

기상1호에서 관측된 한반도 서해 및 남해상의 에어로졸 질량농도와 화학조성 특성

차주완¹⁾ · 고희정^{1)*} · 신범철¹⁾ · 이해정¹⁾ · 김정은¹⁾ · 안보영²⁾ · 류상범¹⁾

¹⁾국립기상과학원 환경기상연구과, ²⁾국립기상과학원 재해기상연구센터

(접수일: 2016년 3월 24일, 수정일: 2016년 7월 20일, 게재확정일: 2016년 7월 27일)

Characteristics of Aerosol Mass Concentration and Chemical Composition of the Yellow and South Sea around the Korean Peninsula Using a Gisang 1 Research Vessel

Joo Wan Cha¹⁾, Hee-Jung Ko^{1)*}, Beomchel Shin¹⁾, Hae-Jung Lee¹⁾,
Jeong Eun Kim¹⁾, Boyoung Ahn²⁾, and Sang-Boom Ryoo¹⁾

¹⁾Environmental Meteorology Research Division, National Institute of Meteorological Sciences, Jeju, Korea

²⁾High Impact Weather Research Center, National Institute of Meteorological Sciences, Jeju, Korea

(Manuscript received 24 March 2016; revised 20 July 2016; accepted 27 July 2016)

Abstract Northeast Asian regions have recently become the main source of anthropogenic and natural aerosols. Measurement of aerosols on the sea in these regions have been rarely conducted since the experimental campaigns such as ACE-ASIA (Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment) in 2001. Research vessel observations of aerosol mass and chemical composition were performed on the Yellow and south sea around the Korean peninsula. The ship measurements showed six representative cases such as aerosol event and non-event cases during the study periods. On non-event cases, the anthropogenic chemical and natural soil composition on the Yellow sea were greater than those on the south sea. On aerosol event cases such as haze, haze with dust, and dust, the measured mass concentrations of anthropogenic chemical and element compositions were clearly changed by the events. In particular, methanesulfonate (MSA⁻, CH₃SO₃⁻), a main component of natural oceanic aerosol important for sulfur circulation on Earth, was first observed by the vessel in Korea, and its concentration on the Yellow sea was three times that on the south sea during the study period. Sea salt concentration important to chemical composition on the sea is related to wind speed. Coefficients of determination (R²) between wind speed and sea salt concentration were 0.68 in PM₁₀ and 0.82 in PM_{2.5}. Maximum wave height was not found to be correlated to the sea salt concentration. When sea-salt comes into contact with pollutants, the total sea-salt mass is reduced, i.e., a loss of Cl⁻ concentration from NaCl, the main chemical composing sea salt, is estimated by reaction with HNO₃(gas) and H₂SO₄(gas). The Cl⁻ concentration loss by SO₄²⁻ and NO₃⁻ more easily increased for PM₁₀ compared to PM_{2.5}. The results of this study will be applied to verifying a dust-haze forecasting model. In addition, continued vessel measurements of aerosol data will become important to research for climate change studies in the future.

Key words: Vessel, dust, haze, sea-salt, chemical composition, methanesulfonate (MSA⁻)

*Corresponding Author: Hee-Jung Ko, Environmental Meteorology Research Division, National Institute of Meteorological Science 33 Seohobuk-ro, Seogwipo-si, Jeju-do 63568, Korea
Phone: +82-64-780-6573, Fax: +82-64-738-6512
E-mail: khj0614@korea.kr

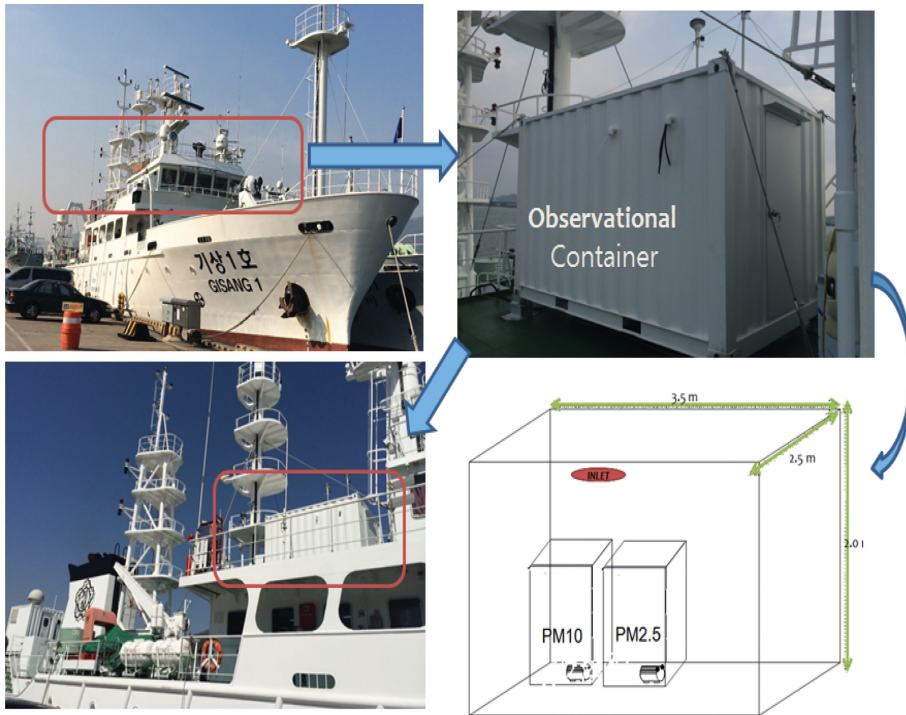


Fig. 1. Pictures of the vessel (Gisang 1) and the observational container for sampling aerosol on the sea.

1. 서 론

동북아지역은 산업 및 경제활동에 의한 인위적/자연적 에어로졸의 증가로, 전세계 다른 지역에 비해 에어로졸 농도가 높게 나타나고 있다(Li et al., 2013). 특히 중국과 한반도 주변 해상에서의 에어로졸 특성에 관심은 많으나 해상관측의 어려움 때문에 실제 관측한 사례가 많지 않은 것으로 알려져 있으며, 대부분의 연구는 주로 한반도 주변 섬에서 해양성 에어로졸 관측에 국한되어 있다(Lee et al., 2002; Arimoto et al., 2004; Kim et al., 2005).

선박을 이용한 한반도 및 동북아지역의 해상에서 관측한 사례연구(Bates et al., 2004)는 2001년 ACE-Asia (Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment) 관측 캠페인 이후 거의 이루어지지 않았지만 최근 Zhao et al. (2015)에 의하면 중국 주변 해상임에도 불구하고 서해상 평균 PM_{10} 질량농도가 $87 \mu g m^{-3}$ 로 관측되었다. 또한 기상청 선박을 이용해 2005년 동중국해상에서 에어로졸의 미세입자 수농도 분포와 구름응결핵을 관측한 사례(Kim et al., 2009)는 있지만 에어로졸의 화학성분 등에 대한 관측은 이루어지지 않았다. Gao et al. (1996, 1997)은 동중국해에서 관측된 에어로졸 내 질산염, 황산염, MSA^-

(Methanesulfonate), 원소성분(Al, Fe 등)을 분석하였다. Zhang et al. (2013)은 2007년 가을철에 서해와 동중국해에서 양이온(NH_4^+ , Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+})과 음이온(SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- , MSA^-)을 관측하였다. 이들 연구에 의하면, 서해가 대체적으로 동중국해보다 내륙에 의한 화학성분 농도의 변동성이 크고 높은 농도가 나타났다고 보고되고 있다. 이와 같이 중국을 중심으로 해상의 에어로졸 관측이 주도적으로 이루어지고 있지만 국내에서는 해상에서 에어로졸의 특성에 대한 자료나 연구가 거의 수행되지 않고 있다.

이번 연구는 우리나라 주변에서 자주 발생하는 황사나 연무가 해상에서 관측될 경우의 질량농도와 화학성분 농도 및 조성에 대한 정보를 확보하고자 하는 것이 주요목적이다. 또한, 해상에 존재하는 주요 에어로졸 성분인 해염입자(sea-salt) 농도가 기상과 해양 조건에 따라 어떻게 달라지는가에 대해서도 알아보았다. 전체 선박관측 중 6개 사례를 선정하여 특성을 분석함으로써 다양한 해상 에어로졸 성분 변화 및 그 원인을 알아보려고 하였다.

2. 기상1호 관측 기기 및 항로

기상청에서 운영하는 선박인 기상 1호를 이용하여

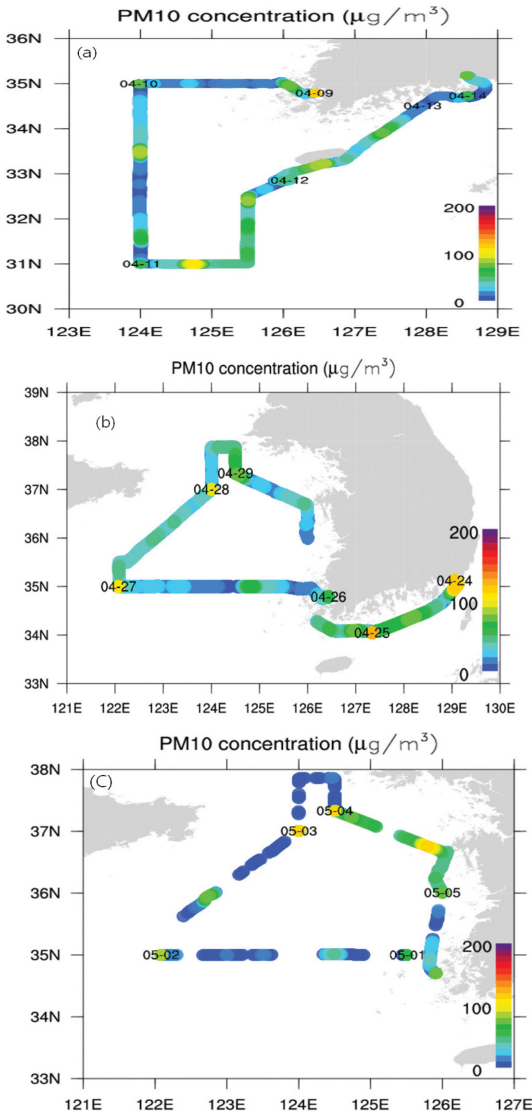


Fig. 2. Vessel route of Gisang 1 for PM₁₀ mass concentration ($\mu\text{g m}^{-3}$) during the (a) first (9~14 April), (b) second (24~29 April), and (c) third (1~5 May) cruises in 2015.

2015년 4~5월 동안 서해상과 남해상에서 에어로졸을 관측하였다. β -Ray 흡수방법을 이용한 PM₁₀ 부유분진 측정기(β -ray PM₁₀ analyzer, Thermo Scientific Inc. FH62-C14)를 사용하여 5분 평균 PM₁₀ 질량농도를 관측하였다. 각 항로별 에어로졸의 화학성분을 분석하기 위해 47 mm Teflon 재질의 필터와 PM₁₀ 분립장치를 가진 미세먼지 채취기(PMS, Particle Measuring System, APM Inc. PMS-104)를 이용해 총 17개 시료를 포집하여 특성 분석하였다. 이번 연구는 주로 PM₁₀ inlet(임팩터 타입)을 통해 포집된 시료의 특성을 중심

으로 분석하였다. 기상요소는 선박에 설치된 자동기상측정장비로부터 기온, 수온, 풍향, 풍속, 파고, 시정, 해면기압 등을 5분마다 관측하였다. 특히, 기상 1호에 에어로졸 특별 관측용 컨테이너를 제작하여 다양한 관측장비를 해상관측에 따른 위험요인으로부터 보호할 수 있는 기반 시설을 구축하였다. 이 관측용 컨테이너는 배 자체 오염원의 영향을 받지 않기 위해 배의 선수에 설치하였다(Fig. 1).

이 연구에서는 주로 남해와 서해를 향해하며 에어로졸을 관측하였다. Figure 2a는 2015년 4월 9일부터 4월 14일까지 관측한 1차 항로이고, Fig. 2b는 2015년 4월 24일부터 4월 29일까지 관측한 2차 항로이며, Fig. 2c는 2015년 5월 1일부터 5월 5일까지 관측한 3차 항로이다. 필터에 포집한 에어로졸 시료는 질량 분석 후 이온분석기(Ion Chromatograph, IC)를 사용하여 양이온(NH_4^+ , Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+}) 5종과 음이온(SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- , F^- , HCOO^- , CH_3COO^- , CH_3SO_3^-) 7종을 분석하였다. 이때 IC의 검출한계와 변동계수는 성분마다 다르지만 각각 0.29~7.48 $\mu\text{g L}^{-1}$, 0.19~7.33%의 범위를 보였다. 또한 원소(Element) 성분을 분석하기 위해 ICP-OES (Inductively Coupled Plasma Spectrophotometer) 및 ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer)를 이용하였다. 이때의 ICP-OES 검출한계와 변동계수는 성분마다 다르지만 각각 0.71~15.7 $\mu\text{g L}^{-1}$, 1.4~9.5%의 범위를 보였다. 원소성분으로는 Al, Fe, Ca, Mg, K, S, Na, Cu, Mg, Ti, Mn 등 20종 원소의 성분 함을 이용하였고 해염입자 농도는 Na^+ , Cl^- , ss (sea-salt)- K^+ , ss- Mg^{2+} , ss- Ca^{2+} , ss- SO_4^{2-} 의 성분 함으로 계산하였다.

3. 에어로졸의 해상관측 사례별 기상 및 PM₁₀ 질량농도 특성

관측항로 일자 중 기상 특성 및 황사, 연무 현상일 등을 고려하여 아래와 같이 6 사례로 구분하여 관측 자료를 분석하였다.

- 1) 남해상 비현상일 관측사례(Non-event observation case in the South sea): 4월 10일(1차 항로)
- 2) 서해상 비현상일 관측사례(Non-event observation case in the Yellow sea): 4월 27일(2차 항로)
- 3) 해상 연무사례(Haze observation case): 4월 11일(1차 항로)
 - 국내 연무의 장거리 이동사례
- 4) 황사/연무 혼합사례(Haze with dust observation case): 4월 24일~25일(2차 항로)
- 5) 황사사례(Asian Dust observation case): 5월 4일(3차 항로)
- 6) 국내오염 영향사례(Local emission observation

Table 1. Weather and ocean conditions during vessel (Gisang 1) measurements in six observation cases (Non-event in South sea observation case (10 April), haze observation case (11 April), haze with dust observation case (24~25 April), Non-events in Yellow sea observation case (27 April), local emission observation case (28 April), and dust observation case (4 May) in 2015).

Area	Cases (date)	Temperature (°C)	Sea surface temperature (°C)	Relative humidity (%)	Wind speed (m s ⁻¹)	Maximum wave height (m)	Visibility (km)
South Sea	[Case 1] Non-Event (10 April)	8.38 ± 0.68	9.28 ± 1.27	70 ± 8	5.48 ± 0.38	1.2 ± 0.07	18.73 ± 3.02
	[Case 3] Haze (11 April)	12.00 ± 0.21	12.01 ± 1.62	75 ± 9	5.67 ± 0.83	3.2 ± 0.13	12.44 ± 4.65
	[Case 4-1] Haze with dust (24 April)	13.82 ± 0.75	12.80 ± 0.34	70 ± 8	6.99 ± 0.95	1.8 ± 0.19	9.53 ± 4.03
	[Case 4-2] Haze with dust (25 April)	13.95 ± 1.67	11.73 ± 0.37	57 ± 17	3.08 ± 1.13	1.4 ± 0.10	18.32 ± 12.63
Yellow Sea	[Case 2] Non-Event (27 April)	12.86 ± 0.43	10.61 ± 0.46	71 ± 1	7.55 ± 0.49	2.2 ± 0.23	19.71 ± 4.29
	[Case 6] Local emission (28 April)	11.29 ± 0.63	8.79 ± 0.83	70 ± 6	7.24 ± 1.51	1.2 ± 0.12	14.09 ± 5.94
	[Case 5] Dust (4 May)	11.77 ± 0.97	9.26 ± 1.34	58 ± 5	9.35 ± 1.53	1.4 ± 0.11	24.70 ± 6.08

case): 4월 28일(2차 항로)

- 주로 수도권 및 서해안 지역 영향을 받은 사례

3.1 남해상 비현상일 관측사례[사례 1]

이 연구에서는 남해 및 서해상의 에어로졸 특성을 분석하기 위해 황사 등과 같은 기상현상이 영향을 주지 않는 해상관측자료 중 최대한 내륙과 먼 해상에서 관측한 자료를 남해(4월 10일) 및 서해(4월 27일) 관측사례로 선정하였다.

남해상 비현상일인 4월 10일의 평균기온은 다른 날보다 낮았으며, 평균시정은 약 19 km, 상대습도는 평균 70%, 시간평균 PM₁₀ (β-ray) 질량농도는 32 ± 19 μg m⁻³로 나타났다(Table 1). 이때 1800 KST (Korean Standard Time) 지상일기도(Fig. 3a)를 보면, 고기압이 크게 한반도와 중남부에 걸쳐 위치해 있고 북동계열의 바람이 있었다. 명확한 기류에 따른 PM₁₀ 질량농도 분석을 위해 기상청 국립기상과학원에서 현업으로 운영 중인 황사연무통합예측모델(Asian Dust Aerosol

Model2-Haze, ADAM2-HAZE) 산출 결과를 분석하였다(Fig. 4) (NIMS, 2015). Figure 4a의 비행사 PM₁₀ 질량농도(Non-dust PM₁₀)는 황사의 영향은 배제하고 인위적인 오염물질만 고려한 농도이다. ADAM2-HAZE 모델도 이 기간에 남해상 관측 지점 부근의 PM₁₀ 질량농도가 낮을 것으로 예측하였다. 1차 항로에서 PM₁₀ (β-ray) 해상 관측의 최소 농도는 4월 10일 21시에 12 μg m⁻³이었으며, 최고 농도는 11시경에 77 μg m⁻³로 관측되었는데(Fig. 2a) 항해 시 기상1호 부근에 이동하는 선박 등의 영향을 일시적으로 받은 것으로 사료된다. 이는 향후 우리나라 근해의 선박 운항이 해상의 대기질에 어떻게 영향을 주는가에 대한 연구가 필요하다는 것을 보여 주는 결과이다.

본 연구와 유사한 남해상 지역에서 2011년 3~4월에 선박에서 관측한 Zhang et al. (2013)에 의하면 전체 관측기간의 평균 PM₁₀ 질량농도는 59 μg m⁻³로 이번 연구의 남해상 관측 평균 32 μg m⁻³보다 약 두 배 가량 높았다. 이는 Zhang et al. (2013) 관측 자료 중에

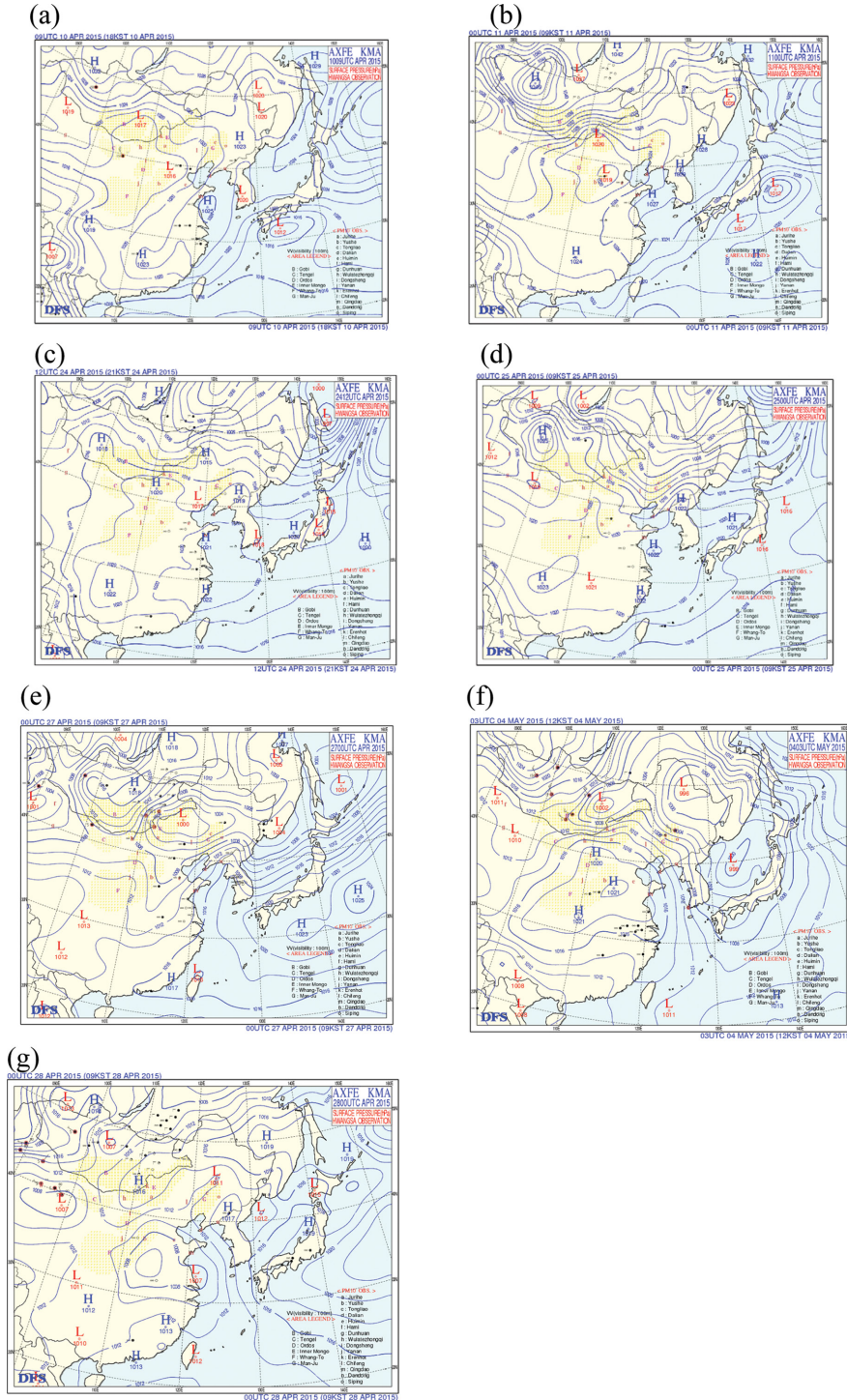


Fig. 3. Asian dust weather chart (surface) in the (a) non-event in South sea observation case (1800 KST 10 April), (b) haze observation case (0900 KST 11 April), (c) haze with dust observation case (2100 KST 24 April), (d) haze with dust observation case (0900 KST 25 April), (e) non-event in Yellow sea observation case (0900 KST 27 April), (f) dust observation case (1200 KST 4 May) and (g) local emission observation case (0900 KST 28 April) in 2015.

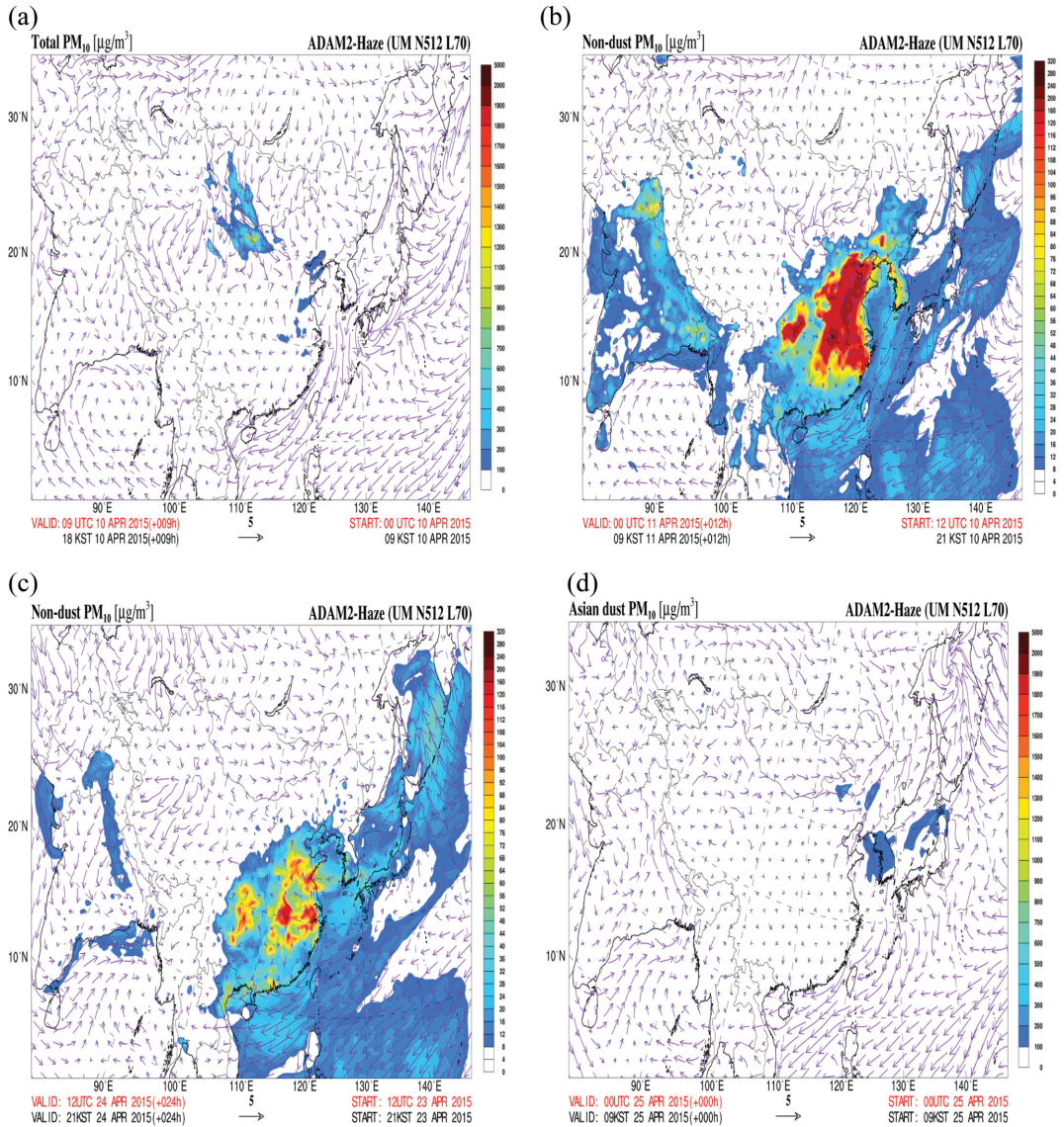


Fig. 4. Outputs of chemical numerical model (ADAM2-Haze) in the (a) non-event in South sea observation case (1800 KST 10 April), (b) haze observation case (0900 KST 11 April), (c) haze with dust observation case (2100 KST 24 April), (d) haze with dust observation case (0900 KST 25 April), (e) non-event in Yellow sea observation case (0900 KST 27 April), (f) dust observation case (1200 KST 4 May), and (g) local emission observation case (0900 KST 28 April) in 2015, and (h) Backward trajectory by NOAA HYSPLIT model for vessel (Gisang 1) measurements in the haze observation case (0900 KST 11 April) in 2015.

내륙에 근접한 근해상 관측자료가 포함되어 있어 내륙에서 가장 먼 해상지역만을 관측한 자료를 선택할 경우 더 낮은 PM_{10} 농도가 관측되었을 것으로 사료된다.

3.2 서해상 비현상일 관측사례[사례 2]

서해상에서 관측한 4월 27일의 경우 평균시정은 약 20 km, 풍향은 주로 남동풍이 불었고, 시간평균 PM_{10}

(β -ray) 질량농도는 $46 \pm 14 \mu\text{g m}^{-3}$ 로 남해상에서보다 약간 높았다. 4월 27일 1500 KST 지상일기도(Fig. 3e)를 보면 일본 남해상에서 고기압이 크게 자리잡고 있었고, 남동풍 계열의 바람이 불었다. 따라서 남해상 관측 시에는 북풍의 영향을 받았고, 서해상 관측 시에 남풍의 영향을 받은 것으로 보인다. ADAM2-HAZE 모델 분석결과(Fig. 4e) 서해상 관측 시 남풍의 영향

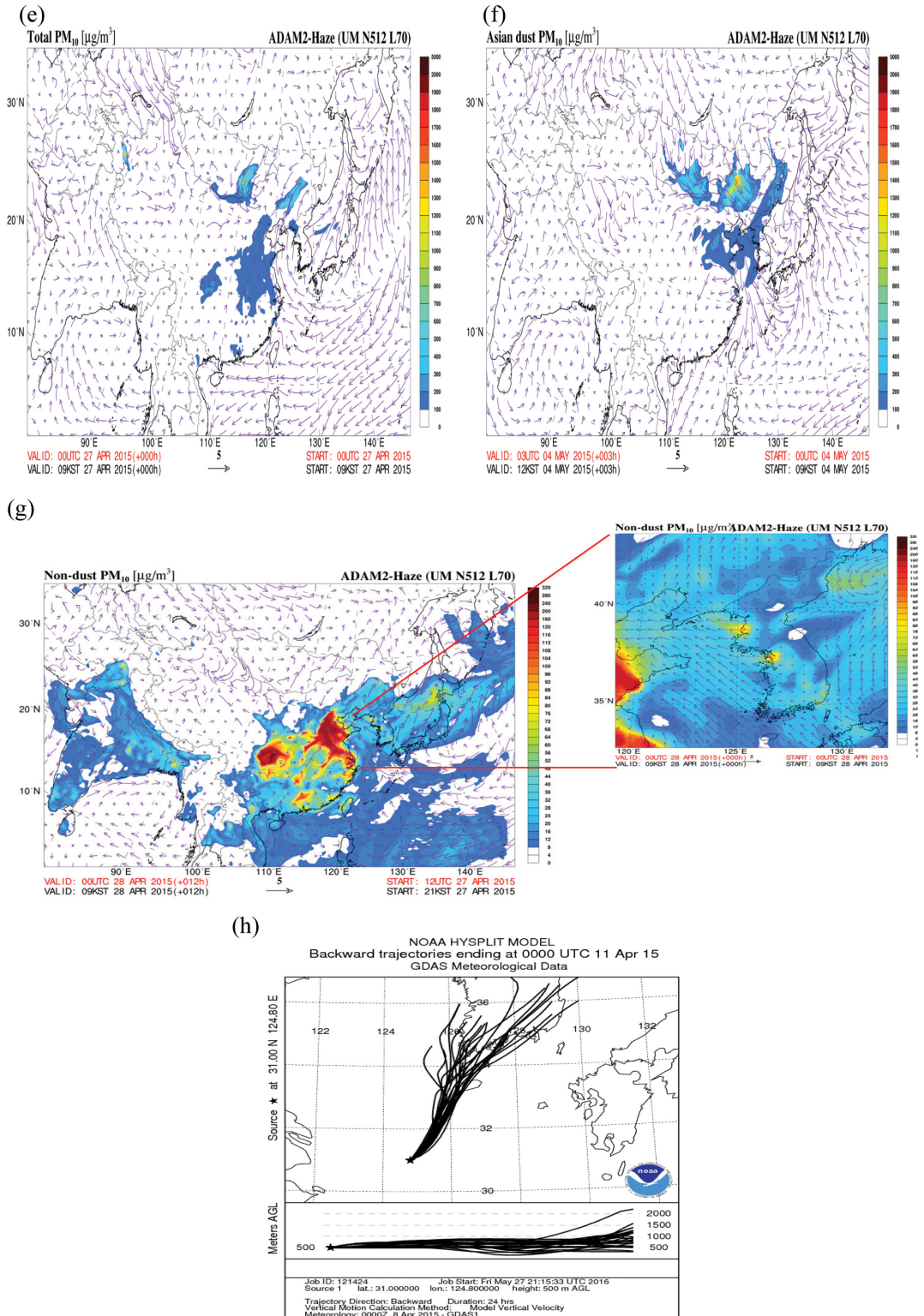


Fig. 4. Continued.

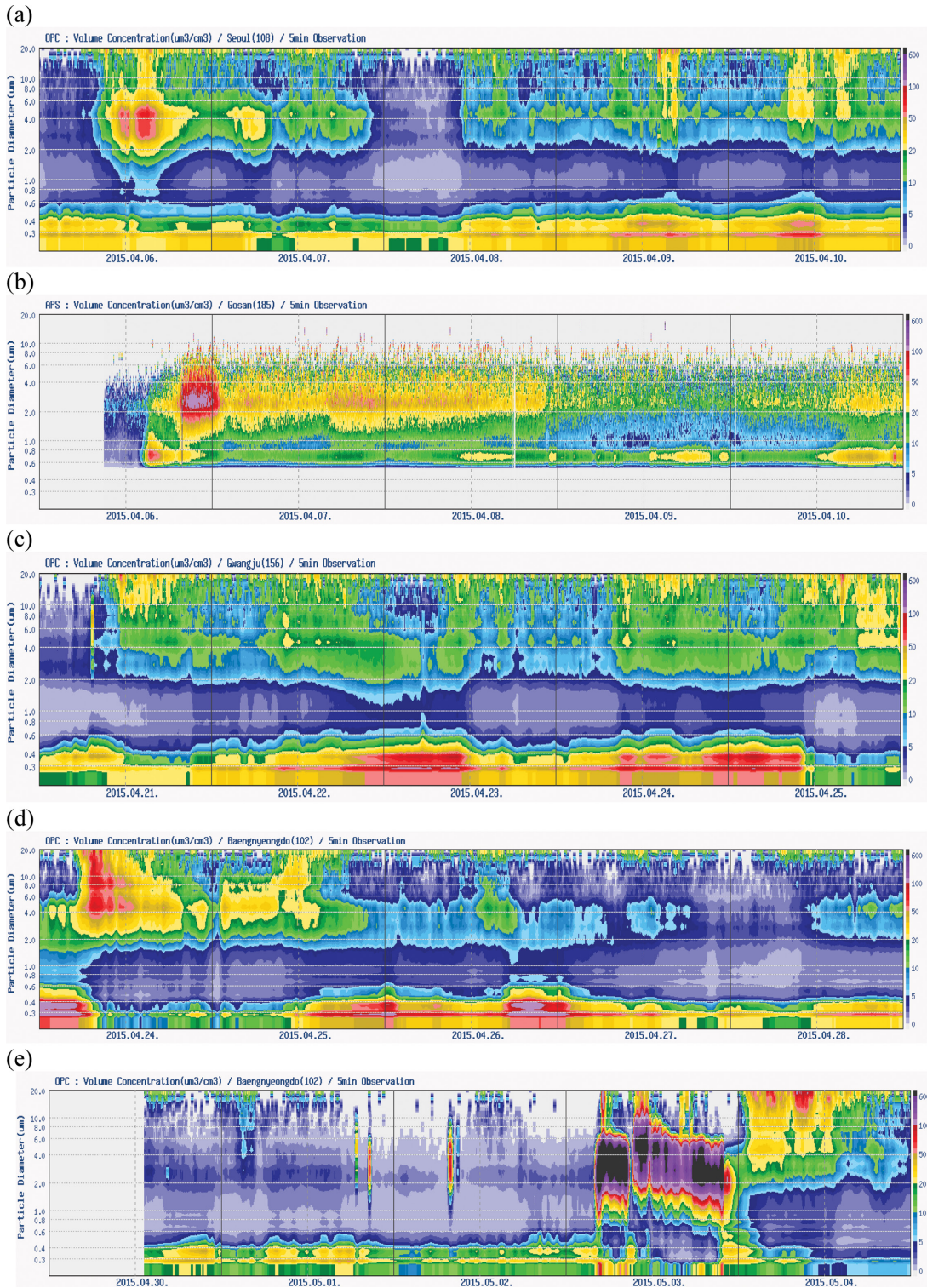


Fig. 5. Volume size distribution of particle ($dV/d\log D_p$, $\mu\text{m}^3/\text{cm}^3$) at (a) Seoul (6~10 April), (b) Gosan (6~10 April), (c) Gwangju (21~25 April), (d) Baengyeongdo (24~28 April), and (e) Baengyeongdo (30 April~4 May) in 2015.

을 받아 그 해상 부근에 낮은 PM_{10} 질량농도가 관측될 수 있는 조건이었다. 서해상에서 2011년 3~4월 사이에 관측된 평균 PM_{10} 질량농도는 $87 \mu\text{g m}^{-3}$ Zhang et al. (2013)로 이번 연구에서 서해상 관측기간의 평균 $46 \mu\text{g m}^{-3}$ 보다 높게 관측되었다. 이 차이는 3.1장에서 언급되었듯이 Zhang et al. (2013)는 전체 평균농도이므로 비현상일에 내륙과 가장 먼 거리를 관측한 자료를 선별할 경우 더 낮은 농도가 될 것이다. Figure 2b는 2차 항로상의 PM_{10} (β -ray) 질량농도 분포로 4월 27일 20시경에 최소 $18 \mu\text{g m}^{-3}$, 6~7시에 $70 \mu\text{g m}^{-3}$ 이상으로 유지되었고 그 후로 18시까지 $40\sim 50 \mu\text{g m}^{-3}$ 사이로 관측되었다. 이번 연구와 Zhang et al. (2013) 관측 결과를 종합적으로 비교하면 봄철에 관측된 평균 PM_{10} 질량농도는 남해상에서보다 서해상에서 $14\sim 28 \mu\text{g m}^{-3}$ 관측되었다. 향후 해상관측자료의 활용성을 높이기 위해서는 관측공백지역인 해상에서 장기적인 에어로졸 관측이 필요하다.

3.3 남해상 연무관측 사례[사례 3]

4월 11일은 남해상에서 관측된 연무사례로[사례 1]에 비해 기온과 수온이 높았고, 최대과고가 3.2 m로 높게 관측되었다(Table 1). 이 때 국내 지상 PM_{10} (β -ray) 질량농도는 4월 10일 12시 서울 $100 \mu\text{g m}^{-3}$, 관악산 $106 \mu\text{g m}^{-3}$, 전주 4월 10일 24시 $102 \mu\text{g m}^{-3}$, 4월 11일 1시 제주도 고산 $64 \mu\text{g m}^{-3}$ 의 최대값이 관측되어 이러한 국내 고농도의 PM_{10} (β -ray)이 4월 11일 남해상에 영향을 주었을 것으로 사료된다. 이 기간의 평균 PM_{10} (β -ray) 질량농도는 $42 \pm 18 \mu\text{g m}^{-3}$ 로, 이는 국내 오염원의 장거리 이동에 의한 해상 연무사례로 판단된다.

남해상의 선박에서 관측된 국내연무의 영향 가능성은 NOAA/HYSPLIT 모델(Fig. 4h)을 통한 역적적과 ADAM2-HAZE 모델 예측자료를 이용해(Fig. 4b) 분석하였다. 역적적 분석과 ADAM2-HAZE 모델 모의결과에 따르면, 한반도 내륙에 있는 에어로졸이 남해상으로 이동하는 기류가 형성됨을 알 수 있다. 4월 11일 해상에 영향을 준 4월 6일과 10일 사이의 국내의 연무에 대해서는 서울의 광학입자계수기(Optical Particle Counter, OPC)와 고산의 공기역학입자계수기(Aerodynamic Particle Sizer, APS) 자료를 이용해 미세입자 크기별 농도의 변동 경향을 알아보았다(Figs. 5a, b). 서울과 고산 모두 $1 \mu\text{m}$ 이하와 $2\sim 10 \mu\text{m}$ 사이 입자의 부피 농도가 증가하였고 특히 $1 \mu\text{m}$ 이하 입자 영역의 농도가 상대적으로 크게 증가하였다. Figure 2a에서 4월 11일의 항로별 PM_{10} (β -ray) 질량농도 변화특성을 보면 10시에 최대 $92 \mu\text{g m}^{-3}$ 이었고 20시에 $18 \mu\text{g m}^{-3}$ 으로 최소 값이 관측되었다. 이 기간에 10시 이후로 17시까지 지속적으로 $50\sim 75 \mu\text{g m}^{-3}$ 사이의 높은 농도가 관측되었다. 이는 남해상에서 선박 관측 시 내륙으로

부터 연속적으로 연무의 영향을 받은 것으로 추정된다. 내륙에서 이동해온 연무가 해상에서 어떤 대기 반응을 보일지에 대한 분석은 5장에서 상세히 분석하였다.

3.4 남해상 황사/연무 혼합관측 사례[사례 4]

4월 24일에는 부산을 출발해 남해 인근 해상을, 25일에는 남서해안 인근 해상을 운항하였다(Fig. 2b). 4월 24일 시정의 평균은 약 9 km이며, 25일에는 약 18 km였다. 특히 4월 25일은 평균 상대습도는 57%로 건조공기가 유입되었음을 알 수 있었다(Table 1). 4월 24일과 25일의 평균 PM_{10} (β -ray) 질량농도는 각각 $67 \pm 14 \mu\text{g m}^{-3}$, $46 \pm 18 \mu\text{g m}^{-3}$ 이었으며, 특히 4월 24일 22~23시에 최고 $86 \mu\text{g m}^{-3}$ 이 관측되었다. 4월 24일 0900 KST 지상일기도를 보면 4월 22~23일 고비 남부지역에서 발원한 황사가(기상청 홈페이지에서 제공되는 황사일기도 참조) 한반도에 약하게 영향을 주었고, 4월 24일과 25일에는 국내 일부 지역에 연무가 관측되었다(Figs. 3c, d). ADAM2-HAZE 모델에서는 비황사(Non-dust)와 황사(Asian dust) 모드에서 모두 황사와 연무가 우리나라 부근에 영향을 주고 있음을 알 수 있다(Figs. 4c, d). Figure 2b의 4월 24일과 25일 항로상에 PM_{10} (β -ray) 질량농도의 변화를 보면 4월 24일 경우 $44\sim 114 \mu\text{g m}^{-3}$ 이었고 4월 25일 경우 $18\sim 127 \mu\text{g m}^{-3}$ 으로 황사와 연무에 의해 농도 변화가 크게 나타났다. 선박관측과 가장 근거리에서 있는 광주 OPC 관측에서도 $1 \mu\text{m}$ 이하와 $2 \mu\text{m}$ 이상의 입자 농도가 증가하였다(Fig. 5c). 즉 이 기간에 조대입자와 미세입자 모두 증가함을 알 수 있었다. 이런 황사와 연무가 혼합되었을 경우 에어로졸의 화학성분 조성비의 변화가 생기는데 이는 4장에서 상세히 비교 분석했다.

3.5 서해상 황사관측 사례[사례 5]

5월 4일은 해상에서 황사 특성이 관측된 사례로 선박 PM_{10} (β -ray) 평균농도는 $60 \pm 15 \mu\text{g m}^{-3}$ 이며, 평균 상대습도가 58%, 평균 풍속이 9.35 m s^{-1} 로 낮은 상대습도와 강한 풍속을 보였다. 평균 시정은 약 25 km로 연무나 황사/연무 혼합사례보다 시정은 좋았다. Figure 3f는 5월 4일 1500 KST의 지상일기도로 전형적인 황사발생 및 이동패턴을 보이며, 고비 남부와 내몽골 지역에서 저기압 후면과 고기압 전면에서 발생한 황사의 영향을 서해상에서 받았다(고비 및 내몽골 발원에 대한 자료는 기상청 홈페이지 황사일기도 참조). ADAM2-HAZE 모델의 황사 분석에서도 선박관측지역에 황사의 영향이 있었음을 알 수 있고(Fig. 4f), 이 기간에 백령도에서 관측된 OPC에서 $2 \mu\text{m}$ 이상의 에어로졸 농도가 증가하였음을 알 수 있다(Fig. 5e). Figure 2c에서 5월 3일 선박관측보다 5월 4일의 선박관측에서 훨씬 높은 농도의 PM_{10} 질량농도가 관측되

Table 2. Concentration of aerosol mass and chemical composition during vessel (Gisang 1) measurements in six observation cases (Non-events in South sea observation case (10 April), haze observation case (11 April), haze with dust observation case (24~25 April), Non-events in Yellow sea observation case (April 27), local emission observation case (28 April), and dust observation case (4 May) in 2015). (Units: $\mu\text{g m}^{-3}$)

Date	PM ₁₀	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	Sea-salts	Element	nss-K ⁺	nss-Ca ²⁺	nss-Mg ²⁺	nss-F ⁻	HCOO ⁻	CH ₃ SO ₃ ⁻
[Case 1] Non-event in South Sea (10 April)	32.4	5.47	2.61	2.38	2.04	1.50	0.11	0.19	0.04	0.00	0.04	0.08
[Case 3] Haze (11 April)	42.2	16.91	9.86	7.47	4.39	1.14	0.44	0.47	0.03	0.01	0.17	0.64
[Case 4] Haze with dust (24~25 April)	56.8	11.21	4.88	5.37	2.26	4.95	0.46	0.56	0.04	0.01	0.56	0.04
[Case 2] Non-event in Yellow Sea (27 April)	46.3	9.12	2.48	3.72	1.95	4.39	0.46	0.33	0.04	0.00	0.04	0.35
[Case 6] Local emission (28 April)	56.1	6.69	6.21	3.74	2.37	5.47	0.31	0.30	0.03	0.01	0.05	0.08
[Case 5] Dust (4 May)	60.1	1.99	2.14	0.79	10.96	6.13	0.16	0.99	0.41	0.02	0.14	0.02

었다. 이 기간의 PM₁₀ 질량농도는 4시에 130 $\mu\text{g m}^{-3}$ 이었고, 백령도의 최고 PM₁₀ 질량농도는 10시에 92 $\mu\text{g m}^{-3}$ 이었으며, 서울은 11시에 103 $\mu\text{g m}^{-3}$ 이 관측되었다. 이와 같이 PM₁₀ 최고 질량농도가 시간에 따라 해상에서 내륙으로 나타나는데 이는 선형적으로 해상에서의 PM₁₀ 질량농도의 정보를 알 수 있으면 황사에 보 정확도 향상에 기여할 수 있음을 알 수 있다.

3.6 서해상 국내오염 영향관측 사례[사례 6]

서해5도 부근 해상을 운항한 4월 28일의 평균 PM₁₀ (β -ray) 질량농도는 $56 \pm 10 \mu\text{g m}^{-3}$ 으로 서해상 평균 관측자료보다 10 $\mu\text{g m}^{-3}$ 더 높았다. 기온, 상대습도, 풍속 등은 전날인 4월 27일과 유사했지만 풍향이 남동풍에서 동풍으로 바뀌면서 평균 시정은 약 14 km로 4월 27일보다 낮았다. 이러한 풍계의 변화에 따른 시정악화현상의 원인을 알아보기 위해 4월 28일 0900 KST 지상일기도를 살펴보았다. 중국 동부 연안지역에 저기압이 있고, 북한지역에 고기압이 크게 자리잡고 있어 백령도 부근 서해상에서 관측하고 있던 기상 1호는 수도권 및 서해안 도시지역에서 발생한 오염물질이 영향을 받은 것으로 판단된다(Fig. 3g). 이 기간

동안의 백령도 OPC 관측결과를 보면 1 μm 이하의 미세먼지 입자 수농도가 크게 증가하였음을 알 수 있었다(Fig. 5d). 이러한 해상에서의 갑작스런 시정악화 및 PM₁₀ 질량농도 증가에 대한 보다 자세한 국내 오염 영향을 분석하기 위해 ADAM2-HAZE 모델의 도메인을 한반도를 중심으로 분석했다. 이 분석결과에 의하면, 국내 수도권 및 서해안 부근의 대기오염물질이 동풍을 타고 4월 28일에 선박관측에 영향을 주었음을 알 수 있었다(Fig. 4g). Figure 2b에서 4월 28일 항로의 PM₁₀ (β -ray) 질량농도의 변화를 보면 오후 13시부터 지속적으로 50 $\mu\text{g m}^{-3}$ 이상으로 20시까지 유지되었으며 최고 농도는 14시에 73 $\mu\text{g m}^{-3}$ 이었다. 이는 자체 오염원이 적은 해상에 수도권이나 서해안 도시 지역 등 내륙에서 발생하는 오염물질이 영향을 줄 수 있음을 보여주는 사례이다.

4. 해상관측 사례별 에어로졸 화학성분 특성

4.1 해상관측사례별 특성(사례 1~6)

해상 관측 시 포집된 필터로부터 주요 수용성 이온 및 원소(Element) 성분을 분석했다(Table 2와 Fig. 6).

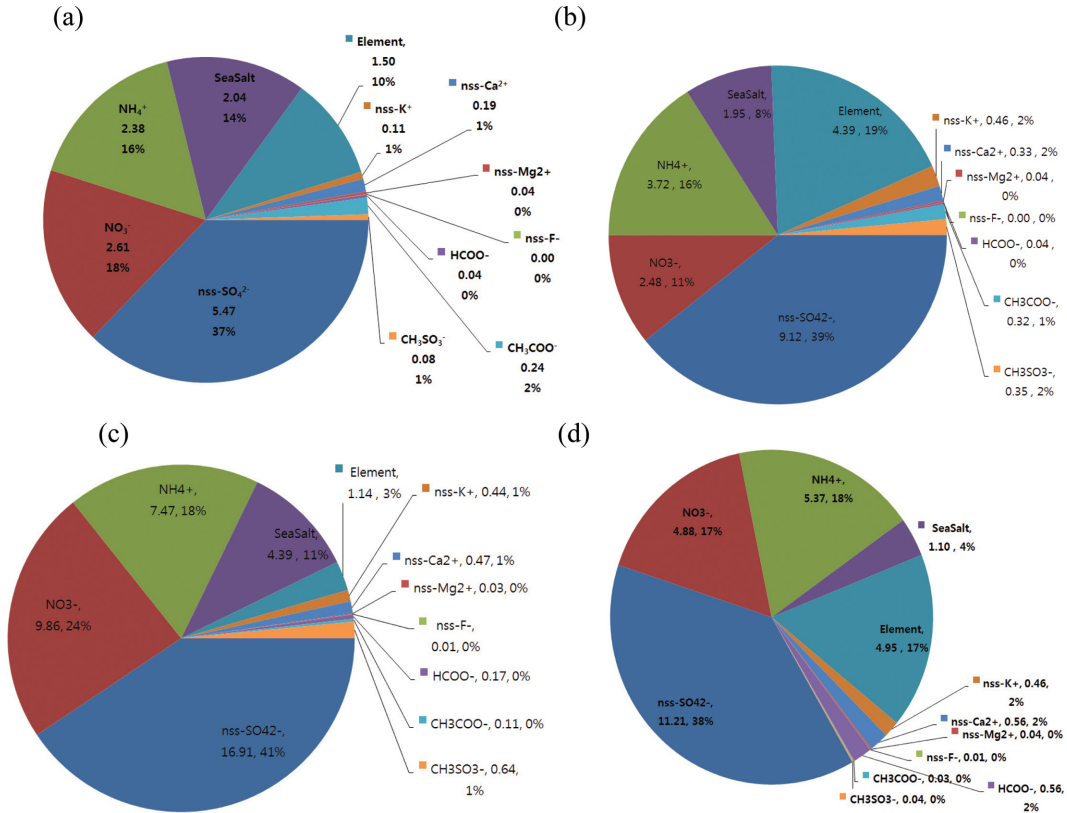


Fig. 6. Analysis of aerosol chemical compositions for the (a) non-event in South sea observation case (10 April), (b) non-event in Yellow sea observation case (27 April), (c) haze observation case (11 April), (d) haze with dust observation case (24–25 April), (e) dust observation case (4 May), and (f) local emission observation case (28 April) at the vessel (Gisang 1), and (g) Seoul observation case (10 April) in 2015.

비현상일(Non-Event)인 남해상의 [사례 1]과 서해상의 [사례 2] 관측자료를 살펴본 결과, 남해상의 PM₁₀ 질량농도, 이차오염물질(nss-SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺)과 원소성분이 차지하는 조성비는 서해상에 비해 낮았다. 토양 및 Biomass에서 기원한 것으로 알려진 성분인 nss-Ca²⁺와 nss-K⁺의 서해상 농도는 남해상에 비해 각각 약 1.5배, 4배 높은 농도를 보여, 서해상이 남해상보다 내륙의 영향을 더 많이 받은 것으로 판단된다.

남해상에서 연무([사례 3]) 시 nss-SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺, CH₃SO₃⁻ 성분 농도가 비현상일 관측사례([사례 1], [사례 2])보다 크게 증가하였다(Fig. 6c). nss-Ca²⁺ 질량농도도 비현상일 관측사례에 비해 조금 높은 질량농도를 보였다. 연무와 황사가 혼합되어 관측된 사례([사례 4])에서는 원소성분이 연무사례보다 약 4배 정도 농도가 높았고 nss-SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺가 차지하는 조성비는 낮아지고 질량농도도 감소하였다. nss-Ca²⁺이나 nss-K⁺의 질량농도는 조금 증가하였다. 국내 오염영향사례([사례 6])는 황사사례([사례 5])를 제외하고

원소성분의 질량농도가 제일 높았고, 연무사례보다는 nss-SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺의 질량농도가 많이 감소했다. 특히 국내오염영향 사례의 nss-SO₄²⁻이 연무사례보다 대략 2배 정도 감소했다. 황사사례([사례 5])의 원소 성분과 nss-Ca²⁺와 nss-Mg²⁺ 성분은 내륙으로부터 장거리 이동한 황사입자 때문에 증가하였다. 해염입자는 이 기간에 풍속이 강해 해수면에서 포말이나 거품이 부서지면서 농도가 증가했다(Ovadnevaitte et al., 2012; Grythe et al., 2014).

4.2 해상 및 지상 관측사례 비교분석

해상관측과 지상관측을 비교하기 위해 남해상 연무 관측 사례([사례 3])(4월 11일) 및 지상(4월 10일, 서울 황사감시센터(송월동))의 PM₁₀ 입자 화학성분 자료를 비교하였다(Table 3). 선박에서 관측한 NH₄⁺와 nss-SO₄²⁻의 질량농도가 서울에서 보다 각각 2.17 μg m⁻³, 8.51 μg m⁻³ 더 높았다. 반면 NO₃⁻ 성분은 해상에서 보다 서울에서 관측한 값이 1.74 μg m⁻³ 더 높

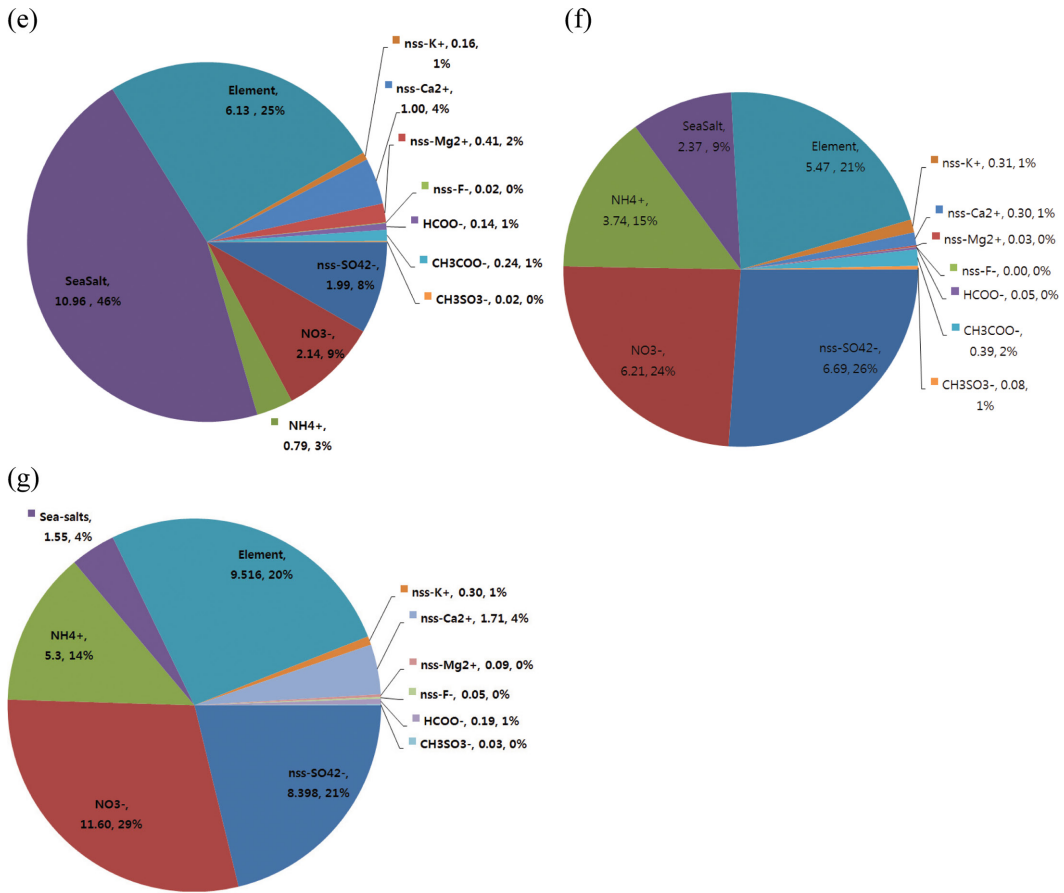


Fig. 6. Continued.

Table 3. Concentration of chemical composition sampled by PMS using the PM₁₀ inlet in Seoul on April 10 and in the vessel (Gisang 1) on 11 April 2015. (Units: μg m⁻³)

	nss-SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	Sea-salts	Element	nss-K ⁺	nss-Ca ²⁺	nss-Mg ²⁺	nss-F ⁻	HCOO ⁻	CH ₃ SO ₃ ⁻
Seoul	8.40	11.60	5.30	1.55	10.38	0.30	1.71	0.09	0.06	0.19	0.03
Vessel	16.91	9.86	7.47	4.39	1.139	0.44	0.47	0.03	0.01	0.17	0.64

았다. NO₃⁻ 성분은 주로 자동차 등에 의해 발생하므로 서울에서 높게 관측되었지만 NH₄⁺와 nss-SO₄²⁻의 경우는 서울에서 남해상으로 이동하는 과정에서 내륙에서 발생하는 다양한 인위적 발생원의 영향이 더해져서 해상에서 더 높은 질량농도가 관측되었을 것으로 추정된다. nss-K⁺의 질량농도는 선박관측에서 높게 나타났다. nss-K⁺ 농도가 산불이나 나무 등의 소각 (biomass burning 등)에 의해 증가한다는 것을 고려했을 때(Oh et al., 2009) 서울 부근 보다는 중부와 남부지방을 거치면서 발생한 소각 등의 영향이 합쳐져서 남해상에서 영향을 주었기 때문으로 사료된다. 이

처럼 향후 에어로졸 내 포집된 NH₄⁺, nss-SO₄²⁻, NO₃⁻ 등 이온성분의 상호 반응식을 통한 보다 상세한 물리/화학적 반응을 알 수 있으면 보다 명확한 해상과 지상의 화학성분 변화를 해석할 수 있을 것이다.

또한, 이 연무사례의 PM₁₀ 질량농도 변화 중 최고 농도의 변화를 비교해보면 4월 10일 서울에서의 PM₁₀ 최고 농도는 12시에 80 μg m⁻³였고 해상에서 4월 11일 10시에 PM₁₀ 최고 농도는 92 μg m⁻³이 관측되었다. 이는 연무가 기류에 따라 이동하면서 전체 농도는 감소하지만 순간 최고 농도는 이동하면서 증가하였다. 해양 경계층 내에서 산성화 가스상 물질(SO₂,

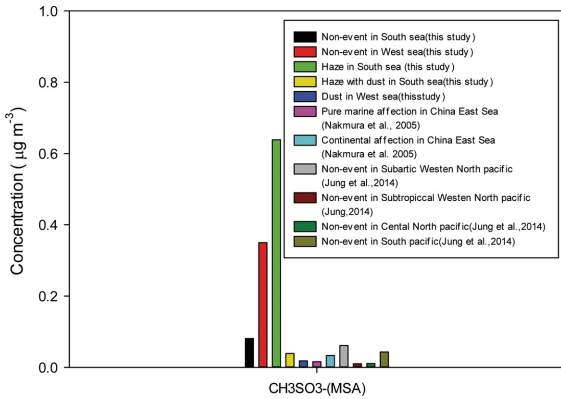


Fig. 7. Comparison of MSA^- concentrations observed in this study with those of other regions.

H_2SO_4 , HNO_3)과 해염입자가 반응하면 에어로졸 질량 농도가 증가할 수 있다는 연구결과가 있으나(Alexander et al., 2005). 아직 이 부분에 대한 선행연구가 많지 않은 실정이다. 향후 연무성 에어로졸이 해상을 거치면서 발생할 수 있는 다양한 반응식을 고려한 에어로졸의 질량농도 증가와 조성비 변화에 대한 더 명확히 연구할 필요가 있다.

4.3 해양성 황순환 물질(MSA) 관측특성

국내에서는 처음으로 선박을 이용하여 기후학적으로 중요한 해상의 황순환 물질인 MSA^- (methanesulfonate, $CH_3SO_3^-$)의 질량농도를 관측하였다(Fig. 7). 서해상의 MSA^- 농도는 남해상에서보다 3배 이상 높았다. 해양에서 MSA^- 농도가 높은 것은 플랑크톤에 의해 만들어지는 DMS (dimethyl sulfide)와 대기 중에 산성화 물질(황산염, 질산염 등)이 많다는 것을 의미한다(Yuan et al., 2004). 즉 관측 사례일에 서해상에서 DMS와 산성화 물질들이 남해상보다 높았다고 추정해 볼 수 있다. 연무사례([사례 3]) 시 MSA^- 농도가 $0.64 \mu g m^{-3}$ 로 가장 높았고, 황사사례([사례 5])보다는 약 30배 정도 높은 농도를 보였다. 황사 사례에서 MSA^- 가 가장 낮은 농도가 관측된 이유에 대해서는 아직 선행 연구들이 없어 그 원인이 아직 불명확하지만 황사가 해상으로 지나갈 경우 태양으로부터 복사량을 감소시켜 플랑크톤에 의한 DMS 생성을 저하시키고, 이에 의해 해상에서의 MSA^- 농도가 감소될 가능성을 배제할 수 없다. 이러한 현상에 대한 원인분석을 위해 향후 이 분야에 대한 집중적인 연구가 이루어져야 할 것이다.

Nakamura et al. (2005)은 동중국해상에서 기류에 따른 MSA^- 농도를 분석하였고 Jung et al. (2014)은 동북아시아지역의 서태평양부터 남태평양까지 선박을 운항하면서 MSA^- 농도변화를 관측하였는데, 남해상

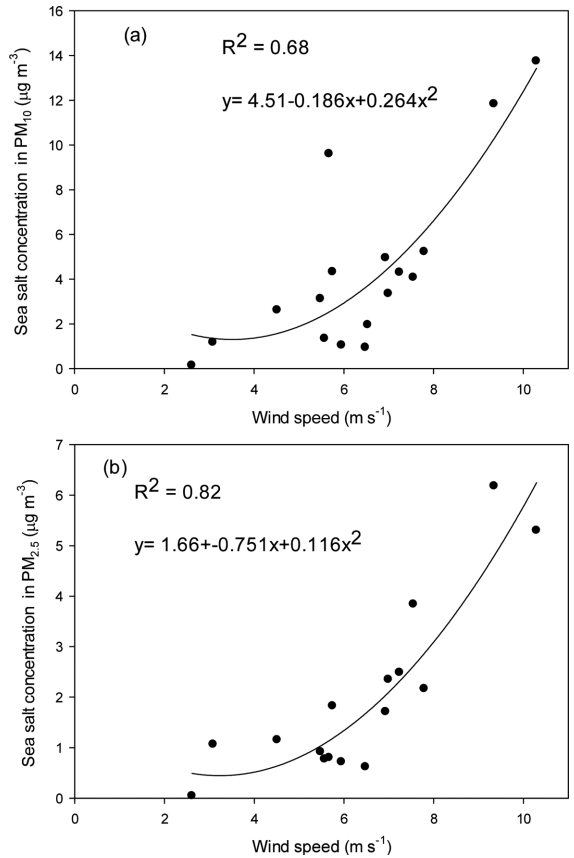


Fig. 8. Scatter plots of wind speed and sea-salt concentration for (a) PM_{10} and (b) $PM_{2.5}$ during vessel measurements from 9 April to 4 May 2015.

에서 연무가 발생한 이번 연구 사례의 MSA^- 농도는 아열대 서북태평양에서 관측한 값보다 약 64배 정도 높게 나타났다(Fig. 7). 우리나라 남해상과 서해상의 MSA^- 농도가 평균적으로 매우 높게 분석되었다(Fig. 7). 이러한 고농도의 MSA^- 발생원인은 주로 플랑크톤 개체수와 대기중의 질산염의 농도에 영향을 받는다(Yuan et al., 2004). 서해에 중국 및 국내로부터 플랑크톤에 필요한 영양염류가 많이 유입되고(Liu, 2015), 대기 중 질산염 등의 에어로졸에 많이 포함되고 있어(Zhang et al., 2013) 고농도의 MSA^- 가 관측되었다고 추정된다. 향후 이러한 해양성 황순환 물질에 대한 연구가 더 이루어진다면 기후변화 예측을 위한 주요한 기초자료가 될 것이다.

5. 우리나라 주변해상의 해염농도 특성

자연배출원인 해염입자는 기후학적으로나 기상학적

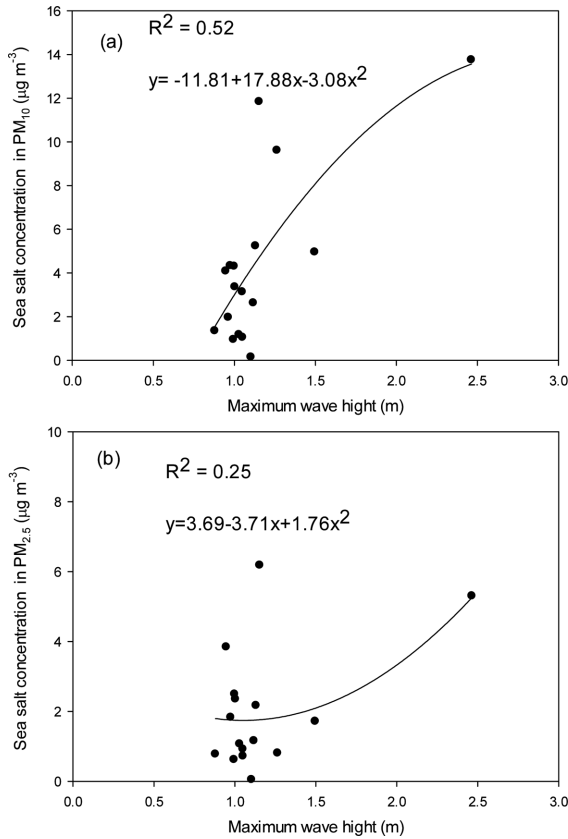


Fig. 9. Scatter plots of maximum wave heights and sea salt concentrations for (a) PM₁₀ and (b) PM_{2.5} during vessel (Gisang 1) measurements from 9 April to 4 May 2015.

으로 매우 중요하지만 인위적인 기원의 이차오염물질 (nss-SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺)과 nss-Ca²⁺와 같은 성분은 비해 대체로 연구의 중요성이 떨어진다. 그러나 지역에 따라 편차가 크고, 본 연구에서는 해상에서 관측하여 해염입자의 기여도가 크므로 보다 상세히 분석하였다. 우리나라 남해상에서 수행한 ACE-Asia 특별관측에서 해염입자의 농도는 5.9 µg m⁻³이었고 이외 다양한 지역(태평양, 대서양지역, 지중해) 선박에서 관측한 해염입자의 농도는 5.1~8.0 µg m⁻³이었다(Jaegle et al., 2011; Kishcha et al., 2012). 본 연구에서 측정된 해상의 해염입자 평균 농도는 4.3 µg m⁻³이었는데, 선행연구 결과와의 차이는 해상 관측 시 다양한 요소(풍속, 수온, 염도 등)와 지역적인 영향에서 기인한다고 알려져 있으므로(Grythe et al., 2014), 해염입자 질량농도 1차적으로 가장 상관성이 있는 기상학적 요소인 풍속과 최대 파고의 관련성을 살펴보았다. PM₁₀과 PM_{2.5} 중 해염입자와 풍속의 결정계수(R²)는 각각 0.68, 0.82이었다(Fig. 8). 이는 해염입자의 주성분인 Na⁺ 이온

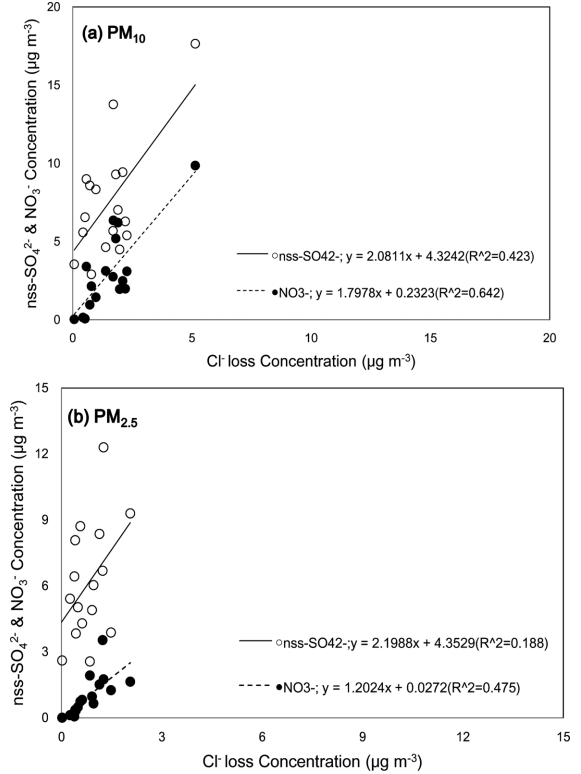
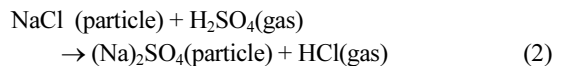
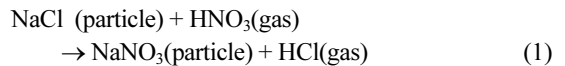


Fig. 10. Comparison of Cl⁻ loss concentrations with nss-SO₄²⁻ and NO₃⁻ for (a) PM₁₀ and (b) PM_{2.5} during vessel (Gisang 1) measurements from 9 April to 4 May 2015.

은 미세입자 영역인 1.1~2.1 µm 사이에 분포하기 때문이다(Udisti et al., 2012). PM₁₀과 PM_{2.5} 해염입자 질량농도와 최대 파고의 결정계수(R²)는 각각 0.52와 0.25(Fig. 9)로 상관성이 크지 않았다.

이차오염물질의 존재에 따라 해염입자의 대표적인 성분인 NaCl이 가스상 오염물질에 의해 Cl⁻의 손실이 일어나는 과정은 아래와 같다(Berner and Berner, 2012).



해상에서 채취한 에어로졸 성분 중 Na⁺ 이온성분농도에 약 1.78을 곱한 값을 해염에서 기인한 Cl⁻ 농도 [ss-Cl]로 계산한다(Sciare et al., 2005). 이렇게 추정된 ss-Cl 농도와 포집한 필터로부터 분석된 에어로졸 내의 Cl⁻ 농도와의 차이가 Cl⁻ 손실농도이다. Cl⁻ 손실농도와 해상에서 채취한 SO₄²⁻와 NO₃⁻의 이온성분농도의 결정계수(R²)를 비교하여 Fig. 10에 나타내었

다. PM_{10} 중 NO_3^- 이 $nss-SO_4^{2-}$ 보다 Cl^- 손실 농도와 상관성이 더 높으며, $PM_{2.5}$ 에서는 $nss-SO_4^{2-}$ 와 NO_3^- 모두 Cl^- 손실농도와 상관성이 낮은 것으로 나타났다. 이는 Cl^- 손실이 일어나는 식(1)과 (2)의 과정은 조대입자 영역에서 주로 일어나는 것으로 추측된다. 하지만 상대적으로 NO_3^- 가 SO_4^{2-} 보다 조금 더 Cl^- 손실농도와 상관성이 높게 분석이 되었다. 이는 SO_4^{2-} 가 대기 중에 더 많이 존재하기에 해염입자와 양적으로 많은 반응이 일어나지만 NO_3^- 존재할 경우 양은 적지만 SO_4^{2-} 보다 빨리 해염입자와 반응한 것으로 추정된다. 이러한 반응은 오염물질이 해염입자와 만났을 때 에어로졸의 입자크기도 변화시키기 때문에 Cl^- 손실 관련 반응식은 에어로졸 열역학 평형모델 등 에어로졸 대기 화학 모델에 주요한 메커니즘이다(Dasgupta et al., 2007). 향후 좀 더 많은 해상 관측자료를 확보하면 더 명확한 반응 메커니즘을 파악할 수 있어 대기화학모델의 정확도를 향상시킬 수 있을 것이다.

6. 요약 및 결론

이번 연구는 우리나라 주변 에어로졸 관측 공백지역인 해상에서의 에어로졸 물리/화학 성분 특성을 분석하는 데 중요한 관측결과를 보여주었다. 특히 6개의 해상관측사례를 통해 우리나라 주변 해상에서의 황사나 연무 등의 특성과 비현상일의 남해상 및 서해상 특성을 비교해보았다.

서해상의 PM_{10} 평균 질량농도는 남해상보다 높았고, 인위적인 요소인 $nss-SO_4^{2-}$ 과 토양기원인 원소성분의 농도도 서해상이 높게 나타났다. 남해상에서는 직접적인 오염원이 많지 않음에도 불구하고 북풍이 불어 우리나라 내륙의 연무 영향을 받을 경우 $nss-SO_4^{2-}$, NO_3^- , NH_4^+ 의 농도가 높았다. 연무와 황사가 혼합되어 관측된 사례에서는 원소성분의 농도도 높고 $nss-SO_4^{2-}$, NH_4^+ 의 농도도 같이 증가하였고, 특히, 국내 수도권 및 서해안 도시지역 오염의 영향을 직접 받은 국내 오염영향 관측사례에는 황사와 연무 혼합사례보다 NO_3^- 와 원소성분이 높게 나왔다. 이는 도시지역의 영향을 직접 받을 경우 상시적으로 해상에 영향을 줄 수 있다는 특성을 잘 보여주는 결과이다. 또한 이번 연구에서는 국내에서 처음으로 서해상과 남해상에서 해양성 황순환 물질인 MSA^- 농도를 관측하였다. 서해상이 남해상 보다 MSA^- 농도가 높게 나왔고, 서해와 남해가 서태평양지역 보다 MSA^- 농도 관측값이 크게 나타났는데, 이는 우리나라 서해와 남해가 플랑크톤의 개체수와 해상의 대기 중에 질산염과 같은 대기 산성화 물질 많음을 알 수 있다. 해염입자 농도일 경우 주로 풍속과 상관성이 높았고, 해염입자가 대기 오염물질을 만났을 경우 해염입자 내 Cl^- 손실을 계

산해 본 결과 $2.5 \mu m$ 보다 큰 크기의 해염입자가 SO_4^{2-} , NO_3^- 등 이차오염물질과 더 많이 반응하였다. 이는 향후 해상의 해염입자와 SO_4^{2-} 와 NO_3^- 의 관측자료를 충분히 확보하면 에어로졸 모델 산출물과 비교를 통해 장거리 이동에 따른 해상 에어로졸 입자 변화 특성연구를 추진할 수 있을 것이다. 최종적으로는 이번 연구는 우리나라 주변 해상에서 에어로졸 질량농도와 에어로졸 화학성비의 변화에 대한 관측정보를 확보함으로써 동북아시아의 인위적인 에어로졸입자의 기후학적 영향분석에 많은 기여를 할 수 있을 것이다.

감사의 글

본 논문의 선박관측을 위해 많은 노력을 해주신 국립기상과학원 지구환경시스템연구과 기상 1호 관측선 운영 담당자분들께 진심으로 감사드립니다. 이 연구는 기상청 국립기상과학원 기상업무지원 기술개발사업의(NIMS-2016-3100) 지원으로 수행되었습니다.

REFERENCES

- Alexander, B., J. Park, D. J. Jacob, Q. B. Li, R. M. Yantosca, J. Savarino, C. C. W. Lee, and M. H. Thiemens, 2005: Sulfate formation in sea-salt aerosols: Constraints from oxygen isotopes. *J. Geophys. Res.*, **110**, D10307, doi:10.1029/2004JD005659.
- Arimoto, R., X. Y. Zhang, B. J. Huebert, C. H. Kang, D. L. Savoie, J. M. Prospero, S. K. Sage, C. A. Schloesslin, H. M. Khaing, and S. N. Oh, 2004: Chemical composition of atmospheric aerosols from Zhenbeitai, China, and Gosan, South Korea, during ACE-Asia. *J. Geophys. Res.*, **109**, D19S04, doi:10.1029/2003JD004323.
- Bates, T. S., and Coauthors, 2004: Marine boundary layer dust and pollutant transport associated with the passage of a frontal system over eastern Asia. *J. Geophys. Res.*, **109**, D19S19, doi:10.1029/2003JD004094.
- Berner, E. K., and R. A. Berner, 2012: *Global Environment: Water, Air, and Geochemical Cycles*. Princeton University Press, 488 pp.
- Dasgupta, P. K., S. W. Campbell, R. S. Al-Horr, S. M. Rahmat Ullah, L. Jianzhong, C. Amalfitano, and N. D. Poor, 2007: Conversion of sea salt aerosol to $NaNO_3$ and the production of HCl: Analysis of temporal behavior of aerosol chloride/nitrate and gaseous HCl/ HNO_3 concentrations with AIM. *Atmos. Environ.*, **4**, 4242-4257.
- Gao, Y., R. Arimoto, R. A. Duce, L. Q. Chen, M. Y. Zhou, and D. Y. Gu, 1996: Atmospheric non-sea-salt sulfate, nitrate, and methanesulfonate over the China

- Sea. *J. Geophys. Res.*, **101**, 12601-12611.
- _____, _____, _____, X. Y. Zhang, G. Y. Zhang, Z. S. An, L. Q. Chen, M. Y. Zhou, and D. Y. Gu, 1997: Temporal and spatial distributions of dust and its deposition to the China Sea. *Tellus*, **49**, 172-189.
- Grythe, H., J. Strom, R. Krejci, P. Quinn, and A. Stohl, 2014: A review of sea-spray aerosol source functions using a large global set of sea salt aerosol concentration measurements. *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 1277-1297.
- Jaegle, L., P. K. Quinn, T. S. Bates, B. Alexander, and J.-T. Lin, 2011: Global distribution of sea salt aerosols: new constraints from in situ and remote sensing observations. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 3137-3157.
- Jung, J., H. Furutani, M. Uematsu, and J. Park, 2014: Distributions of atmospheric non-sea-salt sulfate and methanesulfonic acid over the Pacific Ocean between 48°N and 55°S during summer. *Atmos. Environ.*, **99**, 374-384.
- Kim, J. H., S. S. Yum, Y.-G. Lee, and B.-C. Choi, 2009: Ship measurements of submicron aerosol size distributions over the Yellow Sea and the East China Sea. *Atmos. Res.*, **93**, 700-714.
- Kim, S.-W., S.-C. Yoon, A. Jefferson, J. A. Ogren, E. G. Duttonb, J.-G. Won, Y. S. Ghimc, B.-I. Lee, and J.-S. Han, 2005: Aerosol optical, chemical and physical properties at Gosan, Korea during Asian dust and pollution episodes in 2001. *Atmos. Environ.*, **39**, 39-50.
- Kishcha, P., B. Starobinests, R. Udisti, S. Becagli, A. di Sarra, D. Sferlazzo, C. Bommartio, and P. Alpert, 2012: Sea-salt aerosol mass concentration oscillations after rainfall, derived from long-term measurements in Lampedusa (central Mediterranean). *Int. Scholarly Res. Network*, **2012**, doi:10.5402/2012/679120.
- Lee, S.-B., G.-N. Bae, Y. P. Kim, H.-C. Jin, Y.-S. Yoon, and K.-C. Moon, 2002: Aerosol characteristics at Tokchok Island in the Yellow Sea (Korean). *J. KOSAE*, **18**, 305-316.
- Li, J., Z. Han, and Z. Xie, 2013: Model analysis of long-term trends of aerosol concentrations and direct radiative forcing over East Asia. *Tellus*, **65**, 20410-20429.
- Liu, X., K.-P. Chiang, S.-M. Liu, H. Wei, Y. Zhao, and B.-Q. Huang, 2015: Influence of the Yellow Sea Warm current on phytoplankton community in the central Yellow Sea. *Deep-Sea Res. Pt. I*, **106**, 17-29.
- Nakamura, T., K. Matsumoto, and M. Uematsu, 2005: Chemical characteristics of aerosols transported from Asia to the East China Sea: an evaluation of anthropogenic combined nitrogen deposition in autumn. *Atmos. Environ.*, **39**, 1749-1758.
- National Institute of Meteorological Sciences (NIMS), 2015: Study on improving the ADAM2-HAZE Model (I), Report for Development and application of technology for weather forecast, 101 pp (in Korea).
- Oh, M.-S., T.-J. Lee, and D.-S. Kim, 2009: Source identification of ambient size-by-size particulate using the positive matrix factorization model on the border of Yongin and Suwon. *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, **25**, 108-121 (in Korean with English abstract).
- Ovadnevaite, J., D. Ceburnis, M. Canagratna, H. Berresheim, J. Bialek, G. Martucci, D. R. Wornop, and C. O'Dowd, 2012: On the effect of wind speed on submicron sea salt mass concentrations and source fluxes. *J. Geophys. Res.*, **17**, D1620, doi:10.1029/2011JD017379.
- Sciare, J., K. Oikonomou, H. Cachier, N. Mihalopoulos, M. O. Andreae, W. Maenhaut, and R. Sarda-Estève, 2005: Aerosol mass closure and reconstruction of the light scattering coefficient over the Eastern Mediterranean Sea during the MINOS campaign. *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 2253-2265.
- Udisti, R., and Coauthors, 2012: Sea spray aerosol in central Antarctica. Present atmospheric behaviour and implications for paleoclimatic reconstructions. *Atmos. Environ.*, **52**, 109-120.
- Yuan, H., W. Ying, and Z. Guoshun, 2004: MSA in Beijing aerosol. *Chinese Sci. Bull.*, **49**, 1020-1025.
- Zhang, H.-H., G.-P. Yang, C.-Y. Liu, and L.-P. Su, 2013: Chemical characteristics of aerosol composition over the Yellow Sea and the East China Sea in autumn. *J. Atmos. Sci.*, **70**, 1784-1794.
- Zhao, R., B. Han, B. Lu, N. Zhang, L. Zhu, and Z. Bai, 2015: Element composition and source apportionment of atmospheric aerosols over the China Sea. *Atmos. Pollut. Res.*, **6**, 191-201.