

수도권 지역의 탄소 성분 에어로졸 측정 연구: KORUS-AQ 2016 캠페인 기간을 중심으로

A Study of Carbonaceous Aerosols Measurement in Metropolitan Area Performed during KORUS-AQ 2016 Campaign

정병주¹⁾ · 배민석²⁾ · 안준영³⁾ · 이정훈^{1),4),*}

¹⁾한국기술교육대학교 대학원 기계공학과, ²⁾국립목포대학교 환경공학과

³⁾국립환경과학원 대기환경연구과, ⁴⁾한국기술교육대학교 기계공학부

(2016년 11월 25일 접수, 2016년 12월 30일 수정, 2017년 1월 20일 채택)

Byeongju Jeong¹⁾, Min-Suk Bae²⁾, Junyeong Ahn³⁾ and Jeonghoon Lee^{1), 4),*}

¹⁾*Department of Mechanical Engineering, Graduate School of Korea University of Technology and Education (Current address, Air Pollutant Emission-Cap Team, Korea Environment Corporation)*

²⁾*Department of Environmental Engineering, Mokpo National University*

³⁾*Air Quality Research Division, National Institute of Environmental Research*

⁴⁾*School of Mechanical Engineering, Korea University of Technology and Education*

(Received 25 November 2016, revised 30 December 2016, accepted 20 January 2017)

Abstract

Carbonaceous aerosols such as the equivalent black carbon (eBC), the elemental carbon (EC) and the organic carbon (OC) were monitored at the Seoul Olympic Park site (37.521°N, 127.124°E) during the KORUS-AQ 2016 campaign using a Multi Angle Absorption Photometer (MAAP) and an OCEC Analyzer. Averaged mass concentrations of eBC, EC and OC were presented as $2.46 \pm 1.52 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $1.01 \pm 0.60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ and $4.85 \pm 2.60 \mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively. OC/EC ratio and mass absorption cross-section (MAC) of light absorbing aerosols were calculated as 2.32 and $14.8 \text{ m}^2/\text{g}$, respectively. Diesel OC concentrations were estimated from a source profile of diesel vehicles as well. eBC mass concentrations measured from May 26th to May 27th, 2016 showed 40% higher than averaged eBC mass concentrations during campaign period. $\text{PM}_{2.5}$ concentrations measured in this period were also higher than average $\text{PM}_{2.5}$ concentrations. High eBC concentrations were observed from May 29th to May 31st, 2016 and from June 9th to June 11th, 2016, possibly due to morning rush hour and the effect of temperature inversion at night. Diurnal variations of eBC, EC and Diesel OC showed a typical pattern of metropolitan area. In the weekend, however, diurnal variations of eBC, EC and Diesel OC mass concentrations were different from those measured in the weekday. It is expected that this study can help to understand the relationship between carbonaceous aerosols in a metropolitan area.

Key words : equivalent Black Carbon (eBC), Elemental Carbon (EC), Organic Carbon (OC)

*Corresponding author.

Tel : +82-(0)41-560-1151, E-mail : jlee@koreatech.ac.kr

1. 서 론

탄소 성분 에어로졸은 전 지구적으로 복사 강제력 및 인체 유해성에 깊게 관련되어 있다. 탄소 성분 에어로졸은 일반적으로 연료의 불완전연소와 같은 인위적 요소와 화산 폭발, 산림화재와 같은 자연적 요소에 의해 발생한다. 그중에서도 에어로졸 내 검정색을 띠는 단일 탄소 성분은 복사조도 변화(irradiance change)를 일으켜 복사 강제력에 영향을 준다(Petters *et al.*, 2009). Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) 5차 보고서에 따르면, 에어로졸에 의한 유효 복사 강제력(effective radiative forcing, ERF)을 크게 두 가지로 분류할 수 있는데, 첫 번째, 에어로졸 - 복사 상호작용(aerosol-radiation interaction)에 의한 유효 복사 강제력이다. 에어로졸 - 복사 상호작용은 대기 중에서 검은색의 탄소 성분 에어로졸이 존재하면 태양광을 흡수하여 직접적으로 복사 평형에 영향을 미치는 효과와 빛을 흡수한 에어로졸이 대기의 주변 온도를 상승시켜 구름 증발 및 구름의 수명을 단축시키고, 이로 인해 지표로 향하는 태양광량을 증가시켜 준직접적으로 복사 평형에 영향을 미치는 효과를 의미한다. 두 번째, 에어로졸 - 구름 상호작용(aerosol-cloud interaction)에 의한 유효 복사 강제력이며, 이는 에어로졸이 구름 응결핵의 역할을 하여, 구름을 생성시키고 구름이 지표로 향하는 태양광을 차단해 복사 평형에 영향을 미치는 효과이다(IPCC, 2013). 특히 지구온난화에 큰 영향을 미치는 검정색의 탄소 성분 에어로졸의 복사 강제력이 CO₂에 의한 복사 강제력의 절반 가량 된다고 알려져, 대기 중 탄소 성분 에어로졸 모니터링에 대한 관심이 갈수록 높아지고 있다(Ramanathan and Carmichael, 2008).

가시광선 및 적외선 대역의 파장의 빛을 흡수하는 검정색의 탄소 성분 에어로졸을 블랙카본(Black Carbon, BC)이라 명명하고, BC는 다양한 방법으로 측정되어 단일 탄소 성분 에어로졸을 포괄적으로 지칭하는 용어로 사용되어 왔다. 지난 수십 년간 서로 다른 원리와 측정기기로 측정된 BC 결과가 무분별하게 보고되면서, 최근 연구자들 가운데에서 BC의 용어를 측정 원리와 기기에 따라 명확하게 분류하자는 의견이 제시되었다(Lack *et al.*, 2013; Petzold *et al.*, 2013).

광 흡수 입자의 흡수계수(absorption coefficient)를

측정하여 BC의 질량농도를 산출하는 수많은 광 흡수 특성 측정 장비들은 변환 상수로 질량 흡수 단면적(mass absorption cross-section, MAC)을 사용한다. 하지만 이때 광 흡수 특성 측정 장비로 측정되는 에어로졸이 100% 카본으로 구성된 것이 아님을 명확하게 위하여, Petzold *et al.*(2013)은 광 흡수 특성을 이용해 측정된 탄소 성분의 에어로졸을 등가 블랙카본(equivalent black carbon, eBC)으로 정의하였고 가시광선 영역에서 빛을 강하게 흡수하는 물질을 광 흡수 탄소(light absorbing carbon, LAC)라 명명하고, LAC가 eBC뿐만 아니라, 특정 파장의 가시광선을 흡수하여 갈색 빛을 가지는 브라운 카본(brown carbon, BrC)까지 포함한다고 설명하였다.

원소 탄소(elemental carbon, EC)는 일반적인 탄소 성분의 입자를 지칭하며, 불활성 분위기에서는 대략 4000 K까지 열적 안정 상태를 가지고 산소와 접촉할 시, 340°C 이상에서 산화되는 특징을 가진다. 이러한 특징을 이용하여 탄소 성분 에어로졸을 측정하고 그 결과를 보고할 경우에는 EC로 명명하고 수소, 산소, 황 등의 다른 유기성분과 결합된 탄소 성분의 에어로졸을 측정하여 보고할 경우에는 유기 탄소(organic carbon, OC)로 표현한다.

따라서 본 연구에서는 블랙카본 또는 BC로 표현되어 왔던 탄소 성분 에어로졸을 측정 방법에 따라 eBC, EC 및 OC로 분류하여 설명하였다. 대기 중에 존재하는 eBC, EC 및 OC에 대한 정보는 국내 대기 배출 오염원과 오염원 기여도, 거동 특성 등을 파악하고 예측하는 데 중요한 자료로 활용되어, 한반도 대기 오염 문제를 개선하는 데 유용하게 쓰일 수 있다. 본 연구에서는 서울 송파구 올림픽공원 지상측정소에서 지름 2.5 μm 이하의 대기 중 eBC, EC 및 OC의 질량농도를 Korea-US Air Quality Study (KORUS-AQ) 2016 캠페인이 실시된 2016년 5월 12일부터 43일 동안 실시간 측정하였다. 실시간 측정된 eBC, EC 및 OC의 질량농도를 비교 분석하여 한반도 내의 대규모 도시에서 탄소 성분의 에어로졸의 농도 변화 추이 및 일변화 패턴을 이해하고 저농도 및 고농도 특성을 파악하였다.

2. 실험 방법

다중흡수광도계(Multi-angle absorption photometer,

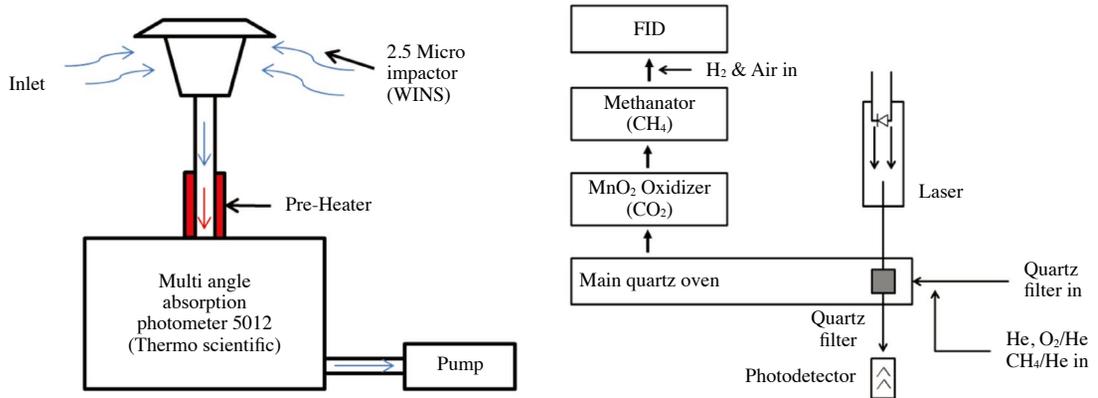


Fig. 1. Schematic of the MAAP 5012 & Lab. EC/OC Analyzer.

MAAP, Thermo Scientific 5012)를 사용하여 eBC를 측정하였다. MAAP은 필터 기반 장비에서 발생하는 필터 자체와 포집된 에어로졸의 개별적인 산란현상 그리고 둘 사이의 상호작용에 의한 산란현상 등의 문제점을 해결하기 위하여, 필터 전방과 후방에 설치된 광검출기로 산란광의 강도를 측정하여 투과광을 보정하는 기법을 채용하였다(Petzold and Schönlinner, 2004). MAAP은 기본적으로 eBC의 질량농도를 측정하며, eBC의 흡수계수는 MAAP 제조사에서 제시하는 MAC 값을 이용하여 환산되었다(Lee *et al.*, 2015; Hyvärinen *et al.*, 2013). 그림 1과 같이, 에어로졸 포집 입구에 WINS PM_{2.5} 임팩터(impactor)를 설치하여, PM_{2.5} 사이즈 컷을 실시하였고, 이때 입구를 통해 MAAP으로 유입되는 공기의 유량은 16.7 L/min이다. 입구 전단에는 가열기를 설치하여 기기에 유입되는 대기 온도를 35~40°C로 유지하였다. MAAP은 파장 670 nm의 적색 광원을 이용하는 것으로 알려져 있었으나, 실제 광원의 파장은 637 nm인 것으로 보고되었다(Müller *et al.*, 2011). 일반적으로 MAAP의 최소 측정 한계(minimum detection limit, MDL)는 10분과 30분 간격의 측정 결과에 따라 각각 0.05 µg/m³와 0.02 µg/m³로 보고되었다(Petzold *et al.*, 2002). 본 연구에서는 1분 단위로 eBC를 측정하였기에, 1분 측정 간격에 대한 blank 실험 결과, MDL은 0.21 µg/m³로 나타났다. 또한 4 µg/m³의 스파크 방전 탄소 입자를 일정하게 주입한 결과 정밀도(precision)는 약 5%로 나타났다. 본 연구에서는 1분 단위의 eBC와 측정 간격이 다른 EC/OC 데이터의 상

호 비교를 위하여 그래프 작성 시 1시간 또는 8시간 상자 평균(Box averaging) 기법을 사용하였다.

OC와 EC 분석을 위하여 실험실 탄소분석기(Lab based OCEC Carbon Aerosol Analyzer, Sunset laboratory Inc., USA)를 이용하였다. 탄소분석기는 NIOSH 5040 (National Institute of Occupational Safety & Health) 프로토콜(protocol)을 기초로 한 열광학적 투과도법을 이용한다. 포집한 석영 여과지로부터 1.5 cm² 절단하여 분석하였으며, 총 112개 시료 중 13%인 15개 시료에 대해서 재차 분석하였다. 그 결과 두 시료 간 OC 및 EC의 농도 모두, 재차 분석한 두 농도 평균값의 5% 이내에서 일치하였다. 또한, 탄소분석기 매 분석 종료 시마다 메탄 혼합 가스(5% CH₄ in He)를 주입하여 내부표준물질(internal standard)의 최종 분석 농도를 자동적으로 보정한다. 이에 외부표준물질인 단당(sucrose)을 이용하여 내부표준물질(CH₄)의 정확도를 재차 분석하였으며, 그 결과 0.99(target/actual)의 정확도를 나타내었다. 마지막으로 단당을 이용한 분석 가능한 최저 농도를 7번 분석한 값의 표준편차로부터 MDL을 구해, 본 실험 농도 값으로 최종 환산한 결과, OC 0.09 µg/m³ 및 EC 0.11 µg/m³로 나타나, 거의 모든 시료에 대해서 MDL 이상의 농도를 나타냈다. 이와 같은 방법은 일반적으로 대기 중 입자상 OC와 EC를 분석하는 데 광범위하게 적용되고 있다(Bae *et al.*, 2004).

EC 및 OC 측정을 위해 총 3대의 여과지 포집장치를 이용하여 8시간 간격으로 분진을 포집하였다. 탄소 디뉴더에 의해 가스상 유기 물질을 제거한 후, PM_{2.5} 입

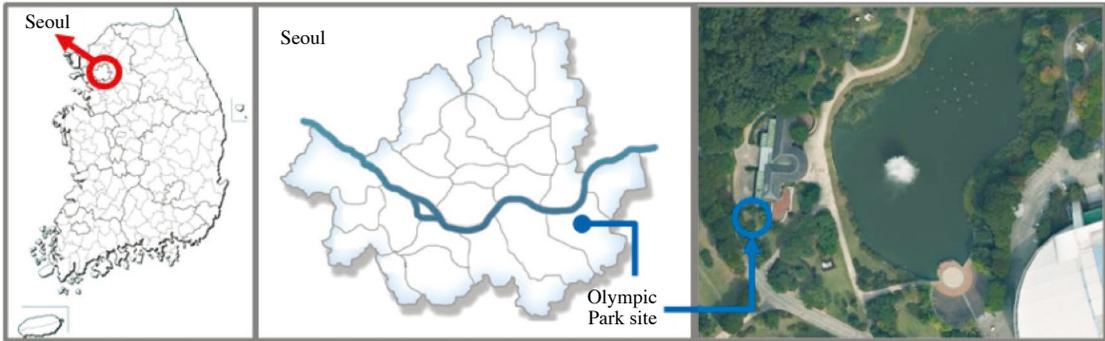


Fig. 2. Location of monitoring site.

팩터와 Y형 분배기를 통해 여과지팩에 장착된 테프론 여과지(PTFE, R2PJ047, Pall Corp., USA)와 석영 여과지(Pallflex, 2500QATUP, Pall Corp., USA)에 PM_{2.5} 분진을 16.7lpm의 유량 조건으로 동시에 포집하였다. 탄소 디누더 내 탄소 여과지(8 inch²×14 strips, Sunset Inc., USA)는 밀봉된 상태에서 현장에서 디누더에 장착되었으며, 실험기간 동안 탄소 여과지를 6일 간격으로 매주 교체하였다. 테프론 여과지와 석영 여과지 또한 밀봉된 페트리디쉬로부터 현장에서 한 장씩 장착하였으며, 포집된 여과지는 다시 밀봉하여 분석 전까지 냉동 보관하였다. 석영 여과지는 450°C에서 12시간 가열된 후, 알루미늄으로 내부 포장된 페트리디쉬에 사용 전까지 냉장보관하였다. 유량은 오리피스에 의해 일정 유지되었고, 측정 기간 동안 건식 유량계(Dry Gas Test Meter, Bios Defender 510, MesaLabs, USA)에 의해 매일 재확인하였다. 8시간 단위로 포집된 에어로졸 샘플과 EC/OC Analyzer를 이용해 8시간의 측정 간격으로 EC 및 OC를 분석하였다. 일부 결과에서는 8시간 단위의 EC 질량농도를 8시간 평균된 MAAP의 eBC 질량농도와 비(ratio)를 이용해 1시간 단위로 환산하여 표현하였다.

본 연구의 측정 위치는 서울 송파구 올림픽로에 위치한 서울 올림픽공원 임시 측정소(37.521°N, 127.124°E)이며, 그림 2와 같다. 서울 올림픽공원 측정소는 대규모 도시인 서울에 위치하고 있으며, 올림픽로를 비롯한 강동대로, 위례성대로 그리고 양재대로에 둘러싸여 있다. 또한 동남쪽 방향에는 직선거리로 2.5 km 내에 서울외곽순환도로가 위치하여 있기에 차량과 같은 이동 오염원에 의해 발생하는 탄소 성분의 에어로졸이

기인하기 쉬운 위치이다. 그에 더해 올림픽공원 측정소를 중심으로 반경 1 km 밖에는 수많은 아파트 단지를 비롯한 인구 거주 지역이 조성되어 있고, 해당 측정소가 많은 방문객이 드나드는 공원 내에 위치한다는 점에서 탄소 성분 에어로졸이 여러 오염원에 의해 유입될 수 있다.

3. 결과 및 토의

3.1 전체 기간 PM_{2.5} 및 eBC, EC, OC 농도

KORUS-AQ 2016 캠페인 기간 동안 서울 올림픽공원 측정소에서 측정된 eBC, EC 및 OC 농도와 함께 서울시 송파구의 PM_{2.5} 농도(<http://www.airkorea.or.kr>)를 그림 3에 나타내었다.

서울 올림픽공원 측정소에서 측정된 eBC, EC 및 OC의 시간별 농도 변화 패턴은 상당 부분 유사한 것으로 나타났다. 캠페인 기간 동안 측정된 eBC의 평균 농도는 2.46 μg/m³이었고, 표준편차는 1.52 μg/m³이었다. 순간적으로 측정된 eBC 최대 농도는 10.9 μg/m³로 나타났다. EC의 경우, 캠페인 기간 동안 평균 농도 값은 1.01 μg/m³이었으며, 표준편차는 0.60 μg/m³, 순간 최대 농도는 3.06 μg/m³이었다. 캠페인 기간 동안 측정된 EC의 평균 농도는 eBC 농도에 비해 2.5~3.3배 가량 낮게 측정되었다. 반면, OC의 평균 농도와 표준편차, 순간 최대 농도 값은 각각 4.85 μg/m³, 2.60 μg/m³ 및 13.1 μg/m³로 eBC 및 EC보다 더 높게 측정되었다. 그 외에 PM_{2.5}의 평균 농도, 표준편차 및 순간 최대 농도 값은 각각 29.6 μg/m³, 16.3 μg/m³ 및 88.9 μg/m³로

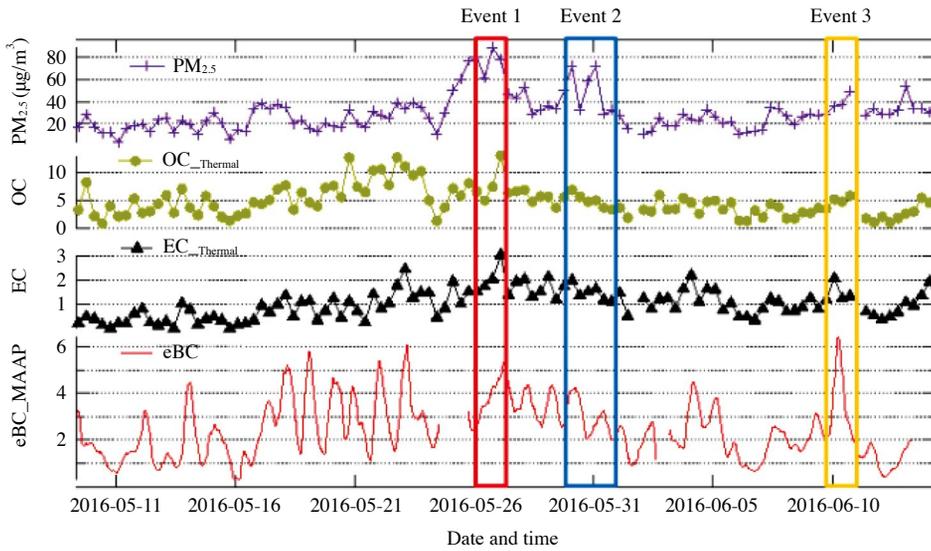


Fig. 3. Time series traces for the 8-hours eBC, EC and OC concentration measured by MAAP & EC/OC Analyzer & time series traces for the 8-hours PM_{2.5} at SongPa-Gu reported by Korea Meteorological Administration.

Table 1. Summary of statistical results for the mass concentrations of eBC, EC, OC and PM_{2.5} at the Seoul Olympic Park site. (unit: µg/m³)

| Measurement species | Mean | Standard deviation | Maximum |
|---------------------|------|--------------------|---------|
| eBC | 2.46 | 1.52 | 10.9 |
| EC | 1.01 | 0.60 | 3.06 |
| OC | 4.85 | 2.60 | 13.1 |
| PM _{2.5} | 29.6 | 16.3 | 88.9 |

표 1에 제시하였다.

캠페인 기간 중 측정된 eBC, EC 및 OC 질량농도를 기반으로 그림 4(a)와 같이 OC와 EC의 상관관계를 나타내었다. 더불어 OC/EC Ratio를 산출하였고, 그림 4(b)와 같이 eBC의 흡수계수(β_{eBC})와 EC 질량농도를 기반으로 eBC와 EC의 상관관계를 나타내어 광 흡수 에어로졸의 MAC 값을 산출하였다.

전체 기간 동안, 일반적인 선형회귀분석으로 산출한 OC/EC ratio는 2.32였으며, OC 및 EC의 평균 농도로 산출한 OC/EC ratio는 4.75였다. 또한 전체 기간 중 최소 OC/EC ratio는 2.10으로 산출되었다. OC의 비율이 EC에 비하여 2배 이상 높게 측정되었으며, 그림 4(a)에 나타나듯이, 상관관계 지수 값이 0.55로, 낮은 상관

관계를 보였다. EC는 주로 화석연료의 연소 과정에서 배출되는 1차 오염 물질인 반면, OC는 오염원에서 직접 배출(direct emission)되거나 1차 오염 물질이 다른 물질과 혼합 또는 성장하여 2차적으로 생성되기도 한다(Wu and Yu, 2016). OC/EC ratio 결과에 따르면, 캠페인 기간 중에 측정된 OC의 많은 부분이 1차 생성 및 2차 생성에서 기인한 것으로 판단되며, 또한 국외 발생 원인에 의한 장거리 이동 유입되었을 가능성이 있다.

반면, 그림 4(b)를 통해 캠페인 기간 동안 eBC와 EC의 상관관계는 높게 산출되었고, 0.81의 높은 상관관계 지수 값을 가졌다. MAAP으로 산출한 eBC의 흡수계수 값과 EC/OC Analyzer에서 측정된 EC 질량농도 값을 이용하면, 대기 중 광 흡수 에어로졸의 MAC 값을 산출해낼 수 있는데, 이와 같은 방법은 Cozic *et al.* (2008), Gilardoni *et al.* (2011) 등에서 이용한 산출방법과 같다. 오염원에서 바로 배출되는 eBC (freshly emitted eBC)의 경우, 550 nm의 파장에 대한 eBC의 MAC는 대략 $7.5 \pm 1.2 \text{ m}^2/\text{g}$ 의 값을 가진다고 보고되었는데 (Bond *et al.*, 2013), 본 캠페인 기간 동안 측정된 eBC와 EC를 기반으로 산출한 광 흡수 에어로졸의 MAC 값은 $14.8 \text{ m}^2/\text{g}$ 으로, 대략 2배 가량 높게 산출되었다. MAC는 광 흡수 에어로졸의 조성파 혼합 상태, 단일입

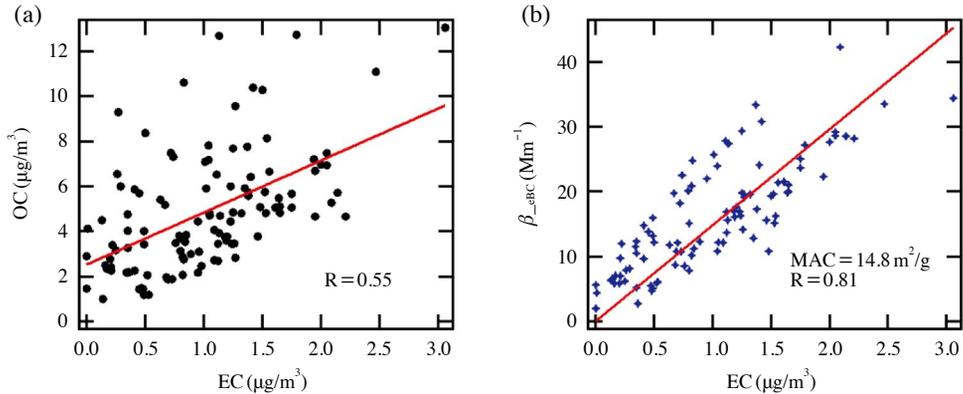


Fig. 4. (a) OC vs. EC and (b) absorption coefficient vs. EC.

자의 크기 등에 따라 다르게 나타날 수 있으며, 본 사례의 경우, eBC가 유기물질 또는 다른 무기물질에 둘러싸여 있는 내부 혼합 상태(internal mixing state)이기에 MAC 값이 비교적 높게 산출된 것으로 판단된다 (Lioussé *et al.*, 1993).

KORUS-AQ 2016 캠페인 기간 동안, PM_{2.5} 고농도 사례가 나타난 기간 동안 측정된 탄소 성분의 에어로졸의 고농도 특성을 분석하고자 5월 26일 08시부터 5월 27일 08시까지의 사례를 Event 1, 5월 29일 08시부터 5월 31일 08시까지의 사례를 Event 2로 선택하였고, 추가적으로 PM_{2.5}의 농도가 다른 날에 비해 낮지만, eBC는 급격히 상승한 6월 9일 08시부터 6월 11일 08시까지의 사례를 Event 3으로 선택하여 각각의 사례를 비교 및 분석하였다. 각각의 사례에서는 eBC 1시간 평균 데이터를 이용하여 시간별 변화를 나타냈으며, 이때 8시간 단위로 측정된 EC 데이터는 EC/eBC ratio를 이용해 1시간 데이터로 환산하였다.

MAAP으로 측정된 eBC 데이터와 EC/OC Analyzer로 측정된 EC와 OC 데이터를 기반으로 디젤 유기탄소(Diesel OC)를 산출할 수 있다. 본 연구에서는 대기 중에 존재하는 모든 EC가 디젤 차량에서 발생했다는 가정 하에서, 디젤 배기·배출 지표성분 프로파일을 이용하여 Diesel OC를 산출하였다. Lough *et al.* (2007)에 보고된 디젤 배기·배출 프로파일에 따른 EC/OC Ratio는 2.56이며, 이를 통해 산출된 Diesel OC는 eBC와 EC 데이터와 함께 사용되어, 대기 중 탄소 성분 에어로졸에 대한 이동 오염원의 영향력 분석에 이용될 수

있다. 다만 본 연구에서 측정된 EC가 모두 디젤 차량에서 발생했다고 단정할 수는 없으므로, 산출된 Diesel OC는 최대 가능한 Diesel OC라고 할 수 있다. 본 연구에서 지정한 3개의 사례일의 eBC, EC 및 Diesel OC 농도는 그림 5와 같이 1시간 단위로 표현되었고, 표 2에 각각의 사례 기간 동안 eBC, EC, OC 및 Diesel OC의 평균 농도를 표기하였다.

Event 1 사례는 그림 5(a)와 같다. 해당 기간에는 eBC 농도를 기준으로, 평균 4 µg/m³ 이상의 고농도 현상이 유지되었다. EC와 OC의 평균 농도 역시 각각 2.21 µg/m³와 7.80 µg/m³로 높게 측정되었고, 해당 기간 모든 시간대에 탄소 성분 에어로졸의 고농도 현상이 나타났다. 따라서 Event 1 사례에서는 PM_{2.5}에 탄소 성분 광흡수 에어로졸이 많이 포함된 것으로 판단된다. Event 1에 측정된 OC 평균 농도의 경우, 7.80 µg/m³로 매우 높게 측정되었고, 해당 기간의 Diesel OC의 평균 농도는 0.86 µg/m³로 산출되었다. 따라서 Event 1에 측정된 OC는 주로 측정소 인근의 이동 오염원에서 발생한 1차 유기탄소(primary organic carbon, POC)보다, 측정소가 공원 내에 위치하고 있는 것으로 고려할 때, 식생에 의한 VOC 2차 생성 물질(secondary organic carbon, SOC) 및 생물성 연소를 포함한 1차 연소 물질 등으로 구성되어 있다고 판단된다.

Event 2 사례는 그림 5(b)와 같으며, 해당 기간의 eBC, EC, OC 및 Diesel OC 평균 농도는 각각 3.16 µg/m³, 1.61 µg/m³, 5.25 µg/m³ 및 0.62 µg/m³로 측정되었으며, 모든 평균 농도 값은 Event 1에 비해 낮게 측정되

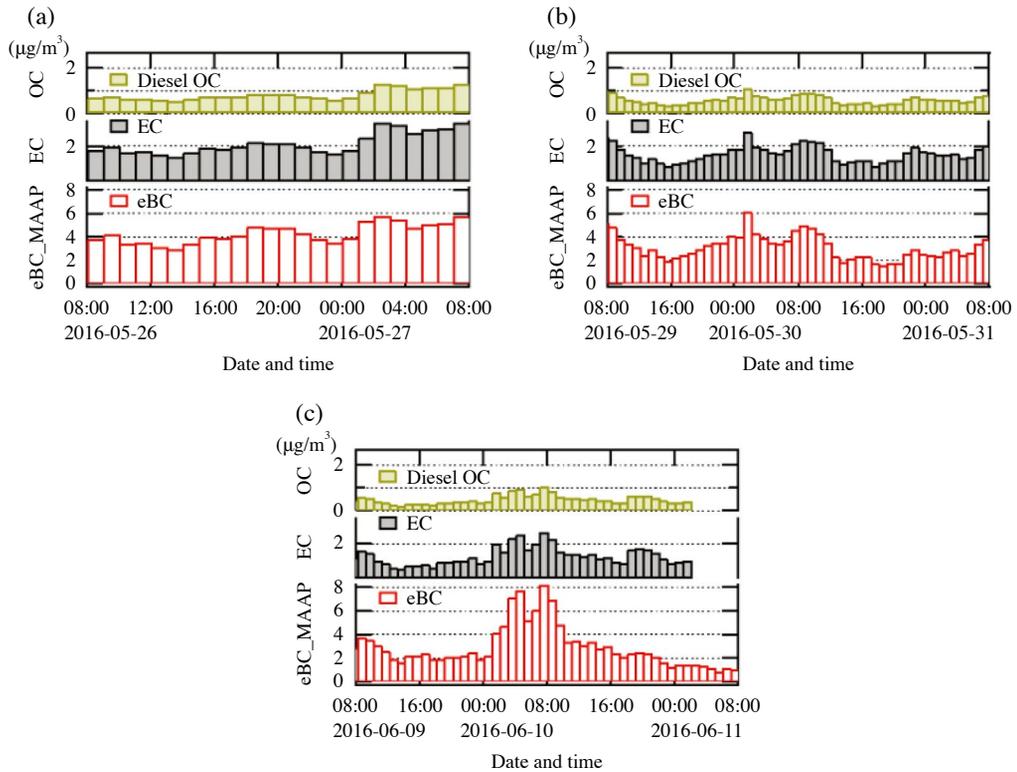


Fig. 5. Hour-of-day series of eBC, EC and Diesel OC (a) Event 1. May 26th to May 27th (b) Event 2. May 29th to May 31st (c) Event 3. June 9th to June 11th.

Table 2. Average mass concentrations of eBC, EC, OC, Diesel OC and PM_{2.5} for the three selected event days. (unit: µg/m³)

| Event day | eBC | EC | OC | Diesel OC | PM _{2.5} |
|-----------|------|------|------|-----------|-------------------|
| Event 1 | 4.34 | 2.21 | 7.80 | 0.86 | 76.90 |
| Event 2 | 3.16 | 1.61 | 5.25 | 0.62 | 47.93 |
| Event 3 | 2.98 | 1.35 | 4.16 | 0.52 | 34.24 |

었다. 하지만 Event 2에서는 Event 1과 다르게 출퇴근 시간 교통량 증가에 따른 농도 변화가 관측되었다. 그림 5(b)에 나타나듯이, 5월 29일과 5월 30일 모두 오전 출근시간과 오후 퇴근시간에 eBC, EC 및 Diesel OC의 농도가 증가하는 현상을 보였으며, 오후 시간대에는 오전 및 오후의 출퇴근 시간보다 농도가 비교적 낮게 측정되었다. 이는 출퇴근 시간대에 측정소 인근에 위치한 도로의 차량이 급증하여 나타난 결과로 판단되

며, 해당 시간대의 eBC 및 EC는 주로 이동 오염원에서 배출된 1차 물질인 것으로 생각된다. 한편, Event 1과 Event 2의 OC 평균 농도와 Diesel OC 평균 농도를 비교해보았을 때, OC는 Event 1에 비해 약 33% 정도 낮아졌지만, Diesel OC는 약 27% 정도 낮아진 것을 알 수 있다. 이는 Event 2 기간의 OC 또한 POC보다는 주로 SOC로 이루어져 있고, SOC의 영향력이 Event 1 기간에 비해 낮아짐을 나타낸다.

Event 3 기간은 그림 3에 나타나듯이, PM_{2.5}의 농도는 다른 Event 기간에 비해 낮았고, eBC, EC, OC 및 Diesel OC의 평균 농도 값이 각각 2.98 µg/m³, 1.35 µg/m³, 4.16 µg/m³ 및 0.52 µg/m³로 다른 Event에 비해 낮았다. 하지만 Event 3에서는 6월 10일 오전 7시에 eBC와 EC의 최대 농도가 각각 8.26 µg/m³와 2.70 µg/m³로 측정되는 고농도 현상이 유지되었다. 이러한 고농도 현상의 원인은 크게 두 가지에 의한 것으로 판단된다. 첫

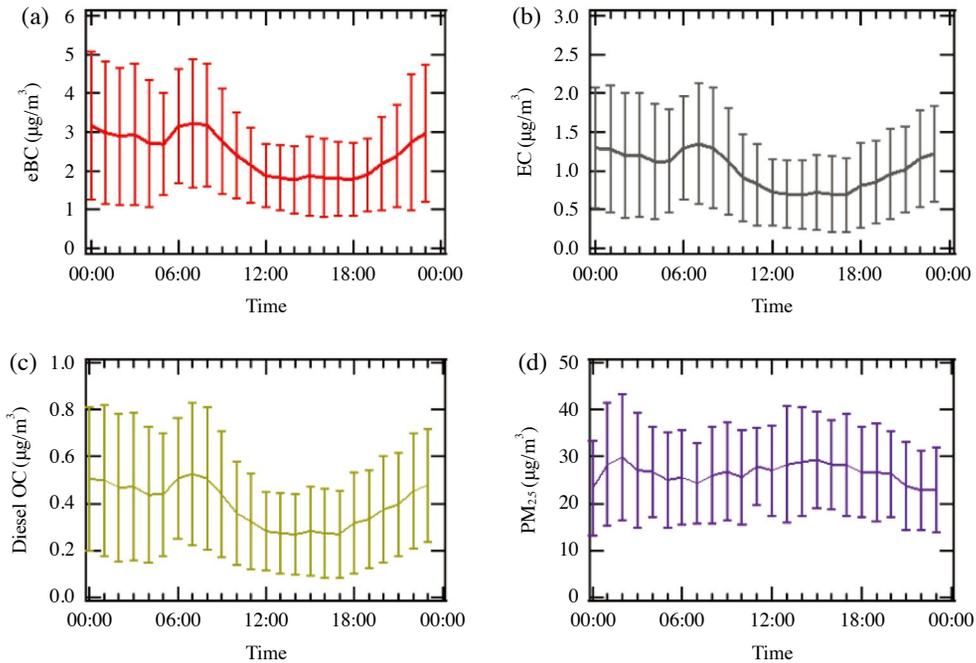


Fig. 6. Diurnal variations of (a) eBC, (b) EC, (c) Diesel OC and (d) PM_{2.5} mass concentrations.

번째 원인으로는 고농도 현상이 발생한 6월 10일 오전 1시~오전 9시 경에 오전 출근시간대가 포함되기 때문에, 출근시간 측정소 인근 도로 위 차량 급증에 따른 1차 오염 물질의 유입에 따른 고농도 현상을 생각할 수 있다. 특히, 고농도 현상이 발생한 Event 3(2016년 6월 10일)은 금요일인데, 금요일의 출근시간대는 다른 요일의 출근시간대보다 탄소 성분 에어로졸의 농도가 높게 측정되는 것으로 연구되었다. 이를 뒷받침할 요일에 따른 시간별 농도 변화의 결과는 3.2절에 자세히 후술되어 있다. 두 번째 원인으로는 심야시간대의 기온 역전 현상의 영향을 생각해 볼 수 있다. PM_{2.5}와 같은 입자상 물질을 대상으로 지상측정을 실시한 결과, 기온 역전이 일어나는 심야시간에 입자상 물질이 높게 측정되는 연구 결과가 보고된 바 있다(Wallace and Kanaroglou, 2009). 따라서 Event 3에 나타난 심야 및 오전의 eBC와 EC 고농도 현상은 출근시간에 따른 이동 오염원 증가와 심야시간 기온 역전 현상이 주요 원인인 것으로 판단된다.

한편, 그림 5(c)에서 eBC와 EC의 농도 변화율을 살펴보면, eBC의 농도 변화율이 EC의 농도 변화율보다

큰 것을 볼 수 있다. 6월 9일 자정부터 오후 10시까지의 eBC 평균 농도는 2.1 µg/m³이었으며, 이후 고농도 사례가 발생한 7시간 동안의 eBC 평균 농도는 6.2 µg/m³로 약 3배 더 높게 측정되었다. 하지만 EC 농도의 경우, 6월 9일 자정부터 오후 10시까지 평균 농도가 1.0 µg/m³, 이후 고농도 사례 기간은 1.9 µg/m³로 산출되었고, 증가율은 약 2배로 eBC의 증가율보다 낮았다. 이를 통해서, Event 3 고농도 기간에 측정된 eBC는 탄소 성분 외에, 광 흡수 특성을 가지는 타 물질에 영향을 받았을 가능성이 있으므로, 이에 대한 추가적인 연구가 필요할 것으로 판단된다.

3.2 일평균 농도 변화 및 요일별 농도 변화

KORUS-AQ 2016 캠페인 기간 동안 측정된 eBC, EC 및 Diesel OC 농도를 기반으로 24시간 동안의 시간 평균 농도 변화 그래프를 PM_{2.5}의 시간평균 농도 변화 그래프와 함께 그림 6에 나타내었다. 이때 함께 비교된 PM_{2.5}의 데이터는 서울 송파구 측정소에서 측정되었다. eBC, EC 및 Diesel OC의 농도는 서로 비슷한 패턴을 보였다. 그림 6(a)에 나타나듯이, eBC의 경우 평균 농

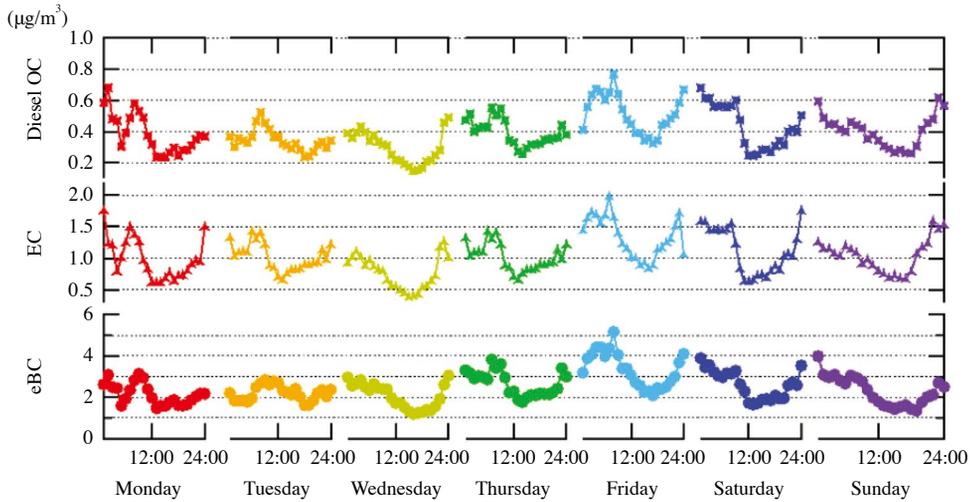


Fig. 7. Hour-of-day weekly series of eBC, EC and Diesel OC mass concentrations.

도 값은 오전 8시에 최대 $3.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 를 보였으며 이때의 표준편차는 $1.58 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이다. 또한 eBC의 평균 농도 값은 오후 2시에 $1.78 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 최소값을 보였으며, 표준편차는 $0.86 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이다. eBC는 오후 6시 이후부터 점차적으로 증가하는 것으로 나타나는데, 이는 eBC의 농도 변화가 차량의 수가 증가하는 출근시간과 퇴근시간에 큰 영향을 받는다는 것을 방증하는 결과이다. 한편, 자정부터 약 $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 의 농도를 유지하는 것은 3.1절에서 전술한 바와 같이 심야 기온 역전 현상의 영향인 것으로 판단된다. eBC 기준, 자정 시간에는 $1.90 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 가장 큰 표준편차를 보였으며, 심야 시간에는 평균 농도가 낮은 오후 시간에 비해 표준편차가 큰 것을 알 수 있다. 이는 심야시간에 기온 역전 현상의 영향을 받은 날과 받지 않은 날과의 eBC 농도 차이가 크다는 것을 보여준다. 그림 6(b)와 그림 6(c)에 나타나듯이, EC와 Diesel OC의 최대값은 각각 $1.35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 와 $0.53 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 오전 7시 경에 측정되었으며, 최소값은 오후 2시 경에 EC와 Diesel OC, 각각 $0.69 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 와 $0.28 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 최대값과 최소값이 대략 2배의 차이를 보였다. 따라서 EC와 Diesel OC 농도 변화는 eBC의 농도 변화와 마찬가지로, 출퇴근 시간에 따른 교통량 증가와 밀접한 관계를 갖는 것으로 판단된다.

반면, 그림 6(d)에 나타난 $\text{PM}_{2.5}$ 의 시간별 평균 농도 변화는 eBC, EC 및 Diesel OC의 평균 농도의 변화와

Table 3. Day-of-week average of mass concentrations eBC, EC, and Diesel OC. (unit: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

| | Mon | Tue | Wed | Thu | Fri | Sat | Sun |
|-----------|------|------|------|------|------|------|------|
| eBC | 2.13 | 2.20 | 2.07 | 2.67 | 3.34 | 2.62 | 2.30 |
| EC | 0.98 | 0.88 | 0.76 | 1.01 | 1.32 | 1.11 | 1.04 |
| Diesel OC | 0.38 | 0.34 | 0.30 | 0.39 | 0.52 | 0.43 | 0.41 |

상이한 패턴을 보였다. $\text{PM}_{2.5}$ 는 오전 7시부터 오전 8시 또는 오전 6시 이후 교통량 증가로 인한 뚜렷한 농도 변화가 나타나지 않았다. 또한 최대값과 최소값이 각각 $29.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 및 $23.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 나타나며, 전체 평균 값인 $29.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 와 큰 차이를 보이지 않았다. 즉, eBC, EC 및 Diesel OC의 출퇴근 시간 농도 변화 및 심야시간의 고농도 현상은 $\text{PM}_{2.5}$ 의 영향은 아닌 것으로 판단된다.

그림 7은 eBC, EC 및 Diesel OC 농도의 요일별 일변화 그래프이며, 요일별 평균 농도는 표 3과 같다. 요일별 eBC, EC 및 Diesel OC의 평균 농도는 금요일에 각각 $3.34 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $1.32 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 및 $0.52 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 가장 높았으며, 수요일에는 각각 $2.07 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $0.76 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 및 $0.30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 모든 평균 농도 값이 가장 낮게 산출되었다. 목요일부터 일요일까지 측정된 탄소 성분 에어로졸의 평균 농도가 월요일부터 수요일까지 측정된 농도보다 높았다. 이런 경향은 2015년 5월 26일부터 2015년 6월 12일까지 서울 KIST에서 측정된 국내 결과(Lee *et al.*,

2015)와 스위스, 베른 등의 유럽의 도회지 지역에서 측정된 해외 결과(Reche *et al.*, 2011)와도 상이하다. 유럽의 도회지 지역에서는 월요일에서 금요일로 갈수록 eBC 평균 농도가 높게 측정되는 일정한 경향이 나타난 반면, 본 연구에서 측정된 eBC 요일별 평균 농도는 일정한 경향이 나타나지 않았다.

KIST에서 측정된 eBC 요일별 변화와 본 연구의 eBC 요일별 변화를 비교해보면, 두 결과 모두 주중에는 수요일에 eBC의 평균 농도가 가장 낮았으며, 이는 주중 서울시의 자가용 사용 비율이 수요일에 가장 낮다는 것을 보여준다. 한편, 2015년 서울 KIST에서 측정된 결과에서는 월요일의 평균 eBC 농도가 주말의 평균 eBC 농도보다 높게 나타났고, 2016년 서울 올림픽공원에서 측정된 본 연구의 결과에서는 주말 eBC 평균 농도가 월요일의 평균 eBC 농도보다 높게 나타났다. 이와 같은 결과는 대규모 공원 내에 위치한 올림픽공원 측정소의 지역적 특성에 의한 것으로 판단된다. 올림픽공원은 주말에 인근 시민의 왕래 및 타 지역 방문객에 의해 공원 유입 인구와 차량이 증가하므로, 그에 따라 주말 평균 eBC 농도가 월요일의 평균 eBC 농도보다 높은 것으로 판단된다.

그림 7의 각 요일별 일변화를 살펴보면, 주말을 제외한 주중에는 오전 6시~8시 경에 eBC, EC 및 Diesel OC 농도 모두 최대값을 기록하였으며, 이후 오후 12시~4시 경에 최소값을 기록하였다. 주말에는 출근시간에 따른 농도 증가보다 기온 역전 현상의 영향이나, 심야시간에 교통량 증가에 영향을 받는 것으로 보이며, 이에 따라 모든 eBC 농도가 오전 0시~오전 4시에 최대로 기록되었다. 즉, 주말에는 올림픽공원 방문객 수 증가에 의해 eBC 평균 농도 값이 월요일에서 수요일까지의 주중 평균 농도 값보다 높지만, 주중 출퇴근 차량에 의한 시간별 농도 증가 패턴은 보이지 않는다. 이와 같은 주말 eBC 시간별 변화 패턴은 2015년 천안시 병천면에 위치한 KOREATECH 측정소에서 측정된 eBC 시간별 변화 패턴과 유사하다(Lee *et al.*, 2015). KOREATECH 측정소는 반경 15킬로미터 이내에 있는 독립기념관, 유관순 기념관, 워터파크 및 리조트 등의 관광지로 인해 주중보다 주말에 측정된 eBC 농도가 더 높게 나타났으며, 일일 변동폭 또한 주말이 더 크게 나타났다. 이런 유사점은 올림픽공원 측정소와 KOREATECH 측정소 모두 관광지 내부 또는 관광지 인근이라

는 지역적 공통점으로 인해 나타난 것으로 판단된다.

서울 올림픽공원 측정소에서 최대 평균 농도를 기록한 금요일에는 오전 8시에 최대값($5.16 \mu\text{g}/\text{m}^3$)을 나타내었으며, 최소 평균 농도를 기록한 수요일 오후 4시에 최소값($1.19 \mu\text{g}/\text{m}^3$)을 나타내었다. 주중 eBC 평균 농도를 살펴보면, 오전 출근시간과 오후 퇴근시간에 따른 명확한 농도 증가 패턴이 나타나며, 이는 전술한 교통량 증가에 따른 eBC 증가 결과를 뒷받침한다. 또한 금요일 출근시간에 가장 높은 평균 농도를 기록한 점은 3.1절에서 전술했던 Event 3(6월 10일, 금요일)의 오전 고농도 사례를 이해할 수 있는 근거가 된다.

4. 결 론

KORUS-AQ 2016 캠페인 기간 동안 서울 올림픽공원 측정소에서 MAAP과 EC/OC Analyzer를 이용해 대기 중 eBC, EC 및 OC를 측정한 평균 값(±표준편차)은 각각 $2.46 \pm 1.52 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $1.01 \pm 0.60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 및 $4.85 \pm 2.60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이며, eBC의 경우 2015년 서울 KIST 측정소에서 MAAP으로 측정된 값보다 높게 나타났다. 전체 관측기간 동안 eBC, EC 및 OC의 질량농도는 최대 $10.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $3.06 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 및 $13.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 높게 나타났다. 전체 기간의 EC 및 OC 농도를 기반으로 EC/OC Ratio와 상관관계를 산출한 결과, 대기 중 OC의 비율이 2배 가량 높게 산출되었고, 상관관계 지수 0.55로 비교적 낮은 상관관계를 보였다. 또한 전체 기간의 eBC와 EC의 상관관계를 비교한 결과, 높은 상관관계를 보였으며 광 흡수 에어로졸 MAC은 $14.8 \text{m}^2/\text{g}$ 으로 산출되었다. 이 값은 오염원에서 바로 배출된 eBC의 MAC 값보다 대략 2배 정도 높으며, 이에 대한 주된 원인은 eBC의 혼합상태 때문으로 판단된다. 캠페인 전체 기간 중에서 $\text{PM}_{2.5}$ 고농도 사례에 부합되는 두 개의 사례일(5월 26일~27일, 5월 29일~31일)을 선정하였고, 그 외에 순간 eBC 농도가 전체 기간 중 가장 높게 측정된 하나의 사례일(6월 9일~11일)을 선정하여, 총 3개의 사례에 대하여 eBC, EC 및 Diesel OC 1시간 평균 데이터를 비교 및 분석하였다. 첫 번째 사례는 eBC 농도를 기준으로, 평균 $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이상의 광 흡수 에어로졸 고농도 현상이 유지되었으며, 모든 시간대에 탄소 성분 에어로졸의 고농도 현상이 발생하였고, $\text{PM}_{2.5}$ 농도

또한 높게 나타났다. 따라서 첫 번째 사례일에 측정된 PM_{2.5}에는 탄소성 광 흡수 에어로졸이 다수 포함되어 있을 것으로 판단된다. 두 번째 사례는 eBC 농도를 기준으로, 평균 3.16 µg/m³의 고농도 현상이 유지되었지만, 첫 번째 사례와는 다르게 출퇴근 시간에 따른 농도 변화 패턴이 발견되었다. 마지막 사례에서는 eBC 농도를 기준으로, 평균 2.98 µg/m³의 고농도 현상이 나타났는데, 이는 심야 기온 역전 현상과 오전 출근시간에 따른 교통량 증가가 원인으로 판단된다. 전체 기간의 일 평균 농도와 요일별 농도를 비교한 결과, 서울 올림픽공원 측정소는 주로 주중 출퇴근 시간의 교통량 증가에 따라 탄소 성분의 에어로졸 농도가 영향을 받으며, 심야 기온 역전 현상에도 영향을 받는 것으로 보인다. 또한 주말에는 지역적 특성에 의하여, 예년에 측정된 타 측정소에서는 발견되지 않은 농도 변화 패턴이 보였다. 본 연구의 결과는 한반도 대규모 도심 지역의 탄소 성분 에어로졸 발생원 규명과 유입경로 분석에 유용하게 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

감사의 글

본 연구는 환경부 환경융합신기술개발사업(2013001650004)와 국립환경과학원 수도권 2차 미세먼지 생성과정 연구(II), 한국기술교육대학교 교육연구진흥과제 및 한국연구재단의 기초연구사업(2016R1D1A1B03931654)의 지원을 받은 연구입니다. 특히, 일부 측정 자료를 공유해주신 서울보건환경연구원 연구팀과 서울 올림픽공원 측정소에서 함께 데이터를 수집한 한국기술교육대학교 윤정석 연구원 및 목포대학교 박다정 연구원께 깊은 감사드립니다.

References

Bae, M.S., J.J. Schauer, J.T. DeMinter, J.R. Turner, D. Smith, and R.A. Cary (2004) Validation of a semi-continuous instrument for elemental carbon and organic carbon using a thermal-optical method, *Atmospheric Environment*, 38, 2885-2893.

Bond, T.C., S.J. Doherty, D.W. Fahey, P.M. Forster, T. Berntsen, B.J. DeAngelo, M.G. Flanner, S. Ghan, B.

Kärcher, D. Koch, S. Kinne, Y. Kondo, P.K. Quinn, M.C. Sarofim, M.G. Schultz, M. Schultz, C. Venkataraman, H. Zhang, S. Zhang, N. Bellouin, S.K. Guttikunda, P.K. Hopke, M.Z. Jacobson, J.W. Kaiser, Z. Klimont, U. Lohmann, J.P. Schwarz, D. Shindell, T. Storelvmo, S.G. Warren, and C.S. Zender (2013) Bounding the role of black carbon in the climate system: a scientific assessment, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 118, 5380-5552.

Cozic, J., B. Verheggen, E. Weingartner, J. Crosier, K.N. Bower, M. Flynn, H. Coe, S. Henning, M. Steinbacher, S. Henne, M.C. Coen, A. Petzold, and U. Baltensperger (2008) Chemical composition of free tropospheric aerosol for PM₁ and coarse mode at the high alpine site Jungfraujoch, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8, 407-423.

Gilardoni, S., E. Vignati, E. Marmer, F. Cavalli, C. Belis, V. Gianelle, A. Loreiro, and P. Ataxo (2011) Sources of carbonaceous aerosol in the Amazon basin, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 2747-2764.

Hyvärinen, A.P., V. Vakkari, L. Laakso, R.K. Hooda, V.P. Sharama, T.S. Panwar, J.P. Beukes, P.G. Zul, M. Josipovic, R.M. Garland, M.O. Andreae, U. Pöschl, and A. Petzold (2013) Correction for a measurement artifact of the Multi-Angle Absorption Photometer (MAAP) at high black carbon mass concentration levels, *Atmospheric Measurement Techniques*, 6, 81-90.

IPCC (2013) *Climate change 2013: The Physical Science Basis*, Cambridge University Press, Cambridge, UK and New York, NY, U.S.A., 578pp.

Lack, D.A., H. Moosmüller, G.R. McMeeking, R.K. Chakrabarty, and D. Baumgardner (2013) Characterizing elemental, equivalent black, and refractory black carbon aerosol particles: a review of techniques, their limitations and uncertainties, *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, doi: 10.1007/s00216-013-7402-3.

Lee, J., B. Jeong, D.J. Park, and M.S. Bae (2015) A study of black carbon measurement in metropolitan area and suburban area of the Korean Peninsula performed during Pre KOREA-US Air Quality Study (KORUS-AQ) campaign, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 31, 472-481. (in Korean with English abstract)

Liousse, C., H. Cachier, and S.G. Jennings (1993) Optical and

- thermal measurements of black carbon aerosol content in different environments - Variation of the specific attenuation cross-section, *sigma*, *Atmospheric Environment*, 27, 1203-1211.
- Lough, G.C., C.G. Christensen, J.J. Schauer, J. Tortorelli, E. Mani, D.R. Lawson, N.N. Clark, and P.A. Gabele (2007) Development of molecular marker source profiles for emissions from on-road gasoline and diesel vehicle fleets, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 57, 1190-1199.
- Müller, T., J.S. Henzing, G. de Leeuw, A. Wiedensohler, A. Alastuey, H. Angelov, M. Bizjak, M.C. Coen, J.E. Engström, C. Gruening, R. Hillamo, A. Hoffer, K. Imre, P. Ivanow, G. Jennings, J.Y. Sun, N. Kalivitis, H. Karlsson, M. Komppula, P. Laj, S.M. Li, C.R. Lunder, A. Marinoni, S.M. dos Santos, M. Moerman, A. Nowak, J.A. Ogren, A. Petzold, J.M. Pichon, S. Rodriguez, S. Sharma, P.J. Sheridan, K. Teinila, T. Tuch, M. Viana, A. Virkkula, E. Weingartner, R. Wilhelm, and Y.Q. Wang (2011) Characterization and intercomparison of aerosol absorption photometers: result of two intercomparison workshops, *Atmospheric Measurement Techniques*, 4, 245-268.
- Petters, M.D., M.T. Parsons, A.J. Prenni, P.J. DeMott, S.M. Kreidenweis, C.M. Carrico, A.P. Sullivan, G.R. McMeeking, E. Levin, C.E. Wold, J.L. Collett, and H. Moosmüller (2009) Ice nuclei emissions from biomass burning, *Journal of Geophysical Research*, 114, (D07209), doi:10.1029/2008JD011532.
- Petzold, A. and M. Schönlinner (2004) Multi-angle absorption photometry: a new method for the measurement of aerosol light absorption and atmospheric black carbon, *Journal of Aerosol Science*, 35, 421-441.
- Petzold, A., H. Kramer, and M. Schönlinner (2002) Continuous measurement of atmospheric black carbon using a multi-angle absorption photometer, *Environmental Science and Pollution Research*, Special Issue, 4, 78-82.
- Petzold, A., J.A. Ogren, M. Fiebig, P. Laj, S.-M. Li, U. Baltensperger, T. Holzer-Popp, S. Kinne, G. Pappalardo, N. Sugimoto, C. Wehrli, A. Wiedensohler, and X.-Y. Zhang (2013) Recommendations for reporting "black carbon" measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 8365-8379.
- Ramanathan, V. and G. Carmichael (2008) Global and regional climate changes due to black carbon, *Nature Geoscience*, 1, 221-227.
- Reche, C., X. Querol, A. Alastuey, M. Viana, J. Pey, T. Moreno, S. Rodríguez, Y. González, R. Fernández-Camacho, J. de la Rosa, M. Dall'Osto, A.S.H. Prévôt, C. Hueglin, R.M. Harrison, and P. Quincey (2011) New considerations for PM, Black Carbon and particle number concentration for air quality monitoring across different European cities, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 6207-6227.
- Wallace, J. and P. Kanaroglou (2009) The effect of temperature inversions on ground-level nitrogen dioxide (NO₂) and fine particulate matter (PM_{2.5}) using temperature profiles from the Atmospheric Infrared Sounder (AIRS), *Science of the Total Environment*, 407, 5085-5095.
- Wu, C. and J.Z. Yu (2016) Determination of primary combustion source organic carbon-to-elemental carbon (OC/EC) ratio using ambient OC and EC measurements: secondary OC-EC correlation minimization method, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16, 5453-5465.