

서울지역 시간별 에어로솔 자료를 이용한 화학성분별 광학특성 및 직접 복사강제력의 시간 변화 분석

Temporal Variations in Optical Properties and Direct Radiative Forcing of Different Aerosol Chemical Components in Seoul using Hourly Aerosol Sampling

송상근 · 손장호^{1),*}

제주대학교 지구해양과학과, ¹⁾동의대학교 환경공학과

(2013년 9월 11일 접수, 2013년 10월 10일 수정, 2013년 11월 15일 채택)

Sang-Keun Song and Zang-Ho Shon^{1),*}

Department of Earth and Marine Sciences, Jeju National University, Jeju 690-756, Korea

¹⁾Department of Environmental Engineering, Dong-Eui University, Busan 614-714, Korea

(Received 11 September 2013, revised 10 October 2013, accepted 15 November 2013)

Abstract

Temporal variations of optical properties of urban aerosol in Seoul were estimated by the Optical Properties of Aerosols and Clouds (OPAC) model, based on hourly aerosol sampling data in Seoul during the year of 2010. These optical properties were then used to calculate direct radiative forcing during the study period. The optical properties and direct radiative forcing of aerosol were calculated separately for four chemical components such as water-soluble, insoluble, black carbon (BC), and sea-salt aerosols. Overall, the coefficients of absorption, scattering, and extinction, as well as aerosol optical depth (AOD) for water-soluble component predominated over three other aerosol components, except for the absorption coefficient of BC. In the urban environment (Seoul), the contribution of AOD (0.10~0.12) for the sum of OC and BC to total AODs ranged from 23% (spring) to 31% (winter). The diurnal variation of AOD for each component was high in the morning and low in the late afternoon during the most of seasons, but the high AODs at 14:00 and 15:00 LST in summer and fall, respectively. The direct negative radiative forcing of most chemical components (especially, NO_3^- of water-soluble) was highest in January and lowest in September. Conversely, the positive radiative forcing of BC was highest in November and lowest in August due to the distribution pattern of BC concentration.

Key words : Aerosol components, Optical properties, Radiative forcing, Seoul, OPAC

*Corresponding author.
Tel : +82-(0)51-890-2078, Email : zangho@deu.ac.kr

1. 서 론

대기 중 에어로솔은 온실기체에 의한 지구온난화와 달리 일반적으로 냉각화에 영향을 주고 있으며, 직·간접적으로 지구열수지를 교란시켜 기후에 큰 영향을 미치는 것으로 알려져 있다. 에어로솔 입자는 직접적으로 태양복사를 산란하고 지구 표면의 적외선을 흡수하기도 하고 (Charlson *et al.*, 1992), 구름의 알베도 증가 (Twomey 효과 혹은 1차 간접효과)나 구름의 수명 변화 (Albrecht 효과 혹은 2차 간접효과) 등에 의한 간접효과를 통해 지구 대기의 복사 평형에 영향을 준다 (Rosenfeld, 2000; Albrecht, 1989; Twomey, 1974). 또한 에어로솔 성분 중에서 수용성 에어로솔 (water-souble aerosol)은 음의 복사강제력 (RF: radiative forcing)을 야기시켜 지구 냉각화의 원인이 되는 반면, 화석연료의 불완전 연소나 소각 등에 의해 발생하는 검댕 (Soot 혹은 BC (black carbon))은 태양복사를 흡수하는 성질이 있어 온난화 효과를 일으킨다 (IPCC, 2007). 특히 BC는 눈과 얼음에 침적될 때 알베도를 감소시키고 대기의 열을 흡수하여 지구온난화에 영향을 준다. 이외에도, 황사와 같은 에어로솔은 단파복사 (태양복사)를 산란시켜 냉각화, 장파복사 (지구복사)를 흡수하여 온난화 역할을 하기도 한다 (IPCC, 2007). 이와 같이 에어로솔의 영향은 화학적 조성이나 입자크기에 따라 매우 다르게 나타나므로 화학조성별 상세연구는 기후변화의 특성을 규명하는데 매우 중요한 정보가 될 수 있다.

에어로솔의 화학조성 및 농도는 인위적 오염원이 많은 도시지역과 배경 또는 청정지역에서 서로 다른 양상을 띠고 있다 (Yoon *et al.*, 2005). 도시지역 에어로솔 (특히 인위적 에어로솔인 유기탄소 (OC)와 BC)의 배출강도는 배경지역에 비해 월등히 높으며 (Zhang *et al.*, 2007; Pöschl, 2005), 에어로솔의 수농도 및 질량농도 또한 배경지역보다 훨씬 높은 (10배 이상) 편이다 (Seinfeld and Pandis, 2006). 심지어 중앙유럽에서 OC와 BC의 농도는 전체 탄소농도의 약 40% 와 50%를 각각 차지한다 (Pöschl, 2005). IPCC 4차 보고서에 따르면 (IPCC, 2007), 2005년 각 에어로솔 성분별 (황산염 SO_4^{2-} , OC, BC, mineral dust) 전지구 평균 직접 복사강제력은 -0.40 , -0.19 , $+0.36$, -0.10

W m^{-2} 으로 각각 추정되었다. 비록 에어로솔 성분별 직접 복사강제력이 전체 에어로솔 복사강제력보다는 작지만, 청정지역에 비해 높은 OC 및 BC 농도가 관측되는 도시지역에서 복사강제력과 기온변화를 추정하는 것은 매우 중요하다고 사료된다. 이와 같이 에어로솔에 의한 복사강제력 산출 등 기후변화와 관련된 많은 연구가 지속적으로 수행되어 오고 있지만, 여전히 매우 큰 불확실성을 가지고 있다 (IPCC, 2007).

일반적으로, 도시 내 인위적 에어로솔의 체류시간은 수 분에서 일주일 가량이며 또한 배출원이 상당히 국지적으로 분포하기 때문에 에어로솔 농도는 시·공간적으로 다르게 분포한다 (Seinfeld and Pandis, 2006). 따라서 도시 에어로솔의 광학특성 및 직접 복사강제력은 시간규모 (시간별, 월별, 계절별 등)에 따라 상당히 다를 수 있다. 그러나 과거 오랜동안 인위적 에어로솔에 의한 복사강제력은 대부분 시·공간적으로 평균된 양을 이용하여 추정되어 왔으며 (Yu *et al.*, 2006), 에어로솔 성분별 복사강제력의 산출 및 변화 특성과 관련된 대부분의 연구가 주로 청정지역에 국한되어 수행되었다 (Kim *et al.*, 2011; IPCC, 2007; Kim *et al.*, 2006). 이외에도, 동북아시아의 ACE-Asia (Huebert *et al.*, 2003), ABC-EAREX2005 (Nakajima *et al.*, 2007)와 같은 국제공동 집중관측을 통해서도 배경농도지역 (예, 제주 고산)의 에어로솔 자료는 많이 축적되었으나 도시지역에서의 자료는 매우 부족한 실정이다. 그리고 주로 청정지역을 대상으로 에어로솔의 관측뿐만 아니라 에어로솔의 물리, 화학 및 광학적 (예, 흡수와 산란) 특성을 밝힌 연구는 많이 수행되어 왔으나 (Kim *et al.*, 2008; Kim *et al.*, 2003), 도시지역을 대상으로 한 이러한 연구는 매우 드물다 (Chubarova *et al.*, 2011; Ramachandran and Kedia, 2010; Singh *et al.*, 2010). 특히, 에어로솔 화학성분별 그리고 시간별 에어로솔 자료를 이용한 광학특성 분석 및 복사강제력 산출에 관한 연구는 전무하다. 따라서 본 연구에서는 2010년 서울에서 측정된 시간별 에어로솔 자료와 광학모델 (OPAC: Optical Properties of Aerosols and Clouds)을 이용하여 에어로솔 성분별 (water-souble, insoluble, BC, sea-salt) 광학특성의 시간 변화를 분석하고, 이를 이용한 복사강제력과 기온의 변화를 산출하였다.

2. 재료 및 방법

2. 1 대상지점 및 샘플링

본 연구에 이용된 자료는 2010년 1년간(1월 1일 ~ 12월 31일) 서울시 광진구 구의동($127^{\circ}05.44'$, $37^{\circ}32.40'$, 그림 1)에 위치한 유해대기 및 산성강하물 측정 등을 포함한 종합대기측정소에서 관측한 매시간 에어로솔 및 관련자료($PM_{2.5}$ 와 관련 이온 및 기체성분의 질량농도)이며, 이를 기반으로 에어로솔 화학성분별 시간규모의 광학특성, 복사강제력 및 기온 변화를 산출하였다. 본 측정소는 구의정수사업소(구의아리수 정수센터)의 중간에 위치하며, 주위에는 주거지역, 공원, 강 등이 인접해 있다. $PM_{2.5}$ 의 분석은 네덜란드 Applikon Analytical B.V 회사에서 제작된 Online Analyzer (MARGA, 모델 ADI 2080)를 이용하여 수행되었으며, BC 및 OC의 질량농도는 Thermal/Optical-transmittance Carbon Aerosol Analyzer (Sunset Laboratory Inc.에서 제작)를 통해 분석되었다. MARGA 시스템은 1시간 간격으로 주요 수용성 무기이온 및 관련 미량기체 농도를 측정하기 위하여 이용되었으며, 99.7%의 입자 포집효율을 가지는 샘플링 박스와 분석 박스로 구성된다. 이 시스템은 유량 $1 m^3 h^{-1}$ 으로 impactor 흡입구를 통하여 주변공기를 샘플링 박스로 흡입한다. 기체성분(산성기체, 암모니아 등)은 WRD (Wet Rotating Denuder)에 의해 형성된 액체막(liquid film, 0.0035% H_2O_2)에 포집된다. 한편, 나머지 공기에는 속해있는 입자는 SJAC (Steam Jet Aerosol Collector)로부터 분출된 과포화증기 (0.0035% H_2O_2 , 120 ~ 140 °C)를 통과하여 포집된다. 그 다음으로 WRD와 SJAC으로부터 얻어지는 수용성 용액은 IC (Ion Chromatography)를 통해서 수용성 음이온과 양이온으로 분석된다. 본 연구에서 수행된 샘플자료의 분석과 검출한 계에 대한 자세한 설명은 Shon *et al.* (2013, 2012b)에 나타나 있다.

2. 2 연구방법

본 연구에서는 에어로솔의 광학특성(소산, 산란, 흡수계수 등)을 산출하기 위하여 광학모델인 OPAC 프로그램을 이용하였다. OPAC 모델에 대한 자세한 설명은 Hess *et al.* (1998)에 잘 나타나 있다. 요약하면, OPAC은 기본적으로 다른 파장과 다른 상태습도

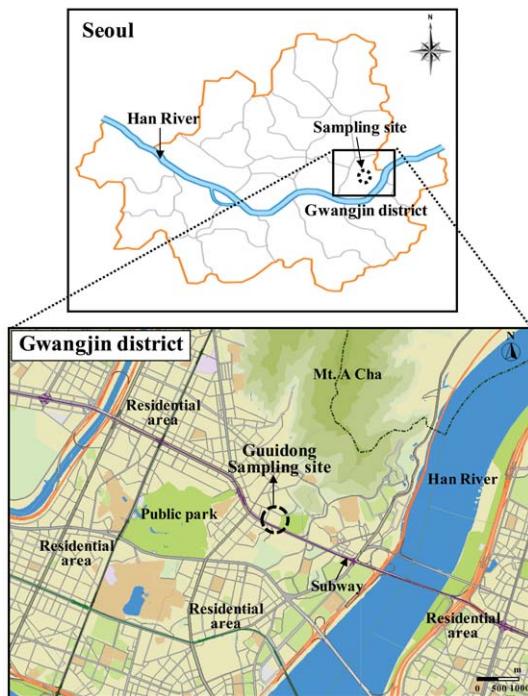


Fig. 1. Geographical location of an urban monitoring site at Gwangjin district in Seoul.

(0%, 50%, 70%, 80%, 90%, 95%, 98%, 99%) 조건하에서 미세 물리학적 특성과 에어로솔 및 구름의 광학적 특성을 산출하는 모델로서, 6개의 water clouds, 3개의 ice clouds, 10개의 에어로솔 성분(component: water-soluble, insoluble, soot, sea-salt 2개 mode, mineral dust 4개 mode, sulfate droplets)을 포함한다. 이러한 에어로솔 성분들은 수증기를 흡수하여 입자의 크기를 변화시킬 수 있다. OPAC 모델에서는 일부 성분(water-soluble, sea-salt)에서만 이러한 현상을 고려한다. 한편 에어로솔 입경과 상태습도 사이의 관계는 단일함수(single function)로 가정하고 있어 같은 상태습도에서 전조 입자와 습한 입자는 서로 다른 입자크기를 가진다는 현상(hysteresis effect)을 고려하지 못한다. 또한 에어로솔 및 water clouds에 대해서는 61개 파장 ($0.25 \sim 40 \mu m$ 사이), ice clouds에 대해서는 67개 파장 ($0.28 \sim 40 \mu m$ 사이)을 포함하며, 에어로솔의 광학특성은 입자형태가 구형이라는 가정하에 Mie 이론을 통해 계산된다. OPAC 모델은 에어로솔의 여러 성분들이 외부적으로 혼합되어 있는 것으로 가정하며,

이들 성분들의 기원을 기초로 하여 에어로솔 유형(type: 도시, 사막, 대류, 해양 에어로솔)을 결정하는 체계로 구성되어 있다. 한편, 각각의 에어로솔 성분 내에서는 서로 유사기원의 화학 조성물들(substances)이 내부적으로 혼합되어 구성되어 있는 것으로 가정한다(Hess *et al.*, 1998). 여기서 외부혼합은 서로 다른 성분의 입자사이에는 물리적 혹은 화학적 상호작용이 없음을 의미한다.

OPAC 모델은 에어로솔을 6가지 화학성분 즉, water-soluble (SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ 등), insoluble, BC (혹은 soot), sea-salt, mineral dust, sulfate droplets로 분류하여 각각의 광학특성을 산출할 수 있다는 장점이 있다. 그러나 본 연구에서는 mineral dust의 주요 성분인 알루미늄(Al), 규소(Si), 철(Fe) 등이 측정되지 않았고 sulfate droplets의 자료 부족으로 인해 6가지 중에서 4가지 성분(water-soluble, insoluble, BC, sea-salt)에 대하여 각각의 광학특성을 분석하였다. 이전 연구에 의하면(Lee *et al.*, 2009), 연구대상지역인 서울은 mineral dust의 소산효율이 총 소산효율과 비교하여 매우 낮기 때문에(총 소산효율의 약 3.8%), 이를 통한 복사강제력(RF) 산출은 크게 중요하지 않는 것으로 사료된다. 한편 에어로솔 성분의 크기 분포는 $\text{PM}_{2.5}$ ($D_p \leq 2.5 \mu\text{m}$) 측정자료가 기초자료로 사용되었기 때문에 OPAC 모의에서 고려되지 않았다.

OPAC 모의를 위해 적용된 4가지 성분의 구성에 관한 자세한 설명은 다음과 같다. 먼저, insoluble 에어로솔은 OC에 대한 유기물질(OM, organic material)의 비를 이용하여 결정하였다. 이러한 OM/OC 비는 계절에 따라 다르게 적용하였는데, 여름과 겨울에는 각각 2.06과 1.48(Bae, 2011)을, 그리고 봄과 가을에 대해서는 두 수치의 평균(1.77)을 이용하였다. Turpin and Lim(2001) 또한 OM/OC의 비를 1.6으로 밝힌 바 있다. 그러나 본 연구의 대상지점에서는 Si, Al, Fe 등과 같은 토양성분입자의 측정이 이루어지지 않아 고려하지 않았다. 토양성분입자는 전체 $\text{PM}_{2.5}$ 농도 중에서 매우 낮은 수치(약 5% 미만)를 나타내어, 이것은 복사강제력(RF)의 산출에 있어 큰 영향을 주지 않는 것으로 볼 수 있다(Moon *et al.*, 2011; Park and Kim, 2004). 두 번째, water-soluble 에어로솔은 일반적으로 1차 배출에 의해 형성되거나 혹은 기체와 입자 사이의 전환과정에 의해서 2차적으로 형성된다. 즉 water-soluble은 SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , 그리고

수용성 OC와 같은 주요 무기이온을 포함하여 7가지 성분들로 구성되며, 일부 성분은 해염(sea-salt) 및 비해염(non-sea-salt(NSS)) water-soluble 성분으로 세분화하였다. 4가지 NSS 성분인 NSS- SO_4^{2-} , NSS- K^+ , NSS- Mg^{2+} , NSS- Ca^{2+} 의 질량농도는 다음의 관계식, $[\text{ion}]_{\text{obs}} - [\text{Na}] \times (\text{Na}^+ \text{에 대한 이온의 질량비})$ 에 의해 계산되었다. 여기서 SO_4^{2-} , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} 에 대한 각각의 비율은 Pilson(1998)에 의해 제시된 0.252, 0.036, 0.121, 0.041을 적용하였다. 또한 water-soluble 을 1차 무기 에어로솔(PIA: K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+}), 2차 무기 에어로솔(SIA: SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+), 그리고 수용성 OC로 보다 세분화 하였다. Na^+ , Cl^- , 그리고 해수의 다른 주요 이온들은 water-soluble로부터 분리하여 sea-salt 성분으로 따로 분류하였다. 본 연구에서 sea-salt 에어로솔의 총 질량농도는 $[\text{Cl}^-]$ 와 $1.47[\text{Na}^+]$ 의 합으로 계산하였다(Quinn *et al.*, 2004). 한편 Cl^- 의 농도는 Cl/Na 당량비($=0.80$, $r=0.32$)가 1에 근사하여 해염기원으로 가정하였다. 그러나 도시의 인위적 오염원(소각, 연소 등)은 Cl 농도에 영향을 끼치기 때문에 sea-salt 에어로솔 총 질량농도는 다소 과대평가 되었으리라 추정된다. 그럼에도 불구하고, sea-salt 에어로솔의 농도는 기타 다른 성분들에 비해 매우 작기 때문에(전체 에어로솔 성분 농도의 1.1~2.6% 차지) 복사강제력의 산출에 있어 큰 영향을 미치지 않을 것으로 추정된다. 최근 서울에서 수행된 선행연구(Heo *et al.*, 2009)에 따르면, 미세먼지($\text{PM}_{2.5}$) 농도의 2.2% 가 sea-salt 성분에 기원된 것으로 밝혀진 바 있다. 따라서 본 연구의 sea-salt 추정량은 선행 연구와 큰 차이를 보이지 않는 것으로 판단된다. 마지막으로 BC 성분은 상대습도의 증가에 따라 성장하지 않는 것으로 가정한다. 위에서 설명한 4가지 에어로솔 성분에 대해 요약하면 다음과 같다.

$$[\text{Water-soluble}] = [\text{PIA}] + [\text{SIA}] + [\text{OC}]_{\text{water-soluble}} \quad (1)$$

$$[\text{PIA}] = [\text{NSS-}\text{K}^+] + [\text{NSS-}\text{Mg}^{2+}] + [\text{NSS-}\text{Ca}^{2+}] \quad (1a)$$

$$[\text{SIA}] = [\text{NO}_3^-] + [\text{NSS-}\text{SO}_4^{2-}] + [\text{NH}_4^+] \quad (1b)$$

$$[\text{Insoluble}] = \{[\text{OC}] \times [\text{OM}]/[\text{OC}]\} - [\text{OC}]_{\text{water-soluble}} \quad (2)$$

$$[\text{BC}] = [\text{EC}] \quad (3)$$

$$[\text{Sea-salt}] = [\text{Cl}^-] + 1.47[\text{Na}^+] \quad (4)$$

여기서 각 성분별 광학특성을 산출하기 위해 OPAC 모델의 입력자료로 이용된 에어로솔 성분별 수밀도(number density)는 단일 입자의 질량농도를 이용하

여 4가지 성분에 대해 각각 계산되었다(Hess *et al.* (1998)의 표 1c 참조). 또한 에어로솔의 질량 및 화학 조성의 연직분포는 경계층 고도(약 2 km) 내에서 일정한 것으로 가정하였다.

본 연구에서 도시 대기상단(TOA: Top of the Atmosphere)에서 에어로솔이 직접 복사강제력(RF)에 미치는 영향을 평가하기 위하여 Charlson *et al.* (1992)의 해 제시된 그리고 Chylek and Wong (1995)에 의해 수 정된 다음의 방정식을 이용하였다.

$$\Delta F_R = -\frac{S_0}{4} T_{atm}^2 (1-N) [(1-\alpha)^2 2\beta \tau_{sc} - 4\alpha \tau_{abs}] \quad (5)$$

여기서 S_0 은 태양상수로서 1370 W m^{-2} ; $S_0/4$ 은 TOA에서의 전지구적 평균된 입사 태양복사속; T_{atm} 은 에어로솔 층 위에서의 대기 투과율(0.79, Penner *et al.*, 1992); N은 연구기간동안 관측지점의 운량 분율; α 는 표면 반사율(0.25, Taha, 1997); β 는 에어로솔에 의해

상향 산란된 복사 분율; τ_{sc} 와 τ_{abs} 는 각각 산란과 흡수로부터 야기되는 광학두께를 나타낸다. 본 연구에서는 OPAC 모델을 수행하여 4가지 화학성분에 대한 전체 광학두께(AOD: aerosol optical depth, τ)도 계산하였다. 운량 분율(N) 자료는 우리나라 기상청 (<http://www.kma.go.kr/weather/observation/currentweather.jsp>)으로부터 얻었다. 상향 산란된 복사 분율(β)은 $\beta = (1-g/2)/2$ (Sagan and Pollack, 1967)의 근사관계를 이용하여 계산하였으며, 이때 g는 비대칭 변수(asymmetry parameter)로서 OPAC 수행을 통해 얻어진다. 따라서 각 에어로솔 화학성분에 대한 직접 복사강제력(RF)은 에어로솔의 광학특성(산란 및 흡수계수 등)을 이용하여 산출할 수 있다. 한편, 복사강제력(RF)은 지구의 평균 평형온도변화(ΔT_s , K)에 선형관계($T_s = \lambda RF$)에 있다(Seinfeld and Pandis, 2006). 여기서 λ 는 기후민감 인자(=약 0.3 K (W m^{-2}) $^{-1}$)이며 위의 선형관계를 이용하여 기온의 변화를 산출한다.

Table 1. Statistical summary of aerosol chemical components ($\mu\text{g m}^{-3}$) in $\text{PM}_{2.5}$ and meteorological variables during the year of 2010.

Component	Spring	Summer	Fall	Winter	Total
Water-soluble	31.9 ± 14.7^a (32.8 ± 14.8^b)	28.7 ± 14.4 (29.1 ± 14.4)	29.0 ± 18.7 (29.3 ± 18.1)	29.0 ± 15.3 (29.4 ± 14.8)	29.7 ± 15.9 (30.1 ± 15.5)
SIA	24.3 ± 12.7 (25.3 ± 12.8)	21.5 ± 12.4 (21.9 ± 12.3)	19.6 ± 14.4 (20.1 ± 13.9)	19.5 ± 13.1 (20.0 ± 12.8)	21.3 ± 13.3 (22.0 ± 13.1)
NO_3^-	14.2 ± 7.4 (14.8 ± 7.7)	11.2 ± 4.7 (11.1 ± 4.5)	10.6 ± 7.0 (11.1 ± 6.9)	12.4 ± 8.6 (12.8 ± 8.3)	12.1 ± 7.2 (12.4 ± 7.0)
NSS-SO_4^{2-}	6.0 ± 4.5 (6.2 ± 4.5)	6.6 ± 5.7 (6.9 ± 5.9)	4.7 ± 4.9 (4.6 ± 4.7)	3.9 ± 3.2 (3.9 ± 3.1)	5.3 ± 4.8 (5.6 ± 4.9)
NH_4^+	4.1 ± 2.9 (4.3 ± 2.9)	3.8 ± 3.4 (3.9 ± 3.4)	4.4 ± 5.1 (4.5 ± 5.0)	3.2 ± 2.7 (3.3 ± 2.6)	3.8 ± 3.6 (4.0 ± 3.6)
PIA	1.6 ± 0.7 (1.6 ± 0.7)	1.5 ± 0.8 (1.5 ± 0.8)	1.5 ± 1.8 (1.5 ± 1.8)	1.1 ± 0.5 (1.1 ± 0.5)	1.4 ± 1.1 (1.4 ± 1.1)
OC	5.9 ± 2.7 (5.9 ± 2.6)	5.7 ± 3.3 (5.7 ± 3.5)	7.9 ± 5.5 (7.7 ± 5.5)	8.4 ± 3.9 (8.3 ± 3.5)	7.0 ± 4.1 (6.8 ± 4.0)
Insoluble	4.7 ± 2.1 (4.7 ± 2.0)	6.2 ± 3.5 (6.3 ± 3.7)	5.8 ± 3.3 (5.6 ± 3.2)	4.0 ± 1.8 (4.0 ± 1.6)	5.2 ± 2.9 (5.2 ± 3.0)
BC (or EC)	1.5 ± 1.1 (1.6 ± 1.0)	1.9 ± 1.1 (1.9 ± 1.1)	2.7 ± 2.0 (2.5 ± 1.8)	2.2 ± 1.8 (2.3 ± 1.6)	2.0 ± 1.6 (2.0 ± 1.4)
Sea-salt	1.0 ± 0.8 (1.0 ± 0.8)	0.5 ± 0.3 (0.5 ± 0.4)	0.4 ± 0.6 (0.3 ± 0.3)	1.2 ± 1.2 (1.3 ± 1.3)	0.8 ± 0.9 (0.8 ± 0.9)
Temp ($^\circ\text{C}$)	11 ± 7.0	26 ± 3.0	15 ± 8.0	-0.8 ± 6.0	13 ± 11
RH (%)	61 ± 20	75 ± 16	68 ± 19	61 ± 19	66 ± 19
WS (m s^{-1})	2.4 ± 1.3	1.8 ± 0.7	2.0 ± 1.1	2.2 ± 1.2	2.1 ± 1.1
UV (mW cm^{-2})	0.6 ± 0.5	0.7 ± 0.5	0.6 ± 0.4	0.4 ± 0.3	0.6 ± 0.5

^aThe numbers are mean $\pm 1\sigma$ calculated with the data set of concentrations of aerosol components and meteorological variables during the whole study period.

^bThe numbers are mean $\pm 1\sigma$ calculated with the data set of concentrations of aerosol components during the day (06:00 ~ 18:00 LST for spring and fall, 05:00 ~ 19:00 LST for summer, and 08:00 ~ 17:00 LST for winter).

PIA: NSS-K⁺+NSS-Mg²⁺+NSS-Ca²⁺.

3. 결과 및 토의

3. 1 에어로솔 성분별 농도 및 광학특성의 계절분포

본 연구에서는 에어로솔 화학성분별 광학특성을 분석하기 위하여 먼저 연구기간동안(2010년) 관측된 각 성분별 농도 특성을 살펴보았다(표 1). 전반적으로 계절에 상관없이 4가지 성분 중에서 water-soluble이 가장 높게 관측되었으며, 그 다음으로 insoluble, BC, sea-salt 순서로 나타났다. Water-soluble 중에서는 무엇보다도 SIA 농도가 PIA와 OC 농도에 비해 최소 2배(겨울)에서 최대 18배(겨울)까지 높게 관측되었다. 특히 SIA의 NO_3^- 농도가 NSS- SO_4^{2-} 및 NH_4^+ 농도에 비해 탁월하게 높게 나타났다. 이는 1999년 서울지역에서 관측된 결과 즉, NO_3^- 가 SO_4^{2-} 및 NH_4^+ 보다 높은(각각 1.5배와 1.6배) 농도를 나타낸 것과 유사하였으며(Park and Kim, 2004), 또한 2001~2002년 서울지역에서 관측된 NO_3^- 농도가 다른 두 물질과 비교하여 다소 높게 나타난 결과와도 유사한 패턴이었다(Lee et al., 2008). 그러나 계절별 특성에 있어서는 성분별로 서로 다른 양상을 띠고 있었다. 예를 들어, water-soluble는 봄철($32 \pm 15 \mu\text{g m}^{-3}$)에, insoluble는 여름철($6.2 \pm 3.5 \mu\text{g m}^{-3}$)에, BC는 가을철($2.7 \pm 2.0 \mu\text{g m}^{-3}$)에, sea-salt는 겨울철($1.2 \pm 1.2 \mu\text{g m}^{-3}$)에 가장 높은 농도를 보였다. 연구기간동안의 기상요소 특성을 보면(표 1), 기온과 일사는 계절 특성상 여름철에 최고값이 관측되었으며, 풍속은 봄철에 가장 강하게 나타났다. 상대습도는 다른 세 계절에 비해 여름철에 가장 높은 수치를 보였다. 연구기간동안 에어로솔 농도 분석을 살펴본 결과, 에어로솔의 광학특성은 다른 계절에 비해 봄철에 가장 뚜렷하고 클 것으로 예상되며, 또한 상대습도가 높은 여름철에도 흡습성장이 활발한 NSS- SO_4^{2-} 및 NO_3^- 등의 SIA에 의해 다소 높은 값이 나타날 것으로 예상된다. 4가지 성분 중에서 water-soluble 이온, OC, BC의 농도분포에 대한 자세한 분석은 Shon et al. (2012a, b)에 잘 나타나 있다.

표 2는 OPAC 모델을 수행하여 산출된 에어로솔 화학성분별 산란계수(σ_{sc}), 흡수계수(σ_{ab}), 소산계수(σ_{ext}), 그리고 광학두께(τ)의 계절별 특성을 나타낸다. 각 성분별 광학특성은 550 nm의 파장과 70%의 상대습도 조건하에서 산출되었다. 70%의 상대습도는

OPAC 모델 내에서 적용된 8가지 상대습도 중 하나로서 연구기간동안의 평균(약 66%)에 가장 가까운 값을 선택한 것이다. 결과적으로 본 연구에서는 에어로솔 흡습성에 따른 광학특성과 복사강제력의 산출은 고려하지 않은 셈이다. 전반적으로 water-soluble 성분의 산란, 흡수, 소산계수가 가장 높은 수치를 나타냈다(BC의 흡수계수 제외). 예를 들어, water-soluble의 산란계수는 insoluble, BC, sea-salt의 산란계수와 비교하여 최대 두 자릿수(100배) 정도 더 커졌다. 한편, BC는 태양복사의 가시광선과 근적외선에 대한 강한 복사 흡수체이다. 이러한 이유로 BC의 흡수계수는 water-soluble 성분과 비교하여 높게(봄철 1.9배에서 가을철 3.6배까지) 추정되었다(표 2). 이외에도, water-soluble 중에서 SIA의 소산계수는 4가지 에어로솔 성분 전체 소산계수의 62%(겨울)에서 최대 72%(봄)까지 차지하였다. 그리고 SIA 중에서도 NO_3^- 는 NSS- SO_4^{2-} 및 OC 농도보다 약 2배 이상 높게 나타나(표 1), NO_3^- 의 산란 및 소산계수는 두 성분의 값에 비해 약 1.5~3.3배 정도 높게 예측된 것으로 해석된다. 도시환경의 주요 성분인 OC와 BC의 소산계수는 4가지 성분 전체 소산계수의 17%(봄)에서 26%(겨울)까지, 4.0%(봄)에서 7.3%(가을)까지 각각 차지하였다. Lee et al. (2009)에 의하면, 비록 BC의 질량농도가 water-soluble 성분보다 약 4배 정도 낮음에도 불구하고, BC 소산계수는 water-soluble 성분만큼 중요하다는 결과가 밝혀진 바 있다. 대조적으로, insoluble과 sea-salt 성분의 소산계수는 전체의 약 1.2%와 3% 미만으로 각각 산출되었다. 표 1과 2를 통해, 에어로솔 성분별 산란, 흡수, 소산계수의 변화는 각 성분별 농도변화에 의해 결정되는 것을 알 수 있었다.

4가지 에어로솔 성분별 광학두께(AOD, aerosol optical depth)의 특성을 살펴보면, 다른 광학특성(산란 및 흡수계수 등)과 마찬가지로 water-soluble의 AOD가 가장 높았으며($0.32 \sim 0.37$), 이 중에서 SIA의 AOD는 전체 성분의 AOD에 약 56%(겨울)에서 66%(봄)에 이르기까지 상당히 큰 기여를 한 것으로 나타났다. 또한 OC의 AOD는 $0.07 \sim 0.09$ 로 산출되어 SIA인 NSS- SO_4^{2-} 와 NH_4^+ , 그리고 PIA보다 다소 높게 나타났다. 한편, BC의 AOD($0.03 \sim 0.04$)는 전체 성분의 AOD의 약 6.8%(봄)에서 10%(가을)까지 차지하였으며, 이는 insoluble과 sea-salt 성분의 AOD보다 각각 1.4배와 2.0배 정도 높은 편이었다. 이러한

Table 2. Statistical summary of optical properties for four aerosol chemical components (water-soluble (SIA, PIA, and OC), insoluble, BC, and sea-salt aerosol categories) estimated by the OPAC model during the year of 2010.

Component	Optical property			
	σ_{ab} (Mm^{-1})	σ_{sc} (Mm^{-1})	σ_{ext} (Mm^{-1})	AOD
Water-soluble	3.8/3.4/3.3/3.3*	196/176/170/170	200/179/173/173	0.37/0.34/0.33/0.32
SIA	2.9/2.6/2.3/2.2	151/132/119/115	154/135/121/118	0.29/0.25/0.23/0.22
NO ₃ ⁻	1.7/1.3/1.3/1.4	88/66/68/74	90/67/69/75	0.17/0.13/0.13/0.14
NSS-SO ₄ ²⁻	0.7/0.8/0.5/0.4	37/42/28/22	38/43/29/23	0.07/0.08/0.05/0.04
NH ₄ ⁺	0.5/0.5/0.4/0.4	26/24/23/19	27/25/24/19	0.05/0.05/0.04/0.04
PIA	0.2/0.2/0.2/0.1	9.4/9.1/8.6/6.4	9.6/9.3/8.8/6.5	0.02/0.02/0.02/0.01
OC	0.7/0.7/0.8/0.9	35/35/43/48	36/35/43/49	0.07/0.07/0.08/0.09
Insoluble	0.5/0.6/0.5/0.4	1.2/1.7/1.5/1.0	1.7/2.3/2.0/1.4	0.02/0.02/0.02/0.02
BC (or EC)	7.4/9.0/12.0/10.6	1.2/1.4/1.9/1.7	9.0/10/14/12	0.03/0.03/0.04/0.03
Sea-salt	<0.001	3.9/1.9/1.3/5.2	3.9/1.9/1.3/5.2	0.02/0.01/0.01/0.02
Total	11.7/13.0/15.8/14.3	202/181/175/178	215/193/190/192	0.44/0.40/0.40/0.39

* Spring/Summer/Fall/Winter.

Values were calculated with the data set of aerosol optical properties during the day (06:00 ~ 18:00 LST for spring and fall, 05:00 ~ 19:00 LST for summer, and 08:00 ~ 17:00 LST for winter).

σ_{ab} : absorption coefficient, σ_{sc} : scattering coefficient, σ_{ext} : extinction coefficient, and AOD: aerosol optical depth.

PIA: NSS-K⁺+NSS-Mg²⁺+NSS-Ca²⁺.

$\lambda=550\text{ nm}$, RH=70%.

OC와 BC의 광학특성은 도시환경에서 그들의 농도 상승과 함께 부분적으로 BC의 높은 흡수율이 원인인 것으로 추정된다. 한편, 에어로솔 흡습성과 광학특성과의 관계를 살펴보기 위해 4가지 성분 중 water-soluble과 sea-salt 성분에 대하여 상대습도 90% 경우의 광학특성을 추가적으로 계산하였다. 상대습도 70% 경우와 비교하여, water-soluble 성분은 최소 1.01배 (흡수계수)에서 최대 1.8배 (산란계수), sea-salt 성분은 최소 1.1배 (AOD)에서 최대 1.7배 (소산계수) 높게 산출되어 상대습도 증가에 의해 두 성분의 흡습성이 증가하는 것을 알 수 있었다. 그러나 유의할 점은 본 연구의 모의에서 동일한 상대습도(70%)가 적용되어 시간에 따른 상대습도의 변화를 모의하지 못한다. 따라서 상대습도 변화에 따른 광학특성은 실제 대기조건에서 다소 차이가 있을 수 있다.

배경 및 청정지역에서의 광학특성은 도시지역과 다소 다른 양상을 띤다. 즉, 청정대기에서 BC 흡수계수의 크기는 도시지역 에어로솔 광학특성보다 상당히 낮게 산출되었다(Lee *et al.*, 2009; Kim *et al.*, 2006). 예를 들어 2001 ~ 2002년 동안 서울과 제주도 고산지역에서의 광학특성을 보면, 두 지역의 전체 성분에 대한 소산계수(서울 약 125 Mm^{-1} 과 고산 62.7 Mm^{-1})에 미치는 BC 소산계수(약 53.6 Mm^{-1} 과 4.3 Mm^{-1})의 기여는 각각 43%와 6.8%로 나타났다(Lee *et al.*, 2009).

2009). 이는 도시지역인 서울에서의 BC 흡수계수(약 42.4 Mm^{-1})가 청정지역인 고산(3.4 Mm^{-1})보다 훨씬 높게 산출되어 이로 인해 소산계수가 높게 나타난 것으로 볼 수 있다. 또한 두 지역에서 전체 성분의 흡수계수에 미치는 BC 흡수계수의 기여는 서울지역이 약 94%로 고산지역의 71%보다 더 높게 산출되었다(Lee *et al.*, 2009). 본 연구의 대상지역(서울)에서도 전체 성분의 흡수계수(평균 11.7 Mm^{-1} (봄)~ 15.8 Mm^{-1} (가을))에 대한 BC 흡수계수(평균 7.4 Mm^{-1} (봄)~ 12.0 Mm^{-1} (가을))의 기여는 최소 63%(봄)에서 최대 76%(가을철) 이르기까지 높게 나타났다.

3.2 에어로솔 성분별 광학특성과 복사강제력의 월변화

도시지역에서 에어로솔이 광학특성과 복사강제력(RF)에 미치는 영향은 각 화학성분별로 다소 차이를 나타냈다(표 3과 4). 표 3은 에어로솔 화학성분별 광학특성의 월별 분포를 나타내는데, 전반적으로 BC의 흡수계수를 제외하고는 water-soluble의 산란, 흡수, 소산계수가 가장 높게(최고 두 자릿수) 나타났다. 월별로 보면, water-soluble의 산란, 흡수, 소산계수는 1월에 가장 높았고 9월에 가장 낮게 산출되었다. Water-soluble 중에서 SIA의 산란, 흡수, 소산계수는 1월에 가장 높았고(특히, NO₃⁻의 큰 기여로 인해) 2월에 가

Table 3. Monthly variations of optical properties for each aerosol chemical component during the year of 2010.

Month	Water-soluble			Insoluble			BC (or EC)		Sea-salt		Total	
	SIA			PIA		OC	Total					
	NO ₃ ⁻	NSS-SO ₄ ²⁻	NH ₄ ⁺	σ _{ab} /σ _{sc} /σ _{ext} /AOD								
Jan	2.2/138/140/0.26	0.6/36.6/37.2/0.07	0.5/29.0/29.4/0.05	0.1/7.5/7.6/0.01	0.9/55.6/56.5/0.10	4.2/267/271/0.50	0.4/1.1/1.4/0.021	6.4/1.0/7.4/0.023	<0.001/4.9/4.9/0.019	11.0/274/285/0.56		
Feb	1.0/52.6/53.7/0.10	0.3/13.7/14.0/0.03	0.2/12.4/12.6/0.02	0.1/6.7/6.8/0.01	0.8/42.2/43.1/0.08	2.5/128/130/0.25	0.3/0.9/1.3/0.020	8.4/1.3/9.7/0.027	<0.001/3.8/3.8/0.017	11.2/134/145/0.31		
Mar	1.5/77.3/78.8/0.15	0.7/36.4/37.1/0.07	0.4/23.2/23.6/0.04	0.2/9.7/9.9/0.02	0.6/31.8/32.4/0.06	3.4/179/182/0.34	0.4/1.1/1.5/0.021	7.5/1.2/8.6/0.026	<0.001/4.1/4.1/0.018	11.3/185/196/0.40		
Apr	1.9/101/103/0.19	0.6/32.6/33.2/0.06	0.6/29.2/29.8/0.06	0.2/9.4/9.6/0.02	0.8/39.7/40.5/0.08	4.1/212/216/0.4	0.5/1.4/1.9/0.021	10.0/1.6/11.6/0.031	<0.001/4.5/4.5/0.018	14.6/219/234/0.47		
May	1.7/88.5/90.2/0.17	0.8/41.9/42.8/0.08	0.5/26.1/26.6/0.05	0.2/9.1/9.3/0.02	0.7/35.0/35.7/0.07	3.9/201/205/0.38	0.4/1.2/1.7/0.021	7.9/1.2/9.1/0.026	<0.001/3.1/3.1/0.016	12.2/206/218/0.44		
Jun	1.2/63.8/65.0/0.12	0.7/38.8/39.5/0.07	0.5/25.5/26.0/0.05	0.2/9.7/9.9/0.02	0.8/42.4/43.2/0.08	3.5/180/184/0.34	0.8/2.0/2.8/0.023	9.0/1.4/10.4/0.029	<0.001/2.0/2.0/0.014	13.3/186/199/0.41		
Jul	1.2/60.6/61.8/0.12	0.8/40.7/41.5/0.08	0.4/21.8/22.3/0.04	0.2/10.6/10.8/0.02	0.5/27.8/28.4/0.05	3.1/162/165/0.31	0.5/1.3/1.8/0.021	10.2/1.6/11.7/0.031	<0.001/2.0/2.0/0.014	13.8/167/180/0.38		
Aug	1.5/79.3/80.8/0.15	1.0/52.6/53.6/0.10	0.5/25.7/26.2/0.05	0.1/5.1/5.2/0.01	0.6/30.1/30.7/0.06	3.7/193/197/0.37	0.5/1.4/2.0/0.022	11.4/1.8/13.2/0.034	<0.001/1.6/1.6/0.013	15.6/198/213/0.43		
Sep	1.1/57.5/58.6/0.11	0.4/22.3/22.7/0.04	0.2/12.4/12.6/0.02	0.1/4.5/4.6/0.01	0.5/27.6/28.1/0.05	2.4/124/127/0.24	0.4/1.0/1.3/0.020	13.0/2.0/15.0/0.037	<0.001/1.1/1.1/0.012	15.7/128/144/0.31		
Oct	1.3/65.6/66.8/0.13	0.6/30.7/31.3/0.06	0.4/23.0/23.5/0.04	0.1/5.5/5.6/0.01	0.8/39.3/40.1/0.08	3.2/164/167/0.31	0.5/1.4/1.9/0.021	11.5/1.8/13.3/0.034	<0.001/1.6/1.6/0.013	15.2/169/184/0.38		
Nov	1.4/72.3/73.7/0.14	0.5/27.1/27.7/0.05	0.5/26.5/27.0/0.05	0.2/12.6/12.8/0.02	1.0/49.4/50.3/0.09	3.6/188/191/0.36	0.6/1.7/2.4/0.022	11.2/1.8/13.0/0.033	<0.001/1.0/1.0/0.012	15.5/192/208/0.42		
Dec	1.1/58.4/59.5/0.11	0.4/21.8/22.3/0.04	0.4/19.3/19.7/0.04	0.1/6.1/6.3/0.01	1.0/51.4/52.4/0.10	3.0/157/160/0.30	0.4/1.1/1.5/0.021	8.5/1.3/9.8/0.028	<0.001/6.3/6.3/0.021	12.0/166/178/0.37		
Avg	1.4/76.2/77.6/0.15	0.6/32.9/33.6/0.06	0.4/22.8/23.3/0.04	0.2/8.0/8.2/0.02	0.7/39.4/40.1/0.08	3.4/179/183/0.34	0.5/1.3/1.8/0.021	9.6/1.5/11.1/0.030	<0.001/3.0/3.0/0.016	13.4/185/199/0.41		

Values were calculated with the data set of aerosol optical properties during the day (06:00 ~ 18:00 LST for spring and fall, 05:00 ~ 19:00 LST for summer, and 08:00 ~ 17:00 LST for winter).

σ_{ab}: absorption coefficient (Mm^{-1}), σ_{sc}: scattering coefficient (Mm^{-1}), σ_{ext}: extinction coefficient (Mm^{-1}), and AOD: aerosol optical depth.

PIA: NSS-K⁺+NSS-Mg²⁺+NSS-Ca²⁺.

λ=550 nm, RH=70%.

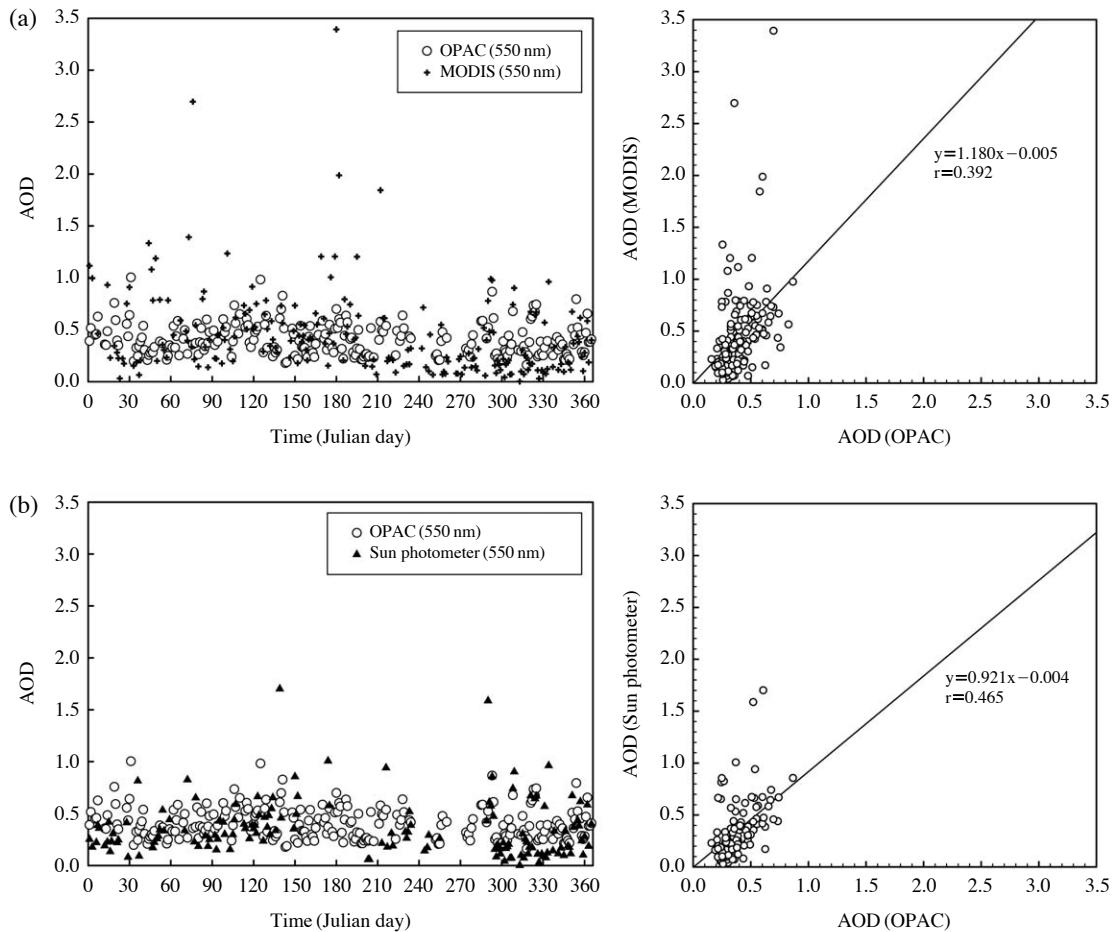


Fig. 2. Comparison of monthly AOD (a) between the OPAC model and MODIS observation (<http://modis.gsfc.nasa.gov/>) and (b) between the OPAC model and Sun photometer observation (at the Gwangju site) provided by the AERONET program (<http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>).

장 낮게 나타났다. 또한 water-soluble 중에서 PIA와 OC의 산란, 흡수, 소산계수는 SIA에 비해 상대적으로 낮은 수치를 보였으나 sea-salt 성분보다는 매우 높은 편이었다. 한편, water-soluble, insoluble, sea-salt의 산란계수는 흡수계수보다 훨씬 높게 나타나 이로 인해 소산계수가 증가된 것으로 볼 수 있다. 그러나 BC의 흡수계수(월평균 9.6 Mm^{-1})는 다른 모든 성분과 비교하여 최소 4배(SIA 월평균 2.4 Mm^{-1})에서 최고 48 배(PIA 월평균 0.2 Mm^{-1})까지 높게 산출되었다. BC 흡수계수와의 비교분석에서 sea-salt 흡수계수는 너무 작아서 ($< 0.001 \text{ Mm}^{-1}$) 제외하였다. 즉, 도심에서 BC는 상대적으로 적은 농도임에도 불구하고 흡수계수

를 증가시키면서 소산계수를 증가시키는 것을 알 수 있었다. BC 흡수계수의 월별 분포에서, 가을철 BC의 고농도로 인해 9월에 가장 높았고 봄철 낮은 농도로 인해 3월에 가장 낮게 나타났다(표 1과 3). 이는 에어로솔의 광학특성이 각 성분별 질량농도의 분포특성에 의해 결정될 수 있다는 것을 시사해준다.

각 성분별 AOD의 월변화를 보면(표 3), 전체 성분 중에서 가장 틱월한 water-soluble의 AOD는 1월에 가장 높았고 9월에 가장 낮게 나타났다. Water-soluble 중에서 SIA의 AOD는 1월에 가장 높았고(0.38) 2월에 가장 낮았으며(0.15), OC의 AOD는 1월에 가장 높게(0.10) 7월(0.05)과 9월(0.05)에 가장 낮게 나

타났다. BC의 경우 AOD의 월변화는 OC와 거의 정반대 패턴을 보였는데, 9월에 가장 높게 (0.037) 그리고 1월에 가장 낮게 (0.023) 나타났다. 한편, sea-slat 성분은 12월에 가장 높았고 9월에 가장 낮게 나타났으며, insoluble 성분의 AOD는 전체적으로 월별 상관없이 유사하게 나타났다.

본 연구에서는 OPAC 모델의 결과를 검증하기 위하여 MODIS 및 선포터미터(Sun photometer)의 월별 AOD를 이용하여 비교분석하였다(그림 2). MODIS AOD는 한반도 중부지역을 통과하는 $1^\circ \times 1^\circ$ 해상도의 관측값이고, 선포터미터 AOD는 NASA AERONET(Aerosol Robotic Network, <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>)

프로그램에서 제공하는 관측값이다. 선포터미터 AOD는 연구기간(2010년)과 연구대상지역(서울)에 해당하는 자료를 구할 수 없는 관계로 본 연구기간과 일치하면서 도시지역인 광주의 AOD 자료를 이용하였다. 전반적으로 OPAC AOD가 MODIS AOD보다는 다소 높게 예측(회귀직선 기울기 1.18)된 반면, 선포터미터 AOD보다는 약간 낮게(기울기 0.92) 예측되었다. 또한 선포터미터 AOD는 MODIS와 달리 주로 봄, 가을철에 OPAC AOD보다 낮게 산출되었다. 이러한 차이는 OPAC 계산의 입력자료로 이용된 에어로솔 농도가 선포터미터 관측시의 농도보다 높았기 때문인 것으로 여겨진다. OPAC 계산에 이용된 연구기간(2010년)과 같은 기간 내 선포터미터 관측일에 해

당하는 에어로솔 농도변화를 환경부 PM₁₀ 질량농도를 통해 확인한 결과 AOD가 높게 나타난 날들은 대부분 PM₁₀ 질량농도 역시 높게 나타났다. 이외에도, OPAC AOD와 MODIS 및 선포터미터 AOD 사이의 상관계수(r)는 각각 0.392(p-value=9.02 × 10⁻⁷)와 0.465(p-value=5.26 × 10⁻⁷)로 계산되어 둘 다 통계적으로 유의한 것으로 나타났으며, 선포터미터의 경우가 MODIS 경우보다 상대적으로 다소 높은 상관을 보였다(그림 2). 그러나 전체적으로 상관성이 낮은 이유는 관측지점이 서로 불일치하고 또한 부분적으로 황사먼지 효과로 야기되는 결과라고 추정할 수 있다(Lee et al., 2008).

표 4는 연구기간동안 에어로솔 성분별 복사강제력(RF)과 기온변화(ΔT_s)의 월별 분포를 나타낸다. 전반적으로 전체 에어로솔 성분에 대한 복사효과는 1월에 가장 큰 음의 복사강제력(평균 -5.9 W m^{-2})이 나타났고 9월에 가장 작은 음의 복사강제력(평균 -0.6 W m^{-2})이 나타났다. 화학성분별로 보면, 전체 중에서 가장 큰 영향을 미치는 water-soluble의 경우 1월에 가장 큰 음의 복사강제력(약 -28.7 W m^{-2})과 9월에 가장 작은 음의 복사강제력(약 -3.6 W m^{-2})을 보였다. 대조적으로 sea-salt는 12월에 가장 큰 음의 복사강제력과 9월에 가장 작은 음의 복사강제력을 보였다. 그리고 water-soluble 중에서는 NO₃⁻의 음의 복사강제력이 가장 크게 기여한 것으로 나타났다. 한편,

Table 4. Monthly variations of radiative forcing (RF, W m^{-2}) and surface temperature change (ΔT_s , $^\circ\text{C}$) for each aerosol chemical component during the year of 2010.

Month	Water-soluble						Insoluble	BC(or EC)	Sea-salt	Total				
	SIA		PIA	OC	Total									
	NO ₃ ⁻	NSS-SO ₄ ²⁻			RF/ΔT _s	RF/ΔT _s								
	RF/ΔT _s	RF/ΔT _s	RF/ΔT _s	RF/ΔT _s	RF/ΔT _s	RF/ΔT _s	RF/ΔT _s	RF/ΔT _s	RF/ΔT _s	RF/ΔT _s				
Jan	-14.8/-4.5	-3.9/-1.2	-3.1/-0.9	-0.8/-0.2	-6.0/-1.8	-28.7/-8.6	0.02/0.005	5.4/1.6	-0.49/-0.15	-5.9/-1.8				
Feb	-6.9/-2.1	-1.8/-0.5	-1.6/-0.5	-0.9/-0.3	-5.5/-1.7	-16.7/-5.0	0.01/0.004	4.3/1.3	-0.49/-0.15	-3.2/-1.0				
Mar	-5.5/-1.6	-2.6/-0.8	-1.6/-0.5	-0.7/-0.2	-2.3/-0.7	-12.6/-3.8	0.01/0.003	1.7/0.5	-0.29/-0.09	-2.8/-0.8				
Apr	-9.7/-2.9	-3.2/-1.0	-2.8/-0.8	-0.9/-0.3	-3.9/-1.2	-20.4/-6.1	0.02/0.005	3.4/1.0	-0.39/-0.12	-4.4/-1.3				
May	-8.6/-2.6	-4.1/-1.2	-2.5/-0.8	-0.9/-0.3	-3.4/-1.0	-19.6/-5.9	0.01/0.004	2.9/0.9	-0.29/-0.09	-4.2/-1.3				
Jun	-6.3/-1.9	-3.7/-1.1	-2.5/-0.7	-0.9/-0.3	-4.2/-1.3	-17.6/-5.3	0.02/0.007	3.9/1.2	-0.19/-0.06	-3.5/-1.0				
Jul	-3.5/-1.0	-2.3/-0.7	-1.2/-0.4	-0.6/-0.2	-1.5/-0.5	-9.1/-2.7	0.01/0.003	1.6/0.5	-0.12/-0.04	-1.9/-0.6				
Aug	-3.2/-1.0	-2.0/-0.6	-1.0/-0.3	-0.2/-0.1	-1.2/-0.4	-7.6/-2.3	0.01/0.002	1.3/0.4	-0.06/-0.02	-1.6/-0.5				
Sep	-1.7/-0.5	-0.6/-0.2	-0.4/-0.1	-0.1/0.04	-0.8/-0.2	-3.6/-1.1	0.004/0.001	1.4/0.4	-0.03/-0.01	-0.6/-0.2				
Oct	-4.9/-1.5	-2.3/-0.7	-1.7/-0.5	-0.4/-0.1	-3.0/-0.9	-12.4/-3.7	0.01/0.004	3.5/1.1	-0.12/-0.03	-2.2/-0.7				
Nov	-9.9/-3.0	-3.9/-1.2	-3.7/-1.1	-1.8/-0.5	-6.9/-2.1	-26.1/-7.8	0.03/0.008	6.5/2.0	-0.12/-0.04	-4.9/-1.5				
Dec	-5.3/-1.6	-2.0/-0.6	-1.7/-0.5	-0.6/-0.2	-4.6/-1.4	-14.2/-4.2	0.01/0.004	3.9/1.2	-0.58/-0.17	-2.7/-0.8				

PIA: NSS-K⁺+NSS-Mg²⁺+NSS-Ca²⁺.

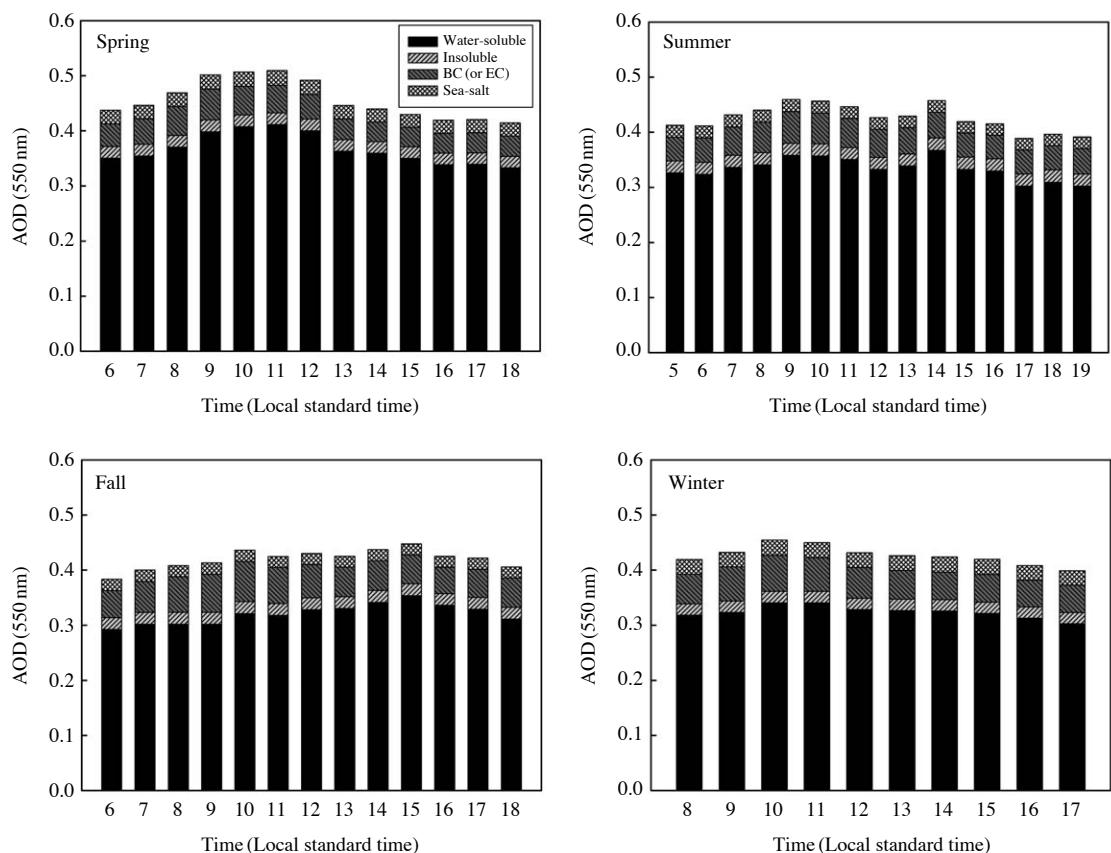


Fig. 3. Diurnal variations of AOD for each aerosol chemical component in PM_{2.5} during four seasons in 2010.

insoluble과 BC 성분은 양의 복사강제력이 나타났는데, BC가 insoluble에 비해 최소 두 자릿수(100배) 이상 높은 수치를 보였다. BC의 복사호과는 전체 에어로솔 성분에 대한 월별 분포와 달리 11월에 가장 큰 양의 복사강제력(평균 6.5 W m^{-2})과 8월에 가장 낮은 복사강제력(평균 1.3 W m^{-2})을 보였다. 이것은 가을철의 일사량 및 기온이 다소 낮더라도 BC의 질량농도가 가을철에 가장 높았기(다른 계절에 비해) 때문으로 여겨지며, 여름철은 높은 기온과 일사량에도 불구하고 BC 농도는 낮았기 때문인 것으로 추정된다. 이러한 BC의 복사강제력은 전체 순(음의) 복사강제력의 약 17%(봄)~36%(가을)까지 상쇄시키는 것으로 계산되었다. 이외에도, 전체 성분 및 각 성분별 기온의 월별 변화 역시 복사강제력의 변화 패턴과 거의 유사하게 나타났다(표 4).

3.3 에어로솔 성분별 AOD와 복사강제력의 일변화 특성

본 연구에서는 대상지역 에어로솔 화학성분별 AOD와 복사강제력(RF)의 일변화(diurnal variation) 특성을 4계절로 구분하여 살펴보았다. 그림 3은 하루 중 낮 동안의 AOD 변화를 나타내는데, 계절별 일출과 일몰시간을 고려하여 봄, 가을철은 6~18시, 여름철은 5~19시, 겨울철은 8~17시까지로 정하였다. 전반적으로 계절별 일변화는 매우 뚜렷한 특성을 나타냈다. 예를 들어, 봄철과 겨울철의 전체 AOD는 오전 시간대(9~11시)에 높은 편이었고 늦은 오후시간대(17~19시)에 낮은 편이었다. 그러나 여름철과 가을철의 최고치는 다른 양상을 보였다. 여름철 AOD는 오전 9~10시와 함께 14시에도 최고치를 보였으며, 가을철 AOD는 15시에 정점(peak)에 이르렀다. 이는

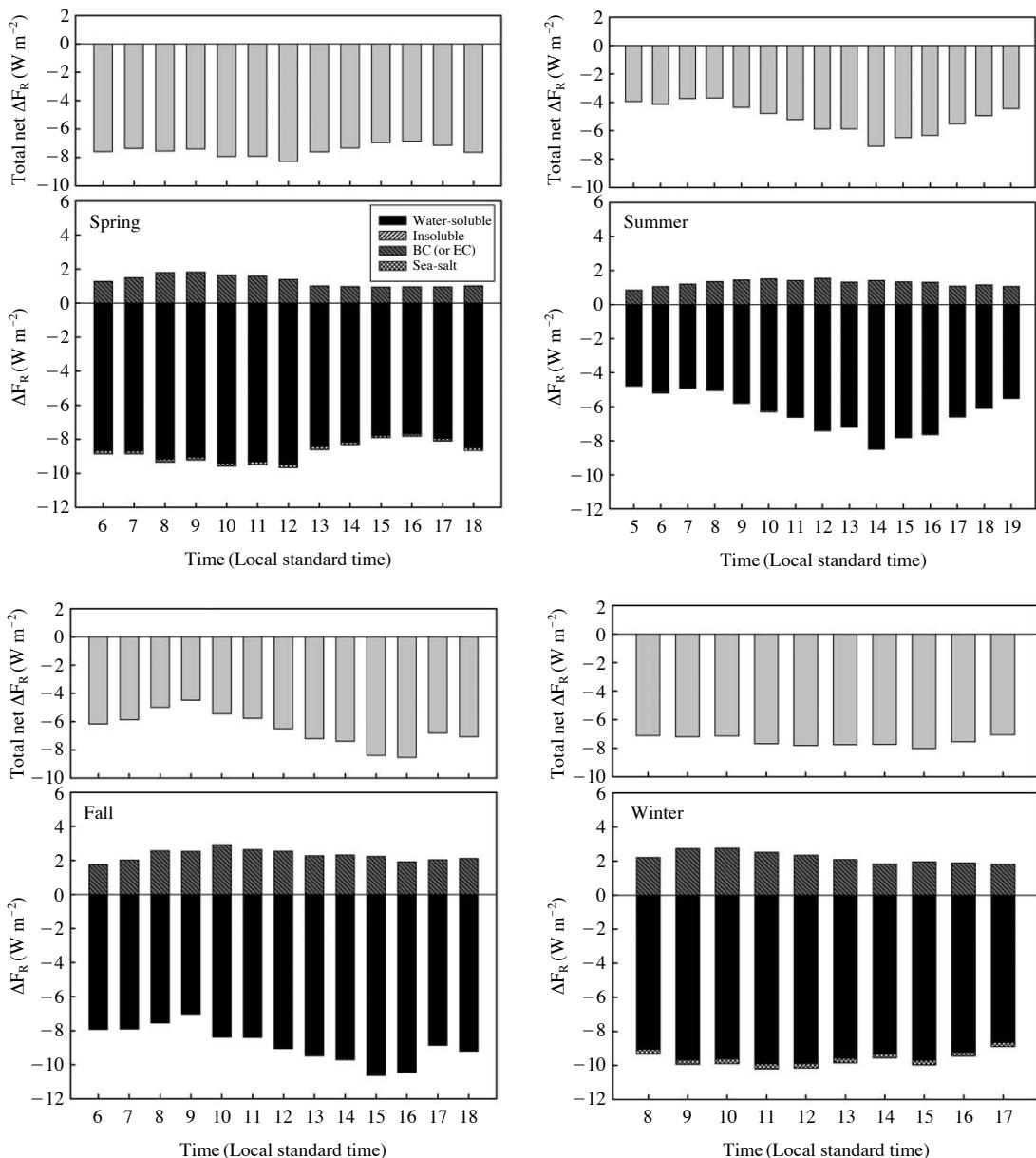


Fig. 4. Diurnal variations of radiative forcing (RF) for each aerosol chemical component and total net RF in PM_{2.5} during four seasons in 2010.

복사강제력의 일변화에서도 거의 유사한 패턴이 나타났다(그림 4). 예를 들어, 전체 성분에 대해 봄철과 겨울철에는 음의 복사강제력이 오전시간대에 약 -10 W m⁻²로 최고치를 보이다가 오후시간대에 약 -8 W m⁻²까지 감소하는 패턴을 볼 수 있다. 반면 여름철

음의 복사강제력은 14시에 약 -8.2 W m⁻²로 최고치를 나타내며 가을철에는 이른 아침부터 점차 증가하다가 15시에 최고 약 -11 W m⁻²까지 도달하였다. 그리고 각 시간대별 음의 복사강제력에 가장 크게 기여하는 성분은 water-soluble이었으며(특히 NO₃⁻, 그림

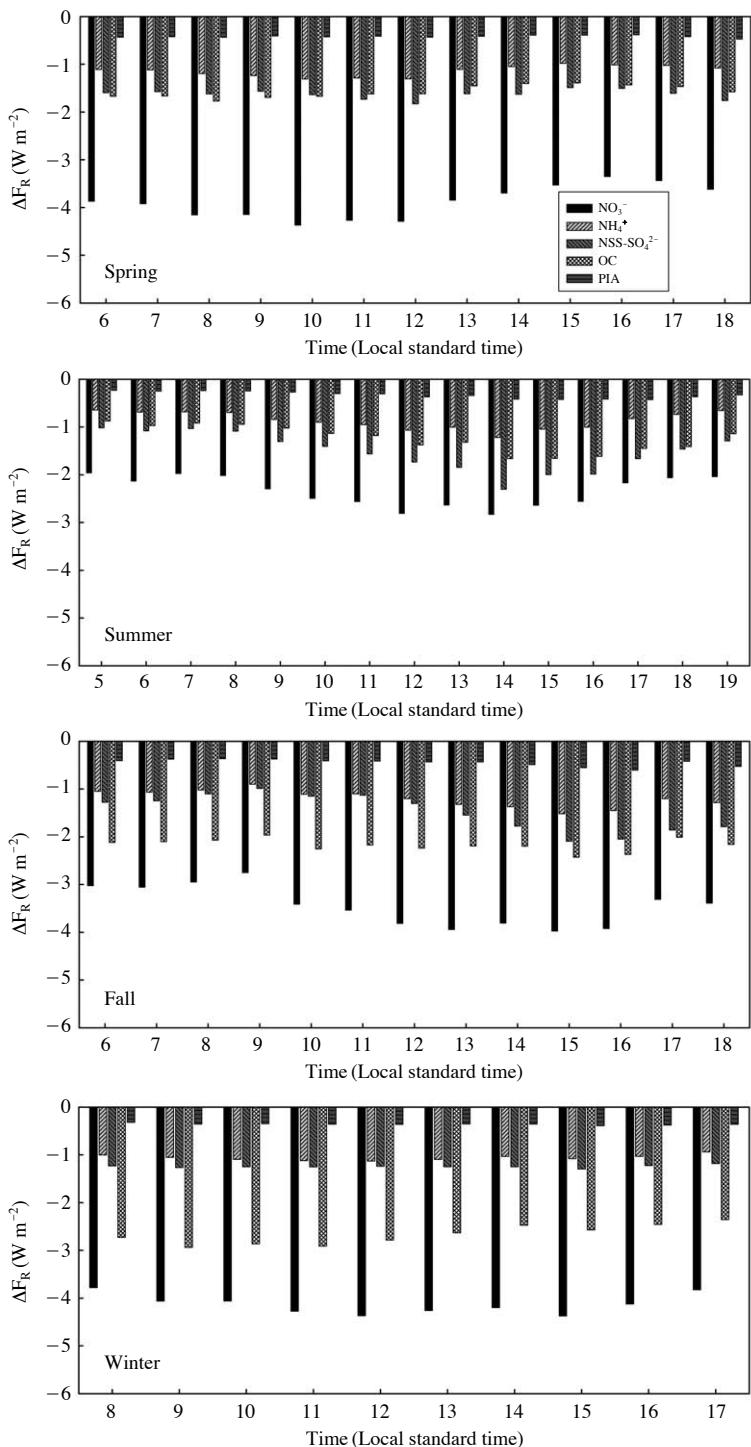


Fig. 5. Diurnal variations of radiative forcing (RF) for the water-soluble aerosol component in $\text{PM}_{2.5}$ during four seasons in 2010.

5), 나머지 성분들은 무의미한 정도로 매우 작은 기여도를 보였다. 반면, BC는 가을철 높은 농도의 영향으로 인해 양의 복사강제력이 나타났으며, 다른 시간대와 비교하여 오전시간대에 최고치가 예측되었다. 또 다른 AOD 일변화 특징으로는 봄, 여름, 겨울철의 AOD는 오전에는 점차 증가하다가 오후에는 서서히 감소하는 패턴을 보였으나, 가을철은 아침부터 시작하여 오후 3시까지 점차 증가하다가 그 이후로 감소하는 패턴이 나타났다. 이는 에어로솔 질량농도의 일변화 패턴과 유사하게 나타나(본문에 나타내지 않음) 각 성분별 에어로솔 AOD는 질량농도에 매우 유관한 것으로 볼 수 있다.

Water-soluble 성분의 시간별 AOD는 봄, 여름, 겨울철의 오전시간대(9~11시)에 정점을 나타낸 반면, 가을철에는 아침부터 점차 증가하다가 오후 3시경에 최고치에 이르렀다(그림 3). 또한 water-soluble의 AOD가 전체 성분의 AOD에 미치는 기여도가 가장 높게 나타났으며, 그 다음으로 BC, insoluble 또는 sea-salt 순서로 나타났다. 예를 들어, 전체 성분의 AOD에 미치는 water-soluble의 기여도는 약 82~85%를 차지하였다. Water-soluble 성분과 마찬가지로, BC와 OC의 AOD 또한 계절별 대부분 오전 9~10시경에 정점에 이르렀고(예외로, 여름철 OC는 14시경에 정점), 약 오후 3~4시에 최저치를 보였다(예외로, 여름철 OC는 12시경에 최소). 또한 BC 및 OC AOD의 합이 전체 성분의 AOD에 미치는 기여도는 최저 23%(봄)에서 최고 31%(겨울)까지 차지하였다. 이러한 BC AOD의 시간별 변화는 BC 복사강제력의 시간별 변화와 거의 유사한 패턴을 보였다(그림 4). 한편, BC와 OC AOD의 합이 전체 AOD에 미치는 상대적인 기여도는 오전에 최고를 보인 반면, water-soluble의 AOD는 상대적으로 오후에 최고 기여도가 나타났다. 각 에어로솔 성분별로 AOD의 최고 기여도가 다른 이유는 배출강도의 패턴 및 배출 시간 등이 서로 다르기 때문인 것으로 추정할 수 있다. 일반적으로 water-soluble 성분은 활발한 광화학 반응이 일어나는 오후시간대에 그들의 전구기체인 HNO_3 , SO_2 , NH_3 의 기체와 입자사이의 전환과정에 의해서 생성된다(Shon *et al.*, 2013). 또한 BC와 1차 OC는 주로 오전시간대에 이동오염원(예, 도로교통 배출)과 같은 인위적 오염원으로부터 많이 배출된다. 국외의 경우, 인도 산업지역의 반경 15 km 이내에 위치한 지역에서 BC의 최고 농도

및 흡수계수가 이른 오전시간대(6~9시)에 나타난 것으로 밝혀졌다(Praveen *et al.*, 2012). 국내의 경우는 이들 물질의 배출특성 차이로 인해 인도와 다소 시간적 차이가 나타난 것으로 사료된다.

4. 요약 및 결론

본 연구에서는 2010년 서울 광진구 구의동에서 측정한 시간별 에어로솔 자료와 광학모델(OPAC)을 이용하여 도시 에어로솔의 화학성분별 광학특성(흡수, 산란, 소산계수, AOD 등)과 직접 복사강제력의 시간변화(월별 및 일별 등)를 살펴보았다. 연구목적을 위하여 도시 에어로솔을 4가지 성분(water-soluble, insoluble, BC, sea-salt)으로 분류하여 분석하였다. 전반적으로 4가지 에어로솔 성분 중에서 water-soluble의 광학특성(흡수, 산란, 소산계수, AOD)이 가장 큰 기여도를 보였다(BC의 흡수계수를 제외하고는). 에어로솔 성분별 광학특성의 변화는 일반적으로 각 성분별 질량농도의 변화에 의해서 결정되므로 4가지 성분 중에서 water-soluble의 농도가 높은 봄철과 겨울철에 광학특성이 가장 탁월하였으며(특히 봄철은 4월, 겨울철은 1월), BC는 높은 농도를 나타낸 가을철에 상대적으로 높은 값을 보였다(특히 9월). 이외에도, BC 흡수계수는 water-soluble 성분에 비해 상대적으로 높게(약 1.9~3.6배) 추정되었다. 특히 도시환경에서 주요 인위적 성분인 BC와 OC의 AOD 합은 전체 성분 AOD의 약 23%(봄)에서 31%(겨울)까지 기여하는 것을 알 수 있었다. 각 성분별 AOD의 일변화는 계절 대부분 오전시간대에 높고 늦은 오후시간대에 낮은 분포를 보였다. 그러나 여름과 가을철은 오전시간대는 물론 오후시간대의 14시와 15시에도 각각 높게 추정되었다. 또 다른 AOD 일변화 특징으로 가을철은 이른 오전부터 시작하여 15시까지 점차 증가하다가 그 이후로 감소하는 패턴을 보였으며, 나머지 계절(봄, 여름, 겨울)은 오전에 점차 증가하다가 오후에 서서히 감소하는 패턴이 나타났는데, 이는 에어로솔 질량농도의 일변화에 기인한 것으로 추정된다.

도시 에어로솔 화학성분별 복사효과에 미치는 기여도는 성분별 광학특성의 변화 패턴과 유사하였다. 즉, 전체 성분별 복사효과는 1월에 가장 큰 음의 복사강제력이 나타났고 9월에 가장 작게 나타났다. 또

한 성분별 광학특성과 마찬가지로 전체 성분 중에서 water-soluble의 복사효과가 가장 큰 기여도를 차지하였으며, 그 중에서 NO_3^- 의 음의 복사강제력이 가장 크게 기여한 것으로 나타났다. 한편, BC의 복사효과는 모든 성분별 월변화 분포와 달리 11월에 가장 큰 양의 복사강제력을 보였으며, 8월에 가장 낮게 나타났다. 이것은 가을철에 일사량 및 기온이 다소 낮더라도 BC의 질량농도가 다른 계절에 비해 월등히 높았기 때문인 것으로 추정된다. 도시 인위적 에어로솔의 대표적 성분인 BC의 복사강제력은 전체 순(음의) 복사강제력의 최소 17%(봄)에서 최대 약 36%(가을) 까지 상쇄시키는 것으로 추정되었다. 또한 에어로솔 각 성분별 복사효과의 일변화도 성분별 광학특성(예, AOD)의 변화 패턴과 유사하였다. 전체 성분에 대해 봄철과 겨울철에는 음의 복사강제력이 오전시간대에 최고치를 보이다가 오후시간대에 다소 감소하는 경향이 나타났다. 반면 여름철 음의 복사강제력은 14시에 최고치를 나타내며 가을철에는 이를 아침부터 점차 증가하다가 15시에 정점에 도달하였다. 그리고 각 시간대별 음의 복사강제력에 가장 크게 기여하는 성분은 water-soluble이었으며(특히 NO_3^-), 나머지 성분들은 매우 작게 나타났다.

본 연구는 기존의 에어로솔 자료보다 훨씬 고해상도인 시간별 에어로솔 자료를 이용하여 도시 에어로솔의 성분별 광학특성과 복사강제력의 시간별 변화를 정량적으로 분석한 것에 큰 의의가 있다. 그러나 여전히 지표에서 샘플링한 에어로솔은 대기 상층의 에어로솔을 정확하게 포함하지 못하기 때문에 향후 풍부하고 다양한 측정·분석자료(에어로솔 연직분포 등)를 확보한다면 보다 정확한 에어로솔 성분별 광학특성 및 복사효과를 산출할 것으로 기대된다.

감사의 글

이 논문은 2013년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업임(NRF-2013R1A1A4A01012837). 또한 이 논문은 2011년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업임(2011-0014533).

References

- Albrecht, B.A. (1989) Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness, *Science*, 245, 1227-1230.
- Bae, M.S. (2011) Seasonal estimation of organic mass to organic carbon (OM/OC ratio), *Proceedings of 49th meeting of Korean Society for Atmospheric Environment*.
- Charlson, R.J., S.E. Schwartz, J.M. Hales, R.D. Cess, J.A. Coakley, Jr., J.E. Hansen, and D.J. Hofmann (1992) Climate forcing by anthropogenic aerosols, *Science*, 255, 423-430.
- Chubarova, N.Y., M.A. Sviridenkov, A. Smirnov, and B.N. Holben (2011) Assessments of urban aerosol pollution in Moscow and its radiative effects, *Atmospheric Measurement Techniques*, 4, 367-378.
- Chylek, P. and J. Wong (1995) Effect of absorbing aerosols on global radiative budget, *Geophysical Research Letters*, 22, 929-931.
- Heo, J.-B., P.K. Hopke, and S.-M. Yi (2009) Source apportionment of $\text{PM}_{2.5}$ in Seoul, Korea, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 4957-4971.
- Hess, M., P. Koepke, and I. Schult (1998) Optical properties of aerosols and clouds: the software package OPAC, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 79(5), 831-844.
- Huebert, B.J., T. Bates, P.B. Russell, G. Shi, Y.J. Kim, K. Kawamura, G. Carmichael, and T. Nakajima (2003) An overview of ACE-Asia: Strategies for quantifying the relationship between Asian aerosols and their climatic impacts, *Journal of Geophysical Research*, 108, D23, 8633, doi:10.1029/2003JD003550.
- IPCC (2007) *IPCC Fourth Assessment Report: Climate Change 2007 - The Physical Science Basis*, Cambridge University Press, Cambridge, UK and New York, NY, USA.
- Kim, B.-G., Y.-J. Kim, and S.-H. Eun (2008) An analysis of aerosol optical properties around Korea using AERONET, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 24(6), 629-640. (in Korean with English abstract)
- Kim, J., B.-C. Choi, A. Jefferson, and K.-C. Moon (2003) Aerosol light scattering and absorption measured at Goseong, Korea in Spring of 2001, *Journal of Korean Meteorological Society*, 39(2), 239-250. (in Korean with English abstract)
- Kim, J., S.-C. Yoon, S.-W. Kim, F. Brechtel, A. Jefferson, E.G. Dutton, K.N. Bower, S. Cliff, and J.J. Schauer (2006)

- Chemical apportionment of shortwave direct aerosol radiative forcing at the Gosan super-site, Korea during ACE-Asia, *Atmospheric Environment*, 40, 6718-6729.
- Kim, N.K., Y.P. Kim, and C.-H. Kang (2011) Long-term trend of aerosol composition and direct radiative forcing due to aerosols over Gosan: TSP, PM₁₀, and PM_{2.5} data between 1992 and 2008, *Atmospheric Environment*, 45, 6107-6115.
- 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, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 24(4), 470-482. (in Korean with English abstract)
- Lee, S., Y.S. Ghim, S.-W. Kim, and S.-C. Yoon (2009) Seasonal characteristics of chemically apportioned optical properties at Seoul and Gosan, Korea, *Atmospheric Environment*, 43, 1320-1328.
- Moon, K.J., S.M. Park, J.S. Park, I.H. Song, S.K. Jang, J.C. Kim, and S.J. Lee (2011) Chemical characteristics and source apportionment of PM_{2.5} in Seoul metropolitan area in 2010, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 27, 711-722. (in Korean with English abstract)
- Nakajima, T., S.-C. Yoon, V. Ramanathan, G.-Y. Shi, T. Takemura, A. Higurashi, T. Takemura, K. Aoki, B.-J. Sohn, S.-W. Kim, H. Tsuruta, N. Sugimoto, A. Shimizu, H. Tanimoto, Y. Sawa, N.-H. Lin, C.-T. Lee, D. Goto, and N. Schutgens (2007) Overview of the atmospheric brown cloud east Asian regional experiment 2005 and a study of the aerosol direct radiative forcing in east Asia, *Journal of Geophysical Research*, 112, D24S91, doi:10.1029/2007JD009009.
- Park, S.S. and Y.J. Kim (2004) PM_{2.5} particles and size-segregated ionic species measured during fall season in three urban sites in Korea, *Atmospheric Environment*, 38, 1459-1471.
- Penner, J.E., R.E. Dickinson, and C.A. O'Neill (1992) Effects of aerosol from biomass burning on the global radiation budget, *Science*, 256, 1432-1434.
- Pilson, M.E.Q. (1998). An Introduction to the Chemistry of the Sea. Prentice Hall, New Jersey. 431 pp.
- Pöschl, U. (2005) Atmospheric Aerosols: composition, transformation, climate and health effects, *Angewandte Chemie International Edition*, 44, 7520-7540.
- Praveen, P.S., T. Ahmed, A. Kar, I.H. Rehman, and V. Ramanathan (2012) Link between local scale BC emissions in the Indo-Ganggetic Plains and large scale atmospheric solar absorption, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12, 1173-1187.
- Quinn, P.K., D.J. Coffman, T.S. Bates, E.J. Welton, D.S. Covert, T.L. Miller, J.E. Johnson, S. Maria, L. Russell, R. Arimoto, C.M. Carrico, M.J. Rood, and J. Anderson (2004) Aerosol optical properties measured on board the Ronald H. Brown during ACE-Asia as a function of aerosol chemical composition and source region, *Journal of Geophysical Research*, 109, D19S01, doi:10.1029/2003JD004010.
- Ramachandran, S. and S. Kedia (2010) Black carbon aerosols over an urban region: Radiative forcing and climate impact, *Journal of Geophysical Research*, 115, D10202, doi:10.1029/2009JD013560.
- Rosenfeld, D. (2000) Suppression of rain and snow by urban and industrial air pollution, *Science*, 287, 1793-1796.
- Sagan, C. and J. Pollack (1967) Anisotropic nonconservative scattering and the clouds of Venus, *Journal of Geophysical Research*, 72, 469-477.
- Seinfeld, J.H. and S.N. Pandis (2006) *Atmospheric Chemistry and Physics - From Air Pollution to Climate Change*. 2nd ed. New York: John Wiley & Sons.
- Shon, Z.-H., K.-H. Kim, S.-K. Song, Y.-Z. Chae, C.G. Park, and K. Jung (2012a) Fractionation of secondary organic carbon in aerosol in relation to the traffic-borne emission of semivolatile organic compounds, *Atmospheric Environment*, 50, 225-233.
- Shon, Z.-H., K.-H. Kim, S.-K. Song, K. Jung, N.J. Kim, and J.-B. Lee (2012b) Relationship between water-soluble ions in PM_{2.5} and their precursor gases in Seoul megacity, *Atmospheric Environment*, 59, 540-550.
- Shon, Z.-H., S. Ghosh, K.-H. Kim, S.-K. Song, K. Jung, and N.-J. Kim (2013) Analysis of water-soluble ions and their precursor gases over diurnal cycle, *Atmospheric Research*, 132-133, 309-321.
- Singh, S., K. Soni, T. Bano, R.S. Ranwar, S. Nath, and B.C. Arya (2010) Clear-sky direct aerosol radiative forcing variations over mega-city Delhi, *Annales Geophysicae*, 28, 1157-1166.
- Taha, H. (1997) Urban climates and heat island, albedo, evapotranspiration, and anthropogenic heat, *Energy and Buildings*, 25, 99-103.
- Turpin, B.J. and H.-J. Lim (2001) Species contributions to PM_{2.5} mass concentrations: Revisiting common assumptions for estimating organic mass, *Aerosol Science and Technology*, 35, 602-610.
- Twomey, S. (1974) Pollution and the planetary albedo, *Atmospheric Environment*, 8, 1251-1256.

- Yoon, S.-C., J.-G. Won, A.H. Omar, S.-W. Kim, and B.-J. Sohn (2005) Estimation of the radiative forcing by key aerosol types in worldwide locations using a column model and AERONET data, *Atmospheric Environment*, 39, 6620-6630.
- Yu, H., Y.J. Kaufman, M. Chin, G. Feingold, L.A. Remer, T.L. Anderson, Y. Balkanski, N. Bellouin, O. Boucher, S. Christopher, P. DeCola, R. Kahn, D. Koch, N. Loeb, M.S. Reddy, M. Schulz, T. Takemura, and M. Zhou (2006) A review of measurement-based assessments of the aerosol direct radiative effect and forcing, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 613-666.
- Zhang, Q., J.L. Jimenez, M.R. Canagaratna, J.D. Allan, H. Coe, I. Ulbrich, M.R. Alfarra, A. Takami, A.M. Middlebrook, Y.L. Sun, K. Dzepina, E. Dunlea, K. Docherty, P.F. DeCarlo, D. Salcedo, T. Onasch, J.T. Jayne, T. Miyoshi, A. Shimono, S. Hatakeyama, N. Takegawa, Y. Kondo, J. Schneider, F. Drewnick, S. Borrmann, S. Weimer, K. Demerjian, P. Williams, K. Bower, R. Bahreini, L. Cottrell, R.J. Griffin, J. Rauhala, J.Y. Sun, Y.M. Zhang, and D.R. Worsnop (2007) Ubiquity and dominance of oxygenated species in organic aerosols in anthropogenically-influenced Northern Hemisphere midlatitudes, *Geophysical Research Letters*, 34, L13801, doi:10.1029/2007GL029979.