

논문

안면도 지구대기감시소에서 2005년부터 2024년까지 관측된 에어로졸 입경별 수농도 분포 및 입자 생성 현상의 계절적 특성

Seasonal Characteristics in Aerosol Number Size Distribution and New Particle Formation (NPF) Observed at Anmyeondo Global Atmosphere Watch (GAW) Station from 2005 to 2024

박은호¹⁾, 한중헌²⁾, 유희정²⁾, 양세환²⁾, 김수민²⁾, 김영아²⁾,
원덕진²⁾, 김만해¹⁾, 김상우^{1),3),*}

¹⁾서울대학교 지구환경과학부, ²⁾국립기상과학원 지구대기감시연구과,
³⁾서울대학교 기후대기환경연구소

Eunho Park¹⁾, Jongheon Han²⁾, Hee-Jung Yoo²⁾, Se-Hwan Yang²⁾,
Sumin Kim²⁾, Young-Ah Kim²⁾, Dukjin Won²⁾, Man-Hae Kim¹⁾,
Sang-Woo Kim^{1),3),*}

¹⁾School of Earth and Environmental Sciences, Seoul National University, Seoul, Republic of Korea

²⁾Global Atmospheric Watch and Research Division, National Institute of Meteorological Sciences, Jeju, Republic of Korea

³⁾Climate and Atmospheric Environment Research Institute, Seoul National University, Seoul, Republic of Korea

접수일 2025년 4월 7일
수정일 2025년 5월 8일
채택일 2025년 5월 9일

Received 7 April 2025
Revised 8 May 2025
Accepted 9 May 2025

*Corresponding author
Tel : +82-(0)2-880-6716
E-mail : sangwookim@snu.ac.kr

Abstract This study examines the seasonal characteristics of particle number size distribution and new particle formation using 20-year dataset (2005-2024) from Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) measurements from the Anmyeondo Global Atmospheric Watch (GAW) station. While nucleation mode particles with a diameter (D_p) smaller than 25 nm constituted only 13% ($441 \pm 1,005 \text{ cm}^{-3}$) of the mean concentration ($3,989 \pm 794 \text{ cm}^{-3}$), they exhibited distinct diurnal patterns compared to Aitken ($25 \text{ nm} < D_p < 100 \text{ nm}$) and accumulation ($100 \text{ nm} < D_p < 500 \text{ nm}$) modes with significant enhancement during daytime (9~17 LST), indicating active particle formation. This notable surge in nucleation mode concentration varied in both magnitude and timing across seasons, reflecting seasonal differences in particle formation intensity and frequency. Cyclostationary empirical orthogonal function (CSEOF) analysis identified strong new particle formation (NPF) events on 13% (658 days) of the total observation days (5,229 days). Autumn exhibited the highest strong-NPF frequency (22%) associated with local pollutant transport under easterly winds, characterized by enhanced growth and formation rates. Winter and spring each demonstrated an 11% frequency of strong-NPF under continental high-pressure conditions that reduced preexisting aerosol concentrations and promoted cloud-free conditions, thereby increasing surface solar radiation and creating favorable environments for particle nucleation. The lowest NPF frequency (9%) during summer can be attributed to clean maritime Pacific air masses and active wet removal processes. The observed pronounced diurnal and seasonal variations in nucleation mode particles underscore the complex interplay between meteorological conditions, air mass origins, and precursor availability in controlling particle formation and growth in the coastal environment.

Key words: Anmyeondo GAW Station, Particle number size distribution, New particle formation, Nucleation-mode particles

1. 서론

에어로졸은 태양복사를 산란·흡수하여 직접적으로

지구복사수지에 영향을 미치며(Kim *et al.*, 2014; Nemessure *et al.*, 1995), 구름 응결핵(Cloud Condensation Nuclei; CCN)으로도 작용하여 구름의 형성과 강수 효

을 변화시킨다(Ramanathan *et al.*, 2001; Twomey, 1974). 특히 구름 응결핵으로 작용하는 에어로졸의 10~80%는 대기 중에서 생성되어 성장한 입자이다(Zhao *et al.*, 2024; Kulmala *et al.*, 2004).

입자 생성(New Particle Formation, NPF)은 가스상의 전구물질(예, 이산화황, 질소산화물, 암모니아 및 휘발성 유기화합물)이 광화학 반응에 의한 산화 및 응집을 통해 에어로졸 입자로 변환되는 과정이다. 태양복사는 광화학 반응을 통해 전구물질을 산화시키 이들의 응집을 촉진하는 역할을 한다(Kerminen *et al.*, 2018; Dada *et al.*, 2017; Kim *et al.*, 2014). 이산화황 및 휘발성 유기화합물과 같은 전구물질은 농도가 높을수록 핵생성(nucleation)을 촉진하여 입자 생성률(Formation Rate; FR)을 증가시킨다(Park, 2023; Kim *et al.*, 2011). 그러나, 대기 중에 존재하는 에어로졸(pre-existing aerosol)의 농도가 높을수록 응축 손실(Condensation Sink; CS)이 증가하여 가스상의 전구물질이 기존 에어로졸에 흡착되면서 입자 생성이 억제된다(Park *et al.*, 2021; Dal Maso *et al.*, 2005). 기상 요소 또한 입자 생성에 영향을 미치는데, 일반적으로 기온이 높고 습도가 낮은 날에 입자 생성이 활발하게 나타나는 경향이 보고되었다(Dada *et al.*, 2017; Kim *et al.*, 2016).

입자 생성 현상에 영향을 미치는 전구물질의 농도와 기상·환경적 요인은 계절에 따라 변화하므로 입자 생성 현상의 빈도 또한 계절적 차이를 보인다(Nieminen *et al.*, 2018). 일반적으로 고위도 지역의 입자 생성은 일사량이 적은 겨울철보다 여름철에 더 빈번하게 발생하는 반면, 중위도 지역에서는 전구물질의 배출량이 상대적으로 적고 강수 현상이 빈번한 여름철보다 봄철이나 가을철에 더 활발한 입자 생성 현상이 관측된다(Kerminen *et al.*, 2018). 더 나아가, 배출원의 전구물질 배출 특성과 국지적 기상 조건에 따라 입자 생성 현상의 발생 시점, 지속시간 및 강도가 크게 달라진다(Lee *et al.*, 2021; Kim *et al.*, 2016; Park *et al.*, 2015).

국내에서 보고된 입자 생성 현상에 대한 연구는 대부분 특정 계절 또는 수년 미만의 비교적 단기간 관측

자료를 바탕으로 수행되어, 장기간에 걸친 평균적인 특성 파악에는 한계가 있었다. 이에 본 연구에서는 안면도 지구대기감시소에서 2005년부터 2024년까지 20년간 관측된 입경별 수농도 분포 자료를 분석하여 계절별 입자 생성 및 성장 현상의 특성을 규명하고, 국내 선행 연구에서 보고된 입자 생성 특성과 비교 분석하였다. 또한 장거리 수송에 의한 입자 생성 기여도와 함께 안면도 지구대기감시소 주변에 위치한 국지 배출원(화력발전소, 석유화학 산업단지 등)의 영향도 논의하였다.

2. 연구 방법

2.1 관측자료

본 연구에서는 안면도 지구대기감시소(36°32'N, 126°19'E, 해발 45.7 m)에서 2005년 1월부터 2024년 6월까지 약 20년간 Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS, 전자유도 입자계수기)로 관측된 에어로졸의 입경별 수농도 자료를 분석하였다(NIMS, 2021; Kim *et al.*, 2013). 관측 장비와 관련하여, 2005년 1월부터 2016년 1월까지 TSI사의 SMPS (모델: TSI 3034)를 이용하여 54개 빈(bin)으로 구분된 직경 10~487 nm 범위의 에어로졸 수농도를 측정하였고, 2016년 2월부터 2024년 6월까지 GRIMM사의 SMPS (모델: GRIMM 5.416)을 사용하여 141개 빈으로 구분된 8~1200 nm 범위의 에어로졸 입경별 수농도를 관측하였다. 두 장비 간 측정 입경 범위와 분해능 차이를 해소하고 일관된 분석을 위해 본 연구에서는 GRIMM 5.416의 측정 데이터를 2차 보간법(interpolation)을 이용하여 TSI 3034의 입경 범위(10~487 nm)에 맞춰 54개 빈으로 재구성한 후 분석하였다(Park *et al.*, 2023; Joshi *et al.*, 2012). 한편, 입자 생성 현상과 기상요소와의 연관성을 분석하기 위해 전천일사계(EKO, MS-802F)로 관측된 태양복사 자료와 이산화황 분석기(THERMO, 43i)로 측정된 이산화황의 농도를 분석하였다(NIMS, 2021).

2.2 입자 생성 현상의 판별 기법

본 연구에서는 Cyclostationary Empirical Orthogonal Function (CSEOF, 중첩된 순환·경험적 직교 함수) 기법을 20년간 관측된 에어로졸의 입경별 수농도 분포 자료에 적용하여 입자의 생성 및 성장 현상을 판별하였다. CSEOF 기법은 주어진 자료의 전체 변동성을 다양한 모드(mode)로 분해하고, 각 모드는 Cyclostationary Loading Vector (CSLV, 순환적 부하 벡터)와 해당 모드의 시간적 변동을 나타내는 Principal Component (PC, 주성분) 시계열로 표현된다(식 (1); Kim *et al.*, 2013; Kim *et al.*, 1996).

$$T(r, t) = \sum_n CSLV_n(r, t) PC_n(t) \quad (1)$$

여기서, T 는 본 연구에서 분석하고자 하는 에어로졸의 입경별 수농도 자료이며, r 은 SMPS가 관측하는 에어로졸의 입경 크기, t 는 시간을 나타낸다. CSEOF 분석에서는 CSLV가 주기적으로 반복됨을 가정하는데, 입자 생성 현상이 주로 하루 주기, 특히 주간에 발생하므로 본 연구에서는 CSLV의 주기(d)를 24시간으로 설정하였다(식 (2); Park *et al.*, 2021; Kim *et al.*, 2013). 이에 따라 CSLV는 일변화에 따른 입경별 수농도 분포의 특성을 보여준다(Kim *et al.*, 2013).

$$CSLV_n(r, t) = CSLV_n(r, t + d) \quad (2)$$

2.3 입자 생성률, 입자 성장률, 응축 손실의 계산

본 연구에서는 직경 10~25 nm 범위의 입자 생성률을 Dal Maso *et al.* (2005)이 제시한 방법에 따라 핵생성 모드 수농도의 변화율, 응집으로 인한 입자 손실률, 그리고 핵생성 모드를 벗어나 성장하는 입자의 유출량을 합하여 계산하였다. 입자 성장률(Growth Rate; GR)은 핵생성 모드 입자가 다른 입자와 응집하면서 성장하는 속도를 의미하며, Kulmala *et al.* (2004)이 제안한 방법에 따라 최빈 직경(modal diameter)의 시간에 따른 선형적 증가율로 계산하였다. 본 연구에서는 10 nm부터 핵생성 모드의 경계인 25 nm까지의 성장률을 산출하였다. 전구 에어로졸 입자에 황산이나 저휘발성 유기화합물과 같은 기체상 전구물질이 응축되어 사라지는 속도를 나타내는 응축 손실률은 Pirjola

et al. (1999)이 제시한 방법에 기초하여 각 입경에서의 응축 속도에 수농도를 곱한 후, 전체 입경에 대해 적분하여 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 입경별 수농도의 계절 변동성

그림 1(a)는 안면도 지구대기감시소에서 SMPS를 이용해 2005년부터 2024년까지 관측한 에어로졸 입경별 수농도의 연평균 및 계절별 일변화와 그 표준편차를 나타낸 것이다. 연평균 총 수농도는 $3,989 \pm 794 \text{ cm}^{-3}$ 였으며, 그중 핵생성 모드(nucleation mode, $D_p < 25 \text{ nm}$)는 13% ($1,005 \pm 44 \text{ cm}^{-3}$)를 차지하였다. 이는 에이트킨 모드(Aitken mode, $25 < D_p < 100 \text{ nm}$)와 축적 모드(Accumulation mode, $100 < D_p < 500 \text{ nm}$)가 각각 50% ($2,004 \pm 1,483 \text{ cm}^{-3}$)와 37% ($1,545 \pm 985 \text{ cm}^{-3}$)를 차지하는 것보다 낮은 수치이다. 반면, 핵생성 모드의 수농도는 에이트킨과 축적 모드에 비해 뚜렷한 일변화를 보이며, 특히 주간(9~17시)에 급격히 증가하는 특징을 나타낸다(그림 S1). 핵생성 모드의 수농도 표준편차 또한 주간에 높은 값을 보이며, 높은 수농도를 보이는 입경이 시간에 따라 점차 증가하는 ‘바나나 모양(banana shape)’의 패턴을 나타낸다. 배경 대기지역에 위치한 안면도 지구대기감시소의 경우, 이와 같은 낮 시간 동안의 핵생성 모드 수농도의 변화는 출퇴근 시간대의 교통에 의한 연소 배출이 아닌 입자 생성 현상에 기인한다(Kalivitis *et al.*, 2019; Kim *et al.*, 2013).

계절에 따른 입경별 수농도 분포에서, 핵생성 모드는 다른 모드에 비해 계절 간 수농도 변동성이 뚜렷하게 나타난다(그림 1, 그림 S1). 핵생성 모드의 수농도는 일출 이전(6시 기준)에는 계절 간 차이가 약 50 cm^{-3} 에 불과하지만, 일출 이후 13시에는 약 $1,250 \text{ cm}^{-3}$ 까지 증가하였다. 여름철에는 상대적으로 낮은 전구물질의 농도와 잦은 강수에 의한 세정 효과로 수농도가 455 cm^{-3} 까지 증가하는 데 그쳤으나, 가을철에는 약 $1,728 \text{ cm}^{-3}$ 의 수농도가 관측되었다. 핵생성된 입

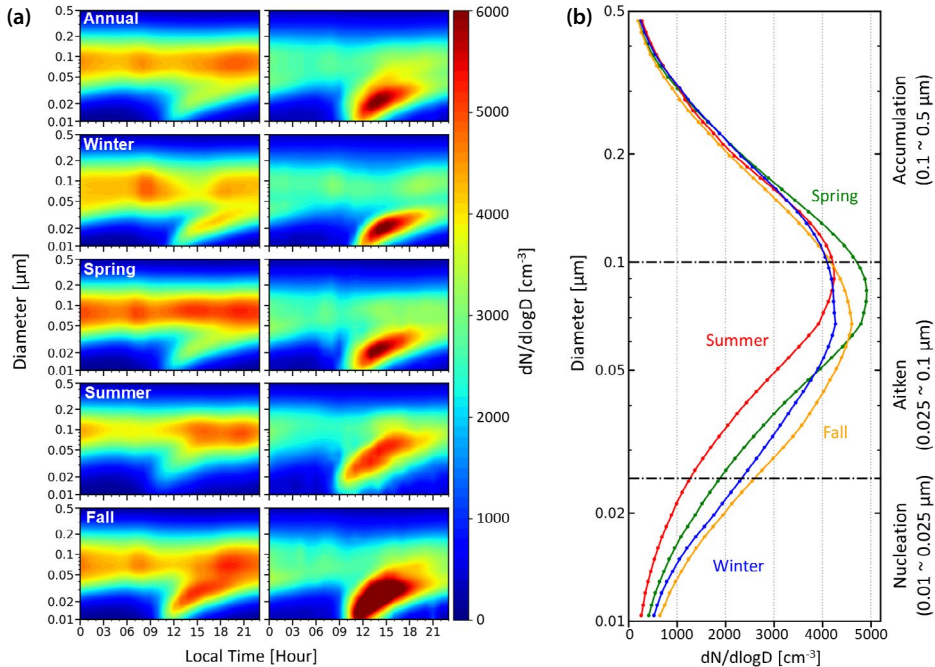


Fig. 1. (a) Diurnal variation of particle number size distribution (left panel) along with their standard deviation (right panel) and (b) Seasonal variation of particle number size distribution observed at Anmyeondo GAW Station from 2005 to 2024.

자가 15시 이후 에이트킨 모드로 성장하면서, 에이트킨 모드의 계절별 수농도 편차는 늦은 오후에 두드러지게 나타난다. 반면, 입자 생성의 직접적인 영향을 받지 않는 축적 모드의 수농도는 계절별 일변화에 있어 뚜렷한 차이를 보이지 않았다. 한편, 핵생성 및 에이트킨 모드 입자의 계절별 수농도 편차는 최대 수농도가 나타나는 입경(modal diameter)의 변화로도 확인되며, 봄(83.5 nm)과 여름(89.8 nm)에 비해 가을과 겨울은 상대적으로 작은 입경(67.3 nm)을 보였다(그림 1(b)). 이와 같은 계절별 수농도 분포 차이는 전구물질 농도와 기상 조건의 계절적 변화에 따른 입자 생성의 특성 차이에 기인한 것으로 사료된다(Park, 2023; Park *et al.*, 2021; Nilsson *et al.*, 2001).

3.2 입자 생성 및 성장 현상 판별

본 연구에서는 약 20년간의 장기 관측자료로부터 입자 생성 현상을 판별하기 위해, 기존에 널리 사용되어 온 시각적 기준 기반의 방법(Kulmala *et al.*, 2012;

Dal Maso *et al.*, 2005)을 대신하여, 분석자의 주관적인 판단에 의존하지 않는 CSEOF 기법을 적용하였다(Kim *et al.*, 2013). 전체 관측 기간 중 24시간 동안 연속적인 관측이 진행된 날에 대하여 CSEOF 분석을 진행하였다. 그림 2는 각각 첫 번째와 두 번째 모드(성분)의 CSLV와 이에 대응하는 PC 시계열을 나타낸 것이다. 전체 변동의 27%를 설명하는 첫 번째 모드는 입자 생성 현상과 이후 입자의 성장을 나타내는 입경별 수농도의 일변화 패턴과 유사하다. 따라서 첫 번째 모드의 진폭(amplitude)을 나타내는 PC 시계열 값을 기준으로 입자 생성 현상 발생 여부 및 강도를 판별하였다(그림 2(a)). PC 시계열 값이 입자 생성이 나타나는 낮 시간대(09~17시)에 0 (파란색 선)보다 클 경우, 해당 날짜는 입자 생성이 발생한 날로 분류하였다. 그리고, 낮 시간 동안 PC 시계열 값이 첫 번째 모드의 PC 값 평균(빨간색 선)을 초과하면 '강한 입자 생성 현상이 관측된 날(strong-NPF day)', 그렇지 않으면 '약한 입자 생성이 관측된 날(weak-NPF day)'로 구분하였

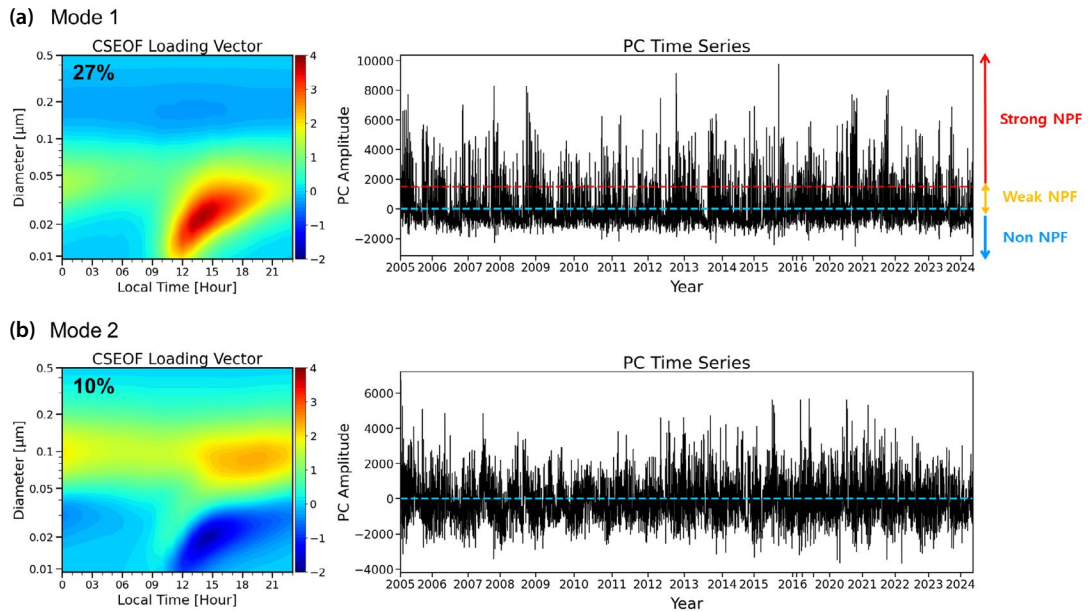


Fig. 2. CSEOF loading vector and PC amplitude time series for (a) the first mode and (b) the second mode at Anmyeondo GAW Station from 2005 to 2024.

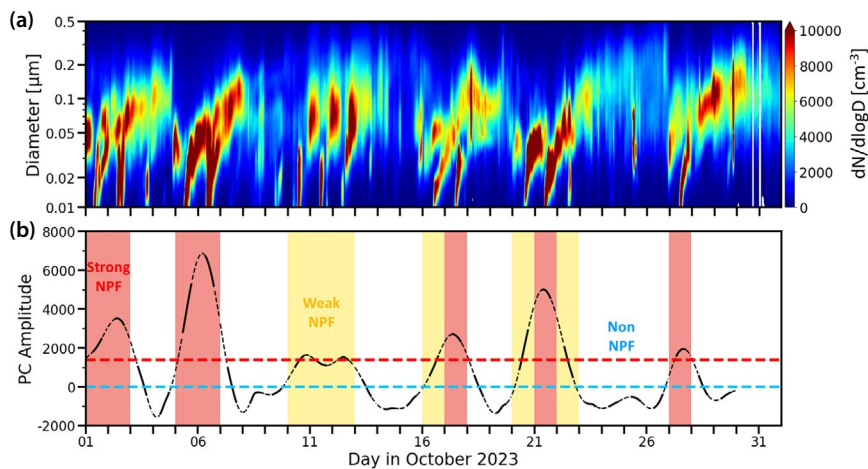


Fig. 3. (a) Particle number size distribution and (b) PC time series of October 2023 measured at Anmyeondo GAW Station. The solid black line represents daytime (08~17 LST), while the dashed black line corresponds to nighttime (18~07 LST).

다. 반면, 낮 시간 동안 PC 시계열 값이 한 번이라도 0 이하로 나타나는 날짜는 ‘입자 생성 현상이 없는 날 (non-NPF day)’로 각각 분류하였다. 예를 들어, 그림 3에 제시된 2023년 10월의 사례에서는 1일, 2일, 5일, 6

일, 17일, 21일, 그리고 27일에 핵생성 모드에서 시작된 높은 수농도가 시간이 지나면서 에이트킨 모드로까지 성장하는 강한 입자 생성 현상이 관측되었으며, 이 날짜들의 PC 값은 평균값을 초과하였다. 반면, 10일,

11일, 12일, 16일, 20일, 그리고 22일은 입자 생성 현상이 상대적으로 약하게 나타났다. 나머지 날짜들에는 핵생성 모드의 에어로졸 수농도가 낮게 나타났으며, 일부 시간대에는 PC 값이 음수로 나타나 ‘입자 생성이 없는 날’로 분류되었다. 이와 같은 CSEOF 방법론에 기반한 입자 생성 및 성장 현상 판별 결과는 시간에 따른 바나나 모양의 입경별 수농도 변화(그림 3(a))를 바탕으로 한 주관적 판단과 잘 일치한다.

한편, 전체 변동의 10%를 설명하는 두 번째 CSEOF 모드는 입자 생성 현상이 시작되는 시간대의 계절적 변동을 나타낸다. 두 번째 모드의 CSLV는 첫 번째 모드 CSLV가 높은 양의 값을 나타내는 시간대와 입경에서 양(+)과 음(-)의 값이 교차하는 패턴을 보인다(그림 2(b)). 이는 CSLV가 양 또는 음의 PC 시계열 값과 결합될 경우, 해당 모드의 시간적 위상이 첫 번째 모드에 비해 앞서거나 지연되어 입자 생성 현상이 더 이르거나 늦게 나타날 수 있음을 시사한다. 따라서 두 번째 모드 PC 시계열 값의 월별 변동은 일반적으로 여름에는 양의 경향을, 겨울에는 음의 경향을 나타낸다. 이는 입자 생성 현상이 계절에 따른 태양복사 일조시간의 변동에 영향을 받는다는 선행 연구와 일치한다(Park *et al.*, 2021; Shen *et al.*, 2018).

3.3 입자 생성 현상의 계절 변동성

그림 4는 월별 및 계절별 입자 생성 현상의 발생일과 빈도를 나타낸 것이다. 전체 관측일(5,229일) 중 강한 입자 생성일(strong-NPF day)은 658일(12%), 약한

입자 생성일(weak-NPF day)은 1,239일(24%), 그리고 입자 생성이 발생하지 않은 날(non-NPF day)은 3,332일(64%)로 분류되었다. 특히, 가을철의 입자 생성 빈도는 46%(강한 입자 생성: 22%, 약한 입자 생성: 24%)로 나타났으며, 이는 겨울철(40%; 강한 입자 생성: 11%, 약한 입자 생성: 29%), 봄철(36%; 강한 입자 생성: 11%, 약한 입자 생성: 25%), 그리고 여름철(22%; 강한 입자 생성: 7%, 약한 입자 생성: 15%)보다 높았다.

그림 5는 계절에 따른 강한 입자 생성이 발생한 날과 발생하지 않은 날의 종관기상 패턴과 미국 해양대기청의 Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT) 모델을 이용하여 추적된 공기괴의 후방 궤적을 나타낸 것이며, 계절별 입자 생성률, 성장률, 그리고 응축 손실 값은 표 1에 제시하였다. 태양복사와 상대습도는 선행 연구에서 보고된 바와 같이, 계절과 관계 없이 강한 입자 생성이 관측된 날이 입자 생성이 발생하지 않은 날에 비해 더 높은 전천일사량(일 평균, 약 50 W m^{-2})과 더 낮은 상대습도(일 평균, 약 12%)가 관측되었다(표 S1). 강한 태양복사는 광분해로 생성된 OH 라디칼을 통해 휘발성 유기화합물 및 이산화황과 같은 전구물질을 산화시켜 입자 생성을 촉진한다(Park *et al.*, 2021; Laaksonen *et al.*, 2008). 또한, 낮은 상대습도는 응축 손실을 감소시켜 기체상의 전구물질이 응축되지 않고 핵생성에 기여할 가능성을 높인다(Suni *et al.*, 2009). 계절별 우세한 종관 기상장에 따라 달리 나타나는 태양복사 및 상대습도와 같은 기상 요소는 가스상 전구물질의 배출량과 함께

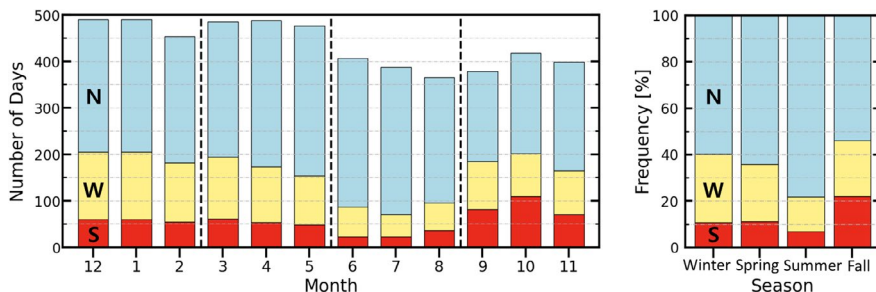


Fig. 4. Monthly and seasonal variations of strong-NPF (red), weak-NPF (yellow), and non-NPF (blue) days at Anmyeondo GAW Station from 2005 to 2024.

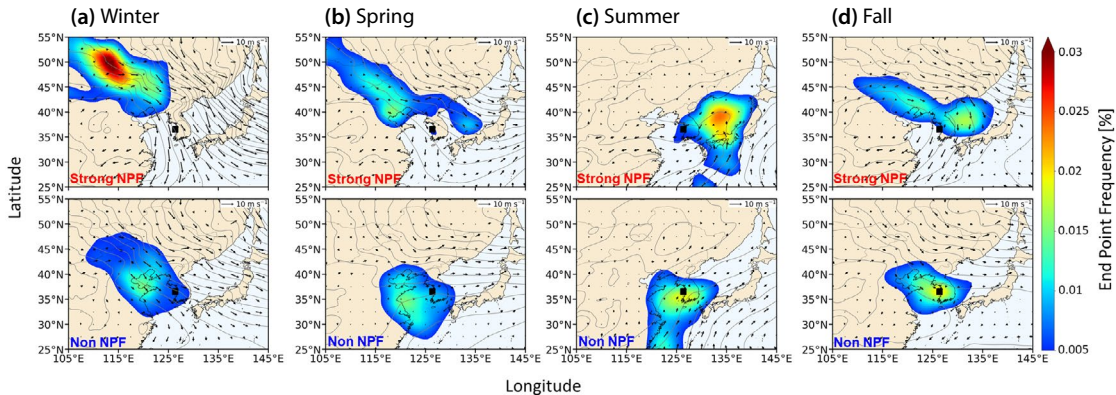


Fig. 5. Seasonal endpoint frequencies of 24~48 hr backward trajectories from NOAA HYSPLIT for strong-NPF and non-NPF events at Anmyeondo GAW Station from 2005 to 2024, overlaid with average geopotential height and wind vectors at 925 hPa from ECMWF reanalysis data.

Table 1. Formation rate and growth rate during strong-NPF days, and condensation sink for both strong-NPF and non-NPF day at Anmyeondo GAW Station from 2005 to 2024.

	Formation rate ($\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$)	Growth rate (nm h^{-1})	Condensation sink ($\times 10^{-3} \text{s}^{-1}$)	
	Strong NPF	Strong NPF	Strong NPF	Non NPF
Winter	0.7 ± 0.5	3.2 ± 2.5	17.6 ± 7.9	22.0 ± 12.0
Spring	0.8 ± 0.6	3.8 ± 2.6	19.1 ± 6.4	21.3 ± 11.1
Summer	0.9 ± 0.6	4.5 ± 2.6	21.4 ± 7.6	19.8 ± 12.4
Fall	1.0 ± 0.6	4.6 ± 3.7	18.4 ± 6.9	18.9 ± 11.5

입자 생성 현상의 빈도 및 강도의 계절별 차이를 유발할 수 있는 요인이다(Park *et al.*, 2021).

봄과 겨울에는 대기 흐름이 정체된 대기 조건일 때보다, 대륙성 고기압이 한반도로 확장하면서 강한 북서풍이 유입되는 환경에서 높은 빈도의 입자 생성 현상이 관측되었다(그림 5(a)와 5(b), 그림 S2). 이와 같은 종관 패턴에서는 에어로졸 농도가 낮은 자유 대류권에서 하강한 건조하고 차가운 공기의 영향을 받는다(Hallar *et al.*, 2011; Song *et al.*, 2010). 그 결과, 구름 없는 대기 조건에서 강한 일사가 유입되고 응축 손실이 낮게 유지되어 입자 생성률($0.6 \sim 0.7 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$)과 입자 성장률($3.2 \sim 3.8 \text{ nm h}^{-1}$)이 모두 낮음에도 불구하고 입자 생성 현상이 발생하였다. 한편, 입자 생성의 주요 전구물질로 알려진 이산화황의 농도는 강한 입자 생성이 발생한 날이 발생하지 않은 날보다 낮게 나타났

다(표 S1). 이는 이산화황이 이미 충분한 농도로 존재할 경우, 입자 생성 여부는 기상 조건과 기존 에어로졸 농도에 의해 더 크게 좌우된다는 것을 시사한다(Park *et al.*, 2021; Nilsson *et al.*, 2001).

가을에는 봄이나 겨울과는 달리, 강한 입자 생성 현상이 북서풍뿐만 아니라 동풍이 유입될 때도 빈번하게 발생한다(그림 5(d), 그림 S2). 가을에는 입자 생성이 발생한 날과 발생하지 않은 날의 응축 손실값의 차이가 크지 않았음에도 불구하고, 다른 계절에 비해 입자 생성률($1.0 \pm 0.6 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$)과 입자 성장률($4.6 \pm 3.7 \text{ nm h}^{-1}$)이 모두 높게 나타났다. 이는 선행 연구들에서 보고하였듯이, 건조하고 낮은 풍속의 동풍이 우세한 종관 기상패턴 하에서 관측지점의 풍상측에 위치한 공업단지와 석유화학 단지, 화력발전소 등의 배출원에서 배출된 이산화황 및 휘발성 유기화합물 등의 전구

물질이 유입되면서 입자 생성을 촉진한 것으로 사료된다(Kim *et al.*, 2021a; Ham *et al.*, 2019). 안면도 지구대기감시소에서 관측된 입자 생성 현상의 빈도는 가을철에 가장 높게 나타나며, 이는 제주도 고산 및 백령도에서 봄과 겨울철에 입자 생성이 가장 빈번하게 나타난다는 선행 연구의 결과와는 차이를 보인다(Kim *et al.*, 2021b; Park *et al.*, 2021; Lim *et al.*, 2018). 제주도 고산과 백령도에서도 가을철에 동쪽 기류 유입이 증가하지만, 주변 국지 배출원의 영향이 적은 청정 공기괴가 유입되어 다른 계절 대비 입자 생성 빈도가 낮게 나타났다(Kim *et al.*, 2021b; Park *et al.*, 2021). 앞서 언급한 바와 같이 안면도에서는 가을철에 동풍 기류가 유입되는 경우 풍상측에서의 배출이 입자 생성 현상의 빈번한 발생에 영향을 미친 것이다(그림 S2; Park *et al.*, 2023b; Song *et al.*, 2023).

한편, 여름에는 해양성 기단에 의해 온습한 남서 기류의 영향을 받을 때보다, 건조한 동풍이 유입되는 환경에서 입자 생성이 관측되었다(그림 5(c)). 이는 해양성 기단의 영향을 받을 경우, 전구물질 농도가 낮은 깨끗한 공기가 유입되고, 강수에 의해 에어로졸이 습식 제거되면서 입자 생성이 억제되었기 때문으로 판단된다(Park *et al.*, 2021; Kim *et al.*, 2014). 반면, 입자 생성률($0.9 \pm 0.6 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$)과 입자 성장률($4.5 \pm 2.6 \text{ nm h}^{-1}$)은 다른 계절에 비해 상대적으로 높게 나타났는데, 이는 여름철의 강한 태양복사에 의한 영향으로 사료된다(Kalivitis *et al.*, 2019).

4. 요약 및 결론

본 연구에서는 안면도 지구대기감시소에서 SMPS로 관측된 2005년부터 2024년까지 약 20년 동안의 에어로졸 입경별 수농도와 입자 생성 및 성장 현상을 분석하였다. 안면도에서의 연평균 총수농도는 $3,989 \pm 794 \text{ cm}^{-3}$ 였으며, 핵생성 모드는 전체의 13%를 차지하여 에이트킨 모드(50%)와 축적 모드(37%)에 비해 상대적으로 적은 수농도를 나타냈다. 하지만, 핵생성 모

드의 수농도는 에이트킨과 축적 모드에 비해 뚜렷한 일변화를 보이며, 특히 주간(9~17시)에 급격히 증가하는 특징을 나타낸다. 이는 입자 생성 현상에 기인하며, 그 강도는 계절에 따라 차이를 보인다. 핵생성 모드의 수농도는 일출 전에는 계절 간 차이가 미미하지만, 일출 이후 입자 생성이 활발해지면서 계절별 수농도 편차가 크게 증가하였다.

CSEOF 기법을 활용하여 입경별 수농도 자료를 분석한 뒤, PC 값을 기준으로 입자 생성 현상의 강도를 판별한 결과, 분석 가능일 5,229일 중 강한 입자 생성 현상이 관측된 날은 12% (658일)였으며, 계절별 강한 입자 생성 현상의 발생 빈도는 가을(22%)이 가장 높고, 겨울과 봄(11%), 여름(9%) 순으로 나타났다. 입자 생성은 주로 정체된 기압계보다는 기류 유입이 활발한 종관 패턴에서, 높은 복사량과 낮은 습도 조건에서 발생하였다. 겨울과 봄에는 대륙 고기압의 확장으로 깨끗한 공기가 유입되면서 잔존 에어로졸의 농도가 감소하여, 입자 생성률($0.6 \sim 0.7 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$)과 입자 성장률($3.2 \sim 3.8 \text{ nm h}^{-1}$)은 모두 낮게 나타났다. 가을에는 입자 생성 발생 시 입자 생성률($1.0 \pm 0.6 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$)과 입자 성장률($4.6 \pm 3.7 \text{ nm h}^{-1}$) 모두 높게 나타났는데, 이는 동풍에 의해 인근 지역에서 배출된 전구물질의 유입 영향으로 추정된다. 여름에는 전구물질의 유입이 적고 강수에 의한 습식 제거로 입자 생성 빈도가 낮았으나, 강한 태양복사의 영향으로 입자 생성률($0.9 \pm 0.6 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$)과 입자 성장률($4.5 \pm 2.6 \text{ nm h}^{-1}$)이 상대적으로 높게 나타났다.

본 연구는 지난 20년의 장기자료를 바탕으로 안면도 지구대기감시소에서 계절에 따른 입자 생성 현상의 빈도 및 특성을 규명하였지만, 전구물질에 대한 관측이 부족하여 입자 생성 과정에 대한 물리·화학적 과정에 대한 상세한 분석을 수행하기 어려웠다. 향후 휘발성 유기화합물 등 입자 생성의 주요 전구물질에 대한 추가적인 관측이 이루어진다면, 한반도에서 입자 생성 메커니즘에 대한 심층적인 분석이 가능할 것으로 기대된다.

감사의 글

이 연구는 기상청 국립기상과학원 “기후변화감시 서비스체계 구축 및 운영”과 「기상업무지원기술개발 연구」 “항사·연무감시 및 예보기술 개발 (KMA2018-00521)의 지원으로 수행되었습니다.

References

- Dada, L., Paasonen, P., Nieminen, T., Buenrostro Mazon, S., Kontkanen, J., Peräkylä, O., Lehtipalo, K., Hussein, T., Petäjä, T., Kerminen, V.-M., Bäck, J., Kulmala, M. (2017) Long-term analysis of clear-sky new particle formation events and nonevents in Hyytiälä, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(10), 6227-6241. <https://doi.org/10.5194/acp-17-6227-2017>
- Dal Maso, M., Kulmala, M., Riipinen, I., Wagner, R., Hussein, T., Aalto, P.P., Lehtinen, K.E. (2005) Formation and growth of fresh atmospheric aerosols: eight years of aerosol size distribution data from SMEAR II, Hyytiälä, Finland, *Boreal Environment Research*, 10(5), 323-336.
- Hallar, A.G., Lowenthal, D.H., Chirokova, G., Borys, R.D., Wiedinmyer, C. (2011) Persistent daily new particle formation at a mountain-top location, *Atmospheric Environment*, 45(24), 4111-4115. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.04.044>
- Ham, J., Lee, M., Ryoo, S.B., Lee, Y.G. (2019) Distribution Characteristics and Background Air Classification of PM_{2.5} OC and EC in Summer Monsoon Season at the Anmyeondo Global Atmosphere Watch (GAW) Regional Station, *Atmosphere*, 29(4), 429-438. <https://doi.org/10.14191/Atmos.2019.29.4.429>
- Joshi, M., Sapra, B.K., Khan, A., Tripathi, S.N., Shamjad, P.M., Gupta, T., Mayya, Y.S. (2012) Harmonisation of nanoparticle concentration measurements using GRIMM and TSI scanning mobility particle sizers, *Journal of Nanoparticle Research*, 14, 1-14. <https://doi.org/10.1007/s11051-012-1268-8>
- Kalivitis, N., Kerminen, V.-M., Kouvarakis, G., Stavroulas, I., Tzitzikalaki, E., Kalkavouras, P., Daskalakis, N., Myriokefalitakis, S., Bougiatioti, A., Manninen, H.E., Roldin, P., Petäjä, T., Boy, M., Kulmala, M., Kanakidou, M., Mihalopoulos, N. (2019) Formation and growth of atmospheric nanoparticles in the eastern Mediterranean: results from long-term measurements and process simulations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(4), 2671-2686. <https://doi.org/10.5194/acp-19-2671-2019>
- Kerminen, V.M., Chen, X., Vakkari, V., Petäjä, T., Kulmala, T., Bianchi, F. (2018) Atmospheric new particle formation and growth: review of field observations, *Environmental Research Letters*, 13, 103003. <https://doi.org/10.1088/1748-9326/aadf3c>
- Kim, J.M., Lee, H.Y., Kim, S.M., Jeong, J.Y., Kim, Y.H., Lee, G., Choi, B.K., Lee, Y.G. (2021a) Analysis of Variability in CO/CO₂ Ratios According to Greenhouse Gas Origins in the Anmyeondo Region, *Atmosphere*, 31(5), 625-635. <https://doi.org/10.14191/Atmos.2021.31.5.625>
- Kim, K.Y., North, G.R., Huang, J. (1996) EOFs of one-dimensional cyclostationary time series: Computations, examples, and stochastic modeling, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 53(7), 1007-1017. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1996\)053%3C1007:EOODCT%3E2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1996)053%3C1007:EOODCT%3E2.0.CO;2)
- Kim, S.W., Heo, J., Park, J.U. (2021b) Relationship between submicron particle formation and air mass history observed in the Asian continental outflow at Gosan, Korea, during 2008-2018, *Air Quality, Atmosphere & Health*, 14, 291-300. <https://doi.org/10.1007/s11869-020-00934-3>
- Kim, Y., Kim, S.W., Yoon, S.C., Jang, I.S., Lee, S.J., Lee, M., Kim, J.H. (2011) Characteristics of new particle formation and growth events observed at Gosan Climate Observatory in fall 2009, *Atmosphere*, 21(1), 35-44. <https://doi.org/10.14191/Atmos.2011.21.1.035>
- Kim, Y., Kim, S.W., Yoon, S.C. (2014) Observation of new particle formation and growth under cloudy conditions at Gosan Climate Observatory, Korea, *Meteorology and Atmospheric Physics*, 126, 81-90. <https://doi.org/10.1007/s00703-014-0336-2>
- Kim, Y., Kim, S.W., Yoon, S.C., Park, J.S., Lim, J.H., Hong, J., Lim, H.C., Ryu, J., Lee, C.K., Heo, B.H. (2016) Characteristics of formation and growth of atmospheric nanoparticles observed at four regional background sites in Korea, *Atmospheric Research*, 168, 80-91. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2015.08.020>
- Kim, Y., Yoon, S.C., Kim, S.W., Kim, K.Y., Lim, H.C., Ryu, J. (2013) Observation of new particle formation and growth events in Asian continental outflow, *Atmospheric Environment*, 64, 160-168. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.09.057>
- Kulmala, M., Petäjä, T., Nieminen, T., Sipila, M., Manninen, H.E., Lehtipalo, K., Dal Maso, M., Aalto, P.P., Junninen, H., Paasonen, P., Riipinen, L., Lehtinen, K., Laaksonen, A., Kerminen, V.M. (2012) Measurement of the nucleation

- of atmospheric aerosol particles, *Nature Protocols*, 7(9), 1651-1667. <https://doi.org/10.1038/nprot.2012.091>
- Kulmala, M., Vehkamäki, H., Petäjä, T., Dal Maso, M., Lauri, A., Kerminen, V.M., Birmili, W., McMurry, P.H. (2004) Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations, *Journal of Aerosol Science*, 35(2), 143-176. <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2003.10.003>
- Laaksonen, A., Kulmala, M., O'Dowd, C.D., Joutsensaari, J., Vaattovaara, P., Mikkonen, S., Lehtinen, K.E.J., Sogacheva, L., Dal Maso, M., Aalto, P., Petäjä, T., Sogachev, A., Yoon, Y.J., Lihavainen, H., Nilsson, D., Facchini, M.C., Cavalli, F., Fuzzi, S., Hoffmann, T., Arnold, F., Hanke, M., Sellegri, K., Umann, B., Junkermann, W., Coe, H., Allan, J.D., Alfarra, M.R., Worsnop, D.R., Riekkola, M.-L., Hyötyläinen, T., Viisanen, Y. (2008) The role of VOC oxidation products in continental new particle formation, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(10), 2657-2665. <https://doi.org/10.5194/acp-8-2657-2008>
- Lee, Y., Park, J., Kim, P., Ghim, Y.S. (2021) New particle formation and diurnal variations in number concentrations at a rural site downwind of Seoul, Korea, *Atmospheric Pollution Research*, 12(3), 214-223. <https://doi.org/10.1016/j.apr.2021.01.014>
- Lim, B., Lee, M., Choi, J., Park, S.M., Lee, S.B., Song, M. (2018) New Particle Formation and Growth at Baengnyeong Island in 2016, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(6), 831-840. <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.6.831>
- National Institute of Meteorological Sciences (NIMS) (2021) Report of Global Atmosphere Watch 2021. <http://www.nims.go.kr/>
- Nemesure, S., Wagoner, R., Schwartz, S.E. (1995) Direct shortwave forcing of climate by the anthropogenic sulfate aerosol: Sensitivity to particle size, composition, and relative humidity, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 100(D12), 26105-26116. <https://doi.org/10.1029/95JD02897>
- Nieminen, T., Kerminen, V.-M., Petäjä, T., Aalto, P.P., Arshinov, M., Asmi, E., Baltensperger, U., Beddows, D.C.S., Beukes, J.P., Collins, D., Ding, A., Harrison, R.M., Henzing, B., Hooda, R., Hu, M., Hörrak, U., Kivekäs, N., Komsaare, K., Krejci, R., Kristensson, A., Laakso, L., Laaksonen, A., Leaitch, W.R., Lihavainen, H., Mihalopoulos, N., Németh, Z., Nie, W., O'Dowd, C., Salma, I., Sellegri, K., Svinningson, B., Swietlicki, E., Tunved, P., Ulevicius, V., Vakkari, V., Vana, M., Wiedensohler, A., Wu, Z., Virtanen, A., Kulmala, M. (2018) Global analysis of continental boundary layer new particle formation based on long-term measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18, 14737-14756. <https://doi.org/10.5194/acp-18-14737-2018>
- Nilsson, E.D., Paatero, J., Boy, M. (2001) Effects of air masses and synoptic weather on aerosol formation in the continental boundary layer, *Tellus B*, 53(4), 462-478. <https://doi.org/10.1034/j.1600-0889.2001.530410.x>
- Park, D.H. (2023) Trend analysis of new particle formation and subsequent growth: A regional and global perspective (Doctoral dissertation, Seoul National University).
- Park, D.H., Kim, J.E., Park, J.S., Choi, J.S., Kim, S.W. (2023a) Impacts of the COVID-19 lockdown in China on new particle formation and particle number size distribution in three regional background sites in Asian continental outflow, *Science of The Total Environment*, 858, 159904. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.159904>
- Park, H.Y., Ahn, J.Y., Park, J.S., Cho, S.Y. (2023b) Characteristics of Multi-day PM_{2.5} Episode from 2015 to 2021 in Seoul, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 39(6), 1022-1037. <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2023.39.6.1022>
- Park, J.U., Kim, H.J., Choi, J., Park, J.S., Heo, J., Kim, S.W. (2021) Observation of aerosol size distribution and new particle formation under different air masses arriving at the northwesternmost South Korean island in the Yellow Sea, *Atmospheric Research*, 255, 105537. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2021.105537>
- Park, M., Yum, S.S., Kim, J.H. (2015) Characteristics of submicron aerosol number size distribution and new particle formation events measured in Seoul, Korea, during 2004-2012, *Asia-Pacific Journal of Atmospheric Sciences*, 51, 1-10. <https://doi.org/10.1007/s13143-014-0055-0>
- Pirjola, L., Kulmala, M., Wilck, M., Bischoff, A., Stratmann, F., Otto, E. (1999) Formation of sulphuric acid aerosols and cloud condensation nuclei: An expression for significant nucleation and model comparison, *Journal of Aerosol Science*, 30(8), 1079-1094. [https://doi.org/10.1016/S0021-8502\(98\)00776-9](https://doi.org/10.1016/S0021-8502(98)00776-9)
- Ramanathan, V.C., Crutzen, P.J., Kiehl, J.T., Rosenfeld, D. (2001) Aerosols, climate, and the hydrological cycle, *Science*, 294(5549), 2119-2124. <https://doi.org/10.1126/science.1064034>
- Shen, X., Sun, J., Kivekäs, N., Kristensson, A., Zhang, X., Zhang, Y., Zhang, L., Fan, R., Qi, X., Ma, Q., Zhou, H. (2018) Spatial distribution and occurrence probability of regional new particle formation events in eastern China, *Atmo-*

- spheric Chemistry and Physics, 18, 587-599. <https://doi.org/10.5194/acp-18-587-2018>
- Song, M., Lee, M., Kim, J.H., Yum, S.S., Lee, G., Kim, K.R. (2010) New particle formation and growth in relation to vertical mixing and chemical species during ABC-EAREX2005, *Atmospheric Research*, 97(3), 359-370. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2010.04.013>
- Song, M., Oh, S.H., Choe, S., Jeon, H., Yu, G.H., Bae, M.S. (2023) Assessment of Gaseous Pollutants and Oxidative Potential in the National Steel Industrial Complex: Implication of PMF Model (PART II), *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 39(2), 227-238. <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2023.39.2.227>
- Suni, T., Sogacheva, L., Lauros, J., Hakola, H., Bäck, J., Kurtén, T., Cleugh, H., Gorsel, E. van., Briggs, P., Sevanto, S., Kulmala, M. (2009) Cold oceans enhance terrestrial new-particle formation in near-coastal forests, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(22), 8639-8650. <https://doi.org/10.5194/acp-9-8639-2009>
- Twomey, S.J.A.E. (1974) Pollution and the planetary albedo, *Atmospheric Environment* (1967), 8(12), 1251-1256. [https://doi.org/10.1016/0004-6981\(74\)90004-3](https://doi.org/10.1016/0004-6981(74)90004-3)
- Zhao, B., Donahue, N.M., Zhang, K., Mao, L., Shrivastava, M., Ma, P.L., Shen, J., Wang, S., Sun, J., Gordon, H., Tang, S., Fast, J., Wang, M., Gao, Y., Yan, C., Singh, B., Li, Z., Huang, L., Lou, S., Lin, G., Wang, H., Jiang, J., Ding, A., Nie, W., Qi, X., Chi, X., Wang, L. (2024) Global variability in atmospheric new particle formation mechanisms, *Nature*, 631(8019), 98-105. <https://doi.org/10.1038/s41586-024-07547-1>

Authors Information

- 박은호 (서울대학교 지구환경과학부 석사과정)
(peh0508@snu.ac.kr)
- 한종현 (국립기상과학원 지구대기감시연구과 연구사)
(jh365@korea.kr)
- 유희정 (국립기상과학원 지구대기감시연구과 연구사)
(heejuwoo@korea.kr)
- 양세환 (국립기상과학원 지구대기감시연구과 연구사)
(ysh82@korea.kr)
- 김수민 (국립기상과학원 지구대기감시연구과 연구관)
(sulla@korea.kr)
- 김영아 (국립기상과학원 지구대기감시연구과 연구관)
(kyababy2@korea.kr)
- 원덕진 (국립기상과학원 지구대기감시연구과 과장)
(graupel@korea.kr)
- 김만해 (서울대학교 지구환경과학부 선임연구원)
(manhae@snu.ac.kr)
- 김상우 (서울대학교 지구환경과학부 교수)
(sangwookim@snu.ac.kr)

Supplementary Materials

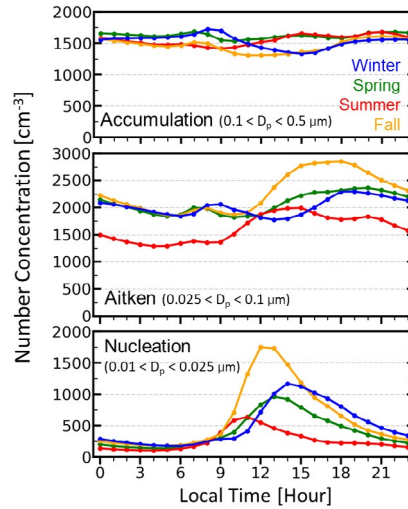


Fig. S1. Diurnal variations of particle number concentration by season for each size mode, categorized by particle diameter (D_p) into nucleation, Aitken, and accumulation mode.

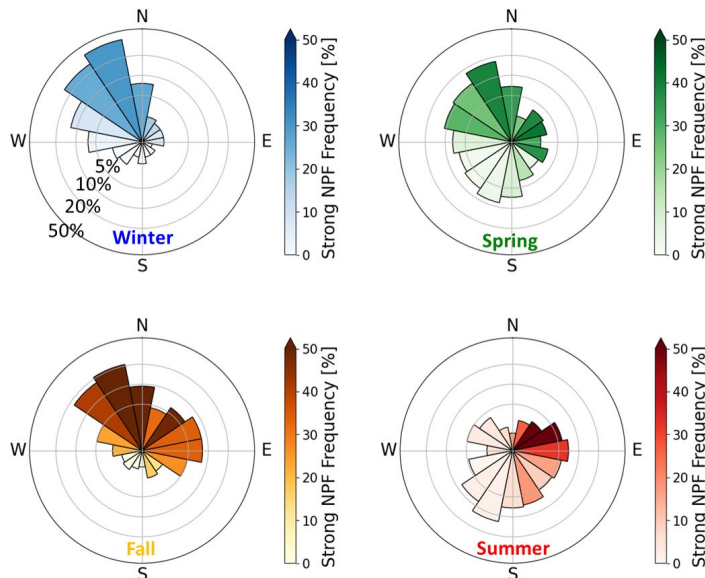


Fig. S2. Seasonal wind rose of NPF frequency at Anmyeondo GAW Station from 2005 to 2024 (petal size as the proportion of wind direction and color for strong-NPF frequency).

Table S1. Differences in daily mean SO₂ concentration, downward solar radiation, and relative humidity between strong-NPF and non-NPF days. Positive values indicate higher values on strong-NPF days compared to non-NPF days.

	SO ₂ [ppb]	Solar radiation [Wm ⁻²]	Relative humidity [%]
Winter	-0.4	+ 44.4	-11.8
Spring	-0.4	+ 44.3	-13.7
Summer	+ 0.1	+ 50.1	-13.9
Fall	-0.2	+ 53.0	-15.8