

## 제주지역을 중심으로 한 대기 중 황화합물의 관측

김기현<sup>1,2,\*</sup> · Hilton Swan<sup>3</sup> · 양규승<sup>1</sup> · 김지영<sup>4</sup> · 손장호<sup>5</sup> · 이강웅<sup>6</sup> · 강창희<sup>7</sup>

<sup>1</sup>세종대학교 지구정보학과, 143-747 서울시 광진구 군자동 98

<sup>2</sup>경희대 환경연구센터, 449-701 경기도 용인시

<sup>3</sup>Australian Government Analytical Laboratories,

<sup>4</sup>기상연구소, 156-720 서울시 동작구 신대방동

<sup>5</sup>동의대학교 환경공학과, 614-714 부산시 부산진구 가야동

<sup>6</sup>외국어대학교 환경학과, 449-701 경기도 용인시

<sup>7</sup>제주대학교 화학과, 690-756 제주도 제주시 아라1동

## Analysis of Atmospheric Sulfur Compounds in Cheju

Ki-Hyun Kim<sup>1,2,\*</sup> · Hilton Swan<sup>3</sup> · Gyu Seung Yang<sup>1</sup> · Jiyoung Kim<sup>4</sup> ·  
Zang-Ho Shon<sup>5</sup> · Gangwoong Lee<sup>6</sup> · Chang-Hee Kang<sup>7</sup>

<sup>1</sup>Department of Earth Sciences, Sejong University, Seoul 143-747, Korea

<sup>2</sup>Center for Environmental Research, Kyunghee University, Yong In 449-701, Korea

<sup>3</sup>Australian Government Analytical Laboratories, Australia

<sup>4</sup>Meteorological Research Institute, Seoul 156-720, Korea

<sup>5</sup>Department of Environmental Engineering, Donggeui University, Pusan 614-114, Korea

<sup>6</sup>Department of Environmental Sciences, Hankook University of Foreign Studies, Yong In 449-701, Korea

<sup>7</sup>Department of Chemistry, Cheju National University, Cheju 690-756, Korea

**Abstract:** The concentrations of dimethylsulfide (DMS) and carbon disulfide (CS<sub>2</sub>) were measured concurrently with relevant environmental parameters at Kosan, Cheju during Apr 2001. Results of our analysis indicate that the combined temporal variations of both DMS and CS<sub>2</sub> record three distinctible patterns that are separable from each other. For instance, DMS behaved very similarly to CS<sub>2</sub> during the 1st (5~18 Apr) and 3rd period (23~26 Apr). The pronouncingly high concentration of CS<sub>2</sub> was maintained during the first period, but DMS values peaked mostly during the third period. It was furthermore striking to find that changes in DMS levels occurred in an opposite direction relative to CS<sub>2</sub> during the 2nd period. Although most of these variabilities appear to be associated with the interaction of source/sink processes and the air parcel movement, certain aspects of their behavior are found to be highly complicated enough to account for.

**Keywords :** dimethylsulfide, CS<sub>2</sub>, temporal variation, natural emission, sulfur chemistry

**요약 :** 2001년 봄철 기간을 택하여 한반도에서 비교적 청정한 대기질을 유지하는 것으로 알려진 제주도를 거점으로 DMS와 CS<sub>2</sub>의 농도분포를 시간대 별로 관측하고 이를 조절하는 요인들에 대한 세부적인 분석을 수행하였다. 본 연구의 관측 결과에 따르면, 전체 기간동안 관측된 DMS와 CS<sub>2</sub>의 농도분포는 시간대 별로 세가지 경향성을 뚜렷하게 보여 주었다. 실험의 전·후반부에는 양성분의 농도증감 경향이 거의 비슷하게 나타난데 반해, 중반부에는 증감이 반대로 나타나는 경향성이 뚜렷하게 확인 되었다. 그리고 또한 특이한 현상은 전반기에 CS<sub>2</sub>의 고농도가 나타난 반면, 후반기에는 DMS의 농도가 50% 가까이 증가하는 것으로 나타났다. 후반기 기간중의 공기체가 한반도의 내륙지역에 상당 수준 정체하였다가 제주로 유입되었다는 점을 감안하면, 다른 기간대에 비해 상대적으로 높은 DMS의 농도는 대단히 예외적인 경향으로 간주할 수 있을 것이다. 본 연구의 결과에 따르면 지리적 특성에도 불구하고, 제주 지역에서 관측한 DMS의 농도분포는 단순한 해양환경으로부터 파생되는 요인 외에도 여러 가지 복잡한 인자들에 의하여 조절되고 있음을 확인 할 수 있다.

**주요어 :** DMS, CS<sub>2</sub>, 시간적 변화, 자연배출, 황화학

## 서론

지난 수십여년간 대기권의 변화와 기후환경의 관계 등을 체계적으로 이해하기 위한 노력의 일환으로, 환원황화합물에 대한 연구가 꾸준히 이루어져 왔다 (e.g. Charlson *et al.*, 1987). 대기 중에 존재하는 황화합물 중에는 인위적으로 배출되는 부분과 마찬가지로, 자연적으로 배출되는 황화합물이 동시에 존재한다. 인위적으로 생성·배출되는 황의 경우 사람들의 산업활동에 의해 주로 발생하는 이산화황( $\text{SO}_2$ )의 결정적인 역할이 잘 알려져 있다(Möller, 1984). 이에 반해, 자연적으로 생성·배출되는 황화합물로는 주로 해양환경에서 쉽게 발견되는 중메틸황(DMS)의 역할이 중요한 것으로 잘 알려져 있다. 그 외에도  $\text{CS}_2$ ,  $\text{H}_2\text{S}$ , COS, DMDS, MeSH 등과 같은 황화합물도 자연적인 경로를 통해 배출되는 것으로 알려져 있다(Watts, 2000). 자연적인 황화합물의 발생은 성분별로 여러 가지 발생경로를 통해서 이루어진다. 특히, 양적인 면에서 이들의 절대적인 부분을 차지하는 DMS와 같은 성분은 식물성 플랑크톤들의 생리적 메커니즘 과정에서 직접적으로 방출되는 경우도 있고, 동물성 플랑크톤에 의해 포획되는 과정에서도 분해·방출될 수도 있는 것으로 밝혀지고 있다(Andreae, 1986).

제주 서측 고산 지점의 경우 한반도 지역 중에서 외부 오염원의 영향을 비교적 민감하게 평가할 수 있는 주요 연구 관측점으로 잘 알려져 있다. 따라서, 이러한 요인의 중요성을 평가하기 위해 다양한 방식의 연구가 90년대 이래 이루어지고 있다(Carmichael *et al.*, 1997; Kim *et al.*, 1998). 특히 대규모의 황이나 질소화합물류의 오염물질들이 편서풍을 타고 중국 대륙에서 한반도로 유입된다는 점을 감안할 때(Chen *et al.*, 1997; Hayami and Carmichael, 1997), 제주연안해지역을 중심으로 한 환원황화합물의 분포 특성이나 배출규모를 규명할 수 있는 연구는 여러 가지 의의를 지닌다. 주로  $\text{SO}_2$ 로 대표되는 인위적 오염물질이 중국 등지로부터 유입되는 부분에 대비하여, 황해에서 자체적으로 생성되는 환원황화합물의 규모를 정량적으로 파악하는 것은 이들의 순환을 이해하기 위한 가장 기초적인 단계로 간주할 수 있을 것이다(Kim *et al.*, 2000).

동아시아 전역에 위치한 여러 관측 지점들을 중심으로 에어로졸의 생성과 분포 특성 등을 규명하기 위해 국제적 규모로 ACE-ASIA 연구사업이 진행 되

었다. 본 연구에서는 이러한 국제적 연구 사업과의 연계를 위해 제주의 고산지점을 기점으로 DMS를 위시한 환원황화합물의 분포특성을 관측하였다. 이러한 연구목적을 달성하기 위하여 2001년 4월 기간동안 이들 성분에 대한 연속 관측사업을 수행하였다. 본 연구 기간 중 확보한 DMS와  $\text{CS}_2$ 를 위시한 환원황화합물 및 주요 기상인자에 대한 세부적인 분석을 통해, 이들 성분의 농도분포특성을 정의하고, 농도분포에 영향을 미치는 여러 요인들을 면밀하게 고찰하였다.

## 연구방법

본 연구가 이루어진 제주 고산지역은 제주의 서측에 위치한 지점으로서 기상청에서 운영하는 제주고층기상관측대 등이 위치하여, 여러 가지 과학적 연구를 수행하기에 훌륭한 입지적 조건을 갖추고 있다. 이곳의 지형적 특성 또는 기상 조건 등과 관련된 정보는 이미 다수의 선행연구를 통해 잘 알려져 있다. 실제로 이 지역을 중심으로 국내 연구진의 연구(Kim *et al.*, 1998; Kim *et al.*, 2000)가 다수 진행된 것은 물론 이거니와, 국외 연구진들을 중심으로 한 연구도 상당 수준으로 이루어졌다(Carmichael *et al.*, 1997; Chen *et al.*, 1997). 본 연구에서 황화합물의 채취와 분석은 과거에 Swan and Ivey(1999)가 사용한 Pulsed Flame Photometric Detection(PFPD) 방식을 응용하여 실시간 기준으로 이루어 졌다. DMS와  $\text{CS}_2$  농도의 관측은 실제 20분 주기로 이루어졌는데, 이들 자료는 최종적으로 1시간 단위로 변환이 이루어진 후, 동시간 대에 관측된 기상자료들과 연계하여 여러 가지 관점에서 세부적인 해석이 이루어 졌다(기상자료는 제주고층기상관측대에서 관측된 자료를 활용하였다.).

본 연구는 제주 고산지역을 중심으로 2001년 4월 5일 자정 가까운 시점부터 시작하여, 4월 26일 자정 가까운 시점까지 총 22일 기간 동안 진행되었다. 이 기간동안 관측된 황화합물의 농도자료들은 시간 단위로의 전환을 통해, 최종적으로 약 360여 개 수준으로 확보되었다. 시료의 채취와 분석에 대한 세부적인 방법은 이미 Swan and Ivey의 선행연구 등에서 상세히 묘사되었으므로, 본 연구에서는 이들 방식에 대해 간략한 설명을 제시하면 다음과 같다. 시료의 채취는 야외실험실 밖으로 확장된 PTFE 배관형의 시료 선

을 따라 240 mL/min의 유속으로 외기를 15분 간격으로 흡입하는 방식으로 이루어졌다. 채취 선으로 유입된 공기를 저온농축부(cryogenic trapping)에 통과시키므로써, 이 기간동안 황화합물을 선택적으로 농축시킬 뿐만 아니라, 수분이 분석시스템 내부로 유입되는 현상을 제어해 주었다. 저온압축이 종료됨과 동시에 저온농축이 이루어진 부분은 35°C의 물에 담겨져, 농축된 황화합물을 열탈착시켜 GC 시스템에 유입시키므로써, 정상적인 분석싸이클을 완성하였다.

국내에서 아직까지 대기 중 황화합물의 분석에서 PFPD 방식의 활용결과를 발견하기 쉽지 않기 때문에, 이 방식에 대해 간략하게 소개를 제시하면 다음과 같다. 본 연구에서 제시된 것과 같이 PFPD 방식과 연계한 GC 분석법은 비교적 최근에 개발된 분석 방식으로 기존의 FPD 방식이 지닌 검출한계의 제약 등 여러 가지 문제점을 극복한 시스템으로 잘 알려져 있다. 그 외에도 이와 같은 장비는 고가의 Sulfur Chemoluminescence Detector(SCD)에 근사한 수준의 검출효과를 보이는 반면, 현장응용에 적합하게 작은 부피를 유지한다는 점이 장점으로 알려지고 있다. 본 연구에 활용된 PFPD 분석방식은 DMS의 경우, 0.02ng 수준의 검출한계를 기록하였다(현장 분석시 시료의 유입량이 약 4liter에 가까운 수준인 것을 감안하면, 실제 현장분석에서 약 2ppt에 가까운 검출한계를 유지하였다고 할 수 있다.). 본 시스템을 이용한 황화합물의 검출특성에 대한 세부적인 내용은 Swan and Ivey(1999)로부터 참조할 수 있다.

## 결과 및 토론

### DMS와 CS<sub>2</sub>의 농도분포

본 연구는 ACE-ASIA의 집중관측(intensive study) 기간으로 설정된 봄철기간 중 4월 5~26일을 택하여 실시하였다. 이 기간동안 관측된 기상자료의 분석 결과는 Table 1에 요약하였다. DMS의 농도분포 특성을 체계적으로 규명하기 위한 하나의 보조적인 지표로서 CS<sub>2</sub>의 농도분포에 대한 경향성도 동시에 분석하였다. 연구기간동안 발견된 DMS의 농도범위는 검출한계에서 107ppt이고 CS<sub>2</sub>의 농도범위는 검출한계에서 110ppt로 발견되었다(이때 검출한계 이하인 농도는 단순히 0ppt로 간주하였다. 0ppt로 처리된 DMS의 자료수는 전체 358개 중에서 20개로 약 5.6%에 해당한다. 반면, CS<sub>2</sub>는 전체 356개 자료 중

에서 1개로 0.2% 수준으로 나타났다).

DMS와 CS<sub>2</sub>의 농도분포는 전체 연구기간동안 상당히 다양한 범위에서 변화를 보여 주었다. DMS는 4월 24일 19시에 최고농도인 107ppt를 기록한 반면, CS<sub>2</sub>는 이보다 앞선 4월 14일 9시에 110ppt의 최고 농도를 보여 주었다. 그런데 이렇게 관측된 CS<sub>2</sub>의 최고 농도 치는, DMS의 경우와 달리 전체 자료의 분포경향에 대한 해석을 왜곡할 정도로 유난히 두드러지게 큰 값으로 판단되었다. 따라서, CS<sub>2</sub> 자료의 분석은 이상 농도치로 간주할 수 있는 110ppt를 제외한 상태에서 이루어졌다. DMS와 CS<sub>2</sub>의 농도분포는 전체 연구기간 동안 다음과 같이 3가지 형태로 구분이 가능한 분포특성을 보여주었다. 우선 편의상, (1) 연구의 전반기 시점인 4월 5일(JD=95)부터 4월 18일(JD=109) 기간, (2) 4월 19일(JD=109.375)에서 4월 22일(JD=113)까지의 중반기, (3) 4월 23일(JD=113.375)에서 종료일인 4월 26일(JD=116.917)까지를 후반기로 구분해 보았다. 전반기의 경우, 양자간에 대단히 유사한 증감을 보이는 분포특성이 뚜렷하였다. 그러나 중반기의 경우, DMS와 CS<sub>2</sub>의 농도분포간에는 농도 증감의 성향이 어느 정도 반대의 경향성을 띠는 것이 확인되었다. 예를 들어, DMS의 농도가 증가하면 CS<sub>2</sub>는 감소하고, 반대로 DMS의 농도가 감소하면 CS<sub>2</sub>는 증가하는 양상이 나타났다. 이 기간대의 특징은 전반기에 비해 DMS가 일정 수준 상승된 농도를 보인 반면, CS<sub>2</sub>의 농도는 두 배 이상 현저하게 감소되었다. 후반기엔 다시 DMS와 CS<sub>2</sub>가 유사한 경향을 보이는 분포특성을 회복하였다. 그러나 전반기와 비교해 볼 때, 양 성분 농도의 크기 차이가 약 7.6배에 달할 정도로 DMS와 CS<sub>2</sub>의 평균값이 확연하게 구분되었다.

이들 성분의 농도 분포가 기간대별 큰 차이를 보인다는 것은 기간대별 빈도분포의 비교결과에서도 확연하게 나타났다. 그런데, 황화합물들간의 농도차이가 기간대별로 현격한 차이를 보이는데 반해, 위에서 정의한 3개 기간대별로 구분된 기상자료를 보면 이처럼 큰 차이를 발견할 수 없다(Table 1). 기온, 풍속, 습도, 강수량 등 주요 기상변수의 시간대별 변화 경향성을 비교해 보면, 기간대별로 미미한 차이를 보인다. 따라서 기간대마다 뚜렷한 특징을 드러내는 DMS와 CS<sub>2</sub>의 변화경향 등에 대한 설명은 단순히 이들 주요 변수의 변화경향과의 연계만으로 접근하기에는 곤란한 것으로 보인다. 그런데 기간대 별로 나타

**Table 1.** A statistical summary of concentration data for sulfur species and relevant environmental parameters determined concurrently at Kosan Super Site of Cheju island in Korea during Apr. 2001.

Parameter	unit	(a) All			(b) Period 1			(c) Period 2			(c) Period 3		
		Mean±SD	Range (N)	5-26 Apr. 2001	Mean±SD	Range (N)	5-18 Apr. 2001	Mean±SD	Range (N)	19-22 Apr. 2001	Mean±SD	Range (N)	23-26 Apr. 2001
DMS	pptv	18.7±17.9	0-107 (358)	16.1±0.99	0-79.4 (226)	19.8±1.27	4.13-68.56 (68)	26.9±1.86	0-107 (64)				
CS <sub>2</sub>	pptv	6.14±1.09	0-57.1 (356)	7.74±0.973	0-21.9 (224)	3.33±0.54	0-11.97 (68)	3.54±0.66	0-15.27 (64)				
Temp	°C	13.86±2.77	8-21.9 (518)	14.30±0.41	8-21.9 (328)	13.18±0.45	9.7-18.4 (96)	13.03±0.47	9.8-18.7 (94)				
WS <sup>1</sup>	m/s	0.85±0.40	0.15-2.23 (509)	0.85±0.15	0.15-2.23 (328)	0.82±0.20	0.15-1.62 (96)	0.88±0.18	0.25-1.62 (94)				
STP <sup>2</sup>	hPa	1007±3.08	1007-1013 (173)	1007±0.54	1002-1013 (110)	1005±0.71	1001-1011 (32)	1008±0.60	1005-1012 (31)				
SLP <sup>3</sup>	hPa	1015±3.12	1009-1022 (173)	1016±0.55	1010-1022 (110)	1013±0.71	1009-1020 (32)	1017±0.61	1013-1020 (31)				
RF <sup>4</sup>	mm	0.94±0.97	0-3.4 (37)	1.19±0.51	0.1-3.2 (17)	0.46±0.38	0-1.5 (12)	1.1±0.62	0.2-3.4 (8)				
RH <sup>5</sup>	%	69.1±12.2	35-93 (518)	68.7±0.81	35-93 (328)	74.4±1.15	47-93 (96)	65.1±1.06	43-87 (94)				
DP <sup>6</sup>	°C	8.71±5.25	-1.8-54 (173)	8.51±0.57	8.71-5.25 (110)	8.55±0.69	1.3-12.1 (32)	9.6±1.36	0.5-54 (31)				

Superscripts 1 through 6 denote wind speed, station pressure, sea level pressure, rainfall, relative humidity, and dew point, respectively.

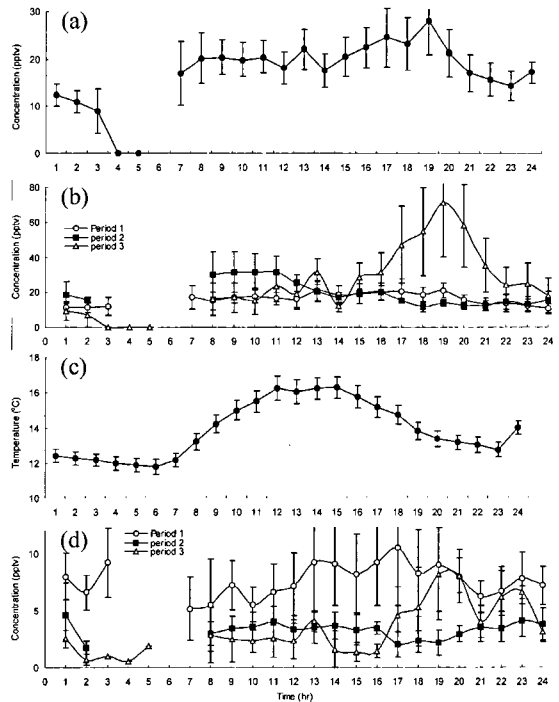
나는 DMS와 CS<sub>2</sub>의 상이한 분포특성을 감안하지 않을 수 없으므로, 이들 자료의 분석은 가끔적 기간대별 특성을 감안하여 시도하였다.

**기상학적 특성과 황화합물의 일주기적 분포특성**

앞에서 전체 연구기간동안 관측된 농도자료를 이용하여 일별 주기의 농도분포 경향성을 비교하였다. 이러한 비교와 유사하게 24시간을 주기로 진행되는 DMS와 CS<sub>2</sub>의 일주기 농도분포 경향성에 대한 비교도 이들의 분포특성을 보다 세밀하게 규명할 수 있는 여러 가지 정보를 제공할 수 있을 것으로 기대된다(Shon *et al.*, 2001). 비록 기간대별 기상인자의 분포특성을 뚜렷하게 구분하기는 쉽지 않지만, 이들의 농도 분포가 포괄적인 관점에서 기온, 풍속, 습도 등을 위시한 주요기상 변수에 어느 정도 영향을 받을 것을 감안할 필요가 있다. 따라서 기간대별로 이들 변수의 분포특성을 황화합물의 농도변화와 연계하여 설명해 보고자 하였다. 기상인자의 일주기를 보면, 기온과 풍속은 주야차의 경향을 반면에 습도는 주저야고의 경향을 보이는 일반적인 기상조건을 확인할 수 있다. DMS와 CS<sub>2</sub>의 일주기경향은 이들 기상인자의 경향보다는 훨씬 복잡한 형상을 띠고 있다.

Fig. 1에는 양 성분의 24시간 주기적 분포특성을 비교하였다. 그 결과를 보면, 양 성분 모두 야간대에 비해 주간대에 더 높은 농도를 띠는 경향을 보이는 것으로 나타난다. 그런데 앞에서 각 기간대별로 농도 분포의 경향이 현격하게 다르게 나타난 점을 감안하여, 이들의 24시간 주기 경향성도 다시 각 기간대별로 세분하여 분석해 보았다. Fig. 1에 기간대별로 분리된 결과를 보면, DMS의 농도는 세 가지의 비교기간대별로 상당한 차이를 보인다. 1기간대에는 주야간의 차이가 뚜렷하지 않고, 2기간대에는 주간대의 고농도가 확연하게 높고, 3기간대에는 이와 정반대로 야간대의 고농도가 뚜렷하게 나타난다. 이와 같이 기간대별로 구분된 자료로 24시간 주기의 분포특성에 대한 비교결과에 따르면, 3기간대에 DMS농도가 현저하게 상승된 반면, CS<sub>2</sub> 농도는 2기간대 부터 낮은 수준을 유지하였다는 것을 확인할 수 있다.

기간대 구분없이 전체자료를 비교한 결과에서 주간대 농도가 높게 나타난 것은 기간대별로 다양한 자료의 특성이 복잡하게 반영된 결과로 보인다. 주로 해양환경에서 DMS의 일주기 분포가 주저야고의 형태로 나타나는 것을 감안하면, 제 2기간대에 나타나



**Fig. 1.** Diurnal variations of DMS and CS<sub>2</sub> are compared between all and each distinguishable period for our study purpose.

는 경향은 상당히 예외적인데 반해, 제 3기간대에 나타나는 결과는 일반적으로 예상할 수 있는 경향과 상당히 일치한다. 이처럼 야간대에 고농도가 형성되는 이유는 주로 DMS의 산화제거기작의 주야간대별 차이로 설명된다. 예를 들어, 낮시간대에 OH 라디칼에 의한 DMS의 파괴가 효과적으로 진행되는데 반해, 주로 밤시간대에 DMS의 파괴기작으로 제안되는 NO<sub>3</sub> 라디칼과의 반응은 상대적으로 비효율적인 것으로 알려져 있다. 그 외에도, 야간대에 형성되는 역전층의 영향으로 지표면 부근에서 고농도 상태의 유지가 상대적으로 용이하였을 가능성도 배제할 수 없다. 반면, CS<sub>2</sub>는 다른 기간대에 비해 1기간대에 고농도가 유지된 경향이 24시간 주기의 비교에서도 뚜렷하게 확인이 된다.

절대적인 농도 값의 경감양상에도 불구하고, 이들 자료간에는 상당히 유사한 시간적 변화경향이 유지되었다는 점은 특이하다. 실제 Fig. 1에 제시된 바와 같이 기간대별로 구분된 양성분의 24시간 주기의 시간대별 평균농도를 이용하여, 양 성분간의 상관성을 분석한 결과, 상관계수는 다음과 같은 차이를 보였다.

1, 2, 3기간대에 0.427, 0.303, 0.799로 나타나, 3기간대에 양자의 상관성이 가장 높은 것으로 나타났다. 제 3기간 중 DMS의 농도분포특성은 여러 가지 기상인자와의 관계를 감안하여, 뒤에서 조금 더 자세하게 언급하고자 한다.

### DMS와 CS<sub>2</sub>의 농도분포와 기상학적 조건에 대한 고찰

각 기간대별로 다양한 분포특성이 나타나는 것을 설명하기 위해, 기상인자들과의 관계를 세밀하게 분석해 보았다. 풍속이나 기온 등이 전체 기간 동안 거의 미미한 변화를 보인데 반해 상대습도만 2기간대에 상당 수준 증가하는 것을 알 수 있다. 전체적으로 기온이나 풍속과 같은 인자들의 변화가 미미하다는 점을 감안하여, 공기체의 유동경로 또는 풍향 등과 이들의 농도변화를 연계하여 비교하는 것도 의미있을 것으로 보인다. 역궤적분석(Back-trajectory) 결과를 토대로 1부터 3기간대에 공기의 이동경로를 분석해 보았다. 전체 실험기간의 절반 이상을 차지하는 1기간대를 보면, 다양한 경로를 통해 제주지역으로 공기가 유입되었음을 알 수 있다. 러시아에서 중국을 거쳐 한반도의 동해를 통해 제주도로 도달하기도 하고, 일본 남해안을 거쳐 제주에 도달하기도 하였다. 그 외에도 러시아에서 중국을 거쳐 동해를 통과한 후 다시 황해를 거쳐서 들어오는 식으로 제주도에 도달하는 경우도 확인되었다. 이렇듯 공기체가 복잡한 경로를 통해 제주도로 유입되기 때문에, 여러 가지 복잡한 기작의 영향이 혼재할 가능성이 크다. 2기간 대에는 중국에서 황해안을 타고 제주도에 도달하거나 러시아에서 동해를 거쳐 도달하기도 하였지만, 주로 일본 남해안을 거쳐 고산지역으로 유입되는 경향이 가장 빈번하게 발견되었다. 그러나 그 외에도 유라시아 지역에서 발원한 후 동해를 거쳐 들어오기도 하기 때문에, 앞서 1기간대와 마찬가지로 적당히 황해상에 체류한 공기들의 유입이 주를 이룬 것으로 보인다. 그런데 이 기간 중에 DMS와 CS<sub>2</sub>가 강한 음의 상관관계를 보인 것을 감안하면, 1, 3기간에 비해 양 성분들의 생성이 상당히 이질적으로 이루어졌을 가능성이 크다. 3기간에는 공기체의 유입이 거의 동일한 경향을 보이는데, 주로 중국대륙에서 발원한 공기가 한반도 내륙지역을 서서히 통과한 후, 고산지역으로 들어오는 것으로 확인 되었다. 따라서 다른 기간대에 공기체의 유입이 해양환경의 영향을 많이 받은 것과

달리, 3기간대의 경우 내륙지역의 통과에 따라 어느 정도 오염된 공기의 유입이 활발하게 이루어진 것으로 드러났다. 대체로 한반도 내륙지역에 산재한 산화제들에 의해 이들 성분의 산화 촉진될 수 있다는 가능성을 감안하면, DMS의 농도가 CS<sub>2</sub>의 농도보다 7.6배 정도까지 높을 정도로 또는 다른 기간대의 DMS 농도에 비해 약 50% 이상의 증가를 보인 현상은 대단히 의외적이다.

기간대별 풍향의 발생경향을 세밀하게 분석한 결과, 역궤적 분석자료의 경향과 어느 정도 유사한 경향성이 존재한다는 것을 확인할 수 있다. 앞서 모든 경로를 통해 공기의 유입이 비교적 불규칙하게 일어난 것으로 보이는 1기간대의 경우, 풍향의 발생도 모든 방향에서 고르게 일어난 것이 확인된다(Fig. 2). DMS나 CS<sub>2</sub>의 농도도 남풍이 부는 경우를 제외하고는 일정한 농도를 유지하는 것으로 나타났다. 반면, 비교적 동풍의 영향이 큰 2기간 대에는 DMS의 농도가 앞의 1기간과 같이, 대부분의 풍향대별로 산만하게 나타났다. 반면, CS<sub>2</sub>의 농도는 남풍에서 뚜렷하게 크게 나타나는 것을 볼 때, 양 성분간의 연계성을 발견하기가 쉽지 않다. 이와 같은 점을 감안하면, 2기간 대에 CS<sub>2</sub>의 농도는 남풍의 발생에 민감하게 영향을 받은 것으로 보인다. 마지막으로 한반도에 정체되었던 공기가 북풍과 함께 주로 유입된 것으로 나타난 3기간 대에는, 두 성분 모두 일관성 있게 북풍 방향에서 가장 높은 농도를 보여주었다. DMS와 CS<sub>2</sub>간에 큰 농도차이가 나는 현상에도 불구하고, 유사한 일주기가 유지되는 현상 또는 동질의 풍향에 종속 되 있었다는 점들을 감안하면, 여전히 3기간대에 양 성분의 발생은 동일한 또는 유사한 발생원(예를 들어, 해양기원)의 영향을 받았을 가능성이 큰 것으로 기대된다.

### 환원황 화합물의 농도를 조절하는 요인들에 대한 고찰

각 기간대별로 관측된 자료간의 특성을 보다 세밀하게 분석하기 위해서는 황화합물 자료와 여러 가지 주요한 주변 인자들과의 관계를 면밀하게 분석하는 것이 중요하다. 이러한 목적으로 상관분석을 실시하였다. 이러한 분석 결과는 앞에서 확인한 황화합물들에 작용하는 여러 가지 요인들의 관계를 보다 구체적으로 확인시켜준다. 전체적으로 보면, DMS와 CS<sub>2</sub> 모두 여타 환경변수에 비해, 풍속과 기온에 일관성있는 상관성의 경향을 유지하는 것으로 확인된다. 특히 이

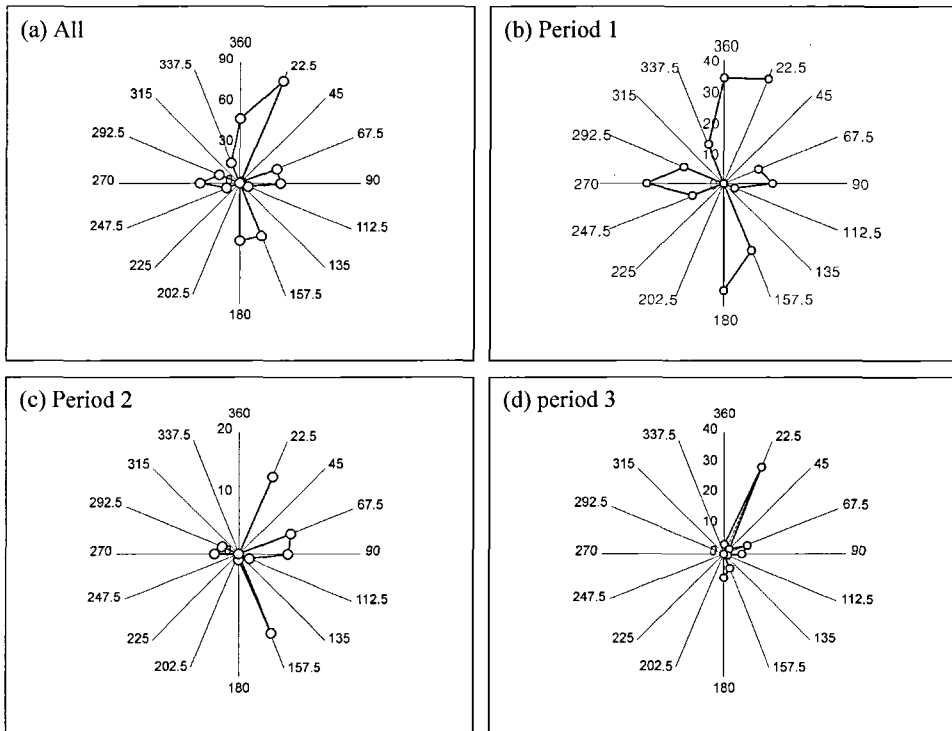


Fig. 2. A comparison of frequency distribution of windrose patterns between different study periods.

러한 특징은 1과 3기간대의 경향성이 거의 동일하게 유지되는 것과 달리, 2기간대에는 전혀 반대의 경향성이 나타나는 것으로부터도 확인된다 예를 들어, 1과 3기간대에는 두 성분 모두가 동시에 기온과 강한 음의 상관성을 유지하는데 반해, 풍속과는 강한 양의 상관성을 유지하는 것으로 나타났다. 여기서 한 가지 유의할 점은 1 기간대인 4월 10~14일 그리고 3기간대에 속하는 4월 25~26일 기간동안 황사의 발현이 뚜렷하게 확인되었다는 점에 유의할 필요가 있다. 전체 실험기간의 상당 부분을 차지하는 1기간대의 수일이 황사기간에 겹치는데 반해, 4월에 지나지 않은 제 3기간대의 상당 부분에 황사현상이 강하게 나타났다. 따라서 3기간대에 상대적으로 고농도의 DMS가 관측된 것은 이러한 외부적인 요인이 어느 정도 작용하였을 가능성을 배제하기 어려운 간접적인 증거로도 볼 수 있다.

비록 3기간대에 높은 농도의 DMS가 출현한 것은 여전히 높은 예외성을 보여 주는 사례라고 할 수 있지만, 대체로 강한 풍속이 유지되는 조건에서 황화합물의 농도가 상승하는 현상은 주로 이 기간대에 제주의 고산지점에서 관측된 황화합물들이 해양성 기원

으로 발생원에 상당히 영향을 받았을 가능성을 부인하기 어려울 것이다. 그리고 기온과 음의 상관성은 이 두 기간대에 대체로 야간대에 상대적으로 높은 농도의 DMS가 유지되는 성향과 동일한 관점에서 설명이 될 수 있을 것이다. 이에 반해 2기간대에는 DMS와 CS<sub>2</sub>의 농도분포간에 뚜렷한 음의 상관성이 나타난 것과 마찬가지로 DMS와 이들 기상인자와의 관계는 여타 기간대와는 정반대의 경향성을 보여 준다. 즉 DMS의 경우, 풍속과 음의 상관성을 그리고 기온과는 양의 상관 관계를 뚜렷하게 나타낸다. 앞서 DMS와 CS<sub>2</sub>의 풍향대별 발생경향의 비교에서 나타난 바와 같이 이 기간대에 양 성분의 농도는 해양성 기원 이외 여타 요인들에 상당 부분 영향을 받았을 가능성이 큰 것으로 사료된다.

## 결론

본 연구에서는 ACE-ASIA 집중관측과 연계하여 제주 고산지역을 중심으로 2001년 봄 기간 중 DMS와 CS<sub>2</sub>를 포함하는 환원황화합물의 농도분포를 관측하였다. 본 연구에서는 짧은 주기로 연속관측하였기

때문에 DMS와 CS<sub>2</sub>의 시간적 농도분포특성을 다양한 관점에서 비교하는 것이 가능하였다. 특히, DMS와 CS<sub>2</sub>의 농도증감양상을 토대로 구분된 3개 기간대에서 이들의 농도분포가 다양한 관계를 설정한다는 사실은 이들 성분간의 농도증감 양상에서 차이 뿐만 아니라, 주변 기상인자 또는 공기궤의 유입경향에서도 확인되었다. 이러한 결과들에 대한 세부적인 분석 결과는 제주지역에서 발견되는 DMS의 농도분포가 상당히 다양한 인자들에 의해 복합적으로 조절되고 있다는 점을 뚜렷하게 확인시켜 주었다.

본 연구기간 중에 관측된 DMS의 농도는 과거 선행연구에서 관측된 농도보다 대단히 낮은 수준으로 발견된다. 특히 과거 Kim *et al.*(2000)의 연구에서는 가을, 겨울, 봄에 걸쳐 계절적인 경향성을 비교방향으로 이루어졌는데, 특히 봄기간대에 가장 높은 평균 농도가 200pptv에 근접하는 수준이었던 점을 감안하면, 현재 연구에서 발견된 것보다 무려 10배 정도 높은 수준으로 보고된 바 있다. 특히 이러한 농도분포는 계절에 따라 빠르게 감소하는 것으로 보고된 바 있는데, 이러한 점을 감안하면 제주지역에서 DMS의 시간적 농도분포는 대단히 불규칙하게 변화하는 것으로 추정할 수 있다. 그리고 현재 관측된 DMS의 농도수준과 같이 제주지역의 DMS 농도가 전반적으로 하향조정되어야 한다면, 이미 비교적 경미한 수준으로 제시된 황해지역의 자연적 황화합물의 기여도는 보다 더 하향조정되어야 할 것으로 기대된다. 이러한 부분을 명확하게 정의하기 위해서는 보다 많은 연구가 후속적으로 진행되어야 할 것이다.

## 사 사

논문을 심사해 주신 조완근 교수님과 또 다른 한 분의 심사위원께 감사드립니다. 본 연구는 한국과학재단이 지원하는 SRC 기후환경시스템연구센터의 지원으로 이루어졌습니다.

## 참고문헌

Andreae, M.O., 1986, The ocean as a source of atmo-

spheric sulfur compound. D. Reidel Publishing Company, 331-362.

Carmichael, G.R., Hong, M.-S., Ueda, H., Chen, L.-L., Murano, K., Park, J.K., Lee, H., Kim, Y., Kang, C., and Shim, S., 1997, Aerosol composition at Cheju Island, Korea. *Journal of Geophysical research*, 102(5), 6047-6061.

Charlson, R.J., Lovelock, J.E., Andreae, M.O., and Warren, S.G., 1987, Oceanic phytoplankton, atmospheric sulfur, cloud albedo, and climate. *Nature* 326, 655-661.

Chen, L.-L., Carmichael, G.R., Hong, M.-S., Ueda, H., Shim, S., Song, C.H., Kim, Y.P., Arimoto, R., Prospero, J., Savoie, D., Murano, K., Park, J.K., Lee, H.-G., and Kang, C., 1997, Influence of continental outflow events on the aerosol composition at Cheju Island, South Korea. *Journal of geophysical*, 102(23), 28551-28574.

Hayami, H. and Carmichael, G.R., 1997, Analysis of aerosol composition at Cheju Island, Korea, using a two-bin gas-aerosol equilibrium model. *Center for global and regional environmental research*, 3429-3439.

Kim, Y.P., Lee, J.-H., Baik, N.J., Kim, J.Y., Shim, S.-G., and Kang, C.-H., 1998, Summertime characteristics of aerosol composition at Cheju Island, Korea. *Atmospheric Environment*, 32(22), 3905-3915.

Kim, K.-H., Lee, G., and Kim, Y.P., 2000, Dimethylsulfide and its oxidation products in coastal atmospheres of Cheju Island. *Environ. Pollut.* 110(1), 147-155.

Möller, 1984, On the global natural sulphur emission. *Atmospheric environment*, 18(1), 29-39.

Toon *et al.*, 1987, The sulfur cycle in the marine atmosphere. *Journal of geophysical research* 92(1), 943-963.

Shon, Z.-H., Davis, D., Chen, G., Grodzinsky, G., Bandy, A., Thornton, D., Sandholm, S., Bradshaw, J., Stickel, R., Chameides, W., Kok, G., Russell, L., Mauldin, L., Tanner, D., and Eisele, F., 2001, Evaluation of the DMS flux and its conversion to SO<sub>2</sub> over the southern ocean. *Atmospheric environment*, 35, 159-172.

Swan, H.B. and Ivey, J.P., 1999, Evaluation of two sulfur specific detectors for the measurement of dimethylsulfide gas concentrations at Macquarie island and Cape Grim during ACE-1. In *Baseline atmospheric program (Australia) 1996*. 15-23.

Watts, 1999, The mass budgets of carbonyl sulfide, dimethyl sulfide, carbon disulfide and hydrogen sulfide. *Atmospheric environment*, 34(2000), 761-779.