Check for updates

Journal of Korean Society for Atmospheric Environment
Vol. 37, No. 5, October 2021, pp. 710-728
https://doi.org/10.5572/KOSAE.2021.37.5.710
p-ISSN 1598-7132, e-ISSN 2383-5346

논 문

# 기상항공기에서 관측된 내화성 블랙카본의 2020년 봄철 서해상 수직 분포특성

# Vertical Distributions of Refractory Black Carbon over the Yellow Sea during the Spring 2020

**강유정, 임세희*, 이미혜, 유희정**[1)]
고려대학교 지구환경과학과, [1)]국립기상과학원 미래기반연구부

**Yujeong Kang, Saehee Lim*, Meehye Lee, Hee-Jung Yoo**[1)]
*Department of Earth and Environmental Sciences, Korea University, Seoul, Republic of Korea*
[1)]*Innovative Meteorological Research Department, National Institute of Meteorological Sciences, Jeju, Republic of Korea*

**접수일** 2021년 7월 23일
**수정일** 2021년 8월 26일
**채택일** 2021년 8월 27일

**Received** 23 July 2021
**Revised** 26 August 2021
**Accepted** 27 August 2021

***Corresponding author**
Tel : +82-(0)2-3290-3645
E-mail : saehee.lim@gmail.com

**Abstract** Black carbon (BC) is a light-absorbing particle that strongly absorbs visible light and called short-lived climate pollutant. In this study, refractory black carbon (rBC) was measured onboard the Gisang Aircraft using a single particle soot photometer (SP2) over the Yellow Sea during March 20~June 03, 2020. For the seven flights, the range of number and mass concentration of rBC and the number concentration of scattering particles were $<$10~320 cm$^{-3}$, $<$5~710 ng m$^{-3}$, and $<$10~2299 # cm$^{-3}$, respectively. In addition, the geometric mean mass diameter ($D_{gm}$) of rBC and thick-coated rBC fraction ($F_{thick\text{-}coat}$) were 167~182 nm and 34~58%, respectively. Generally, rBC number and mass concentration and the number concentration of scattering particles were higher at planetary boundary layer (PBL) than free troposphere (FT) and rBC concentration was particularly affected by the PBL development. As the PBL height increased, the concentrations of rBC and scattering particles decreased. It was found that the evolution of boundary layer affected the vertical distribution of rBC properties over the Yellow Sea.

**Key words:** Black carbon, Size distribution, Mixing state, Single Particle Soot Photometer (SP2), Yellow Sea, Vertical distribution

## 1. 서 론

블랙카본(Black carbon, 이하 "BC")은 화석연료와 식생소각으로부터 배출되는 입자상 물질이다(Bond *et al.*, 2013). BC는 가시광선을 강하게 흡수하는 광흡수물질(복사강제력 0.4 W m$^{-2}$)로(IPCC, 2013), $CO_2$ 다음으로 지역적 혹은 전 지구적 온난화에 큰 영향을 미치는 것으로 알려져 있다(Ramanathan and Carmichael, 2008; IPCC, 2001). 특히, 고도에 따른 대기중 BC 농도의 차이는 에어로졸의 복사강제력 및 지구의 알베도에 큰 영향을 미친다(Babu *et al.*, 2008; Haywood and Ramaswamy, 1998).

갓 배출된 BC는 소수성 특성을 가지는데, 함께 배출된 질소산화물, 황산화물 및 유기탄소화합물이 표면에 코팅되는 내부혼합(internal mixing)을 거치며(Bond *et al.*, 2013), 흡습성이 증가하고 물리화학적 특성이 변화한다(He *et al.*, 2015; Liu *et al.*, 2013; Shiraiwa *et al.*, 2010; Saathoff *et al.*, 2003). 또한 이 과정에서 BC 코어에 더 많은 빛이 굴절되어 결과적으로 갓 배출된 BC에 비해 광흡수성이 증가한다(Wang *et al.*, 2018; Zhang *et al.*, 2018; Lack and Cappa, 2010).

전 세계적으로 BC는 2010년을 기준으로 주거(44%; 4,163 Gg year$^{-1}$), 산불(24%; 2,268 Gg year$^{-1}$), 운송(14%; 1,349 Gg year$^{-1}$), 산업(5%; 462 Gg year$^{-1}$),

항공 및 선박(4%; 363 Gg year$^{-1}$), 농업(4%; 362 Gg year$^{-1}$) 활동에서 배출되며, 이 중 인위적 배출은 76% (7,264 Gg year$^{-1}$)를 차지한다(Klimont *et al.*, 2017). 그중에서 동아시아는 인위적 BC의 주요 배출지역으로, 전 세계 인위적 BC의 1/4이 중국에서 배출되는 것으로 추정된다(Klimont *et al.*, 2017; Ramanathan and Carmichael, 2008; Cooke *et al.*, 1999). 지리적으로 중국의 풍하 측에 위치한 우리나라는 아시아 대륙으로부터 장거리 이동되는 오염물질의 영향을 크게 받는데(Chung and Kim, 2008; Hatakeyama *et al.*, 1997), 이 대륙 플룸은 한반도를 지나 멀리는 북아메리카까지 이른다(Moteki *et al.*, 2007; Shiraiwa *et al.*, 2007; Han *et al.*, 2006). 그 과정에서 BC는 노화되며 물리, 화학, 광학적 특성이 변할 수 있다. 따라서 우리나라로 유입되는 BC의 특성과 배출원을 파악하기 위해서는 서해상에서 항공관측을 통한 BC의 특성과 노화에 대한 상세 분석이 필요하다.

BC는 입자의 광흡수 특성에 의한 정의이며 화학적으로는 elemental carbon (EC)로 불리워진다. EC는 일반적으로 필터 기반의 열광학적 투과법(Thermal-optical transmittance method) 또는 열광학적 반사법(Thermal-optical reflectance method)에 의해 질량농도로 직접 측정된다. 이에 비해 equivalent BC (eBC)는 빛의 흡수 정도를 다양한 방법으로 측정하여 농도로 환산된다(예: aethalometer). 그러나 이러한 방법은 모두 bulk 입자의 특성을 측정하므로 단일 BC 입자의 특성을 파악하는 데 한계가 있다. 반면, Single particle soot photometer (SP2, Droplet Measurement Technologies)는 레이저로 백열을 유도해 BC 단일입자를 측정하는 기술이다(Laser induced incandescence (LII) method). BC 입자가 1,064 nm 레이저 빛을 흡수하면 기화온도 이상에서 질량에 비례하는 백열 에너지를 방출한다. 이를 내화성 BC (refractory black carbon, 이하 "rBC")라 정의하여 위의 방법에 의해 산출되는 eBC와 구분된다. 또한 SP2는 BC의 수농도, 질량농도와 입경을 높은 시간 해상도(0~25,000 particles/sec)로 측정하므로 배출 특성을 조사하거나 항공관측에 적합하다. SP2를 이용한 rBC의 연구는 주로 미국과 유럽 그리고 일본을 중심으로 수행되었으며 최근 중국에서 활발하게 진행되고 있다(예: Zheng *et al.*, 2019; Metcalf *et al.*, 2012; Kondo *et al.*, 2011).

본 연구에서는 기상항공기에 SP2를 탑재하여 봄철 서해상에서 rBC의 수농도, 질량농도, 입경분포 및 혼합상태를 측정하였고 이를 기반으로 수직 분포 특성을 분석하였다. 이러한 rBC의 수직분포를 중심으로 서해 상공 중 rBC 입자의 물리화학적 특성을 이해하고자 한다.

## 2. 측정 및 분석 방법

### 2.1 항공관측

서해 대기질 입체관측(YEllow Sea-Air Quality, YES-AQ)의 일부로 King Air 350HW (Beechcraft) 항공기를 이용하여 서해상(34.8~37.6°N, 124.1~126.7°E)에서 2020년 3월 20일, 3월 24일, 4월 6일, 5월 12일, 5월 20일, 5월 28일, 6월 3일 총 7회 관측이 수행되었다(표 1). 비행 경로는 모두 유사하게 김포공항을 기점으로 서해 124.2°E 레그에서 고도를 낮추면서 37.6°N (5월 12일은 37.2°N)까지 비행 후 126.7°E 레그에서 고도를 높이면서 돌아왔다. 최고 비행고도는 5 km였고 평균 3시간이 소요되었다(그림 1).

7회의 비행에서 SP2를 이용하여 rBC 입자의 수농도, 질량농도, 입경분포와 혼합상태와 순수 산란입자(purely scattering particle; 이하 "산란입자")의 수농도를 측정하였다. 항공관측 전, 후로 정밀교정을 수행하고(Sect. 2. 2) 유입구에 HEPA 필터를 부착하여 수 분 내에 rBC와 산란입자의 수농도가 0 cc$^{-1}$임을 확인하였다. 자료처리 단계에서 셋팅유량과 레이저 파워가 10% 이상 벗어났을 경우의 입자자료는 제외하였다. 단일입자를 대상으로 백열 및 산란채널의 noise를 제거하였고, 높은 signal-to-noise비를 위하여 broad-band 채널만을 사용하였다. 한편, 관측 시 SP2의 유량을 일정하게 유지하기 위해 1 L min$^{-1}$의 소형펌프를

**Table 1.** Summary of airborne measurements during the YES-AQ 2020.

| Flight # | F0320 | F0324 | F0406 | F0512 | F0520 | F0528 | F0603 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Date | 03/20 | 03/24 | 04/06 | 05/12 | 05/20 | 05/28 | 06/03 |
| Latitude | 34.8~37.6 | 34.8~37.6 | 34.8~37.6 | 35.2~37.6 | 34.8~37.6 | 34.8~37.2 | 34.8~37.6 |
| Longitude | 124.2~126.7 | 124.2~126.7 | 124.2~126.7 | 124.1~126.7 | 124.1~126.7 | 124.2~1,263 | 124.2~126.7 |
| Altitude | 400~4,900 | 40~5,000 | 45~5,000 | 600~4,900 | 45~5,000 | 400~4,700 | 400~5,020 |
| Flight time | 12:03~14:50 | 10:17~13:07 | 11:56~14:43 | 14:03~16:33 | 09:57~11:49 | 11:42~13:50 | 11:06~13:55 |
| rBC Number Conc. (# $cm^{-3}$) | 23±15 | 54±38 | 52±47 | <10±3.3 | 16±15 | 36±22 | 43±58 |
| rBC Mass Conc. (ng $m^{-3}$) | 63±40 | 141±101 | 163±153 | 9±9 | 42±36 | 96±62 | 114±150 |
| rBC $D_{gm}$ (nm) | 168±13 | 167±4 | 182±8 | 171±13 | 177±5 | 168±4 | 172±5 |
| $F_{thick\text{-}coat}$ (%) | 34±20 | 56±5 | 58±4 | 56±13 | 56±5 | 57±4 | 53±9 |
| Scattering particle conc. (# $cm^{-3}$) | 145±142 | 566±422 | 743±706 | 60±42 | 211±164 | 554±360 | 465±621 |
| Scattering coefficient ($Mm^{-1}$) | 15.1±9.4 | 41.1±33.4 | 35.4±36.1 | 5.0±5.8 | 27.7±27.1 | 57.2±48.7 | 54.2±63.5 |
| CO (ppbv) | 147.9±24.2 | 202.9±81.5 | 172.0±65.8 | 121.6±7.8 | 158.6±32.0 | 511.7±52.8 | 166.8±84.8 |
| $CO_2$ (ppmv) | 418.6±2.3 | 419.2±3.2 | 419.2±3.0 | 412.2±2.2 | 413.0±2.3 | 415.9±1.9 | 413.4±3.2 |
| $CH_4$ (ppmv) | 1.95±0.02 | 1.96±0.02 | 1.95±0.03 | 1.93±0.02 | 1.94±0.02 | 1.95±0.01 | 1.96±0.05 |
| $O_3$ (ppbv) | 34.6±8.0 | 39.5±12.0 | 42.4±13.6 | 32.5±7.24 | 24.2±5.04 | 52.8±11.4 | 47.6±16.3 |
| NO (ppbv) | 0.22±0.49 | 0.19±0.12 | 0.14±0.11 | 0.07±0.07 | 0.08±0.11 | 0.16±0.06 | 0.11±0.07 |
| $SO_2$ (ppbv) | 0.16±0.10 | 0.14±0.12 | 0.18±0.10 | 0.29±0.10 | 0.26±0.08 | 0.25±0.09 | 0.30±0.10 |
| $H_2O$ (%) | 0.17±0.05 | 0.23±0.09 | 0.15±0.08 | 1.01±0.22 | 1.20±0.23 | 0.93±0.30 | 0.84±0.55 |
| Wind speed (m $s^{-1}$) | 18.0±4.43 | 7.54±5.93 | 6.65±6.45 | 18.4±3.82 | 37.4±15.9 | 10.4±2.26 | 5.38±4.14 |
| Wind direction[a] | W, S | N | N, NW, SE | N, NW | NW, S | N | N, NW, SE |
| EZ (m)[b] | 1,100~1,500 | 900~1,400 | 800~1,500 | – | 900~1,100 | 700~1,700 | 700~1,100 |

[a]The most frequent wind direction
[b]EZ: Entrainment zone

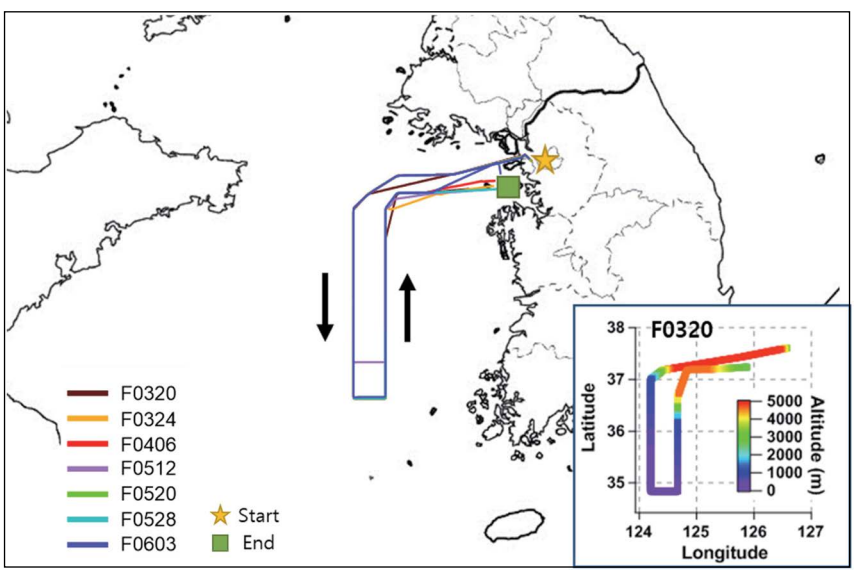


**Fig. 1.** Flight tracks of YES-AQ 2020 campaign. The flight number stands for the date. The data between the star and square were used in this study. The tracks of the seven flights were similar and the altitude is shown for the first flight (F0320) in the box.

사용하였다.

더불어 에어로졸 산란계수(scattering coefficient)는 nephelometer (model 3563, TSI), $CO_2$, $CH_4$, $H_2O$와 CO는 cavity ring-down spectroscopy (CRDS, G2401m, Picarro), $O_3$ (49i, Thermo), $SO_2$ (43i-TLE, Thermo), NO (42i-TL, Thermo)가 측정되었다. 반응가스 ($O_3$, $SO_2$, NO) 관측장비는 내부의 오리피스를 개조하여 일정한 유량이 유입되도록 하였고, 정압제어장치를 개발하여 650 hPa로 정압을 제어하며 관측을 실시하였다. 정압장치는 크게 needle 밸브와 mass flow controller, manifold로 구성되어 있다.

Nephelometer는 유입구에 HEPA 필터를 부착하여 zero 교정을, 초고순도 $CO_2$ 가스(99.999%)를 사용하여 span 교정을 수행하였다. Nephelometer의 정확도는 약 3% 이내였다. 반응가스 관측장비는 Thermo사의 zero air 발생기(111, Thermo)로 zero 교정을 진행하였으며, span 교정은 기기마다 다르게 수행하였다. $O_3$ 관측장비는 $O_3$ 교정기(49i-PS, Thermo)로 교정하였다. $SO_2$ 및 NOx 관측장비는 zero air 발생기(111, Thermo)와 희석기(146i, Thermo)를 이용하여 10 ppmv의 $SO_2$ 표준가스(한국표준과학연구원 제조 KRISS scale, $N_2$ balance, 10.00 μmol $mol^{-1}$, CRM No. 112-03-524, Cylinder No. D641634) 및 NO 표준가스 (KRISS scale, $N_2$ balance, 10.02 μmol $mol^{-1}$, CRM No. 112-03-501, Cylinder No. D641644)를 50 ppbv, 100 ppbv 농도로 희석한 뒤 정압제어장치에 각각 주입하여 교정하였다. 각 장비의 셋팅 유량과 관측농도범위를 기반으로 이들 관측자료의 품질관리를 수행하였다 (NIMS, 2020). $O_3$, $SO_2$, NO 방법검출한계(method detection limit)는 각각 0.5 ppbv, 0.208 ppbv, 0.050 ppbv이었다.

항공기의 위경도 및 고도와 기상인자(압력, 온도, 풍속, 풍향)는 Aircraft Integrated Meteorological Measurements System (AIMMS-20)에서 산출된 자료를 이용하였다. rBC와 $O_3$, $SO_2$, NO 관측결과는 표준 온도 및 압력(273.15 K, 1,013 hPa) 상태로 보정하였고, 모든 자료는 SP2 자료에 맞추어 10초로 평균하였다.

### 2.2 Single Particle Soot Photometer 기반 rBC의 물리화학적 특성

Single particle soot photometer (SP2; Droplet Measurement Technologies, USA)는 레이저에 의해 발생하는 백열과 산란을 측정하여 rBC의 수농도 및 질량농도, 입경분포, 혼합상태를 산출한다. 측정 원리 및 상세 분석 방법은 선행연구에 상세하게 정리되었다 (Lim *et al.*, 2019; Schwarz *et al.*, 2006; Stephens *et al.*, 2003). rBC 입자는 1,064 nm 레이저(Neodymium: Ytt-rium Aluminum Garnet, Nd: YAG) 빛을 흡수한 후 백열하거나 산란하는데 이때 발생하는 에너지를 4개의 검출기로 측정한다. 단일입자의 백열신호는 두 쌍의 광검파기(Photomultiplier tube, PMT; broadband와 narrowband 채널)로, 산란신호는 avalanche photo diode (APD)와 two-element APD (TEAPD)로 검출된다. 이때 백열채널의 피크 높이는 입자의 질량에 선형적으로 비례한다(Cross *et al.* 2010; Moteki and Kondo 2007; Slowik *et al.* 2007). 관측 후 자료처리 과정에서 백열 및 산란채널의 신호는 농도로 환산된다. 자료처리는 IGOR pro (wavemetrics inc.) 소프트웨어 기반의 Paul Scherrer Institute toolkit (PSI, Martin Gysel, Villigen, Switzerland)을 이용하였다.

항공관측 전과 후에 정밀 교정을 실시하였다(Lim *et al.* 2019). 백열채널 교정에는 대기중 BC와 유사한 유효밀도를 가진 fullerene soot (Alfa Aesar, USA; stock 40971, lot FS12S011), 산란채널 교정에는 PSL (polystyrene latex, 135 nm, 220 nm, 240 nm, 350 nm)을 이용하였다(Gysel *et al.*, 2011; Moteki and Kondo, 2010). rBC 질량의 정밀도(precision) 및 정확도는 10% 이내였다 (Lim *et al.*, 2019; Laborde *et al.*, 2012; Gysel *et al.*, 2011).

rBC의 입경은 밀도 1.8 g $cm^{-3}$인 구로 가정하여 질량등가입경(mass-equivalent diameter, 이하 "$D_{MEV}$")으로 나타낸다(예: Schwarz *et al.*, 2010; Bond *et al.*, 2006). 일반적으로 질량입경분포는 로그정규분포를 따른다. 300초당 관측된 모든 rBC 입자들로부터 산출된 로그정규분포에서 각 빈의 입경과 rBC 질량으로부터 "질량기하평균입경(mass geometric mean diam-

eter, 이하 "$D_{gm}$")"을 산출하였다(예: McMeeking *et al.*, 2010).

rBC는 대기로 배출된 후 다른 물질들과의 반응을 통해 내부혼합된다(Bond *et al.*, 2013). 다른 입자와 응집되거나 휘발성이 낮은 기체가 rBC 표면에 응결하며 코팅을 형성한다(McMeeking *et al.*, 2011; Saathoff *et al.*, 2003). SP2는 먼저 입자의 산란신호를 감지한 후 rBC의 백열신호를 측정한다. 이 과정에서 단일 rBC 입자의 혼합정도(rBC 코팅 두께)에 따라 두 신호 피크 간 시간 차이가 발생하는데, 이를 지연시간(lag time)으로 정의한다(Park *et al.*, 2019; Dahlkötter *et al.*, 2014; Moteki and Kondo, 2007). rBC 표면에 코팅이 두꺼워질수록 지연시간이 길어지므로 이를 계산하여 "코팅이 안 되었거나 얇게 코팅된 rBC (non- or thinly-coated rBC)" 및 "두껍게 코팅된 rBC (thickly-coated rBC)"로 구별하였다.

### 2. 3 공기궤 역궤적분석

미국 National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) Air Resources Laboratory에서 제공하는 Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectories (HYSPLIT) model (http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php)과 Global Data Assimilation System (GDAS1) 자료를 사용하여 고도 500 m, 1,000 m, 2,000 m에 도착하는 공기의 72시간 동안의 역궤적을 분석하였다(Rolph *et al.*, 2017; Stein *et al.*, 2015).

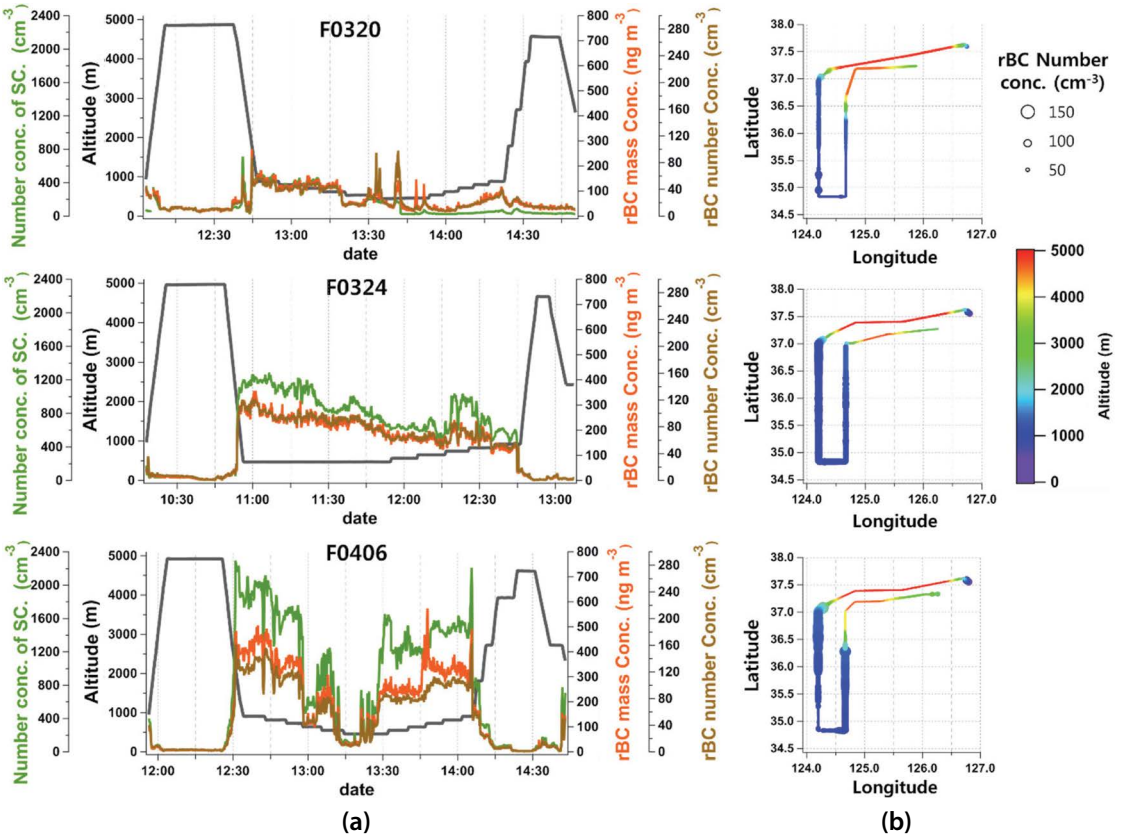


**Fig. 2.** (a) Time series of rBC number and mass concentrations, scattering particle number concentrations (Number conc. of SC.), and altitude and (b) rBC number concentration according to flight track in latitude-longitude plane for seven flights during the YES-AQ 2020.

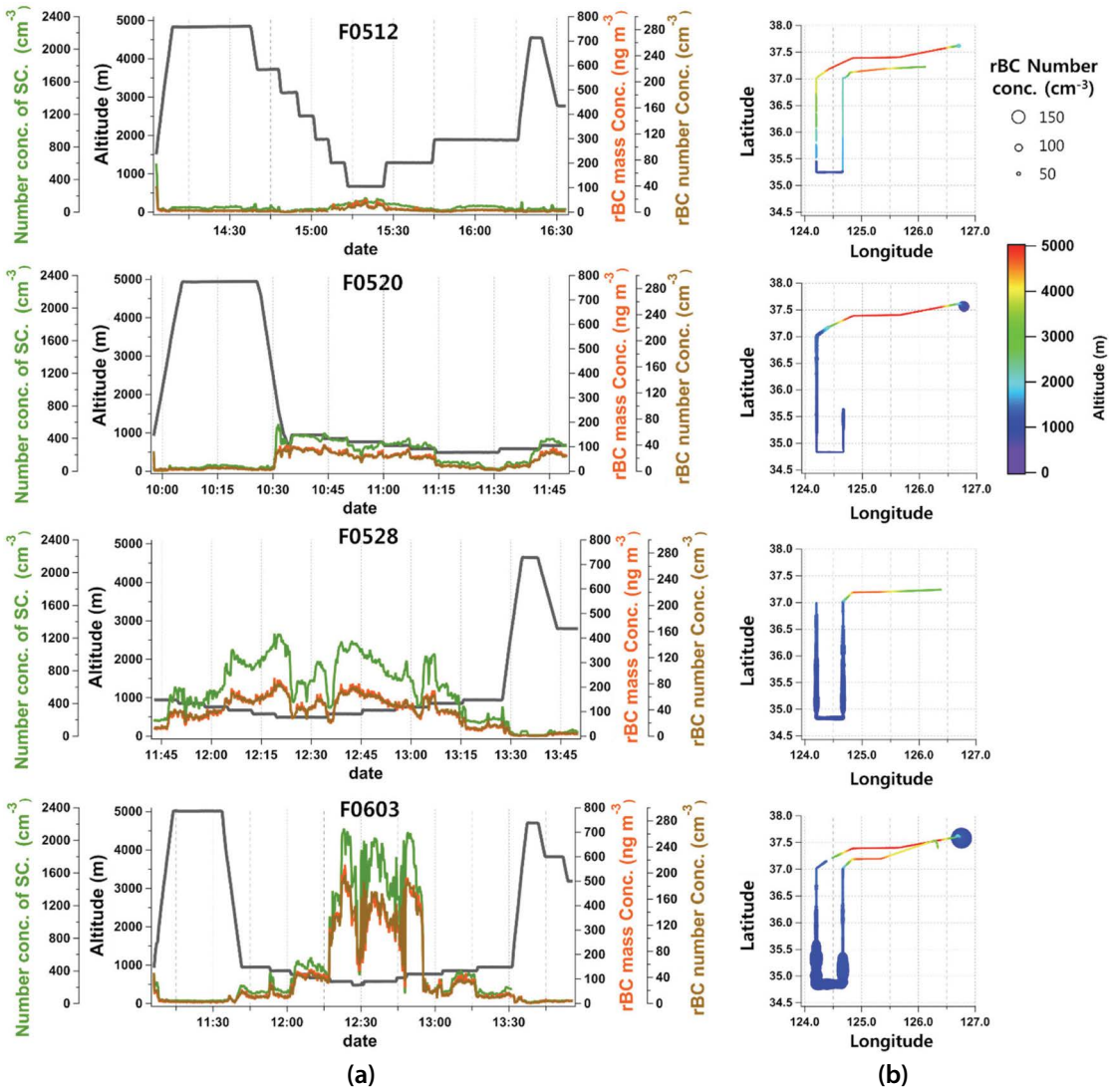


**Fig. 2.** Continued.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 항공관측 개관

7회의 항공관측 결과를 표 1에 요약하였다. 10초 평균 rBC의 수농도와 질량농도 범위는 각각 $<10\sim320$ $cm^{-3}$와 $<5\sim710$ ng $m^{-3}$이었고, 이 둘 모두 6월 3일에 최대값을 보였다. 이를 각 비행별로 평균하면 최대값은 각각 54 $cm^{-3}$ (3월 24일)과 163 ng $m^{-3}$ (4월 6일)이며 최소값은 모두 5월 12일에 관측되었다.

이러한 서해상 rBC의 질량농도는 북경 도심(~6,710 ng $m^{-3}$)과 일본 나고야 부근 태평양 상공(500~1,100 ng $m^{-3}$)에 비해 1/10 수준으로 현저히 낮았지만(Zhao *et al.*, 2020, 2019; Zhao *et al.*, 2015; Moteki *et al.*, 2004), 미국 LA 도심 상공의 봄철(172 ng $m^{-3}$)과는 유사했다(Metcalf *et al.*, 2012). 반면, 최소 rBC 평균 질량농도(9 ng $m^{-3}$)는 대륙 플룸의 영향을 받은 극지방의 봄철 평

균 질량농도보다 4배가량 낮았고(Schulz *et al.*, 2019; Xu *et al.*, 2017), 여름철 서울 도심의 rBC 농도(580 ± 320 ng $m^{-3}$) (Lim *et al.,* 2019), 백령도 및 제주도의 봄철 rBC 농도(약 700 ng $m^{-3}$)보다도 월등히 낮았다(Oh *et al.*, 2015, 2014).

7회 비행별 고도에 따른 rBC의 질량농도 및 수농도 그리고 산란입자의 수농도 분포를 살펴보았다(그림 2). 전반적으로 고도가 낮아지면서 rBC 및 산란입자의 농도가 높아졌으며, 오후에 낮은 경향을 보였다. 이러한 시간에 따른 rBC 수농도의 차이는 대기경계층 발달에 의한 것으로 판단된다(Miyakawa *et al.*, 2017).

rBC 수농도는 낮은 위도에서 높았는데 34.5°N 부근에서는 고도가 500 m로 낮았으므로 이는 위도보다는 고도에 따른 변화로 보인다. 그리고 평균 rBC 수농도 및 질량농도는 내륙에 비해 서해상에서 약 3배 더 높았다. 그러나 김포공항 부근에서 rBC 최고 수농도 및 질량농도가 관측되었고 특히 수농도가 서해 상공보다 6배 이상으로 월등히 높았다. 이러한 고농도는 비행기 운행 시 연료 연소로 인해 갓 배출된 작은 입경의 rBC에 의한 것이므로 이후 상세 분석에서는 김포공항의 직접 영향 지역으로 보이는 경도 125.3°E 이상의 자료를 제외하였다.

### 3.2 수직분포

rBC의 고도에 따른 수직분포 특성을 살펴보기에 앞서 온위(potential temperature; θ, K)를 기반으로 대기경계층(planetary boundary layer; 이하 "PBL")과 자유대류권(free troposphere, 이하 "FT")을 구분하였다. 이때 온위 및 습도의 최대 변동을 보인 PBL과 FT 사이 경계 구간을 유입층(entrainment zone, 이하 "EZ")으로 정의할 수 있다(예: Zhao *et al.*, 2020; Li *et al.*, 2019). 7회 비행별로 온위 수직 감률(dθ/dZ, K $km^{-1}$)이 90 percentile 이상(7~13 K $km^{-1}$)인 구간을 EZ로 추정하였다(그림 3). F0520에는 경도 126.5°E 이상의 온도자료만 포함되었다. PBL 높이는 3~4월이 5~6월에 비해 10~30% 더 높았다. 한편, F0512에서는 온위 수직 감률이 연속적이지 않으며 이상치가 많아 PBL을 구분하지 않았다.

#### 3.2.1 rBC와 기체상 전구물질

항공관측 결과를 비행별로 200 m 고도구간으로 평균하여 수직분포를 살펴보았다. rBC 수농도 및 질량농도와 산란입자 수농도 범위는 각각 <10~82 $cm^{-3}$, 19~259 ng $m^{-3}$, 95~1,187 $cm^{-3}$이었다(그림 4). PBL의 최대 수농도와 질량농도는 각각 F0603과 F0406에서 관측되었으며, FT의 최대 rBC의 수농도 및 질량농도, 산란입자 수농도는 모두 F0406에서 관측되었다. FT에서 rBC 수농도, 질량농도 및 산란입자 수농도는 각각 30 $cm^{-3}$, 50 ng $m^{-3}$, 400 $cm^{-3}$ 이하였으며 변동성이 매우 작았다.

CO, $CO_2$, $CH_4$, $O_3$, NO, $SO_2$ 농도 및 산란계수도 PBL에서 높았다(그림 5). PBL에서 농도범위는 각각 123~256 ppbv, 413~421 ppmv, 1.93~1.98 ppmv, 23~59 ppbv, 0.06~0.25 ppbv, 0.14~0.30 ppbv, 13~101 $Mm^{-1}$이었다. FT에서는 $SO_2$와 NO를 제외한 기체상 물질들의 수직분포가 rBC 농도와 유사했고, NO는 rBC와 상반되는 경향을 보였다. 대기 중 절대습도는 3~4월에 약 0.4% 이하로 낮았고, 고도에 따른 차이가 없었다. 반면, 5~6월에는 3~4월에 비해 약 15% 높았으며, 특히 PBL에서 1.0% 이상으로 높았다.

기체상 물질은 outbound와 inbound 비행 사이 농도 차이가 약 30% 이내였지만 이와는 달리 rBC는 둘 사이 수직분포에 차이를 보였다. 평균적으로 outbound 비행에서는 FT (1,000~2,000 m)에서 rBC 수농도는 >60 $cm^{-3}$, 질량농도는 >170 ng $m^{-3}$로 다른 고도에 비해 약 3배 이상 높았다. 반면, inbound 비행에서는 PBL에서 >33 $cm^{-3}$, >96 ng $m^{-3}$으로 FT에 비해 약 5배 이상 높았다. 이는 outbound 비행은 주로 10~13시, inbound 비행은 대부분 13~16시에 수행되어 PBL의 확장에 따른 결과로 판단된다. 한편, 5~6월에는 PBL 확장이 매우 제한되었고 FT에서도 농도가 낮아 둘 사이 rBC 농도 차이가 거의 없었다.

#### 3.2.2 rBC의 입경과 혼합상태

rBC의 $D_{gm}$ (질량기하평균입경)를 고도 2,000 m 이하에서 500 m 간격으로, 2,000 m 이상에서는 1,000 m 간격으로 평균하여 수직분포를 살펴보았다(그림 6).

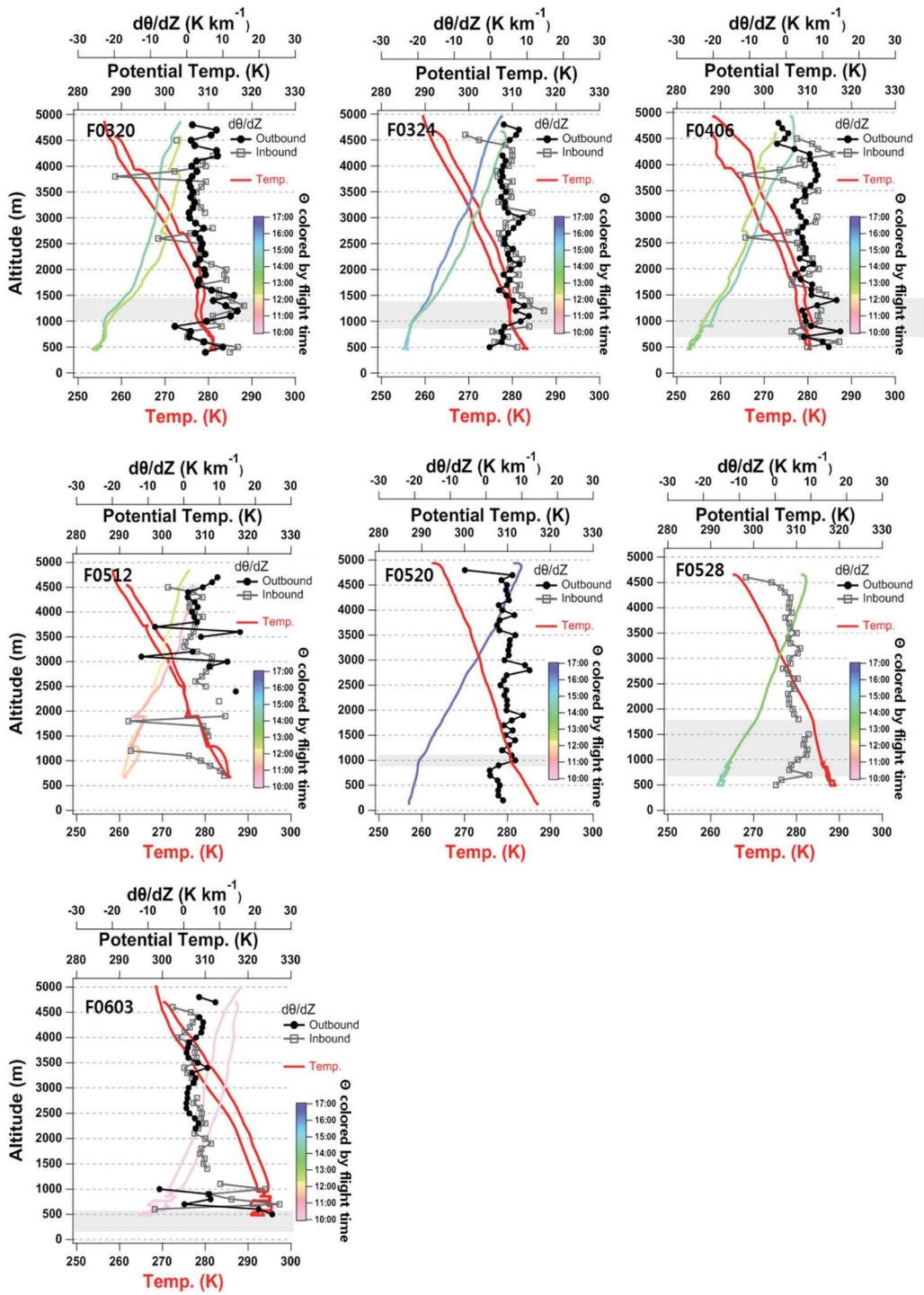


**Fig. 3.** Vertical profile of temperature (T, K) measured by the AIMMS-20 and estimated potential temperature (θ, K) color-coded by observation time for seven flights. Measurements are divided into two groups; outbound and inbound flight. The gray shade indicates the EZ.

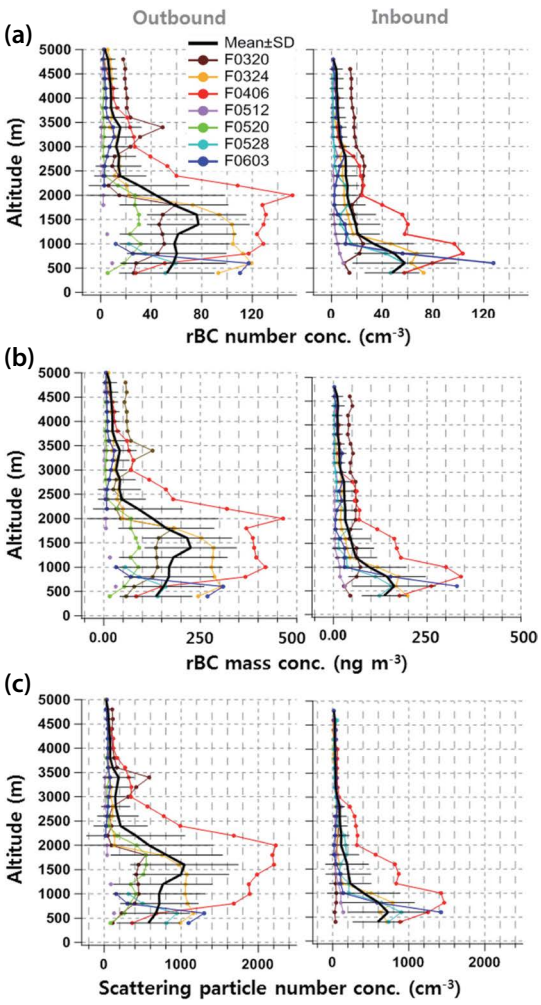


**Fig. 4.** Vertical distributions of (a) rBC number concentration, (b) rBC mass concentration, (c) scattering particle number concentration. All data were averaged per 200 m altitude. The data are divided into outbound (left) and Inbound (right) flights.

더불어 혼합상태를 나타내는 $F_{thick\text{-}coat}$ (두껍게 코팅된 rBC의 분율)를 계산하였다. 3,500 m 이상에서는 rBC 입자 갯수가 충분하지 않아 자료 정확도를 위하여 그 이하 고도에서만 $D_{gm}$과 $F_{thick\text{-}coat}$를 산출하였다.

$D_{gm}$는 116~212 nm 범위에 분포했으며 비행별 평균 $D_{gm}$는 167~182 nm이었다. PBL과 FT에서 각각 169~181 nm와 170~178 nm로, 고도가 높아지면서 감소하였다. 최대 $D_{gm}$은 F0406의 PBL에서 212 nm였고, 7회 비행 중 가장 컸다. PBL과 FT별 최소값은 각각 F0324에서 169 nm와 F0520에서 159 nm였다. rBC 크기는 주로 배출원과 관련된다. 서울 도심의 자동차 등 화석연료 연소에 의해 갓 배출된 rBC의 특징이 잘 나타난 2019년 여름에 관측된 rBC의 평균 중앙 입경 (mass median diameter, 이하 "MMD")은 119±5 nm였다 (Lim *et al.*, 2019). 반면, 백령도에서 장거리이동 및 식생소각의 영향을 받은 rBC의 MMD는 204~221 nm였고 (Oh *et al.*, 2014) 챔버 실험에서 생체소각에서 배출된 rBC의 입경은 141~162 nm였다 (Wang *et al.*, 2018). 항공관측 시 PBL에서 우리나라 도심의 영향을 받은 rBC의 MMD는 152±25 nm였고 (Lamb *et al.*, 2018) 시베리아와 캐나다 상공에서 생체소각 플룸의 rBC MMD는 각각 207±31 nm와 187±10 nm였다 (Kondo *et al.*, 2011). 즉, 서해상 비행별 평균 $D_{gm}$ (167~182 nm) 중 하한선은 도심의 영향을 받은 상공의 rBC, 상한선은 식생소각으로 갓 배출된 rBC의 입경과 유사했다.

rBC 입자의 산란 및 백열 피크 간 지연시간은 ~2 μs을 중심으로 양쪽에 두 개의 피크가 나타나는 쌍봉 (bimodal) 분포를 보였다. 따라서 지연시간이 2 μs 이상인 경우를 thickly-coated rBC, 2 μs 이하인 경우를 non- or thinly-coated rBC로 구분하였다. 선행연구에서도 본 연구와 유사한 지연시간 (1.5~2 μs)을 기준으로 thickly coated rBC를 구분하였다 (Zanatta *et al.*, 2018; Miyakawa *et al.*, 2016; Metcalf *et al.*, 2012; Moteki *et al.*, 2007). 이를 10초간 평균하여 thickly coated rBC/total rBC비를 $F_{thick\text{-}coat}$로 산출하였다.

비행별 평균 $F_{thick\text{-}coat}$은 51~55%였다. rBC의 $F_{thick\text{-}coat}$는 도심의 영향을 받은 LA 상공에서는 3~15%, 런던 상공에서는 10~20%였으나 (Metcalf *et al.*, 2012; McMeeking *et al.*, 2011) 런던과 LA 및 텍사스주의 배경대기와 외부 유입의 영향을 받은 경우에는 27~50%로 높았다 (Metcalf *et al.*, 2012; McMeeking *et al.*, 2011; Schwarz *et al.*, 2008). 베이징 PBL에서는 평균 $F_{thick\text{-}coat}$가 31±17%였고 (Zhao *et al.*, 2015) 시안에서

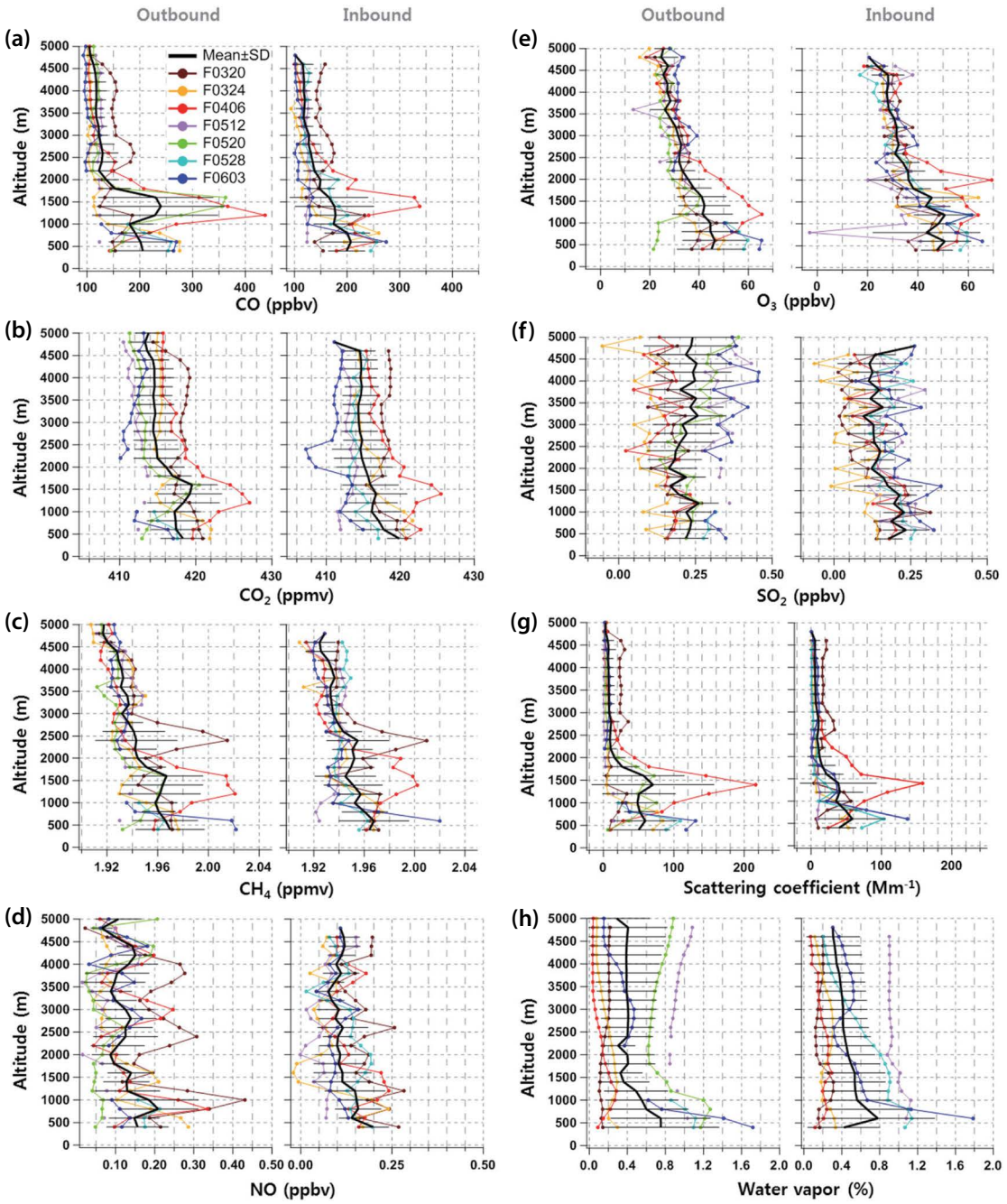


**Fig. 5.** Vertical distributions of (a) CO, (b) $CO_2$, (c) $CH_4$, (d) NO, (e) $O_3$, (f) $SO_2$, (g) scattering coefficient, and (h) water vapor. All data were averaged per 200 m altitude. The data are divided into outbound (left) and Inbound (right) flight.

는 깨끗한 기간에 38.3±5.7%, 오염 기간에는 48.6±6.9%였으며 (Wang *et al.*, 2014) 인도의 산업단지에서는 61.6±9.8%였다 (Thamban *et al.*, 2017). 서해상에는 전반적으로 두꺼운 코팅을 가진 rBC가 많았으며,

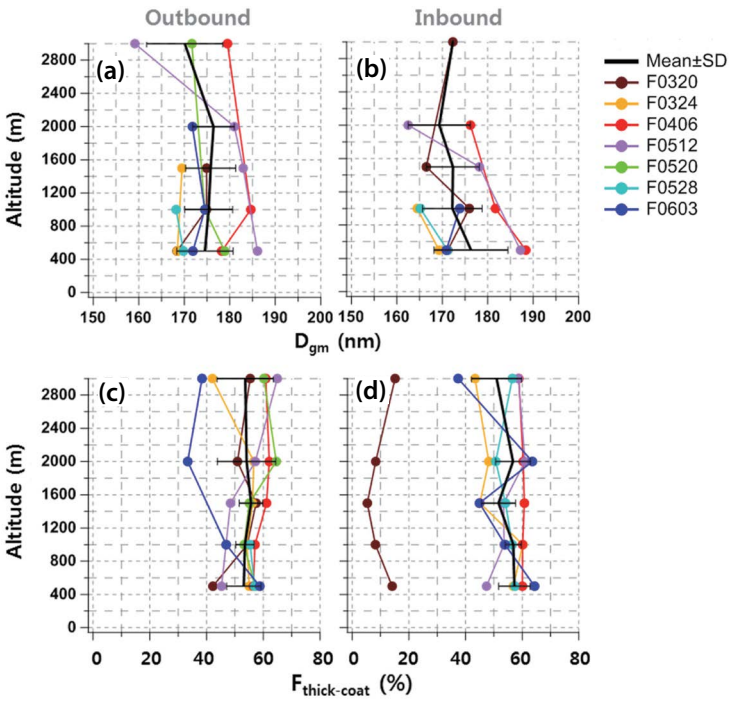


**Fig. 6.** Vertical distributions of) (a, b) $D_{gm}$ and) (c, d) $F_{thick-coat}$ for inbound and outbound flight. Data were averaged for 500 m and 1,000 m interval below 2,000 m and above 2,000 m, respectively.

고도에 따른 변동은 크지 않았다. Outbound와 inbound 비행 간 $D_{gm}$은 큰 차이가 없는 반면, $F_{thick-coat}$는 inbound 비행에서 더 컸다. rBC의 질량농도 및 수농도는 inbound에서 outbound에 비해 2~3배 낮았는데 산란입자 수농도는 15배 이상 작았다. 이는 오전보다 오후에 rBC 입자의 코팅이 증가한 결과로 판단된다.

### 3. 3 rBC의 물리화학적 특성 사례분석

7회 항공관측 중 고도에 따른 rBC 농도 변화가 분명했던 사례를 선별하여 rBC의 물리화학적 특성을 자세히 살펴보았다.

#### 3. 3. 1 F0603: PBL 고농도

6월의 F0603 비행 시 PBL에서 rBC 수농도 및 질량농도는 항공관측 전체 평균보다 약 40% 높았고, 산란입자 수농도는 평균보다 약 2배 높았다(그림 4). $D_{gm}$은 평균 173±1 nm로 전체 평균과 비슷한 수준이었으며, $F_{thick-coat}$는 59%로 높았다(그림 6). 또한, $CO_2$와 NO를 제외한 모든 기체상 물질들이 최대 농도를 보였는데 특히 $O_3$은 96 ppbv까지 높아졌다(그림 5).

NO와 $SO_2$를 제외한 기체상 물질들과 rBC 간의 상관성은 $R^2 > 0.5$로 높았는데, 특히 PBL에서는 rBC는 CO 및 $CH_4$와 상관성이 매우 좋았으며($R^2 \geq 0.84$) $CO_2$와도 좋은 상관성($R^2 = 0.69$)을 보였다(표 2). 또한, 절대습도가 1.7% 이상으로 최대였고 풍속은 평균 3.7 m $s^{-1}$로 가장 낮았다(표 1). 이러한 결과는 화석연료 연소로 배출된 rBC가 낮은 PBL과 높은 습도로 인해 함께 배출된 물질들에 의해 두껍게 코팅되었음을 의미한다.

위성관측에서는 중국 동남부에서 에어로졸의 두께가 높았는데(그림 8a), 이때 이 지역으로부터 공기궤가 낮은 고도로 이동해왔다(그림 7a). 하지만, FT에서는 F0512 다음으로 평균 rBC 수농도 및 질량농도가 낮았다. 특히 $F_{thick-coat}$가 고도가 높아짐에 따라 급격

**Table 2.** The correlation coefficient of the linear regression between rBC and other measured species for each flight. Data were divided into PBL and FT.

| | | F0320 | F0324 | F0406 | F0512 | F0520 | F0528 | F0603 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| rBC - CO | FT | −0.02 | 0.09 | 0.62 | −0.02 | 0.4 | 0.83 | 0.77 |
| | PBL | 0.19 | 0.35 | 0.43 | 0.08 | 0.84 | 0.58 | 0.87 |
| rBC - $CO_2$ | FT | 0.00041 | 0.04 | 0.73 | −0.002 | 0.73 | 0.47 | −0.1 |
| | PBL | 0.002 | 0.24 | 0.33 | −0.06 | 0.54 | 0.4 | 0.69 |
| rBC - $CH_4$ | FT | −0.002 | 0.02 | 0.7 | −0.07 | 0.86 | 0.74 | 0.59 |
| | PBL | 0.13 | 0.19 | 0.51 | −0.25 | 0.88 | 0.7 | 0.84 |
| rBC - NO | FT | 0.0001 | 0.5 | 0.29 | 0.005 | −0.007 | 0.0002 | 0.02 |
| | PBL | 0.23 | 0.3 | 0.26 | −0.0008 | 0.05 | −0.03 | 0.06 |
| rBC - $O_3$ | FT | 0.01 | 0.05 | 0.7 | 0.1 | −0.03 | 0.48 | 0.34 |
| | PBL | 0.06 | 0.008 | 0.48 | 0.2 | 0.07 | 0.32 | 0.71 |
| rBC - $SO_2$ | FT | 0.05 | 0.1 | 0.06 | 0.0006 | −0.09 | 0.009 | −0.03 |
| | PBL | 0.04 | 0.02 | 0.05 | 0.04 | 0.03 | −0.0005 | 0.06 |
| rBC - SCcoef | FT | −0.004 | 0.17 | 0.7 | 0.41 | 0.84 | 0.77 | 0.64 |
| | PBL | 0.27 | 0.53 | 0.6 | −0.00005 | 0.91 | 0.79 | 0.79 |
| rBC - $H_2O$ | FT | −0.09 | 0.15 | 0.58 | 0.14 | 0.51 | 0.58 | 0.58 |
| | PBL | −0.001 | 0.07 | 0.56 | 0.03 | 0.14 | 0.26 | 0.76 |

히 감소하였으며, FT에서는 항공관측 전체 평균보다 약 25% 이상 낮았다(그림 6). 이때 서해상 2,000 m에 도달하는 공기괘는 500 m 공기괘와는 달리 중국 북서쪽 4,500 m 이상의 고도에서 이동해왔다(그림 7a).

### 3.3.2 F0406: FT 고농도

4월 첫 관측에서는 PBL보다 FT에서 rBC 수농도 및 질량농도, 산란입자 수농도가 각각 163 $cm^{-3}$, 506 ng $m^{-3}$, 2,299 $cm^{-3}$로 최대였으며, 특히 1,500~2,500 m에서 항공관측 전체 평균보다 약 4배 이상 높았다(그림 4). 그리고 PBL에서는 최고 $D_{gm}$ (212 nm)이 관측되었는데(그림 6), 이는 식생소각 영향을 받은 rBC의 MMD와 유사하다(Kondo *et al.*, 2011; Wang *et al.*, 2018).

1,000~2,000 m에서는 CO, $CO_2$, $CH_4$, $O_3$의 최고 농도(각각 500 ppbv, 428 ppmv, 2.03 ppmv, 80 ppbv)가 관측되었다(그림 5). 이 기체들과 산란계수는 rBC와 상관성이 매우 좋았으며($R^2 > 0.5$), 기울기 또한 가장 컸다(예: $\Delta rBC/\Delta CO = 1.9$ ng $m^{-3}$ $ppbv^{-1}$) (표 2). BC와 CO는 모두 불완전 연소에 의해 배출되지만(Streets *et al.*, 2003), BC의 체류시간은 일주일 미만으로 CO에 비해 매우 짧아 $\Delta rBC/\Delta CO$는 일반적으로 연소 조건과 노화 정도를 평가하는 지표로 사용된다(Schulz *et al.*, 2019; McMeeking *et al.*, 2010; Subramanian *et al.*, 2010). 일반적으로 식생연소의 영향을 받았을 때 고효율 연료 연소의 영향에 비해 이 비가 더 크고(Spackman *et al.*, 2008), 대기 체류시간이 길어질수록 BC의 제거로 인해 이 비가 작아진다(Lamb *et al.*, 2018). 이 항공관측 중 $\Delta rBC/\Delta CO$는 중국 상해 도심(0.33 ng $m^{-3}$ $ppbv^{-1}$) 보다 크고(Gong *et al.*, 2016), 우리나라에서 장거리 수송의 영향을 받았을 때(1.3 ± 0.1 ng $m^{-3}$ $ppbv^{-1}$)와 유사했으며(Lamb *et al.*, 2018), 러시아에서 이동해온 플룸(2.7 ± 0.1 ng $m^{-3}$ $ppbv^{-1}$)보다는 작았다. 따라서 식생 연소의 영향을 받은 공기괘가 장거리 수송된 것으로 판단된다. MODIS 위성은 산둥반도 부근의 AOD가 높고(그림 8b), 공기괘 역궤

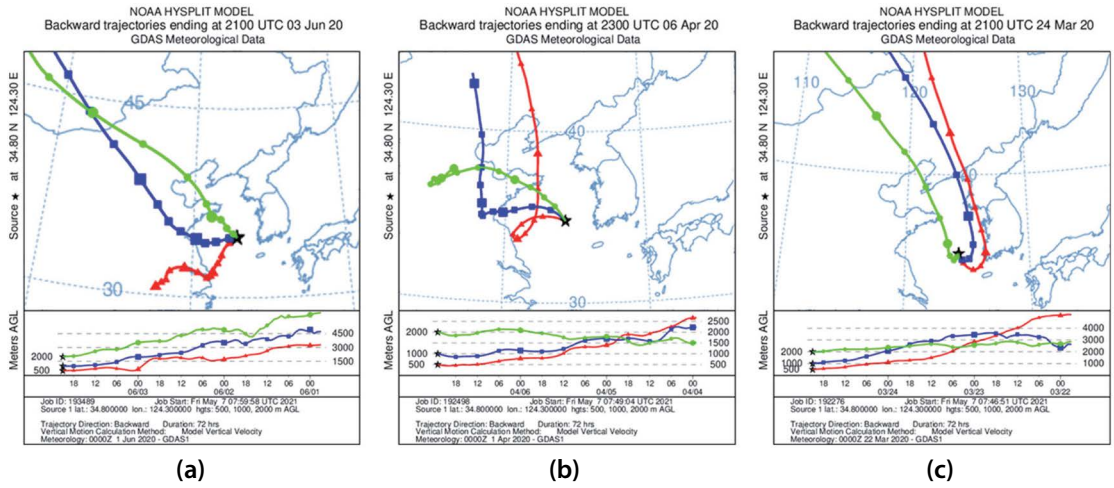


**Fig. 7.** For the flight (a) F0603, (b) F0406 and (c) F0324, 72-h backward trajectories of air masses at 500 m, 1,000 m, and 2,000 m altitude.

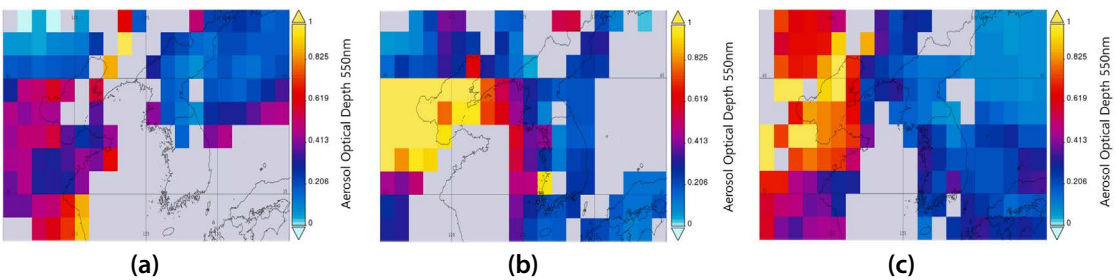


**Fig. 8.** For the flight (a) F0603, (b) F0406 and (c) F0324, time averaged map of aerosol optical depth at 550 nm (dark target) daily 1 deg [MODIS-Terra MOD08_D3 v6.1] covering 115.0°E, 32.9°N~435.0°E, 42.9°N.

적 분석은 이 지역을 거쳐 공기가 서해상으로 유입이 되었음을 보여준다(그림 7b).

### 3.3.3 F0324: 화석연료 연소 영향

3월의 두 번째 관측에서는 rBC 수농도 및 질량농도는 고도 2,000 m 이하에서 평균보다 약 2배 높았다(그림 4). $D_{gm}$은 168±2 nm로 항공관측 중 가장 작았는데 이와는 반대로 $CO_2$와 NO의 평균 농도는 각각 421±1 ppmv와 0.24±0.1 ppbv로 가장 높았다(그림 5). 특히 FT에서 rBC는 NO와 상관성이 가장 좋았으며 ($R^2$=0.5) 기울기 ($\Delta rBC/\Delta NO$)는 1,169 ng $m^{-3}$ $ppbv^{-1}$로 가장 컸고(표 2), $F_{thick\text{-}coat}$는 고도가 증가하면서 감소했다(그림 6). 이는 화석연료의 영향이 컸음을 지시한다. MODIS 위성 자료는 중국 산둥반도 위쪽 지역에 AOD가 높았으며(그림 8c), 공기궤도 이 지역을 지나 이동한 것으로 나타난다(그림 7c). 즉, 중국에서 화석연료 연소 영향을 받은 공기궤가 서해상으로 이동했으며, 상대적으로 rBC의 노화 정도는 낮았던 것으로 판단된다.

### 3.3.4 F0512: 황사 영향

5월 12일 관측의 평균 rBC 질량농도는 <50 ng $m^{-3}$, 수농도는 <15 $cm^{-3}$, 산란입자 수농도는 <180 $cm^{-3}$로 항공관측 중 가장 낮았다(표 1). 또한 $SO_2$를

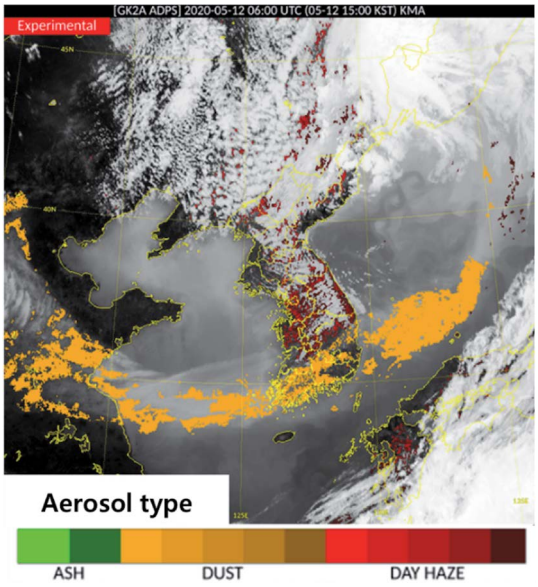


**Fig. 9.** Satellite imagery of the day for the flight F0512. Color scale indicates the type of aerosol (National meteorological satellite center).

제외한 기체상 물질들의 농도도 다른 비행에 비해 매우 낮았으며, rBC와 기체상 물질들과의 상관성도 좋지 않았다(표 2). 풍속은 고도에 따라 변화가 크지 않았고, 비교적 북서풍이 우세했다. 가장 분명한 특징으로 다른 관측과는 달리 2,000 m에서 $D_{gm}$이 150 nm 이하로 급격히 감소하였다(그림 6). 하지만, $F_{thick\text{-}coat}$는 고도가 높아짐에 따라 증가하는 경향을 보였다(그림 6). 이 날 위성관측에서는 위도 35°N 부근에 중국을 거쳐 서해상을 가로지르는 황사 띠가 분명하게 보였다(그림 9). 이러한 결과는, 고도 2,000 m 이상의 FT에서 rBC 입자는 황사 입자에 의해 scavenging되어 농도가 감소하고 따라서 작은 입자의 rBC만 남게 된 것임을 암시한다.

## 4. 결 론

2020년 3월 20일부터 6월 3일 동안 총 7회(3/20, 3/24, 4/06, 5/12, 5/20, 5/28, 6/03)에 걸쳐 서해상공에서 기상항공기에 single particle soot photometer (SP2)를 탑재하여 rBC의 수농도와 질량농도 그리고 산란입자의 수농도를 측정하였고 기하평균질량입경($D_{gm}$)과 두껍게 코팅된 rBC 입자의 분율($F_{thick\text{-}coat}$)을 산정하였다. 비행별 평균값은 각각 3~54 $cm^{-3}$, 9~63 ng $m^{-3}$, 60~566 $cm^{-3}$, 167~182 nm, 34~58%였다.

약 3달 동안 7회의 관측이 거의 유사한 위경도와 고도에서 수행되어 전반적으로 고도별 차이가 가장 컸으며, rBC 수농도 및 질량농도와 산란입자 수농도는 FT보다 PBL에서 약 30% 더 높았다. 한 비행 시 오전과 오후의 시간 차이로 outbound와 inbound 비행 시 고도에 따른 rBC 농도의 차이가 나타났다. 오전 outbound 비행에서는 PBL보다 FT에서 rBC의 농도가 약 3배 이상 높았던 반면, 오후의 inbound 비행에서는 FT보다 PBL에서 약 5배 이상 높았다. 이는 PBL의 확장과 관련되는데, PBL 높이가 증가함에 따라 rBC 및 산란입자의 농도가 감소하였다.

항공관측별 평균 $D_{gm}$은 PBL과 FT에서 각각 169~181 nm, 170~178 nm로 고도가 높아지면서 감소하였으며, $F_{thick\text{-}coat}$은 51~55%로 전반적으로 PBL에서 FT보다 약 20% 높았다. 2020년 봄철 서해상의 rBC는 서울 도심 상공에서 평균적으로 관찰되는 입경 및 생체소각에 의해 배출된 공기궤의 영향을 받은 rBC의 입경과 유사했고 전반적으로 두껍게 코팅된 rBC가 많았다. 향후 서해상에서 SP2를 이용한 항공관측이 지속적으로 수행되어 rBC 입자의 물리화학적 특성을 파악한다면 우리나라에 영향을 주는 rBC 입자의 배출지역 및 배출원을 추적하고 나아가 BC에 의한 동아시아 온난화 효과 산정에 유용하게 활용될 것이다.

## 감사의 글

이 연구는 기상청 국립기상과학원「황사·연무 감시 및 예보기술 개발」(KMA2018-00521)의 지원으로 수행되었습니다.

## References


Babu, S.S., Satheesh, S.K., Moorthy, K.K., Dutt, C.B.S., Nair, V.S., Alappattu, D.P., Kunhikrishnan, P.K. (2008) Aircraft measurements of aerosol black carbon from a coastal location in the north-east part of peninsular India during ICARB, Journal of Earth System Science, 117(1), 263-271.

Bond, T.C., Doherty, S.J., Fahey, D.W., Forster, P.M., Berntsen, T., DeAngelo, B.J., Flanner, M.G., Ghan, S., Kärcher, B., Koch, D., Kinne, S., Kondo, Y., Quinn, P.K., Sarofim, M.C., Schultz, M.G., Schulz, M., Venkataraman, C., Zhang, H., Zhang, S., Bellouin, N., Guttikunda, S.K., Hopke, P.K., Jacobson, M.Z., Kaiser, J.W., Klimont, Z., Lohmann, U., Schwarz, J.P., Shindell, D., Storelvmo, T., Warren, S.G., Zender, C.S. (2013) Bounding the Role of Black Carbon in the Climate System: A Scientific Assessment, Journal of Geophysical Research Atmospheres, 118(11), 5380-5552. https://doi.org/10.1002/jgrd.50171

Bond, T.C., Habib, G., Bergstrom, R.W. (2006) Limitations in the Enhancement of Visible Light Absorption Due to Mixing State, Journal of Geophysical Research Atmospheres, 111(20), 1-13. https://doi.org/10.1029/2006JD007315

Chung, Y.S., Kim, H.S. (2008) Observations of Massive Air-Pollution Transport and Associated Air Quality in the Yellow Sea Region, Air Quality, Atmosphere and Health 1(2), 69-79. https://doi.org/10.1007/s11869-008-0014-y

Cooke, W.F., Liousse, C., Cachier, H., Feichter, J. (1999) Construction of a 1×1 fossil fuel emission data set for carbonaceous aerosol and implementation and radiative impact in the ECHAM4 model, Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 104(D18), 22137-22162.

Cross, E.S., Onasch, T.B., Ahern, A., Wrobel, W., Slowik, J.G., Olfert, J., Lack, D.A., Massoli, P., Cappa, C.D., Schwarz, J.P., Spackman, J.R., Fahey, D.W., Sedlacek, A., Trimborn, A., Jayne, J.T., Freedman, A., Williams, L.R., Ng, N.L., Mazzoleni, C., Dubey, M., Brem, B., Kok, G., Subramanian, R., Freitag, S., Clarke, A., Thornhill, D., Marr, L.C., Kolb, C.E., Worsnop, D.R., Davidovits, P. (2010) Soot Particle Studies-Instrument Inter-Comparison-Project Overview, Aerosol Science and Technology, 44(8), 592-611. https://doi.org/10.1080/02786826.2010.482113

Dahlkötter, F., Gysel, M., Sauer, D., Minikin, A., Baumann, R., Seifert, P., Ansmann, A., Fromm, M., Voigt, C., Weinzierl, B. (2014) The Pagami Creek Smoke Plume after Long-Range Transport to the Upper Troposphere over Europe-Aerosol Properties and Black Carbon Mixing State, Atmospheric Chemistry and Physics, 14(12), 6111-6137.

Gong, X., Zhang, C., Chen, H., Nizkorodov, S.A., Chen, J., Yang, X. (2016) Size Distribution and Mixing State of Black Carbon Particles during a Heavy Air Pollution Episode in Shanghai, Atmospheric Chemistry and Physics, 16(8), 5399-5411. https://doi.org/10.5194/acp-16-5399-2016

Gysel, M., Laborde, M., Olfert, J.S., Subramanian, R., Gröhn, A.J. (2011) Effective Density of Aquadag and Fullerene Soot Black Carbon Reference Materials Used for SP2 Calibration, Atmospheric Measurement Techniques, 4(12), 2851-2858. https://doi.org/10.5194/amt-4-2851-2011

Han, J.S., Kim, Y.M., Ahn, J.Y., Kong, B.J., Choi, J.S., Lee, S.U., Lee, S.J. (2006) Spatial Distribution and Variation of Long-Range Transboundary Air Pollutants Flux during 1997～2004, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 22 (1), 99-106.

Hatakeyama, S., Murano, K., Mukai, H., Sakai, F., BANDOW, H., Watanabe, I., Yamato, M., Tanaka, S., Akimoto, H. (1997) $SO_2$ and Sulfate Aerosols over the Seas between Japan and the Asian Continent, Journal of Aerosol Research, Japan, 12, 91-95.

Haywood, J.M, Ramaswamy, V. (1998) Global Sensitivity Studies of the Direct Radiative Forcing Due to Anthropogenic Sulfate and Black Carbon Aerosols, Journal of Geophysical Research, 103, 6043-6058.

He, C., Liou, K.N., Takano, Y., Zhang, R., Levy Zamora, M., Yang, P., Li, Q., Leung, L.R. (2015) Variation of the Radiative Properties during Black Carbon Aging: Theoretical and Experimental Intercomparison, Atmospheric Chemistry and Physics, 15(20), 11967-11980. https://doi.org/10.5194/acp-15-11967-2015

Huang, X.-F., Sun, T.-L., Zeng, L.-W., Yu, G.-H., Luan, S.-J. (2012) Black Carbon Aerosol Characterization in a Coastal City in South China Using a Single Particle Soot Photometer, Atmospheric Environment, 51, 21-28. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.01.056

Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) (2001) Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Edited by J.T. Houghton, Y. Ding, D.J. Griggs, M. Noguer, P.J. van der Linden, X. Dai, K. Maskell, and C.A. Johnson, Cambridge University Press, Cambri-

dge, United Kingdom and New York, NY, USA, 881pp.

Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) (2013) Climate Change 2013: the Physical Science Basis: Working Group I Contribution to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Vol. 9781107057. https://doi.org/10.1017/CBO9781107415324.016

Klimont, Z., Kupiainen, K., Heyes, C., Purohit, P., Cofala, J., Rafaj, P., Borken-Kleefeld, J., Schöpp, W. (2017) Global Anthropogenic Emissions of Particulate Matter Including Black Carbon, Atmospheric Chemistry and Physics, 17(14), 8681-8723. https://doi.org/10.5194/acp-17-8681-2017

Kondo, Y., Oshima, N., Kajino, M., Mikami, R., Moteki, N., Takegawa, N., Verma, R.L., Kajii, Y., Kato, S., Takami, A. (2011) Emissions of Black Carbon in East Asia Estimated from Observations at a Remote Site in the East China Sea, Journal of Geophysical Research Atmospheres, 116(16), 1-14. https://doi.org/10.1029/2011JD015637

Kondo, Y., Matsui, H., Moteki, N., Sahu, L., Takegawa, N., Kajino, M., Zhao, Y., Cubison, M.J., Jimenez, J.L., Vay, S. (2011) Emissions of Black Carbon, Organic, and Inorganic Aerosols from Biomass Burning in North America and Asia in 2008, Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 116(D8).

Laborde, M., Mertes, P., Zieger, P., Dommen, J., Baltensperger, U., Gysel, M. (2012) Sensitivity of the Single Particle Soot Photometer to Different Black Carbon Types, Atmospheric Measurement Techniques, 5(5), 1031-1043. https://doi.org/10.5194/amt-5-1031-2012

Lack, D.A., Cappa, C.D. (2010) Impact of Brown and Clear Carbon on Light Absorption Enhancement, Single Scatter Albedo and Absorption Wavelength Dependence of Black Carbon, Atmospheric Chemistry and Physics, 10(9), 4207-4220. https://doi.org/10.5194/acp-10-4207-2010

Lamb, K.D., Perring, A.E., Samset, B., Peterson, D., Davis, S, Anderson, B.E., Beyersdorf, A., Blake, D.R., Campuzano-Jost, P., Corr, C.A., Diskin, G.S., Kondo, Y., Moteki, N., Nault, B.A., Oh, J., Park, M., Pusede, S.E., Simpson, I.J., Thornhill, K.L., Wisthaler, A., Schwarz, J.P. (2018) Estimating Source Region Influences on Black Carbon Abundance, Microphysics, and Radiative Effect Observed Over South Korea, Journal of Geophysical Research-Atmospheres, 123(23), 13527-13548. https://doi.org/10.1029/2018JD029257

Li, S., Goo, T.-Y., Moon, H., Labzovskii, L., Kenea, S.T., Oh, Y.-S., Lee, H., Byun, Y.-H. (2019) Airborne In-Situ Measurement of $CO_2$ and $CH_4$ in Korea: Case Study of Vertical Distribution Measured at Anmyeon-Do in Winter, Atmosphere, 29(5), 511-523.

Lim, S., Kang, Y., Lee, M., Yoo, H.-J., Lee, S.-S., Lee, G.-H. (2019) Mass Concentration and Size Distribution of Refractory Black Carbon in Seoul during Summer, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 35(6), 713-725. https://doi.org/10.5572/kosae.2019.35.6.713

Liu, D., Allan, J., Whitehead, J., Young, D., Flynn, M., Coe, H., McFiggans, G., Fleming, Z.L., Bandy, B. (2013) Ambient Black Carbon Particle Hygroscopic Properties Controlled by Mixing State and Composition, Atmospheric Chemistry and Physics, 13(4), 2015-2029. https://doi.org/10.5194/acp-13-2015-2013

McMeeking, G.R., Morgan, W.T., Flynn, M., Highwood, E.J., Turnbull, K., Haywood, J., Coe, H. (2011) Black Carbon Aerosol Mixing State, Organic Aerosols and Aerosol Optical Properties over the United Kingdom, Atmospheric Chemistry and Physics, 11(17), 9037-9052. https://doi.org/10.5194/acp-11-9037-2011

McMeeking, G.R., Hamburger, T., Liu, D., Flynn, M., Morgan, W.T., Northway, M., Highwood, E.J., Krejci, R., Allan, J.D., Minikin, A. (2010) Black Carbon Measurements in the Boundary Layer over Western and Northern Europe, Atmospheric Chemistry and Physics, 10(19), 9393-9414.

Metcalf, A.R., Craven, J.S., Ensberg, J.J., Brioude, J., Angevine, W., Sorooshian, A., Duong, H.T., Jonsson, H.H., Flagan, R.C., Seinfeld, J.H. (2012) Black Carbon Aerosol over the Los Angeles Basin during CalNex, Journal of Geophysical Research Atmospheres, 117(8), 1-24. https://doi.org/10.1029/2011JD017255

Miyakawa, T., Kanaya, Y., Komazaki, Y., Taketani, F., Pan, X., Irwin, M., Symonds, J. (2016) Intercomparison between a Single Particle Soot Photometer and Evolved Gas Analysis in an Industrial Area in Japan: Implications for the Consistency of Soot Aerosol Mass Concentration Measurements, Atmospheric Environment, 127, 14-21. https://doi.org/10.1016/J.ATMOSENV.2015.12.018

Miyakawa, T., Oshima, N., Taketani, F., Komazaki, Y., Yoshino, A., Takami, A., Kondo, Y., Kanaya, Y. (2017) Alteration of the Size Distributions and Mixing States of Black Carbon through Transport in the Boundary Layer in East Asia, Atmospheric Chemistry and Physics, 17(9), 5851-5864. https://doi.org/10.5194/acp-17-5851-2017

Moteki, N., Kondo, Y. (2007) Effects of Mixing State on Black Carbon Measurements by Laser-Induced Incandescence,

Aerosol Science and Technology, 41(4), 398-417. https://doi.org/10.1080/02786820701199728

Moteki, N., Kondo, Y., Miyazaki, Y., Takegawa, N., Komazaki, Y., Kurata, G., Shirai, T., Blake, D.R., Miyakawa, T., Koike, M. (2007) Evolution of Mixing State of Black Carbon Particles: Aircraft Measurements over the Western Pacific in March 2004, Geophysical Research Letters 34(11).

Moteki, N., Kondo, Y., Nakamura, S.-I. (2010) Method to Measure Refractive Indices of Small Nonspherical Particles: Application to Black Carbon Particles, Journal of Aerosol Science, 41(5), 513-521. https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2010.02.013

Moteki, Q., Uyeda, H., Maesaka, T., Shinoda, T., Yoshizaki, M., Kato, T. (2004) Structure and Development of Two Merged Rainbands Observed over the East China Sea during X-BAIU-99: Part I. Meso-β-Scale Structure and Development Processes, Journal of the Meteorological Society of Japan, 82(1), 19-44. https://doi.org/10.2151/jmsj.82.19

National Institute of Meteorological Sciences (NIMS) (2020) Administration, Korea Meteological. Development of Application Technology on Atmospheric Research Aircraft (IV).

Oh, J., Park, J., Ahn, J., Choi, J., Lim, J., Kim, H., Han, J., Hong, Y., Lee, G. (2014) A Study on the Behavior of the Black Carbon at Baengnyeong Island of Korea Peninsular, Journal of the Korean Society of Urban Environment, 14(2), 67-76, (in Korean with English abstract).

Oh, J., Park, J., Lee, S., Ahn, J., Choi, J., Lee, S., Lee, Y., Kim, H., Hong, Y., Hong, J., Kim, J., Kim, S., Lee, G. (2015) Characteristics of Black Carbon Particles in Ambient Air Using a Single Particle Soot Photometer (SP2) in May 2013, Jeju, Korea, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 31(3), 255-268. https://doi.org/10.5572/kosae.2015.31.3.255

Park, J., Song, I., Kim, H., Lim, H., Park, S., Shin, S., Shin, H., Lee, S., Kim, J. (2019) The Characteristics of Black Carbon of Seoul, Journal of Environmental Impact Assessment, 28(2), 113-128. https://doi.org/10.14249/eia.2019.28.2.113

Ramanathan, V., Carmichael, G. (2008) Global and Regional Climate Changes Due to Black Carbon, Nature Geoscience, 1(4), 221-227. https://doi.org/10.1038/ngeo156

Rolph, G., Stein, A., Stunder, B. (2017) Real-Time Environmental Applications and Display System: READY, Environmental Modelling and Software, 95, 210-228. https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2017.06.025

Saathoff, H., Naumann, K.H., Schnaiter, M., Schöck, W., Möhler, O., Schurath, U., Weingartner, E., Gysel, M., Baltensperger, U. (2003) Coating of Soot and $(NH_4)_2SO_4$ Particles by Ozonolysis Products of α-Pinene, Journal of Aerosol Science, 34(10), 1297-1321. https://doi.org/10.1016/S0021-8502(03)00364-1

Schulz, H., Zanatta, M., Bozem, H., Leaitch, W.R., Herber, A.B., Burkart, J., Willis, M.D., Kunkel, D., Hoor, P.M., Abbatt, J.P.D. (2019) High Arctic Aircraft Measurements Characterising Black Carbon Vertical Variability in Spring and Summer, Atmospheric Chemistry and Physics, 19(4), 2361-2384.

Schwarz, J.P., Gao, R.S., Fahey, D.W., Thomson, D.S., Watts, L.A., Wilson, J.C., Reeves, J.M., Darbeheshti, M., Baumgardner, D.G., Kok, G.L., Chung, S.H., Schulz, M., Hendricks, J., Lauer, A., Kärcher, B., Slowik, J.G., Rosenlof, K.H., Thompson, T.L., Langford, A.O., Loewenstein, M., Aikin, K.C. (2006) Single-Particle Measurements of Midlatitude Black Carbon and Light-Scattering Aerosols from the Boundary Layer to the Lower Stratosphere, Journal of Geophysical Research Atmospheres, 111(16), 1-15. https://doi.org/10.1029/2006JD007076

Schwarz, J.P., Gao, R.S., Spackman, J.R., Watts, L.A., Thomson, D.S., Fahey, D.W., Ryerson, T.B., Peischl, J., Holloway, J.S., Trainer, M., Frost, G.J., Baynard, T., Lack, D.A., Gouw, J.A., Warneke, C., Del Negro, L.A. (2008) Measurement of the Mixing State, Mass, and Optical Size of Individual Black Carbon Particles in Urban and Biomass Burning Emissions, Geophysical Research Letters, 35(13), 1-5. https://doi.org/10.1029/2008GL033968

Schwarz, J.P., Spackman, J.R., Gao, R.S., Perring, A.E., Cross, E., Onasch, T.B., Ahern, A., Wrobel, W., Davidovits, P., Olfert, J., Dubey, M.K., Mazzoleni, C., Fahey, D.W. (2010) The Detection Efficiency of the Single Particle Soot Photometer, Aerosol Science and Technology, 44(8), 612-628. https://doi.org/10.1080/02786826.2010.481298

Shiraiwa, M., Kondo, Y., Iwamoto, T., Kita, K. (2010) Amplification of Light Absorption of Black Carbon by Organic Coating, Aerosol Science and Technology, 44(1), 46-54. https://doi.org/10.1080/02786820903357686

Shiraiwa, M., Kondo, Y., Moteki, N., Takegawa, N., Miyazaki, Y., Blake, D.R. (2007) Evolution of Mixing State of Black Carbon in Polluted Air from Tokyo, Geophysical Research Letters, 34(16), 2-6. https://doi.org/10.1029/2007GL029819

Slowik, J.G., Cross, E.S., Han, J.H., Davidovits, P., Onasch, T.B., Jayne, J.T., Williams, L.R., Canagaratna, M.R., Worsnop, D.R., Chakrabarty, R.K., Moosmuller, H., Arnott, W.P., Schwarz, J.P., Gao, R.S., Fahey, D.W., Kok, G.L.,

Petzold, A. (2007) An Inter-Comparison of Instruments Measuring Black Carbon Content of Soot Particles, Aerosol Science and Technology, 41(3), 295-314. https://doi.org/10.1080/02786820701197078

Spackman, J.R., Schwarz, J.P., Gao, R.S., Watts, L.A., Thomson, D.S., Fahey, D.W., Holloway, J.S., de Gouw, J.A., Trainer, M., Ryerson, T.B. (2008) Empirical Correlations between Black Carbon Aerosol and Carbon Monoxide in the Lower and Middle Troposphere, Geophysical Research Letters, 35(19). https://doi.org/10.1029/2008GL035237

Stein, A.F., Draxler, R.R., Rolph, G.D., Stunder, B.J.B., Cohen, M.D., Ngan, F. (2015) Noaa's Hysplit Atmospheric Transport and Dispersion Modeling System, Bulletin of the American Meteorological Society, 96(12), 2059-2077. https://doi.org/10.1175/BAMS-D-14-00110.1

Stephens, M., Turner, N., Sandberg, J. (2003) Particle Identification by Laser-Induced Incandescence in a Solid-State Laser Cavity, Applied Optics, 42(19), 3726. https://doi.org/10.1364/ao.42.003726

Streets, D.G., Yarber, K.F., Woo, J.H., Carmichael, G.R. (2003) Biomass Burning in Asia: Annual and Seasonal Estimates and Atmospheric Emissions, Global Biogeochemical Cycles, 17(4). https://doi.org/10.1029/2003gb002040

Subramanian, R., Kok, G.L., Baumgardner, D., Clarke, A., Shinozuka, Y., Campos, T.L., Heizer, C.G., Stephens, B.B., de Foy, B., Voss, P.B., Zaveri, R.A. (2010) Black Carbon over Mexico: The Effect of Atmospheric Transport on Mixing State, Mass Absorption Cross-Section, and BC/CO Ratios, Atmospheric Chemistry and Physics, 10(1), 219-237. https://doi.org/10.5194/acp-10-219-2010

Thamban, N.M., Tripathi, S.N., Moosakutty, S.P., Kuntamukkala, P., Kanawade, V.P. (2017) Internally Mixed Black Carbon in the Indo-Gangetic Plain and Its Effect on Absorption Enhancement, Atmospheric Research, 197, 211-223. https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2017.07.007.

Wang, Q., Cao, J., Han, Y., Tian, J., Zhu, C., Zhang, Y., Zhang, N., Shen, Z., Ni, H., Zhao, S., Wu, J. (2018) Sources and physicochemical characteristics of black carbon aerosol from the southeastern Tibetan Plateau: Internal mixing enhances light absorption, Atmospheric Chemistry and Physics, 18(7), 4639-4656. https://doi.org/10.5194/acp-18-4639-2018

Wang, Q., Huang, R.J., Cao, J., Han, Y., Wang, G., Li, G., Wang, Y., Dai, W., Zhang, R., Zhou, Y. (2014) Mixing State of Black Carbon Aerosol in a Heavily Polluted Urban Area of China: Implications for Light Absorption Enhancement, Aerosol Science and Technology, 48(7), 689-697. https://doi.org/10.1080/02786826.2014.917758

Xu, J.-W., Martin, R.V., Morrow, A., Sharma, S., Huang, L., Leaitch, W.R., Burkart, J., Schulz, H., Zanatta, M., Willis, M.D. (2017) Source Attribution of Arctic Black Carbon Constrained by Aircraft and Surface Measurements, Atmospheric Chemistry and Physics, 17(19), 11971-11989.

Zanatta, M., Laj, P., Gysel, M., Baltensperger, U., Vratolis, S., Eleftheriadis, K., Kondo, Y., Dubuisson, P., Winiarek, V., Kazadzis, S., Tunved, P., Jacobi, H.-W. (2018) Effects of Mixing State on Optical and Radiative Properties of Black Carbon in the European Arctic, Atmospheric Chemistry and Physics, 18(19), 14037-14057. https://doi.org/10.5194/acp-18-14037-2018

Zhang, Y., Zhang, Q., Cheng, Y., Su, H., Li, H., Li, M., Zhang, X., Ding, A., He, K. (2018) Amplification of Light Absorption of Black Carbon Associated with Air Pollution, Atmospheric Chemistry and Physics, 18(13), 9879-9896. https://doi.org/10.5194/acp-18-9879-2018

Zhao, D.L., Huang, M.Y., Tian, P., He, H., Lowe, D., Zhou, W., Sheng, J.J., Wang, F., Bi, K., Kong, S.F., Yang, Y., Liu, Q., Liu, D.T., Ding, D.P. (2019) Vertical Characteristics of Black Carbon Physical Properties over Beijing Region in Warm and Cold Seasons, Atmospheric Environment, 213, 296-310. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.06.007

Zhao, D., Liu, D., Yu, C., Tian, P., Hu, D., Zhou, W., Ding, S., Hu, K., Sun, Z., Huang, M., Huang, Y., Yang, Y., Wang, F., Shen, J., Liu, Q., Kong, S., Li, X., He, H., Ding, D. (2020) Vertical Evolution of Black Carbon Characteristics and Heating Rate during a Haze Event in Beijing Winter, Science of the Total Environment, 709, 136251. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.136251

Zhao, D., Tie, X., Gao, Y., Zhang, Q., Tian, H., Bi, K., Jin, Y., Chen, P. (2015) In-Situ Aircraft Measurements of the Vertical Distribution of Black Carbon in the Lower Troposphere of Beijing, China, in the Spring and Summer Time, Atmosphere, 6(5), 713-731. https://doi.org/10.3390/atmos6050713

Zhao, S., Tie, X., Cao, J., Li, N., Li, G., Zhang, Q., Zhu, C., Long, X., Li, J., Feng, T., Su, X. (2015) Seasonal Variation and Four-Year Trend of Black Carbon in the Mid-West China: The Analysis of the Ambient Measurement and WRF-Chem Modeling, Atmospheric Environment, 123, 430-439. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.05.008

Zheng, H., Kong, S., Wu, F., Cheng, Y., Niu, Z., Zheng, S., Yang, G., Yao, L., Yan, Q., Wu, J., Zheng, M., Chen, N., Xu, K., Yan, Y., Liu, D., Zhao, D., Zhao, T., Bai, Y., Li, S., Qi, S. (2019)

Intra-Regional Transport of Black Carbon between the South Edge of the North China Plain and Central China during Winter Haze Episodes, Atmospheric Chemistry and Physics, 19(7), 4499-4516. https://doi.org/10.5194/acp-19-4499-2019

## Authors Information

강유정 (고려대학교 지구환경과학과 석사과정)
임세희 (고려대학교 지구환경과학과 연구교수)
이미혜 (고려대학교 지구환경과학과 교수)
유희정 (국립기상과학원 미래기반연구부 연구사)