



논문

항공관측 CH₄-C₂H₆-CO 상관성 분석을 통한 한반도 CH₄의 분포 특성 연구: 2019년 기상청 기상항공기 정규관측과 2016년 KORUS-AQ 집중관측을 중심으로

Analysis of CH₄ Source Distributions Based on CH₄-C₂H₆-CO Correlation from KMA Aircraft Regular Observation in 2019 and KORUS-AQ Campaign in 2016 over South Korea

이선란*, 이해영, 박미경¹⁾, 정주용, 김연희
국립기상과학원 미래기반연구부, ¹⁾극지연구소 해양연구본부

Shanlan Li*, Haeyoung Lee, Mi-Kyung Park¹⁾, Chu-Yong Chung, Yeon-Hee Kim
Innovative Meteorological Research Department, National Institute of Meteorological Sciences, Seogwipo-si, Jeju-do, Republic of Korea

¹⁾Korea Polar Research Institute, Division of Ocean Sciences, Incheon, Republic of Korea

접수일 2021년 11월 22일
수정일 2021년 12월 20일
채택일 2022년 1월 12일

Received 22 November 2021
Revised 20 December 2021
Accepted 12 January 2022

*Corresponding author
Tel : +82-(0)64-780-6649
E-mail : sunranlee@korea.kr,
sunranlee18@gmail.com

Abstract To understand the regional source signature of CH₄, we conducted the linear regression analysis of CH₄-C₂H₆-CO from the Korea-United States Air Quality Study (KORUS-AQ) campaign during May~June in 2016 and the Korea Meteorological Administration (KMA) aircraft regular missions in 2019. The KMA aircraft platform has been established for regular observations of greenhouse gases including CH₄ since 2018. For KORUS-AQ campaign, 37% of the observations show well correlations ($R^2 > 0.4$) between CH₄ and C₂H₆, and the slope of CH₄/C₂H₆ showed the different levels according to the flying regions. The samples observed from Seoul, Busan megacity showed the slope with about 53 ppb/ppb, which seems to be associated with fossil fuel related emissions sources. But the slope of CH₄/C₂H₆ in the vicinity of industrial regions in west coast and Jeolla-do showed a range of 150~250 ppb/ppb, suggesting the significant CH₄ contributions by biogenic emissions. KMA aircraft observed slope of CH₄/CO showed a range of 0.1~0.4 ppb/ppb in January and April, but in summer it showed a range of 0.4~2.5 ppb/ppb mainly at vicinity of Jeolla-do (34~35.5°N), suggesting the dominant biogenic emissions contributions of CH₄ as well. From the KORUS-AQ campaign and KMA regular aircraft observations, we confirmed the significant contributions of CH₄ from biogenic emissions in summer and fossil fuel in other seasons. We will analyze with integrated long-term data in further study to understand CH₄ characteristics and support the policy for carbon neutral in 2050.

Key words: KORUS-AQ, KMA aircraft, In-situ measurement, CH₄/CO slope, CH₄/C₂H₆ slope, Korea

1. 서론

인간활동과 관련된 대기 중 온실기체의 증가는 전 지구적인 기후 변화의 주요한 원인으로 최근 몇 년 동안 가장 큰 문제로 대두되고 있다. 특히 전 지구적인 강력한 온실기체인 대기 중 이산화탄소(CO₂)와 메탄

(CH₄)은 화석 연료의 연소 및 산업공정에서의 배출로 산업화 이후 지속적으로 증가하고 있다(WMO, 2021). 대기 중 CO₂는 2020년 전 지구적인 평균 농도가 413.2±0.2 ppm으로 총 온실기체 배출량 증가에 약 78%를 기여하고 있다(WMO, 2021). CO₂ 다음으로 중요한 온실기체인 대기 중 CH₄의 2020년 전 지구적 평

균농도는 1889 ± 2 ppb이며, 100년 누적 지구 온난화 잠재력(GWP, Global Warming Potential)이 CO₂의 28 배이다(Myhre *et al.*, 2013). CH₄의 대기 중 체류시간은 다른 주요 온실가스에 비해 짧은 약 12.4년이기에 CH₄을 우선 감축하게 되면 기후변화에 대한 억제효과를 더 빨리 확인할 수 있다. 그럼에도 CH₄의 배출원은 매우 다양하고 한번 배출되면 복잡한 화학작용, 예를 들면, 대기 중 CO와 O₃을 조절하는 주요 구성요소로 기후변화에 민감하게 작용한다. 하지만, 기후변화에 미치는 영향에 비해 생성과 소멸에 대한 이해가 아직은 부족한 실정이다(Frankenberg *et al.*, 2008; Miller *et al.*, 2007; Keppler *et al.*, 2006; Cicerone and Oremland, 1988).

기후변화에 관한 유엔 기본 협약의 2015년 파리 협정은 2100년까지 전 세계 평균 기온 상승폭을 산업화 이전 수준보다 섭씨 2°C 이하로 억제할 것을 목표로 하며, 이 성공의 핵심은 두 번째로 중요한 인위적인 온실가스인 대기 중 CH₄의 감소를 달성하는 것이다(Ganesan *et al.*, 2019). CH₄의 변화를 진단하기 위해서는 배경관측소에서의 수직 프로파일 관측, 도심 네트워크 관측과 동위원소 비율 측정 등 다양한 관측을 통해 지역적인 배출원 및 소멸원을 추정함으로써 기후변화의 기여도를 정량적으로 평가하는 것이 필수적이다(Ganesan *et al.*, 2019; Heimann, 2009). 동북아시아의 경우 중국의 인위적인 CH₄의 배출량이 전 지구 배출의 약 10%를 차지하고 있으나(Peng *et al.*, 2016), 자연적·인위적 배출원으로 인한 시·공간적 변동성 파악에 대한 체계적이고 과학적인 연구가 현재까지는 활발하지 않다. 한반도는 현재 동아시아의 주요 배출국인 중국과 인접해 있고, 한국의 온실가스배출도 인구밀도 대비 높게 나타나고 있어(Li *et al.*, 2011) 지상, 항공, 선박과 위성 등 입체적인 관측을 통한 CH₄의 배출/흡수를 이해하는 것이 중요하다.

CH₄은 주로 화석연료사용과 생물 기원(쓰레기 매립지, 축산, 농업활동 등)에 의해 배출된다. CH₄와 비슷한 배출원/배출지역을 가진 미량기체 추적자와의 상관성을 분석하면 대기 중 CH₄의 배출원을 구분할

수 있다. 선행 연구에서는 동위원소 비율 (¹²C: ¹³C), C₂H₆, C₃H₈ 등 추적자를 활용하여 CH₄의 배출특성을 분석하였다(Peischl *et al.*, 2013; Simpson *et al.*, 2012; Kai *et al.*, 2011). 특히, 최근에 C₂H₆의 연속관측이 가능한 장비들이 개발되고 항공관측을 통해 공간적으로 급격하게 변하는 오염이벤트의 추적이 가능하기에 CH₄/C₂H₆의 기율기가 CH₄의 배출원을 파악하는 유용한 방법으로 대두되고 있다(Smith *et al.*, 2015). C₂H₆와 CO는 인위적인 화석연료의 사용과 식생연소에 의해 배출되기에 인간이 밀집한 지역에 배출이 광범위하게 분포되어 있다. 때문에 CH₄/CO, CH₄/C₂H₆의 회귀분석 기율기의 크기는 CH₄ 배출원에 따라 상이하다. 예를 들면, 봄철(3~4월) 중국, 한국, 일본과 열대지역 기원의 CH₄/CO, CH₄/C₂H₆의 회귀분석 기율기는 각각 0.38~0.65 [ppb/ppb], 42~45 [ppb/ppb]의 범위를 보인다(Xiao *et al.*, 2004). 반면, 화석연료에 의한 CO, C₂H₆와 CH₄의 배출이 일정하고 토양미생물 분해에 따른 CH₄의 배출이 강화되는 여름철(6~9월)에 열대지역에서는 각각 0.96~1.98 [ppb/ppb]와 91~396 [ppb/ppb]의 증가된 범위를 보이기도 했다(Baker *et al.*, 2012). 동아시아지역의 배경관측소에서도 계절에 따른 CH₄/CO의 회귀분석 기율기의 변동성을 이용하여 화석연료와 지표 생물 기원에 의한 CH₄의 배출원을 구별할 수 있었다(Toshima *et al.*, 2014).

대기 중 온실가스의 배출/흡수의 이해를 위하여 기상청(국립기상과학원)에서는 CH₄을 포함한 대기 중 온실가스를 1999년부터 지표관측소를 시작으로 2018년 항공기, 2020년 보성 고층타워와 2021년 선박을 통해 지속적인 관측을 수행하고 있다. 이 중 온실가스의 지표관측소는 1999년부터 안면도에서 처음 시작하여 2012년 제주도 고산, 2014년 울릉도·독도로 확대되었으며, 각 관측소에서 생산된 자료는 한반도를 아우르는 지역배경대기의 특성 및 장기변동성 연구에 활용되고 있다(Lee *et al.*, 2019). 각 지표관측소에서 생산되는 CH₄의 장기변화 추이, 전 지구와 비교한 증가율 등은 매년 지구대기감시보고서를 통해 보고되어 한반도의 CH₄을 이해하는 데 중요한 정보를 제공한다

(KMA, 2021). 2016년과 2019년 한반도 CH₄의 급격한 증가율은 엘리뇨뿐 아니라 높은 기온에 의해 토양미생물에 의한 지표 생태 배출원이 강화된 것으로 연구된 바 있다(Kenea *et al.*, 2021).

이에 더해 기상청은 2018년부터 연구용 기상항공기(King Air 350HW)를 이용한 관측을 시작하였으며, 한반도에서 정기적인 수평·수직적인 온실가스 자료를 통한 분석연구를 수행 중이다(Li *et al.*, 2019). 항공관측은 지표면을 포함한 대류권에서 수직·수평적인 조밀한 공간해상도의 연직분포 자료를 확보할 수 있는 효과적인 방법이다. 한반도에서 온실가스의 항공관측자료의 수집은 집중항공관측을 통해 가능하였지만 정기적인 장기 관측의 시작은 기상청의 기상항공기가 유일하다. 집중항공관측의 경우, 2016년 5~6월 한·미대기질 공동조사캠페인(KORUS-AQ, Korea-US Air Quality campaign) 항공관측 온실가스 관측자료가 수집된 것이 대표적이며, 이 자료는 장거리 수송의 추적자(Halliday *et al.*, 2019) 및 화학모델 검증(Tang *et al.*, 2018)에 사용되었다. 기상청은 기상항공기를 통한 정기적인 관측을 통해 온실가스의 한반도 시공간 분포의 계절변동성 등 중요한 정보를 제공하였으며, 온실가스의 배출/흡수의 지역적인 특성을 이해할 수 있었다(Li *et al.*, 2020).

본 연구에서는 2019년 기상청 기상항공기 정규관측, 2016년 5~6월에 NASA와 국립환경과학원이 공동으로 수행한 KORUS-AQ 집중 캠페인 CH₄ 자료의 연직분포 분석과 지상 관측값과의 비교를 통해 한반도 CH₄ 농도의 시공간 특성을 이해하고자 한다. 또한, 항공 관측 CH₄과 C₂H₆, CO와의 상관성 분석, 회귀분석 기술을 통해 한반도 CH₄ 배출원의 지역적인 특성을 자세히 다루고자 한다.

2. 항공관측 방법

2.1 기상청 기상항공기의 CH₄와 CO의 관측 방법

기상청에서는 2018년부터 미국 비치크래프트

(Beechcraft)사에서 개발한 King Air 350HW (기상항공기) 기종으로 서울 김포에서 남쪽 완도까지 경기도, 충청도, 전라도지역을 저고도로 통과하면서 온실가스 항공관측을 수행하고 있다(Li *et al.*, 2020, 2019). 기상항공기는 최대 약 10 km 고도까지 상승가능하며 최대 비행시간은 5.5시간이다. 연구용 항공기에는 24개의 기상관측장비가 탑재되어 있으며 항공기의 앞단에 여러 개의 공기 흡입구가 설치되어 있다. 기상항공기는 연구목적에 따라 위험기상 선행관측, 환경기상감시, 온실가스 감시, 구름물리관측과 기상조절 실험 등 4개의 주요관측임무를 서로 다른 경로 및 시간에 수행하고 있다. 온실가스 연속관측자료 수집은 온실가스 감시, 환경기상 감시, 위험기상 선행관측 등 3개의 임무를 통해 가능하며 이 세 가지 임무의 2019년 총 43회 누적관측 항로를 기상항공기 운영관리시스템에서 다운로드하여 그림 1a에 제시하였다(<http://203.247.75.51>).

항공관측에 사용한 온실가스장비는 현재 온실가스 관측분야에서 광범위하게 사용하고 있는 Picarro사에서 제작한 공동감쇠분광기(Cavity Ring-Down Spectroscopy, CRDS-2401m 모델)이다. 기상항공기 앞쪽에 1/2" 구경의 Stainless Steel (SS) 재질의 흡입구가 설치되어 있고 흡입구의 방향을 비행방향과 반대로 설치하여 큰입자와 물방울 등의 유입을 최소화하였다. 장비 앞단에 먼지 유입을 방지하기 위한 먼지 필터(5 μm)와 수분 트랩, Nafion membrane을 이용한 수분 제거제를 장착하여 운행 중에 있다. 기상항공기의 온실가스 관측 및 검·교정 시스템은 이미 선행 연구논문(Li *et al.*, 2020)에서 자세히 기술하였다.

기상항공기 온실가스 정밀관측 및 국내의 온실가스 관측 자료와의 비교검증을 위하여 세 가지 농도 수준의 National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA)에서 제작한 World Meteorological Organization (WMO) 척도의 표준가스(Calibration scale: WMO-CO₂-X2019, WMO-CH₄-X2004A, WMO-CO-X2014A)를 사용하고 있다. 검·교정은 자동압력조절 및 자동샘플주입이 가능한 자체 시스템을 제작하여

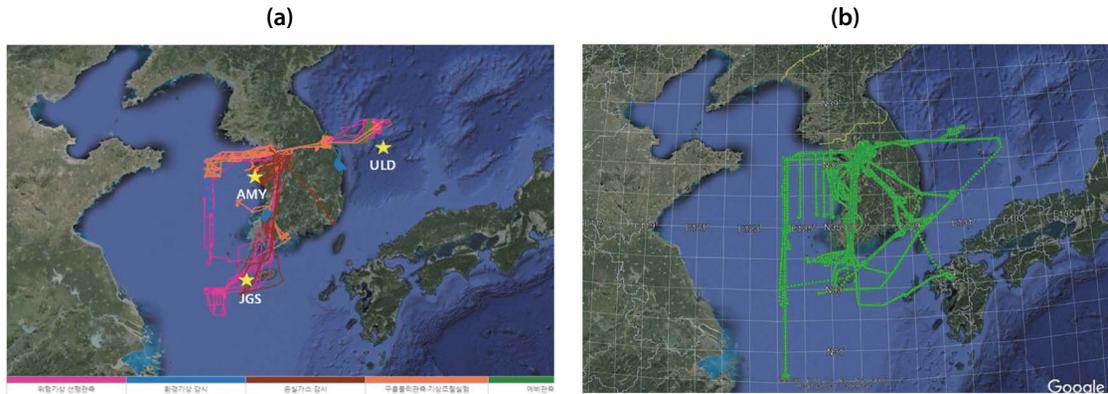


Fig. 1. Flight tracks of the (a) KMA King Air research aircraft observations during 2019. In situ ground stations marked by yellow stars, Anmyeon-do (AMY: 36.54°N, 126.33°E), Jeju Gosan (JGS: 33.30°N, 126.16°E), Ulleung-do (ULD: 37.48°N, 130.9°E). (b) Flight tracks of the NASA DC-8 research aircraft during KORUS-AQ campaign for May~June in 2016.

2018년부터 2달 간격으로 실험실에서 검·교정을 진행하였고, 모든 관측결과는 실험실 검·교정 곡선에 의해 보정된 자료를 사용한다. 기상항공기에 관측에서 발생하는 관측 불확도는 기기의 재현성, 수분보정에 따른 오차 실험과 압력민감도에 따른 반복성 실험을 통한 결과에 따라 산정하며 CH₄과 CO는 각각 ±3.8 ppb, ±5 ppb이다. 본 연구에서 사용한 모든 관측농도는 Picarro사에서 제공하는 수분보정 변수를 사용하여 보정한 건조 몰농도(dry mole fraction, ppb)이다. 본 연구에서는 CRDS 장비 공동 내의 압력이 186±0.1 hPa 범위 안의 자료만을 선별하여 사용하였고 시료 주입구에서의 체류시간 2초를 보정하여 사용하였다.

2.2 KORUS-AQ 캠페인의 CH₄와 C₂H₆의 관측 방법

KORUS-AQ 집중관측 캠페인은 2016년 국립환경과학원과 NASA에서 공동으로 수행한 한국 대기질 관측 캠페인이다. 이 캠페인은 항공관측뿐만 아니라 지상, 선박, 모델, 위성 등 방대한 자료를 통해 한반도 대기질에 영향을 주는 요소를 정량적으로 평가하였다(Crawford *et al.*, 2021). KORUS-AQ 캠페인은 2016년 5월 2일부터 6월 10일까지 총 20회의 관측 임무를 수

행하였으며 한국의 도심 지역인 서울과 부산, 경기도 광주, 대산 산업 단지, 서해, 김포~제주와 김포~부산 등 여객기항로에 따른 내륙지역에 대한 관측을 수행하였다. 관측 누적항로는 그림 1b에 제시하였다.

본 연구에서 사용한 KORUS-AQ 캠페인 기간 CH₄는 NASA의 DC-8 항공기에 탑재한 Differential Absorption Carbon monOxide Measurement (DACOM)으로 1초 간격으로 관측하였으며 관측 정확도(Accuracy)는 <1% (1,800 ppb일 경우 ±18 ppb 이내)이다(<https://espo.nasa.gov/korus-aq/instrument/DACOM>, Diskin *et al.*, 2014). C₂H₆는 DC-8 항공기에 탑재한 Compact Airborne Multispecies Spectrometer (CAMS) 장비로 관측하였으며 콜로라도 대학교에서 운영하였다(Richter *et al.*, 2015). 관측자료는 2초 간격으로 제공받았고 정확도는 <1%이다.

3. 결과 및 토의

3.1 2016~2019 지상과 항공관측자료의 비교

그림 2에 안면도, 제주도 고산, 울릉도독도 기후변화감시소에서 관측한 CH₄ 중 배경농도의 월별 평균과 기상항공기, KORUS-AQ 캠페인 기간 DC-8로 관

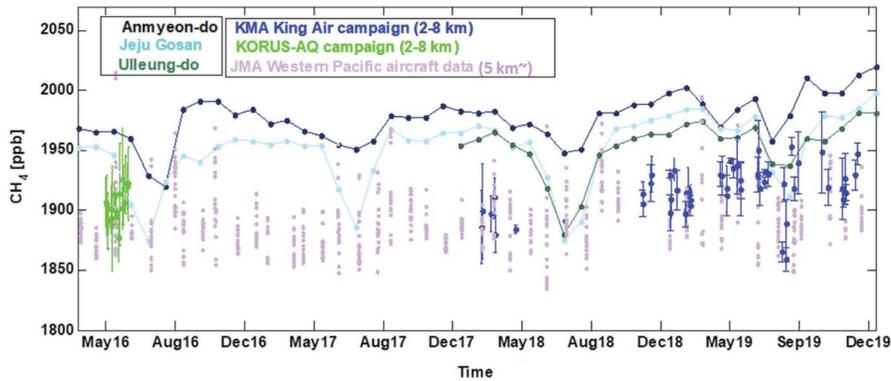


Fig. 2. The monthly mean of CH_4 dry mole fractions observed from Anmyeon-do, Jeju~Gosan and Ulleungdo in Korea and aircraft flask measurement in western Pacific region (above 5 km) from Tokyo to Minamitorishima. The green and blue circles with vertical bars represent the daily and monthly average of CH_4 dry mole fraction with one standard deviation at the altitude of 2~8 km from KORUS-AQ campaign for period of May~June 2016 and King Air aircraft regular observations during 2019, respectively.

측한 자유대류권 (Free Troposphere, FT) (고도 2~8 km) 내의 평균농도와 표준 편차 ($1-\sigma$)를 제시하였다. 일본 기상청에서 매월 1회 수행하고 있는 북서태평양 지역에서의 항공관측 플라스크시료 CH_4 분석농도도 함께 비교하였다. 일본 기상청은 북서태평양 지역에서 대류권을 통한 온실가스의 장거리 수송 메커니즘을 규명하기 위하여 2011년부터 항공 시료분석을 수행하고 있다. 도쿄 근처인 Kanagawa에서 Minamitorishima까지 약 2,000 km 항로를 따라 5~6 km 고도에서 시료 포집 후 실험실에서 분석하며 자료는 Word Data Centre for Greenhouse Gases (WDCGG)에서 공개하고 있다 (Tsuboi *et al.*, 2013).

기상항공기의 43회 비행 임무와 KORUS-AQ 캠페인 20회 비행을 임무별로 평균하여 각각 그림 2에 나타냈다. FT 내의 온실가스 농도는 배출원 지역으로부터 장거리 수송에 의한 영향도 받을 수 있다. 하지만, FT에서는 강한 바람속도에 따라 농도가 잘 희석되기 때문에 장기 온실가스 관측자료는 배경농도를 반영할 수 있다고 간주한다 (Yokouchi *et al.*, 2005). 지상에서의 배경농도의 월별 평균은 안면도, 고산, 울릉도 순으로 나타났다. 선행 연구 (Kenea *et al.*, 2021)에 따르면 안면도에서 관측한 CH_4 의 이례적인 연간상승농도는 생물 기원에 의한 배출의 영향이며, 주로 가을철

에 나타난 것으로 보고되고 있다. 안면도는 고산과 울릉도에 비해 내륙근처에 위치하였기에 내륙지역의 다양한 농업활동, 매립지 등 배출의 영향을 크게 받았을 것으로 사료된다. 때문에 계절변동폭 (최저와 최고농도의 차이)이 제일 작게 나타나고 있다 (그림 2). 2016년 KORUS-AQ 캠페인과 2018~2019년 FT에서 관측한 CH_4 농도는 오차범위 내에서 북서태평양 FT 내 평균 농도와 비슷한 수준이다. 하지만 여름철을 제외하면 고산과 울릉도 배경농도보다 약 40 ppb, 안면도 배경농도보다 약 80 ppb 수준 낮게 나타났다. 이는 지표에서 배출되는 CH_4 의 속도가 대기 중에서 제거되거나 희석되는 속도에 비해 빠른 것을 의미한다. 하지만 여름철에는 제주도 고산에서 관측한 농도와 비슷한 범위를 보여주고 있다. 제주도 고산은 한반도의 남단에 위치하여 있으며 여름철은 몬순에 따른 남서풍 기단의 영향으로 현저히 낮은 남반구 배경대기의 유입이 발생하는 지역이다 (Li *et al.*, 2018). 여름철 한반도 FT에서 관측한 농도는 종관기상의 영향으로 잘 희석된 배경농도 수준인 것으로 사료된다.

3.2 항공 관측 CH_4 의 연직 분포 특성

기상항공기 및 KORUS-AQ 캠페인 DC-08 항공기로 관측한 결과 모두 지표에서 높은 CH_4 농도를 보이

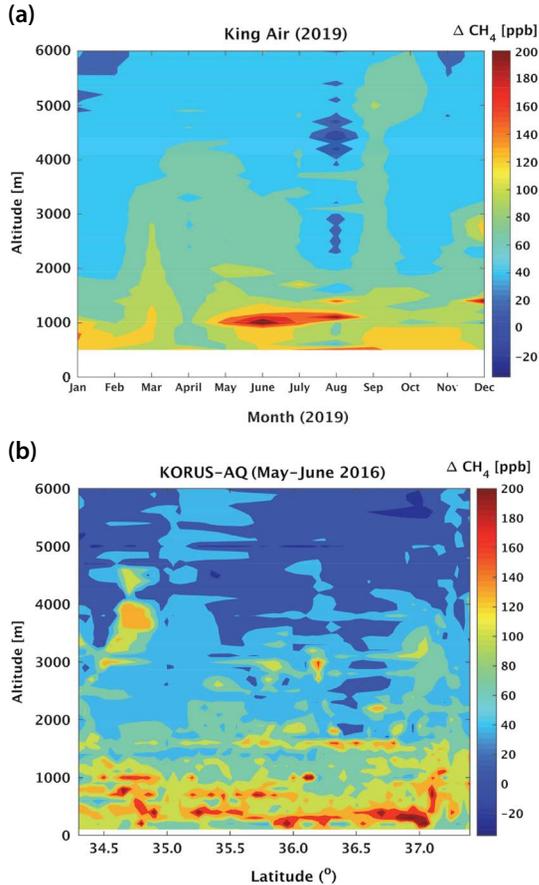


Fig. 3. (a) Spatio-temporal and (b) Latitudinal-vertical distributions of de-trended CH₄ (denoted by ΔCH_4) with global marine boundary background concentrations for KMA aircraft regular observations in 2019 and KORUS-AQ campaign in 2016, respectively. ΔCH_4 are averaged at latitude and altitude bins of 0.05° and 100 m for KORUS-AQ campaign, but KMA King Air observations are averaged at latitude bins of 0.05 and temporally interpolated.

며 상층으로 갈수록 점점 감소하는 전형적인 연직분포특성을 보인다. 2019년 기상항공기 관측자료는(그림 3a) 5월부터 8월까지 1.5 km의 고도 이하에서 최고 농도가 나타났으며 늦은 봄철부터 여름철까지 지표 CH₄의 배출이 증가한 것으로 추정된다. KORUS-AQ 캠페인 관측자료를 살펴보면 1.5 km 이하에서는 Mauna Loa Observatory (MLO) 배경농도보다 약 250 ppb 높은 농도가 전 위도에 걸쳐 관측되었다. 1.5 km

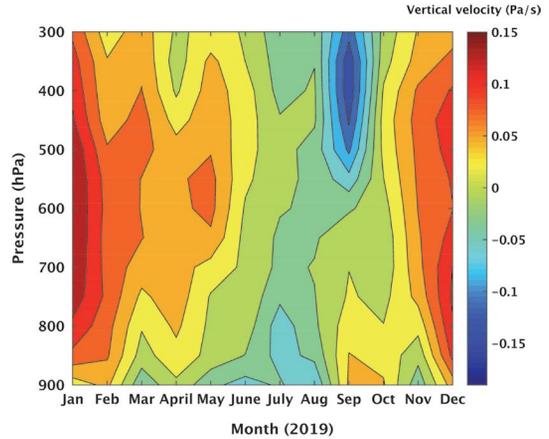


Fig. 4. ECMWF ERA-Interim derived monthly mean vertical velocity (pa s^{-1}) at latitude sectors 35~38°N and longitude sectors 126~129°E for 2019.

이상 고도에서 MLO보다 약 150 ppb 이상 높은 고농도의 사례는 주로 5월 12, 13, 25, 26, 30, 31일에 관측되었다. Peterson *et al.* (2019) 연구에서 제시한 바와 같이 주로 대류활동이 활발한 기상 조건에서 관측되었으며 대기 상층에서 CH₄ 지상오염원의 장거리 수송 영향을 받은 것을 의미한다(그림 3b). 기상항공기의 43회 관측 중 MLO보다 약 150 ppb 이상 높은 고농도의 사례는 9회 비행에서 관측되었다. CH₄의 경우 대기 중 수명이 약 12.4년으로 연직분포특성에 영향을 주는 주요 요인은 대기의 수직, 수평 전송과 계절에 따른 배출 변동이다. 이 중 수직 전송은 뚜렷한 계절적인 변동성을 보이며 아시아 여름몬순의 영향권에 있는 13~24°N 근처에서는 여름에는 강화되는 경향이 있다. 이는 여름철 지표 가열과 몬순 강수의 응결 잠열 방출에 의한 것이다(Kavita *et al.*, 2016). 2019년 한국에서 관측한 CH₄의 연직분포특성을 살펴보기 위하여 European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) ERA-Interim 자료 중 0.25°×0.25° 해상도의 위도 35~38°N, 경도 126~129°E의 월별 평균 연직압력속도 (Vertical velocity, Pa s^{-1})에 대해서 살펴보았다(그림 4). 양의 연직압력속도는 수직적인 하강 기류, 음의 값은 수직적인 상승기류를 나타내며 관측

경로를 포함한 지역에서의 수직적인 대류 전송은 봄철인 3월부터 강화되기 시작하여 여름철인 6~8월에 제일 높게 발달되어 있는 것을 볼 수 있다. 이는 3월과 6월 사이 기상항공기에서 관측한 CH₄ 농도가 저고도에서부터 대기 상층까지 상승하는 경향과 비슷한 패턴을 보이고 있다. 한반도 지역도 여름 몬순강수에 따른 응결 잠열의 증가에 따라 대기의 수직전송이 강화되는 것을 알 수 있었으며 이는 CH₄과 같은 대기조성 물질의 연직분포특성을 결정하는 하나의 중요한 요인이다. 특정 지역에서 기후학적인 CH₄의 연직 계절분포를 이해하려면 좀 더 장기간의 정기 관측자료가 필요할 것으로 사료된다.

3.3 항공관측 CH₄과 CO, C₂H₆의 상관성 분석을 통한 CH₄ 배출원 특성 분석

3.3.1 2019년 기상항공기의 CH₄과 CO의 상관성 분석

1초 단위로 수집한 1.5 km 이하 고도 CH₄와 CO의 관측자료를 활용하여 1분 간격의 선형회귀분석을 수행하였으며, 1분간 관측 자료의 개수가 3개 이하면 선형회귀분석에서 제외하였다. 기상항공기의 대기 경계층 이하의 저고도 관측은 주로 서울~제주 항로에 따라 관측하였으며 2019년 월별로 따라 CO와 CH₄의

상관성 분석을 수행하였다. 관측자료 중 두 물질 간의 상관성이 $R^2 > 0.4$, $p\text{-value} < 0.05$ 인 자료를 선별하여 각 월에 수행한 캠페인별, 위도별 기울기를 나타냈다(그림 5). 관측된 회귀분석 기울기는 월별로 선명한 차이를 보이고 있다. 1월, 4월, 5월, 11월 수행한 캠페인에서는 CH₄/CO의 기울기가 0.1~0.4의 범위를 나타냈다. 선행 연구에서 지역 및 계절에 따라 관측한 CH₄/CO의 기울기를 표 1에 제시하였으며 이를 기상항공기에서 관측한 기울기와 비교해 보았다. 겨울철에 관측한 CH₄/CO의 기울기는 일본의 배경지역 관측소인 Hateruma에서 겨울에 중국/한국 기원의 기단에서 관측한 기울기인 0.2~0.4와 비슷한 수준이다(Tohjima *et al.*, 2014). 일본의 Hateruma 배경대기 관측소가 겨울철에 중국 동부 및 북부지역과 한반도 서쪽지역의 화석연료에 의한 영향을 주로 받는 것을 감안한다면 1월과 4월은 주로 화석연료의 영향을 받은 것으로 사료된다. 또한, Transport and Chemical Evolution Over the Pacific (TRACE-P) 캠페인 기간인 3~4월 중국 기원의 기단에서 관측한 CH₄/CO의 기울기 0.38 [ppb/ppb]와 비슷한 수준의 범위를 보이고 있기에 중국 기원의 화석연료 배출원의 영향을 받은 것으로 사료된다(Xiao *et al.*, 2004). 반면 5월과 10월은 전 구간의 관측자료가 모두 약 0.6 [ppb/ppb]의 CH₄/CO 기울기를

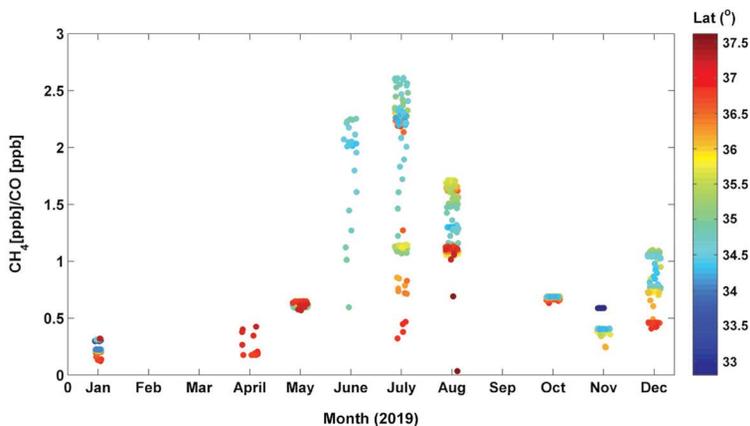


Fig. 5. One-minute regression slope (correlation coefficient $R^2 > 0.4$) between CH₄ and CO observed on King Air aircraft regular observations at below 1 km altitude of above mean sea level. The slopes between CH₄ and CO are colored with latitude along flight route.

Table 1. Linear regression slope of CH₄/C₂H₆ and CH₄/CO observed in previous studies at different regions and periods.

Studies (Periods)	Regions	Slope of CH ₄ /C ₂ H ₆	Slope of CH ₄ /CO
Xiao <i>et al.</i> , 2004 (March and April 2001)	Chinese outflow (> 30°N, 0~2 km)	43	0.38
	Tropical Asian outflow	42	0.46
	Japanese/Korean Plumes	45	0.65
Hsu <i>et al.</i> , 2010 (April 2007~Feb.2008)	Mt. Wilson observatory in southern California	-	0.52
Baker <i>et al.</i> , 2012 (June~September, 2008)	CARIBIC flight tracks between ~10°N and 40°N	91 ± 9 (June)	0.96 ± 0.11 (June)
		232 ± 26 (July)	1.88 ± 0.22 (July)
		353 ± 26 (Aug.)	4.43 ± 0.56 (Aug.)
		396 ± 73 (Sep.)	1.98 ± 0.23 (Sep.)
Tohjima <i>et al.</i> , 2014 (Nov.~Mar. 1999~2010)	Hateruma background site in Japan (East Asian outflow)	-	About 0.2~0.4

보이고 있다. 이는 화석연료, 바이오연료, 매립지, 농업활동 등 여러 가지 오염원이 혼재되어 있는 도심지역에서 관측한 기올기인 0.52 [ppb/ppb]와 TRACE-P 캠페인 한국/일본 기원의 기단에서 관측한 기올기인 0.65 [ppb/ppb]와도 비슷한 수준이다 (Hsu *et al.*, 2010; Xiao *et al.*, 2004). 물론 도심지역의 다양한 배출의 기여도에 따라 회귀분석 기올기의 범위는 다르게 나타날 수 있지만 지표면 온도와 습도가 상승하기 시작하는 5월부터 CH₄/CO의 기올기가 1월에 비해 높게 나타나고 있다. 반면, 6~8월 여름철에는 CH₄/CO의 기올기가 최대 2.5까지의 넓은 범위의 변동성을 보여주고 있으며, 최댓값은 모두 34.5°N 이하에서 관측되었다. 선행 연구 (Baker *et al.*, 2012)에서 두 물질의 기올기가 0.96~1.98 [ppb/ppb] 이상의 수준을 보이면 생물기원에 의한 CH₄의 기여를 추정할 바와 같이, 7월부터 8월까지 특히 한반도 35°N 이하 지역은 매립지, 축산, 농업활동에 의한 생물 기원 CH₄의 배출이 증가한 것으로 사료된다. 이는 KORUS-AQ 캠페인 전라도 평야지역에서 높은 CH₄/C₂H₆의 기올기를 보였던 양상과 비슷하다.

3. 3. 2 2016년 KORUS-AQ 캠페인 항공관측 CH₄과 C₂H₆의 상관성 분석

KORUS-AQ 기간 동안 서로 다른 기상 조건일 때 저고도 (~1.5 km) 관측 CH₄과 C₂H₆의 분포경향을 알아

Table 2. Synoptic-scale meteorological conditions during KORUS-AQ (May 2~June 10, 2016) as shown in Peterson *et al.* (2019) and Simpson *et al.* (2020). The dates below based on local Korean time (UTC + 9 hrs).

Meteorology conditions	Date	Features
Dynamic	2~15 May	Pollution transport
Stagnant	16~23 May	Local pollution
Transport	24~31 May	Extreme pollution
Blocking	1~10 June	Local pollution

보기 위하여, 그림 6에 두 물질의 산포도 (scatter plot)를 위도에 따라 제시하였다. Peterson *et al.* (2019)과 Simpson *et al.* (2020)의 선행 연구에 따르면 KORUS-AQ 캠페인 기간인 2016년 5~6월까지 한반도는 크게 4가지 기상조건의 영향을 받은 것으로 자세히 기술하고 있으며, 표 2에 간단히 제시하였다. 본 연구에서는 각 기상조건에 해당하는 대표적인 하루를 선별하여 CH₄과 C₂H₆와의 산포도를 제시하였다. 1) 5월 4일 사례: 종관기상은 활발한 대류 움직임과 함께 바람은 주로 서풍과 북풍이 우세한 관측일로 서울~제주, 서해항로에 따라 관측하였다. 2) 5월 18일 사례: 전반적으로 낮은 바람속도와 따듯한 지표면 온도에 따른 대기정체현상이 일어났으며 장거리 수송의 영향은 적은 기상조건이다. 서울~부산 항로관측과 서해 산업단지에서의 관측을 수행하였다. 3) 5월 30일 사례: 대류 움직임이 있고 장거리 수송이 다시 일어났으며, 서해와

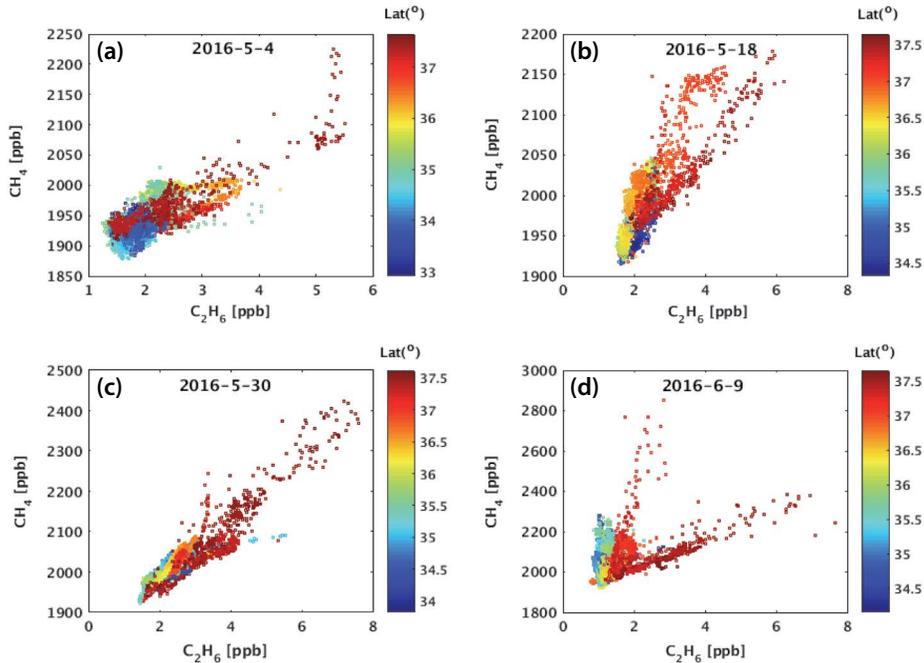


Fig. 6. Scatter plot between C_2H_6 and CH_4 colored with latitude along flight route on (a) 4 May, (b) 18 May, (c) 30 May, (d) 9 June during KORUS-AQ campaign.

서울~부산 항로에 따라 관측을 수행하였다. 4) 6월 9일 사례: 대기의 블로킹으로 장거리수송에 따른 오염보다는 지역 오염원이 우세한 날이며, 서울~제주 항로에 따른 관측을 수행하였다.

모든 사례에서 전반적으로 36.5°N 북쪽(서울, 경기도, 충청도, 서해 포함)지역은 그 아래 지역(충청도 이하)에 비해 CH_4 과 C_2H_6 의 높은 농도를 보이고 있다. 대류 움직임이 활발하여 장거리 수송의 영향이 존재한 5월 4일과 30일 사례의 경우, 두 물질의 농도가 모든 위도에 걸쳐 일정한 추세(CH_4/C_2H_6 회귀분석 기울기 약 67 [ppb/ppb])를 보임으로 관측 전 위도에 걸쳐 비슷한 오염원의 영향을 받은 것으로 사료된다. 하지만 대기가 정체했던 5월 18일과 6월 9일 사례의 경우 37.5°N 부근 수도권에서 관측한 농도와, 36.5°N 부근에서 서해 근처에서 관측한 CH_4/C_2H_6 의 회귀분석 기울기가 선명하게 다른 것을 알 수 있다. 선행 연구에서 지역 및 계절에 따라 관측한 CH_4/C_2H_6 의 기울기를 표

1에 제시하였으며 이를 KORUS-AQ 캠페인에서 관측한 기울기와 비교해 보았다. 6월 9일의 경우 수도권 지역에서의 기울기는 약 54 [ppb/ppb]로 TRACE-P 기간 한국/일본 기원 오염원에서 관측한 기울기와 비슷한 범위이다(Xiao *et al.*, 2004). 하지만 36.5°N 부근인 충청도 근처에서 관측한 기울기는 약 457 [ppb/ppb] 높은 값을 보이며 이는 C_2H_6 농도의 증가폭보다 CH_4 의 농도가 더 크게 증가한 것을 볼 수 있다. 이는 2008년 생물 기원의 배출이 활발한 몬순기간에 중~저위도 지역에서 관측한 기울기 값인 396 [ppb/ppb]보다 큰 값이다(표 1, Baker *et al.*, 2012). 미국 텍사스 Barnett Shale의 천연가스 생산지에서 관측한 경향은 CH_4 에 비해 C_2H_6 의 농도가 더 큰 폭으로 증가하였으며 이는 천연가스 누출은 CH_4 보다는 C_2H_6 의 영향이 지배적임을 알 수 있었다(Smith *et al.*, 2015). 때문에 한반도 36.5°N 부근 지역은 천연가스 누출보다는 CH_4 의 배출 기여가 큰 쓰레기 매립지, 농경지 등 배출원의 기

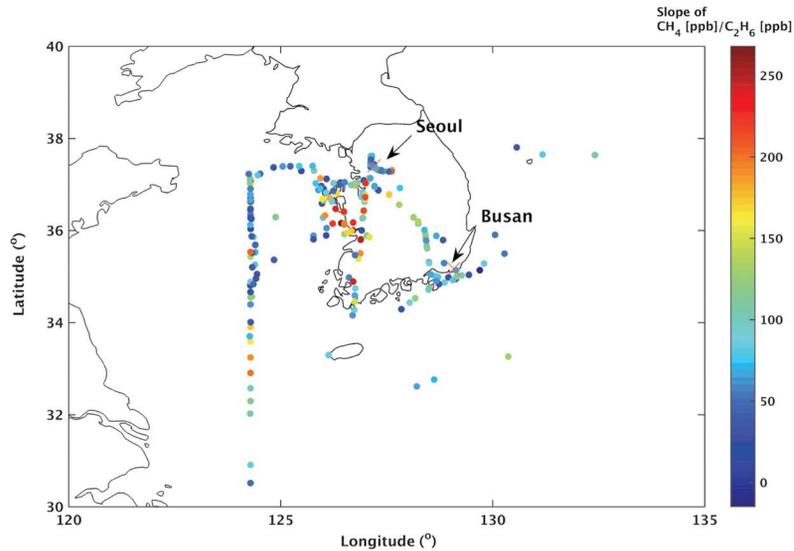


Fig. 7. Spatial distribution of linear regression slope (correlation coefficient $R^2 > 0.4$) between CH₄ and C₂H₆ observed during KORUS-AQ campaign for 2016.

여가 있을 것으로 예상된다. 특히 최근 선행 연구 (Chang *et al.*, 2021)에 따르면 서해산업단지 근처 (37.059°N, 127.234°E~37.087°N, 127.234°E)에서 항공기와 차량으로 관측한 CH₄ 농도는 같은 시기 MLO 관측소 농도보다 약 239~315 ppb 높은 것으로 나타났다. Weather Research and Forecasting and Stochastic Time-Inverted Lagrangian Transport (WRF-STILT) 모델로 배출원 지역을 추적한 결과, 근처의 축산과 해안선에 따른 산업단지가 고농도 CH₄의 주배출원인 것을 알아냈다. 또한, 보고되지 않은 공업쓰레기 매립지에서의 CH₄ 배출도 고농도 사례에 크게 기여한 것으로 추적하고 있다(Chang *et al.*, 2021).

두 물질의 기울기의 지역적인 특성을 확인하기 위해, KORUS-AQ 캠페인에서 관측한 2초 간격의 자료를 활용하여 5분 간격의 CH₄와 C₂H₆의 선형 회귀분석을 수행하였다(Li *et al.*, 2020; Halliday *et al.*, 2019). 5분 동안 2초 간격으로 관측한 자료 중 회귀분석에 사용한 자료가 3개 이하면 분석에서 제외하였다. 두 물질이 열로 인한 배출원을 통해 대기 중에 배출이 된다면 좋은 상관성을 보이겠지만, 미생물에 의한 배출원

일 경우 CH₄의 농도만 상승하여 상관성이 낮아질 것이다. 전체 5분 관측자료의 선형 회귀분석에서 약 37%의 자료는 두 물질 사이에 유의미한 상관성 ($R^2 > 0.4$, p -value < 0.05)을 보였고 나머지는 유의미한 상관성을 보이지 않았다. 그림 7에 유의미한 상관성을 보인 두 물질의 회귀분석 기울기(Linear Regression Slope, RS)를 제시하였다. KORUS-AQ 캠페인에서 관측한 CH₄과 C₂H₆의 회귀분석 기울기는 서울, 부산 도심지역은 약 53 [ppb/ppb]으로 이는 2004년 3~4월 TRACE-P 항공관측 캠페인 기간 아시아대륙 기원에서 관측된 CH₄과 C₂H₆의 도심에서의 화석연료의 (42~45 [ppb/ppb]) 기울기와 비슷한 범위로(Xiao *et al.*, 2004) 화석연료의 기원에 가까운 배출원의 영향임을 시사한다. 서해산업단지, 충청도 등 지역은 높은 수준인 평균 약 250 [ppb/ppb] 이상까지 관측되었다. 서해산업단지 등 서해 근처에서 관측된 기울기는 높은 메탄의 농도에 의한 것으로 추정되며 공업매립지, 축산 등 CH₄의 생물기원 배출이 존재함을 의미한다(Chang *et al.*, 2012). 하지만 서울~제주와 서울~부산 내륙지역에서는 평균 약 150 [ppb/ppb]으로 관측되었

으며, 전라도 평야지역에서는 두 물질의 기올기는 최고로 약 200 [ppb/ppb] 수준을 초과하는 점을 감안하면, C₂H₆에 비해 CH₄의 농도가 내륙지역에서는 높게 관측되었음을 의미한다. 전라도 지역은 여름철 벼 재배에 따른 농업활동이 활발하며 KORUS-AQ 기간인 5~6월은 배아기간이라 토양에서 CH₄의 배출에 의한 기어가 시작되는 시점으로 사료된다 (Shim *et al.*, 2016).

4. 요약 및 결론

본 연구는 2016년부터 2019년까지 지표관측과 항공관측의 비교를 통해 항공관측 CH₄ 농도의 시공간 특성을 살펴보았다. 2016년 5~6월 한-미대기질 공동조사(KORUS-AQ) 중 DC-08 항공기로 대기 상층 FT (2~8 km)에서 관측한 CH₄과 2018~2019년 기상청 기상항공기(King Air 350HW)로 FT에서 관측한 CH₄의 농도는 북서태평양 약 5~6 km 고도 대기 시료에서 분석한 농도와 비슷한 수준이지만, 한반도 배경대기관측소에서 관측한 값보다 40~80 ppb 낮은 값을 나타냈다. 이는 지표에서 CH₄의 배출속도가 대기 중에서 희석되거나 제거되는 속도에 비해 큰 것을 의미한다. 이는 CH₄의 시공간 분포의 특성에서도 보이듯이 지표 근처에서 MLO 배경농도에 비해 250 ppb 이상 높은 농도들이 한국 전위도에 걸쳐 나타났다. 저고도뿐 아니라 대기 상층에서도 MLO 배경농도에 비해 150 ppb 이상 높은 농도가 2016년 KORUS-AQ 20회 비행 중 약 6회 비행, 2019년 기상항공기 43회 정규 비행 중 9회 비행에서 관측되었으며 지표 배출원의 장거리 수송에 따른 영향으로 사료된다.

2016년 KORUS-AQ 캠페인 대기경계층 이하 고도에서 관측한 37%의 CH₄과 C₂H₆ 사이에 유의미한 상관성(R²>0.4)을 나타냈다. 두 물질의 회귀분석 기올기의 지역적인 특성을 살펴보면, 서울과 부산 도심 지역에서는 CH₄/C₂H₆의 기올기가 평균 약 53 [ppb/ppb]으로 계산되었으며 이는 화석연료의 배출 특징을 보

인 선행 연구와 유사한 값이다. 서해산업단지 근처에서는 CH₄/C₂H₆의 기올기가 약 250 [ppb/ppb]를 초과하는 값들도 관측되면서 CH₄의 강한 오염원이 존재함을 시사한다. 한반도 내륙지역(서울~제주, 서울~부산) 항로 중 전라도 근처에서는 기올기가 약 150~250 [ppb/ppb]의 범위로 도심에 비해 높은 값을 보였다. 2019년 특히 여름철 6~8월에 기상항공기로 관측한 CH₄/CO 기올기도 최고 2.5 [ppb/ppb]의 높은 회귀분석 기올기를 보이며 특히 35°N 이하 지역이 높은 값을 보이고 있다. 서해산업단지 및 전라도 지역에서의 높은 CH₄/C₂H₆와 CH₄/CO 회귀분석기올기는 쓰레기 매립지, 농경, 축산 등 생물 기원에 의한 CH₄의 농도가 증가하면서 나타난 것으로 사료된다. 본 연구는 CO와 더불어 C₂H₆ 등 CH₄의 추적자로 활용되는 추가 관측요소가 정기적인 장기 관측자료로 활용될 때 조밀한 지역적인 기원정보를 제시할 수 있음을 시사한다. 향후 좀 더 장기적인 항공관측자료를 수집하여 한반도에서 기후학적인 CH₄의 계절 연직분포와 오염원 특성 연구가 필요하다.

감사의 글

본 논문의 개선을 위해 좋은 의견을 제시해 주신 두분의 심사위원님께 감사를 드립니다. 이 연구는 기상청 국립기상과학원 「기후변화 입체감시 기술개발연구」(KMA2018-00324)의 지원으로 수행되었습니다. KORUS-AQ 캠페인 DC-08 항공기의 CH₄의 관측을 수행한 NASA 항공관측 팀의 Glenn S. Diskin, C₂H₆의 관측을 수행한 콜로라도 대학교 INSTAA의 Alan Fried, Petter Weibring, Dirk Richter, James Welega에 감사드리고 모든 자료는 NASA 홈페이지에서 제공받았습니다(www.air.larc.nasa.gov/cgi-bin/ArcView/korusaq). 연직바람속도 (Vertical velocity)는 ECMWF에서 제공받았습니다. 일본 기상청 항공기 플라스크 CH₄ 분석자료는 World Data Centre for Greenhouse Gases (WDCGG)에서 제공받았습니다. 또한, 기상항

공기의 관측을 지원해준 국립기상과학원의 기상항공기 연구운영 팀, 기상항공기의 기장, 정비사, 기상관측 장비 운영자 분들께 감사드립니다.

References

- Baker, A.K., Schuck, T.J., Brenninkmeijer, C.A.M., Rauthe-Schöch, A., Slemr, F., van Velthoven, P.F.J., Lelieveld, J. (2012) Estimating the contribution of monsoon-related biogenic production to methane emissions from South Asia using CARBIC observations, *Geophysical Research Letters*, 39(10), L10813. <https://doi.org/10.1029/2021GL051756>
- Chang, D.Y., Jeong, S., Oh, E., Sim, S., Kim, Y., Park, C., Park, H., Kim, J., Kim, J., Park, J., Kim, H., Choi, J.-S. (2021) Finding the missing link in methane emission inventories using aircraft and mobile observations. *Asia-Pacific Journal of Atmospheric Sciences*, 236. <https://doi.org/10.1007/s13143-021-00248-z>
- Cicerone, R.J., Oremland, R.S. (1988) Biogeochemical aspects of atmospheric methane, *Global Biogeochemical Cycles*, 2(4), 299-327. <https://doi.org/10.1029/GB002i004p00299>
- Crawford, J.H., Ahn, J.-Y., Al-Saadi, J., Chang, L., Emmons, L.K., Kim, J., Lee, G., Park, J.-H., Park, R.J., Woo, J.H., Song, C.-K., Hong, J.-H., Hong, Y.-D., Lefer, B.L., Lee, M., Lee, T., Kim, S., Min, K.-E., Yum, S.S., Shin, H.J., Kim, Y.-W., Choi, J.-S., Park, J.-S., Szykman, J.J., Long, R.W., Jordan, C.E., Simpson, I.J., Fried, A., Dibb, J.E., Cho, S.Y., Kim, Y.P. (2021) The Korea-United States Air Quality (KORUS-AQ) field study, *Elementa: Science of the Anthropocene*, 9(1), 2-27. <https://doi.org/10.1525/elementa.2020.00163>
- Diskin, G.S., Sachse, G.W., DiGangi, J.P., Pusede, S.E., Slate, T.A., Rana, M. (2014) Development and application of a new DACOM airborne trace gas instrument based on room-temperature laser and detector technology and all-digital control and data processing, *American Geophysical Union Fall Meeting: Abstract ID A33B-3179*. San Francisco, CA.
- Frankenberg, C., Bergamaschi, P., Butz, A., Houweling, P.S., Meirink, J.F., Notholt, J., Petersen, A.K., Schrijver, H., Warneke, T., Aben, I. (2008) Tropical methane emissions: A revised view from SCIAMACHY onboard ENVISAT, *Geophysical Research Letters*, 35(15). <https://doi.org/10.1029/2008GL034300>
- Ganesan, A.L., Schwietzke, S., Poulter, B., Arnold, T., Lan, X., Rigby, M., Vogel, F.R., van der Werf, G.R., Janssens-Maenhout, G., Boesch, H., Pandey, S., Manning, A.J., Jackson, R.B., Nisbet, E.U., Manning, M.R. (2019) Advancing scientific understanding of global methane budget in support of the Paris Agreement, *Global Biogeochemical Cycles*, 33(12), 1475-1512. <https://doi.org/10.1029/2018GB006065>
- Halliday, H.S., DiGangi, J.P., Choi, Y., Diskin, G.S., Pusede, S.E., Rana, M., Nowak, J.B., Knote, C., Ren, X., He, H. (2019) Using short-term CO/CO₂ ratios to assess air mass differences over the Korean peninsula during KOURS-AQ, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 124, 10951-10972. <https://doi.org/10.1029/2018JD029697>
- Heimann, M. (2009) Searching out the skins, *Nature Geoscience*, 2, 3-4. <https://doi.org/10.1038/ngeo405>
- Hsu, Y.K., Vancuren, T., Park, S., Jakober, C., Herner, J., FitzGibbon, M., Blake, D.R., Parrish, D.D. (2010) Methane emissions inventory verification in southern California, *Atmospheric Environment*, 44, 1-7. <https://doi.org/10.1016/J.Atmosenv.2009.10.002>
- Kai, F.M., Tyler, S.C., Randerson, J.T., Blake, D.R. (2011) Reduced methane growth rate explained by decreased Northern Hemisphere microbial sources, *Nature*, 476(7359), 194-197.
- Kavitha, M., Nair, P.R. (2016) Non-homogeneous vertical distribution of methane over Indian region using surface distribution of methane over Indian region using surface, aircraft and satellite-based data, *Atmospheric Environment*, 141, 174-185. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.06.068>
- Kenea, S.T., Lee, H., Joo, S.-W., Li, S., Labzovskii, L.D., Chung, C.-Y., Kim, Y.-H. (2021) Interannual variability of atmospheric CH₄ and its driver over South Korea captured by integrated data in 2019, *Remote Sensing*, 13, 2266. <https://doi.org/10.3390/rs13122266>
- Keppler, F., Hamilton, J.T.G., Brass, M., Rockmann, T. (2006) Methane emissions from terrestrial plants under aerobic conditions, *Nature*, 439, 187-191. <https://doi.org/10.1038/nature04420>
- Korean Meteorological Administration (KMA) (2021) Korean Meteorological Administration Report of global atmosphere Watch, 2021. 6.
- Lee, H., Han, S.-O., Ryoo, S.-B., Lee, J.-S., Lee, G.-W. (2019) The measurement of atmospheric CO₂ at kma GAW regional stations, its characteristics, and comparisons with other East Asian sites, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19, 2149-2163. <https://doi.org/10.5194/>

- acp-19-2149-2019
- Li, S., Goo, T.-Y., Moon, H., Labzovskii, L.D., Kenea, S.T., Oh, Y.-S., Lee, H., Byun, Y.-H. (2019) Airborne In-situ Measurement of CO₂ and CH₄ in Korea: Case Study of Vertical Distribution Measured at Anmyeon-do in Winter Atmosphere. *Korean Meteorological Society*, 29(5), 511-523, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.14191/Atmos.2019.29.511>
- Li, S., Kim, J., Kim, K.-R., Mühle, J., Kim, S.-K., Park, M.-K., Stohl, A., Kang, D.-J., Arnold, T., Harth, C.M., Salameh, P.K., Weiss, R.F. (2011) Emissions of halogenated compounds in East Asia determined from measurements at Jeju Island, Korea, *Environmental Science and Technology*, 45(13), 5668-5675. <https://doi.org/10.1021/es104124k>
- Li, S., Kim, Y., Kim, J., Kenea, S.T., Goo, T.-Y., Labzovskii, L.D., Byun, Y.-H. (2020) In situ aircraft measurements of CO₂ and CH₄: Mapping spatio-temporal variations over western Korea in high-resolutions, *Remote Sensing*, 12, 3093. <https://doi.org/10.3390/rs12183093>
- Li, S., Park, S., Lee, J.-Y., Ha, K.-J., Park, M.-K., Jo, C.O., Oh, H., Mühle, J., Kim, K.-R., Montzka, S.A., O'Doherty, S., Krummel, P.B., Atlas, E., Miller, B.R., Moore, F., Weiss, R.F., Wofsy, S.C. (2018) Chemical evidence of inter-hemispheric air mass intrusion into to Northern Hemisphere mid-latitudes, *Scientific Reports*, 8, 4669. <https://doi.org/10.1038/s41598-018-22266-0>
- Miller, J.B., Gatti, L.V., d'Amelio, M.T.S., Crotwell, A.M., Dlugokencky, E.J., Bakwin, P., Artaxo, P., Tans, P.P. (2007) Airborne measurements indicate large methane emissions from the eastern Amazon basin, *Geophysical Research Letters*, 34, L10809. <https://doi.org/10.1029/2006GL029213>
- Myhre, G., Shindell, D., Bréon, F.-M., Collins, W., Fuglestedt, J., Huang, J., Koch, D., Lamarque, J.-F., Lee, D., Mendoza, B., Nakajima, T., Robock, A., Stephens, G., Takemura, T., Zhang, H. (2013) Anthropogenic and Natural Radiative Forcing. In: *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Peischl, J., Ryerson, T.B., Brioude, J., Aikin, K.C., Andrews, A.E., Atlas, E., Blake, D., Daube, B.C., de Gouw, J.A., Dlugokencky, E. (2013) Quantifying sources of methane using light alkanes in the Los Angeles basin, *California, Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 118(10), 4974-4990.
- Peng, S., Piao, S., Bousquet, P., Ciais, P., Li, B., Lin, X., Tao, S., Wang, Z., Zhang, Y., Zhou, F. (2016) Inventory of anthropogenic methane emissions in mainland China from 1980 to 2010, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16, 14545-14562. <https://doi.org/10.5194/acp-16-14545-2016>
- Peterson, D.A., Hyer, E.J., Han, S.-O., Crawford, J.H., Park, R.J., Holz, R., Kuehn, R.E., Eloranta, E., Knote, C., Jordan, C.E., Lefer, B.L. (2019) Meteorology influencing springtime air quality, pollution transport, and visibility in Korea, *Elementa: Science of the Anthropocene*, 7(57), 2-23. <https://doi.org/10.1525/elementa.395>
- Richter, D., Weibring, P., Walega, J., Fried, A., Spuler, S.M., Taubman, M.S. (2015) Compact highly sensitive multi-species airborne mid-IR spectrometer, *Applied Physics B*, 119, 119-131. <https://doi.org/10.1007/s00340-015-6038-8>
- Rudolph, J. (1995) The tropospheric distribution and budget of ethane, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 100(6), 11369-11381. <https://doi.org/10.1029/95JD00693>
- Shim, K.-M., Min, S.-H., Kim, Y.-S., Jung, M.-P., Choi, I.-T., Kang, K.-K. (2016) Comparison of carbon budget between rice-barley double cropping and rice mono cropping filed in Gimje, South Korea, *Korean Journal of Agricultural and Forest Meteorology*, 20, 88-100, (in Korean with English abstract).
- Simpson, I.J., Andersen, M.P.S., Meinardi, S., Bruhwiler, L., Blake, N.J., Helmig, D., Rowland, F.S., Blake, D.R. (2012) Long-term decline of global atmospheric ethane concentrations and implications for methane, *Nature*, 488(7412), 490-494.
- Simpson, I.J., Blake, D.R., Blake, N.J., Meinardi, S., Barletta, B., Hughes, S.C., Fleming, L.T., Crawford, J.H., Diskin, G.S., Emmons, L.K., Fried, A., Guo, H., Peterson, D.A., Wisthaler, A., Woo, J.-H., Barré, J., Gaubert, B., Kim, J., Kim, M.J., Kim, Y., Knote, C., Mikoviny, T., Pusede, S.E., Schroeder, J.R., Wang, Y., Wennberg, P.O., Zeng, L. (2020) Characterization, sources and reactivity of volatile organic compounds (VOCs) in Seoul and surrounding regions during KORUS-AQ, *Elementa: Science of the Anthropocene*, 8(37), 2-29. <https://doi.org/10.1525/elementa.434>
- Smith, M.L., Kort, E.A., Karion, A., Sweeney, C., Herndon, S.C., Yacovitch, T. I. (2015) Airborne ethane observations in the Barnett Shale: Quantification of ethane flux and attribution of methane emissions, *Environmental Sci-*

- ence & Technology, 49, 8158-8166. <https://doi.org/10.1021/acs.est.5b00219>
- Tang, W., Arellano, A.F., DiGangi, J.P., Choi, Y., Diskin, G.S., Parrington, A.M., Massart, S., Gaubert, B., Lee, Y., Kim, D., Jung, J., Hong, J., Hong, J.-W., Kanaya, Y., Lee, M., Stauffer, R.M., Thompson, A.M., Flynn, J.H., Woo, J.-H. (2018) Evaluating high-resolution forecasts of atmospheric CO and CO₂ from a global prediction system during KORUS-AQ field campaign, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18, 11007-11030. <https://doi.org/10.5194/acp-18-11007-2018>
- Tohjima, Y., Kubo, M., Minejima, C., Mukai, H., Tajimoto, H., Ganshin, A., Maksyutov, S., Katsumata, K., Machida, T., Kita, K. (2014) Temporal changes in the emissions of CH₄ and CO from China estimated from CH₄/CO₂ and CO/CO₂ correlations observed at Hateruma Island, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(3), 1663-1677. <https://doi.org/10.5194/acp-14-1663-2014>
- Tzompa-Sosa, Z.A., Mahieu, E., Franco, B., Keller, C.A., Turner, A.J., Helmig, D., Fried, A., Richter, D., Weibring, P., Walega, J., Yacovitch, T.I., Herndon, S.C., Blake, D.R., Hase, F., Hannigan, J.W., Conway, S., Strong, K., Schneider, M., Fischer, E.V. (2017) Revisiting global fossil fuel and biofuel emissions of ethane, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 122, 2493-2512. <https://doi.org/10.1002/2016JD025767>
- World Meteorological Organization (WMO) (2021) The Statement on the state of greenhouse gases in the atmosphere based on global observations through 2020, WMO Greenhouse Gas Bulletin, No.27, 2021.
- Xiao, Y., Jacob, D.J., Wang, J.S., Logan, J.A., Palmer, P.I., Suntharalingam, P., Yantosca, R.M., Sachse, G.W., Blake, D.R., Streets, D.G. (2004) Constraints on Asian and European sources of methane from CH₄-C₂H₆-CO correlations in Asian outflow, *Journal of Geophysical Research*, 109, D15S16. <https://doi.org/10.1029/2003JD004475>
- Yokouchi, Y., Inagaki, T., Yazawa, K., Tamaru, T., Enomote, T., Izumi, K. (2005) Estimates of ratios of anthropogenic halocarbon emissions from Japan based on aircraft monitoring over Sagami Bay, Japan, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 110, D06301. <https://doi.org/10.1029/2004JD005320>

Authors Information

- 이선란 (국립기상과학원 미래기반연구부 선임연구원)
(sunranlee@korea.kr)
- 이해영 (국립기상과학원 미래기반연구부 기상연구사)
(leehy80@korea.kr)
- 박미경 (극지연구소 해양연구본부 연구원)
(mkpark333@gmail.com)
- 정주용 (국립기상과학원 미래기반연구부 기상연구관)
(cychung@kma.go.kr)
- 김연희 (국립기상과학원 미래기반연구부 부장)
(kyh@kma.go.kr)