

제주도 고산에서의 1994~1995년 여름 입자상 탄소농도 측정
Measurement of Carbonaceous Species in Fine Particles at Kosan,
Cheju Island during the Two Summer Seasons of 1994 and 1995

이종훈 · 백남준¹⁾ · 심상규 · 김용표

한국과학기술연구원 지구환경연구센터

¹⁾삼성엔지니어링(주) 기술연구소

(1996년 10월 26일 접수, 1997년 5월 21일 채택)

Jong Hoon Lee, Nam Jun Baik¹⁾, Shang Gyoo Shim, Yong Pyo Kim

Global Environmental Research Center, Korea Institute of Science and Technology

¹⁾*R&D Center, Samsung Engineering Co., LTD.*

(Received 26 October 1996; accepted 21 May 1997)

Abstract

The concentrations of organic and elemental carbon were determined using fine particle samples collected from Kosan, Cheju Island during the summer seasons of 1994 and 1995. The daily mean concentrations of organic and elemental carbon for each measurement period were 3.74 and 0.27 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in 1994, while those of 1995 were 2.36 and 0.10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively. The concentrations of organic carbon were higher than those commonly observed from clean areas around the world, but those of elemental carbon were lower than, or comparable to, other clean areas in the world. The resulting ratios of total carbon to elemental carbon at this site were thus higher than those seen from other metropolitan and non-polluted regions abroad. In addition according to our analysis, the 1994 measurement period can be classified into two periods: enhanced (July 20 and August 1) and reduced levels (August 2 and 9) of the carbonaceous species. The observed difference between two periods may be in part accounted for by the air trajectories representing each period. During the former period, the air masses from the Asian continent and Japan were dominant, while the air masses from the North Pacific Ocean came during the latter period. OC/EC ratios at the site were calculated to predict the possible formation of secondary organic aerosol. Based on our observations, we suggest that the formation of secondary organic aerosol might be an important pathway to the production of organic carbons.

Key words : Kosan, Cheju Island, carbonaceous species

1. 서 론

대기 중 입자상 탄소성분은 황산염, 질산염 등과 함께 미세 입자를 구성하는 주요한 대기오염물질이다. 입자상 탄소는 크게 유기탄소(organic carbon, OC)와 원소성 탄소(elemental carbon, EC), 그리고 탄산염(carbonates)으로 나눌 수 있다. 이 중 유기탄소는 발생원에서 입자형태로 직접 배출되거나 광화학 반응 등에 의해 입자로 변환되는 반면, 원소성 탄소는 대부분 화석연료의 연소에 의해 대기 중으로 직접 배출되는 일차 오염물질이다. 탄산염은 토양 등 지각에서 유래하며 대부분이 $2\mu\text{m}$ 이상 조대 입자영역에 속하고, 전체 입자상 물질 농도에 대한 기여는 1% 이하이다(Cadle *et al.*, 1980).

오염된 도시지역의 대기오염도를 설명하는 주요 물질 중의 하나인 탄소성분은 전체 에어로졸 질량의 10~20%를, 미세입자 질량농도의 40%를 차지하는 입자상 물질의 주요 구성성분이다(백남준 등, 1996; Hamilton and Mansfield, 1991; Gray *et al.*, 1986; Macias *et al.*, 1981). 청정지역의 유기탄소와 원소성 탄소의 농도는 각각 미세입자 질량농도의 11%와 0.3%(약 10 ng/m^3) 정도를 차지한다(Heintzenberg, 1989). 유기탄소와 원소성 탄소는 도시지역의 시정 감소에 주로 기여하며, 원소성 탄소에 의한 광흡수는 지구의 복사에너지에 중요한 역할을 한다(Groblicki *et al.*, 1981). 차량 배가스와 대기환경 중에 존재하는 유기입자성분은 돌연변이를 일으킬 가능성이 있다고 보고되었고(Pierson *et al.*, 1983; Pitts, 1983), 원소성 탄소는 동물실험결과 발암성이 있는 것으로 보고된 바 있다(IARC, 1980). 따라서 이들 일차탄소성분의 대기 중 거동과 농도제어에 관해 상당한 관심이 모아지고 있다.

유기탄소는 입자상 탄소의 약 50~80% 이상을 차지하는데, 주로 대기 중에 체류하거나 기단에 의해 이동하는 동안 광화학 반응 등으로 생성되는 이차 유기입자로서의 존재가 추정되고 있다(Chow *et al.*, 1994; Malm *et al.*, 1994; Gray *et al.*, 1986; Macias *et al.*, 1981). 그러나 일차 유기탄소와 이차 유기탄소의 존재비율은 해당 지역의 발생원 특성과 계절적 요인에 따라 다르며 여기에 대해서는 많은 논란의 여지가 있다(Turpin *et al.*, 1991). 그럼에도 불구하고

하고, 원소성 탄소를 일차 유기탄소의 추적자(tracer)로 이용하여 대기 중 유기탄소에 대한 원소성 탄소의 농도비(OC/EC)를 계산함으로써 대기의 유기탄소가 일차 유기탄소인지 이차 생성물인지를 가늠하는 방법을 사용하기도 한다(Turpin and Huntzicker, 1995; Chow *et al.*, 1993; Turpin *et al.*, 1991). 이전의 연구자들은 유기탄소와 원소성 탄소의 상관성을 비교하고, 대기의 OC/EC가 일차 입자에 대한 OC/EC보다 크면 이차 유기입자가 존재한다고 하였다. Turpin과 Huntzicker(1995)는 1987년 남부 California 대기질조사(SCAQS)에서 이차 유기입자의 농도를 정량화하여 낮동안에 측정된 유기입자의 80% 이상이 이차입자임을 보고하였다. Turpin *et al.*(1991)이 Los Angeles Basin에서 광화학활성이 있는 시간대에 측정된 OC/EC는 일차배출물질의 OC/EC보다 큰데, 추정된 일차입자의 OC/EC와 대기의 측정농도로부터 이차 유기입자의 농도를 추정하는 방법을 시도하였다. 이들의 결과에 의하면 여름철 정오에는 유기입자의 약 50%가 이차입자였다. 이 연구에서 적용한 일차 OC/EC는 1.4~2.4의 범위를 갖는데, 이 값은 이전에 Los Angeles의 다양한 지역과 대기조건에서 수행된 연구결과로부터 구한 값이다(Gray, 1986; Gray *et al.*, 1986; Conklin *et al.*, 1981). Chow *et al.*(1993)은 또한 California의 San Joaquin Valley에서 PM_{2.5}와 PM₁₀을 채집하고 이온성분과 함께 탄소성분을 분석하였다. 이들의 결과를 보면, PM_{2.5} 중 OC에 대한 총탄소(total carbon, TC)의 비(OC/TC)를 도시와 비도시지역에서 계산한 결과, 비도시지역의 OC/TC가 도시지역에서 보다 10~15% 높았다. OC/TC가 0.67 보다 클 때(즉, OC/EC가 2 이상일 때), 측정된 OC는 이차유기입자로 존재한다고 볼 수 있다. 비도시지역에서 OC/TC가 더 큰 것은 도시지역이 비도시지역과 비교하여 TC농도가 더 높기 때문이다. 이러한 비(OC/EC 또는 OC/TC)를 활용함에 있어 일차배출원의 OC/EC는 발생원 조건, 기상조건, 배출물의 주야간 변동성, 국소 오염원의 영향 등에 따라 상이하므로, 적당한 비를 결정해야 한다. 원소성 탄소는 토양이나 도로먼지, 공업활동에 의해서도 배출되지만 주로 디젤유 차량에 의해 대기 중으로 배출되며, 도시에서는 EC에 대한 차량의 기여도가 최고 90%에 달한다(이종훈 등, 1995; Hamilton *et al.*, 1991; 이민희 등, 1987).

이러한 유기탄소와 원소성 탄소에 의한 대표적인 대기오염현상은 시정장애로 나타난다. 이 두 성분이 태양광을 산란 또는 흡수함으로써 시정을 악화시키는데, 서울의 경우 이들 두 성분이 광소산(light extinction)에 미치는 기여율은 최고 50% 이상이며, 디젤유의 연소시 발생하는 유기탄소 및 원소성탄소가 약 30~59%, 일반연소에서 발생하는 유기탄소가 20~30%로 시정장애에 기여하는 것으로 추정된다(문길주 등, 1994).

다른 오염물질과 마찬가지로 입자상 탄소 역시 다른 지역에서부터 배출된 성분이 장거리를 이동하여 특정 측정지역의 대기 중 농도를 상승시킬 수 있다. Okita *et al.* (1986)은 일본의 두 섬지역에서 북서풍 몬순을 타고 태평양 상공을 거쳐 일본으로부터 이동해 온 입자상 물질의 특성을 조사한 결과, 유기 및 원소성 탄소성분이 해염입자 다음으로 높은 구성비를 취하는 것을 보였다. 또한, 1991년과 1992년에 걸쳐 일본내 청정지역에서 대기오염물질의 농도를 측정된 결과, 이 기간 동안 입자상 탄소가 총 부유분진에 기여하는 비율이 황산염보다 높거나 비슷한 것으로 나타났는데, 이러한 발견은 장거리 이동된 입자상 탄소가 비오염지역의 탄소농도에 영향을 줄 수 있음을 시사한다(Hatakeyama, 1993, 1995). 이밖에도 Lau와 Khalil (1993)은 태평양 해상에서 포집한 에어로졸 중 탄소성분에 대한 인위적 오염원의 기여도를 CMB (Chemical Mass Balance) 모델을 이용해 분석하였는데, 자동차 및 연소 배출물질과 토양성 물질이 육지에서 발생한 기단과 함께 장거리 이동함으로써, 해양 에어로졸을 구성할 수 있으리라 추정하였다. 또한, Parungo *et al.* (1994)은 북경과 주변의 전원지역, 그리고 동중국해 및 서태평양 해상에서 입자상 블랙카본농도의 측정결과 및 공기의 역케적 계산을 바탕으로 중국에서 발생한 입자상 블랙카본이 이 지역을 지나는 기단에 의해 동중국해와 서태평양으로 장거리 이동한다고 추정하였다.

국내에서는 도심지역인 서울 대기 중의 에어로졸 중 유기탄소와 원소성 탄소를 이민희 등(1986)이 측정한 바 있고, 청정지역인 소백산맥에서는 이민희 등(1987)이 입자상 탄소를 측정하였다. 미세입자상 탄소성분의 경우, 문길주 등(1994)이 서울 지방의 스모그에 PM_{2.5} 중의 탄소성분이 미치는 영향을 연

구한 것을 제외하고는, 연구사례를 발견하기 어렵다.

제주도는 우리나라의 대표적인 청정지역으로서, 한반도 지역의 배경 농도와 동북아시아 지역에서의 대기오염물질의 이동을 연구하는 데 좋은 조건을 갖추고 있다. 따라서, 이 지역에서 대기오염물질의 동태에 관한 연구들이 활발히 진행되고 있다(김용표 등, 1995, 1996a, 1996b, 1996c; 심상규 등, 1994; 박경윤 등, 1994; 홍민선 등 1992). 그러나, 제주도에 서 입자상물질 중의 탄소성분농도를 측정 분석한 사례는 아직까지 없었다. 한국과학기술연구원(KIST) 환경연구센터에서는 지난 1994년과 1995년 여름기간 중 제주도 고산측정소에서 미세입자에 함유된 탄소성분을 측정하였다.

이 논문에서는, 1) 지난 2년간에 걸친 측정결과를 상호 비교하여 미세입자(PM_{2.5}) 중의 탄소입자의 시간적 거동특성을 살펴보고, 2) 다른 연구자들이 타 지역에서 행한 탄소측정결과와 비교함으로써 제주도 고산지역의 탄소입자의 분포에 대해 논하였으며, 3) 고산지역에서 이차유기입자 생성 가능성에 대해서도 논의하였다.

2. 측정 및 분석

입자상 탄소성분의 측정은 1994년 7월 20일~8월 9일(21일)과 1995년 7월 20일~8월 1일(13일)에 이루어졌다. 측정을 수행한 고산측정소는 제주도 북제주군 한경면 고산리 수월봉에 있고, 지리적 위치는 제주도의 서쪽 끝이며, 고산 고층레이다 기상대(북위 33° 17' N, 동경 126° 10' E)에서 서쪽 방향으로 70m 떨어져 있다. 측정소 주위의 대기질은 고산지역과 제주도내의 오염원에 의한 NO_x의 배출영향을 어느 정도 받지만, 국지적 규모의 오염원으로부터 발생한 입자상 물질의 영향은 미미한 것으로 나타났다(박경윤 등, 1994; 김용표 등, 1996a, b).

탄소의 채취방법은 2.5 μm 분급의 크기를 갖는 사이클론(URG사, URG-2000-30EN)에 47mm 석영섬유 거름종이(Whatman사, QM-A)를 삽입한 필터홀더를 장착하여, 오전 9시부터 다음날 오전 9시까지 24시간 동안 입자상 탄소를 포집하였다. 포집유량의 조절에는 분당 10ℓ의 유속으로 공기가 통과하도록 제작된 임계 오리피스(critical orifice, BGI사)를

사용하였다. 탄소포집용 거름종이는 850°C의 로 (furnace)에서 1시간 30분 동안 태워서, 거름종이에 포함된 각종 유기물질을 연소시키는 전처리과정을 거쳤다. 포집에 쓰일 거름종이는 오염되지 않은 깨끗한 페트리 디쉬에 넣어 테플론 테이프를 봉하고, 알루미늄 호일로 싸서 실험실에서는 -18°C 이하의 냉동실, 그리고 현장에서는 얼음을 채운 보온상자에 보관하였다. 포집이 끝난 거름종이는 원래의 페트리 디쉬에 넣고 밀봉 테이프를 봉한 뒤, 알루미늄 호일로 싸서 얼음을 채운 보온상자에 보관하였다가 한국과학기술연구원 환경연구센터 냉동실로 옮겨 분석시까지 보관하였다. 포집한 거름종이를 냉동실에 보관하는 것은 상온에서 보관시 발생할지 모르는 유기물질의 휘발손실을 억제하기 위함이다. 원소성 탄소의 경우, 화학적으로 불활성이므로 쉽게 손실되지 않지만, 유기탄소는 온도, 보관기간 등 환경조건에 따라 유기물질의 포집입자로의 흡착이나 휘발에 의해 손실될 수 있다 (McDow and Huntzicker, 1993). 참고로 이러한 보관법은 1980년대 이래 정형화된 방식이다.

거름종이에 포집된 탄소성분의 분석을 위해 시료는 Blue ice를 채운 보온상자에 넣어 미국으로 운송하였고, 미국의 분석전문기관인 Atm AA사에서 분석하였다. 분석방법은 선택성 열산화법 (selective thermal oxidation method)이며, 산화촉매로서 MnO₂를 이용한다 (Fung, 1990). 분석조건으로는 Dohrmann carbon analyzer (DC-50, DC-52)를 시료 분석에 알맞은 조건으로 바꿔 사용했고 (Mueller *et al.*, 1982), 기기의 calibration을 위해 potassium hydrogen phthalate standard carbon solution (KHP)을 사용한다. MnO₂는 최적의 산화효율을 얻기 위해 매일 새 것으로 교환하였다. 최적 분석온도를 얻기 위해 850°C에서 미리 조절된 MnO₂가 들어 있는 platinum boat에 마이크론단위의 흑연 (graphite)을 넣고, 500°C에서 800°C까지 온도를 높여서 흑연시료가 MnO₂에 의해 더 이상 산화되지 않는 최고 온도를 초기 최적 온도로 하였다. 시료를 다른 유기화합물, 고농도의 원소탄소를 포함한 물질로 바꿔가며 실험을 반복하여, 모든 유기물질이 산화되면서 흑연시료는 산화되지 않는 온도를 최종 최적온도로 결정하였다. 본 분석방법의 정밀도 (precision)는 샘플 표준편차 (sample standard deviation)로 표시할 수 있

으며, 표준편차는 11set의 duplicate sample을 분석하여 구하여졌다 (Youden, 1977). 이 때, TC, OC 및 EC의 표준편차는 각각 0.43, 0.57 및 0.62이었다. 또한, OC와 EC의 변동계수 (coefficient of variation)는 각각 3%와 8%였다. 정확도 (accuracy)는 거름종이의 단위 cm² 당 0.3 µg인데, 이 수치는 KHP 표준용액을 calibration하기 위해 탄소의 source로 사용할 때와 동일한 값이다. 그러나, 실제 대기 중의 탄소를 포집한 경우 거름종이의 포집면이 불균일 (non-homogeneous)하기 때문에, 정확도는 이 보다 더 커질 수 있다. 기기의 검출한계는 0.03 µg이고, 실제 대기에서의 검출한계농도는 0.02 µg/m³이다.

분석방법을 간단히 요약하면, 포집된 석영섬유필터를 0.07 cm²의 면적으로 잘라내어 1~3개의 시료를 만든다. 이 시료를 platinum boat에 넣어 MnO₂과 접촉하게 한 후, 0.02 N HCl 30 µl를 가하고 120°C에서 시료에 포함된 CO₂, 수분, 기타 소량의 휘발성 유기물질을 휘발시켰다. 시료를 525°C까지 가열하여 유기 탄소를 산화시키고 다시 850°C에서 원소성 탄소를 MnO₂를 이용하여 완전히 산화시켰다. 각 산화단계에서 발생하는 CO₂는 CH₄으로 전환되고 이것을 FID (flame ionization detector)가 장착된 Dohrmann carbon analyzer로 측정하였다. 기존의 thermal technique method에 의한 탄소성분의 측정시, 일부 유기탄소가 산화과정 중 원소성 탄소로 타르화되어 정확한 성분분리가 어렵다는 문제가 있었으며, 측정자들은 이에 대해 나름대로 보정을 하여 농도를 산출하였다 (Wolff *et al.*, 1991; Adams *et al.*, 1989, 1990). 본 연구에 사용된 방법은 기존 분석방법의 어려움을 해결한 것으로, 유기탄소와 원소성 탄소의 정확한 정량이 가능하였다.

3. 결과 및 검토

3.1 기간별 탄소 농도

각 측정기간 중 OC 및 EC의 일평균농도변화를 그림 1에 제시하였다. 그림 1의 (a)에서 1994년 7월에 OC와 EC는 그 거동이 거의 일치하며, 이 때 두 성분의 상관계수 (correlation coefficient, r)는 0.96 (p<0.001)으로 매우 높은 반면에 8월에는 서로 반대의 거동을 나타내는데, 상관계수는 0.09 (p<0.05)로 매우 낮았다. 그림 1의 (b)에서 1995년 OC 및

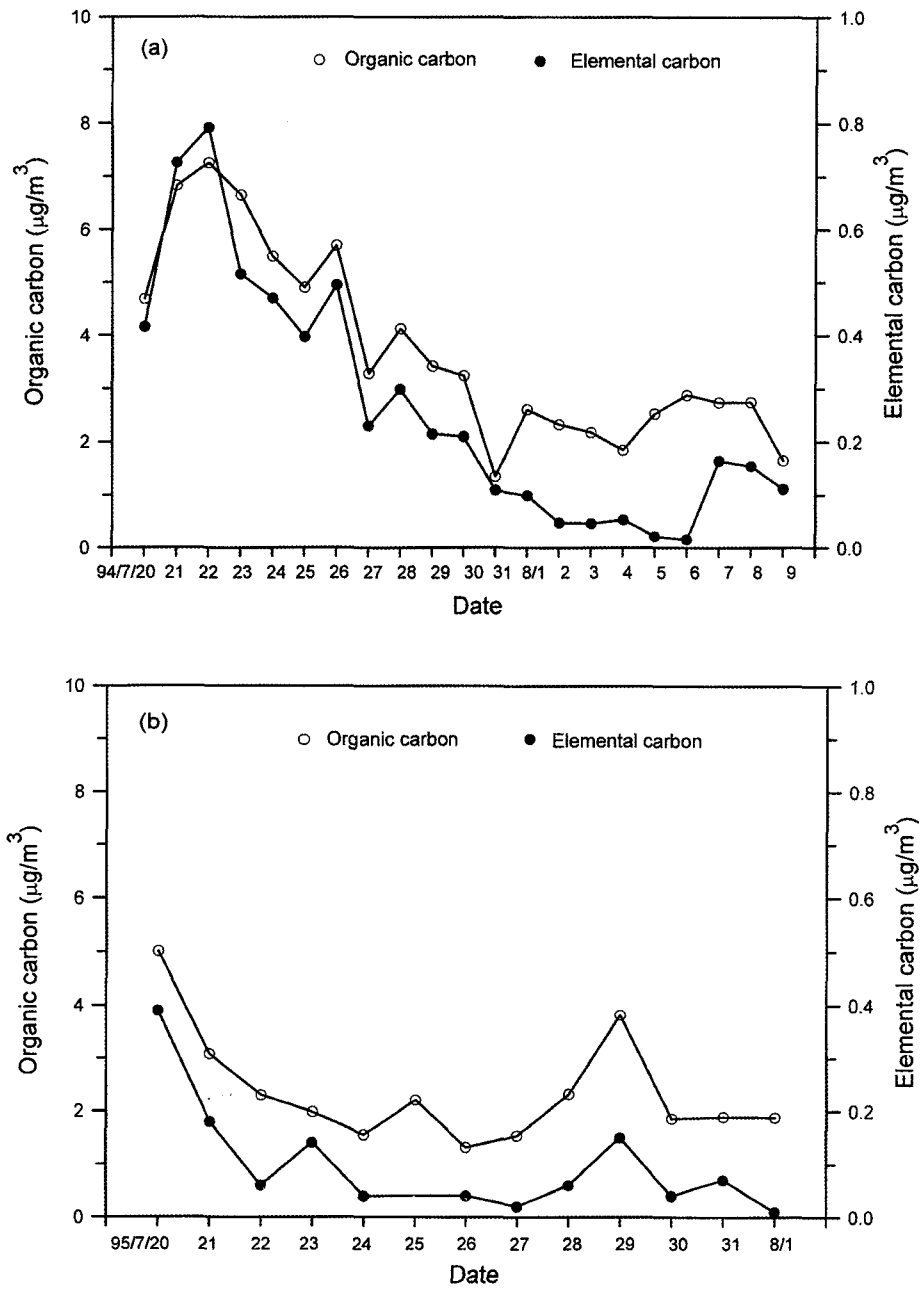


Fig. 1. Trends of daily mean concentrations of OC and EC during the two separate measurement periods, 1994 and 1995.

EC의 거동 역시 유사하였고, 상관계수는 0.91 ($p < 0.001$)로 매우 높았다.

제주도 고산지역에서 포집된 $2.5 \mu\text{m}$ 이하 미세

입자상 탄소성분 농도의 변동범위와 평균농도를 표 1에 보였다. OC는 1994년이 1995년보다 더 큰 변동범위를 나타냈으며, 평균농도 또한 1994년이

Table 1. Carbonaceous species of fine particles for the measurement periods at Kosan, Cheju Island.*

	Mean ± Standard Deviation of the Mean ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) (Range)			OC/EC	TC/EC
	OC	EC	TC		
1994 Jul ¹⁾	4.58 ± 0.49 (1.34 ~ 7.26)	0.38 ± 0.06 (0.10 ~ 0.79)	4.96 ± 0.55 (1.45 ~ 8.05)	13.6	14.6
1994 Aug ²⁾	2.36 ± 0.16 (1.65 ~ 2.88)	0.08 ± 0.02 (0.02 ~ 0.16)	2.44 ± 0.16 (1.76 ~ 2.90)	59.5	60.5
1994 Tot	3.74 ± 0.39	0.27 ± 0.05	4.00 ± 0.44	31.1	32.1
1995 Jul ³⁾	2.36 ± 0.29 (1.31 ~ 5.01)	0.10 ± 0.03 (0.01 ~ 0.39)	2.46 ± 0.31 (1.35 ~ 5.40)	46.3	47.3

* OC : oranic carbon, EC : elemental carbon, TC : total carbon

¹⁾ July 20 ~ August 1

²⁾ August 2 ~ 9

³⁾ July 20 ~ August 1

1995년에 비해 더 높게 나타났다. EC 농도 역시 1994년이 1995년보다 더 높게 측정되었다. 1994년 7월에는 OC 및 EC의 변동폭과 평균농도가 다같이 8월 결과 보다 높게 나타났다.

한편, 1995년의 측정은 1994년 7월의 측정과 기간이 동일한데, 평균농도면에서는 훨씬 낮고 8월 결과와 비슷한 수준이었다. EC 및 OC의 농도는 1994년 7월 > 1995년 > 1994년 8월의 순으로 비슷하게 나타났다.

표 1에서 1994년의 측정을 7월과 8월로 구분한 것은 김용표 등(1996c)의 공기의 역궤적분석(back trajectory analysis)결과에 따른 것이다. 즉, 고산지역에 도달하는 공기가 중국과 한반도 및 일본 등 육지를 경유하는 기간인 7월 20일~8월 1일과 북태평양 해양을 경유하는 8월 2~9일의 두 기간으로 분류할 수 있다. 두 기간의 OC 및 EC 농도에는 큰 차이가 있는데, 육지를 경유한 공기 중의 OC 농도는 $4.58 \pm 0.49 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 인 반면, 육지를 경유하지 않은 공기 중의 OC 농도는 $2.36 \pm 0.16 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로, 7월보다 약 2배 정도 낮고 1995년 측정치와 거의 유사하다. EC는 공기가 육지를 경유한 7월에는 $0.38 \pm 0.06 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 였고, 해양을 경유한 8월에는 $0.08 \pm 0.02 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 7월의 약 20% 수준이었다. 즉, 1994년 7월에 고산지역의 탄소농도가 상승한 것은 공기가 한반도를 비롯하여 육지를 지나는 동안 육지에서 발생된 OC 및 EC가 고산지역으로 이동되어 음에 따른 것으로서, 고산지역이 경우에 따라 중국이나 일본 등

대륙에서 발생한 대기오염물질의 장거리이동에 영향 받을 수 있음을 알 수 있다. 북태평양 해양성 공기가 지나는 1994년 8월의 OC 및 EC 농도는 1995년의 농도와 매우 비슷하게 측정된 것을 표 1에서 확인할 수 있으며, 따라서 두 기간의 기상적 조건이 유사할 것으로 생각되나, 보다 정확한 분석을 위해서는 1995년 측정기간에 대해서도 공기의 역궤적분석을 수행하여야 할 것이다.

3.2 탄소 농도 비교

지역간 농도비교를 하기에 앞서 입경별 OC 및 EC의 농도분포를 살펴보는 것은 중요하다. 왜냐하면, 본 연구에서 측정된 탄소와 비교된 몇몇 다른 지역의 탄소농도는 TSP 중에 포함된 탄소성분이기 때문이다. Wolff *et al.* (1986)은 대서양의 전원지역인 Lewes, Delaware에서 1982년 여름과 1983년 겨울에 조대 및 미세입자 중 탄소성분을 측정하였다. 그 결과를 보면, 미세입자($D_p \leq 2.5 \mu\text{m}$) 중 OC 및 EC의 농도는 조대입자($2.5 \leq D_p < 10 \mu\text{m}$) 중의 농도보다 각각 3배, 9배 크게 나타났다. 또한, OC와 EC의 평균 질량중양경(mass median aerodynamic diameter)은 약 $0.4 \mu\text{m}$ 였다. Appel *et al.* (1983)은 입자상 탄소 성분은 주로 입경 $3.5 \mu\text{m}$ 이하로 존재하며, 그 중에서도 대부분이 $1 \mu\text{m}$ 이하인 것으로 추정하였다. 따라서, 본 연구에서는 Okinawa와 Nagano에서 측정된 TSP 중 OC 및 EC를 제주에서 측정된 PM_{2.5} 중 OC와 EC와 동일선상에 놓고 그 농도를 비교하였

다.

과거에 Lau와 Khalil (1993)의 연구결과를 보면, 고산측정과 비슷한 기간 중에 청정한 태평양해상에서 포집한 미세입자(2 μm 이하) 중 OC의 농도는 0.2~0.95 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, EC의 농도는 0.05 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이하였다. 이 농도와 고산에서의 측정결과를 비교해 보면, 고산의 1994년 8월 OC 농도는 1.65~2.88 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 였고, 1995년의 OC 농도는 1.31~5.01 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 여서 태평양에서 측정된 농도보다 훨씬 높다. 이와 달리 EC는 1994년 8월 및 1995년의 고산 측정값과 Lau와 Khalil (1993)의 측정값이 큰 차이를 보이지 않는다. 이밖에 Parungo *et al.* (1994)이 1993년 7~9월에 Beijing과 여기서 40km 떨어진 전원지역 West Mountain에서 측정된 블랙카본농도는 각각 2.61 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 과 1.71 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 였다. 여기에 비해 고산의 EC 농도는 대륙성 공기의 영향을 강하게 받은 1994년 7월에도 Parungo *et al.*의 결과에 미치지 못한다. 그러나, Parungo *et al.*(1994)이 동중국해상에서 측정된 블랙카본농도는 평균 0.35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 고산의 1994년 7월의 EC 농도보다 조금 낮다. 측정기간 중에서 가장 낮은 오염도를 보인 1994년 8월의 고산지역 EC 농도

는 매우 청정한 지역으로 알려져 있는 Hawaii의 Mauna Loa Observatory에서 측정된 월평균 블랙카본농도인 1~30 ng/m^3 (Bodhaine *et al.*, 1992)와 비교해 약 2.7배 정도 높다. Okita *et al.* (1986)은 제주지역으로부터 약 1,200km 이상 떨어진 일본 중부 근해에 위치한 Hachijo Island에서 1981년 1월에 총부유먼지(TSP) 중 탄소성분을 측정하였다. 이 섬의 OC 농도는 3.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 1994년 고산지역의 일평균 OC 농도, 3.74 \pm 0.39 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 보다는 약간 낮고 1995년 보다는 높다. 또한, EC농도는 0.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 고산지역의 모든 측정기간에 비해 높다. 이것은 Hachijo Island가 일본 서부와 중부의 주요 공업 및 도시지역을 경유한 공기에 의해 영향을 받았기 때문으로 볼 수 있다.

그림 2와 3은 제주도 고산의 OC 및 EC 측정결과를 외국의 다른 지역에서 측정된 OC 및 EC 측정결과와 비교한 것이다. 이러한 비교로부터 고산의 EC 농도가 다른 청정지역의 EC 농도에 필적하는 수준이지만, OC 농도는 다른 청정지역들 보다 높다는 것을 알 수 있다. 그림에서 원(circle)은 평균농도, 바(bar)는 농도범위를 나타낸다. 1986년과 1994년 6

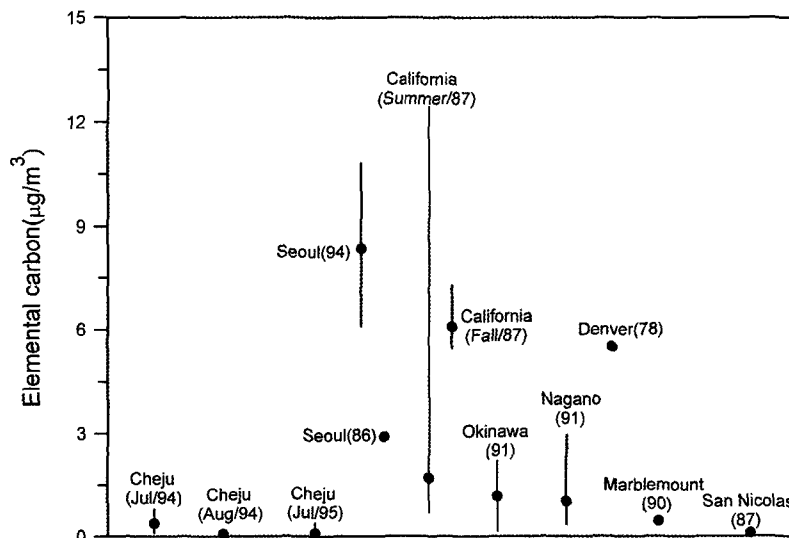


Fig. 2. Organic carbon concentrations in Cheju Island and other places. Numbers in parentheses are the years of measurements. Circles and bars represent average concentrations and ranges, respectively. Particles at all measurement sites are PM_{2.5}, except but Okinawa and Nagano, in which TSP was measured (Cheju: this work; Seoul(94): 문길주 등, 1994; California and San Nicolas: Chow *et al.*, 1994; Marblemount: Malm *et al.*, 1994; Denver: Countess *et al.*, 1980; Seoul(86): 이민희 등, 1986; Okinawa and Nagano: Hatakeyama, 1993).

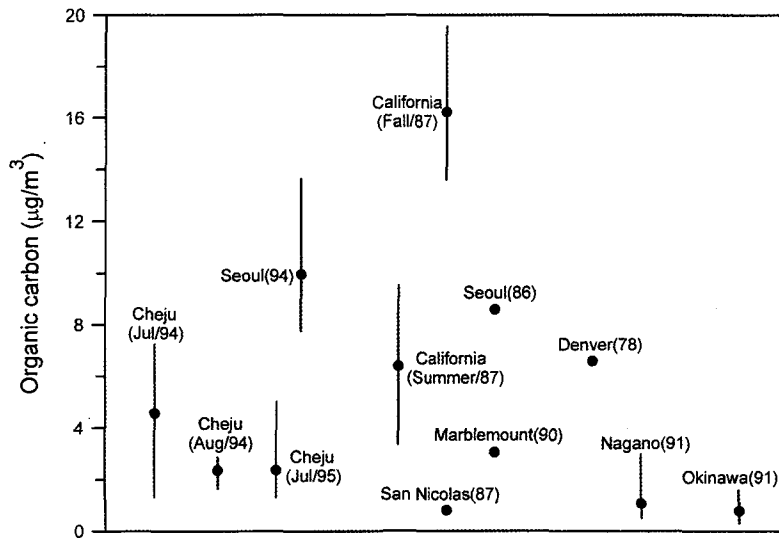


Fig. 3. Elemental carbon concentrations in Cheju Island and other places. Numbers in parentheses are the years of measurements. References are the same as those in Fig. 2.

월에 서울의 미세 입자상(PM2.5) 탄소농도는 OC가 각각 8.6 µg/m³과 9.97 µg/m³, EC가 각각 2.9 µg/m³과 7.57 µg/m³이며(문길주 등, 1994; 이민희 등, 1986), 1994~1995년 평균 고산지역 OC 농도는 서울지역 OC 농도의 30~35%에 해당하고 EC 농도는 2~6%에 해당한다. 바꿔 말하면, 탄소성분의 서울/제주지역 농도 비가 OC는 ~3인 반면에 EC는 16~40이다. EC 농도의 서울/제주지역 비가 이처럼 큰 값을 나타내는 것은 EC의 발생원과 밀접한 관계가 있는 것으로서, 제주도에서는 EC에 대한 일차 발생원의 기여가 우리나라의 대표적 오염지역인 서울에 비해 매우 작기 때문이다. 그러나, OC 농도의 지역비가 EC의 경우와는 다르게 큰 차이를 보이지 않는 것은 OC는 EC처럼 발생원에서 직접 배출되기도 하지만 광화학 반응 등에 의해 대기 중에서 이차적으로도 생성되므로, 해당 측정지역의 배출원조건과 측정 당시의 기상학적 요인 등이 함께 작용한 결과일 것으로 생각한다(Turpin *et al.*, 1991).

1994년 7, 8월과 1995년 7월의 OC 농도는 국내의 대표적 오염지역인 서울(1994: 9.97 µg/m³; 1986: 8.6 µg/m³)과 외국 도시지역인 California의 1987년 여름(6.39 µg/m³)/가을(16.22 µg/m³) 및 Denver(6.6 µg/m³)보다 모두 낮은 값을 보이고 있어 제주도의

OC 농도가 국내의 도시지역보다는 매우 낮은 것을 알 수 있다. 그러나, 1994년 7월의 OC 농도는 미국 청정지역인 Marblemount (3.06 µg/m³)나 Tahoma (3.56 µg/m³) 보다는 높았으며, 1994년 8월과 1995년에도 OC 농도는 일본의 해양지대인 Okinawa (0.78 µg/m³), 산악지대인 Nagano (1.07 µg/m³) 및 미국의 청정지역인 San Nicolas Is. (0.81 µg/m³) 보다도 높은 것으로 나타났다. 청정지역에서 OC의 주배출원은 해양 또는 육상식물인 것으로 알려져 있다(Mazurek *et al.*, 1991). 이로써 고산지역에서 측정된 OC 농도는 외국의 녹지 또는 청정지역에 비해 더 높다고 할 수 있다. 앞에서 서술한 바와 같이 장거리 이동에 의해 외부로부터 OC 성분이 유입되어 제주지역의 OC 농도를 상승시켰을지라도 서울과 California 등 대도시지역의 OC 농도에는 미치지 못하는 것을 볼 수 있다. 이것은 외부 지역으로부터 OC가 이동해 오는 동안 생성됨과 더불어 소멸되기도 하며, 제주도내 OC의 발생원 분포가 적어 대도시 지역에 비해 발생원에 따른 직접적인 영향이 매우 작기 때문이다. 그러나, 본 연구의 측정기간 중 제주지역 OC 농도는 외국의 비오염지역들에 비해서는 높다고 할 수 있다. 따라서, 이 기간에 측정된 OC 농도는 제주도 자체의 오염원보다는 외부에서의 유입에

더 많은 영향을 받은 것으로 보인다.

그림 3에서 1994~1995년의 EC 농도는 미국의 대도시에 해당하는 Denver ($5.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$)나 미국 California 여름 ($1.69 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 및 가을 ($6.07 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 보다는 낮았다. OC의 경우와 마찬가지로 외부로부터 EC가 유입되었을지라도 절대농도는 이들 지역이나 서울 (1994: $7.57 \mu\text{g}/\text{m}^3$; 1986: $2.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$)에 비해서는 매우 낮다. 또한, EC 농도는 모든 측정기간에 대하여 일본의 해양지역인 Okinawa ($1.17 \mu\text{g}/\text{m}^3$)와 산악지대인 Nagano ($1.02 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 보다 낮은 값을 나타내고 있다. 특히, Nagano지역은 측정지역의 지리적 특성과 주위에 입자상 오염물질의 발생원이 별로 없다는 점에서 제주도와 비슷하여 좋은 비교가 된다. 여름에 $2.5 \mu\text{m}$ 이하의 탄소입자를 측정된 미국 Washington주의 녹지지역인 Marblemount는 North Cascade National Park 근처에 위치하고 해발 250 m인 곳으로서, 제주도의 1994년 7월의 EC 농도 $0.38 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 는 이 지역의 EC농도 $0.44 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 나 같은 녹지지역인 Tahoma의 $0.70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 보다 낮다. 1994년 8월 ($0.08 \mu\text{g}/\text{m}^3$)과 1995년 ($0.10 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 EC 농도는 Marblemount와 Tahoma 보다는 낮았고 1987년 여름 미국 남부 California지역의 대기질 배경농도 측정지역인 San Nicolas Is. ($0.10 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 EC 농도에 필적하였다. 이 지역은 해안에서 100 km 이상 떨어져 있고 주위에 자동차 등에 의한 배출이 없는 청정한 지역이다.

종합하면, 고산지역의 측정기간 중 농도가 비교적 높은 1994년 7월 측정시 EC 농도는 외국 녹지지역 보다 낮은 수준이었고, 농도가 낮았던 1994년 8월과 1995년 측정시에는 대도시 주위의 해양 청정지역인 San Nicolas Is.와 비슷한 농도분포를 보였으며, 고산지역의 EC 농도는 국내외 도시지역들에 비해서는 매우 낮았다. 이러한 결과는 앞에서 서술한 동북아시아지역에서의 EC 농도 비교결과와도 일치한다. 다른 지역의 탄소성분농도와 비교함에 있어 탄소성분의 입경별 분포비에 대해서는 이미 앞에서 서술하였다.

3.3 OC/EC 및 TC/EC

각 측정기간 중에 관측된 자료를 활용하여, EC 농도에 대한 OC 농도의 비(OC/EC)를 계산하면 그 비는 1994년에 31.1, 1995년에 46.3으로 1995년이

OC/EC가 더 큰 것으로 나타났다. 1994년만을 살펴 보면 8월에 OC/EC는 약 59.5로서 7월의 13.6보다 훨씬 더 높다. 이처럼 고산측정소로 대표되는 제주도에서 측정된 미세입자상탄소 중에는 OC가 EC보다 더 높은 비율로 존재한다. 이같은 비율은 서울 등 도시지역의 경우와 비교할 때 큰 차이를 보인다. 1994년 6월 서울의 미세 입자상탄소의 OC/EC는 1.34로서, 이 비는 고산지역이 서울보다 약 10~40 배 더 높다.

이러한 비는 우리나라의 청정지역인 제주도와 오염된 대도시지역인 서울의 입자상탄소에 의한 대기 오염형태가 서로 다름을 보여주는 것으로서, 오염지역에서는 EC에 의한 대기오염이 상대적인 우위를 차지하는 반면, 청정지역에서는 OC에 의한 영향이 EC에 의한 영향에 비해 상대적으로 더 크게 작용함을 알 수 있다. OC/EC가 2 이상일 때 이차유기입자가 존재할 수 있다고 추정되는데 (Chow *et al.*, 1993), 고산지역의 OC/EC는 모두 2 이상인 반면에 서울은 그 이하이므로 고산지역은 이차유기입자가 존재할 가능성이 큰 반면, 서울은 대부분이 일차유기입자로 존재할 것으로 예상된다. 이것은 또한 TC/EC로도 설명가능하다. TC/EC는 입자상 탄소성분이 일차 오염원의 영향을 주로 받는지 아니면 광화학반응 등에 의해 이차적으로 생성된 것인지를 가능할 수 있는 지표로 사용될 수 있다. TC/EC가 크면 오염물질이 이동하는 동안 광화학 반응에 의한 이차오염의 가능성이 크고, TC/EC가 작으면 일차 오염원에 의해 직접 영향을 받는다(Gray *et al.*, 1986). 그림 4는 제주지역에서 구한 TC/EC를 국내외의 여러 지역들의 TC/EC와 비교하여 나타낸 것이다. 그림에서 y축을 대수(logarithm)로 나타낸 것은 지역별 비교시 도시상의 편의를 위함이며 특별한 의미는 없다.

제주지역의 TC/EC는 1994년 7월이 14.6이고 8월에는 이보다 훨씬 높은 60.5를 나타내었다. 1995년에는 47.3의 비를 보였다. 이러한 TC/EC는 일본의 비오염지역인 Okinawa (2.4)나 Nagano (2.1) 보다 월등히 커서, 이 두 지역에서 측정된 탄소성분이 일차오염원에 의해 직접적으로 영향을 받는다면, 제주지역은 광화학 반응 등에 의한 간접적인 영향이 지배적이라고 생각할 수 있다. Okinawa와 Nagano는 OC와 EC의 농도가 크게 다르지 않고(그림 2, 3 참조),

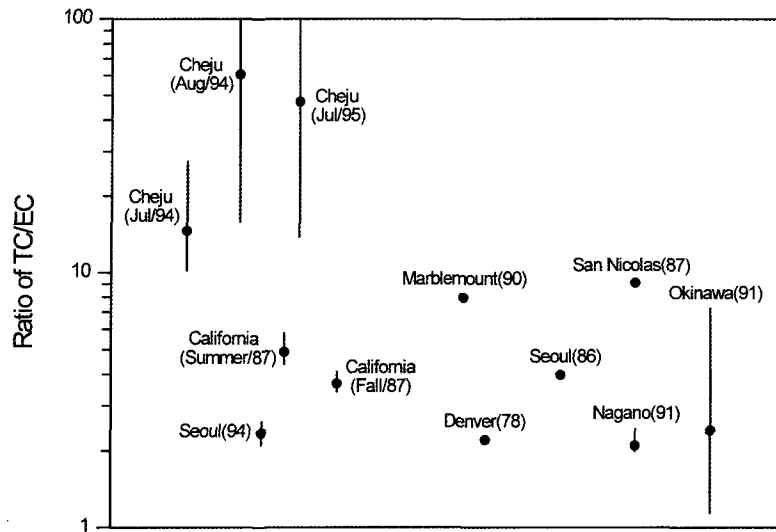


Fig. 4. Ratio of total carbon to elemental carbon (TC/EC) in Cheju Island and other places. Numbers in parentheses represent the years of measurements. References are the same as those in Fig. 2.

OC/EC가 약 1.0~1.5 정도로써 OC 및 EC가 일차 오염원의 영향을 받았다고 보여진다. 제주지역의 TC/EC는 미국 Washington주 Tahoma (6.1)나 Marblemount (8.0)보다 훨씬 높다. 또한, 서울과 미국 Denver는 물론이고 미국 California 여름 및 가을에 비해서도 큰 값을 나타내는 것으로 볼 때, 고산지역에서 입자상 탄소에 의한 대기오염의 주 원인이 광화학 반응에 의해 생성된 이차유기입자일 가능성이 있다. 다만, 이러한 광화학 반응이 제주지역내에서 배출된 오염물질이 주로 관계된 것인지 아니면 외부로부터 장거리 이동되는 동안 일어난 것인지는 현재로서는 구분하기가 어렵다. 유적선분포를 통해 알 수 있는 1994년 7월의 경우, OC는 EC와 함께 장거리 이동하는 동안 이차적으로 생성되었거나 이미 입자화한 뒤 고산지역으로 이동하였을 가능성이 높은 것으로 생각한다. 이와는 달리 육지를 거치지 않고 북태평양을 경유한 공기가 제주지역에 유입한 1994년 8월 동안은 OC가 일본내 비오염지역 및 해양청정지역보다는 높은 농도를 보이고 EC와 낮은 상관관계를 보여, 일차유기입자가 아님을 시사한다. 즉, 제주지역내 국소 오염원에서 배출된 유기성 기체로부터 입자화한 OC가 해양의 배경농도와 함께 고산지역 OC 농도에 주로 기여했을 것으로 생각된다.

다. 이와 함께 측정된 OC가 자연발생원으로부터 생겼을 가능성도 배제할 수 없다. 이러한 결과들은 1994년의 7월과 8월의 OC 및 EC 농도에 대한 오염원의 기여형태가 다르리라는 것을 시사한다. 한편, 1994년 7월에 비해 1994년 8월과 1995년의 TC/EC가 높은 것은 OC에 대해 EC 농도가 상대적으로 낮았기 때문인데, 1994년 8월에 들어서 OC 농도는 7월 OC 농도의 약 50%로 감소한 반면 EC 농도는 7월 EC 농도에 비해 80%나 감소하여, 8월에 OC 농도에 대한 EC 농도의 격차가 상대적으로 커졌기 때문이다. 그렇지만, 고산의 OC 농도의 증가가 이차유기입자에 의한 것이 아니라 일차입자에 기인하였을 가능성도 배제할 수는 없다. 즉, 다른 지역에서 배출된 일차유기입자가 장거리 이동하는 경우인데, 이런 가정이 가능한 것은 이번 측정기간에 고산의 OC와 EC는 높은 상관관계를 보여주었다는 점이다. 그러나, 만일 이차입자생성이 유리한 조건이라면 장거리 이동하는 동안 광화학 전구물질과 관련한 반응이 일어났을 것이고, 생성된 이차유기입자는 함께 이동하는 원소탄소와 높은 상관관계를 나타낼 수 있다(Turpin and Huntzicker, 1995). 따라서, 지금의 연구로는 고산에서 측정된 OC의 존재형태에 대해서 어떠한 결론도 내릴 수 없으며 다만, 여러가지 가능한 상황

에 대한 추정만이 있을 따름이다. 또한, 이러한 OC/EC나 TC/EC는 도시지역에서 측정된 농도를 대상으로 한 것이기 때문에 청정지역에서는 다르게 나타날 수 있다.

4. 결 론

제주도는 우리나라에서 청정한 지역에 속하며 이 지역에서 입자상 탄소를 측정된 연구는 아직까지 전혀 없었다. 그러므로, 이 연구는 제주지역의 탄소 성분에 관한 최초의 연구라 할 수 있을 것이다. 탄소입자의 측정은 1994년 7월 20일~8월 10일, 1995년 7월 20일~8월 1일 등 1994년과 1995년 여름에 걸쳐 제주도 북제주군 한경면 고산리 수월봉에 위치한 고산측정소에서 수행하였다. 측정기간 중 OC 및 EC의 일평균 농도는 1994년에 각각 $3.74 \pm 0.39 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $0.27 \pm 0.05 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 였으며, 1995년에는 $2.36 \pm 0.29 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $0.10 \pm 0.03 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 였다. 제주지역의 OC 농도는 EC 농도 보다 높아서 TC에서 OC가 차지하는 비율은 측정기간 전반에 걸쳐 90% 이상이었다. 제주지역의 입자상탄소농도는 국내외의 도심지역에 비하면 그 농도가 훨씬 낮다. 하지만, OC 농도는 외국의 청정지역 등 비오염지역에 비해서는 높은 수준이며, EC는 외국의 녹지지역이나 해양청정지역과 비슷하거나 그 중간수준인 것으로 나타났다. 제주지역의 TC/EC는 국내외 도시 및 청정지역에서의 비보다 큰 것으로 계산되었다. 한편, 1994년 7월에는 대륙을 경유한 오염된 공기가 고산지역을 지나면서 OC 및 EC 농도를 상대적으로 상승시켰고, 동년 8월의 OC 및 EC 농도는 북태평양 해양성 기단의 영향을 주로 받은 여름철의 해양배경농도인 것으로 생각한다. 이번 측정기간에 고산지역에서 측정된 OC가 일차입자인지 또는 이차입자인지의 여부는 명확히 밝힐 수 없으나, 이들 물질이 장거리 이동 중에 대기조건에 따른 광화학 반응으로 생성될 가능성이 충분하다고 보여진다.

사 사

이 연구 중 1994년 연구는 과학기술처, 1995년 연구는 기상연구소의 지원으로 이루어졌습니다. 측정에 많은 도움을 주신 제주대학교 허철구, 강창희

교수팀에 감사드립니다.

참 고 문 헌

김용표, 심상규, 문길주, 백남준, 김성주, 허철구, 강창희 (1995) 제주도 고산지역 입자특성: 1994년 3월 11~17일 측정결과, 한국대기보전학회지, 11(3), 263-272.

김용표, 박세욱, 김진영, 심상규, 문길주, 이호근, 장광미, 박경윤, 강창희 (1996a) 고산에서의 1994년 3월~4월 측정연구: (I) 입자상 오염물질의 이동, 한국대기보전학회지, 12(1), 79-90.

김용표, 김진영, 박세욱, 김성주, 심상규, 문길주, 박경윤, 허철구 (1996b) 고산에서의 1994년 3월~4월 측정연구: (II) 기체상 대기오염물질의 특성, 한국대기보전학회지, 12(1), 91-99.

김용표, 김성주, 진현철, 백남준, 이종훈, 김진영, 심상규, 강창희, 허철구 (1996c) 제주도 고산에서의 1994년 여름 측정: (I) 입자 이온 조성, 한국대기보전학회지, 12(3), 297-305.

문길주, 심상규, 김용표, 백남준, 박세욱, 송철환, 김진영, 이종훈, 김성주, 진현철 (1994) 서울 지방의 스모그 현상 연구 (III), 한국과학기술연구원.

박경윤, 이호근, 서명석, 장광미, 강창희, 허철구, 김영준 (1994) 제주도 고산 측정소에서의 대기오염 배경농도 측정 및 분석, 한국대기보전학회지, 10(4), 252-259.

백남준, 이종훈, 김용표, 문길주 (1996) 1994년 6월 서울지역 시정장애의 측정 및 분석, 한국대기보전학회지, 12(4), 407-419.

심상규, 강창희, 김용표 (1994) 제주도에서의 빗물 이온 분석, 한국대기보전학회지, 10(2), 98-104.

이민희, 한의정, 한진석, 정해동, 한자경 (1986) 대기중 에어로졸 동태에 관한 연구, 국립환경연구원보, 8, 65-75.

이민희, 한의정, 신찬기, 한진석, 정해동, 사원희 (1987) 대기중 입자상물질의 생성 및 동태에 관한 연구, 국립환경연구원보, 9, 27-41.

이종훈, 백남준, 김용표, 문길주 (1995) 1993년 8월의 서울지역 시정 연구, 한국대기보전학회지, 11(3), 291-298.

홍민선, 이상훈, 이동섭, 강창희, 박경윤 (1992) 제주도 고산에서의 대기오염물질 측정 및 분석에 관한 연구, 한국대기보전학회지, 8(4), 257-261.

Adams, K.M., L.I. Davis, Jr., S.M. Japar, and W.R. Pierson (1989) Real-time, in situ measurements of atmospheric optical absorption in the visible via photoa-

- coustic spectroscopy: II. Validation for atmospheric elemental carbon aerosol, *Atmos. Environ.*, 23, 693-700.
- Adams, K.M., L.I. Davis, Jr., and S.M. Japar (1990) Measurement of atmospheric elemental carbon: Real-time data for Los Angeles during summer 1987, *Atmos. Environ.*, 24A, 597-604.
- Appel, B.R., Y. Tokiwa, and E.L. Kothny (1983) Sampling of carbonaceous particles in the atmosphere, *Atmos. Environ.*, 17, 1787-1796.
- Bodhaine, B., J.M. Harris, J.A. Ogren, and D.J. Hofmann (1992) Aerosol optical properties at Mauna Loa Observatory: Long-range transport from Kuwait, *Geophys. Res. Lett.*, 19, 581-584.
- Cadle, S.H., P.J. Globlicki, and D.P. Stroup (1980) Automated carbon analyzer for particulate samples, *Anal. Chem.*, 52, 2201.
- Chow, J.C., J.G. Watson, D.H. Lowenthal, P.A. Solomon, K.L. Magliano, S.D. Ziman, and L.W. Richards (1993) PM₁₀ and PM_{2.5} compositons in California's San Joaquin Valley, *Aerosol Sci. and Tech.*, 18, 105-128.
- Chow, J.C., J.G. Watson, E.M. Fujuta, Z. Lu, and D.R. Lawson (1994) Temporal and spatial variations of PM_{2.5} and PM₁₀ aerosol in the southern California air quality study, *Atmos. Environ.*, 28, 2061-2080.
- Conklin, M.H., G.R. Cass, L.C. Chu, and E.S. Macias (1981) Source/air quality relationships, in *Atmospheric Aerosol*. Edited by E.S. Macias and P.K. Hopke, ACS symposium series 167, American Chemical Society, Washington, DC, 235-250.
- Countess, R.J., G.T. Wolff, and S.H. Cadle (1980) The Denver winter aerosol: A comprehensive chemical characterization, *JAPCA*, 30, 1194-1200.
- Fung, K.(1990) Particulate carbon speciation by MnO₂ oxidation, *Aerosol Sci. and Techol.*, 12, 122-127.
- Globlicki, P.J., G.T. Wolff, and R.J. Countess (1981) Visibility-reducing species in the Denver 'Brown Cloud': I. Relationships between extinction and chemical composition, *Atmos. Environ.*, 15, 2473-2484.
- Gray, H.A.(1986) Control of atmospheric fine primary carbon particle concentrations, EQL report No.23, Environmental Quality Laboratory, California Institute of Technology, Pasadena, California, 103-108.
- Gray, H.A., G.R. Cass, J.J. Huntzicker, E.K. Heyerdahl, and J.A. Rau (1986) Characteristics of atmospheric organic and elemental carbon particle concentrations in Los Angeles, *Environ. Sci. Technol.*, 20, 580-589.
- Hamilton, R.S. and T.A. Mansfield (1991) Airborne particulate elemental carbon: Its source, transport and contribution to dark smoke and soiling, *Atmos. Environ.*, 25A, 715-723.
- Hatakeyama (1993) *Data of '91 IGAC/APARE/PEACAMPOT Survey: Studies to Clarify the Behavior of Acidic and Oxidative Component in East Asia*, 1991 Global Environment Research Program Budget of Environment Agency, National Institute for Environmental Studies.
- Hatakeyama (1995) *Data of '92 IGAC/APARE/PEACAMPOT Survey: Studies to Clarify the Behavior of Acidic and Oxidative Component in East Asia*, 1992 Global Environment Research Program Budget of Environment Agency, National Institute for Environmental Studies.
- Heintzenberg, J.(1989) Fine particles in the global troposphere: A review, *Tellus*, 41B, 149-160.
- IARC Working Group (1980) *Cancer Res.*, 40, 1-12.
- Lau, J.A. and M.A.K. Khalil (1993) Anthropogenic contributions to the carbonaceous content of aerosols over the Pacific ocean, *Atmos. Environ.*, 27A, 1297-1307.
- Macias, E.S., J.O. Zwicker, J.R. Quimette, S.V. Hering, S.K. Friedlander, T.A. Cahill, G.A. Kuhlmeier, and L.W. Richards (1981) Regional haze case studies in the southwestern U.S: I. Aerosol chemical composition, *Atmos. Environ.*, 15, 1971-1986.
- Malm, W.C., K.A. Gebhart, J. Molenaar, T. Cahill, R. Eldred, and D. Huffman (1994) Examining the relationship between atmospheric aerosols and light extinction at Mount Rainer and North Cascade National Parks, *Atmos. Environ.*, 28, 347-360.
- Mazurek, M.A., G.R. Cass, and B.R.T Simoneit (1991) *Environ. Sci. Technol.*, 25, 684-694.
- McDow, S.R. and J.J. Huntzicker (1993) Vapor adsorption artifact in the sampling of organic aerosol, in *Sampling and Analysis of Airborne Pollutants*. Edited by E.D. Winegar and L.H. Keith, Lewis Publishers, Boca Raton, Florida, 191-208.
- Mueller, P.K., K.K. Fung, S.L. Heisler, D. Grosjean, and G.M. Hidy (1982) Atmospheric life cycle, in *Particulate Carbon*. Edited by G.T. Wolff and R.L. Klimisch, Plenum publishing corp., New York, 343

- 370.
- Okita, T., M. Okuda, K. Murano, T. Itoh, I. Kanazawa, M. Hirota, H. Hara, Y. Hashimoto, S. Tsunogai, S. Ohta, and Y. Ikebe (1986) *The characterization and distribution of aerosol and gaseous species in the winter monsoon over the western Pacific ocean*, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 4, 343-358.
- Parungo, F., C. Nagaomto, M.Y. Zhou, and A.D. Hansen (1994) *Aeolian transport of aerosol black carbon from China to The Ocean*, *Atmos. Environ.*, 28, 3251-3260.
- Pierson, W.R., R.A. Gorse, Jr., A.C. Szkarlat, W.W. Brachaczek, S.M. Japar, F.S.C. Lee, R.B. Zweidinger, and L.D. Claxton (1983) *Mutagenic and chemical characteristics of carbonaceous particulate matter from vehicles on the road*, *Environ. Sci. Technol.*, 17, 31-44.
- Pitts, J.N., Jr. (1983) *Formation and fate of gaseous and particulate matagens and carcinogens in real and simulated atmospheres*, *Environ. Health Perspect*, 47, 115-140.
- Turpin, B.J. and J.J. Huntzicker (1995) *Identification of secondary organic aerosol episodes and quantitation of primary and secondary organic aerosol concentrations during SCAQS*, *Atmos. Environ.*, 29, 3527-3544.
- Turpin, B.J., J.J. Huntzicker, S.M. Larson, and G.R. Cass (1991) *Los Angeles summer midday particulate carbon: Primary and secondary aerosol*, *Environ. Sci. Technol.*, 25, 1788-1793.
- Wolff, G.T., N.A. Kelly, M.A. Ferman, M.S. Ruthkosky, D.P. Stroup, and P.E. Korsog (1986) *Measurements of sulfur oxides, nitrogen oxides, haze and fine particles at a rural site on the Atlantic coast*, *JAPCA*, 36, 585-591.
- Wolff, G.T., M.S. Ruthkosky, D.P. Stroup, and P.E. Korsog (1991) *A characterization of the principal PM10 species in Claremont (summer) and Long Beach (fall) during SCAQS*, *Atmos. Environ.*, 25A, 2173-2186.
- Youden, W.J. (1977) *Statistical Methods for Chemists*, Robert E. Krieger Publishing Co., Huntington, NY, 17pp.