

## 준실시간 연속관측을 통한 제주 고산 PM<sub>2.5</sub> OC와 EC의 계절별 사례별 특성

### Semi-continuous Measurements of PM<sub>2.5</sub> OC and EC at Gosan: Seasonal Variations and Characteristics of High-concentration Episodes

한지현 · 방병조 · 이미혜\* · 윤순창<sup>1)</sup> · 김상우<sup>1)</sup> · 장임석<sup>2)</sup> · 강경식<sup>3)</sup>

고려대학교 지구환경과학과, <sup>1)</sup>서울대학교 지구환경과학부

<sup>2)</sup>국립환경과학원 대기환경과, <sup>3)</sup>제주대학교 해양과학부

(2011년 12월 23일 접수, 2013년 3월 9일 수정, 2013년 5월 14일 채택)

Jihyun Han, Byungjo Bahng, Meehye Lee\*, Soon-Chang Yoon<sup>1)</sup>,  
Sang-Woo Kim<sup>1)</sup>, Limseok Chang<sup>2)</sup> and Kyeong-Sik Kang<sup>3)</sup>

*Department of Earth and Environmental Sciences, Korea University*

<sup>1)</sup>*Department of Earth and Environmental Sciences, Seoul University*

<sup>2)</sup>*National Institute of Environmental Research, Air Quality Research Division*

<sup>3)</sup>*College of Ocean Science, Jeju National University*

(Received 23 December 2011, revised 9 March 2013, accepted 14 May 2013)

### Abstract

At Gosan ABC superstation in Jeju Island, we measured organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) in PM<sub>2.5</sub> from October 2009 to June 2010 using a Sunset Laboratory Model-4 Semi-Continuous OC/EC Field Analyzer. It employs TOT (Thermal-Optical-Transmittance) method with NIOSH 5040 protocol and enables to continuously monitor OC and EC concentrations with 1-hour time resolution. The mean values of OC and EC for the entire period of measurements were  $2.1 \pm 1.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  and  $0.7 \pm 0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , respectively. The OC/EC ratio was 3 and EC accounted  $25 \pm 2.1\%$  of total carbon (TC,  $\text{TC} = \text{OC} + \text{EC}$ ). Although OC and EC showed similar trend in seasonal variation, the ratio of OC to EC was the highest in early summer when temperature was the highest and the air was affected by biomass burning in the southern part of China. In winter, the high OC and EC concentrations were likely influenced by increased coal combustion from residential heating. The high OC and EC concentrations were observed during events such as haze, dust, and the combination of the two. During the haze events, OC and EC were enhanced with increase in PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>, SO<sub>2</sub>, and NO<sub>2</sub> with broad maxima. When dust occurred, both OC and EC started decreasing after reaching their maxima a couple of hours before PM<sub>10</sub> maximum. The peak separation of carbonaceous species and aerosol masses with time was more noticeable when haze event

\*Corresponding author.

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

was followed by dust plume. These results confirm that OC and EC are key components of haze occurring in the study region.

**Key words :** PM<sub>2.5</sub>, OC, EC, Haze, Asian dust, Gosan ABC superstation

## 1. 서 론

대기 중 부유하고 있는 에어러졸은 태양빛을 흡수, 반사하여 대기 복사에 영향을 주며, 구름응결핵으로 구름을 형성하는 등 기후변화에 중요한 물질로 알려져 있다(Isaksen *et al.*, 2009; Andreae *et al.*, 2004; Charlson *et al.*, 1992). 특히 전체 에어러졸 중 약 10%에서부터 많게는 40% 이상을 차지하는 탄소 성분의 경우(Monks *et al.*, 2009; Andreae and Rosenfeld, 2008; Solomon *et al.*, 2003), 전 지구적으로 직접 또는 간접적으로 지구 복사 평형에 영향을 주어 지구의 온난화 또는 냉각화를 유발하는 중요한 물질로 알려져 있으나 오존과 같은 다른 오염물질에 비해 그 이해도는 상대적으로 낮다(IPCC, 2007). 탄소성 에어러졸은 크게 유기탄소(organic carbon, 이하 OC)와 원소탄소(elemental carbon, 이하 EC)로 구분할 수 있는데, OC는 대기 중으로 직접 배출되기도 하며, 대기 중 가스상 오염물질의 산화(gas-to-particle conversion) 또는 1차 생성 에어로솔의 산화 등을 통하여 이차 유기탄소(Secondary Organic Carbon, 이하 SOC)로 변환되기도 한다(Szidat *et al.*, 2009; Kim *et al.*, 1998). OC는 여러 종류의 유기물들이 혼합되어 있는 형태로 Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) 등을 포함하여 인체에 유해한 영향을 미친다(Yang *et al.*, 2005). EC는 화석연료(디젤, 가솔린 등)와 생체소각(biomass burning)의 불완전한 연소로부터 직접 배출되며 검댕(soot) 혹은 검정 탄소(BC; black carbon), 광흡수 탄소(light-absorbing carbon) 라고도 불린다(Chow *et al.*, 2009). 따라서 EC는 일차적인 인위적 대기 오염의 지시자 역할을 할 뿐 아니라 지구온난화를 유발하는 물질로 관심을 끌고 있다(He *et al.*, 2004).

한국을 비롯한 중국, 일본, 대만 등이 위치해 있는 동북아시아는 최근 급격한 경제 성장과 산업화로 인해 인위적인 에어러솔 및 전구 기체들의 배출이 빠

르게 증가하는 추세이다(Monks *et al.*, 2009; Streets *et al.*, 2003, 2001). 동아시아 대륙의 풍하 지역에 위치한 우리나라는 동북아시아에서 인위적으로 배출된 에어로졸과 시베리아 또는 중국 동부 지역 등 동북아시아 지역에서의 생체소각에 의한 에어로졸의 영향을 받고 있으며, 이들 에어로졸이 동북아시아의 기후변화에 미치는 영향은 큰 것으로 보고되고 있다(Cao *et al.*, 2006; Choi and Chang, 2006; Yang *et al.*, 2005; Streets *et al.*, 2001). 특히 최근 동아시아 지역에서 발생되고 있는 ABC (Atmospheric Brown Cloud, 대기갈색연무)는 주로 매연이나 황산화물 및 질산화물 등의 각종 인위적인 대기오염물질에 의해 발생하는 것으로 이러한 월경성 대기 에어러솔이 기후변화에 미치는 영향을 예측하기 위해서는 장기적인 관측이 필수적이다(Ramanathan *et al.*, 2008).

고산 측정소는 동아시아 대륙의 풍하지역에 위치하며 제주도의 서쪽 끝에 위치하여 국지적인 오염원이 거의 없다(Song *et al.*, 2010; Lee *et al.*, 2007). 따라서 동아시아 대륙에서의 오염물질의 장거리 이동을 관측하는데 적합하다(Lim *et al.*, 2012; Chen *et al.*, 1997; Carmichael *et al.*, 1996). 이에 고산에서는 PM<sub>2.5</sub> 중 OC와 EC의 장거리 수송 및 계절적 영향을 살펴보기 위한 연구가 여러 차례 수행되었다(Batmunkh *et al.*, 2011; Lim *et al.*, 2010; Lee *et al.*, 2008; Moon *et al.*, 2008; Bae *et al.*, 2007; Lee *et al.*, 2007; Song *et al.*, 2006; Han *et al.*, 2005; Shin *et al.*, 2002; Kim *et al.*, 1998; Lee *et al.*, 1997). 대부분 약 24시간 동안 석영 필터에 시료를 포집한 후에 탄소 분석을 하였으며(Lim *et al.*, 2010; Lee *et al.*, 2008; Moon *et al.*, 2008; Han *et al.*, 2005; Shin *et al.*, 2002; Kim *et al.*, 1998; Lee *et al.*, 1997), 준실시간으로 분석한 경우에도 단기간 동안의 집중측정이 대부분이었다(Batmunkh *et al.*, 2011; Bae *et al.*, 2007; Lee *et al.*, 2007; Song *et al.*, 2006). 필터팩을 이용해 시료 채취시를 할 경우에는 긴 시간 동안 포집된 반휘발성 화학물질들(semi-volatile compounds)의 휘발로 인해 질량농도

가 과소평가될 가능성이 있다(Pang *et al.*, 2001). 기체상 오염물질과 함께 입자상 물질도 짧은 시간 동안 그 농도 변화가 다양하다. 이러한 탄소성분의 기상변화, 조성변화와 같은 시간에 따른 농도변화 특징을 파악하기 위해서는 준실시간 연속 측정이 필요하다(Malaguti *et al.*, 2013; Kang *et al.*, 2010). 따라서 본 연구에서는 1시간 간격의 준 실시간 분석으로 탄소성 입자의 농도 특성 및 계절별 특성을 보다 상세히 파악하고, 고농도 OC와 EC 사례 동안 실시간 농도 변화를 자세하게 살펴봄으로써 동아시아 기후변화와 대기오염에서 중요한 역할을 하는 탄소성 입자에 대한 이해를 높이고자 한다.

## 2. 측 정

2009년 10월 12일부터 2010년 6월 30일까지 약 9개월 동안 제주도 고산(33.17°N, 126.09°E)에서 PM<sub>2.5</sub> 중 OC와 EC 성분을 1시간 간격으로 측정하였다. 시료는 지상으로부터 약 10m 높이에 위치한 공기 유입관(inlet)을 통해 8LPM의 유량으로 흡입된 후 매 시각 00분에서 45분까지 45분간 분석 기기 내에 장착되어 있는 2.5 cm<sup>2</sup> 석영필터에 포집되었다. 석영필터는 필터에 흡착된 유기 성분으로 인한 OC의 과대평가를 최소화 하기 위해 시료 채취 전 850°C 이상에서 약 4분 정도 굽는 전처리 과정을 거쳤다(Polidori *et al.*, 2006). 포집이 종료된 후 8분간 분석이 실시되었다.

OC와 EC는 Semi-Continuous OC/EC Field Analyzer (Sunset Laboratory INC., USA)를 사용하여 분석하였다. OC와 EC 농도는 석영 필터에 포집된 시료를 온도에 따라 태워서 발생한 CO<sub>2</sub>를 측정하여 TOT (thermal-optical transmittance) 방법으로 산출된다. 이때 온도의 상승 조건은 NIOSH (National Institute for Occupational Safety and Health) 5040 protocol을 따른다. 분석 과정은 크게 2단계로 구분된다. 첫 번째 단계에서는 250°C~850°C에서 OC가 측정된다. OC는 온도에 따라서 OC1 (~250°C), OC2 (~500°C), OC3 (~650°C), OC4 (~850°C)로 구분되며 운반기체로 헬륨을 사용한다. 두 번째 단계에서는 OC분석이 끝난 후에 산화제로 산소를 투입하여 산소 2%와 헬륨 98%의 촉매 반응 조건에서 오븐의 온도를 낮춰

650°C~940°C에서 EC를 측정하게 된다. OC 측정이 끝나고 산소를 투입한 후, EC 측정이 시작되기 전에 필터의 흡수도(absorbance)가 초기값으로 돌아올 때까지 유리된 CO<sub>2</sub>를 열분해유기탄소(Pyrolyzed Organic Carbon; POC)로 정의한다(Birch and Cary, 1996; NIOSH, 1996). EC 분석이 끝나게 되면 메탄 5%와 헬륨 95%의 혼합 기체를 주입하여 자체적 보정이 실시된다.

석영 필터는 시간이 지남에 따라 흡수도가 증가하게 되므로 이를 추적하여 레이저 보정계수(laser correction factor)로 나타내는데 약 0.88 이하가 되기 전에 교체하는 것이 권장된다(Yu *et al.*, 2009). 이를 기준으로 약 2~3주마다 필터를 교체하였으며, 교체 후 5회 바탕농도를 측정한 후 공기 분석을 시작하였다. 이때 처음 2개 값은 버리고 나머지 3개 측정값 표준편차(σ)의 3배를 OC와 EC 검출한계로 결정하였으며 그 값은 각각 0.24 μgC/m<sup>3</sup>와 0.01 μgC/m<sup>3</sup>이었다.

SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, CO, PM<sub>10</sub>은 국립환경과학원의 고산배경대기 측정소 자료를 사용하였다. PM<sub>2.5</sub>는 베타선 흡수법으로 측정되었다. 온도, 풍향, 풍속, 상대습도 등은 기상청의 지상관측 자료를 사용하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 OC와 EC 농도

본 연구 기간 동안 측정된 PM<sub>2.5</sub> OC와 EC의 평균(편차)농도는 각각 2.1±1.4 μgC/m<sup>3</sup>와 0.7±0.6 μgC/m<sup>3</sup>이었다. 총 탄소성분(TC; TC=OC+EC) 중 EC는 25±2.1%를 차지했다. 그리고 PM<sub>2.5</sub> 질량에 대한 OC와 EC의 함량비는 각각 9.0±2.1%와 2.8±0.9%였다.

본 연구 결과를 과거 고산과 동북아시아 지역에서 측정된 결과들과 비교하였다(표 1). 고산에서 측정된 OC와 EC의 경우에도 그 값에 차이를 보였는데, 이는 측정 시기, 채취 방법, 또는 분석 방법의 차이에서 기인한 것으로 생각된다. 특히, 탄소 분석 방법으로 크게 TOT/NIOSH와 TOR/IMPROVE (Thermal-Optical Reflectance/Interagency Monitoring of Protected Visual Environments)가 있는데, 이 두 방법은 탄소를 유리시키는 승온 조건과 OC와 EC를 구분하는 광학적 방법이 서로 다르다. 일반적으로 TOR 방법에서

**Table 1. Comparison of carbonaceous concentrations in PM<sub>2.5</sub> at Gosan and other cities.**

| Region         | Period                | Sampling (Duration)  | OC <sup>a</sup> | EC <sup>a</sup> | OC/EC                      | Method           | Reference                 |
|----------------|-----------------------|----------------------|-----------------|-----------------|----------------------------|------------------|---------------------------|
| Gosan, Korea   | Oct. 2009 ~ Jun. 2010 | Sunset Inst. (1 hr)  | 2.1 ± 1.4       | 0.7 ± 0.6       | 3 (4.2 ± 6.9) <sup>b</sup> | TOT <sup>c</sup> | This study                |
| Gosan          | Nov. 2002 ~ Sep. 2003 | Filter pack (24 hrs) | 2.1             | 0.5             | 4.4                        | TMO <sup>d</sup> | Moon <i>et al.</i> (2008) |
| Gosan          | Aug. 2007 ~ Sep. 2008 | Filter pack (24 hrs) | 4               | 1.7             | 2.3                        | TOR <sup>e</sup> | Lim <i>et al.</i> (2010)  |
| Seoul, Korea   | Mar. 2003 ~ Feb. 2005 | Filter pack (24 hrs) | 10.2            | 4.1             | 2.5                        | TOT              | Kim <i>et al.</i> (2007)  |
| PRDC, China    | Jun. ~ Jul. 2002      | Filter pack (24 hrs) | 9.2 ± 6.5       | 4.1 ± 2.7       | 2.5                        | TOR              | Cao <i>et al.</i> (2007)  |
| Beijing, China | Jul. 1999 ~ Jun. 2000 | Filter pack (7 days) | 8.6 ~ 59        | 1.5 ~ 25.4      | 2.9                        | TOR              | Yang <i>et al.</i> (2005) |

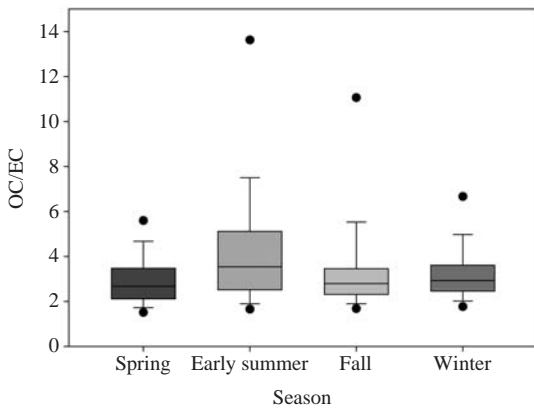
<sup>a</sup>Unit: µgC/m<sup>3</sup>.

<sup>b</sup>Averaged ratio of 1 hour data.

<sup>c</sup>TOT: Thermal-optical transmittance.

<sup>d</sup>TMO: Thermal manganese oxidation.

<sup>e</sup>TOR: Thermal-optical reflectance.



**Fig. 1. Seasonal variations of the ratio of OC to EC. Boxes and bars represent 25 to 75 percentiles and 10 to 90 percentiles, respectively. Lines inside the boxes show medians and black circles outside the bars denote 5<sup>th</sup> and 95<sup>th</sup> percentiles.**

정의되는 OC의 승온 조건은 TOT 방법보다 낮기 때문에 TOR 방법의 OC농도는 TOT 방법보다 다소 낮게 측정되고, EC 농도는 반대로 TOR 방법에서 더 높게 측정되어 OC/EC 비는 TOT 방법에서 다소 높게 나타난다. 그러나 전체 탄소(TC)의 농도는 매우 비슷하였다(Chow *et al.*, 2001).

본 실험에서 측정된 OC와 EC의 비율 다른 지역

과 비교하였다(표 1). 전체자료를 각각 평균한 OC와 EC로부터 계산된  $\overline{OC/EC}$ 와 매 시간마다 계산된 OC/EC의 평균  $\overline{OC/EC}$ 를 표준편차와 함께 나타내었다. 본 연구의  $\overline{OC/EC}$ 는 동북아시아의 도심지역보다 높았다(표 1, 그림 1). 이는 화석연료 및 디젤 자동차의 연소과정에서 1차적으로 배출된 EC의 농도가 도심 지역에 비해 고산에서 낮았기 때문이다(Castro *et al.*, 1999). 또한 본 연구기간 동안의 한시간 OC/EC 비의 평균값  $\overline{OC/EC}$ 는  $\overline{OC/EC}$ 보다 높았다. EC의 농도가 검출 한계 수준으로 낮아질수록 OC/EC 비의 편차가 크게 증가한 것으로 미루어 1시간 이내 짧은 시료 채취 시간 동안 국지적인 EC 배출의 변화를 큰 영향을 주는 것으로 보인다. 그리고 오염원으로부터 에어로졸이 이동해 오면서 SOC가 증가했을 가능성이 있다(Polidori *et al.*, 2006). 특히 여름철 강수의 영향이 클 때 EC의 농도가 낮아지고 OC의 농도가 증가하였는데 이러한 계절적 변동성이 반영된 것으로 보인다.

### 3. 2 OC와 EC의 계절 변화

입자상 물질은 기상 상태에 따라 배출원과 이동경로가 달라지며 화학적 특징이 서로 다르게 나타나므로 공기역적이 유사한 계절별로 나누어 살펴보았다. 측정 기간 중 2009년 10월~11월, 2009년 12월~2010년 2월, 2010년 3월~4월, 2010년 5월~6월을

**Table 2. Summary of the concentrations of OC, EC, and gaseous species.**

| Season       | OC<br>( $\mu\text{gC}/\text{m}^3$ ) | EC<br>( $\mu\text{gC}/\text{m}^3$ ) | PM <sub>2.5</sub><br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) | PM <sub>10</sub><br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) | SO <sub>2</sub><br>(ppb) | NO <sub>2</sub><br>(ppb) | O <sub>3</sub><br>(ppb) | CO<br>(ppm) |
|--------------|-------------------------------------|-------------------------------------|---|--|--------------------------|--------------------------|-------------------------|-------------|
| Fall         | 2.2±1.8                             | 0.8±0.7                             | 28±17   | 48±29  | 4.2±1.8                  | 3.9±2.0                  | 48±13                   | 0.5±0.1     |
| Winter       | 2.0±1.5                             | 0.7±0.6                             | 25±18   | 46±34  | 5.3±2.7                  | 4.6±2.9                  | 39±8                    | 0.6±0.2     |
| Spring       | 1.7±1.2                             | 0.6±0.4                             | 23±22   | 48±34  | 2.9±1.0                  | 3.3±1.8                  | 44±10                   | 0.9±0.3     |
| Early summer | 2.5±1.1                             | 0.8±0.5                             | 28±15   | 50±24  | 1.9±1.2                  | 3.7±1.9                  | 50±16                   | 0.5±0.2     |

각각 가을, 겨울, 봄, 초여름으로 구분하였다.

OC와 EC의 농도는 초여름, 가을, 겨울, 봄 순으로 높은 농도를 보였다(표 2). 기존 연구에 의하면, 일반적으로 우리나라는 봄철에 PM<sub>10</sub> 농도가 가장 높으며 고산 역시 봄철에 높았었는데 본 연구기간 동안에는 초여름에 PM<sub>10</sub>의 농도가 가장 높고 계절별 차이가 두드러지지 않는 등 기존 연구결과와는 다른 경향을 보였다(Lim *et al.*, 2010). 특히, 2010년 봄은 평년에 비해 온도가 낮고 강수량이 많아 전반적으로 모든 오염 물질의 농도가 낮은 경향을 보였다. 반면 가을에는 황사가 발생하는 등 고농도 사례가 자주 발생했다. 이로 인해 계절별 농도 차이가 감소한 것으로 보인다.

계절별로 OC와 EC가 PM<sub>2.5</sub> 질량에서 차지하는 비율은 각각 가을 5.7±4.7%와 2.0±1.7%, 겨울 8.2±5.8%와 2.8±2.4%, 봄 12.1±8.8%와 4.3±2.9%, 초여름 10.4±4.7%와 3.0±2.1%로 OC와 EC 모두 봄에 가장 높은 비율을 차지했다.  $\overline{\text{OC}/\text{EC}}$  비에 대한 계절별 평균은 초여름, 가을, 겨울, 봄 순으로 각각 5.7, 4.3, 3.8, 3.4이었다(그림 1). Turpin and Huntzicker (1995)은 OC/EC비가 2.2 그리고 Chow *et al.* (1996)은 2.0 이상일 경우에 SOC가 OC에 영향을 주었을 것으로 예상하였고, OC/EC 비의 최소값을 이용하여 SOC 형성을 정량적으로 평가하는 방법도 제시하였다. 하지만 고산 지역은 계절에 따라 다른 공기케의 영향으로 오염물질의 기원이 달라 OC/EC 비를 이용하여 SOC를 평가할 때에는 주의하여야 한다(Lim *et al.*, 2012). 그러나 여름의 경우, OC/EC 비가 가장 크고, 육지의 직접적 영향이 가장 적었으며, 풍속이 상대적으로 느렸다(평균 4.7 m/s). 그리고 상대적으로 높은 오존 농도를 나타내어 여름이 다른 계절에 비해 SOC를 생성하기에 좋은 조건이므로 SOC의 기여가 가장 컸을 것으로 판단된다.

이에 계절별로 OC와 EC의 선형 상관관계를 살펴

보았다(그림 2). OC와 EC의 상관성이 클수록 배출원이 같을 가능성이 높다. 계절별 OC와 EC의 상관계수( $\gamma$ )는 가을, 겨울, 봄, 초여름 순으로 각각 0.91, 0.93, 0.83, 0.61로 초여름에 가장 낮았다. 이는 다른 계절에 비해 여름철에 OC와 EC의 발생원이 서로 다르다는 것을 시사한다. 그리고 초여름에 y 절편이 컸는데 이는 EC 배출이 없을 때 존재하는 OC가 가장 많다는 것을 의미하므로 SOC가 여름철에 높은 비율로 존재할 가능성이 크다. 또한 상승한 기온과 함께 생물 활동의 증가에 기인한 생물학적 OC의 배출이 그 원인으로 작용할 가능성이 있다(Cao *et al.*, 2007). 반대로 겨울철에 OC와 EC의 상관계수가 가장 높아 탄소성 에어로졸이 비교적 유사한 배출원을 가지며 SOC의 생성 역시 적었을 것으로 보인다. 겨울은 SO<sub>2</sub>와 NO<sub>2</sub>의 농도가 여름에 비해 2.8배, 1.7배 높았으며(표 2) 주 풍향은 북서풍으로 주로 베이징 인근 지역을 통과해 고산으로 빠르게(평균풍속 9.6 m/s) 유입되었다. Zheng *et al.* (2005)는 베이징 지역에서 난방용 석탄 사용량이 연간 총 석탄 소비의 약 23%를 차지하고 이로 인한 SO<sub>2</sub> 오염이 심각한 수준이라고 보고하였다. 고산에서 겨울철 OC 및 EC 그리고 SO<sub>2</sub>와의 상관계수( $\gamma$ )는 각각 0.82, 0.77로 높았다. 따라서 이들의 배출원이 서로 유사함을 알 수 있다.

본 연구에서 초여름으로 분류된 5월과 6월에는 EC보다 OC의 증가율이 높아  $\overline{\text{OC}/\text{EC}}$  비가 5.7로 높아졌다. Saarikoski *et al.* (2008)는 배출원에 따라 OC/EC 비를 구분하였는데 생체소각의 경우에는 OC/EC가 6.6이었다. 이는 본 연구에서 5~6월의 결과와 유사하다. 또한 이시기는 중국의 수확기와 더불어 건조한 아시아 몬순으로 생체 소각이 빈번하게 발생하여 탄소성 에어로졸의 농도가 증가하는 것으로 알려져 있다(Yang *et al.*, 2005).

MODIS 위성 자료를 이용한 FIRMS (The Fire Information for Resource Management System)의 web fire

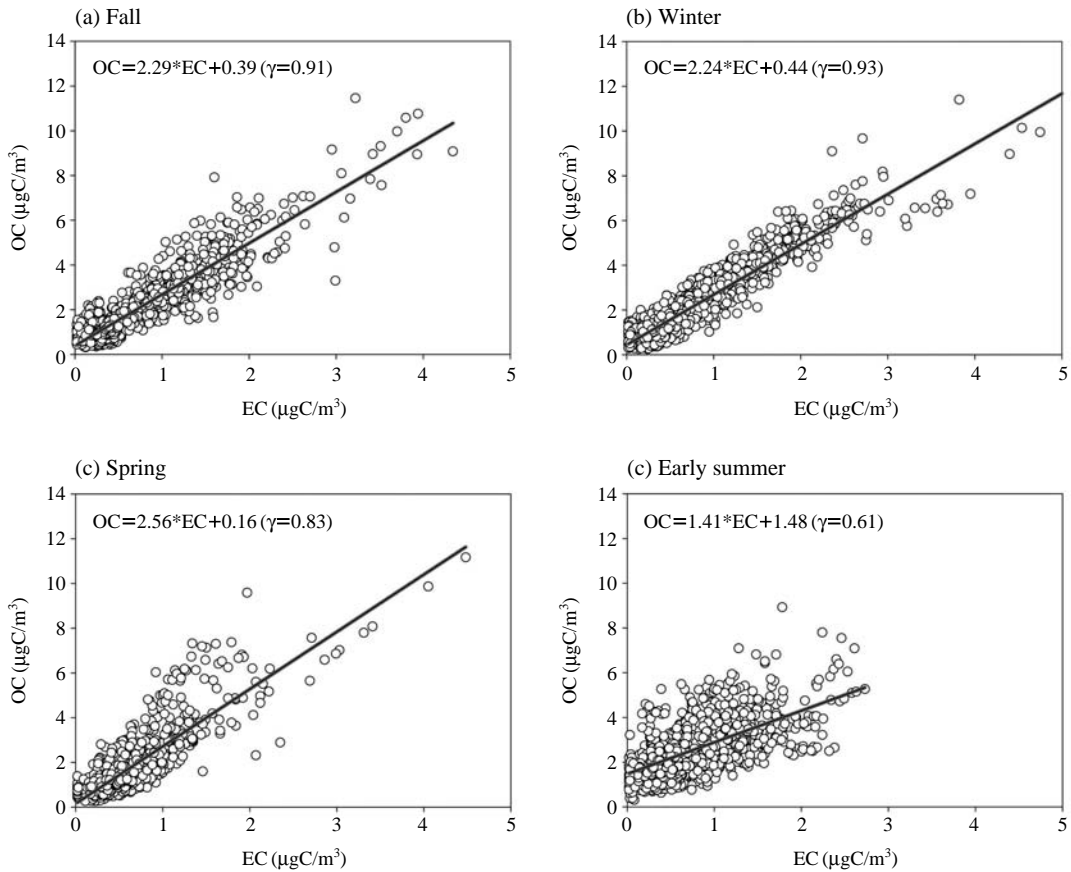


Fig. 2. Seasonal correlations of OC and EC in PM<sub>2.5</sub>.

mapper (<http://firefly.geog.umd.edu/firemap/>)에서 2010년 5월~6월에 걸쳐 중국 동부 지역과 시베리아 지역에서 fire가 빈번하게 발생한 것으로 나타났다. 특히, 6월 15일 이후부터 중국 동부 지역에서 빈번했던 것으로 보아 생체소각에 의한 것으로 추측된다. 이 시기에는 주로 남서, 남동풍계열의 바람이 불어 중국 동부 지역의 생체 소각으로 발생한 오염 물질의 영향을 받았을 가능성이 매우 크다. 불완전한 연소로 인해 발생하는 CO는 일반적으로 고산에서 봄에서 여름으로 가며 농도가 점차적으로 낮아지는 경향을 보이는데 2010년 6월에는 15일을 기준으로 후반부의 평균농도가 506 ppbv로 전반부 409 ppbv에 비해 100 ppbv가 증가하였다. 이와 함께 OC/EC 비는 6월 15일 이전과 이후가 각각 5.9와 6.4로 역시 후반부에 높았다.

### 3.3 고농도 OC와 EC의 사례

본 연구 기간 동안 고농도 OC와 EC는 주로 연무나 황사 사례시에 관찰되었는데 탄소성 에어러졸은 연무 형성에 있어 중요한 물질 중 하나로 알려져 있다(Lee *et al.*, 2006; Kang *et al.*, 2004). 이에 이들 사례를 구분하여 OC와 EC의 변화 특성을 좀 더 자세하게 살펴 보았다. 연무는 시정 10km 이하로, 습도가 비교적 낮을 때 대기 중 연기와 먼지 등 미세한 입자가 부유하여 공기의 색이 우유빛으로 뿌옇게 보이는 현상으로 정의된다(기상청, 2002).

표 3에서는 기상청 발표를 기준으로 연무와 황사 일수를 월별로 구분하였다. 비사례는 연무, 황사 또는 연무와 황사가 함께 관측된 날을 제외한 날이다. 측정 기간 중 연무 사례는 총 17일, 황사 사례는 7일, 연무에 이어 황사가 함께 관측된 날은 4일이었다. 연

**Table 3. The number of events in every month.**

| Month             | Oct-09 | Nov-09 | Dec-09 | Jan-10 | Feb-10 | Mar-10 | Apr-10 | May-10 | Jun-10 | Total |
|-------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|-------|
| Haze              | 2      | 2      | 3      | 7      | 1      | 1      | -      | 1      | -      | 17    |
| Asian dust        | -      | -      | 2      | -      | -      | 3      | 1      | 1      | -      | 7     |
| Haze & Asian dust | 1      | -      | 1      | 1      | -      | 1      | -      | -      | -      | 4     |

**Table 4. Average concentrations of OC and EC in PM<sub>2.5</sub> and other species for the three events.**

| Species                                | Non event   |             |             | Event        |               |                   |
|--|-------------|-------------|-------------|--------------|---------------|-------------------|
|  | Total       | No rain     | Rain        | Haze         | Asian dust    | Haze & Asian dust |
| Days (hours)                           | 234 (6106)  | 141 (3729)  | 93 (2379)   | 17 (112)     | 7 (40)        | 4 (30)            |
| OC (µgC/m <sup>3</sup> )               | 2.03±1.28   | 2.24±1.30   | 1.69±1.18   | 5.70±1.98    | 3.04±1.92     | 6.01±4.67         |
| EC (µgC/m <sup>3</sup> )               | 0.69±0.49   | 0.76±0.50   | 0.59±0.45   | 2.21±0.75    | 1.11±0.81     | 2.10±1.42         |
| OC/EC                                  | 4.27±6.69   | 4.08±5.67   | 4.60±8.10   | 2.62±0.45    | 3.04±1.30     | 3.08±0.86         |
| PM <sub>2.5</sub> (µg/m <sup>3</sup> ) | 24.19±14.04 | 26.32±14.40 | 20.70±12.68 | 67.24±17.28  | 59.00±29.39   | 114.80±99.68      |
| PM <sub>10</sub> (µg/m <sup>3</sup> )  | 45.18±25.27 | 50.04±25.43 | 37.45±22.98 | 102.23±32.18 | 206.03±101.43 | 161.13±50.04      |
| TC/PM <sub>2.5</sub>                   | 0.12±0.10   | 0.13±0.10   | 0.12±0.09   | 0.12±0.03    | 0.08±0.03     | 0.10±0.08         |
| PM <sub>2.5</sub> /PM <sub>10</sub>    | 0.55±0.17   | 0.55±0.17   | 0.57±0.17   | 0.68±0.15    | 0.33±0.20     | 0.48±0.16         |
| SO <sub>2</sub> (ppb)                  | 3.61±2.17   | 3.74±2.24   | 3.40±2.03   | 9.68±2.69    | 5.45±4.69     | 5.24±2.83         |
| NO <sub>2</sub> (ppb)                  | 3.86±2.20   | 3.90±2.04   | 3.80±2.43   | 7.87±2.88    | 6.45±6.58     | 6.55±3.47         |
| CO (ppm)                               | 0.63±0.27   | 0.61±0.27   | 0.66±0.27   | 0.73±0.17    | 0.88±0.38     | 1.14±0.48         |
| WS (m/s)                               | 7.48±4.81   | 6.46±4.10   | 9.08±5.37   | 7.06±4.28    | 16.33±3.50    | 15.54±3.53        |
| RH (%)                                 | 68.38±15.40 | 64.62±14.26 | 74.26±15.27 | 63.46±6.40   | 57.85±9.25    | 58.57±7.78        |
| Visibility (km)                        | 13.41±9.43  | 14.21±10.16 | 12.15±8.00  | 6.88±3.30    | 10.13±3.50    | 7.03±4.27         |

무와 황사가 함께 관측되었던 12월 24일은 기기의 결함으로 분석에서 제외되었다.

각 사례 기간의 OC와 EC 및 오염 물질과 기상인자의 평균값을 표 4에 정리하였다. 연무 시 PM<sub>2.5</sub> 중 OC와 EC의 평균 농도는 비사례 시보다 각각 2.8배, 3.2배 증가하였다. PM<sub>2.5</sub>와 함께 PM<sub>10</sub>의 농도도 증가했으며, 전구물질의 농도는 1.2~4.2배 증가했는데, 특히 SO<sub>2</sub>의 증가가 가장 컸으며 풍속은 가장 약했다. 반면 황사 사례 중 OC와 EC의 농도는 연무 사례에 비해 적게 증가했으며, PM<sub>2.5</sub>보다 PM<sub>10</sub>의 농도 증가가 뚜렷하였다. 연무와 황사가 함께 나타난 경우, EC는 연무 사례와 유사했으나 OC의 평균 농도가 더 높았다.

3.3.1 연무사례

겨울의 연무 발생일은 11일로 전체 연무의 약 65%에 해당한다. 겨울에는 낮은 온도가 SOC 형성을 제한하고, 화석연료 사용량 증가로 오염물질의 배출이 증가한다. 또한 지표의 기온 역전층 형성이 쉬워 입자상 물질이 축적되어 고농도 사례가 발생하기 쉽

다고 알려져 있다(He *et al.*, 2001). 겨울철에는 주로 북서풍이 불었으며, 공기는 베이징 등 대도시 및 산업 시설이 위치해 있는 중국의 북동부 내륙 지역을 지나 유입되었다. 따라서 오염된 지역을 통과한 공기가 정체되며 연무 사례로 나타났을 것으로 생각된다.

연무 사례 때 PM<sub>10</sub>과 PM<sub>2.5</sub>의 질량 농도는 함께 증가했으나 PM<sub>2.5</sub>가 PM<sub>10</sub>보다 상대적으로 더 많이 증가하여 PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> 비는 0.68±0.15로 비사례시의 0.55±0.17보다 높았다. OC/EC 비는 비사례 시보다 낮았는데 이는 EC의 증가가 OC의 증가보다 컸기 때문이었다. OC와 EC의 상관계수( $\gamma$ )는 0.92로 아주 높았다. OC 및 EC와 가장 높은 상관성을 보인 것은 PM<sub>2.5</sub>로 상관계수( $\gamma$ )는 각각 0.78과 0.80이었다. 또한 SO<sub>2</sub>와 OC 및 EC와의 상관성이 NO<sub>2</sub>와 CO보다 높았다. SO<sub>2</sub>는 석탄 연소시 발생하며 중국의 동부지역에서 난방용 연료로 많은 양의 석탄이 사용된다. 따라서 겨울철 연무 사례 시 OC와 EC는 화석 연료 연소에 기인한 1차적인 배출의 영향이 큰 것으로 판단된다.

겨울철 연무사례로 2010년 1월 28일부터 1월 30

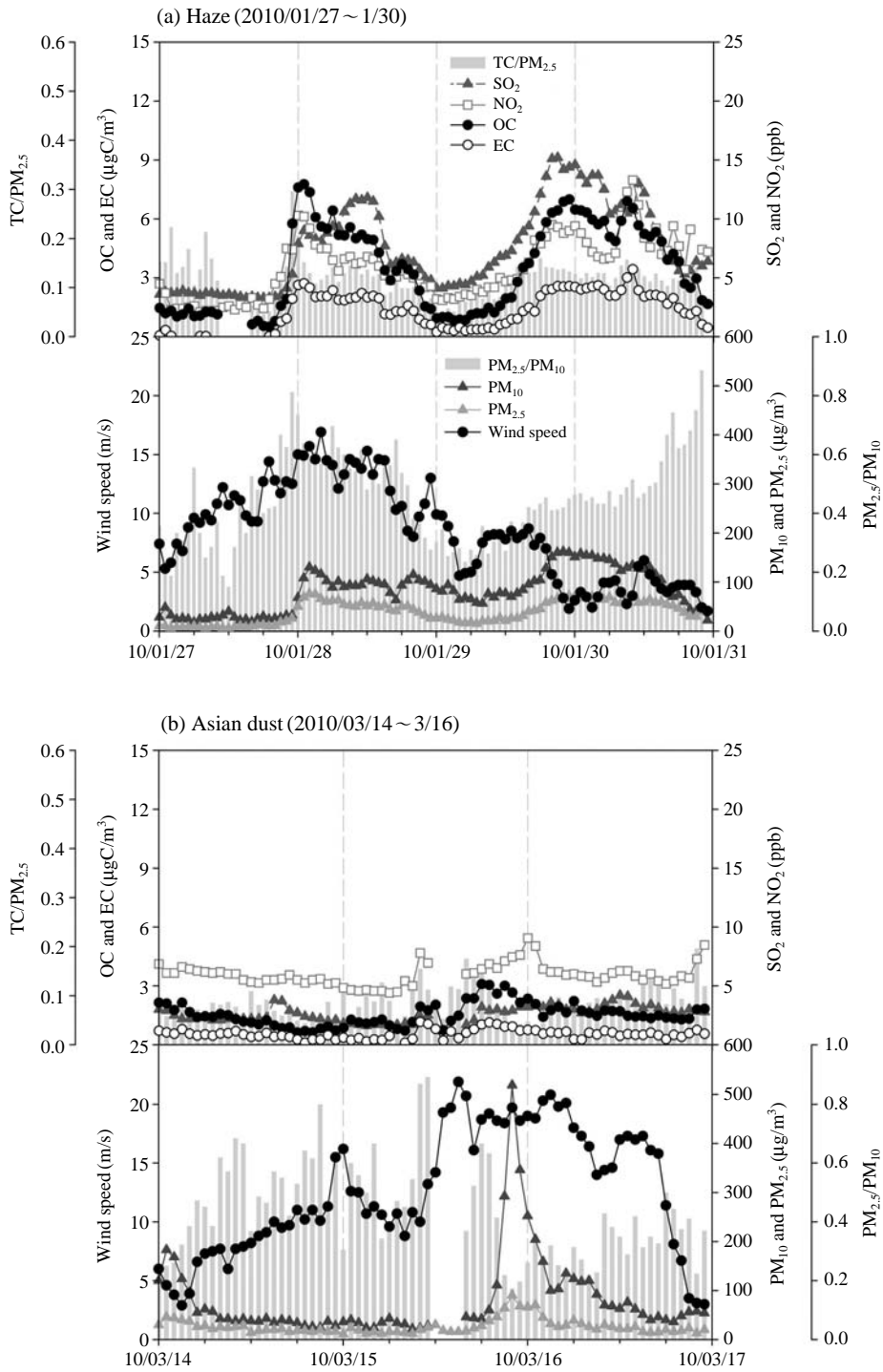


Fig. 3. Variations in OC, EC, PM<sub>2.5</sub>, PM<sub>10</sub>, SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>, TC/PM<sub>2.5</sub>, and PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> during (a) Haze, (b) Asian dust, and (c) Haze and Asian dust events.



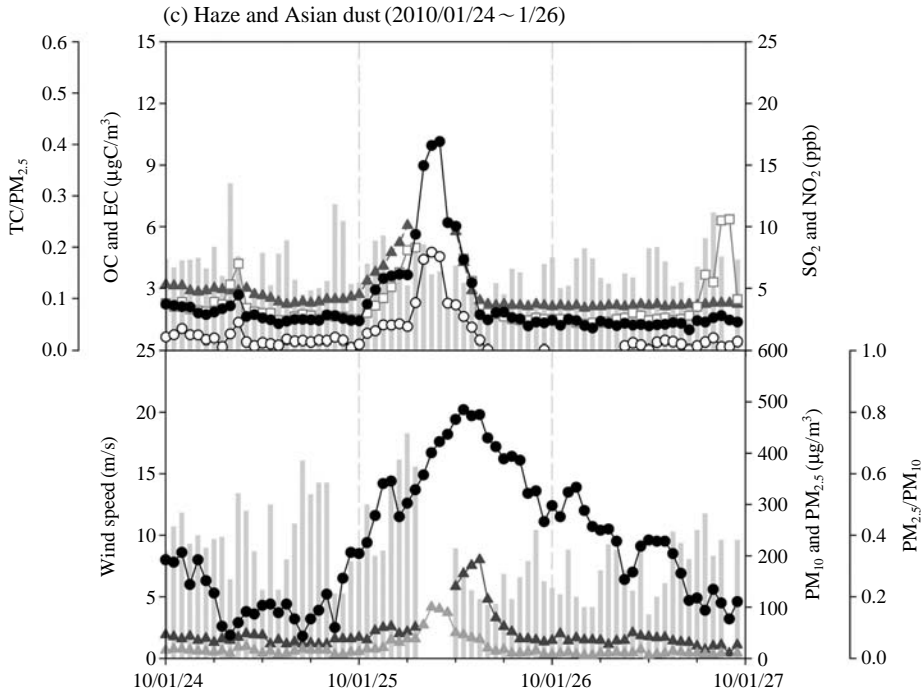


Fig. 3. Continued.

일 사이의 OC와 EC의 변화를 자세하게 살펴보았다 (그림 3(a)). 기상청에서 발표한 연무 발생 시각은 1월 28일 11시~14시, 1월 29일 22시~30일 12시였는데 이때 OC, EC, SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>, PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>의 농도가 모두 증가하였다. 그리고 TC는 전체 질량의 10~16% (평균 13%)를 차지하여 비사례 시의 평균 11%에 비해 높았다. OC와 EC는 연무가 처음 관측된 1월 28일 11시~14시 이전인 01시에 최고값을 보였으며 이후 고농도가 유지되었다. 풍속은 평균 14.3 m/s 였다. 두 번째 연무는 주 풍향이 북서풍이며 평균 풍속은 3.4 m/s로 매우 낮았다. 또한 SO<sub>2</sub>와 NO<sub>2</sub>의 평균 농도는 각각 12.5 ppb와 9.3 ppb로 첫 번째 연무 사례보다 높았다. 이후 1월 30일 13시부터 비가 내리면서 연무는 사라졌다.

이 때의 72시간 동안의 공기 역계적은(그림 4(a), (b)) 첫 번째 연무 기간에는 중국 동해안 지역에서 정체되었던 공기가 유입되었음을, 두 번째 연무 기간에는 베이징 인근 지역과 산둥 반도를 지나왔음을 보여준다. 두 연무 현상 모두 인구와 산업이 밀집된 중국의 연안지역과 북경 인근지역을 지나왔으므로

화석연료의 연소에서 배출된 OC와 EC가 연무 발생에 큰 영향을 미쳤을 것으로 판단된다.

### 3.3.2 황사 사례

황사 사례 동안 OC와 EC의 평균 농도는 비사례 시와 비교하여 각각 1.5배, 1.6배 증가하였지만 연무 사례와 비교할 때 그 증가율은 낮았다(표 4). 또한 황사 시  $\overline{OC/EC}$  비는 비사례에 비해 낮았고 연무보다 높았다. 그리고 OC와 EC의 상관계수( $\gamma$ )도 0.95로 높았다.

TC/PM<sub>2.5</sub> 비는 가장 낮았으며, OC와 EC의 PM<sub>2.5</sub>와의 상관계수( $\gamma$ )는 각각 0.64, 0.66으로 연무 사례보다 낮았다. Zheng *et al.* (2005)는 황사의 영향을 직접적으로 받는 베이징의 경우 PM<sub>2.5</sub> 중 OC 성분의 22.5%가 토양기원이라고 보고하였다. 그러나 본 연구에서 관측된 OC는 상대적으로 낮은 OC/EC 비와 OC와 EC의 높은 상관계수( $\gamma=0.97$ )로 유추할 때, 발원지에 비해 토양기원 OC의 영향이 상대적으로 적으며 장거리 수송시 인위적 배출의 영향이 더해졌을 가능성이 큰 것으로 판단된다.

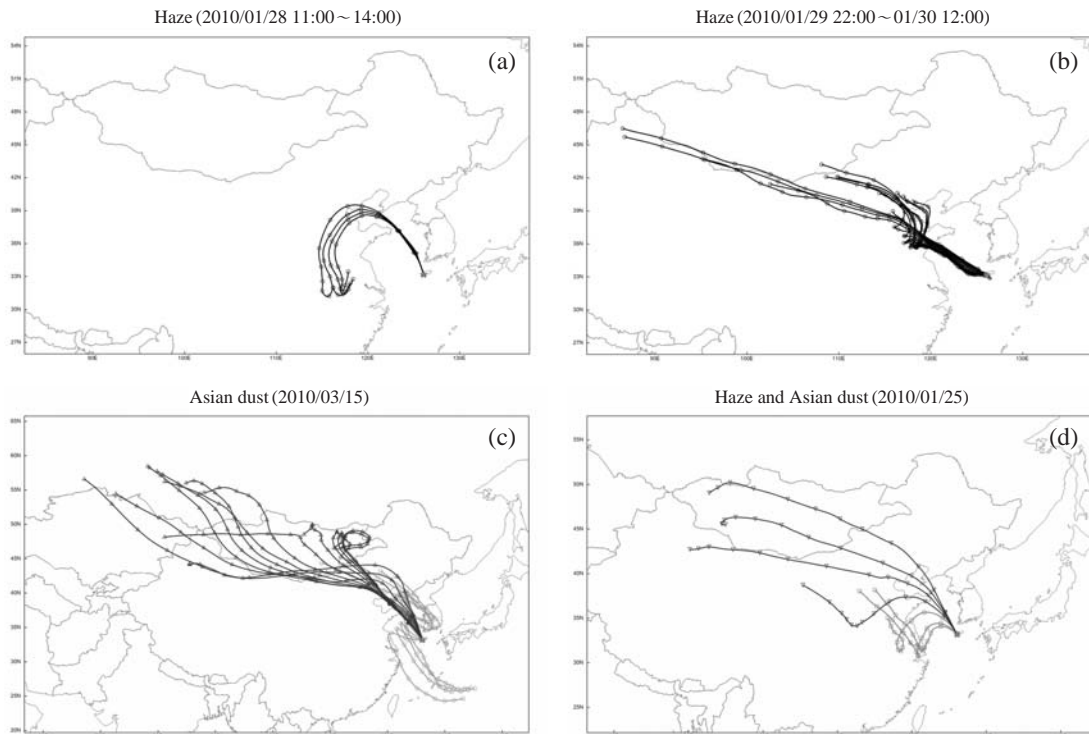


Fig. 4. The 3-day backward trajectories of air at 500 m altitude during haze (A) 2010/01/28 11:00~14:00, (B) 2010/01/29 22:00~01/30 12:00, Asian dust (C) 2010/03/15 10:00~18:00 for high OC and EC in gray and 2010/03/15 19:00~03/16 08:00 for high PM<sub>10</sub> mass in black, and haze and Asian dust (D) 2010/01/25 07:00~09:00 for high OC and EC in gray and 2010/01/25 10:00~14:00 for high PM<sub>10</sub> mass in black.

이러한 특징은 실시간 농도 변화를 살펴보면 더욱 뚜렷하게 나타난다(그림 3(b)). 2010년 3월 15일에 발생한 황사는 PM<sub>10</sub> 최고 농도가 519 µg/m<sup>3</sup>, PM<sub>2.5</sub> 최고 농도가 90 µg/m<sup>3</sup> 이었다. 이 시기 OC와 EC의 최대 농도는 PM<sub>10</sub> 농도가 최고값에 이르기 2~3시간 전에 나타났다. 이러한 특징은 측정 기간 중 많은 황사 사례에서 공통적으로 발견되었다. 또한, PM<sub>10</sub>의 농도가 최대값에 이르렀을 때 PM<sub>2.5</sub>의 OC와 EC의 농도는 감소하기 시작하였다. 공기의 72시간 역궤적을 살펴보면(그림 4(c)), PM<sub>2.5</sub> 탄소성 에어로졸이 최대값일 때는 황사 발원지를 통과하지 않고 주로 중국 연안과 황해상에 머물렀었다. 대부분의 경우 황사 발생 직전 PM<sub>10</sub> 농도가 상승하기 전에는 약 500 m 이상에서만 황사 궤적을 보이다가 하층의 공기체가 이동이 빠르게 상층의 황사궤적으로 바뀌면서 PM<sub>10</sub> 농도가 급격히 상승하였다. 그림 4도 500 m 궤적을 보

이는데, 상층 황사를 포함한 공기체의 영향이 하층에 까지 미칠때 공기가 중국의 연안지역을 거쳐 이동하면서 이와 함께 오염물질들이 밀려 들어오게 된 것으로 생각된다. 이러한 양상은 연무와 황사가 함께 발생할 때 더욱 분명하게 나타났다.

### 3.3.3 연무와 황사 동시 발생 사례

황사와 연무 사례가 동시에 관측된 날은 총 3일(2009년 12월 25일 제외)이었다. 이 기간에는 앞에서 기술된 연무와 황사 사례의 특징이 모두 나타났다. 2010년 1월 25일에는 옅은 황사가 관측되었는데 오전에는 PM<sub>2.5</sub> 질량 농도와 함께 OC와 EC 그리고 SO<sub>2</sub>와 NO<sub>2</sub>가 증가했으며 2~3시간 후에 PM<sub>10</sub>의 최고 농도가 나타났다(그림 3(c)). 연무 사례와 비교해 OC와 EC의 최고농도가 분명하게 나타났으며 황사 사례와 비교해 PM<sub>2.5</sub>와 PM<sub>10</sub>의 질량이 순차적으로

최대값에 이르는 특징이 보였다. 공기의 역궤적에도 (그림 4(c)) 오염 공기궤와 황사 공기궤의 영향이 잘 구분되었다.

#### 4. 결 론

제주도 고산에서 2009년 10월 12일부터 2010년 6월 30일까지 PM<sub>2.5</sub>의 OC와 EC 성분을 1시간 간격으로 연속 측정하였다. 이 기간 중 OC와 EC의 평균 농도는 각각  $2.1 \pm 1.4 \mu\text{gC}/\text{m}^3$ 와  $0.7 \pm 0.6 \mu\text{gC}/\text{m}^3$ 이었고 PM<sub>2.5</sub> 질량농도 함량비는 각각  $9.0 \pm 2.1\%$ 와  $2.8 \pm 0.9\%$ 였다. EC는 TC의  $25 \pm 2.1\%$ 를 차지했으며 1시간 측정 자료 각각의 비의 평균 ( $\overline{\text{OC}/\text{EC}}$ )은  $4.2 \pm 6.9$ 로 전체 기간 중 OC와 EC 평균값의 비 ( $\overline{\text{OC}/\text{EC}}$ ) 3보다는 높았다. 이는 짧은 기간 동안 OC와 EC의 변동 특성을 나타내는 것으로 주로 OC 농도가 EC보다 상대적으로 크며 강수의 영향이 큰 여름철의 특성이 반영된 것으로 판단된다.

OC와 EC 모두 계절별로 큰 농도 차이를 보이지는 않았지만 OC 농도가 가장 높은 초여름에 TC 농도가 가장 높았다. OC와 EC의 상관성은 겨울에 상관계수 ( $\gamma$ ) 0.93으로 가장 높았다. 이때 SO<sub>2</sub>와 OC와 EC 사이의 상관성이 가장 높아 주거용 화석 연료의 연소가 이들의 주요 배출원으로 생각된다. 초여름에는 OC/EC 비가 가장 높았지만 OC와 EC의 상관성 ( $\gamma=0.61$ )이 가장 낮아 이들 두 성분이 서로 다른 배출원과 생성과정을 거쳤음을 지시한다. 뿐만 아니라 EC 배출이 전혀 없더라도 존재하는 OC가 가장 높아 SOC의 영향이 클 것으로 예상된다. 또한 6월 후반에 중국에서 발생한 생체소각이 탄소성 에어러졸의 농도 증가, 특히 OC의 증가에 큰 영향을 주었을 것으로 판단된다.

OC와 EC의 고농도는 연무와 황사 사례가 발생할 때 주로 관찰되었다. 겨울철에 연무가 가장 많이 발생했으며 OC와 EC를 비롯한 PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>, SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>의 농도가 모두 함께 증가했다. 특히 EC의 농도 증가가 뚜렷해 OC/EC 비는 감소하였다. SO<sub>2</sub>와 NO<sub>2</sub>의 농도가 가장 높았으며 OC와 EC 모두 SO<sub>2</sub>와 좋은 상관성을 보여 화석연료 연소가 연무의 주 원인이고 탄소성 에어러졸이 연무의 주 성분임을 알 수 있다. 황사 시 OC와 EC의 농도는 PM<sub>10</sub> 최고농도가 나타

나기 2~3시간 전에 가장 높았는데 황사가 연무에 이어 발생할 때 OC와 EC의 최대값이 분명하게 나타났다. 이는 황사를 포함한 공기가 오염 공기궤를 밀어내며 이동하기 때문인 것으로 보인다.

#### 감사의 글

본 연구는 기상기술개발사업의 지원 (CATE 2012-7202)으로 수행되었습니다. 본 논문 내용에는 방병조의 석사학위 논문의 일부가 포함되어 있습니다.

#### 참 고 문 헌

기상홍보과(2002) 기상용어해설, 기상청, 204pp.

Andreae, M.O., D. Rosenfeld, P. Artaxo, A.A. Costa, G.P. Frank, K.M. Longo, and M.A.F. Silva-Dias (2004) Smoking rain clouds over the Amazon, *Science*, 303(5662), 1337-1342.

Andreae, M.O. and D. Rosenfeld (2008) Aerosol-cloud-precipitation interactions. Part 1. The nature and sources of cloud-active aerosols, *Earth-Sci Rev.*, 89(1-2), 13-41.

Bae, M.S., C.S. Hong, Y.J. Kim, J.S. Han, K.J. Moon, Y. Kondo, Y. Komazaki, and Y. Miyazaki (2007) Intercomparison of two different thermal-optical elemental carbons and optical black carbon during ABC-EAR-EX2005, *Atmos. Environ.*, 41(13), 2791-2803.

Batmunkh, T., Y.J. Kim, K.Y. Lee, M.G. Cayetano, J.S. Jung, S.Y. Kim, K.C. Kim, S.J. Lee, J.S. Kim, L.S. Chang, and J.Y. An (2011) Time-Resolved Measurements of PM<sub>2.5</sub> Carbonaceous Aerosols at Gosan, Korea, *J. Air Waste Manage. Assoc.*, 61(11), 1174-1182.

Birch, M.E. and R.A. Cary (1996) Elemental carbon-based method for monitoring occupational exposures to particulate diesel exhaust, *Aerosol Sci. Technol.*, 25, 221-241.

Cao, G., X. Zhang, and F. Zheng (2006) Inventory of black carbon and organic carbon emissions from China, *Atmos. Environ.*, 40(34), 6516-6527.

Cao, J.J., S.C. Lee, J.C. Chow, J.G. Watson, K.F. Ho, R.J. Zhang, Z.X. Chen, Y.M. Kang, S.C. Zou, L.Z. Zhang, S.H. Qi, M.H. Dai, Y. Cheng, and K. Hu (2007) Spatial and seasonal distributions of carbonaceous aerosols over China., *J. Geophys. Res.*, 112,

- D22S11, doi:10.1029/2006JD008205.
- Carmichael, G.R., Y. Zhang, L.L. Chen, M.S. Hong, and H. Ueda (1996) Seasonal variation of aerosol composition at Cheju Island, Korea, *Atmos. Environ.*, 30(13), 2407-2416.
- Castro, L.M., C.A. Pio, R.M. Harrison, and D.J.T. Smith (1999) Carbonaceous aerosol in urban and rural European atmospheres: Estimation of secondary organic carbon concentrations. *Atmos. Environ.*, 33(17), 2771-2781.
- Charlson, R.J., S.E. Schwartz, J.M. Hales, R.D. Cess, J.A. Coakley, J.E. Hansen, and D.J. Hofmann (1992) CLIMATE FORCING BY ANTHROPOGENIC AEROSOLS, *Science*, 255(5043), 423-430.
- Chen, L.L., G.R. Carmichael, M.S. Hong, H. Ueda, S. Shim, C.H. Song, Y.P. Kim, R. Arimoto, J. Prospero, D. Savoie, K. Murano, J.K. Park, H.G. Lee, and C. Kang (1997) Influence of continental outflow events on the aerosol composition at Cheju Island, South Korea, *J. Geophys. Res.*, 102(D23), 28551-28574.
- Choi, S.-D. and Y.-S. Chang (2006) Carbon monoxide monitoring in Northeast Asia using MOPITT: Effects of biomass burning and regional pollution in April 2000, *Atmos. Environ.*, 40(4), 686-697.
- Chow, J.C., J.G. Watson, and Z. Lu (1996). Descriptive analysis of PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> and regionally representative locations during SJVAQS/AUSPEX. *Atmos. Environ.*, 30(12), 2079-2112.
- Chow, J.C., J.G. Watson, D. Crow, D.H. Lowenthal, and T. Merrifield (2001) Comparison of IMPROVE and NIOSH carbon measurements, *Aerosol Sci. Technol.*, 34(1), 23-34.
- Chow, J.C., J.G. Watson, P. Doraiswamy, L.-W.A. Chen, D.A. Sodeaman, D.H. Lowenthal, K. Park, W.P. Arnott, and N. Motallebi (2009) Aerosol light absorption, black carbon, and elemental carbon at the Fresno Supersite, California, *Atmos. Res.*, 93(4), 874-887.
- Han, J.S., K.J. Moon, B.J. Kong, S.J. Lee, J.E. Kim, and Y.J. Kim (2005) Seasonal variation of chemical composition in fine particles at Gosan, Korea, *Environ. Monit. Assess.*, 107(1-3), 221-237.
- He, K., F. Yang., Y. Ma, Q.Z. Zhang, X. Yao, C.K. Chan, S. Cadle, T. Chan, and P.A. Mulawa (2001) The characteristics of PM<sub>2.5</sub> in Beijing, China., *Atmos. Environ.*, 35(29), 4959-4970.
- He, Z., Y.J. Kim, K.O. Ogunjobi, J.E. Kim, and S.Y. Ryu (2004) Carbonaceous aerosol characteristics of PM<sub>2.5</sub> particles in Northeastern Asia in summer 2002. *Atmos. Environ.*, 38(12), 1795-1800.
- IPCC (2007) *Climate Change 2007: The Physical Science Basis* (Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change), edited by: Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M. Tignor and H.L. Miller, Cambridge Univ. Press, New York, 131-217.
- Isaksen, I.S.A., C. Granier, G. Myhre, T.K. Berntsen, S.B. Dalsøren, M. Gauss, Z. Klimont, R. Benestad, P. Bousquet, W. Collins, T. Cox, V. Eyring, D. Fowler, S. Fuzzi, P. Jöckel, P. Laj, U. Lohmann, M. Maione, P. Monks, A.S.H. Prevot, F. Raes, A. Richter, B. Rognerud, M. Schulz, D. Shindell, D.S. Stevenson, T. Storelvmo, W.C. Wang, M. van Weele, M. Wild, and D. Wuebbles (2009) Atmospheric composition change: Climate-Chemistry interactions, *Atmos. Environ.*, 43(33), 5138-5192.
- Kang, C.M., H.S. Lee, B.W. Kang, S.K. Lee, and Y. Sunwoo, (2004), Chemical characteristics of acidic gas pollutants and PM<sub>2.5</sub> species during hazy episode in Seoul, South Korea., *Atmos. Environ.*, 38(28), 4749-4760.
- Kang, C.M., P. Koutrakis, and H.H. Suh (2010) Hourly measurements of fine particulate sulfate and carbon aerosols at the Harvard - U.S. environmental protection agency supersite in Boston, *J. Air Waste Manage. Assc.*, 60(11), 1327-1334.
- Kim, H.-S., J.-B. Huh, P.K. Hopke, T.M. Holsen, and S.-M Yi (2007) Characteristics of the major chemical constituents of PM<sub>2.5</sub> and smog events in Seoul, Korea in 2003 and 2004, *Atmos. Environ.*, 41 (32), 6762-6770.
- Kim, Y.P., J.H. Lee, N.J. Baik, J.Y. Kim, S.-G. Shim, and C.-H. Kang (1998) Summertime characteristics of aerosol composition at Cheju Island, Korea, *Atmos. Environ.*, 32(22), 3905-3915.
- Lee, J.H., N.J. Baik, S.-G. Shim, and Y.P. Kim (1997) Measurement of Carbonaceous Species in Fine Particle at Kosan, Cheju Island during the Two Summer Seasons of 1994 and 1995, *Korean J. of Atmos. Environ.*, 13(3), 179-191. (in Korean with English abstract)
- Lee, K.H., Y.J. Kim, and M.J. Kim (2006) Characteristics of aerosol observed during two severe haze events over Korea in June and October 2004, *Atmos. Environ.*, 40(27), 5146-5155.
- Lee, M., M. Song, K.J. Moon, J.S. Han, G. Lee, and K.-R. Kim

- (2007) Origins and chemical characteristics of fine aerosols during the northeastern Asia regional experiment (Atmospheric Brown Cloud-East Asia Regional Experiment 2005), *J. Geophys. Res.*, 112 (D22), D22S29.
- Lee, S., Y.S. Ghim, S.W. Kim, and S.C. Yoon (2008) Seasonal Variations of Chemical Composition and Optical Properties of Aerosols at Seoul and Gosan, *Korean J. of Atmos. Environ.*, 24(4), 470-482. (in Korean with English abstract)
- Lim, S., M. Lee, and K.S. Kang (2010) Seasonal variations of OC and EC in PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>, PM<sub>1.0</sub> at Gosan superstation on Jeju Island, *Korean J. of Atmos. Environ.*, 26(5), 567-580. (in Korean with English abstract)
- Lim, S., M. Lee, G. Lee, S. Kim, S. Yoon, and K. Kang (2012) Ionic and carbonaceous compositions of PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>1.0</sub> at Gosan ABC Superstation and their ratios as source signature, *Atmos. Chem. Phys.*, 12(4), 2007-2024.
- Malaguti, A., M. Mircea, T.M.G. La Torretta, A. Piersanti, S. Salvi, G. Zanini, C. Telloli, F. Salfi, and M. Berico (2013) Fine carbonaceous aerosol characteristics at a coastal rural site in the Central Mediterranean as given by OCEC online measurements, *J. Aerosol Sci.*, 56, 78-87.
- Moon, K.J., J.S. Han, Y.S. Ghim, and Y.J. Kim (2008) Source apportionment of fine carbonaceous particles by positive matrix factorization at Gosan background site in East Asia. *Environ. Int.*, 34(5), 654-664.
- Monks, P.S., C. Granier, S. Fuzzi, A. Stohl, M.L. Williams, H. Akimoto, M. Amann, A. Baklanov, U. Baltensperger, I. Bey, N. Blake, R.S. Blake, K. Carslaw, O.R. Cooper, F. Dentener, D. Fowler, E. Fragkou, G.J. Frost, S. Generoso, P. Ginoux, V. Grewe, A. Guenther, H.C. Hansson, S. Henne, J. Hjorth, A. Hofzumahaus, H. Huntrieser, I.S.A. Isaksen, M.E. Jenkin, J. Kaiser, M. Kanakidou, Z. Klimont, M. Kulmala, P. Laj, M.G. Lawrence, J.D. Lee, C. Liousse, M. Maione, G. McFiggans, A. Metzger, A. Mieville, N. Moussiopoulos, J.J. Orlando, C.D. O'Dowd, P.I. Palmer, D.D. Parrish, A. Petzold, U. Platt, U. Pöschl, A.S.H. Prévôt, C.E. Reeves, S. Reimann, Y. Rudich, K. Sellegri, R. Steinbrecher, D. Simpson, H. ten Brink, J. Theleke, G.R. van der Werf, R. Vautard, V. Vestreng, C. Vlachokostas, and R. von Glasow (2009) Atmospheric composition change - global and regional air quality, *Atmos. Environ.*, 43(33), 5268-5350.
- NIOSH (1996) Method 5040 issue 1 : Elemental carbon (diesel exhaust). In NIOSH Manual of Analytical Methods, fourth ed. National Institute of Occupational Safety and Health, Cincinnati, OH.
- Pang, Y., Y. Ren, O. Fida, H. Robert, E. Delbert, and W. William (2001) Semi-volatile species in PM<sub>2.5</sub>: comparison of integrated and continuous samplers for PM<sub>2.5</sub> research or monitoring, *J. Air Waste Manage. Assoc.*, 51(1), 25-36.
- Polidori, A, B.J. Turpin, H.J. Lim, J.C. Cabada, R. Subramanian, S.N. Pandis, and A.L. Robinson (2006) Local and Regional Secondary Aerosol; Insights from a Year of Semi-Continuous Carbon measurements at Pittsburgh, *Aerosol Sci. Technol.*, 40(10), 861-872.
- Ramanathan, V., H. Akimoto, P. Bonasoni, M. Brauer, G. Carmichael, C.E. Chung, Y. Feng, S. Fuzzi, S.I. Hasnain, M. Iyngararasan, A. Jayaraman, M.G. Lawrence, T. Nakajima, T.S. Panwar, M.V. Ramana, M. Rupakheti, S. Weidemann, S.-C. Yoon, Y. Zhang, and A. Zhu (2008) Atmospheric Brown Clouds and Regional Climate Change, Part I of Atmospheric Brown Clouds: Regional Assessment Report with Focus on Asia., Published by the Project Atmospheric Brown Cloud, United National Environment Programme, Nairobi, Kenya., 27-37 pp.
- Saarikoski, S., H. Timonen, K. Saarnio, M. Aurela, L. Järvi, P. Keronen, V. M. Kerminen, and R. Hillamo (2008) Sources of organic carbon in fine particulate matter in northern European urban air, *Atmos. Chem. Phys.*, 8(20), 6281-6295.
- Shin, H.J., J. Kim, B.C. Choi, S.N. Oh, J. Yu, and K. Bower (2002) Concentrations of Air Pollutants Measured at Kosan during ACE-Asia intensive Observation Period, *Korean J. of Atmos. Environ.*, 18(6), 487-501. (in Korean with English abstract)
- Solomon, P., K. Baumann, E. Edgerton, R. Tanner, D. Eatough, W. Modey, H. Marin, D. Savoie, S. Natarajan, M.B. Meyer, and G. Norris (2003) Comparison of integrated samplers for mass and composition during the 1999 Atlanta Supersites project., *J. Geophys. Res.*, 108 (D7), 8423, doi:10.1029/2001JD001218.
- Song, M., M. Lee, K.J. Moon, J.S. Han, K.R. Kim, and G. Lee (2006) Chemical Characteristics of Fine Aerosols During ABC-EAREX2005, *Korean J. of Atmos. Environ.*, 22(5), 604-613. (in Korean with English abstract)
- Song, M., M. Lee, J.H. Kim, S.S. Yum, G. Lee, and K.-R. Kim (2010) New particle formation and growth in rela-

- tion to vertical mixing and chemical species during ABC-EAREX2005, *Atmos. Res.*, 97(3), 359-370.
- Streets, D.G., S. Gupta, S.T. Waldhoff, M.Q. Wang, T.C. Bond, and B. Yiyun (2001) Black carbon emissions in China, *Atmos. Environ.*, 35(25), 4281-4296.
- Streets, D.G., T.C. Bond, G.R. Carmichael, S.D. Fernandes, Q. Fu, D. He, Z. Klimont, S.M. Nelson, N.Y. Tsai, M.Q. Wang, J.H. Woo, and K.F. Yarber (2003) An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000. *J. Geophys. Res.*, 108(D21), 8809, doi:10.1029/2002JD003093.
- Szidat, S., M. Ruff, N. Perron, L. Wacker, H.A. Synal, M. Hal-lquist, A.S. Shannigrahi, K.E. Yttri, C. Dye, and D. Simpson (2009) Fossil and non-fossil sources of organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) in Göteborg, Sweden, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1521-1535.
- Turpin, B.J. and J.J. Huntzicker (1995) Identification of secondary aerosol episodes and quantification of primary and secondary organic aerosol concentrations during SCAQS. *Atmos. Environ.*, 29(23), 3527-3544.
- Yang, F., K. He, B. Ye, X. Chen, L. Cha, S.H. Cadle, T. Chan, and P.A. Mulawa (2005) One-Year record of organic and elemental carbon in fine particles in downtown Beijing and Shanghai, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1449-1457.
- Yu, X.Y., R.A. Cary, and N.S. Laulainen (2009) Primary and secondary organic carbon downwind of Mexico City, *Atmos. Chem. Phys.*, 9(18), 6793-6814.
- Zheng, M., L.G. Salmon, J.J. Schauer, L. Zeng, C.S. Kiang, Y. Zhang, and G.R. Cass (2005) Seasonal trend in PM<sub>2.5</sub> source contribution in Beijing, China., *Atmos. Environ.*, 39(22), 3967-3976.