

미국 오레곤주 Crater Lake의 에어로졸 농도에 미치는 수송의 역할

전 병 일

신라대학교 바이오환경공학부

(2002년 3월 19일 접수; 2002년 7월 6일 채택)

Role of Transport on Aerosol Concentration at Crater Lake, Oregon USA

Byung-Il Jeon

Dept. of Environmental Engineering, Silla University, Busan 617-736, Korea

(Manuscript received 19 March, 2002; accepted 6 July, 2002)

This study was conducted to investigate the characteristics of role of transport on aerosol concentration at Crater Lake, Oregon USA for 1988.3~1999. 5. The IMPROVE program is a cooperative measurement effort governed by a steering committee composed of representatives from USA federal and regional-state organizations. Also IMPROVE sampler is designed to obtain a complete signature of the composition of the airborne particles affecting visibility. According to 10-day backward isentropic trajectory analysis, the frequency of local, marine and Asian trajectory showed 33.1%(335 cases), 47%(478 cases), 5.2%(53 cases) respectively. The monthly variation of nss SO_4^{2-} , nss S, NO_3^- , K and C showed the double peak pattern, high in April~May and August~September and showed the lowest concentration in Winter. The other constituents concentration except for Cl, Na, Mg was high in local trajectory than marine trajectory. A ratio nss SO_4^{2-} to SO_4^{2-} was 90.5% in marine trajectory and 98% in local trajectory. It suggest that the aerosol in Crater Lake was effected by salt. The annual mean concentration of nss SO_4^{2-} and nss S decreased but the the springtime concentration increased.

Key words : IMPROVE program, Crater Lake, aerosol, 10-day backward isentropic trajectory, nss SO_4^{2-}

1. 서 론

미국은 1977년에 국립공원(National Park)과 1등급 황야지역(wilderness areas as class I)의 시정을 보호하여야 한다는 공기청정법(Clean Air Act)을 제정하였다. 그에 따라 University of California, Davis는 1979년부터 1981년까지 EPA와 공동으로 stacked filter unit(SFU)을 이용하여 록키산맥지역에 대기측정망을 설치한 바 있다.¹⁾ 국립공원협회(National Park Service)는 1982년에 SFU샘플러를 사용하여 입자상물질의 측정과 함께 시정모니터링 프로그램을 만들어 미국 전역에 확대하였고²⁾, 1988년에는 입자상 모니터링 프로그램을 다시 확대하여

IMPROVE(Interagency Monitoring of Protected Visual Environments)로 발전하였으며³⁾, IMPROVE에 참가한 과학자들은 Teflon, quartz, nylon 그리고 Teflon 필터를 사용한 미세입자 포집 샘플러를 개발하였다.⁴⁾ IMPROVE의 주요목적은 시정감소에 영향을 미치는 미세입자의 시·공간적인 경향에 대한 모니터링으로, 입자농도의 경향에 영향을 미치는 인자로서는 (1) 종관기상에 따른 단기적인 변화와 장거리수송 (2) 황이나 토양인자와 같은 변수 (3) 다년간 주기의 기상패턴이라 할 수 있다.⁵⁾

Ames와 Malm⁶⁾은 IMPROVE 자료를 CDN(Clean Air Status and Trends Network Deposition Network)에서 관측된 황산염과 질산염입자 질량농도를 비교하여 고찰한 바 있고, Huffman⁷⁾은 도시지역이 아닌 배경지역의 IMPROVE 에어로졸 자료를 이용하여 광흡수계수(σ_a)와 TOR(Thermal

Corresponding Author : Byung-Il Jeon, Dept. of Environmental Engineering, Silla University, Busan 617-736, Korea
Phone : +82-51-309-5056
E-mail : bjeon@silla.ac.kr

Optical Reflectance) 탄소와의 관계를 비교하여 나타낸 바 있다.

깨끗하고 쾌적한 자연환경을 유지해야하는 국립공원이 다량의 오염물질이 배출되는 지역으로부터 수송에 의한 에어로졸 농도의 증가는 시정악화에 영향을 미치고 응결핵으로 역할을 하여 구름이 빈번히 생성되는 효과를 초래할 수 있다. 또한 국립공원에 sulfate와 같은 자연적, 인위적인 물질을 확인한다는 것은 국립공원의 시정관리측면에서 매우 의미있는 것이라 할 수 있다.

따라서 본 연구에서는 미국의 오레곤 주 Crater Lake 국립공원에서 측정된 IMPROVE 에어로졸자료를 이용하여 미국내륙에서 발생한 오염물질과 태평양의 해양성공기와 아시아지역에서 인공적으로 배출된 물질이 이 지역의 에어로졸농도에 어떠한 영향을 미치는지 trajectory 분석을 통해 고찰하였다. 앞으로 우리 나라의 경우도 중국으로부터 많은 오염물질이 넘어오는 실정에서 trajectory를 이용한 오염물질 추적은 매우 중요한 연구토대를 형성한다는 점에서 의의가 있다고 할 수 있으며, 향후 우리나라의 국립공원관리대책이나 장거리수송에 의한 오염문제를 관리하는데 좋은 본보기가 되리라고 본다.

2. 자료 및 방법

2.1. IMPROVE의 목적과 자료

IMPROVE 프로그램은 미국환경보호청(Environmental Protection Agency; EPA)과 4개의 미연방육지관리국(Federal Land Managers; FLMS)인 미국국립공원협회(National Park Service; NPS), 미국산림협회(Forest Service; FS), 미국어업야생동물협회(Fish and Wildlife Service; FWS), 미국육지관리국(Bureau of Land Management; BLM)과 미국해양대기국(National Oceanic and Atmospheric Administration; NOAA) 그리고 주정부 대기질 기구로 구성된 협동위원회에서 시정감소에 중요한 인자인 미세입자의 지리적 및 시간적 경향에 대한 모니터링을 위한 일환으로 수립되었다.⁸⁾ 또한 자동카메라 시스템에 의한 haze의 특성, transmissometer와 nephelometer에 의한 광흡수(optical extinction)의 측정을 포함하고 있다.

IMPROVE의 주요목적은 (1) 1등급 지역(Class I areas ; CIAs)에서 현재의 시정과 에어로졸 조건을 향상시키고, (2) 시정을 감소시키는 인위적인 대기오염물질과 배출물질을 확인하고, (3) 미국국가시정목표에 대한 진전을 평가하는데 장기적인 경향을 진단하고, (4) 광역 haze 규칙의 입법화에 따른

haze 모니터링을 제공하는데 있다. 또한 IMPROVE는 시정관련연구, 모니터링기기의 발전, 분석기술, 시정모델링, 정책수립에 중요한 역할을 해오고 있다.⁸⁾

본 연구에 사용된 자료는 1988년 3월 2일부터 1999년 5월 29일까지 12년 2개월 간이며, 일주일 2회(수요일, 토요일)총 측정된 자료의 개수는 1013개이다.

2.2. trajectory 분리

미국 오레곤 주 Crater Lake 국립공원의 에어로졸에 미치는 공기괴의 성질을 고찰하기 위해 NOAA의 CMDL(Climatic Monitoring & Diagnostic Laboratory)에서 분석한 3시간 간격의 10일 후진 등온위면 trajectory를 이용하였다. trajectory 분리는 먼저 미국 북부 내륙의 영향이 있는지를 먼저 결정하고, trajectory가 아시아로부터의 영향이 있는지를 알아본 뒤, 미국 북부 내륙과 아시아의 영향이 아니면 북태평양기원으로 취급하였다. 구체적으로 보면, Crater Lake에 도달하기 전 3일 동안 공기괴가 $0^{\circ}\sim 125^{\circ}W$ 에 존재하고 있었다면 local trajectory라고 명명하였다. 그렇지 않고 Crater Lake에 도달하기 3일 전의 공기가 위도 $0^{\circ}\sim 50^{\circ}N$ 과 경도 $100^{\circ}\sim 150^{\circ}E$ 에 있었다면 아시안 trajectory라고 명명하였다. 그 외 local trajectory와 아시안 trajectory에 속하지 않으면 북태평양(North Pacific) trajectory라고 명명하였다.

후진 등온위 trajectory는 ECMWF(European Center for Medium Range Weather Forecasts)자료와 Harris *et al.*⁹⁾이 제시한 방법을 이용하여 관측기간동안 매일 두 번(00, 12UTC)계산되었다. 등온위면 trajectory는 단열대기의 연직운동을 설명함에 있어 공기괴의 현실적인 운동을 더 반영하기 때문에 등압면(isobaric type)보다 더 많이 사용된다.¹⁰⁾ 그러나 trajectory 모델은 빈약한 기상자료의 내삽, 연직수송과 관련된 가정, 관측오차, 아격자현상, 난류, 대류, 증발 그리고 응결로 발생하는 불확실성을 내포하고 있으며⁹⁾, trajectory 분석에서 생길 수 있는 오차는 Stohl¹¹⁾에 의해서 논의된 바 있다. Jaffe *et al.*^{12,13)}과 전병일¹⁴⁾은 후진 등온위 trajectory를 이용하여 미국의 워싱턴주 서해안에 있는 대경대기관측소인 Cheeka Peak Observatory (CPO)로 수송되는 오염물질에 대해 체계적으로 분석하였고, Gebhart *et al.*¹⁴⁾은 텍사스 주의 Big Bend 국립공원에서 측정된 미세분진의 back-trajectory 분석을 이용하여 미국과 멕시코의 영향을 정성적으로 분석한 바 있다.

2.3. non-sea-salt sulfate와 non-sea-salt sulfur

자연적 및 인위적인 황산염 에어로졸은 대기화학이나 지구복사수지에 직, 간접적으로 영향을 미치기 때문에 지구기후변화에 매우 중요한 역할을 한다.^{16,17)} 대류권 황산염의 생성원은 크게 두가지로서 해양위에서의 생물기원적인 생성¹⁸⁾과 대륙으로부터의 인위적인 방출에 의한 원인¹⁹⁾으로 나눌 수 있다. 자연적인 원인은 해염 에어로졸과 해양플랑크톤에 의한 DMS(dimethylsulfide)의 산화를 포함하고 있으며, 인위적인 원인은 동아시아의 SO₂ 배출에 의해서 해양의 황산염농도에 큰 영향을 미칠 수 있다. 즉 자연적으로 배출되는 황화합물 중 가장 중요하다 여겨지는 물질이 DMS이다. DMS는 주로 SO₂로 산화하여 궁극적으로는 SO₄²⁻로 산화하는 것으로 알려져 있다.²⁰⁾ 오염되지 않은 상태의 해양경계층의 DMS으로부터 생성된 이산화황은 nss SO₄²⁻의 중요한 원인이며¹⁷⁾, nss SO₄²⁻는 35°~50°N사이의 지역에서 배출하는 인위적인 황에 의해 많은 영향을 받는다.²¹⁾ 그리고 아시아 대륙으로부터의 먼지는 북태평양으로 장거리 수송되어 태평양의 황농도의 증가를 나타내었다는 연구결과가 있다.²²⁾

nss SO₄²⁻는 종종 먼 해양경계층에서 에어로졸의 우세한 부분으로 전체 입자수의 90~95%을 차지한다.²³⁾ Mukai *et al.*²⁴⁻²⁶⁾은 일본 Oki Island의 측정에서 인위적 nss SO₄²⁻가 일본 본토와 아시아대륙으로부터 수송되었고 그 비율은 2%이하로 매우 낮았으며, 그 농도는 일본본토와 아시아 대륙으로부터의 영향 때문에 봄과 여름에 높았다고 하였으며, 고농도 nss SO₄²⁻는 인위적인 nss SO₄²⁻에 의한 것으로 보이며, DMS에 의한 생물기원적인 nss SO₄²⁻는 전체 nss SO₄²⁻의 10%정도라고 하였다. 따라서 본 연구에서는 trajectory 분석을 통해 해양성공기로 분리된 것 중에서 Crater Lake에 도달하는 nss SO₄²⁻의 양을 고찰함으로써 인위적인 황산염의 수송을 어느 정도 알아낼 수 있다.

3. 에어로졸 측정과 장소

IMPROVE 에어로졸 샘플러는 Table 1과 같이 4개의 독립된 모듈로 되어 있다. 각 모듈은 독립적이며, 분리 유입부, 유량측정계, 필터 팩, 펌프 어셈블리를 가지고 있으며, 모든 모듈은 하나의 시간조절장치에 의해 작동된다. 이는 입자모듈, 관련된 필터, 필터로부터 측정된 인자를 고려하기에 편리하게 한다. 모듈 A, B, C는 PM2.5 미세입자 샘플러이며, 유량은 직경 2.5µm이하의 입자를 포집하도록 22.7 l/min으로 하였다. 모듈 D는 PM10만을 중량질량(gravimetric mass)으로 측정하기 위해 사용되

Table 1. IMPROVE aerosol measurements.

Module	Filter media	Analytical Measurement
A	Teflon	Gravimetric analysis for mass (<2.5 µm diameter) Intergrating sphere for optical absorption ^a PIXE for elements Na to Mn ^b XRF for elements Fe to Pb ^c PESA FOR H
B	nylon(denuder)	Ion chromatography for, Cl ⁻ , SO ₂ , NO ₂ , NO ₃ ⁻ and SO ₄ ²⁻
C	quartz	^d TOR for organic and light absorbing carbon
D	Teflon	Gravimetric analysis for mass (<10 µm diameter)

^aPIXE : Particle induced X-ray emission
^bXRF : X-ray fluorescence
^cPESA : Proton elastic scattering
^dTOR : Thermal optical reflectance

었으며, 15 l/min의 유량으로 보정되어 있다.^{27,28)}

모듈 A는 Teflon 필터로 PM2.5를 중량적으로 분석하며, 원자질량수 11(Na)보다 크고 83(Pb)보다 작은 모든 원소는 입자유도 X선 방출(particle-induced X-ray emission; PIXE)과 X선 형광(X-ray Fluorescence; XRF)에 의해 분석되며, 수소(H)는 양성자 탄성 산란 분석(proton elastic scattering analysis; PESA)에 의해 분석된다. 모듈 B는 유입구에 가스상 질산염(HNO₃; gaseous nitrates)을 제거하기 위해 설계된 탄소디뉴더 튜브(carbonate denuder tube)가 장착된 nylon(Nylasorb)필터를 사용한다. 필터로부터 포집된 물질은 수용액(aqueous solution)에서 초음파적으로 추출되어 이온크로마토그래피에서 음이온 황산염(anion sulfate; SO₄²⁻), 질산염(nitrate; NO₃⁻), 질산(nitrite; NO₂⁻)과 염산(chloride; Cl⁻)을 분석한다. 모듈 C는 미세입자포집을 위해 두 개의 석영 섬유 필터(tandem quartz fiber filters)를 이용한다. 앞쪽 필터는 입자상 탄소(particulate carbon)를 분석하는데 사용되고, 두 번째 필터는 필터 판(filter substrate)에 부착된 유기 가스과 관련된(organic gases) 유기탄소(organic carbon)의 측정에 사용된다. 모듈 D는 직경 10µm이하의 입자의 질량농도를 측정하는 PM10샘플러는 Teflon 필터를 사용한다. IMPROVE 자료는 일평균 온도를 사용해서 표준온도(25°C)와 표준기압(1013hPa)으로 보정되고, 포집은 일주일 두 번 수요일과 토요일에 측정하고(계절당 26회, 1년에 104회), 포집시간은 0시부터 24시간 동안 포집한다. IMPROVE에 의해 측정된 에어로졸 및 광학적자료는 철저한 QA/QC 절차와 분석을 거친 9개월 후에

일반에게 공개된다.²⁹⁾

모듈 C에서 열적광학반사(TOR:Thermal Optical Reflectance)분석에 의해 구한 탄소자료는 점차 높은 온도에 따라 OC1, OC2, OC3, OC4, pyrolyzed carbon(OP), EC1, EC2, EC3의 8개의 값으로 기록된다.³⁰⁾ 유기탄소(OC:Organic Carbon)와 빛을 흡수하는 대기중의 탄소입자인 광흡수탄소(LAC: Light Absorbing Carbon)는 다음과 같이 식 (1)과 (2)를 사용하였다.¹⁴⁾

$$[OC] = [OC1]+[OC2]+[OC3]+[OC4]+[OP] \text{ ---(3)}$$

$$[LAC] = [EC1]+[EC2]+[EC3]-[OP] \text{ ----(4)}$$

Crater Lake 국립공원의 측정소는 Fig. 1과 같이 위도 42°53'N, 경도 122°08'E 해발고도 1,982m에 있다. Crater Lake에서부터 태평양연안까지의 거리는 약 200km정도이며, 그 사이의 지역에 있는 인구는 30만 명으로 추정된다. 따라서 Table 2에 나타낸 바와 같이 인근의 IMPROVE 관측망 중 Mt. Rainer와 Mt. Lassen에 비해 태평양으로부터의 수송에 대한 연구를 하는데 있어 가장 좋은 장소라고 할 수 있다. Crater Lake의 서쪽에는 인구 10,000~

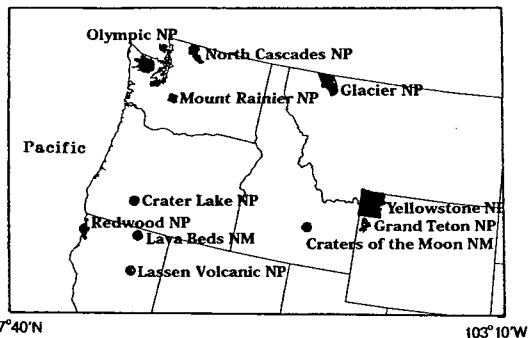


Fig. 1. Geographical map around the observation site.

Table 2. Median spring(March, April, May) concentration from 3 sites in the IMPROVE network. See Fig. 1 for locations

Site	Coordinates	Site elevation(m)	Fine particle mass(ng/m ³)	Sulfate (ng/m ³)	Approximate upstream(west) population (millions)
Crater Lake	42°53'N 122°08'W	1,982	2,576	511	0.3
Mt. Rainer	46°30'N 122°07'W	436	3,935	1,236	2~3
Mt. Lassen	40°32'N 121°34'W	1,799	2,697	565	0.7

50,000명의 도시가 2개, 10,000명 이하의 도시가 10개 정도가 있다. 이런 정도의 인구는 넓은 지역에 비해 매우 작다고 할 수 있으며, 이 지역에서 배출되는 인위적인 오염물질이 얼마가 되는지는 확실하게 몰라도 Crater Lake에 직접적인 영향을 미칠 정도는 아니라고 판단된다.

4. 결과 및 고찰

4.1. trajectory 분석 결과

1988년 3월부터 1999년 5월까지 측정된 자료에 대해 3시간 간격의 10일 등온위 trajectory를 1일 두 번 분석하였다. Table 3에 분석된 trajectory 발생빈도를 나타내었다. 하루에 두 번(00UTC, 12UTC) 모두 Crater Lake에 도달하기 전 3일 동안 공기가 0°~125°W에 존재하고 있을 때를 local trajectory이라 하였고, 그 외는 모두 marine trajectory이라 하였다. marine trajectory 중에서 Crater Lake로부터 3일 동안의 공기가 위도 0°~50°N과 경도 100°~150°E에 있었으면 아시아 trajectory이라 하였다. 그리고 00UTC와 12UTC 중 한번이라도 local trajectory이면 mixed trajectory이라 하였다.

local trajectory는 335회로 전체의 33.1%을 나타내었으며, marine trajectory는 478회로 전체의 47%을 차지하였다. 따라서 Crater Lake는 태평양상의 해양성 공기에 의해 더 많은 영향을 받고 있다는 것을 시사하고 있다. 또한 아시아 trajectory가 53회(5.2%)로 나타나 인위적인 오염물질이 본 연구지역에 도달될 수 있음이 판명되었으며, 주로 11월부터 3월 사이의 한후기에 많은 발생빈도가 있음을 알 수 있다. 또한 marine과 local trajectory가 혼합되

Table 3. Number of samples per month at Crater Lake during 1988. 3~1999. 5.

Type Month	Local	Marine	Asian	Mixed
1	21	41	8	14
2	31	40	10	11
3	29	45	11	25
4	31	50	5	9
5	25	46	3	14
6	25	43	1	18
7	32	36	3	26
8	32	31	-	27
9	35	26	-	16
10	24	31	-	13
11	19	50	8	15
12	31	39	4	12
Total	335	478	53	200

어 나타난 날이 200회로서 전체의 19.7%을 차지하였다.

4.2. 에어로졸의 일반적 특성

Fig. 2는 1988년 3월부터 1999년 5월까지 11년 3개월 동안 nss SO₄²⁻, nss S, NO₃⁻, Cl⁻, Na, K, Ca의 월변화를 나타낸 것이다. nss SO₄²⁻은 8월에 528.07ng/m³으로 가장 높았으며, 7월이 461.29ng/m³으로 두 번째였으며, 1월이 120.23ng/m³으로 가장 낮았다. 하계(6, 7, 8월)의 평균농도가 452.2ng/m³으로 타 계절에 비해 월등히 높았고, 6월이 상대적으로 낮아 5월과 8월이 높은 double peak형을 나타내었다. 그리고 nss S은 8월에 179.9ng/m³으로 가장 높았으며, 5월에 148.3ng/m³로 두 번째였으며, 1월에 가장 낮은 46.8ng/m³이었다. 하계(6, 7, 8월)의 평균농도가 156.2ng/m³이었으며, 춘계(3, 4, 5월)의 평균농도는 127.3ng/m³으로 비교적 높은 농도를 나타내었다. 동계(12, 1, 2월)에 가장 낮은 농도(58.1ng/m³)을 나타내었으며, 월별 경향은 비해염 황산염과 비슷한 변화를 나타내었다.

질산이온(Nitrate ion)의 경우, 2월에서 5월까지와 8월에 100ng/m³이 넘는 농도를 나타내었고 12월에 가장 낮은 농도(47.5ng/m³)를 나타내었다. 염화이온(Chloride ion)의 경우, 10월에 가장 높았고(47.0ng/m³), 7월에 가장 낮은 농도(19.0ng/m³)를 나타내

었다. 나트륨(Sodium)의 경우, 8월이 가장 높았고(63.5ng/m³) 11월이 가장 낮은 농도(23.0ng/m³)를 나타내었다. 칼륨(Potassium)의 경우, 8월이 가장 높았고(42.8ng/m³) 12월이 가장 낮은 농도(9.3ng/m³)를 나타내었다. 칼슘(Calcium)의 경우, 4월이 가장 높고(43.1ng/m³) 1월이 가장 낮은 농도(6.6ng/m³)를 나타내었다. 전체적으로 볼 때 nss-SO₄²⁻, nss S, NO₃⁻, K, Ca은 4~5월과 8~9월에 높은 double peak형태를 취하고, 동계에 최저농도를 나타내었다.

4.3. trajectory에 따른 에어로졸의 특성

Fig. 3은 Crater Lake에서 연구기간 중 local과 marine trajectory일 때의 미세분진과 유기탄소(OC) 및 광흡수탄소(LAC)의 월별 변화를 나타낸 것이다. 미세분진과 유기탄소는 빛의 흡수에 매우 중요한 역할을 하므로 시정악화에 큰 기여를 하는 요소이다. 특히 유기탄소는 연소의 주요생성물이며 생체연소(biomass burning)의 주요 구성물질로 haze를 유발시킨다.³¹⁾ 따라서 trajectory에 따른 미세먼지와 유기탄소 농도를 고찰한다는 것은 시정악화에 미치는 오염물질의 발생기원을 찾는 데 중요하다고 할 수 있다. 미세분진을 비롯한 유기탄소의 농도는 marine trajectory보다 local trajectory일 경우에 더 높은 값을 나타내었으며, 동계에는 두 trajectory에 의한 농도차이는 매우 작았다. 그러나 미세분진의 경우 4월부터 9월 사이에 두 trajectory간의 농도차가 매우 크게 나타났으며, 유기탄소와 광흡수탄소의 경우는 9월과 10월에 크게 나타나는 경향이 있었다. 특히 시정에 영향을 미치는 미세분진과 유기탄소는 8월에 높은 농도를 나타내었고 해양의 영향보다도 내륙의 영향이 더 큰 것으로 나타났다.

Table 4는 Crater Lake에서 측정된 에어로졸과 nss SO₄²⁻, nss S의 평균농도를 local과 marine trajectory에 따라 나타낸 것이다. 해양성공기의 영향을 받을 경우에 더 높은 농도를 나타낸 것은 Cl⁻, Na 그리고 Mg이었으며, Cl⁻의 경우는 2배 정도나 높았으며, Mg의 경우는 미미하였다. 그 외의 물질은 모두 local trajectory일 때가 marine trajectory일 때 보다 더 높은 농도를 나타내었다. 특히 NO₃와 nss SO₄²⁻는 2배 이상이었으며, 그 외 물질은 1.8배 정도였다. 따라서 Crater Lake에서는 주로 내륙기원의 오염물질에 의해 많은 영향을 받는다고 할 수 있으며, 해양성 공기피가 유입될 때 해염에 의한 영향을 상당히 받는다고 할 수 있다.

에어로졸농도에 가장 큰 기여를 한다는 SO₄²⁻의 농도는 local trajectory인 경우에 453.3ng/m³로 marine trajectory의 241.9ng/m³에 비해 월등히 높은 농도를 나타내었고, 또한 local trajectory의 nss

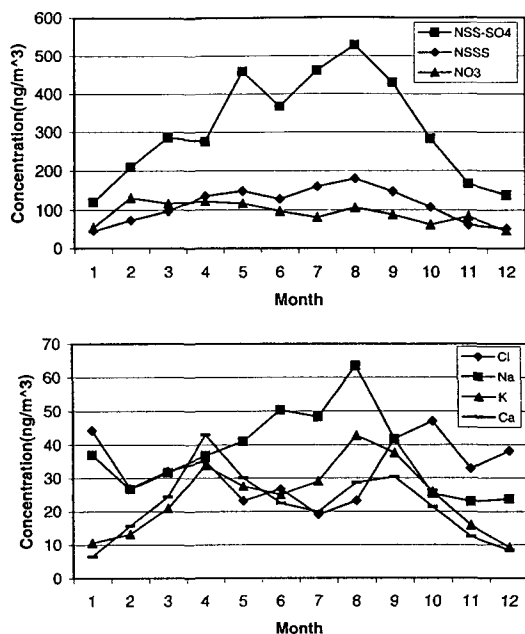


Fig. 2. Monthly variation of nss-SO₄²⁻, nss S, NO₃⁻, Cl⁻, Na, K and Ca at Crater Lake during 1988. 3 ~ 1999. 5.

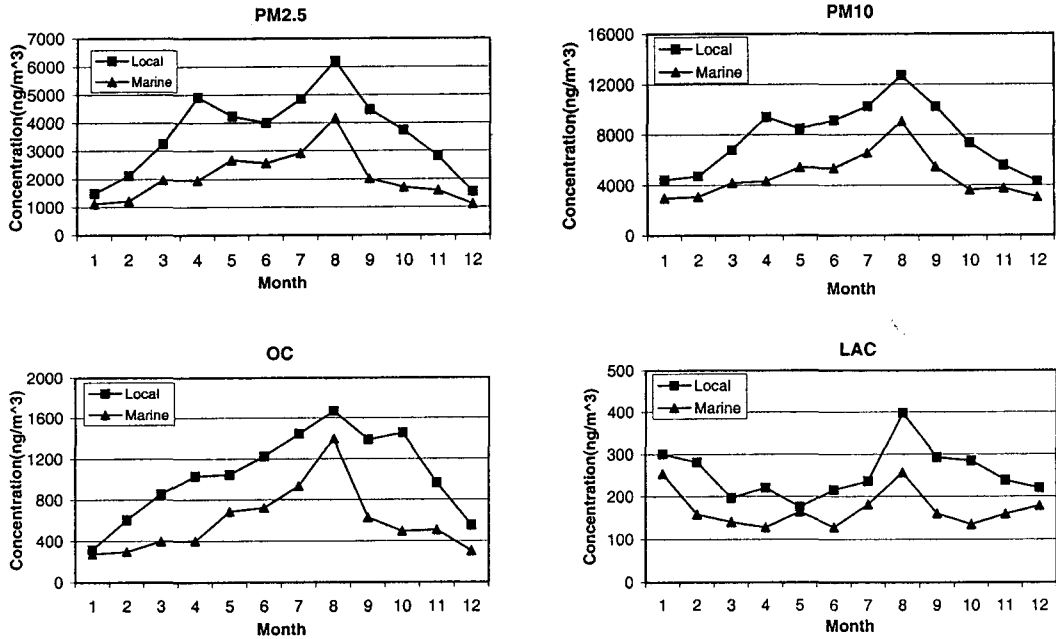


Fig. 3. Monthly mean values of PM2.5, PM10, OC and LAC at Crater Lake during 1988. 3~1999. 5 for trajectory type.

SO₄²⁻ 농도는 444.9ng/m³로 SO₄²⁻(453.3ng/m³) 중의 nss SO₄²⁻의 비가 98%로 nss SO₄²⁻이 대부분을 차지함을 알 수 있었다. marine trajectory의 경우 SO₄²⁻(241.99ng/m³) 중의 nss SO₄²⁻(218.8ng/m³)의 비는 90.5%로 SO₄²⁻중에 어느 정도 해염성분이 포함되어 있다는 것을 나타내었다. 제주도 고산지역의 nss-SO₄²⁻은 6,530ng/m³으로 본 연구지역에 비해 월등히 높은 값을 나타내었으며, SO₄²⁻중 nss-SO₄²⁻의 비는 약 95%를 나타내었다.³²⁾ 따라서 Cra-

ter Lake는 에어로졸의 대부분을 차지하는 SO₄²⁻이 육지기원에 의해 영향을 받고 있다고 할 수 있다

Table 4. Mean concentration(ng/m³) each element at Crater Lake for trajectory type

Type \ Species	All	Local	Marine
Cl	31.9	21.7	43.7
NO ₃	93.7	124.9	58.8
SO ₄ ²⁻	340.5	453.3	241.9
Ca	22.3	30.1	16.2
K	24.5	32.4	17.4
Mg	5.6	4.8	5.9
Na	37.8	32.5	41.1
PM2.5	2864.3	3752.7	2076.5
PM10	6280.3	8079.6	4671.8
S	116.4	152.6	84.4
nss SO ₄ ²⁻	330.8	444.9	218.8
nss S	113.2	149.8	80.9

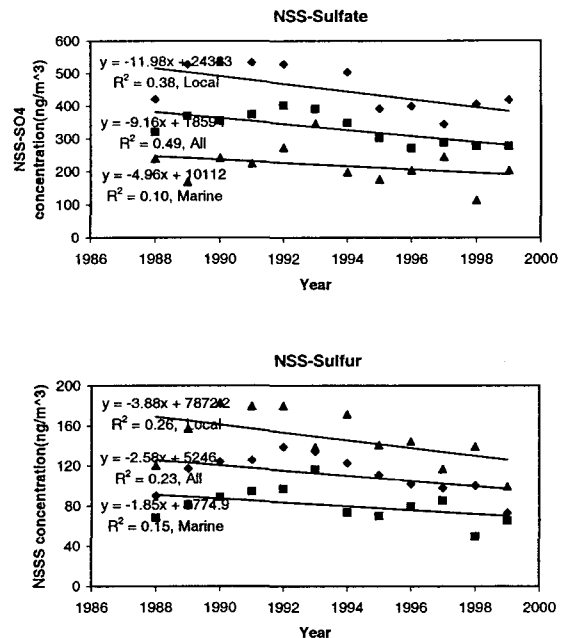


Fig. 4. Yearly change and trend of nss SO₄²⁻ and nss S at Crater Lake for trajectory type.

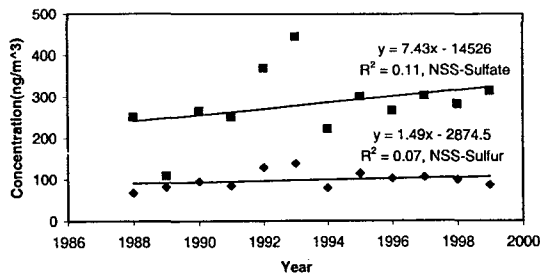


Fig. 5. Annual variation and trend of springtime nss SO_4^{2-} 와 nss S at Crater Lake for marine trajectory.

Fig. 4는 Crater Lake에서의 nss SO_4^{2-} 와 nss S의 연변화를 각 trajectory에 따라 나타낸 것이다. nss SO_4^{2-} 와 nss S 모두 농도의 경년변화는 감소하고 있으며, local trajectory의 감소율이 marine trajectory의 감소율(곡선의 기울기)보다 크게 나타났다. 따라서 nss- SO_4^{2-} 와 nss S를 비롯한 에어로졸의 농도는 감소하고 있다는 것을 알 수 있으며, 대륙의 영향을 받는 local trajectory의 변화가 태평양에 의해 영향을 받는 marine trajectory의 변화보다 더 크게 감소하고 있다. Patterson *et al.*³³⁾에 의해 분석한 황(S)의 농도도 매년 감소하는 경향을 나타내었다.

Fig. 5는 marine trajectory일 때, 봄철의 nss SO_4^{2-} 와 nss S 농도와 변화경향을 나타낸 것이다. 봄철을 제외한 타 계절의 농도는 감소하는데 비해 봄철의 농도만 증가하는 추세를 나타내고 있다. 이는 동아시아에서 배출된 오염물질이 태평양을 건너 미 서해안에 영향을 미치고 있다는 것을 간접적으로 시사하고 있다. 또한 봄철에는 동아시아에서 출발한 기류의 속도가 빠르기 때문에 미국 서해안 도달하는 기간이 짧아 태평양에 침적되지 않고 건너오는 배출량이 많을 수도 있다. 그러나 대륙에서 영향을 미치는 절대적인 양에 비해 해양을 건너오는 것이 많지 않기 때문에 이를 입증하기 위해서는 정밀한 측정이 장기간 실시되어야 할 것으로 믿는다.

5. 결론

1988년 3월 2일부터 1999년 5월 29일까지 미국 오레곤 주 Crater Lake에서 측정된 IMPROVE 자료를 이용하여 분석한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 10일 후진 trajectory 분석 결과 local trajectory는 335회로 전체의 33.1%, marine tra-

jectory는 478회로 전체의 47%, 아시아 trajectory는 53회로 전체의 5.2%를 나타내었다.

- 2) nss SO_4^{2-} , nss S, NO_3 , K, Ca의 월변화는 4~5월과 8~9월에 높은 double peak 형태를 취하고, 동계에 최저농도를 나타내었다.
- 3) Cl^- , Na, Mg를 제외한 물질의 농도는 marine trajectory보다 local trajectory일 경우에 더 높았으며, marine trajectory일 때 SO_4^{2-} 중의 nss SO_4^{2-} 의 농도는 90.5%이었고, local trajectory일 때 98%로 해양의 영향을 많이 받는 것으로 나타났다.
- 4) nss SO_4^{2-} 와 nss S의 연평균 농도는 점차 감소하고 있으나, 봄철의 농도는 증가하는 것으로 나타났다.

감사의 글

본 연구를 위해 자료를 제공해 주신 University of Washington의 Dr. Jaffe 교수에게 진심으로 감사드립니다.

참고 문헌

- 1) Flocchini, R. G., T. A. Cahill, M. L. Pitchford, R. A. Eldred, P. J. Feeney, and L. L. Ashbaugh, 1981, Characterization of particle episodes in the arid West.
- 2) Eldred, R. A., T. A. Cahill, P. J. Feeney, and W. C. Malm, 1987a, Regional patterns in particulate matter from the National Park Service network, June 1982 to May 1986, In Visibility Protection: Research and Policy Aspects, 386-396, APCA, Pittsburgh.
- 3) Joseph, D. B., J. Metsa, W. C. Malm, and M. L. Pitchford, 1987, Plans for IMPROVE: a federal program to monitor visibility in class I areas, In Visibility Protection: Research and Policy Aspects, 113-125, APCA, Pittsburgh.
- 4) Eldred, R. A., T. A. Cahill, L. K. Wilkinson, P. J. Feeney, J. C. Chow, and W. C. Malm, 1990, Measurements of fine particles and their chemical composition in the IMPROVE/NPS networks, In Visibility and Fine Particles, 187-196, A&WMA, Pittsburgh.
- 5) Eldred, R. A. and T. A. Cahill, 1994, Trends in elemental concentrations of fine particles at remote sites in the United States of America, Atmos. Environ., 28, 1009-1019.
- 6) Ames, R. B. and W. C. Malm, 2001, Compa-

- parison of sulfate and nitrate particle mass concentrations measured by IMPROVE and the CDN, *Atmos. Environ.*, 35, 905-916.
- 7) Huffman, H. D., 1996, Comparison of the light absorption coefficient and carbon measure for remote aerosols : An independent analysis of data from the IMPROVE network- I, *Atmos. Environ.*, 30, 73-83.
 - 8) Malm, W. C., 2000, Spatial and seasonal patterns and temporal variability of haze and its constituents in the United States, Cooperative Institute for Research in the Atmosphere, Colorado State University, ISSN 0737-5352-47.
 - 9) Harris, J. M., P. P. Tans, E. J. Dlugokencky, K. A. Masarie, P. M. Lang, S. Whittlestone, and L. P. Steele, 1992, Variations in atmospheric methane at Mauna Loa Observatory related to long-range transport, *J. Geophys. Res.*, 97, 6,003-6,010.
 - 10) Harris, J. M. and D. Kahl, 1990, A descriptive atmospheric transport climatology for the Mauna Loa Observatory, using clustered trajectories, *J. Geophys. Res.*, 95, 13651-13667.
 - 11) Stohl, A., 1998, Computation, accuracy and applications of trajectories-A review and bibliography, *Atmos. Environ.*, 32, 947-966.
 - 12) Jaffe, D. A., T. Anderson, D. Covert, R. Kotchenruther, B. Trost, J. Danielson, W. Simpson, T. Berntsen, S. Karlsdottir, D. Blake, J. Harris, G. Carmichael, and I. Uno, 1999, Transport of Asian air pollution to North America, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 711-714.
 - 13) Jaffe, D. A., T. Anderson, D. Covert, B. Trost, J. Danielson, W. Simpson, D. Blake, J. Harris, and D. Street, 2001, Observation of ozone and related species in the northeast Pacific during the PHOBEA campaigns: 1. Ground-based observations at Cheeka Peak, *J. Geophys. Res.*, 106, 7,449-7,462.
 - 14) 전병일, 2002, 미국 서북부 Cheeka Peak에서의 수송에 따른 봄철 CO와 O₃의 특성, *한국환경과학회*, 11(6), 507-517.
 - 15) Gebhart, K. A., S. M. Kreidenweis, and W. C. Malm, 2001, Back-trajectory analyses of fine particulate matter measured at Big Bend National Park in the historical database and the 1996 scoping study, *The Science of the Total Environment*, 276, 185-204.
 - 16) Russell, L. M., S. N. Pandis, and J. H. Seinfeld, 1994, Aerosol production and growth in the marine boundary layer, *J. Geophys. Res.*, 99, 20,989-21,003.
 - 17) Andreae, M. O. and P. J. Cruzen, 1997, Atmospheric aerosols: biogeochemical sources and role in atmospheric chemistry, *Science*, 276, 1052-1058.
 - 18) Charlson, R. J., J. E. Lovelock, M. O. Andreae, and S. G. Warren, 1987, Oceanic phytoplankton, atmospheric sulfur, cloud albedo and climate, *Nature*, 326, 655-661.
 - 19) Engardt, M. and H. Rodhe, 1993, A comparison between patterns of temperature trends and sulfate aerosol pollution, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 117-120.
 - 20) Luria, M. and H. Sievering, 1991, Heterogeneous and homogeneous oxidation of SO₂ in the remote marine atmosphere, *Atmos. Environ.*, 25A, 1489-1496.
 - 21) Bates, T. S., B. K. Lamb, A. Guenther, J. Dignon, and R. E. Stoiber, 1992, Sulfur emission to the atmosphere from natural sources, *J. Atmos. Chem.*, 14, 315-337.
 - 22) Uematsu, M., R. A. Duce, J. M. Prospero, L. Chen, J. T. Merrill, and R. L. McDonald, 1983, Transport of mineral aerosol from Asia over the North Pacific Ocean, *J. Geophys. Res.*, 88, 5343-5352.
 - 23) Fitzgerald, J. W., 1991, Marine aerosols: A review, *Atmos. Environ.*, 25, 533-545.
 - 24) Mukai, H., Y. Ambe, K. Shibata, T. Muku, K. Takeshita, T. Fukuma, J. Takahashi, and S. Mizota, 1990, Long-term variation of chemical composition of atmospheric aerosol on the Oki Islands in the Sea of Japan, *Atmos. Environ.*, 24A, 1379-1390.
 - 25) Mukai, H., A. Tanaka, T. Fuji, and M. Nakao, 1994, Lead isotope ratios of airborne particulate as tracers of long-range transport of air pollutants around Japan, *J. Geophys. Res.*, 99, 3717-3726.
 - 26) Mukai, H., Y. Yokouchi, and M. Suzuki, 1995, Seasonal variation of methanesulfonic acid in the atmosphere over the Oki Islands in the sea of Japan, *Atmos. Environ.*, 29, 1637-1648.

- 27) John, W., S. M. Wall, and J. L. Ondo, 1988, A new method for nitric acid and nitrate aerosol measurement using the dichotomous, *Atmos. Environ.*, 22, 1627-1635.
- 28) Malm, W. C., J. F. Sisler, D. Huffman, R. A. Eldred, and T. A. Cahill, 1994, Spatial and seasonal trends in particle concentration and optical extinction in the United States, *J. Geophys. Res.*, 99, 1347-1370.
- 29) IMPROVE, 1997, Improve Standard Operating procedures, SOP351, data processing and validation, 38pp.
- 30) Chow, J. C., J. G. Warson, L. C. Pritchett, W. R. Pierson, C. A. Frazier, and R. G. Purcell, 1993, The DRI thermal/optical reflectance carbon analysis system: description, evaluation, and applications in U.S. air quality studies, *Atmos. Environ.*, 27(A), 1185-1201.
- 31) Reid, J., P. Hobbs, R. Fereck, D. Blake, V. Martins, M. Dunlap, and C. Liousse, Physical, chemical and optical properties of regional hazes dominated by smoke in Brazil, *J. Geophys. Res.*, 103, 32,019-32,080.
- 32) 이호근, 박경운, 서명석, 장광미, 강창희, 허철구, 1995, 제주도 고산지역에서 수용성 에어로졸의 화학적 성분 분석, *한국대기보전학회지*, 11(3), 245-252.
- 33) Paterson, P., H. Iyer, J. Sisler, and W. C. Malm, 2000, An analysis of the yearly changes in sulfur concentrations at various National Parks in the United States, 1980-1996, *J. Air & Waste Manage. Assoc.*, 50, 790-801.