공기과 역궤적 모델의 통계 분석을 통한 이산화탄소 배출 지역 추정

이선란¹⁾ · 박선영^{2),*} · 박미경¹⁾ · 조춘옥¹⁾ · 김재연¹⁾ · 김지윤¹⁾ · 김경렬³⁾

¹⁾서울대학교 해양연구소, ²⁾경북대학교 해양학과, ³⁾광주과학기술원 기초교육학부

(접수일: 2013년 12월 12일, 수정일: 2013년 12월 31일, 게재확정일: 2014년 1월 2일)

Statistical Back Trajectory Analysis for Estimation of CO₂ Emission Source Regions

Shanlan Li¹⁾, Sunyoung Park^{2),*}, Mi-Kyung Park¹⁾, Chun Ok Jo¹⁾, Jae-Yeon Kim¹⁾,
Ji-Yoon Kim¹⁾, and Kyung-Ryul Kim³⁾

¹⁾Research Institute of Oceanography, Seoul National University, Seoul, Korea

²⁾Department of Oceanography, Kyungpook National University, Sangju, Korea

³⁾GIST College, Gwangju Institute of Science and Technology, Gwangju, Korea

(Manuscript received 12 December 2013; revised 31 December 2013; accepted 2 January 2014)

Abstract Statistical trajectory analysis has been widely used to identify potential source regions for chemically and radiatively important chemical species in the atmosphere. The most widely used method is a statistical source-receptor model developed by Stohl (1996), of which the underlying principle is that elevated concentrations at an observation site are proportionally related to both the average concentrations on a specific grid cell where the observed air mass has been passing over and the residence time staying over that grid cell. Thus, the method can compute a residence-time-weighted mean concentration for each grid cell by superimposing the back trajectory domain on the grid matrix. The concentration on a grid cell could be used as a proxy for potential source strength of corresponding species. This technical note describes the statistical trajectory approach and introduces its application to estimate potential source regions of CO₂ enhancements observed at Korean Global Atmosphere Watch Observatory in Anmyeon-do. Back trajectories are calculated using HYSPLIT 4 model based on wind fields provided by NCEP GDAS. The identified CO₂ potential source regions responsible for the pollution events observed at Anmyeon-do in 2010 were mainly Beijing area and the Northern China where Haerbin, Shenyang and Changchun mega cities are located. This is consistent with bottom-up emission information. In spite of inherent uncertainties of this method in estimating sharp spatial gradients within the vicinity of the emission hot spots, this study suggests that the statistical trajectory analysis can be a useful tool for identifying anthropogenic potential source regions for major GHGs.

Key words: CO₂ source region, statistical trajectory model, Anmyeon-do

*Corresponding Author: Sunyoung Park, Department of Oceanography, Kyungpook National University, Sangju, Gyeongsangbuk-do 742-711, Korea.
Phone : +82-54-530-1479, Fax : +82-54-530-1479
E-mail : sparky@knu.ac.kr

1. 서 론

공기과 역궤적 분석은 대기 중 화학 관측 물질의 농도 상승과 관측 물질의 주요 배출원을 이해하는 데 유용하게 활용되고 있다. 역궤적 분석의 대표적인 도구로 단일 궤적 추정 모델이 꾸준히 사용되고 있는데 이는 단일 궤적 추정모델이 대기 경계층의 난류를 표현함에 있어 오차를 유발할 수 있는 단점에도 불구하고, 계산 속도가 빠르고 운영이 비교적 쉽다는 장점이 있기 때문이다. 그리고 HYSPLIT 모델(Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory model, www.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php)의 경우는 미 국립 해양 대기청(NOAA)에서 제공하는 최적화된 기상장을 무료로 사용할 수 있고, 정기적인 수정과 보완을 수행함에 따라 비교적 정확하게 역궤적을 모사할 수 있다. 단일 역궤적 모델의 경우, 다수의 역궤적을 통계적인 방법으로 결합하여 하나의 궤적이 초래할 수 있는 오차를 줄일 수 있기 때문에, 이러한 역궤적의 통계 분석방법은, 입자 확산 모델[e.g., FLEXPART 모델 (Stohl *et al.*, 2005; Kim *et al.*, 2013)]과 함께, 화학 물질의 배출 지역을 추정하기 위한 연구에 최근 활발히 응용되고 있다.

공기과 역궤적의 통계 분석을 통한 관측 물질들의 잠재 배출원 지역을 추정하고자 할 때 이용되는 방법으로는 군집 분석(cluster analysis)이 있다(Moody and Samson, 1989; Harris and Kahl, 1990; Kim *et al.*, 2008). 군집 분석은 관측 지점에 도달하는 역궤적의 이동경로와 속도를 기준으로 역궤적을 비슷한 몇 개의 군집으로 나누어, 각 군집에 포함된 역궤적의 시간과 상응하는 시간에 관측된 물질 농도의 상관성을 비교하여 특이한 농도를 보였던 시기의 공기과 이동 경로와 배출원 지역의 방향과 같은 대략적 정보를 얻는 방법이다. 이 방법은 역궤적 군집과 오염 농도(pollution event concentration)를 연관시킬 수는 있지만 배출원들의 지역적 위치를 추정하기는 어려운 단점이 있다.

다른 한가지 방법은 Seibert *et al.* (1994)와 Stohl (1996)이 개발한 역궤적의 공기과 체류시간(residence time) (Ashbaugh, 1983)을 관측 농도에 적용하여 배출원 지역을 찾아내는 통계 분석방법이다. 오늘날 가장 활발하게 사용되고 있는 역궤적 통계 분석 방법이며 (Charron *et al.*, 2000; Aalto *et al.*, 2002; Li *et al.*, 2010), 지역별 배출량(예컨대, GtC per unit time for CO₂)을 계산하는 것은 아니지만, 통계적으로 누적된 격자별 농도가 그 격자의 배출강도(source strength)의 기준이 될 수 있다는 관점에서 배출원 지역을 결정하는 방법이다. 물론 상승농도가 관측된 시기에 도달한 역궤적의 경우, 통과한 모든 격자들에서의 각 체류시

간이 상승 농도에 대한 그 격자의 기여도로 환산되기 때문에 배출원 부근에서의 갑작스러운 농도 변화는 다소 과소평가 될 수 있다는 단점도 있다. 그럼에도 불구하고 복잡한 전구 inversion 모델이나 입자 확산 모델에 비해 계산 시간이 짧을 뿐만 아니라, 이전 연구들에서 다양한 화학 성분들의 지역 배출원들을 신뢰성 있게 찾아냄으로써, 특히 현재 새롭게 연구되는 관심 물질들의 일차적인 배출원 지역을 찾는 데 많이 활용되고 있다(Reimann *et al.*, 2004, 2008).

따라서 본 기술 논문에서는 이 역궤적 통계 분석법에 대해서 상세히 소개하고, 이 방법을 안면도 기후 변화감시센터(36.53°N, 126.32°E)에서 연속 관측한 이산화탄소(CO₂)의 농도에 적용하여 이산화탄소 오염농도에 기여한 잠재 배출원 지역을 규명하는 연구의 기초를 만들고자 한다. 다음 이어지는 2.1절, 2.2절과 2.3 절에서는 HYSPLIT 모델을 이용한 역궤적 계산, 상승 농도에 대응하는 시각에 안면도에 도달한 HYSPLIT 역궤적들의 체류시간 통계, 이산화탄소 상승 농도와 체류시간의 결합을 통한 잠재적 지역(격자별) 배출 강도 추정 방법에 대해서, 각각 서술하였다.

2. 분석방법

2.1 HYSPLIT 모델을 이용한 역궤적 계산

본 연구의 역궤적 분석은 HYSPLIT-4 모델을 이용하여 계산한다(e.g., Draxler and Hess, 2004). HYSPLIT 모델에 사용된 기상장은 NCEP(National Centers for Environmental Prediction) GDAS (Global Data Assimilation System)에서 제공하는 GDAS1 모델 출력 기상장으로, 공간 해상도는 $1^\circ \times 1^\circ$ 이고, 시간 간격은 3시간이다. 한반도를 중심으로 하는 동북아시아 지역에서 HYSPLIT 모델을 위해 최적화 되어진, 고해상도 지역 단위 기상장은 전무하기 때문에, $1^\circ \times 1^\circ$ GDAS가 본 기술 논문에서 이용 가능한 최적의 기상장이다. 또한 본 기술의 주요 적용 물질들인 이산화탄소와 메탄 등은 다양한 산업분야와 인간 문명 활동 전반에 걸쳐 배출되고 있어, 특정 산업 및 생산공정과 관련된 point sources를 가지는 것이 아니기 때문에, $1^\circ \times 1^\circ$ 의 공간 해상도는 배출원 추정을 위한 충분히 유용한 정보를 제공할 수 있다.

먼저, HYSPLIT 역궤적들에 통계 분석을 적용하기 위해서는 필요한 출력 변수를 지정해야 하며, 가장 중요한 변수가 역궤적의 모사시간(run time)과 출발점 고도(starting altitude)이다. 모사시간은 역궤적 계산의 신뢰도가 허용하는 범위에서 관심 있는 지표면 오염 지역을 포함할 수 있어야 하고, 동시에 관측자료의 대기 중 수명(life time)도 고려되어야 한다. 본 연구의 사례 관측점인 안면도의 경우 역궤적 모사 시간은 4

일(96 시간)이다(Jin *et al.*, 2010; Li *et al.*, 2013). 기본적으로 역궤적 추적 시간이 길어질수록 배출원 지역의 공기질이 희석됨에 따라 배출원 추정의 정확도가 감소한다. 그럼에도 불구하고, 관측점에 영향을 줄 수 있는 모든 주변 배출원 지역을 성공적으로 포함할 수 있는 충분히 긴 추적 시간이 정해져야 한다. 이러한 관점에서 4일은 중국과 한국의 주요 산업지역 및 인구조밀 지역을 모두 포함하면서, 동시에 기존의 HYSPLIT 모델 기반의 많은 연구들에서 가장 일반적으로 선택되는 역궤적 모사시간이다. 또한 본 역궤적 통계방법이 적용된 이산화탄소의 경우, 대기 중 수명(5~200년)이 충분히 길기 때문에, 4일의 시간 단위에서 화학 반응에 의한 소멸/침착이 발생할 가능성이 거의 없다.

역궤적 계산의 출발점 고도는 경계면 고도(boundary layer height)를 고려하여 결정된다. 경계면 고도는 계절에 따라 변하고 또한 낮과 밤에 따라 차이를 보이기 때문에, 우선 전체 분석기간의 경계면 고도를 분석해 볼 필요가 있다. 최근 개선된 HYSPLIT 모델은 GDAS 기상장 모델에서 제공하는 heat flux와 momentum을 이용하여 역궤적이 지나가는 모든 지역의 경계면 고도를 계산해 주고 있다(Draxler and Hess, 2004). 경계면 고도는 HYSPLIT 모델에서 제공하는 SETUP.CFG파일에 경계면 고도설정 변수 `tm_mixd`를 1로 설정해주면 된다. 이렇게 계산된 경계면 고도는 아래 체류시간 결정에도 이용될 것이다.

본 연구에서는 HYSPLIT의 역궤적 경로와 입자 확산 모형(FLEXPART)의 입자 이동 경로가 500 m 고도에서 가장 잘 일치한다는 점을 고려하여 500 m를 역궤적 모델의 출발점 고도로 정하였다(Li *et al.*, 2013). 공기과 이동 중 상부 대기 및 타 지역 공기과의 혼합/확산의 영향을 최소화하고, 지표 오염 지역의 영향만이 반영될 수 있도록 하고자, 역궤적의 고도가 통과 지역의 경계면 고도보다 높을 경우, 이어지는 체류시간 계산 및 배출원 지역 추정에서 그 공기과 역궤적의 격자를 제외하였다.

2.2 역궤적의 체류시간 계산

역궤적이 통과하는 지역들에서의 체류시간을 구하기 위해 우선 관측소를 중심으로 관심지역을 일정한 격자로 나눈다. 본 연구에서는 역궤적이 통과하는 지역을 $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ 의 격자로 구분하고, 각 격자에 대해서 역궤적이 통과한 경로길이와 속도를 고려하여 체류시간을 구하였다(Ashbaugh, 1983; Poirot and Wishinski, 1986).

HYSPLIT 모델을 이용하여 관측 기간 동안 관측소에 도달하는 역궤적(trjectory k)을 구할 때, 단일 역궤적의 불확실성을 줄이는 방법으로 관측소를 포함하

Fig. 1. Illustration of residence time calculation on a grid cell (i, j) of a HYSPLIT back-trajectory arriving at Anmyeon-do (AMY).

는 격자(격자 길이(d_g) = 0.5°)의 4개 모퉁이 지점에 도달하는 역궤적들을 함께 구하여 이용한다.

역궤적 분석 모델에 따라 각 역궤적은 N 개의 부분으로 나뉘어져 있는데, HYSPLIT의 경우 단위 시간 간격(time interval, Δt) 1시간의 결과를 보여주므로 96개 부분으로 나눌 수 있고, 계산 과정은 Fig. 1에 도시하였다. 분석에 이용한 모든 역궤적의 수를 M 이라 하고, 역궤적 k 가 격자 (i, j) 를 지나는 n 번째 부분의 전체 길이를 $d_{(n,k)}$ 라 하고, (i, j) 격자 내부에서의 길이를 $S_{(i,j,n,k)}$ 라고 한다. 96시간 중 궤적의 매 시간마다의 속도는 다를 수 있지만, 단위 시간 동안 궤적의 이동속도가 일정할 것이라고 가정하고, 단위 시간 이동 거리가 $d_{(n,k)}$ 이므로, n 번째 궤적의 평균 이동속도($V_{(n,k)}$)는 아래와 같다.

$$V_{(n,k)} = \frac{d_{(n,k)}}{\Delta t}, \quad (1)$$

역궤적 k 의 격자 (i, j) 내 체류시간 $Tr_{(i,j,k)}$ 는

$$Tr_{(i,j,k)} = \sum_{n=1}^N \frac{S_{(i,j,n,k)}}{V_{(n,k)}}, \quad (2)$$

이와 같은 방법으로 계산을 할 경우, 관측소로 가까이 접근할수록 지나가는 역궤적의 횟수가 증가하면서 체류시간이 길어지는 문제가 발생한다. 이를 보정하기 위해 관측소로부터 같은 반경($D_{(i,j)}$) 내에 있는 모든 격자들의 면적합을 단위 격자의 면적으로 나누어 준 값(geometric adjustment factor, $F_{(i,j)}$)을 곱해주는 방법을 사용한다(Poirot and Wishinski, 1986). 즉, 단위 격자의 길이를 d_g , 관측소에서 격자 (i, j) 까지의 거

Fig. 2. Seasonal distributions of total residence times determined from 4-day back-trajectories (including all height) at AMY (black circle) in 2010.

리를 $D_{(i,j)}$ 라고 하면,

$$F_{(i,j)} = \frac{\pi \times \left[\left(D_{(i,j)} + \frac{d_g}{2} \right)^2 - \left(D_{(i,j)} - \frac{d_g}{2} \right)^2 \right]}{d_g \times d_g}, \quad (3)$$

이며, 이 값을 보정인자로 식 (2)에서 구한 체류시간에 곱해준다.

2010년에 안면도에 도달하는 모든 역계적들의 체류시간을 Fig. 2에 계절별로 도시하였다. 계절적인 중관기상의 변화 양상을 반영하기 위하여 모든 높이에서의 역계적을 포함하여 체류시간을 계산하였다. 이와 같은 체류시간 분석과 도시는 관측점에 도달하는 공기괴들의 주요 이동경로와 함께 관측되는 물질들의 가능 배출원에 대한 일차적 정보를 준다. Figure 2에서 보듯이, 안면도 기후변화감시센터는 중국 동북부를 경유하는 공기괴의 영향을 많이 받을 것으로 생각되며, 여름철에는 북태평양에서 기원한 청정 공기괴의 유입도 예상된다.

2.3 관측자료와 체류시간을 이용한 격자별 배출 강도 추정

관측자료와 체류시간을 이용한 격자 별 배출강도 추정을 위하여 Seibert *et al.* (1994)에 의해 제시된 방법에 따라 각 격자(i, j)에 대하여 다음의 평균 농도를 구하였다.

$$\bar{C}_{ij} = \frac{1}{\sum_{k=1}^M Tr_{ijk}} \sum_{k=1}^M (c_k) Tr_{ijk}, \quad (4)$$

$\bar{C}_{ij}$ 는 주어진 격자가 갖는 잠재 배출원 강도(potential source region strength)를 의미하는 것으로 단위는 화학 관측 자료의 농도 단위와 동일하며 본 연구에서 이산화탄소의 관측자료를 사용하였으므로 단위는 ppm (part per million)이다. M 은 격자 i, j 를 지나는 모든 역계적 k 의 갯수, c_k 는 역계적 k 가 도달한 시기에 관측된 이산화탄소의 상승 농도, 즉, 관측값에서 배경대기 농도값을 뺀 오염농도를 표시한다.

2.1에서 설명되어진 것처럼, 지표 배출원에 의한 영향만을 고려하기 위하여, 역궤적의 고도가 HYSPLIT 모델에서 계산된 경계면 고도보다 높은 경우는 제외시켰다. 또한 역궤적의 추적거리가 먼 원거리 지역의 경우, 통과하는 궤적수가 적어 소수의 역궤적에 의해 해당 격자의 배출 강도가 지나치게 과장될 수 있기 때문에 가능한 오류를 최소화하기 위해 격자를 통과하는 역궤적의 수가 5개 미만인 격자는 분석에서 제외되었다. 역궤적 통계분석법에 필요한 일련의 계산 알고리즘들은 MATLAB®, 프로그램에서 실행되며, 관련 실행파일은 요청에 따라 제공 가능하다.

위의 식에서 $\bar{C}_{ij}$ 의 값이 크게 나타나는 격자는 그 격자를 지나는 공기괴가 관측소에서 측정된 높은 농도와 상관성이 높다는 것을 의미하는 것이다. 본 역궤적 통계 분석은 배출원의 가능 위치에 대한 유용한 정보를 제공하는 것은 사실이지만, 관측소에 도달하는 공기괴의 역궤적이 지나지 않는 지역들에 대해서는 배출 강도 분석을 할 수 없어 주요 배출원을 간과할 수 있다는 단점을 주지할 필요가 있다.

3. 응용사례 연구: 안면도에서 연속 관측한 이산화탄소 오염농도의 배출지역 추정

본 연구에서는 앞서 기술된 역궤적 모델 통계 분석법을 안면도 기후변화감시센터에서 비분산형적외선 분광기(NDIR)를 이용해 연속 관측한 대기 중 이산화탄소 농도의 1시간 평균자료 중 2010년 일년간의 자료에 적용하였다. 관측 자료로부터 이산화탄소의 지역 배경대기 값(regional background concentrations)을 결정하기 위해, 현재 Advanced Global Atmospheric Gases Experiment (AGAGE)와 같은 대기 질 연속 관측 및 모니터링을 위한 국제 협력 연구진들에서, 긴 수명의 온실기체들의 배경 값 결정에 광범위하게 응용되고 있는 통계적인 방법을 사용하였다(O'Doherty *et al.*, 2001). 이 통계 방법은 안면도 지역의 배경대기 농도가 정규분포를 이룬다는 가정 하에, 이 정규분포의 평균에서 $\pm 2.5\sigma$ 이상 벗어나는 값들을 반복적으로 제거하여 배경농도를 구하는 것이다. 이산화탄소와 같이 일주기와 계절 주기의 자연 변동성에, 인위적 요인에 의한 오염 농도가 추가되는 경우, 위와 같은 통계적인 접근이 오류를 유발할 수 있다. 하지만 본 기술 분석에서 사용하는 농도는 상대적인 증가 농도(오염농도에서 배경농도를 뺀 값)이기 때문에 배경농도의 가능한 과대/과소 평가는 절대 배출강도에는 영향을 줄 수 있으나, 배출강도의 상대적 분포(즉, 배출원 지역의 gradient)에는 영향을 주지 않는다. 따라서, 배경농도 산출과 관련된 복합적인 논의는 본 기술 논문의 범위를 벗어나므로 자세히 언급 하지 않았다.

Fig. 3. Hourly mean concentrations of CO₂ observed at AMY in 2010. The baseline concentrations, which were determined by the AGAGE statistical method, and the enhancements of polluted air masses are denoted in red and blue, respectively.

Fig. 4. Potential source regions of CO₂ pollutions observed at AMY in 2010.

다. 하지만 향후 정량적인 이산화탄소 배출량 산정을 위해서는 정확한 배경농도 산출이 중요하기 때문에, 현재 안면도와 같은 지역급 관측점들에서의 자연적 온실기체 배경농도 결정에 대한 다양한 연구가 진행 중이며, 본 연구진도 이에 대한 추가적인 연구 결과 발표를 준비 중이다.

Figure 3은 안면도 기후변화감시센터에서 연속 관측한 2010년 이산화탄소 시계열 자료를 보여준다. AGAGE 통계법에 따라 결정된 배경농도와 이로부터 분리된 상승농도, 즉 오염농도가 제시되었다. 이 오염농도와 상응하는 시기의 역궤적 체류시간 결과를 결합하여 얻은 배출강도 식 (4)는 Fig. 4의 동북아시아 지도 위에 ppm 단위로 도시하였다. 그림에서 안면도

기후변화 감시센터 위치는 검정색 원으로 표시되었다. 본 분석은 인위적인 오염농도에 적용하기 때문에, 해양을 통과하는 역제적의 경로는 고려하지 않았다. 결과에서 보듯이, 높은 배출 강도를 보이며 주요 배출 원으로 추정되는 지역은 중국 북경 인근의 산업화 지역과 북부 국경 지역이다. 특히 중국 북부지역은 겨울철 안면도에 도달하는 역제적의 주요 경로(Fig. 2 참조)로서, 이 지역의 난방을 위한 석탄 연료의 사용을 나타내고 있다. 이와 같은 배출원 지역 추정의 정확성은 높은 배출강도를 보이는 지역의 산업구조 및 인구 밀도 등을 모두 고려하여 검증될 필요가 있다. 현재의 분석 결과에 따르면, 안면도에서 관측되는 이산화탄소 오염농도의 주요 배출원은 중국 북경과 북부 국경 지역으로 판단된다. 한편 중국 주요 산업 지역인 양쯔 강 주변의 동남부 해안 지역의 배출강도가 낮은 것은, 안면도에 도달하는 공기과들이 중국의 중북부 지역에 한정되어 있어 안면도의 오염농도에 대한 영향을 미치지 않는지만, 동남부 해안 지역이 이산화탄소의 배출원이 될 가능성은 배제할 수 없음을 보여준다. 따라서, 이와 같이 가능한 주요 배출원 지역들의 포괄적인 분석을 위해, 앞으로 지역적으로 고르게 분포된 가능한 많은 관측소들에 대한 연속관측 지원과 양질의 자료의 확보가 중요하다.

4. 결 론

본 기술 논문은, 대기 중 화학 성분들의 연속 관측 자료로부터 가능한 오염 배출원 지역을 추정하기 위해 역제적 모델을 통계적으로 분석하는 방법을 소개하였다. 본 방법에 따라 결정된 공기과 역제적의 지역별, 계절별 체류시간 분포는 관측소의 중관 기상 패턴과 관측소에 영향을 주는 주요 공기과의 이동경로를 이해하는 데 도움을 준다. 2010년도 안면도 기후변화감시센터에 도달한 역제적들의 체류시간을 계절별로 계산한 결과, 안면도에 도달한 공기과는 대부분의 계절에서 중국 동북부 지역의 영향을 받고 있으며, 여름철에는 깨끗한 북 태평양기단의 영향하에 있는 것으로 나타났다. 지역(격자)별 배출강도는 산출된 체류시간과 2010년 안면도에서 연속 관측한 이산화탄소의 농도 분포 중 오염농도를 결합하여 추정하였다. 그 결과, 안면도의 이산화탄소 오염농도는 주로 중국 북경인근과 중국 북부 국경지역의 영향에 의한 것으로 나타났다. 본 연구는, 공기과 역제적 모델의 통계 분석이 다양한 배출원을 가지고 있는 이산화탄소에 대해서도 장거리 배출원 지역을 추정하는데 유용하게 활용될 수 있음을 보임에 따라, 이산화탄소뿐 아니라 인위적 생성원을 갖는 주요 화학물질들의 오염 배출원의 가능한 지역적 위치를 추정하는 데 응용될 수

있음을 제시한다.

감사의 글

본 논문의 개선을 위해 좋은 의견을 제시해 주신 두 분의 심사위원께 감사를 드립니다. 이 연구는 기상청 기후변화 감시, 예측 및 국가정책지원강화 사업(CATER 2012-3010)의 지원으로 수행되었습니다.

REFERENCES

- Aalto, T., J. Hatakka, J. Paatero, J.-P. Tuovinen, M. Aurela, T. Laurila, K. Holmen, N. Trivett, and Y. Viisanen, 2002: Tropospheric carbon dioxide concentrations at a northern boreal site in Finland: basic variations and source areas. *Tellus*, **54B**, 110-126.
- Ashbaugh, L., 1983: A statistical trajectory technique for determining air pollution source regions. *J. Air Pollut. Control Assoc.*, **33**, 1096-1098.
- Charron, A., H. Plaisance, S. Sauvage, S. P. Coddeville, J. C. Galoo, and R. Guillermo, 2000: A study of the source-receptor relationships influencing the acidity of precipitation collected at a rural site in France. *Atmos. Environ.*, **34**, 3665-3674.
- Draxler, R. R., and G. D. Hess, 2004: NOAA technical memorandum ERL ARL-224: Description of the HYSPLIT_4 modeling system. Available at www.arl.noaa.gov/documents/reports/arl-224.pdf.
- Harris, J. M., and J. D., Kahl, 1990: A descriptive atmospheric transport climatology for the Mauna Loa Observatory, using clustered trajectories. *J. Geophys. Res.*, **95**, 13651-13667.
- Jin, F., J. Kim, and K.-R. Kim, 2010: Estimation of potential source region in Northeast Asian through continuous in-situ measurement of atmospheric CO₂ at Gosan, Jeju Island, Korea. *Terr. Atmos. Oceanic Sci.*, **21**, 313-323.
- Kim, I., S. Li, and K.-R. Kim, 2008: Variations of trace gases concentrations and their relationship with the air mass characteristic at Gosan, Korea. *J. KOSAE*, **24**, 584-593.
- Kim, J., S. Park, M.-K. Park, S. Li, J.-Y. Kim, C. O. Jo, J.-Y. Kim, and K.-R. Kim, 2013: Parameter optimization and automation of the FLEXPART lagrangian particle dispersion model for atmospheric back-trajectory analysis. *Atmosphere*, **23**, 1-10.
- Li, S., J. Kim, K.-R. Kim, and J. Mühle, 2010: Emission characteristics of HFC-23 (CHF₃)/HCFC-22 (CHClF₂) between different air masses in northeastern Asia. *J.*

- KOSAE*, **26**, 490-498.
- _____, S. Park, S.-K. Kim, M.-K. Park, J. Mühle, G. Lee, M. Lee, C. O. Jo, and K.-R. Kim, 2013: Source identification and apportionment of halogenated compounds observed at a remote site in East Asia. *Environ. Sci. Technol.*, in press.
- Moody J. L., and P. J. Samson, 1989: The influence of atmospheric transport on precipitation chemistry at two sites in the midwestern United States. *Atmos. Environ.*, **23**, 2117-2132.
- O'Doherty, S., and Coauthors, 2001: In situ Chloroform measurements at advanced global atmospheric gases experiment atmospheric research stations from 1994 to 1998, *J. Geophys. Res.*, **106**, 20429-20444.
- Poirot, R. L., and P. R. Wishinski, 1986: Visibility, sulfate and air mass history associated with the summertime aerosol in northern Vermont. *Atmos. Environ.*, **20**, 1457-1469.
- Reimann, S., and Coauthors, 2004: Halogenated greenhouse gases at the Swiss High Alpine Site of Jungfraujoch (3580 m asl): Continuous measurements and their use for regional European source allocation. *J. Geophys. Res.*, **109**, D05307, doi: 10.1029/2003JD003923.
- _____, M. K. Vollmer, D. Folini, M. Steinbacher, M. Hill, B. Buchmann, R. Zander, and E. Mahieu, 2008: Observations of long-lived anthropogenic halocarbons at the high-Alpine site of Jungfraujoch (Switzerland) for assessment of trends and European sources. *Sci. Total Environ.*, **391**, 224-231.
- Seibert, P., H. Komp-Kolb, U. Baltensperger, D. T. Jost, M. Schwikowski, A. Kasper, and H. Puxbaum, 1994: Trajectory analysis of aerosol measurements at high Alpine sites. In: Borrell, P.M., T. Cvitaš, W. Seiler (Eds.), *Transport and Transformation of Pollutants in the Troposphere* Academic Publishing, Den Haag, pp. 689-693.
- Stohl, A., 1996: Trajectory statistics-A new method to establish source-receptor relationships of air pollutants and its application to the transport of particulate sulfate in Europe. *Atmos. Environ.*, **30**, 579-587.
- _____, A. C. Forster, A. Frank, P. Seibert, and G. Wotawa, 2005: Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEX- PART version 6.2. *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 2461-2474.