

SP2(Single Particle Soot Photometer)를 이용한 제주도 5월 Black Carbon 특성

Characteristics of Black Carbon Particles in Ambient Air Using a Single Particle Soot Photometer(SP2) in May 2013, Jeju, Korea

오 준^{1),4)} · 박진수^{1),*} · 이상욱¹⁾ · 안준영¹⁾ · 최진수¹⁾ · 이상덕¹⁾ · 이용환¹⁾
김현재¹⁾ · 홍유덕¹⁾ · 홍지형¹⁾ · 김정호²⁾ · 김상우³⁾ · 이강웅⁴⁾

¹⁾국립환경과학원 기후대기연구부 대기환경연구과, ²⁾에이피엠 엔지니어링(주)

³⁾서울대학교 지구환경연구부, ⁴⁾한국외국어대학교 환경학과

(2015년 3월 26일 접수, 2015년 5월 25일 수정, 2015년 6월 2일 채택)

Jun Oh^{1),4)}, Jinsoo Park^{1),*}, Sanguk Lee¹⁾, Joonyoung Ahn¹⁾, Jinsoo Choi¹⁾,
Sangdeok Lee¹⁾, Yonghwan Lee¹⁾, Hyunjae Kim¹⁾, Youdeog Hong¹⁾, Jihyung Hong¹⁾,
Jeongho Kim²⁾, SangWoo Kim³⁾, Gang-Woong Lee⁴⁾

¹⁾*Department of Air Quality Research, Climate and Air Quality Research Division,
National Institute of Environmental Research*

²⁾*APM Engineering Co., Ltd.*

³⁾*Department of Earth and Environmental Science, Seoul University*

⁴⁾*Department of Environmental Science, Hankuk University of Foreign Studies*

(Received 26 March 2015, revised 25 May 2015, accepted 2 June 2015)

Abstract

Single particle soot photometer (SP2) is an advanced instrument capable of real-time measurement of concentration, coating thickness, and size distribution of individual BC particle using laser-induced incandescence. So far, there have been insufficient studies examining the real-time characteristics of BC in Korea. In this study, we examined temporal variations in BC concentration and mass size distribution of BC in volume equivalence diameter at a background site of Aewol, Jeju in May. Average concentration and mass median diameter (MMD) of BC particles measured during the study period (06 ~ 16 May 2013) were $0.69 \pm 0.48 \mu\text{g}/\text{m}^3$ and $196 \pm 17 \text{ nm}$, respectively. The BC concentration measured in Aewol was very similar to that observed in the spring of 2012 in Baengnyeong island, and showed diurnal profiles similar to those in other background areas. MMD of BC ranged from 172 to 222 nm. It was found that the mass size distribution of BC varied depending on the location (ground-based), season, types of air masses, and altitude (aircraft-based).

Key words : SP2, Single particle soot photometer, BC, Volume equivalent diameter, MMD

*Corresponding author.

Tel : +82-(0)32-560-7272, E-mail : airchemi@korea.kr

1. 서 론

블랙카본 (Black Carbon, BC)은 화석연료, 생체소각 등의 연소과정에서 불완전연소로 발생하며, 대기 중에서 광흡수 및 소멸작용을 통해 지구 알베도에 영향을 미치고 시정감소를 초래한다 (Gebhart *et al.*, 2001; Myhre *et al.*, 2001; Horvath, 1993; Adams *et al.*, 1990; Crutzen and Andreae, 1990). 동아시아지역에서의 관측과 모델을 통한 BC 연구 결과들은 잦은 홍수와 가뭄 증가에 대한 근본적인 대기오염 원인물질로 BC를 고려하고 있다 (Lau and Kim, 2006; Menon *et al.*, 2002).

BC는 배출량 측면에서 지역별로 차이가 크게 나타나는데 개발도상국에서 BC 배출량이 가장 많고, 특히 동아시아 지역에서의 배출량이 가장 큰 것으로 나타났다 (Bond *et al.*, 2007). 또한 중국의 급격한 경제성장으로 배출량이 지속적으로 증가함에 따라 풍하지역에 위치한 우리나라는 중국에서 배출된 대기오염물질의 영향을 받고 있다 (Lin *et al.*, 2008; Carmichael *et al.*, 1996).

국립환경과학원의 PM_{2.5} 측정 결과 중 백령도에서의 PM_{2.5} 주요성분은 황산염, 질산염 및 탄소성분이며, 그 중 탄소성분이 전체 PM_{2.5} 질량의 30% 이상을 차지하는 것으로 보고하였고 (NIER 2011; NIER 2010; NIER 2009), 기류가 중국 내륙을 거쳐 유입된 경우에 농도가 증가하는 것으로 보고하고 있다. 배경지역에서 BC 농도는 우리나라에서 배출되는 BC 농도의 수준을 비교 고찰할 뿐만 아니라 기류에 따라 유입 및 이동되어 오는 BC 영향을 파악하기 위해 매우 중요하다.

BC 특성에 관한 연구는 대기 중 BC에어로졸 입자가 대기 복사 특성에 미치는 영향과 대기 중 입자의 거동을 이해하는 데 매우 중요하다고 말할 수 있다. BC를 정량화하는 방법에는 여러 측정 방법들이 개발되어 사용 중에 있으며 대표적으로 입자 채취 전·후의 빛의 감쇄 차이를 이용해 BC 입자의 질량을 측정하는 광 흡수법과 NIOSH5040 프로토콜을 이용한 열 광학적 투과법 (Thermal optical transmission)이 있다. 하지만 이러한 측정 방법은 채취 전후의 필터 빛 감쇠 차이, 고온을 이용하여 열-탈착시켜 측정하는 방법으로 필터에 채취된 벌크형태의 BC 농도에 대한 정보만 제공할 뿐 입경분포, 단일 BC 물질의 코팅두께 등의 BC의 최신

정보를 실시간으로 측정하는 것은 어렵다 (Gao *et al.*, 2007; Schwarz *et al.*, 2006).

따라서 본 연구에서는 실시간 단일입자 단위의 BC를 측정할 수 있는 Single Particle Soot Photometer (SP2, Droplet Measurement Technologies (DMT), Boulder, USA)를 이용하여 우리나라 배경대기 측정 장소인 제주도에서 2013년 5월에 BC 입자의 농도 및 입경분포 특성을 조사하였다.

2. 연구 방법

2.1 측정 장소 및 측정 기간

SP2를 이용한 단일입자 중 BC 측정은 제주도 대기 오염 집중측정소에서 2013년 5월 6일부터 5월 16일까지 11일간 이루어졌으며 대기시료는 PM_{2.5} 입자 분리기 (Sharp Cut Cyclone SCC-2.654, BGI Inc., USA)를 통해 유입되도록 하였다. 측정 지점은 제주도 중-산간 지대 (33°20'48"N, 126°23'17"E, 600 m)에 있으며 한반도 내륙에서 남쪽으로 100 km, 중국 (상하이)에서 남동쪽으로 500 km, 대만으로부터 북동쪽으로 약 1,000 km 거리에 위치해 있다. 또한 대기오염 집중측정소는 해발 600 m에 위치하고 있어 대기경계층 상부를 통해 이동되는 대기오염물질들의 거동을 관찰할 수 있는 장점이 있다 (그림 1). SP2 외에도 베타선 흡수법을 이용한 PM_{2.5} 질량농도 (BAM1020, Met-One, USA)와 7채널의 Aethalometer (AE-31, Magee Scientific Inc.)를 이용하여 PM_{2.5} 중의 BC 농도를 동시에 측정하였다.

2.2 SP2를 이용한 단일입자 중 BC 측정 및 분석 방법

2.2.1 측정 이론 및 측정 방법

BC 입자가 끓는점 이상의 고온에서 휘발할 때 발생하는 백열 (Incandescence) 에너지가 BC 농도와 비례하는 특성을 이용하여 측정하는 방법으로 (Moteki *et al.*, 2007; Schwartz *et al.*, 2006; Stephens *et al.*, 2003), 그 구성은 아래 그림 2와 같다.

Diode pump (Unique-Mode AG, Jena, Germany)에서 발생된 880 nm 파장의 레이저는 광섬유를 통해 Nd:YAG (Neodymium:Yttrium Aluminum Garnet) crystal

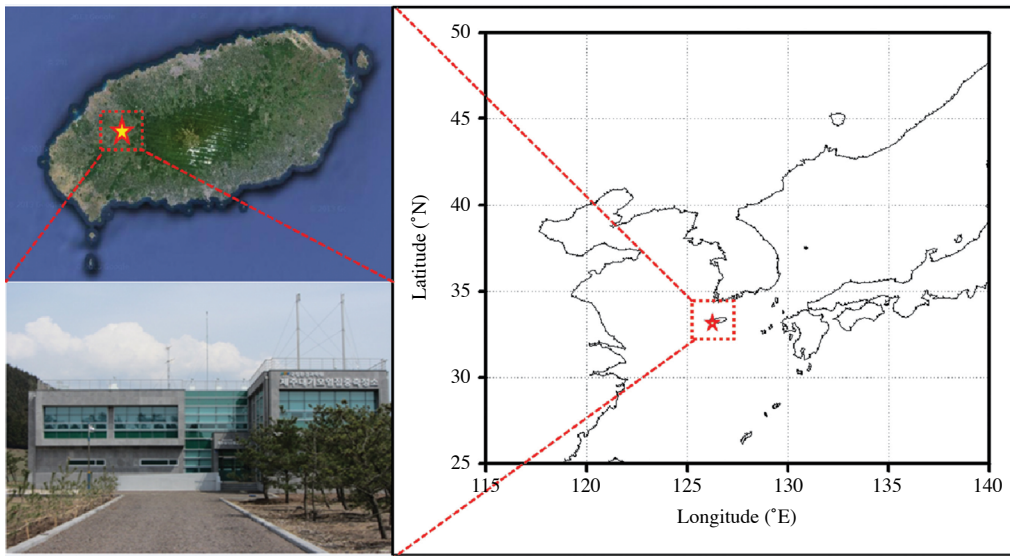


Fig. 1. Description of Jeju atmospheric monitoring station, Korea.

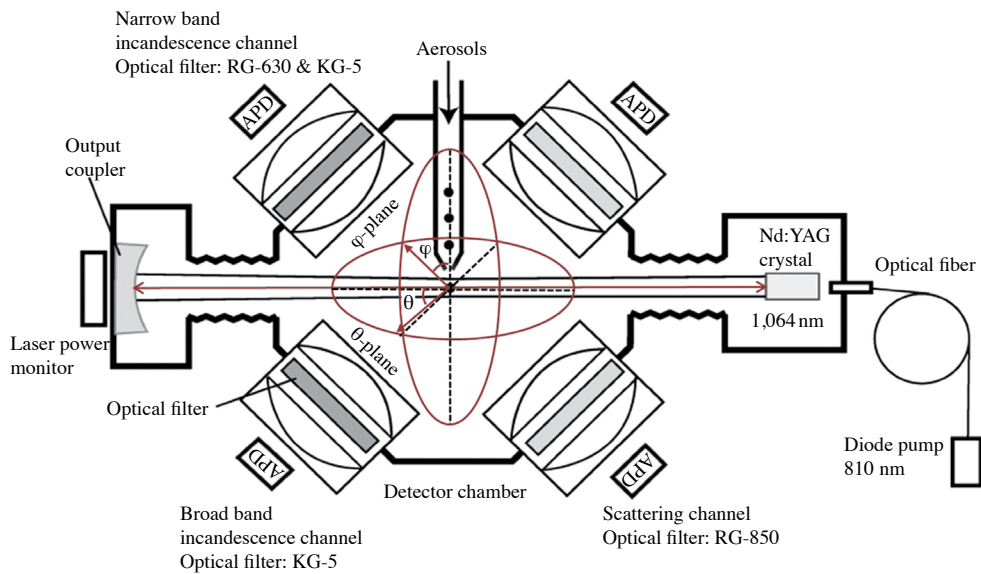


Fig. 2. Schematic diagram of the SP2 optical head (Moteki *et al.*, 2007; Stephens *et al.*, 2003).

을 거쳐 1064 nm로 증폭되어 광학 챔버를 가로질러 Output coupler에서 99.9999% 이상 반사된다. 반사경에서 레이저의 15 ppm이 투과되고 투과된 레이저는 Laser power monitor에서 측정하여 레이저를 일정하게

유지할 수 있도록 다이오드의 출력을 제어한다. 레이저는 TEM ∞ 모드이며, 레이저 강도는 가우시안 분포특성을 나타낸다 (Moteki *et al.*, 2007; Schwartz *et al.*, 2006; Stephens *et al.*, 2003). 그림 2에서와 같이 레이저가 가

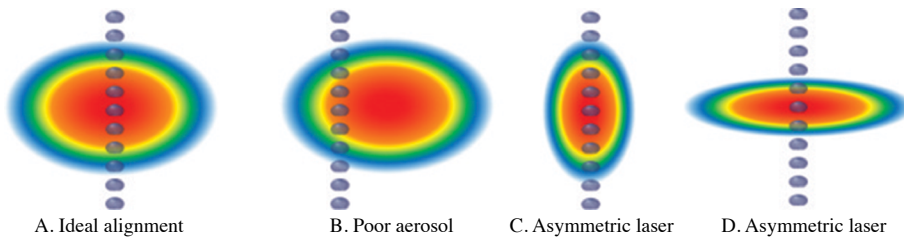


Fig. 3. Fundamental concepts of laser alignment.

로지르는 광학 챔버에는 수직으로 입사되는 에어로졸 유입구가 있어, 챔버로 유입되는 에어로졸은 레이저의 정중앙에 수직으로 입사하게 된다. 입사점을 중심으로 동일한 반경에 총 4개의 검출기가 위치하며, 두 개는 입자의 산란광을 측정하고 (Scattering channel), 다른 두 개는 서로 다른 파장영역의 BC의 백열 에너지 (Broad band, Narrow band)를 측정한다.

레이저 챔버에 유입된 에어로졸이 레이저와 만나 산란 및 휘발되어 발생한 산란광과 백열광은 4개의 검출기를 통해 5 MHz (0.2 μ s)의 미소시간 단위로 측정할 수 있어 연속적으로 유입되는 입자들에 대하여 단일입자에 대한 정보를 획득할 수 있다. BC의 백열광을 측정하는 두 개의 검출기는 각각 350 nm ~ 880 nm (Schott KG-5)와 630 nm ~ 800 nm (Schott KG-5 and RG630) 범위의 파장영역만을 통과하도록 광-필터가 장착되어 있으며, 산란광은 850 nm보다 작은 파장으로 산란되는 빛만 통과하여 검출하도록 광-필터 (Schott RG-850)가 장착되어 있다. 또한 검출기의 위치는 고정되어 있으며 레이저와 접촉한 입자의 산란과 백열 에너지를 정확히 검출할 수 있도록 각각 레이저와 이루는 수평각 범위 ($15^\circ < \theta < 75^\circ$)와 에어로졸 유입부와 이루는 수직각 범위 ($60^\circ < \varphi < 120^\circ$)를 고려하여, 검출기 고정각도 ($\Delta\Omega$)는 다음의 식 (1)로 결정한다.

$$\Delta\Omega = \int_{\Delta\varphi} d\varphi \int_{\Delta\theta} \sin\theta d\theta \quad (1)$$

BC를 포함한 입자가 레이저 빔 속으로 유입되면 입자는 끓는점까지 에너지를 흡수하고 가열되며, 끓는점 이상의 에너지를 받으면 BC는 근적외선 (Near infra-red) 영역에서 백열 에너지를 방출한다 (Schwarz *et al.*, 2008b). 일반적으로 BC에 코팅된 입자들은 상대적으로 BC 보다 끓는점이 낮기 때문에 산란이 먼저 진행되

고, 응결핵으로 작용한 BC 입자는 끓는점 온도 (3,700 ~ 4,300 K, 4,230 ~ 4,325 K)에 도달할 때까지 계속 에너지를 흡수하여 상변환이 일어나 레이저로부터 BC에 흡수된 에너지는 측정 가능한 가시광선 파장 범위의 에너지를 방출한다 (Stephens *et al.*, 2003).

입자가 레이저와 같은 광 에너지를 흡수하는 경우 입자 고유의 파장에서 산란반응이나 백열반응이 진행되는데, 입자의 성분에 따른 끓는점 차이는 산란과 백열반응에 시간차를 나타내므로, 이 시간차를 이용하여 측정된 입자들 중에서 BC 입자를 분류할 수 있다 (Schwartz *et al.*, 2008b; Moteki *et al.*, 2007; Schwartz *et al.*, 2006; Stephens *et al.*, 2003).

SP2에서 측정되는 산란반응의 온도와, BC 백열광의 세기 검출법은 에너지 균형 방정식으로 계산할 수 있으며, 이와 관련된 정보들은 선행된 연구 결과들에 자세히 기술되어 있다 (Stephens *et al.*, 2003; Melton L.A., 1984; Eckbreth A.C., 1977).

2.3 SP2 교정

단일입자에 대한 측정분석은 우선적으로 레이저의 경로에 대한 정확한 정렬과 튜닝작업이 선행된 후, 입자에 대한 산란강도와 백열강도에 대한 교정이 필요하다. 여기에서는 레이저 정렬과 입자의 산란 및 백열강도 교정으로 구분하여 설명하였다.

2.3.1 레이저 정렬

레이저 경로는 수직으로 입사되는 입자가 레이저의 정중앙에 위치하도록 정렬되어야 하며, 레이저의 단면은 원형을 가지면서 에너지 분포강도는 이상적인 가우시안 분포를 나타내어야 한다. 위의 그림 3에는 레이저 정렬의 종류를 나타내었다. 레이저 분포 단면적은 A와 같이 원형이어야 하며, 입자는 레이저의 정중앙에 위치

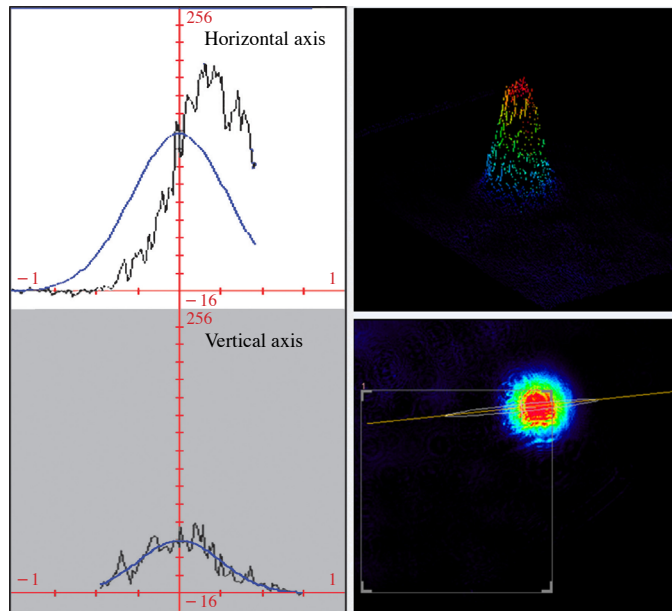


Fig. 4. Laser image after the reflector tuning.

하여야 한다.

본 연구에서는 레이저 정렬작업을 위한 광학툴로 Laser Alignment Toolkit(KIT0033, DMT, USA)을 이용하였다. 레이저 챔버를 분리한 후에 이것을 광학툴에 설치하였으며, 광학툴에서 발생시킨 광원을 Nd:YAG와 반사경에 일직선으로 입사시켜 그 중심에 정확히 일직선으로 정렬되도록 Nd:YAG와 반사경에 각각 부착된 x, y 조정 축을 미세하게 조절하였다. Nd:YAG와 반사경이 일직선으로 정렬된 후 레이저 단면과 강도를 이상적인 가우시안 분포로 만들기 위해서 레이저 챔버를 광학툴에서 분리하여 SP2에 장착하였다. 레이저 단면을 촬영하기 위해서 반사경 후단에 V-beam 스캔 카메라를 설치한 후 레이저 단면을 육안 확인하였으며, 이상적인 단면을 나타내는 지점으로 반사경에 부착된 x, y 조정 축을 다시 미세하게 수정한 후 위치를 고정하였다. 그림 4는 V-beam 스캔 카메라로 반사경 후단에서 확인한 고정된 레이저 단면의 이미지와 이에 대하여 x, y축으로 수치화한 프로파일 그래프이다.

레이저 정렬 이후 유입단에서 유입되는 입자가 레이저의 정중앙에 위치하도록 유입단과 레이저 경로를 일치시켜 주어야 하며, 이것은 입자를 주입하는 동안 레

이저 챔버의 수평축을 μm 단위로 이동시켜 최적의 산란신호가 검출되는 곳으로 레이저 챔버를 고정함으로써 이루어진다. 여기에서 이용한 입자발생시스템의 구성을 그림 5에 나타내었고, 입자의 흐름 계통은 다음과 같다. (1) 입자분무발생장치 (Atomizer Aerosol Generator ATM223, TOPAS, Germany)에서 발생된 입자는 실리카겔이 충전된 diffusion dryer를 통과하면서 수분이 제거되고, 과량의 흐름은 HEPA filter를 통해 배출된다. 그리고 입자는 (2) 제어부와, (3) 입자중화장치 (3087 Aerosol Neutralizer, TSI, USA), 그리고 (4) 미분형전기 이동도분석기 (3080 Electrostatic Classifier, TSI, USA)를 통과하면서 사용자가 원하는 입자크기를 제어부(2)에서 설정하면 입자중화장치에서 입자는 중화된 후 미분형전기이동도분석기를 통해 해당되는 입자만 분리되어 나온다. 분리된 입자는 Y자형 관을 통해 한쪽은 (5) 응축입자계수기 (3772 Condensation Particle Counter, TSI, USA)를 통해 실시간으로 입자를 계수하게 되고, 동시에 다른 한쪽은 SP2 장비로 유입시켜 입자의 크기 및 성분에 대한 교정 작업을 수행하였다.

유입 입자는 269 nm의 표준입자 (PSL, Poly Latex Styrene, NIST, USA)를 이용하였으며 입자의 개수는

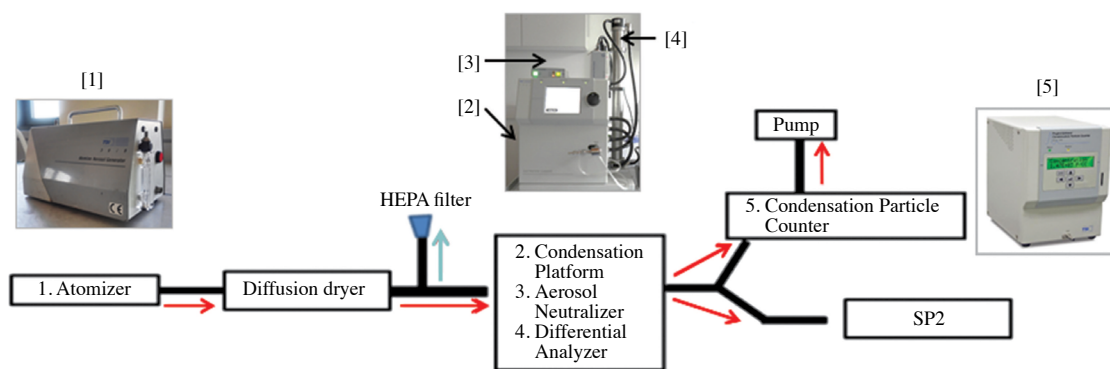


Fig. 5. Calibration system of particulate matter.

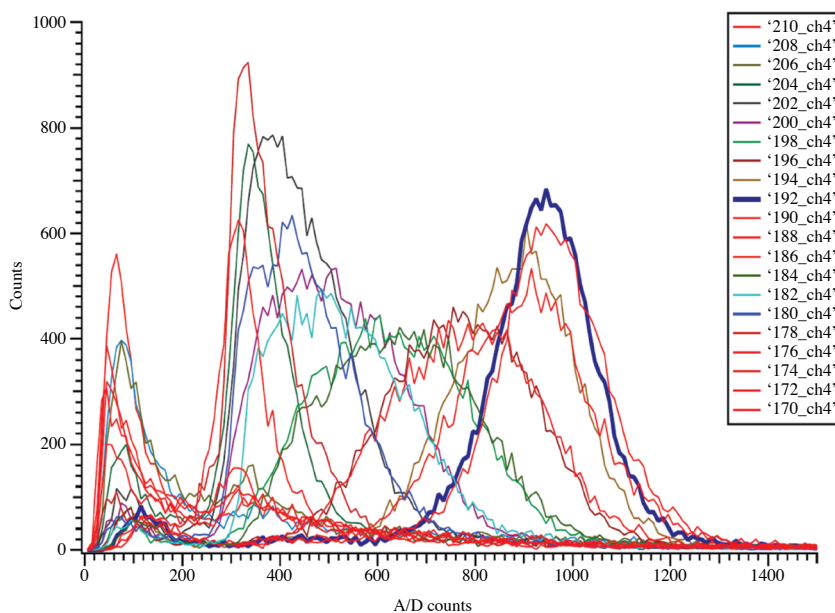


Fig. 6. Laser chamber slide alignment.

약 200 N/cc 로 유지하였다. 수직으로 입사된 269 nm 표준입자가 레이저를 통과할 때 레이저 챔버의 수평 이동범위인 $0.170\ \mu\text{m} \sim 0.210\ \mu\text{m}$ 에서 $0.002\ \mu\text{m}$ 간격으로 이동시키면서 각각의 구간에서 20,000개씩 측정하였다.

그림 6에는 각각의 구간에서 측정된 입자신호의 강도(A/D)를 x축, 그리고 입자의 개수(COUNTS)를 y축에 나타낸 그래프이다. 각각의 구간에서 측정된 20,000개의 입자신호들은 입자가 레이저 정중앙을 통과하는

이상적인 조건에서 분포곡선은 이상적인 가우시안 분포를 취하여야 하며, 신호의 세기는 낮은 쪽보다 높은 쪽에 위치하여야 한다.

레이저 챔버의 구간별 이동에 따라 측정된 신호 곡선은 그림 6에서와 같이 챔버의 이동에 따라 신호 곡선 또한 그래프의 왼쪽에서 오른쪽으로 이동하여 나타났고, 챔버 위치 $0.192\ \mu\text{m}$ 에서 신호의 세기가 가장 높았으며, 이 구간을 지나면서는 오른쪽에서 다시 왼쪽방향으로 신호 곡선이 이동하였다. 이것은 그림 3의 A와

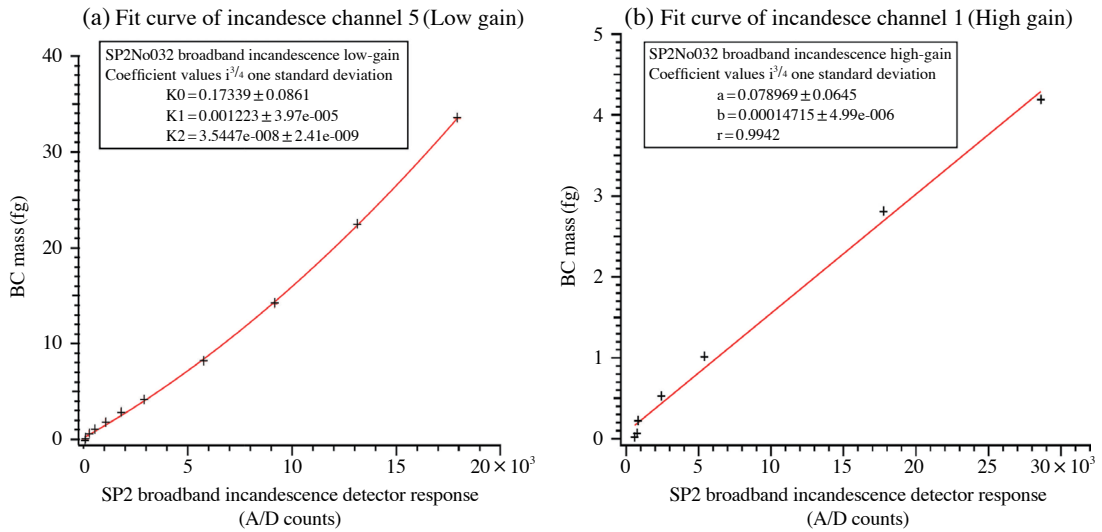


Fig. 7. Calibration curve of incandescence channel detector : (a) Low gain, (b) High Gain.

B 예시에서와 같이 입자가 레이저의 정중앙이 아닌 중앙에서 벗어난 곳을 통과할 때를 그 위치에 따라 구간별로 보여주는 것과 같고, 이 작업을 통해 우리는 챔버 위치를 0.192 μm 로 결정하여 SP2를 운영하였다.

2. 3. 2 입자의 산란 및 백열강도 교정

레이저 정렬이 선행된 후 유입되는 입자에 대한 산란강도와 백열강도에 대한 교정이 필요하다. 산란강도를 통해 입자의 직경을 산정하고, 백열강도에서 BC 입자의 양을 계산한다. 각각 두 강도의 교정 작업은 앞서 레이저 정렬에 사용한 입자 교정 장치(그림 5)를 이용하였다. 산란강도 교정에는 밀도가 약 1.05 g/cm³인 PSL 입자를 이용하였으며, 백열강도 교정에는 밀도가 약 1.20 g/cm³인 Aquadag (Aquadag, Aqueous Deflocculated Acheson Graphite, USA)을 이용하였다.

산란강도는 각각 430 nm, 350 nm, 290 nm, 269 nm, 240 nm, 220 nm, 199 nm, 170 nm, 147 nm 입자를 대상으로 측정하였으며, 해당 입자 크기의 미 산란 (Mie-Scattering) 특성에 기인한 산란 단면적과 여기에서 측정된 산란강도를 이용하여 대기시료의 입자 직경을 산정하기 위한 회귀방정식을 다음과 같이 얻었다:

$$y = 10.7 \times 10^{-15}x, r^2 = 0.9996 \text{ (High gain)},$$

$$y = 1.35 \times 10^{-15}x - 1.07 \times 10^{-12}, r^2 = 0.9987 \text{ (Low gain)}.$$

백열강도는 각각 400 nm, 350 nm, 300 nm, 250 nm, 200 nm, 175 nm, 150 nm, 120 nm, 100 nm, 75 nm, 50 nm, 35 nm, 20 nm 입자를 대상으로 측정하였으며, 해당 입자의 중량과 여기에서 측정된 백열강도를 이용하여 대기 중 BC 입자의 질량과 농도를 산정하는 회귀방정식을 다음과 같이 얻었다(그림 7):

$$y = 0.15 \times 10^{-3}x + 0.08, r^2 = 0.9942 \text{ (High gain)},$$

$$y = 0.17x^2 + 0.12 \times 10^{-2}x + 3.54 \times 10^{-8} \text{ (Low gain)}.$$

PSL은 크기별로 그 모양이 규칙적인 구형 모양인 반면, BC 교정에 사용된 Aquadag 입자는 서로 다른 불규칙한 모양을 지니거나 물질의 형상 구조가 과대하게 표현되는 경향이 있기 때문에 입자의 직경과 밀도를 이용하여 질량을 계산할 때에는 유효밀도 (effective density) 값을 사용하며 (Moteki *et al.*, 2009, DeCarlo *et al.*, 2004), 아래의 식 (2)로 표현할 수 있다.

$$\rho_{\text{eff}} = \frac{6m}{\pi D_{\text{mob}}^3} \quad (2)$$

여기서, ρ_{eff} 입자의 유효밀도, m BC 질량, D_{mob} 입자 교정 장치에서 선택한 BC 직경을 각각 나타낸다. 두 개의 백열 검출기는 입사되는 파장범위가 다르며 넓은 대역의 백열신호를 수집하는 경우 질량과 백열강도는 그림 7(a)의 그래프와 같이 비선형으로 수렴되는 특성을

보였고, 좁은 대역을 수집한 경우에는(그림 7(b)) 선형에 수렴하였으며, 두 함수의 인자를 이용하여 대기 중 BC 입자의 질량과 농도를 산정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 BC농도 분포

2013년 5월 6일부터 5월 16일까지 제주 애월읍에 소재한 제주대기오염종합측정소에서 측정된 BC, AE-BC, $PM_{2.5}$ 농도를 그림 8에 나타내었다. 측정 기간 평균 $PM_{2.5}$ 농도는 $28.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이었고, SP2로 측정된 BC는 $0.69 \pm 0.48 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 그리고 Aethalometer (@880nm)로 측정된 AE-BC 농도 (spot loading effect 미 보정)는 $0.76 \pm 0.56 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 조사되었다. 그림 8에 의하면 BC와 AE-BC 농도는 $PM_{2.5}$ 질량농도와 유사한 경향을 보이는 것으로 확인되었다.

BC와 AE-BC의 시간별 농도추이를 살펴보면 매우 유사한 거동특성을 보여주고 있으나 $PM_{2.5}$ 의 고농도 현상이 발생 시 두 BC 농도의 차이가 크게 발생하였다. 즉, $PM_{2.5}$ 농도가 낮은 수준에서는 BC와 AE-BC의 농도가 비교적 유사한 수준을 보인 반면에, $PM_{2.5}$ 의 농도 수준이 높은 경우에는 BC와 AE-BC 농도의 차이가 증가하는 현상을 보여주었다. 이에 대한 원인은 명확하

지 않지만 두 BC 측정기에서 측정되는 BC 입자의 입경범위의 차이에 의해 기인된 것으로 추정된다(Kondo *et al.*, 2011; Park *et al.*, 2009).

본 연구에서는 5월 12일 $PM_{2.5}$ 의 고농도 현상이 발생한 원인을 조사하기 위하여 청정한 날인 5월 10일과 함께 HYSPLIT 4.8 공기 역학적 모델(Draxler and Rolph, 2014)을 이용하여 기단의 유입경로를 분석하였다. 그 역궤적 해석 결과를 그림 9에 나타내었다. 그림 9(a)와 (b)는 각각 청정한 측정일과 고농도 현상이 발생한 측정일의 세 높이 (600, 1,000, 1,500 m AGL)에서의 기단의 유입경로를 보여준다.

5월 10일 BC 농도는 $0.24 \pm 0.21 \mu\text{g}/\text{m}^3$, AE-BC $0.21 \pm 0.19 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 수준으로 전체 측정 기간 평균 농도보다 약 35% 낮은 농도수준이며, $PM_{2.5}$ 농도는 $4.5 \pm 3.71 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 측정되었다. 역궤적 분석 결과 북태평양과 일본 동지나해의 깨끗한 해양성 기단이 센카쿠 제도 부근으로 우회하여 제주도로 유입되는 기류로 5월 10일 제주도 강수현상과 함께 낮은 농도수준을 나타낸 것으로 판단된다. 5월 12일 BC 농도는 $1.53 \pm 0.36 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 $PM_{2.5}$ 농도는 $65.3 \pm 15.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 을 나타냈다. 청정한 날 대비 BC 농도가 약 6.4배 증가하였고, 전체 측정 기간 측정된 BC 농도보다 2.2배 높은 농도를 보인 고농도 사례로 역궤적 분석에 의한 기류 흐름이 산시성(Shanxi, 山西省)과 산둥반도 인근에서 발생한 저층 대

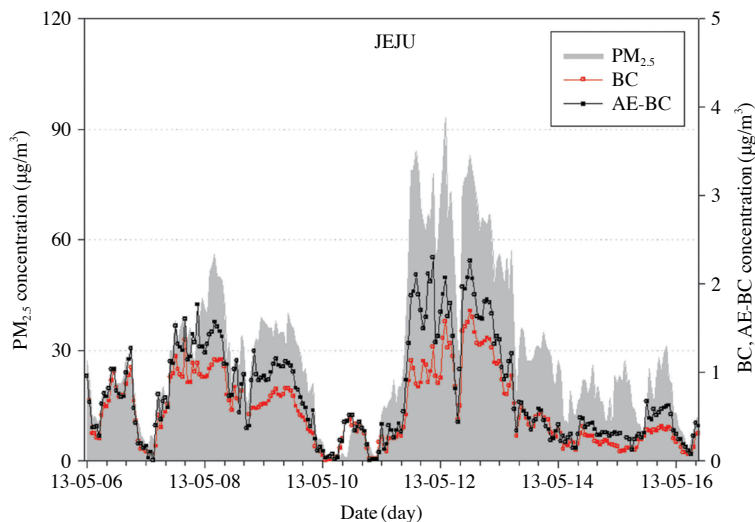


Fig. 8. Time series of $PM_{2.5}$, BC and AE-BC concentrations during the May 2013.

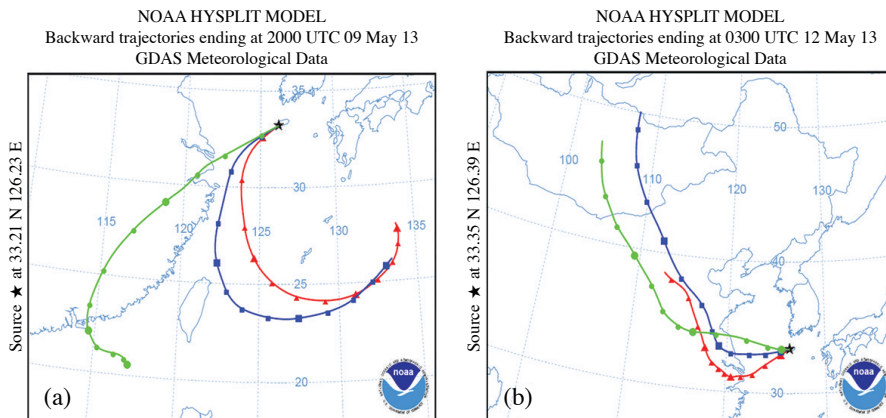


Fig. 9. Three-day backward trajectories at three altitudes (600, 1,000, and 1,500 m AGL) during (a) clean day and (b) high pollution day.

Table 1. Summary of $PM_{2.5}$, AE-BC, BC measurements in the literature.

Site	Period	$PM_{2.5}$	AE-BC*	BC**	Std	Max	Min	Reference
Jeju	May, 2013	28.6	0.76	0.69	0.48	2.04	0.01	This study
NIER	May, 2013	—	—	1.38	0.93	6.70	0.12	NIER 2013
Baengnyeong	Nov, 2012	19.0	0.41	0.35	0.27	1.60	0.06	NIER 2012
Baengnyeong	Apr ~ May, 2012	21.9	0.77	0.70	0.47	4.35	0.03	Oh <i>et al.</i> , 2014
Seoul	Apr ~ May, 2012	30.8	1.82	1.23	0.86	5.17	0.09	NIER 2012

*: $PM_{2.5}$ BC by AE-31 (Aethalometer) 880 nm

** : $PM_{1.0}$ BC by SP2

기의 오염물질이 상하이를 지나 제주도로 유입된 장거리 이동에 따른 고농도 현상으로 분석된다.

표 1에 본 연구의 측정 결과와 국내 다른 지역에서 측정된 연구 결과들을 비교하였다. BC/AE-BC 농도비를 살펴보면, 본 연구에서는 0.91이었고, 2012년 서울의 수도권 대기오염 집중측정소는 0.68 (NIER, 2012), 2013년 인천 국립환경과학원 측정 지점은 0.67로 나타났다. 배경지역인 백령도에서 2012년 측정된 봄 (0.91) 과 가을 (0.85)의 측정 결과 (Oh *et al.*, 2014; NIER, 2012)는 도심지역보다 높은 것으로 파악된다. 이 이유는 백령도가 우리나라 서해안 지역을 대표하는 배경지역이지만, 봄과 가을에 중국으로부터 발생한 오염물질들의 장거리 이동에 의하여 $PM_{2.5}$ 의 고농도 현상이 빈번하게 발생되어 배경지역 BC 농도의 증가를 야기하였을 것이다 (Huang *et al.*, 2012; Schwarz *et al.*, 2008a).

SP2 장비를 이용한 2013년 5월에 제주도 배경지역에서 측정된 BC 농도 $0.69 \pm 0.48 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 은 2012년 봄철

백령도의 $0.70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Oh *et al.*, 2014), 코스타리카의 겨울철 열대우림 표층지역의 $0.65 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Schwarz *et al.*, 2008b), 2007년 봄철 일본의 배경지역 중의 한 지역인 FuKue 지역의 $0.1 \sim 1.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 와 유사한 수준으로 파악되었다 (Shiraiwa *et al.*, 2008). 가을철 Texas 지역에서 생체소각 영향으로 측정된 BC 농도는 $1.80 \sim 3.59 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 수준으로 비교적 높은 수준을 나타내었고 (Schwarz *et al.*, 2008a), 겨울철 중국 센진 (深圳, Shenzhen) 교외 지역의 경우에는 도시지역의 오염원의 영향을 받아 BC 농도가 $2.60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 나타났다 (Huang *et al.*, 2012). 2012년 봄철 백령도에서 관측된 장거리 이동 사례 시 BC 농도는 $2.45 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Oh *et al.*, 2014)을 기록하였으며, 이를 종합하면 BC는 생체소각, 국지적인 배출원 오염물질 그리고 장거리 오염물질 이동에 따라 배경지역에서 관측된 BC 농도에 영향을 줄 수 있으며, 배경지역에서 BC의 배경농도를 산정하기 위해서는 장기간에 걸친 관측이 필요할 것으로 생각된다.

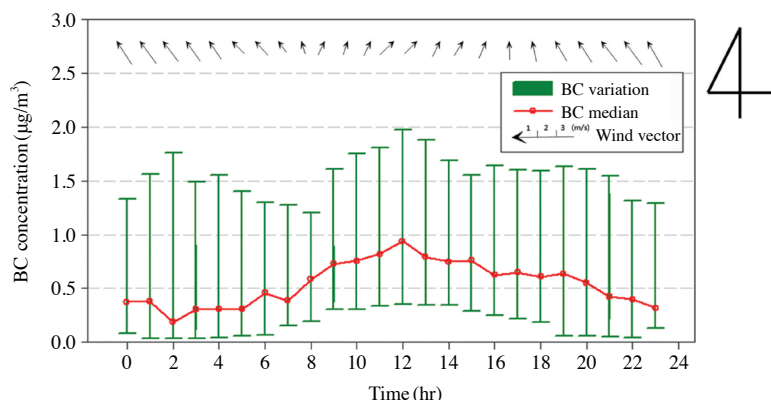


Fig. 10. Mean diurnal variation patterns of BC concentrations.

3.2 BC시간 변화 특성

그림 10에 SP2로 측정된 BC 농도의 일 변동 특성을 나타내었다. 그림 10에서 0시~23시까지 한 시간 간격으로 BC 농도의 시간 변화폭을 중앙값을 중심으로 상·하위 $\pm 25\%$ 의 bar 그래프로 나타내었으며, 오전에 증가하여 12시경에 가장 높은 농도를 나타내고, 다시 오후에는 지속적으로 감소하는 경향을 보이고 있다. 일반적으로 도심지역에서의 BC 농도 일 시간별 변화 특성은 “two peak and one valley” 특성을 나타낸다(Huang *et al.*, 2012). 이른 아침 출근 시간대인 오전 7시경에서 8시까지 낮은 대기혼합고도 조건에서 교통량 증가로 인하여 오전에 피크를 나타내고, 점차 시간이 경과함에 따라 기온이 증가하여 오후에는 대기혼합고도가 높아져 BC 농도가 감소하며, 일몰시간 이후 기온이 낮아짐에 따라 고도가 다시 낮아지면서 퇴근시간 교통량이 증가함에 따라 BC 농도는 다시 증가하게 된다. 퇴근시간의 경우 출근시간에 비해 시간이 장시간 분산되어 있기 때문에 아침(6:00~9:00)시간에 비해 완만한 피크의 높은 농도를 보인다(Jung *et al.*, 2008). 본 측정 결과는 이러한 도심지역과는 다른 특성을 보이며, 이것은 제주도 대기오염 집중측정소가 주변 연소 배출원의 영향이 거의 없는 한라산 중·산간 고도인 600m에 위치하고 있어 오염원의 직접적인 영향이 거의 없기 때문이다. 2012년 우리나라의 배경지역인 백령도에서 측정된 BC 일변화 패턴과 비교했을 때 본 연구에서 측정된 일변화 패턴과 유사한 특성이 나타난 것도 같은 맥락이라 판단된다(NIER, 2012).

시간별 주풍향, 평균풍속을 반영하여 보았을 때 제주도 대기오염집중측정소는 밤에 남동풍 계열의 바람이 불고 낮에 남서풍 계열의 바람의 영향을 받는 것을 그림 10의 “Wind Vector”를 통해 확인할 수 있다. 또한 남동풍 계열의 바람이 발생하는 저녁시간보다 남서풍 계열의 바람이 부는 낮 시간에 BC 농도가 높은 것을 알 수 있다. 제주도 대기오염 집중측정소 남동쪽에 서귀포시와 관광명소인 중문이 있는 반면 남서쪽에는 뚜렷한 배출원 발생 지역이 없다. 해풍과 육풍의 영향이 있을 경우 풍향의 대칭구조가 일반적인 특성인 것을 감안하면 제주도 측정소는 해륙풍의 영향이 없는 것으로 판단된다. 배출원 특성과 해륙풍 영향이 없음에도 낮 시간 BC 농도가 밤에 비해 높은 것은 측정소 기준 남동쪽에 관광도로가 남서쪽으로 약 2km, 6km, 8km 거리에 밀집되어 있다. 또한 도로와 제주도 측정소의 해발고도 차이가 뚜렷하며 상대적으로 낮은 고도인 도로의 차량운행 증가와 대기-혼합고 증가시간, 오염물질의 확산효과 증가 시간이 주풍향과 매칭되어 측정소 지역적 특성이 반영된 현상으로 설명할 수 있으며, 이러한 특성을 명확히 규명하기 위해서 앞서 3.1절에서 설명하였듯이 향후 장기간 측정을 통한 기류 및 모델 분석이 필요할 것이다.

3.3 BC 입경분포

SP2로 측정된 BC의 갯수와 질량 입경분포에 대한 Log 그래프들은 대수정규분포와 패턴과 경향성이 매우 유사한 특성을 나타내므로(Huang *et al.*, 2012), 측

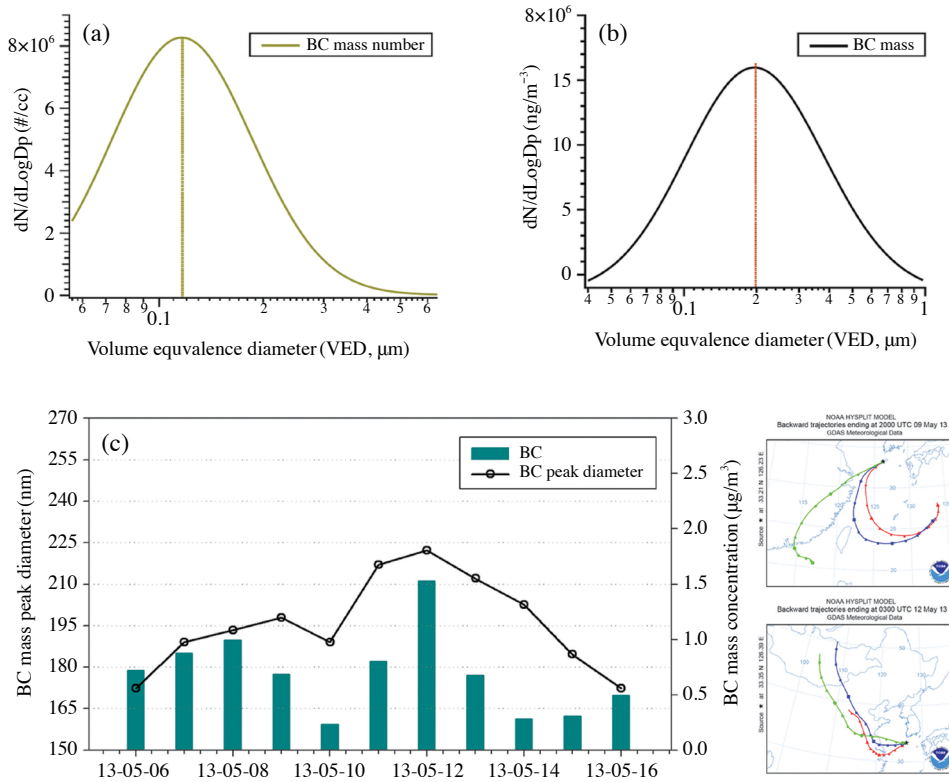


Fig. 11. Average (a) number size distribution and (b) mass size distribution of BC as a function of volume equivalent diameter (VED) during the sampling period and (c) mean daily variation patterns of BC peak diameter.

정된 개수 (a), 질량 (b) 입경분포 결과들을 대수정규분포 그림으로 변환하여 전체 측정 기간 동안의 평균값을 이용해 그림 11에 나타났다. 또한 중심입경의 일변화 특성을 분석하고자 BC 질량 중심입경 일변화 패턴을 그림 11의 (c)에 나타냈다.

일반적으로 BC 입경분포는 공기역학적 직경 (Aerodynamic diameter)이 100 ~ 400 nm 범위에서 중심입경이 나타난다고 알려져 있다 (Lan *et al.*, 2011; Huang *et al.*, 2006). 본 연구에서 측정된 BC의 질량 입경분포는 172 ~ 222 nm 범위로 평균 중심입경은 196 ± 17 nm이었고, 수 농도의 경우 110 ~ 125 nm 범위에서 116 ± 8 nm로 측정되었다. 그림 11의 (c)에서 나타난 BC 중심입경의 일변화 패턴을 BC 일평균 농도와 비교하여 나타냈다. 강우 현상이 발생하는 동안 깨끗한 해양성 기단의 유입으로 BC 농도가 매우 낮았던 5월 10일의 BC 중심입경은 189 nm로 전체 평균보다 낮은 중심입경을

나타냈다. 반면 장거리 이동 현상으로 발생한 5월 12일 고농도 사례의 경우 중심입경은 222 nm로 본 측정 기간 평균 중심입경보다 26 nm 높은 중심입경 결과를 나타냈으며, 백령도에서 측정된 장거리 이동에 따른 중심입경 219 nm와 유사한 수준으로 측정된 결과이다. 중심입경의 일변화 패턴은 청정한 날과 고농도 발생에 따른 중심입경 변화와 농도 패턴과 매우 유사한 특징을 나타내는 것을 그림 11의 (c)를 통해 알 수 있다. 또한 본 연구에서 측정된 질량농도의 중심입경 분포영역은 국내외 다른 지역에서 측정된 BC 질량 입경분포 150 ~ 230 nm 범위에 수렴하는 것으로 파악된다 (Oh *et al.*, 2014; Shiraiwa *et al.*, 2008).

2012년 우리나라 배경지역 (백령도)의 청정한 날 BC 질량 중심입경은 222 nm로 측정되었고 (Oh *et al.*, 2014) 이는 해양성 기단의 영향과 충분한 습도 조건에서 BC 입자의 친수성 특성으로 인해 입자가 성장하여 큰 입

경 분포영역에서 측정되는 결과와 부합한다. 항공관측을 통해 대류권과 성층권 경계에서 측정된 BC 중심입경은 200 nm 부근으로 나타났다(Liu *et al.*, 2010; Schwarz *et al.*, 2009; Schwarz *et al.*, 2008b). 일본 Fukue 지역에서 관측된 장거리 이동 사례 시의 BC는 192 ~ 211 nm 범위에 분포하였고(Shiraiwa *et al.*, 2008), 봄철 중국 쉰진(深圳, Shenzhen) 교외에서는 BC 중심입경이 222 nm로 나타났다(Huang *et al.*, 2012). BC의 농도가 장거리 이동 사례 대비 매우 높은 수준으로 측정되는 생체소각의 경우 미국 텍사스에서 산불 발생으로 측정된 BC 중심입경은 210 nm이었으며(Schwarz *et al.*, 2008a), 2012년 백령도에서 봄철 생체소각의 영향으로 측정된 중심입경은 204 nm로써(Oh *et al.*, 2014) 생체소각에 의한 영향을 SP2 장비를 이용하여 측정할 경우 BC 중심입경은 200 nm 초반 수준임을 알 수 있다.

BC 중심입경은 오염수준이 증가하고, 도심지역에서 배경지역으로 갈수록 그 중심입경이 증가하는 경향을 나타내고, 대기 중에서 관측된 BC의 중심입경은 오염원의 영향이 없는 경우 약 200 nm 이하로 보고되고 있다(Liu *et al.*, 2010; Schwarz *et al.*, 2008b; Schwarz *et al.*, 2006). 이러한 BC 입자는 충분한 습도조건하에서 성장 잠재력이 높아(Mikhailov *et al.*, 2006), 오염된 공기와 혼합되면 비균질 반응을 통해 입경이 보다 큰 영역으로 이동될 수 있음을 시사한다. 제주지역에서 측정된 BC 입자의 평균 중심입경은 다른 배경지역에서 측정된 평균 중심입경보다 비교적 작은 쪽에 위치하는 특성을 보였지만, PM_{2.5}와 BC의 농도가 증가함에 따라 중심입경이 증가하는 경향을 보여주었다. 또한 BC의 평균 중심입경은 해양성 기단이 유입 시 작아진 반면에 기단이 오염지역으로부터 장거리 이동에 의해 유입 시 큰 축으로 이동되는 것으로 확인되었다. 이와 같은 결과는 제주도 배경지역에서 측정된 BC 입자의 평균 중심입경은 기단의 유입경로, 기상조건, 계절 등에 따라 크게 영향을 받았음을 알 수 있었다. BC 입자의 질량 중심입경은 BC 입자의 에이징(aging) 정도, 배출 오염원, 및 상대습도가 증가하면 증가하는 경향을 보이지만 BC의 농도수준이 비슷한 지역이라 할지라도 측정 지역의 지리적 위치와 특성, 계절, 기상, 및 유입기단의 영향에 따라 중심입경은 크게 달라질 수 있다(Huang *et al.*, 2012). 결론적으로, 제주도 배경지역에서 BC 입자의 농도와 질량 중심입경의 변화를 더 정확하게 분석

하기 위해서는 대기조건, 기단의 유입경로, 계절 등에 따른 BC 입자의 관측을 장기적으로 수행할 필요가 있으며, 또한 제주도 배경지역이 입자의 성장에 중요한 습도조건을 유지하고 있기 때문에 향후 BC 입자의 coating 두께의 변화를 관찰할 수 있을 것이다.

4. 결 론

본 연구에서는 실시간 단일입자 단위의 BC를 측정할 수 있는 SP2(Single Particle Soot Photometer) 장비의 측정 방법과 원리, 운용 방법을 고찰하였으며, SP2를 이용하여 우리나라 배경대기 측정 장소인 제주도 애월읍에 위치한 대기오염집중측정소에서 5월 단일 BC 입자의 농도 및 입경분포 특성을 연구하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

SP2 장비는 BC가 끓는점 이상의 에너지를 받은 후 복사되는 백열 에너지를 검출하는 방법으로, 단일입자 단위의 BC의 정확한 정보들을 측정하기 위해서, 광학 베드를 통해 레이저를 정렬한 후에, 산란과 백열에너지에 대한 값을 교정한 후 대기 시료를 채취 분석한다. 2013년 5월에 SP2로 측정된 BC 평균농도는 $0.69 \pm 0.48 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 나타나 다른 연구 결과들에 비해 비교적 낮은 수준으로 파악되었으며, BC의 일 변동 특성은 오전부터 서서히 증가하여 정오에 가장 높은 농도 수준을 보인 후 다시 오후에서 저녁까지 점진적으로 감소하는 경향으로 나타나 도심지역등과 같은 오염원의 영향을 받은 결과와는 다른 양상을 나타내었다.

BC입경에 따른 농도분포 곡선은 그 중심입경이 $196 \pm 17 \text{ nm}$ 이었고, 172 ~ 222 nm 범위에 분포하였으며, 제주도에서 측정된 BC의 중심입경은 다른 배경지역에서 측정된 연구 결과들에 비해 평균 중심입경이 작은 쪽에 위치하는 특성은 BC 입자의 에이징(aging) 정도, 오염 배출원, 습도조건 등이 증가하면 증가하는 특성이 있지만 BC 농도수준이 비슷한 지역이라 할지라도 측정지역의 지리학적 위치와 특성, 계절, 바람의 영향 및 유입기단의 영향에 따라 중심입경은 달라질 수 있으며 지역적인 특성이 강하게 반영되는 특징이 반영되어 청정한 기간 중에 관측된 결과로 판단된다.

향후 실시간 단일입자 단위의 BC를 측정할 수 있는 SP2를 활용하여 배경지역과 도심지역에서 BC의 계절

별, 지역별 특성을 비교 연구하고 지리적 특성에 따른 정확한 중심입경 산정을 위한 BC 입자의 coating thickness를 연구하여 기후변화와 지구 온난화의 주된 물질인 BC의 분포와 특성을 이해하기 위한 연구가 진행되어야 할 것이다.

References

- Adams, K., L. Davis, S. Japar, and D. Finley (1990) Real-time, in-situ measurements of atmospheric optical absorption in the visible via photo-acoustic spectroscopy: IV. Visibility degradation and aerosol optical properties in Los Angeles, *Atmos. Environ.*, 24, 605-610.
- Bond, T.C., E. Bhardwaj, R. Dong, R. Jogani, S. Jung, C. Roden, D.G. Streets, and N.M. Trautmann (2007) Historical emissions of black and organic carbon aerosol from energy-related combustion, 1850-2000, *Global Biogeochem. Cycles.*, 21, GB2018, doi:10.1029/2006GB002840.
- Carmichael, G.R., Y. Zhang, L.L. Chen, M.S. Hong, and H. Ueda (1996) Seasonal variation of aerosol composition at Cheju Island, Korea, *Atmos. Environ.*, 30, 2407-2416.
- Crutzen, P. and M. Andreae (1990) Biomass burning in the tropics: impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles, *Science.*, 250, 1669-1678.
- DeCarlo, P.F., J.G. Slowik, D.R. Worsnop, P. Davidovits, and J.L. Jimenez (2004) Particle morphology and density characterization by combined mobility and aerodynamic diameter measurements. Part 1: Theory, *Aerosol Sci. Technol.*, 38, 1185-1205.
- Draxler, R.R. and G.D. Rolph (2015) HYSPLIT (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) model access via NOAA ARL READY Website (<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>). NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.
- Eckbreth, A.C. (1977) Effects of laser-modulated particulate incandescence on Raman scattering diagnostics, *J. Appl. Phys.*, 48, 4473-4479.
- Gao, R.S., J.P. Schwarz, K.K. Kelly, D.W. Fahey, L.A. Watts, and T.L. Thompson (2007) A novel method for estimating light-scattering properties of soot aerosols using a modified single-particle soot photometer, *Aerosol Sci. Tech.*, 41, 125-135.
- Gebhart, K., S. Kreidenweis, and W. Malm (2001) Back-trajectory analyses of fine particulate matter measured at Big Bend National Park in the historical database and the 1996 scoping study, *Sci. Total Environ.*, 276, 185-204.
- Horvath, H. (1993) Atmospheric light absorption: a review, *Atmos. Environ.*, 27A, 293-317.
- Huang, X.F., J.Z. Yu, L.Y. He, and M. Hu (2006) Size distribution characteristics of elemental carbon emitted from Chinese vehicles: results of a tunnel study and atmospheric implications, *Environ. Sci. Technol.*, 40, 5355-5360.
- Huang, X.F., T.L. Sun, L.W. Zeng, G.H. Yu, and S.J. Luan (2012) Black carbon aerosol characterization in a coastal city in South China using a single particle soot photometer, *Atmos. Environ.*, 51, 21-28.
- Jung, J.H. and S.S. Park (2008) Characteristics of Black Carbon in PM_{2.5} observed in Gwangju for Year 2008 and Examination of Filter Loading Effect, *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, 26(4), 392-402. (in Korean with English abstract)
- Kondo, Y., L. Sahu, N. Moteki, F. Khan, N. Takegawa, X. Liu, M. Koike, and T. Miyakawa (2011) Consistency and Traceability of Black Carbon Measurements Made by Laser-Induced Incandescence, Thermal-Optical Transmittance, and filter-based Photo-Absorption Technique, *Aerosol Sci. Technol.*, 45(2), 295-312.
- Lan, Z.J., D.L. Chen, X.A. Li, X.F. Huang, L.Y. He, Y.G. Deng, N. Feng, and M. Hu (2011) Modal characteristics of carbonaceous aerosol size distribution in an urban atmosphere of South China, *Atmos. Res.*, 100, 51e60.
- Lau, K.M. and K.M. Kim (2006) Observational relationships between aerosol and Asian monsoon rainfall, and circulation, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L21810, doi:10.1029/2006gl027546.
- Lin, M., T. Oki, M. Bengtsson, S. Kanae, T. Holloway, and D.G. Streets (2008) Long-range transport of acidifying substances in EastAsia-PartII: Source-receptor relationships, *Atmos. Environ.*, 39, 5956-5967.
- Liu, D., M. Flynn, M. Gysel, A. Targino, I. Crawford, K. Bowler, T. Choulaton, Z. Juranyi, M. Steinbacher, C. Huglin, J. Curtius, M. Kampus, A. Petzold, E. Weingartner, U. Baltensperger, and H. Coe (2010) Single particle characterization of black carbon aerosols at a tropospheric alpine site in Switzerland, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 7389-7407.
- Melton, A. (1984) Soot diagnostics based on laser heating,

- Appl. Opt., 23, 2201-2208.
- Menon, S., J. Hansen, L. Nazarenko, and Y.F. Luo (2002) Climate effects of black carbon aerosols in China and India, *Science*, 297, 2250-2253.
- Mikhailov, E.F., S.S. Vlasenko, I.A. Podgorny, V. Ramathan, and C.E. Corrigan (2006) Optical properties of soot water drop agglomerates: An experimental study, *J. Geophys. Res.*, 111, D07209, doi:10.1029/2005JD006389.
- Moteki, N., Y. Kondo, N. Takegawa, and S. Nakamura (2009) Directional dependence of thermal emission from nonspherical carbon particles, *J. Aerosol Sci.*, 40, 790-801, doi:10.1016/j.jaerosci.2009.05.003.
- Moteki, N., Y. Kondo, Y. Miyazaki, N. Takegawa, Y. Komazaki, G. Kurata, T. Shirai, D.R. Blake, T. Miyakawa, and M. Koike (2007) Evolution of mixing state of black carbon particles: aircraft measurements over the western Pacific in March 2004, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L11803, doi:10.1029/2006gl028943.
- Myhre, G., A. Myhre, and F. Stordal (2001) Historical evolution of radiative forcing of climate, *Atmos. Environ.*, 35, 2361-2373.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2009) The Characteristics of the Air Pollutants Distribution and Concentration at the Baengnyeong Island (II), No. 11-1480523-000576-10.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2010) The Characteristics of the Air Pollutants Distribution and Concentration at the Baengnyeong Island (III), No. 11-1480523-000748-01.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2011) The Characteristics of the Air Pollutants at West inflow regions in the Korean Peninsula (I), No. 11-1480523-000949-01.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2012) A study on the high PM episodes observed in Seoul metropolitan area (I), No. 11-1480523-001272-01.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2013) Emission sources and behavior of PM_{2.5} organic Materials (IV), No. 11-1480523-001601-01.
- Oh, J., J.S. Park, J.Y. Ahn, J.S. Choi, J.H. Lim, H.J. Kim, J.S. Han, Y.D. Hong, and G.W. Lee (2014) A study on the Behavior of the Black Carbon at Baengnyeong Island of Korea Peninsular, *J. KSUE*, 14(2), 67-76. (in Korean with English abstract)
- Park, S.S., J.H. Jung, S.Y. Cho, and S.J. Kim (2009) Compensation of aethalometer black carbon data observed at a Gwangju site, *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, 25(6), 571-578. (in Korean with English abstract)
- Park, S.S., J.Y. Hur, S.Y. Cho, S.J. Kim, and Y.J. Kim (2009) Characteristics of Organic Carbon Species in Atmospheric Aerosol Particle at a Gwangju Area During Summer and Winter, *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, 23(6), 675-688. (in Korean with English abstract)
- Schwarz, J.P., H. Stark, J.R. Spackman, T.B. Ryerson, J. Peischl, W.H. Swartz, R.S. Gao, L.A. Watts, and D.W. Fahey (2009) Heating rates and surface dimming due to black carbon aerosol absorption associated with a major US city, *Geophys. Res. Lett.*, 36, L15807, doi:10.1029/2009gl039213.
- Schwarz, J.P., R.S. Gao, J.R. Spackman, L.A. Watts, D.S. Thomson, D.W. Fahey, T.B. Ryerson, J. Peischl, J.S. Holloway, M. Trainer, G.J. Frost, T. Baynard, D.A. Lack, J.A. de Gouw, C. Warneke, and L.A. Del Negro (2008a) Measurement of the mixing state, mass, and optical size of individual black carbon particles in urban and biomass burning emissions, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L13810, doi:10.1029/2008gl033968.
- Schwarz, J.P., J.R. Spackman, D.W. Fahey, R.S. Gao, U. Lohmann, P. Stier, L.A. Watts, D.S. Thomson, D.A. Lack, L. Pfister, M.J. Mahoney, D. Baumgardner, J.C. Wilson, and J.M. Reeves (2008b) Coatings and their enhancement of black carbon light absorption in the tropical atmosphere, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 113, D03203, doi:10.1029/2007jd009042.
- Schwarz, J.P., R.S. Gao, D.W. Fahey, D.S. Thomson, L.A. Watts, J.C. Wilson, J.M. Reeves, M. Darbeheshti, D.G. Baumgardner, G.L. Kok, S.H. Chung, M. Schulz, J. Hendricks, A. Lauer, B. Karcher, J.G. Slowik, K.H. Rosenlof, T.L. Thompson, A.O. Langford, M. Loevenstein, and K.C. Aikin (2006) Single particle measurements of midlatitude black carbon and light-scattering aerosols from the boundary layer to the lower stratosphere, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 111, D16207, doi:10.1029/2006jd007076.
- Shiraiwa, M., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, L.K. Sahu, A. Takami, S. Hatakeyama, S. Yonemura, and D.R. Blake (2008) Radiative impact of mixing state of black carbon aerosol in Asian outflow, *Geophys. Res. Lett.*, 113, D24210, doi:10.1029/2008jd010546.
- Stephens, M., N. Turner, and S.B. Jon (2003) Particle identification by laser-induced incandescence in a soild-state laser cavity, *Appl. Opt.*, 42(19), 3726-3736.