concentration in the high yellow dust period was about 100 times higher than that in the non-yellow dust period. The concentration ratio of NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> ranged between 0.47 and 1.5, indicating that the aerosols in the Cheju-Korea Straits are under the effects of NO<sub>x</sub> and SO<sub>x</sub> emitted from China, Korea and Japan. The equivalent concentration ratio of [NH<sub>4</sub><sup>+</sup>]/[nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> + NO<sub>3</sub><sup>-</sup>] with the average of 0.58±0.29 indicates that nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> and NO<sub>3</sub><sup>-</sup> are not neutralized by NH<sub>4</sub><sup>+</sup>. A high activity concentration of <sup>210</sup>Pb with 1.13–1.23 mBq m<sup>-3</sup> was observed during the high yellow dust period, indicating that <sup>210</sup>Pb is easily adsorbed in the yellow dust originating from the continent of Asia. The distribution of <sup>7</sup>Be and NH<sub>4</sub><sup>+</sup> concentrations showed a strong negative linear correlation during the low yellow dust period, April 1998. The total mineral dust flux in the Cheju-Korea Straits was estimated to be 1.21×10<sup>6</sup> tons yr<sup>-1</sup>, accounting for about 12% of the annual sediment discharge via the Nakdong River. The combined annual deposition of NH<sub>4</sub><sup>+</sup> and NO<sub>3</sub><sup>-</sup> was 0.103 mole N m<sup>-2</sup> yr<sup>-1</sup> was estimated to support 4% of the annual primary productivity in the East China Sea.

**Key words** : aerosol, chemical composition, <sup>210</sup>Pb, <sup>7</sup>Be, deposition flux

## 1. 서 론

해양의 대기 에어로졸 입자에서 여러 성분들의 바탕농도 자료는 그 기원 및 전지구적인 물질수지 모델을 정립하는데 필요

하다(Duce et al. 1983; Prospero et al. 1985). 북동 아시아 해역은 지속적인 편서풍과 중국의 큰 사막에서 발생하는 황사로 인하여 세계에서 가장 분진량이 많은 지역중의 하나이다(GESAMP 1989). 이 지역에서 가장 뚜렷한 기상-지질학적 사건은 봄철에 발생하는 황사라고 알려진 먼지태풍이다. NASA의 TOMS 인공위성이 촬영한 1998년 3월 28일과 4월 13일 사이의 에어로졸

\*Corresponding author. E-mail: shkim@kiost.ac.kr

영상에 의하면, 이 황사는 동부태평양 해안까지 도달하는 것으로 밝혀졌다. 중국 전면적의 11.4%는 사막지역이다(Gao 1998). 기록상으로 중국에서 황사는 200년 이상 4월에 가장 빈번하게 발생했다(Gao et al. 1992). 중요한 황사현상은 일본에서 과거 62년 동안 일년 중 0-18일 동안 나타났으며 평균적으로 5.3일 동안 관측되었다(Uematsu et al. 1983).

산업화 및 도시화는 많은 화석 연료의 사용을 요구하였으며, 그로 인한 황산화물(SO<sub>x</sub>), 질소산화물(NO<sub>x</sub>) 및 암모니아(NH<sub>3</sub>)를 포함한 물질들의 대기로의 방출을 증가시켜 왔다(Klimont et al. 2001; Smith et al. 2011; Mijling et al. 2013). 1980-2003년 기간 아시아 지역에서는 연료 연소 및 산업 활동으로 인한 황산화물 및 질소산화물의 대기로의 방출량은 각각 119%와 176% 증가하였으며 중국에서는 동기간에 석탄 사용량이 매년 10%씩 증가하여 질소산화물의 방출은 280%의 증가하였다(Ohara et al. 2007). 암모니아의 경우, 전지구적 대기 방출량에서 약 60%가 인위적인 요인에 의한 것으로 추정되고 있다(Asman et al. 1998). 1990년대 중반에는 선박활동에 의한 황산화물의 높은 방출에 관심이 증가하였다(Corbett and Fischbeck 1997). 전지구적 대기 모델을 이용한 국제 해상운송활동에 의한 질소 및 황의 방출에 대한 연구에 의하면 1993년 기준으로 질소산화물과 황산화물의 연간 방출량은 각각 3.08과 4.24 Tg에 해당되며, 이는 전지구적으로 화석 연료 사용으로 인하여 방출되는 양의 각각 14%와 5%를 상회하는 것으로 나타났다(Corbett et al. 1999). 1980년대 후반과 1990년대 중반 아시아 지역의 급속한 경제 성장은 선박활동으로 인한 황산화물의 대기로의 방출을 크게 증가시켜 왔다(Streets et al. 2000). 대기 중의 황산화물과 질소산화물은 전지구적으로 산성화를 유발하는 1차 전구체로서 주목을 받아왔으며(Rodhe 1989), 또한 이들 산화물질은 최근 대기 환경질과 관련하여 사회적으로 주 관심사항으로 주목받고 있는 초미세입자인 PM<sub>2.5</sub>의 중요한 2차 전구체이기도 하다(Seinfeld and Pandis 1998). 황산염(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)과 질산염(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) 에어로졸은 대기 중에서 황산화물과 질소산화물의 산화에 의하여 생성된다. 암모늄(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)의 경우, 대기 중에 가장 풍부한 알카리 성분으로 황산화물과 질소산화물에 의해 생성된 산성 물질의 많은 양을 중화시키는 역할을 한다(Asman et al. 1998).

한편, 질소산화물과 암모니아는 해양생태계에 유입되면, 일

차생산에 이용 가능한 무기 질소 영양염 형태가 된다. 인위적 활동에 의해 대기로 방출되어 해양으로 유입되는 질소산화물과 암모니아를 포함하는 고정 질소(해양 생물에 동화 가능한 산화나 환원된 형태)의 양은 대양 외부 전체 질소 공급의 약 1/3을 차지하는 것으로 알려져 있다(Duce et al. 2008). 인구가 밀집하고 산업화된 아시아 대륙에 인접한 북서태평양 주변해역에서는 1980년대 이후 대기를 통한 질소 성분의 유입이 해수 중의 가용 질소성분의 양을 증가시켰다는 연구가 있다(Kim et al. 2011).

한반도 주변해역은 인접 육상에서의 인위적 활동 증가로 황산화물, 질소산화물 및 암모니아의 대기로의 방출량 증가에 영향을 받고 있으며, 또한 선박 물동량 증가로 인한 이들 물질들의 방출에도 노출되어 있다. 이들 물질들의 해양에서의 분포에 대한 연구는 대부분 육상을 포함하여 해상활동을 통하여 사용되는 연료의 종류 및 사용량 등을 근거로 계산된 대기로의 방출량 또는 인공위성을 활용한 측정치를 대기 모델을 사용하여 계산되어진 결과들이었다(van Aardenne et al. 1999; Streets et al. 2000; Endresen et al. 2003; Lee et al. 2014).

연구해역인 한반도 남쪽 동중국해는 편서풍에 의한 중국으로부터의 황사를 포함한 인위적 활동에 의하여 대기로 방출된 물질들의 수송 통로이며, 또한 밀집된 선박활동으로 방출된 연료 산화물질들의 영향에 노출된 해역이다. 해양-대기 경계면사이의 오염물질을 포함한 기타 물질들의 플럭스에 대한 기초연구는 현장 해양에어로졸의 화학적 조성에 대한 자료의 부족으로 인하여 제한 받았다. 본 연구에서는 제주-대한해협 해상의 해양 경계면으로부터 포집한 에어로졸의 분석결과를 토대로 황산염, 질산염 및 암모늄 이온의 농도 분포 특성, 해양 대기에서 이들 성분들의 기원 규명, 대기분진과 화학적 원소성분의 지역해로 집적량과 플럭스를 추정하는데 주안점을 두었다.

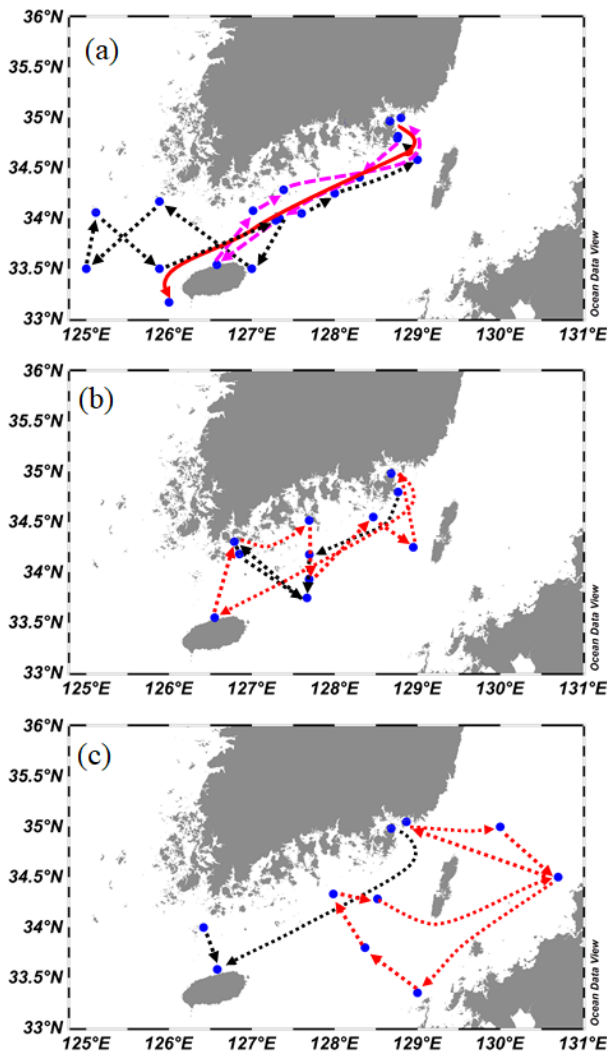
## 2. 재료 및 방법

### 시료채취

1997년 11월부터 1999년 5월까지 동중국해의 북동부에 위치한 제주해협과 대한해협을 포함하는 해역에서 총 7차례에 걸쳐 해양연구선(이어도호)을 이용한 대기분진 시료에 대한 채취가

Table 1. Sampling location, period, track and the number of aerosol samples collected on board in the Cheju-Korea Straits

Sampling yyyy-mm	Cruise Name	Sample (No.)	Sampling period			Sampling track				
			Start		End	Start		End		
			mm-dd	HH.nn		Lat. (N)	Long. (E)	Lat. (N)	Long. (E)	
1997-11	YS9711	2	11-18	11:12	11-19	02:34	34° 58'	128° 40'	33° 10'	126° 00'
1998-04	NH9804	7	04-07	08:00	04-11	21:41	34° 00'	127° 20'	33° 30'	127° 00'
1998-04	YH9804	3	04-16	20:15	04-23	20:00	34° 48'	128° 46'	35° 00'	128° 48'
1998-09	NH9809	6	09-23	12:30	09-28	09:40	34° 48'	128° 46'	34° 59'	128° 41'
1998-11	NH9811	7	11-23	15:30	11-29	17:15	34° 59'	128° 41'	34° 59'	128° 41'
1999-02	NH9902	2	02-22	10:34	02-25	13:23	34° 59'	128° 41'	33° 35'	126° 35'
1999-05	NH9905	8	05-05	16:10	05-13	12:40	35° 03'	128° 52'	35° 03'	128° 52'



**Fig. 1.** Sampling locations of the aerosol in the Cheju-Korea Straits. The lines represent the cruise tracks of research vessel and the marks in lines identify the samples for the aerosol collected between symbols in each line: (a) Red solid line: YS9711; Black dotted line: NH9804; YS8711; Pink dashed line: YH9804, (b) Black dotted line: NH9809; Red dotted line: NH9811, (c) Black dotted line: NH9902; Red dotted line: NH9905

이루어졌다. 연구선의 연료 연소에 의한 영향을 최대한 배제하기 위하여 연구선 상갑판(해상 5-8 m)에 시료 채취기를 설치하였으며, 해양 조사 정점간 이동 중에서만 시료를 채집하였다. 에어로졸 시료는 1997년 11월에 거제도 장목을 출발하여 제주도 북쪽을 통과하는 항해선(YH9711)에서 2회, 1998년 4월 상순의 비황사기에 장목에서 한반도 서남해역을 포함하는 항해선(NH9804)에서 7회, 4월 하순의 황사기에 장목에서 제주 북쪽 해역의 항해선(YH9804)에서 3회, 9월에는 장목과 제주도 사이 해역의 항해선(NH9809)에서 6회, 1998년 11월에 남해안 연안의 항해선(NH

9811)에서 7회, 1999년 2월에 장목과 제주 해협 사이의 항해선(NH9902)에서 2회 그리고 5월에는 남해의 동해해역의 항해선(NH9905)에서 8회씩 각각 채집되었다. 이 기간동안 채취된 시료의 수는 총 35개였다(Table 1, Fig. 1). 사용된 시료채취 장비는 대용량 시료채취기(flow rate;  $1.6 \text{ m}^3 \text{ min}^{-1}$ , Kimoto Inc., Tokyo, Japan)이며, Whatman® 41 ( $20 \times 25 \text{ cm}$ ) 여과지를 사용하여 대기분진을 채집하였다(Kitto and Anderson 1988). 여과지는 육상 실험실의 Class 100 청정 작업대에서 폴리에틸렌 지퍼백에 개별 포장하여 현장에서 시료채취기에 장착하였다. 시료당 여과된 대기의 양은 평균  $1,119 \pm 548 \text{ m}^3$  이었다. 시료채집 후 여과지를 지퍼백에 넣어 육상 실험실에서 분석 전 까지 냉동 보관하였다.

### 분석방법

채집된 여과지는 청정 실험실에서 세라믹 가위를 이용하여 절단하여 양이온, 음이온, 천연방사능 핵종인  $^{210}\text{Pb}$ 과  $^7\text{Be}$  및 주요 원소인 Al과 Na를 포함하는 여러 화학성분에 대하여 분석되었다.  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ 와  $\text{NH}_4^+$  이온들은 여과지의 일부를 염산과 초정제수(Milli-Q)로 사전 세척된 50 mL 플라스틱 원심분리관에서 초정제수 50 mL로 초음파 세척기를 이용하여 30분 그리고 10분간 진탕기에서 진탕하여 추출했다. 추출 후 10분간 3000 rpm으로 원심분리하였다. 원심분리된 추출액은  $0.45 \mu\text{m}$  시린저 여과기로 여과하였다. 이들 양이온과 음이온들은 이온크로마토그래프(Dionex DX-100)에서 양이온은 CS12, 음이온은 AS4A-SC 컬럼을 사용하여 분석하였다. 각 성분들의 농도 분석을 위하여 MERCK사의 GR 급  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{NaNO}_3$ ,  $\text{NH}_4\text{Cl}$  시약을 초정제수에서 용해시켜  $1000 \text{ mg l}^{-1}$  농도의 표준용액을 만들어 희석하여 사용하였다. 분석한계치는 공여과지, 포집효율(Collection Efficiency) 그리고 대기시료의 불확실성들을 기초로 하여 추정하였다. 본 연구에서 분석한계치는 음이온인  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  은  $0.025 \mu\text{g m}^{-3}$  양이온인  $\text{NH}_4^+$  은  $0.050 \mu\text{g m}^{-3}$ 으로 시료들에서의 분석 농도는 모두 분석한계치를 상회하였다. Al과 Na 농도는 여과지의 일부분을 Ultrapure  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{HClO}_4$ 와 Suprapure HF로 테프론 분해 용기에서 산-용해시켰다. 완전히 분해된 시료를 건조시켜 최종 1%  $\text{HNO}_3$ 로 희석하여 유도결합 플라즈마 원자발광 분석기(ICP-AES; Perkin Elmer Optima 3300 DV)로 분석하였다. Al과 Na에 대한 분석 정확도를 확인하기 위하여 표준물질인 NBS 1648 (Urban particulate)로 검정하였으며, 본 연구에서의 회수율은 3차례의 반복 분석에서 각각  $101 \pm 3\%$ 와  $107 \pm 4\%$ 였다.  $^{210}\text{Pb}$ 과  $^7\text{Be}$ 의 방사능농도는 회분된 여과지를 고순도 게르마늄 검출기를 장착한 감마선 스펙트럼 분석기(Canberra MCA 90)를 이용하여 각각 46.5 keV와 477.6 keV 에너지 대에서 측정하였다. IAEA (1987)의 RGU-1 보정용 표준물질을 이용하여 각 핵종들에 대한 기하학적 보정을 실시하였다. 측정 불확도를 낮추기 위하여 충분한 계측 시간동안 계측을 하였으나  $^{210}\text{Pb}$ 과  $^7\text{Be}$ 의 본 연구에서의 모든 시료들에 대한 불확도는 평균 각각 31%와 12%였다.

에어로졸에서 비해염 황산염( $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ) 농도는 다음의 식 (1)과 (2)로부터 구하였다.

$$[\text{Na}]_{\text{marine}} = [\text{Na}]_{\text{aerosol}} - ([\text{Na}]/[\text{Al}])_{\text{crust}} \cdot [\text{Al}]_{\text{aerosol}} \quad (1)$$

$$[nss - SO_4^{2-}] = \frac{[SO_4^{2-}]_{aerosol} - ([SO_4^{2-}]/[Na])_{seawater} \cdot [Na]_{marine}}{[Na]_{aerosol} - ([Na]_{crust}/[Al]_{crust} \cdot [Al]_{aerosol})} \quad (2)$$

식 (1)에서  $[Na]_{marine}$ 는 해양성 Na의 농도로 에어로졸에 있는 Na의 총농도:  $[Na]_{aerosol}$ 과 지각 기원의 Na과 Al의 농도 비:  $[Na]_{crust}/[Al]_{crust}$ , 에어로졸에 있는 Al의 농도:  $[Al]_{aerosol}$ 로부터 계산된다(Zieman et al. 1995). 식 (2)에서 비해염성 황산염의 농도:  $[nss-SO_4^{2-}]$ 는 에어로졸에 있는 황산염의 농도:  $[SO_4^{2-}]_{aerosol}$ 에서 해양성 황산염의 농도를 빼줌으로서 계산된다. Zieman et al. (1995) 등이 지적한대로, 하와이 Mauna Loa섬에서 관측한 황사에서 Na/Al의 비는 Taylor의 지각평균 Na/Al 비와 일치하지 않았다. 그러므로, 해수면 근처에서 채집된 에어로졸에서 Na에 대한 해염의 기여도를 결정할 때는 세심한 주의가 필요하다. Taylor의 Na/Al 비는 지각에서 0.36이었으나, 아시아 황사의 발원지인 중국황토에서는 평균 Na/Al 비는 0.15-0.23, 평균 0.23, 일본에서 측정된 조립질 황사에서는 0.25로 측정되었다(Taylor 1964; Liu 1988; Holmes and Zoller 1996). 본 연구에서는 황사시기 Na/Al 농도 비는 한반도에서 2005년부터 2018년 사이에 관측된 황사에서 분석된 평균인 0.15로 선택했다(Jeong 2020). 그리고, 황사의 영향을 받지 않은 시기에는 이 지역으로 유입되는 대기 광물질은 주변 대륙으로부터 기원하기 때문에 평균 대륙지각의 원소 비인 0.36을 사용했다(Mukai and Suzuki 1996; Hong et al. 1998). 해수에서의  $([SO_4^{2-}]/[Na])_{seawater}$  질량농도 비는 연구 지역의 염분이 계절에 따라 차이가 있지만, 여기서는 일반적으로 사용되는 해수의 대표적인 염분 값인 35 psu에서의  $SO_4^{2-}$ 와  $Na^+$  이온들의 농도 비인 0.252를 사용했다(Holland 1978).

### 3. 결과 및 토의

7차례의 해상 에어로졸 시료 채취와 분석을 통하여 획득한

Al,  $NO_3^-$ ,  $nss-SO_4^{2-}$ ,  $NH_4^+$ ,  $^{210}Pb$ 와  $^7Be$  농도에 대한 시료 채취 기간별 산술적 평균값과 표준편차, 범위는 Table 2에, 그리고 범위, 중앙값 및 사분위들에 대한 그림은 Fig. 2에 제시되어 있다.

#### 에어로졸 성분 분포

총 7차례의 관측 기간에서의 Al의 농도 범위는 0.01-39.7  $\mu g m^{-3}$ 로 평균 2.19  $\mu g m^{-3}$ 였으며, 황사기를 제외한 기간에서의 평균은 0.78  $\mu g m^{-3}$ 였다. 에어로졸 Al의 농도는 황사기인 1998년 4월 하순에 17.3±20.2  $\mu g m^{-3}$ 였다. 1999년 9월에는 0.26±0.26  $\mu g m^{-3}$ 으로 가장 낮은 농도가 관측되었다. 황사기 Al 농도는 4월 16일과 21일에 2회 각각 39.7과 11.6  $\mu g m^{-3}$ 로 황해에서 기준에 관측한 값 중에서 가장 높은 농도를 보였다(Gao et al. 1992). 황사기간에 에어로졸의 Al 농도는 비황사기의 농도들보다 100 배 정도까지 높은 값이다. 1998년 9월과 11월에는 시료 채취가 각각 비교적 짧은 기간에서 이루어졌음에도 불구하고 Al 농도가 수십배의 차이를 보여 시료 채취 기간 중 기상 조건의 변화가 심하였다는 것을 보여준다. 1998년 9월의 관측 기간 동안 제주에서는 동풍과 동남풍이 우세하였으며 거제도에서는 남풍과 북서풍의 바람이 우세하였다. 그리고, 1998년 11월의 관측 기간에는 제주도와 거제에서 북풍이 우세하였으나 중간에 동풍이 분적이 있었다. 그리고, 관측 기간 중간에 각각 5.8와 8.5 mm의 강우가 있었다(KMA 2022).

$NO_3^-$ 의 7차례의 관측 기간 중 평균농도 및 범위는 5.59, 1.13-10.7  $\mu g m^{-3}$ 였다. 1998년 4월 하순의 황사기간 동안에 8.65±1.36  $\mu g m^{-3}$ 로 가장 높았으며 1997년 11월에 1.32±0.28  $\mu g m^{-3}$ 로 가장 낮았다. 7차례의 관측 기간 중 각 관측 기간에서의 평균은 황사기를 제외하면 1.32-6.26  $\mu g m^{-3}$ 였다. 황사기와 1997년 7월의 낮은 농도 분포 기간을 제외하고는 평균적으로 5.10-6.26  $\mu g m^{-3}$ 으로 큰 변동이 없는 농도를 보였다. 황사기에 에어로졸  $NO_3^-$  함량은 중국연안인 청도에서 관측된 1992년 3-6월에 관측된 7.7  $\mu g m^{-3}$ 과 유사하였다(Gao et al. 1996)(Table 3).

**Table 2. Average concentrations and ranges of Al,  $NO_3^-$ ,  $nss-SO_4^{2-}$ ,  $NH_4^+$ ,  $^{210}Pb$  and  $^7Be$  in the aerosols of the Cheju-Korea Straits during the cruises from November 1997 to May 1999**

	YH9711	NH9804 <sup>1)</sup>	YH9804 <sup>2)</sup>	NH9809	NH9811	NH9902	NH9905
	Average±Standard deviation (Range)						
Al ( $\mu g m^{-3}$ )	0.75±0.53 (0.37-1.13)	0.47±0.46 (0.13-1.49)	17.3±20.2 (0.51-39.7)	0.26±0.26 (0.01-0.65)	0.98±1.07 (0.075-2.86)	2.21±1.05 (1.46-2.95)	0.91±0.57 (0.42-1.94)
$NO_3^-$ ( $\mu g m^{-3}$ )	1.32±0.28 (1.13-1.52)	5.83±3.10 (1.82-10.70)	8.65±1.36 (3.83-10.0)	5.10±2.60 (1.73-9.09)	6.26±1.63 (4.54-9.12)	5.97±0.29 (5.76-6.17)	5.60±1.77 (3.38-8.80)
$nss-SO_4^{2-}$ ( $\mu g m^{-3}$ )	2.81±0.21 (2.66-2.95)	7.41±2.53 (4.83-12.4)	14.1±4.9 (9.16-19.0)	3.91±2.68 (1.02-7.61)	5.61±2.46 (3.10-10.0)	7.81±0.78 (7.26-8.37)	7.65±4.28 (1.41-14.5)
$NH_4^+$ ( $\mu g m^{-3}$ )	1.53±0.39 (1.25-1.80)	1.42±1.54 (0.17-4.50)	3.18±1.07 (1.95-3.80)	2.31±1.35 (1.39-4.88)	2.31±0.41 (1.79-2.86)	3.13±0.98 (2.43-3.82)	2.15±0.85 (1.11-3.55)
$^{210}Pb$ (mBq $m^{-3}$ )	0.10±0.05 (0.07-0.13)	0.13±0.18 (0.02-0.53)	0.86±0.57 (0.20-1.23)	0.40±0.34 (0.16-1.01)	0.58±0.18 (0.39-0.88)	0.54±0.02 (0.53-0.55)	0.23±0.08 (0.12-0.36)
$^7Be$ (mBq $m^{-3}$ )	1.58±0.82 (1.00-2.17)	6.61±2.17 (2.67-9.08)	5.39±2.10 (3.17-7.33)	5.26±2.94 (1.85-9.87)	11.5 <sup>3)</sup> -	4.67±2.67 (2.78-6.56)	3.73±0.61 (2.76-4.75)

<sup>1)</sup>Low dust period; <sup>2)</sup>High yellow dust period; <sup>3)</sup>Value successfully determined in only one sample

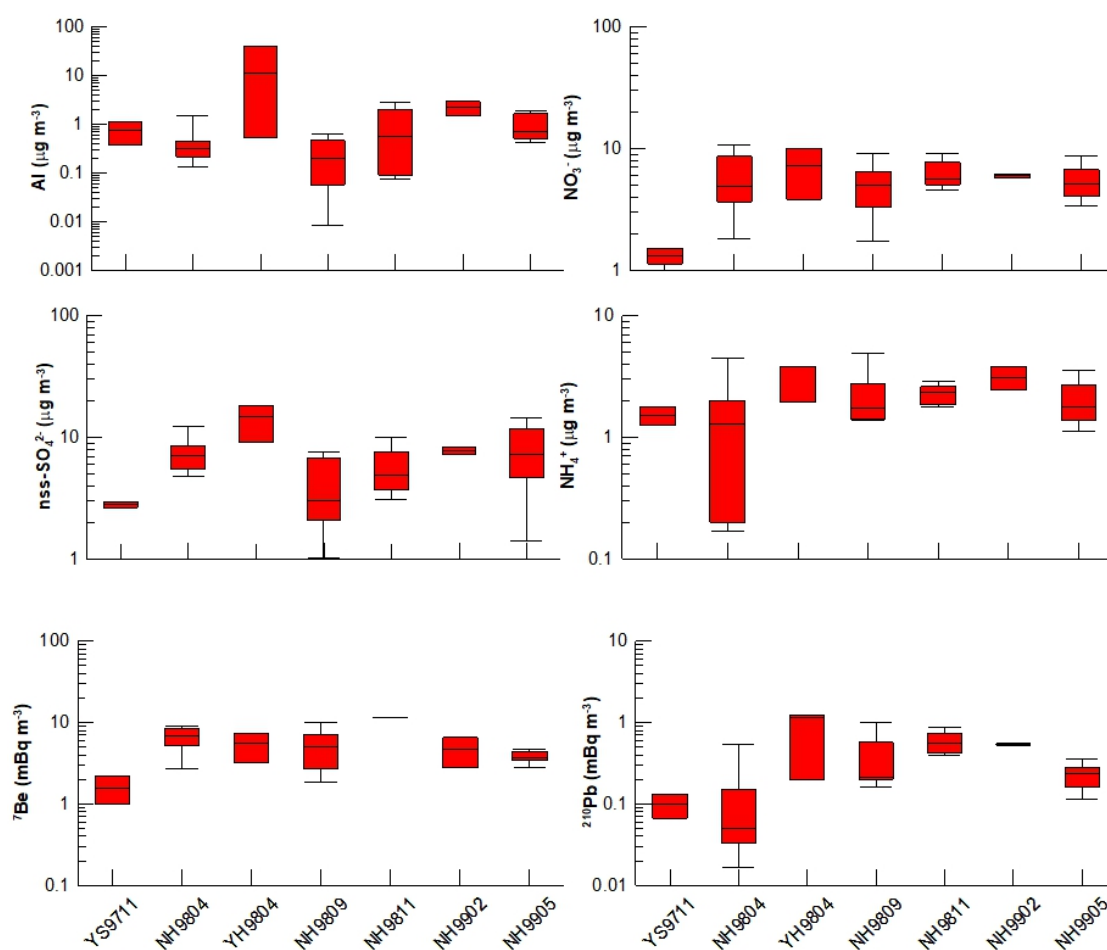


Fig. 2. Box-and-whisker plots of Al,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  concentrations in the aerosols of the Cheju-Korea Straits during the seven cruises from November 1997 to May 1999

Table 3. Average concentrations of  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$  and  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  in the aerosols of several regions

Region	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{nss-SO}_4^{2-}$	Period of observation
	$(\mu\text{g m}^{-3})$			
East China Sea <sup>1)</sup>	1.9	-	4	Mar.-June 1992
East China Sea <sup>2)</sup>	1.8	2.3	8.7	Sep.-Oct. 2002
Qungdao, China <sup>1)</sup>	7.7		12	Mar.-June 1992
Cheju Island, Korea <sup>3)</sup>	1.2	1.4	6.9	Feb. 1992-May 1993
Cheju Island, Korea <sup>4)</sup>	1.78	0.89	10.86	July-Aug. 1994
Cheju Island, Korea <sup>5)</sup>	1.58	1.5	6.74	1992-2002
Fukuoka, Japan <sup>6)</sup>	6	4.6	6.4	1997
Goto Island, Japan <sup>6)</sup>	1.6	1.3	4.2	1997
Donghae, Korea <sup>7)</sup>	4.1	1.8	3.7	Mar. 2002-Feb. 2003
Central North Pacific <sup>8)</sup>	0.75		1.7	1991
Cheju-Korea Straits <sup>9)</sup>	5.59	2.08	6.16	Nov. 1997-May 1999

<sup>1)</sup>Gao et al. (1996); <sup>2)</sup>Nakamura et al. (2005); <sup>3)</sup>Carmichael et al. (1996); <sup>4)</sup>Kim et al. (1998); <sup>5)</sup>Park et al. (2004); <sup>6)</sup>Shimohara et al. (2001); <sup>7)</sup>Kang et al. (2010); <sup>8)</sup>Uematsu (1995); <sup>9)</sup>This study

nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>의 농도는 전체 관측 기간에 1.02-19.01, 평균 6.16 μg m<sup>-3</sup>였다. 황사 기간인 1998년 4월 하순에 14.1±4.9 μg m<sup>-3</sup>로 가장 높았다. 가장 낮은 농도를 보인 1997년 11월에는 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>의 농도 또한 가장 낮았으며, 이 시기에 대기의 상층부로부터 운반되어 오는 <sup>7</sup>Be 농도 또한 1.58±0.82 mBq m<sup>-3</sup>로 가장 낮아 근거리에서 운송된 에어로졸의 영향에 의한 것으로 보인다. 이 시기에 제주도과 거제에서 관측된 풍향은 북서풍이 우세하였다. 황사 기간의 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 평균 농도는 중국 청도에서 1992년 3-6월에 관측된 12 μg m<sup>-3</sup>보다 다소 높은 값이었다. 본 연구지역에서의 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 농도는 동중국해보다 비슷하거나 다소 높은 값이며, 북태평양에 비하여 약 2-8 배 높은 값이었다(Uematsu 1995; Gao et al. 1996; Nakamura et al. 2005). 그리고, 제주 고산에서 1992-2002년의 10년간의 기간에 관측된 6.74 μg m<sup>-3</sup>과 비슷하였다(Park et al. 2004).

에어로졸에서 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>의 농도는 전체 관측 기간에 0.17-4.88, 평균 2.08 μg m<sup>-3</sup>였다. 이는 2002년 동중국해에서 관측된 2.3 μg m<sup>-3</sup>와 비슷하였으며, 1992-2002년 기간에 제주 고산에서 관측된 평균 농도 1.5 μg m<sup>-3</sup>에 비하여 약간 높은 값이었다(Park et al. 2004; Nakamura et al. 2005). 관측된 기간별 평균농도는 황사기간인 1998년 4월 하순에 3.18±1.07 μg m<sup>-3</sup>로 가장 높았으며, 1998년 4월 상순의 비황사기에 1.42±1.54 μg m<sup>-3</sup>로 가장 낮았다. 나머지 기간에도 평균적으로 2.15-3.18 μg m<sup>-3</sup>로 전체 관측 기간에 큰 변동은 없었다(Fig. 2). 1998년 4월 상순의 비황사기에는 동풍 계열의 바람이 우세하였으며 관측 전반기에 제주도와 거제도에서 각각 0.1-12.5, 0.5-5 mm의 강우가 있었다(KMA 2022).

<sup>7</sup>Be은 53.3일의 반감기를 가진 방사성핵종으로 우주선과 대기 핵의 상호작용으로 대기의 상층부에서 생성된다. <sup>7</sup>Be은 대기에서 에어로졸 입자에 빠르게 부착되기 때문에 에어로졸 거동 및 대기 상층부를 통하여 유입되는 물질들을 확인하기 위한 유용한 도구로 사용된다(Uematsu et al. 1994). 연구지역에서 <sup>7</sup>Be 농도는 7차례의 시료 채취 기간 중에서 단 한 차례만 측정이 이루어진 1998년 11월 23-24일 사이에 채취된 에어로졸에서 11.5 mBq m<sup>-3</sup>로 가장 높았다. 시료채취 기간별 평균은 1999년 4월 상순의 비황사기에 6.61±2.17 mBq m<sup>-3</sup>로 가장 높았으며, 1997년 11월에 1.58±0.82 mBq m<sup>-3</sup>로 가장 낮았다. 그 외 기간 들에는 평균적으로 3.73-5.39 mBq m<sup>-3</sup>으로 큰 변동은 없었다. 그러나, 계절별 채취 기간 중에 최소값과 최대값의 차이는 대체로 2-3배이나 1998년 9월에는 1.85-9.87 mBq m<sup>-3</sup>으로 약 5배의 농도 변화를 보였다. 베이징과 청도에서 측정된 에어로졸에서의 <sup>7</sup>Be 농도는 대류권과 성층권 사이의 강한 대기 교환으로 봄철에 증가하였고, 남동풍이 우세한 여름에는 강우량 및 저위도로부터 유입되는 기단의 영향으로 감소하는 것으로 나타났다(Tan et al. 2013; Yang et al. 2013).

<sup>210</sup>Pb은 지구 상부 지각에서 탈출한 반감기가 5.5일인 <sup>222</sup>Rn의 붕괴로 생성된다. <sup>222</sup>Rn은 불활성 기체로 화학적 제거가 이루어지지 않으나 붕괴 생성물인 <sup>210</sup>Pb은 대기 중의 에어로졸에 의하여 제거가 이루어진다(Baskaran 2011). 대기중의 <sup>210</sup>Pb은 육상으로부터 기원하기 때문에 대륙으로부터의 바람의 영향과 대륙으로부터의 거리에 영향을 받는다. 일본 연안 지역에서 측정된 <sup>210</sup>Pb의 월 낙하량은 아시아 대륙으로부터의 편서풍 영향으로 겨울에 높았다(Tsunogai et al. 1985). 연구지역에서 <sup>210</sup>Pb 농도는 황사기

인 1998년 4월에 0.86±0.57 mBq m<sup>-3</sup>으로 가장 높았으며, 1997년 11월에 0.10±0.05 mBq m<sup>-3</sup>으로 가장 낮았다. 또한 1998년 4월 상순의 비황사기에도 0.13±0.18 mBq m<sup>-3</sup>으로 그 외 시료 채취 기간들에 비하여 약 1/2-1/4 수준이었다. 본 연구지역에서의 전체 평균인 0.37±0.32 mBq m<sup>-3</sup>는 일본 하코다테에서 1990년에 측정된 에어로졸에서의 <sup>210</sup>Pb 농도의 평균인 0.2 mBq m<sup>-3</sup>으로 비하여 약 2배 정도 높았다(Tokieda et al. 1996). 그리고, 중국 청도에서 2015년 4월에서 2016년 3월까지 측정된 0.70±0.50 (0.06-1.61) mBq m<sup>-3</sup>의 약 절반에 해당된다(Shi et al. 2017).

### 에어로졸 화학적 특성

에어로졸의 육상기원 추적자로서 사용된 Al과 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>의 관계를 살펴보았다. 시료 채취 기간별 평균 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/Al 비는 전체 시료 채취 기간에 0.25-407, 평균 29±71로 매우 큰 변동폭을 보였다. 기간별로는 1997년 11월에 평균 2.2, 비황사기 1998년 4월에 17.3 그리고 황사기 1998년 4월에 1.4로 관측되었다(Fig. 3). 황사시기에 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/Al의 비가 최저값을 보이는 것은 중국의 광물분진과 NO<sub>x</sub>에 대한 공급지역이 상이하다는 것을 나타낸다. 주로 도시지역으로부터 공급되는 NO<sub>x</sub>와는 다르게, 황사는 중국 서부와 북서부의 광대한 모래사막과 북동쪽에 위치한 고비사막과 같은 지역으로부터 유입되는 대기분진이다(Gao et al. 1992). 중국 대기분진의 주요 공급원인 Shannzi와 Xinjiang 지역은 중국의 NO<sub>x</sub> 방출량의 1.4%와 2.7 % 만을 차지한다(Akimoto and Narita 1994). 따라서 NO<sub>x</sub>의 방출강도를 근거로 하여, 아시아 광물질 대기분진의 주 공급지역에서 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/Al 비는 낮을 것으로 기대된다. 1998년 4월 하순의 황사기에 Al의 농도와 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 농도는 로그 스케일에서 Al의 농도가 높을수록 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>가 증가하는 경향을 보였다. 그 외 에어로졸에서 Al의 농도가 황사기에 비하여 낮은 기간들에서는 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 농도와는 뚜렷한 상관관계를 보이지 않았다. 비황사기 1998년 4월 상순에 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/Al 비가 높게 관측된 것은 한반도 북부에 기원한 기단으로부터 NO<sub>x</sub>가 공급되었기 때문으로 사료된다.

에어로졸 광물입자는 대기중 SO<sub>2</sub>를 흡착할 뿐만 아니라, 대기 분진 입자와 반응하여 산성우를 중화시키는 작용도 한다(Arimoto et al. 1996). 연구지역 에어로졸에서 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>/Al 비는 1997년 11월에 평균 3.8, 비황사기 1998년 4월 상순에 24.5이 관측되었으며, 황사기인 1998년 4월 하순에 두 차례 높은 Al 농도를 보인 시기에 0.5-1.2였다. 그 외 나머지 기간에는 0.7-259까지 매우 넓은 변동을 보였다. 동계인 1999년 2월에 평균 3.9로 비교적 낮았으나, 연구지역에서 시료 채취 기간의 평균은 24.7로 측정되었다. 본 연구에서 관측된 Al과 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>는 일차 상관관계수가 R = 0.61로 측정된 각 성분 사이에서 가장 높은 상관관계를 보였다(Table 4). nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 농도가 1 μg m<sup>-3</sup> 보다 적은 2개의 시료를 제외한 시료들에서는 로그 범위에서 상관관계수가 R = 0.7로 농도 사이에 ln(nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>) = 0.25 × ln(Al) + 1.98의 관계식을 보였다(Fig. 3). 에어로졸에서 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>/Al 비는 1992년 3-6월에 중국 청도에서 4.0, 동중국해에서 2.1로 관측된 바 있다(Gao et al. 1996).

Al 농도와 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 농도 관계는 매우 산포되어 있어 연구지역에서 에어로졸의 Al과 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>의 기원이 서로 상이할 수 있다는 것을 보여 주었다(Fig. 3).

에어로졸  $\text{NH}_4^+/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 의 농도 비는 전체 관측 기간에 평균 0.3이었으며, 1998년 4월 하순의 황사기에는 0.2로 관측되었다. 1998년 4월 상순의 비황사기에  $\text{NH}_4^+/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 의 농도 비가 0.2보다도 매우 낮은 값을 나타내었다(Fig. 4). 대체적으로 4월과 5월 사이에는 0.2-0.3의 낮은 값이 나타난 반면에 9월 11일 사이에는 0.5-0.7로 다소 높은 값들이 관측되었다. 연구 지역에서의

4월과 5월의 봄철에는 1992-1993년 Carmichael et al. (1996) 등이 제주도에서 관측한 평균 0.2 과 비슷하였다. 1997년 일본 후쿠오카 및 큐슈 서쪽 동중국해 인접 고토 섬에서는 각각 0.72와 0.31 이었으며, 이는 후쿠오카 주변의 많은 종류의 질소산화물, 황산화물 및 암모니아의 배출원에 기인한 것이다(Shimohara et al. 2001). 본 연구에서의  $\text{NH}_4^+/\text{SO}_4^{2-}$ 의 농도 비는 대체로 제주도

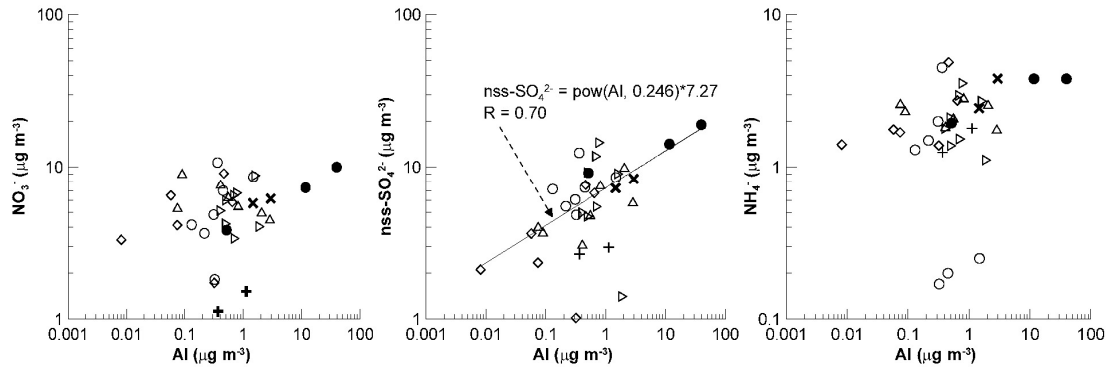


Fig. 3. Relationships between Al and  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$  concentrations in the aerosols of the Cheju-Korea Straits. Symbols represent +: YH9711; ○: NH9804; ●: YH9804; ◇: NH9809; △: NH9811; ×: NH9902; ▷: NH9905, respectively. In the figure of the relationship between Al and  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ , the line represents the relationship during the entire observation period

Table 4. Linear correlation coefficients between component concentrations of aerosols

	Al	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{nss-SO}_4^{2-}$	$^{210}\text{Pb}$	$^7\text{Be}$
Al	1	0.35	0.33	0.61	0.54	0.20
$\text{NO}_3^-$		1	0.57	0.58	0.46	0.11
$\text{NH}_4^+$			1	0.60	0.64	0.27
$\text{nss-SO}_4^{2-}$				1	0.41	0.08
$^{210}\text{Pb}$					1	0.09
$^7\text{Be}$						1

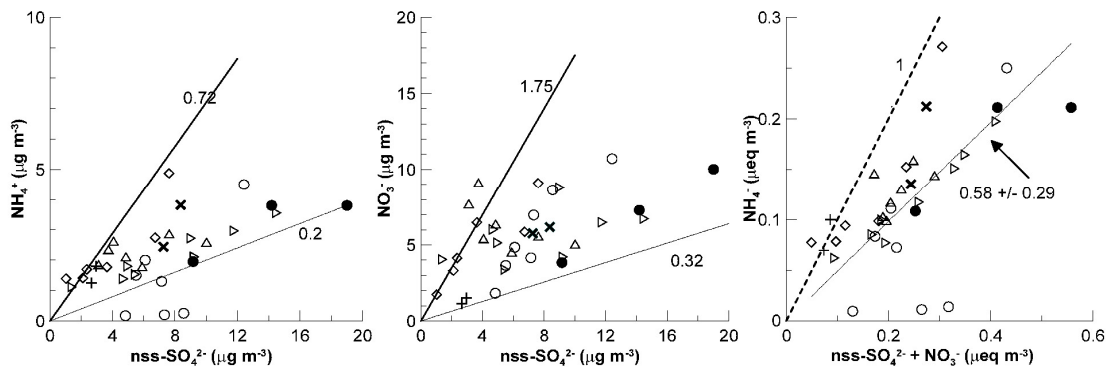


Fig. 4. Relationships between  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  and  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$  concentrations and between  $[\text{nss-SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-]$  and  $\text{NH}_4^+$ , equilibrium concentrations in the aerosols of the Cheju-Korea Straits. The displayed numbers in the figures represent the slopes of lines. The slopes are explained in the results and discussion. Symbols represent +: YH9711; ○: NH9804; ●: YH9804; ◇: NH9809; △: NH9811; ×: NH9902; ▷: NH9905, respectively

에서 관측된 0.2와 일본 후쿠오카에서 관측된 0.72의 범위 내에 분포하였다.

대기중 질산염의 공급원은 황산염 보다는 상당히 다양하지만,  $\text{NO}_x$ 의 가장 큰 공급원은 화석연료의 연소이며(Logan 1983; Arimoto et al. 1996) 매년 아시아 지역에서 지속적으로 증가 할 것으로 기대된다(Galloway et al. 1994). 또한 다른  $\text{NO}_x$ 의 공급원은 생물연소, 토양미생물의 활동과 번개작용으로부터 대기로 공급 될 수 있으며, 성층권과 대류권의 교환도 중요한  $\text{NO}$ 의 공급원이 된다.  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 와  $\text{NO}_3^-$  산포도에서 이들 두 성분들 사이에는 양의 일차 상관관계를 보이는데, 이는 이들 성분들의 공급원과 제거원이 비슷하다는 것을 의미한다( $n = 35$ ,  $R = 0.58$ ; Fig. 4). 특히, 1998년 4월에는 비황사기와 황사기에 각각 일차 상관 계수  $R$ 이 각각 0.93과 0.99로 매우 높았으며, 1998년 5월에도 0.89로 높았다(Fig. 4).  $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 의 농도 비는 전체 시료 채취기간에 0.47-1.5로 1997년 11월과 황사기인 1998년 4월의 0.47-0.49는 Arimoto et al. (1996) 등이 제주에서 측정된 값 0.55-0.59과 유사했다. 계절에 따라  $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 의 농도 비가 다른 것은 시간에 따라 기원이 다른 기단이 존재함을 의미한다. 중국은 북동 태평양연해의 인류기원 황과 질소의 중요 공급원이다. 아시아 국가들의  $\text{SO}_2$ 와  $\text{NO}_x$ 의 방출량으로부터 정량적으로 환산된  $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 의 농도 비는 중국에서 0.32, 일본에서 1.75(Arimoto et al. 1996) 그리고 한국에서 0.59(1990)-0.77(1994) 범위에서 실질적으로 변화한다. 한국의  $\text{SO}_x$ 의 방출량은 2000년까지 급격하게 감소하였으며 이후 일정한 수준을 유지하고 있으며,  $\text{NO}_x$ 의 방출량은 2000년대 초반까지 증가하다가 이후 감소하는 경향을 보였다(Kim and Lee 2018). 그러므로 비황사 기간인 1998년 4월과 11월의 기단은 연구해역의 북쪽에 위치한 한반도에서 기원한 반면, 여름철인 9월의 기단은 연구해역의 남쪽에서 기원된 것으로 유추된다. 한편, 황사기인 1998년 4월의 기단은 중국으로부터 기원한 것으로 추정된다. 에어로졸  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 와  $\text{NO}_3^-$ 의 농도는 강우의 산-염기 화학과 깊이 관련되어 있다(Sequeira 1982). 강한 산성우에 노출된 에어로졸은 독성 금속과 해양생태계에 이용될 수 있는 미량 영양금속과 같은 미량 금속들을 용해시킨다. 상기에서 기술한 바와 같이,  $\text{nss-SO}_4^{2-}$

과  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ 의 농도비는 연구해역에서 이들 화학성분의 기원이 시기에 따라 일본, 중국 및 한국의 영향을 받는 것을 지시한다.

본 연구에서  $\text{NH}_4^+$ 와  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 와  $\text{NO}_3^-$ 를 합산한 농도와와의 상관관계는 매우 높았으며( $R = 0.81$ ),  $\text{NH}_4^+ / [\text{nss-SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-]$  당량비(equivalent concentration)는 평균  $0.58 \pm 0.29$ 로  $\text{NH}_4^+$ 이온에 의해  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 와  $\text{NO}_3^-$ 이 충분히 중화되지 않는 것으로 나타났다(Fig. 4). 그러나, 암모니아 가스에 의한  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ,  $\text{NH}_4\text{HSO}_4$ 와  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 의 조립질 에어로졸의 전환이 어느 정도 이루어질 수 있음을 나타내었다(Ottley and Harrison 1992).

### $^{210}\text{Pb}$ , $^7\text{Be}$ 와 에어로졸 화학 성분과의 관계

Tsunogai et al. (1985)은 대기에서 황 화합물의 거동을 구명하는데  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ 과 함께  $\text{SO}_2$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ 을 함께 사용할 것을 제안했다. 대기중 이들 화합물의 거동은 반응성에 따라 대기에서 체류시간과 대기농도에 의해 결정된다.  $\text{SO}_2$ 과  $^{222}\text{Rn}$ 은 대기에서 유사한 체류시간을 가지는 불안전 기체이다.  $\text{SO}_4^{2-}$ 와  $^{210}\text{Pb}$ 은 불안전 기체인  $\text{SO}_2$ 과  $^{222}\text{Rn}$ 에서 생성되며, 생성된 후 바로 에어로졸 입자로 흡착된다. 에어로졸에서  $\text{Al}$ 과  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  농도가 높게 관측된 황사기에  $^{210}\text{Pb}$  농도 또한  $1.13\text{--}1.23 \text{ mBq m}^{-3}$ 으로 높게 관측되어 중국 대륙에서 기원한 황사에  $^{210}\text{Pb}$ 이 쉽게 포집되는 것을 보여주었다(Fig. 5). 이 기간에 높은  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  농도는 중국 대륙에서 기원한 것으로 추정된다. 봄철 에어로졸 특히 황사기간 중 채집된 에어로졸은 가을철의 에어로졸 보다  $^{210}\text{Pb}$  농도가 높았다.  $\text{NH}_4^+$  농도는  $^{210}\text{Pb}$  농도와와의 관계에서 일차 상관 계수가  $R = 0.64$ 로 유의한 관계를 보였다. 이는  $\text{NH}_4^+$  높은 농도는 대륙에서 기원한다는 것을 지시한다(Fig. 5).

$^7\text{Be}$  (반감기 53.3일)은 대기 상부층에서 우주선에 의해 생성된 천연기원 핵종이다.  $^7\text{Be}$ 은 대기에서 에어로졸 입자에 빠르게 흡착되기 때문에 에어로졸의 거동과 상부 대류권과 성층권 하부로부터 성층권으로 운반된 물질들(방사능 낙진, 성층권으로 유입된 화산분출물, 오존과 질소화합물)을 구별하기 위한 유용한 추적자로 사용된다(Uematsu et al. 1994; Graustein and Turekian 1996). 제주해협 및 대한해협에서  $\text{NO}_3^-$ 과  $^7\text{Be}$  농도 사이의 상관관계가 황사기간 중에  $R = 0.99$ 로 높게 나타났다(Fig. 6). 유사한

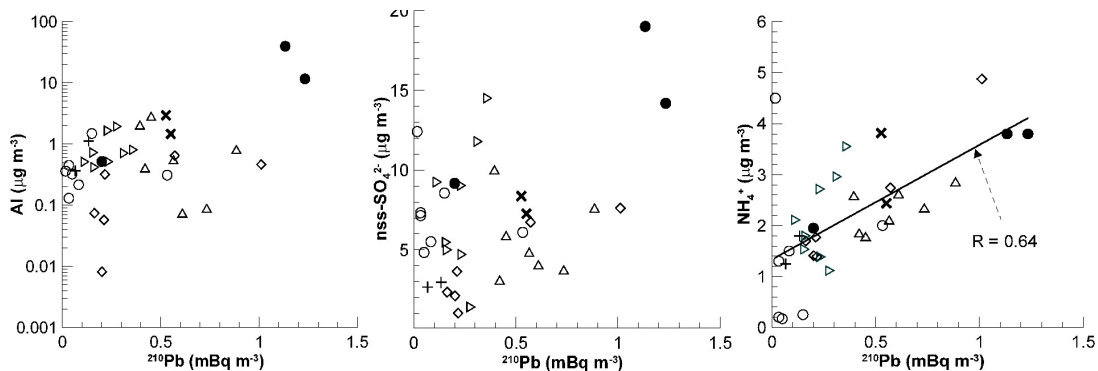
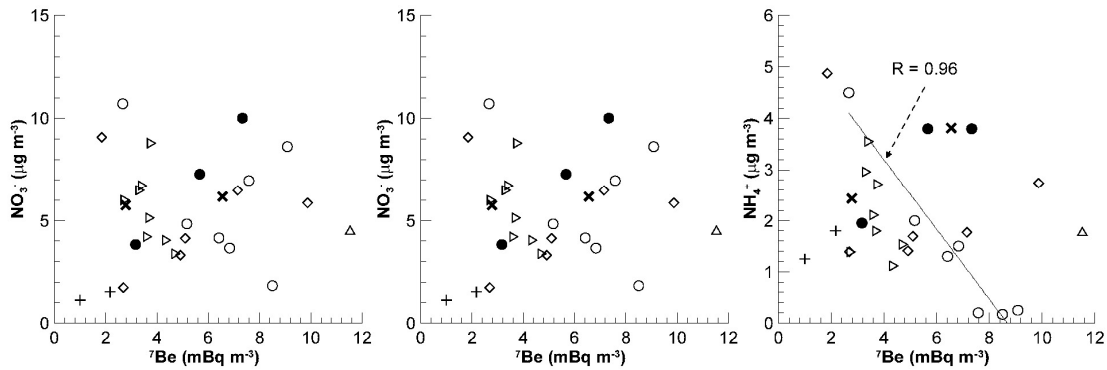


Fig. 5. Relationships between  $^{210}\text{Pb}$  and  $\text{Al}$ ,  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$  concentrations in the aerosols of the Cheju-Korea Straits. The displayed number in the figure represents the linear correlation coefficient between  $^{210}\text{Pb}$  and  $\text{NH}_4^+$  concentration during the entire observation period. Symbols represent +: YH9711; O: NH9804; ●: YH9804; ◇: NH9809; △: NH9811; ×: NH9902; ▷: NH9905, respectively





**Fig. 6. Relationships between  ${}^7\text{Be}$  and  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$  concentrations in the aerosols of the Cheju-Korea Straits. The line in the figure represents the linear correlation linear relationship between  ${}^{210}\text{Pb}$  and  $\text{NH}_4^+$  concentration during the entire observation period. Symbols represent +: YH9711; O: NH9804; ●: YH9804; ◇: NH9809; △: NH9811; ×: NH9902; ▷: NH9905, respectively**

관계가 북태평양 중양에서도 관측되었는데(Uematsu et al. 1994), 이는  $\text{NO}_3^-$ 의 기원이 성층권이라는 의미는 아니다. 그와 같은 높은 상관관계는 남태평양에서는 관측되지 않기 때문에(Uematsu et al. 1994), 북태평양의 에어로졸에서 높은  $\text{NO}_3^-$  농도는 인류기원의 오염으로 추정된다. 이러한 경향은 아시아 대륙으로부터 북태평양 중양해역으로 육지기원 물질의 운반과정을 반영한 것이다(Uematsu et al. 1983). 황사기간에 아시아 대륙 상공의 기단은 전선이나 수렴과정에 의해 높은 고도(400–500 hPa)로 상승한 후, 편서풍에 의해 동쪽으로 이동하여 북태평양 중양부의 고기압권을 통과하면서 점진적으로 하강한다(Merrill et al. 1989). 북동태평양 지역의 비행관측에 의하면(Andreae et al. 1988),  $\text{NO}_3^-$ 과  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 의 농도는 아시아 대륙으로부터 이동한 기단이 주류를 이루는 대류권에서 높게 관측되었다. 이때의  $\text{NO}_3^-$ 의 농도는  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 와는 달리 대류권의 높은 고도에서도 높게 관측되었다. 특히, 아시아 대륙에서 멀리 떨어진 남태평양의 특정 정점에서 일시적으로  $\text{NO}_3^-$ 와  ${}^7\text{Be}$  농도가 높게 관측되는 것은 성층권의 대류권 유입과 깊은 관련이 있을 수 있다. 1998년 4월의 비행사 기간에 그리고, 1998년 9월과 1999년 11월에 일부 에어로졸 시료에서 비교적 낮은  $\text{NO}_3^-$ 와  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  농도를 보였으나 높은  ${}^7\text{Be}$  농도가 관측되었다. 이는 이 시기에 대류권 상층부의 기단의 하강에 의한  ${}^7\text{Be}$ 의 유입에 의한 결과로 추정된다.  ${}^7\text{Be}$ 와  $\text{NH}_4^+$  농도 분포는 1998년 4월 상순의 비행사기에 뚜렷한 음의 일차 상관 관계를 보였다( $R = 0.96$ ). 이는 이 시기에 낮은  $\text{NH}_4^+$  농도는 강우에 의한 씻김 현상과 더불어 비교적 상층부 대기의 하강에 의한 영향으로 유추된다.

### 제주-대한해협 해상의 대기 에어로졸 침적량

해수면에서 대기침적은 강의 유입보다 더 넓은 지역에 영향을 미친다. 제주-대한해협 대기를 통해 운반되는 물질의 유동량은 지속적인 시료채취의 부재로 인하여 정량화되지 못했다. 연구지역으로 광물입자의 대기유입율은 평균 대기분진 농도를 사용해서 추정할 수 있다. 조립광물 입자( $> 10 \mu\text{m}$ )의 대부분은 높은 침적속도로 인하여 중국연안 근처에 퇴적될 것이다. 에어로졸 입자의 건식침적은 대기분진 입자의 농도( $C_{\text{air}}$ )와 건식 침

적속도( $V_d$ )의 곱으로 계산된다(식 3).

$$F_d = C_{\text{air}} \cdot V_d \quad (3)$$

여기서  $F_d$ 은 건식침적에 의한 에어로졸 입자의 유동량( $\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ )이며,  $C_{\text{air}}$ 는 대기에서 어느 물질의 농도( $\text{mg m}^{-3}$ ),  $V_d$ 는 건식침적속도( $\text{cm s}^{-1}$ )를 나타낸다. 건식 침적량에 있어서 입자크기에 관한 자세한 사항은 Gao et al. (1997)의 논문에서 논의되었다. 건식 침적과정은 건식침적 속도에 관련되며 건식침적 속도는 입자크기, 입자밀도, 풍속 그리고 상대습도의 함수이다(McDonald et al. 1982; Arimoto and Duce 1986). 그러므로, 건식 침적속도를 정확하게 추정하는 것은 어렵다. 침적과정을 주의 깊게 고려한 후 GESAMP (1989)은 건식침적 속도에 대한 최적 값은 3가지 요소의 불확실성에 관계된다고 제시했다. 본 연구는 에어로졸의 입자분포에 관한 정보가 없기 때문에 지각 원소( $1-6 \text{ cm s}^{-1}$  범위) 기원인 Al에 대해서는  $2 \text{ cm s}^{-1}$  값을, 그리고  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 와  $\text{NO}_3^-$ ( $0.3-1.0 \text{ cm s}^{-1}$  범위)에 대해서는  $1.0 \text{ cm s}^{-1}$ 의 값을 사용했다. 사용된 Al과 무기 이온들의 건식침적 속도는 GESAMP (1989)가 전세계 해양에서 대기로부터 미량 화학종들의 유입량을 계산하기 위하여 연안역 및 근해역에서 광물질에 적용한 값과 무기 이온들에 대하여 적용하였던 값들이다.

중요 황사는 중국, 한국, 일본에서 봄철에 관찰된다(Uematsu et al. 1983; Liu 1988; Chung 1992). 일본 남부의 나가사키에서 관측한 것을 근거로 지난 60년 동안 관측된 황사 중 85%는 3월과 6월 사이에 발생했다. 황사의 발생빈도와 강도는 기상 조건에 크게 좌우되며, 중국의 기상관측 자료로부터 분석된 결과에 의하면, 1960년부터 2004년까지 황사 강도는 감소하는 경향을 보였다(Sun et al. 2001; Wang et al. 2008). 황사는 연간 0–18일 동안 발생하였으며 평균적으로 연간 3.5일이 발생했다(Uematsu et al. 1983; Liu 1988). 1998년에는 황사는 10일 동안 발생했으며(In and Park 2003), 이를 고려하여 침적량이 계산되었다. 황사기간 중에 Al에 대해서는 평균 건식침적 속도는  $4.8 \text{ cm s}^{-1}$ 로 가정하여 사용하였다(Zhang et al. 1993; Gao et al. 1997). 황사를 통한 연구 지역의 연간 대기를 통한 침적량은 Al,  $\text{NH}_4^+$ ,

Table 5. Depositional flux of atmospheric chemical components in the Cheju-Korea Straits

	Annual total flux (g m <sup>-2</sup> yr <sup>-1</sup> )	Relative contribution		Total areal flux (10 <sup>4</sup> tons yr <sup>-1</sup> )
		Wet (%)	Yellow dust (%)	
Al	2.17	34	49	10.0
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	3.62	60	10	16.6
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	1.01	43	36	4.6
nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	2.32	55	17	10.6

nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>와 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>이 각각 1.06, 0.36, 0.39와 0.36 g m<sup>-2</sup> yr<sup>-1</sup>으로 추정되었다. 황사기간 외의 건식 침적량은 시료 측정 기간의 평균치를 시간에 따라 내삽한 값으로 계산하여 추정하였다.

직접 강우에 대한 화학적 측정이 불가능 할 때, 강우를 통한 대기분진의 제거 추정은 스카벤징 비를 사용해서 연구한다. 대기에서 물질의 농도는 일반적으로 빗물에서 그 물질의 농도와 관계있다(Duce et al. 1991). 그 관계는 스카벤징 비로 다음과 같이 기술 될 수 있다(식 4).

$$S = \rho C_r / C_a \quad (4)$$

여기서, S 는 어느 물질에 대한 스카벤징 비이고, C<sub>r</sub>은 강우 중 그 물질의 농도(mg g<sup>-1</sup>)이며 C<sub>a</sub>는 대기 중 농도(mg m<sup>-3</sup>)이고 ρ는 공기의 밀도(1200 μg m<sup>-3</sup>)이다.

습식침전(F<sub>w</sub>)을 통한 대기유입량은 다음 식 (5)와 같이 표현되며

$$F_w = C_r \cdot P \quad (5)$$

여기서 P는 강우량(m s<sup>-1</sup>)을 나타낸다. 만약 C<sub>r</sub>이 식 (4)에 따라 치환하면, 식 (5)는 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$F_w = P \cdot S \cdot C_a / \rho \quad (6)$$

식 (6)을 사용해서, 대기중 물질농도와 침전속도 그리고 스카벤징 비를 근거로 하여 습식침전을 통한 물질의 대기유입량을 추정할 수 있다. S는 입자크기, 입자형태 그리고 대기농도의 수직적 분포, 비와 비구름의 수직적 정도를 포함하는 여러 요소의 함수이고 정확하게 그 값을 추정하기 어렵다. GESAMP (1989)은 에어로졸 광물에 대해 100-200의 스카벤징 비를 보고했으며, 연안 해역에 대해 500-2000의 값이 가장 적당하다고 제시했다. Uematsu et al. (1985)은 태평양 자료에서 직접 스카벤징 비를 측정했으며 그 값의 범위는 500-2000 이고 평균값은 1000이었다. 본 연구에서 태평양에서 GESAMP과 Uematsu 등이 제시한 결과를 선택했으며 Gao et al. (1997)이 제시한 대로 아시아 연안을 따라 에어로졸 광물을 추정하기 위한 가장 적합한 스카벤징 비 추정치로 범위는 500-2000 이고 평균값은 1000을 가정하였다. 연구 지역의 평균 강우량은 Watts (1969)의 자료를 사용하였다.

채집된 대기 시료 분석 자료와 상기의 모델들로부터 계산된 제주-대한해협에 대기를 통한 연간 침적량은 Al, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>

와 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>이 각각 2.17, 3.62, 2.32와 1.01 g m<sup>-2</sup> yr<sup>-1</sup>으로 추정되었다. 연간 대기분진 플럭스는 습식침전으로 Al, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>와 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>이 각각 34, 60, 55와 43% 기여되는 것으로 나타났으며, 연간 침적량에서 1998년도의 황사일수와 황사시기의 농도들로부터 계산된 황사에 의한 기여는 Al, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>와 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>이 각각 49, 36, 17과 10% 기여되는 것으로 추정되었다(Table 5).

황사현상은 짧은 기간 임에도 불구하고 전체 대기분진 플럭스에 중요한 부분을 차지하였다. 한국에서 1997년부터 2016년까지 관측된 황사 일수는 1997년 19일에서 2016년 3일로 매년 점차 감소하는 것으로 나타났다(Kim et al. 2017). 따라서, 연구 지역에서 대기를 통한 물질 수송에서 황사에 의한 기여 또한 감소할 것으로 예상된다. 연구 지역에서 대기를 통한 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>와 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>를 합산한 연간 침적량은 0.103 mole N m<sup>-2</sup> yr<sup>-1</sup>로 이를 통하여 식물플랑크톤에 의한 일차생산량의 유발은 Redfield 비(Takahashi et al. 1985)를 감안하면 0.679 mole C m<sup>-2</sup> yr<sup>-1</sup>(8.15 g C m<sup>-2</sup> yr<sup>-1</sup>)로 1998년 동중국해의 일차생산력인 204.4 g C m<sup>-2</sup> yr<sup>-1</sup>의 (Li et al. 2004) 4%에 해당되는 양이다. 그러나, 황사 기간에 대기를 통한 질소원은 일 평균으로 환산할 경우, 비 황사기의 약 10배에 해당되기 때문에 황사가 봄철 일차 생산에 상당한 영향을 미칠 것으로 추정된다.

제주-대한해협 해상(표면적; 4.59 × 10<sup>10</sup> m<sup>2</sup>)에서 연간 Al의 침적량과 지각의 평균 Al 농도 8.23%(Taylor 1964)로부터 계산된 전체적인 광물분진 플럭스는 연간 1.21 × 10<sup>6</sup> tons yr<sup>-1</sup>으로 추정되었으며, 이는 연구지역으로 유입되는 중요 하천인 낙동강에 의해 유입되는 연간 퇴적물 유입량인 10 × 10<sup>6</sup> tons yr<sup>-1</sup>의(Yu et al. 1985; Chough et al. 2000) 약 12%를 차지하는 것으로 나타났다.

## 4. 결 론

제주해협과 대한해협을 포함하는 해역에서 에어로졸의 화학적 조성과 침적으로 인한 해양으로의 기여를 이해하기 위하여 에어로졸 시료를 1997년 11월, 1998년 4월에 황사기와 비 황사기간 중에, 9월, 11월, 그리고 1999년 2월과 5월 동안 선상의 해양-대기 경계층에서 채집하였다. 본 연구에서 도출한 주요 결과들은 다음과 같다.

제주해협과 대한해협을 포함하는 해역에서 에어로졸의 Al, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>과 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>의 평균 농도는 각각 2.19, 5.59, 6.16과 2.08 μg m<sup>-3</sup>였다. 황사 기간의 Al 농도는 비황사기에 비하여 약 100배 정도까지 높았으며, NO<sub>3</sub>와 nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 농도 또한 동일한 기

간에 각각  $8.65 \pm 1.36$ 와  $14.1 \pm 4.9 \mu\text{g m}^{-3}$ 로 가장 높았다.  $\text{NH}_4^+$ 의 경우 황사 기간과 비황사 기간에 큰 농도 차이를 보이지 않았다.

$\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 의 농도 비는 전체 시료 채취기간에 0.47–1.5였으며, 제주해협과 대한해협 해역의 에어로졸은 중국, 한국 및 일본에서 방출된  $\text{NO}_x$ 와  $\text{SO}_x$ 의 영향이 혼재되어 있는 것으로 나타났다. Al 농도와  $\text{NH}_4^+$  농도와의 관계는 Al을 포함하는 광물 입자들이  $\text{NH}_4^+$ 의 포집에 큰 관여를 하지 않거나 에어로졸의 Al과  $\text{NH}_4^+$ 의 기원이 서로 상이할 수 있다는 것을 지시한다.

$\text{NH}_4^+$ 와  $[\text{nss-SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-]$  농도와의 상관관계는 매우 높았으며( $R = 0.81$ ),  $[\text{NH}_4^+]/[\text{nss-SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-]$  당량비는 평균  $0.58 \pm 0.29$ 로  $\text{NH}_4^+$  이온에 의해  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 와  $\text{NO}_3^-$ 이 충분히 증화되지 않는 것으로 나타났다.

Al과  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  농도가 높게 관측된 황사기에  $^{210}\text{Pb}$  농도 또한  $1.13\text{--}1.23 \text{ mBq m}^{-3}$ 으로 높게 관측되어 중국 대륙에서 기원한 황사에  $^{210}\text{Pb}$ 이 쉽게 포집되는 것으로 나타났다.  $^7\text{Be}$ 와  $\text{NH}_4^+$  농도 분포는 1998년 4월의 비황사기에 뚜렷한 음의 일차 상관 관계를 보였다( $R = 0.96$ ). 이는 이 시기에 낮은  $\text{NH}_4^+$  농도는 강우에 의한 씻김 현상과 더불어 비교적 상층부 대기의 하강에 의한 영향으로 추정된다.

제주-대한해협 해역에 대기를 통한 연간 침적량은 Al,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ 와  $\text{NO}_3^-$ 이 각각 2.17, 3.62, 2.32와  $1.01 \text{ g m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ 으로 추정되었다. 습식침전으로 각각 34, 60, 55와 43%, 황사에 의하여 각각 49, 36, 17과 10% 기여되는 것으로 추정되었다.

제주-대한해협 해역의 전체적인 광물분진 플럭스는 연간  $1.2 \times 10^6 \text{ tons yr}^{-1}$ 으로 추정되었으며, 이는 낙동강에 의해 유입되는 연간 퇴적물 유입량의 약 12%를 차지한다.

연구 지역에서 대기를 통한  $\text{NH}_4^+$ 와  $\text{NO}_3^-$ 를 합산한 연간 침적량은  $0.103 \text{ mole N m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ 로 이를 통하여 식물플랑크톤에 의한 일차생산량의 유발은  $0.679 \text{ mole C m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ ( $8.15 \text{ g C m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ )로 1998년 동중국해의 일차생산력인  $204.4 \text{ g C m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ 의 약 4%에 해당되는 양이다.

## 사 사

이 논문은 한국해양과학기술원의 지원을 받아 수행된 과제(PE99725)에서 획득된 자료를 사용하였습니다.

## 참고문헌

- Akimoto H, Narita H (1994) Distribution of  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$  and  $\text{CO}_2$  emissions from fuel combustion and industrial activities in Asia with  $1^\circ \times 1^\circ$  resolution. *Atmos Environ* **28**(2): 213–225
- Andreae MO, Berresheim H, Andreae TW, Kritz MA, Bates TS, Merrill JT (1988) Vertical distribution of dimethylsulfide, sulfur dioxide, aerosol ions, and radon over the northeast Pacific Ocean. *J Atmos Chem* **6**(1):149–173
- Arimoto R, Duce RA (1986) Dry deposition models and the air/sea exchange of trace elements. *J Geophys Res-Atmos* **91**(D2):2787–2792
- Arimoto R, Duce RA, Savoie DL, Prospero JM, Talbot R, Cullen JD, Tomza U, Lewis NF, Ray BJ (1996) Relationships among aerosol constituents from Asia and the North Pacific during PEM-West A. *J Geophys Res-Atmos* **101**(D1):2011–2023
- Asman WA, Sutton MA, Schjorring JK (1998) Ammonia: emission, atmospheric transport and deposition. *New Phytol* **139**(1):27–48
- Baskaran M (2011) Po-210 and Pb-210 as atmospheric tracers and global atmospheric Pb-210 fallout: a review. *J Environ Radioact* **102**(5):500–513
- Carmichael GR, Zhang Y, Chen LL, Hong MS, Ueda H (1996) Seasonal variation of aerosol composition at Cheju Island, Korea. *Atmos Environ* **30**(13):2407–2416
- Chough SK, Lee HJ, Yoon SH (2000) Marine geology of Korean seas. Elsevier, Amsterdam, 313 p
- Chung YS (1992) On the observations of yellow sand (dust storms) in Korea. *Atmos Environ A-Gen* **26**(15):2743–2749
- Corbett JJ, Fischbeck P (1997) Emissions from ships. *Science* **278**(5339):823–824
- Corbett JJ, Fischbeck PS, Pandis SN (1999) Global nitrogen and sulfur inventories for oceangoing ships. *J Geophys Res-Atmos* **104**(D3):3457–3470
- Duce RA, Arimoto R, Ray BJ, Unni CK, Harder PJ (1983) Atmospheric trace elements at Enewetak Atoll: 1. concentrations, sources, and temporal variability. *J Geophys Res-Oceans* **88**(C9):5321–5342
- Duce RA, LaRoche J, Altieri K, Arrigo KR, Baker AR, Capone DG, Cornell S, Dentener F, Galloway J, Zamora L et al. (2008) Impacts of atmospheric anthropogenic nitrogen on the open ocean. *Science* **320**(5878):893–897
- Duce RA, Liss PS, Merrill JT, Atlas EL, Buat-Menard P, Hicks BB, Miller JM, Prospero JM, Arimoto R, Church TM et al. (1991) The atmospheric input of trace species to the world ocean. *Global Biogeochem Cy* **5**(3):193–259
- Endresen Ø, Sørgard E, Sundet JK, Dalsøren SB, Isaksen IS, Berglen TF, Gravir G (2003) Emission from international sea transportation and environmental impact. *J Geophys Res-Atmos* **108**(D17):4560. doi:10.1029/2002JD002898
- Galloway JN, Hiram Levy II, Kasibhatla PS (1994) Year 2020: consequences of population growth and development on deposition of oxidized nitrogen. *Ambio* **23**:120–123
- Gao Y (1998) Atmospheric chemistry and transport of Asian dust. In: Hong GH, Zhang J, Park BK (eds) Health of the Yellow Sea, The Earth Love Publication Association, Seoul, pp 251–280
- Gao Y, Arimoto R, Duce RA, Chen LQ, Zhou MY, Gu DY. (1996) Atmospheric non-sea-salt sulfate, nitrate and metha-

- nesulfonate over the China Sea. *J Geophys Res* **101**(D7): 12601–12611
- Gao Y, Arimoto R, Duce RA, Zhang XY, Zhang GY, An ZS, Chen LO, Zhou MY, Gu DY (1997) Temporal and spatial distributions of dust and its deposition to the China Sea. *Tellus B* **49**(2):172–189
- Gao Y, Arimoto R, Zhou MY, Merrill JT, Duce RA (1992) Relationships between the dust concentrations over eastern Asia and the remote North Pacific. *J Geophys Res-Atmos* **97**(D9):9867–9872
- GESAMP (1989) Atmospheric input of trace species to the World Oceans. WMO, Geneva, GESAMP Reports and Studies No. 38, 111 p
- Graustein WC, Turekian KK (1996)  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  indicate an upper troposphere source for elevated ozone in the summertime subtropical free troposphere of the eastern North Atlantic. *Geophys Res Lett* **23**(5):539–542
- Holmes J, Zoller W (1996) The elemental signature of transported Asian dust at Mauna Loa observatory. *Tellus B* **48**(1):83–92
- Holland HD (1978) *The Chemistry of the Atmosphere and Oceans*. Wiley, New York, 156 p
- Hong GH, Kim SH, Yang DB, Lim GH (1998) The atmospheric input of trace metals over the Yellow Sea: ship board results, April 1995. In: Hong GH, Zhang J, Park BK (eds) *Health of the Yellow Sea*, The Earth Love Publication Association, Seoul, pp 211–236
- IAEA (1987) Preparation and certification of IAEA Gamma-Ray spectrometry reference materials RGU-1, RGTh-1 and RGK-1. IAEA/RL/148, International Atomic Energy Agency, Vienna, 54 p
- In HJ, Park SU (2003) Estimation of dust emission amount for a dust storm event occurred in April 1998 in China. *Water Air Soil Poll* **148**(1):201–221
- Jeong GY (2020) Mineralogy and geochemistry of Asian dust: dependence on migration path, fractionation, and reactions with polluted air. *Atmos Chem Phys* **20**(12):7411–7428
- Kang J, Cho BC, Lee CB (2010) Atmospheric transport of water-soluble ions ( $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$  and  $\text{nss-SO}_4^{2-}$ ) to the southern East Sea (Sea of Japan). *Sci Total Environ* **408** (11):2369–2377
- Kim HS, Chung Y S, Cho JH (2017) Long-term variations of dust storms and associated dustfall and related climate factors in Korea during 1997–2016. *Air Qual Atmos Health* **10**(10):1269–1280
- Kim TW, Lee K, Najjar RG, Jeong HD, Jeong HJ (2011) Increasing N abundance in the northwestern Pacific Ocean due to atmospheric nitrogen deposition. *Science* **334**(6055): 505–509
- Kim YP, Lee G (2018) Trend of air quality in Seoul: policy and science. *Aerosol Air Qual Res* **18**(9):2141–2156
- Kim YP, Lee JH, Baik NJ, Kim JY, Shim SG, Kang CH (1998) Summertime characteristics of aerosol composition at Cheju Island, Korea. *Atmos Environ* **32**(22):3905–3915
- Kitto ME, Anderson DL (1988) The use of Whatman-41 filters for particle. *Atmos Environ* (1967). **22**(11):2629–2630
- Klimont Z, Cofala J, Schopp W, Amann M, Streets DG, Ichikawa Fujita S (2001) Projections of  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$ ,  $\text{NH}_3$  and VOC emissions in East Asia up to 2030. *Wat Air Soil Poll* **130**(1):193–198
- KMA (2022) KMA Weather Data Service, Open MET Data Portal, Korea Meteorological Administration. <https://data.kma.go.kr/cmnm/main.do> Accessed 1 Sep 2022
- Lee HJ, Kim SW, Brioude J, Cooper OR, Frost GJ, Kim CH, Park RJ, Trainer M, Woo JH (2014) Transport of  $\text{NO}_x$  in East Asia identified by satellite and in situ measurements and Lagrangian particle dispersion model simulations. *J Geophys Res-Atmos* **119**(5):2574–2596
- Li G, Gao P, Wang F, Liang Q (2004) Estimation of ocean primary productivity and its spatio-temporal variation mechanism for East China Sea based on VGPM model. *J Geogr Sci* **14**(1):32–40
- Liu TS (1988) *Loess in China*. China Ocean Press, Beijing, 224 p
- Logan JA (1983) Nitrogen oxides in the troposphere: global and regional budgets. *J Geophys Res-Atmos* **88**(C15): 10785–10807
- McDonald RL, Unni CK, Duce RA (1982) Estimation of atmospheric sea salt dry deposition: wind speed and particle size dependence. *J Geophys Res-Oceans* **87**(C2):1246–1250
- Merrill JT, Uematsu M, Bleck R (1989) Meteorological analysis of long range transport of mineral aerosols over the North Pacific. *J Geophys Res-Atmos* **94**(D6):8584–8598
- Mijling B, Van Der A RJ, Zhang Q (2013) Regional nitrogen oxides emission trends in East Asia observed from space. *Atmos Chem Phys* **13**(23):12003–12012
- Mukai H, Suzuki M. (1996) Using air trajectories to analyze the seasonal variation of aerosols transported to the Oki Islands. *Atmos Environ* **30**(23):3917–3934
- Nakamura T, Matsumoto K, Uematsu M (2005) Chemical characteristics of aerosols transported from Asia to the East China Sea: an evaluation of anthropogenic combined nitrogen deposition in autumn. *Atmos Environ* **39**(9): 1749–1758
- Ohara T, Akimoto H, Kurokawa J, Horii N, Yamaji K, Yan

- X, Hayasaka T (2007) An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980–2020. *Atmos Chem Phys* **7**(16):4419–4444
- Ottley CJ, Harrison RM (1992) The spatial distribution and particle size of some inorganic nitrogen, sulphur and chlorine species over the North Sea. *Atmos Environ A-Gen* **26**(9):1689–1699
- Park MH, Kim YP, Kang CH, Shim SG (2004) Aerosol composition change between 1992 and 2002 at Gosan, Korea. *J Geophys Res-Atmos* **109**(D19S13):1–7
- Prospero JM, Savoie DL, Nees RT, Duce RA, Merrill J (1985) Particulate sulfate and nitrate in the boundary layer over the North Pacific Ocean. *J Geophys Res-Atmos* **90**(D6):10586–10596
- Rodhe H (1989) Acidification in a global perspective. *Ambio* **18**:155–160
- Seinfeld JH, Pandis SN (1998) Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change. Wiley-Interscience, New York, 1326 p
- Sequeira R (1982) Acid rain: An assessment based on acid-base considerations. *J Air Pollut Control Assoc* **32**(3):241–245
- Shi H, Zhang Y, Deng A, Dong Z (2017) Variation in activity concentration of  $^{210}\text{Pb}$  in atmospheric aerosol and its radiation dose assessment in Qingdao. *Chin J Radiol Med Prot* **12**:372–375
- Shimohara T, Oishi O, Utsunomiya A, Mukai H, Hatakeyama S, Jang ES, Uno I, Murano K (2001) Characterization of atmospheric air pollutants at two sites in northern Kyushu, Japan chemical form, and chemical reaction. *Atmos Environ* **35**:667–681
- Smith SJ, van Aardenne J, Klimont Z, Andres RJ, Volke A, Delgado Arias S (2011) Anthropogenic sulfur dioxide emissions: 1850–2005. *Atmos Chem Phys* **11**(3):1101–1116
- Streets DG, Guttikunda SK, Carmichael GR (2000) The growing contribution of sulfur emissions from ships in Asian waters, 1988–1995. *Atmos Environ* **34**(26):4425–4439
- Sun J, Zhang M, Liu T (2001) Spatial and temporal characteristics of dust storms in China and its surrounding regions, 1960–1999: Relations to source area and climate. *J Geophys Res-Atmos* **106**(D10):10325–10333
- Takahashi T, Broecker WS, Langer S (1985) Redfield ratio based on chemical data from isopycnal surfaces. *J Geophys Res-Oceans* **90**(C4):6907–6924
- Tan K, Yang Y, Zhu X, Li Y, Chen S, Yu H, Huang Y (2013). Beryllium-7 in near-surface atmospheric aerosols in mid-latitude ( $40^\circ$  N) city Beijing, China. *J Radioanal Nucl Chem* **298**(2):883–891
- Taylor SR (1964) Trace element abundances and the chondritic Earth model. *Geochim Cosmochim Acta* **28**(12):1989–1998
- Tokieda T, Yamanaka K, Harada K, Tsunogai S (1996) Seasonal variations of residence time and upper atmospheric contribution of aerosols studied with Pb-210, Bi-210, Po-210 and Be-7. *Tellus B* **48**(5):690–702
- Tsunogai S, Shinagawa T, Kurata T (1985) Deposition of anthropogenic sulfate and Pb-210 in the western North Pacific area. *Geochem J* **19**(2):77–90
- Uematsu M (1995) Chemical composition of marine aerosols over the Central North Pacific-Results from the 1991 cruise of Hakurei Maru No. 2. In Sakai H, Nozaki Y (eds) Biogeochemical processes and ocean flux in the Western Pacific. Terra Scientific Publishing, Tokyo, pp 3–14
- Uematsu M, Duce RA, Prospero JM (1985) Deposition of atmospheric mineral particles in the North Pacific Ocean. *J Atmos Chem* **3**(1):123–138
- Uematsu M, Duce RA, Prospero JM (1994) Atmosphere beryllium-7 concentrations over the Pacific Ocean. *Geophys Res Lett* **21**(7):561–564
- Uematsu M, Duce RA, Prospero JM, Chen L, Merrill JT, McDonald RL (1983) Transport of mineral aerosol from Asia over the North Pacific Ocean. *J Geophys Res-Oceans* **88**(C9):5343–5352
- van Aardenne JA, Carmichael, GR, Levy III, Streets D, Hordijk L (1999) Anthropogenic  $\text{NO}_x$  emissions in Asia in the period 1990–2020. *Atmos Environ* **33**(4):633–646
- Wang X, Huang J, Ji M, Higuchi K (2008) Variability of East Asia dust events and their long-term trend. *Atmos Environ* **42**(13):3156–3165
- Watts IEM (1969) Climates of China and Korea, in climates of Northern and Eastern Asia, vol. 8, World Surv. Climatol. In: Arakawa H (ed) Elsevier, New York, 94 p
- Yang YL, Gai N, Geng CZ, Zhu XH, Li Y, Xue Y, Yu HQ, Tan KY (2013) East Asia monsoon's influence on seasonal changes of beryllium-7 and typical POPs in near-surface atmospheric aerosols in mid-latitude city Qingdao, China. *Atmos Environ* **79**:802–810
- Yu HS, Min BE, Kim CJ (1985) Physical characteristics of circulation and mixing processes at the mouth of the Nakdong River. *Marit Res Rep* **2**:1–17
- Zhang X, Arimoto R, An Z, Chen T, Zhang G, Zhu G, Wang X (1993) Atmospheric trace elements over source regions for Chinese dust: Concentrations, sources and atmospheric deposition on the Loess Plateau. *Atmos Environ A-Gen* **27**(13):2051–2067
- Zieman JJ, Holmes JL, Connor D, Jensen CR, Zoller WH, Hermann DM, Parrington JR, Gordon GE (1995) Atmospheric aerosol trace element chemistry at Mauna Loa

Observatory: 1. 1979–1985. *J Geophys Res-Atmos* **100**  
(D12):25979–25994

---

*Received Oct. 20, 2022*

*Revised Dec. 7, 2022*

*Accepted Dec. 7, 2022*

### **Author's Information**

#### **Suk Hyun Kim**

Principal Research Scientist, Korea Institute of Ocean  
Science & Technology

#### **Hyunmi Lee**

Full-time Research Specialist, Korea Institute of Ocean  
Science & Technology

#### **Deok-Soo Moon**

Principal Researcher, Korea Research Institute of Ships  
& Ocean

Copyright © 2022 Ocean and Polar Research

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/](http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0/)), which permits unrestricted  
educational and non-commercial use, provided the original work is  
properly cited.