

GMAP 2021 캠페인 기간 용인지역 오존 연직 분포 관측

류호선¹⁾ · 구자호²⁾ · 김형규¹⁾ · 이나현²⁾ · 이원진³⁾ · 김주완^{1)*}

¹⁾공주대학교 대기과학과, ²⁾연세대학교 대기과학과,

³⁾국립환경과학원 기후대기연구부 환경위성센터

(접수일: 2022년 7월 5일, 수정일: 2022년 8월 5일, 게재확정일: 2022년 8월 9일)

The Observation of Ozone Vertical Profile in Yongin, Korea During the GMAP 2021 Field Campaign

Hosun Ryu¹⁾, Ja-Ho Koo²⁾, Hyeong-Gyu Kim¹⁾, Nahyun Lee²⁾, Won-Jin Lee³⁾, and Joowan Kim^{1)*}

¹⁾Department of Atmospheric Science, Kongju National University, Gongju, Korea

²⁾Department of Atmospheric Sciences, Yonsei University, Seoul, Korea

³⁾Environmental Satellite Center, Climate and Air Quality Research Department, National Institute of Environmental Research (NIER), Incheon, Korea

(Manuscript received 5 July 2022; revised 5 August 2022; accepted 9 August 2022)

Abstract The importance of ozone monitoring has been growing due to the polar ozone depletion and increasing tropospheric ozone concentration over many Asian countries, including South Korea. In-situ measurement of the vertical ozone structure has advantages for ozone research, but observations are not sufficient. In this study, ozonesonde measurements were performed from October to November in Yongin during the GMAP (The GEMS Map of Air Pollution) 2021 campaign. The procedure for ozonesonde preparation and initial analysis of the observed ozone profile are documented. The observed ozone concentrations are in good agreement with previous studies in the troposphere, and they capture the stratospheric ozone distribution as well, including stratosphere-troposphere exchange event. These balloon-borne in situ measurements can contribute to the evaluation of remote sensing measurements such as Geostationary Environment Monitoring Spectrometer (GEMS). This document focuses on providing essential information of ozonesonde preparation and measurement for domestic researchers.

Keywords: Balloon-borne measurement, Ozonesonde, Ozone profile, Satellite validation, Yongin

1. 서 론

대기 중 오존은 크게 대류권과 성층권 오존으로 구분하며 위치하는 고도에 따라 그 중요성과 영향이 다르다. 일반적으로 성층권 오존은 우주로부터 유입되

는 유해 자외선을 흡수 차단하여 생태계를 보호하는 긍정적인 영향을 미치므로 보존해야 할 대상이지만 (e.g., Chipperfield et al., 2015), 대류권 오존은 그 자체가 가진 높은 화학적 반응성으로 인해 인간을 포함한 동물의 호흡기 및 피부질환, 농작물을 포함한 식물의 세포 파괴 등과 같은 부정적인 영향을 주기 때문에 감축의 대상이 된다(e.g., Mills et al., 2018). 대류권과 성층권의 오존은 생성 및 수송과 관련된 기작도 다른 특성을 보이는데, 성층권 오존의 경우 주로 적도 지역의 강한 태양복사에 의해 촉진되는 광화학 반응

*Corresponding Author: Joowan Kim, Department of Atmospheric Science, Kongju National University, 56 Gongjudaehakro, Gongju 32588, Korea.
Phone: +82-41-850-8530, Fax: +82-41-850-8530
E-mail: Joowan.k@gmail.com

으로 생성된 오존이 성층권의 대규모 순환인 브루어-돕슨 순환(Brewer-Dobson Circulation; Brewer 1949; Dobson 1956)에 의해 전구로 퍼져나가는 과정을 기본으로 하는 반면(Butchart, 2014), 대류권 오존의 경우 인간 활동에 의해 배출된 질소산화물(Nitrogen oxides)과 인위적/자연적으로 배출된 휘발성 유기화합물(Volatile organic compounds, VOC)이 공기 중에서 광화학 작용을 거친 결과로 생성되는 특징을 가진다(e.g., Wang et al., 2018). 이렇게 대류권과 성층권의 오존은 서로 다른 차이를 보임에도 불구하고 인간 활동에 다양한 영향을 미친다는 점에서 같이 모니터링하고 연구할 필요가 있다.

대류권과 성층권의 오존은 대류권계면 주변의 역학적인 순환에 의해서 서로 교환되기도 하는데, 대류권 상부와 성층권 하부의 오존 농도 차이가 매우 크므로 이러한 성층권-대류권의 물질 교환(Stratosphere-troposphere exchange, 이하 STE)은 대류권과 성층권 하부의 오존 분포 및 관련된 복사강제력에 큰 영향을 미친다(Holton et al., 1995; Stohl et al., 2003; Choi and Kim, 2010). 이러한 STE 과정은 중위도 제트류 변동, 로스비파의 쇄파(wave breaking), 동아시아 여름 몬순의 활동성과 같은 대기 역학 및 대기 순환장 변동과 깊이 관련되어 있어 자세한 연구가 필요하다(e.g., Park et al., 2012). 최근 적도 대류권계면으로 수송되는 중위도의 오존이 강한 온실 기체인 성층권 수증기에도 영향을 미칠 수 있음을 보이는 연구논문들이 다수 출판되어, 오존의 3차원적인 공간 분포는 기후변화 문제의 연구에도 중요한 주제가 되었다(Stolarski et al., 2014; Randel and Jensen 2013; Oh et al., 2018).

성층권과 대류권 오존의 연직구조를 동시에 측정하여 살펴볼 수 있는 가장 대표적인 방식은 오존존데(Ozonesonde)를 이용한 관측이다. 오존존데는 관측용 풍선을 이용하여 온/습도 및 바람 관측을 수행하는 라디오존데(Radiosonde)와 오존 측정 센서를 결합하여 오존의 연직 관측을 가능하게 하는 기구로서 높은 정확도와 해상도로 오존 연직 분포를 산출하기 때문에, 해당 관측 결과는 대기 중 오존의 시공간적특성을 연구하는데 중요하게 활용될 뿐만 아니라 위성 및 모델 자료를 산출하고 검증하는 기반 자료로 활용된다. 이러한 중요성에 의해 WMO/GAW Global Ozone Monitoring Network, SHADOZ (Southern Hemisphere Additional OZonesondes; Thompson et al., 2017)와 같은 전지구적 오존존데 관측 네트워크를 유지 운영하려는 노력이 진행되고 있다(GCOS AOPC-XIII, 2007; Thompson et al., 2021). 이 밖에도 상시 관측이 쉽지 않은 지역 또는 특정 현상의 이해를 위한 캠페인을

통해 정해진 기간 동안 오존존데 관측을 집중적으로 수행 후 오존의 연직 분포 정보를 얻기도 한다(e.g., Newman et al., 2002; Boxe et al., 2010; Tarasick et al., 2019). 성층권 오존홀 문제가 가장 심각한 남극에서는 혹한의 환경에도 불구하고 1980년대부터 지속적인 오존존데 관측을 수행(Hofmann et al., 2009)해왔을 정도로 오존존데 관측은 대기 중 오존 모니터링에 큰 가치를 가진다.

이런 중요성에도 불구하고 국내에서 오존존데 관측은 크게 활성화되지 못한 상황이다. 현재 한국에서 상시로 오존존데 관측을 수행하는 곳은 포항 기상대 한 곳이 존재하며 1990년대부터 현재까지 약 주1회의 간격으로 지난 30년 간 관측을 수행해 왔으며, 과학적 가치가 높은 오존 연직 분포 자료가 약 30년 간 축적되어 있다. 포항 오존존데 자료를 통해 한반도 상공의 성층권(Kim et al., 2000; Shin et al., 2020) 및 대류권 오존(Kim et al., 2001; 2003) 연직 구조가 분석되었으며, 한반도 상공 대류권계면 부근에서 발생하는 오존의 성층권-대류권 교환 작용에 대한 연구도 수행되어 왔다(e.g., Hwang et al., 2007; Park et al., 2012). 최근에는 포항 오존존데 자료가 재분석 자료의 검증을 위한 기준값(Park et al., 2019; Park et al., 2020) 및 위성 오존 연직 분포 산출을 위한 초기값으로 이용되면서(Bak et al., 2019) 그 가치가 더 높아지고 있다. 이에 국내에서 다양한 지역에서 추가적인 오존존데 관측 필요성이 높아지고 있는 상황이나 2016년 한-미 대기질 공동 관측(KOREA-US air quality, 이하 KORUS-AQ) 캠페인 시기 미국 NASA 연구팀에 의해 두 달 간 이루어진 집중 관측(Crawford et al., 2021) 이후로는 특별한 관측 활동이 이어지지 못한 실정이다.

본 연구 논문은 2021년 가을 용인 지역에서 수행된 10회의 오존존데 관측 결과를 정리한 내용을 담고 있으며, 향후 지속적인 오존존데 관측의 기반을 마련하기 위한 기술 노트의 성격을 가진다. 대학 또는 연구기관에 소속된 소그룹의 연구팀이 오존존데 관측을 준비하고 진행해 온 내용을 기록하여 향후 여러 지역에서 잠재적으로 수행될 수 있는 오존존데 관측 연구에 기초 정보를 제공하고자 한다. 동시에 2021년 가을 관측 결과를 통해 용인 지역 오존의 연직 분포 특성에 대한, 아직까지 크게 분석되지 못한 부분의 분석 결과도 공유하고자 한다. 2장에서는 오존존데 관측을 준비하는 과정에 대해 상세하게 서술하였으며 3장에서는 관측 지점 및 관측 상황에 대한 정보를, 4장에서는 관측 결과에 대한 간단한 자료 분석을 제시하였다. 본 연구의 요약 및 결론은 5장에 정리하였다.

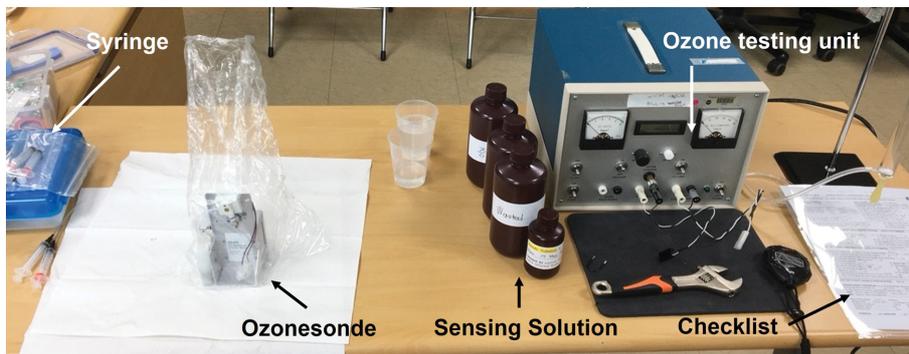


Fig. 1. An example setting showing the initial preparation of ozonesonde.

2. 방 법

본 연구에서 수행한 오존존데 관측의 준비 과정들이 장에서 제시하고자 한다. 이 내용들은 관측을 일관성 있게 진행하기 위해 적용되어야 할 절차로서 핵심적인 과정은 WMO (World Meteorological Organization)의 ASOPOS (Assessment of Standard Operating Procedures for OzoneSonde, GAW Report #201; Smit et al., 2014)에서 제안되는 내용들을 토대로 본 연구 환경에 맞게 적용되었으며, 실제 준비 및 관측에서 발생했던 불확실한 부분은 NASA (National Aeronautics and Space Administration) SHADOZ 오존존데 연구팀과의 협업을 통하여 확인하면서 전체 관측 준비 과정을 구축하였다.

오존존데는 오존을 관측하는 방식에 따라 ECC (Electrochemical Concentration Cell; Komhyr, 1969), BM (Brewer-Mast; Brewer and Milford, 1960), KC96 (Kobayashi and Toyama, 1966)으로 나눌 수 있으며, WMO/GAW 오존 관측 네트워크를 구성하는 관측소에서 가장 많이 사용되는 ECC 오존존데를 사용하였다. 또한 ECC 오존존데는 사용되는 시약에 따라 오존의 검출 결과가 달라지므로, 제조사에 맞는 용액을 사용하여야 한다(Smit et al., 2007). ASOPOS에서는 Science Pump Corporation사의 SPC-6A 오존존데에는 1.0% KI Full buffer 용액을, ENSCI사의 Model 2Z 오존존데는 0.5% KI Half buffer 용액을 사용하도록 권고하고 있다. 본 실험에서는 ENSCI사의 Model 2Z 오존존데를 사용하였으며, NASA 오존존데 연구팀에서 사용하는 0.5% KI Half buffer 제조 방법을 따라 준비된 용액을 사용하였다(EN-SCI Corporation, 1996).

기본적으로 연구를 위해 비양하는 오존존데는 비양 전 사전 준비 절차를 3단계에 걸쳐 수행하게 되는데, 매번 비양할 때 반복하는 절차를 최대한 동일한 조건에서 같은 방식으로 수행하는 것이 양질의 자료를 확

보하는데 중요한 요소이다. 우선 비양일로부터 최소 10-14일 전에 초기화 준비 과정(initial preparation)을 진행하고, 3-7일 전에 중간 준비 과정(mid preparation)을 수행한 다음 비양 당일 최종 준비 과정(final preparation)을 거치면서 마무리된다. 다만 기상 조건 및 연구 환경 따라 관측 수행 일정이 급작스럽게 정해지는 경우에는 2주 정도의 준비 시간이 확보되지 않는 경우가 생길 수 있다. 중간 준비 과정의 경우 최종 준비 과정의 초반부와 동일하여, 최종 준비 과정의 일부로 생각할 수 있기에 이런 긴급한 경우에는 불가피하게 중간 과정을 생략하고 초기화 이후 바로 최종 준비과정을 진행하게 되지만 매 관측에 활용되는 오존센서의 특성을 파악하고 반응성을 높이기 위해서는 최대한 전체 3단계의 준비과정을 이행하는 것을 권장한다. 모든 과정에서 나온 값들은 작업기록지(checklist)에 기록하게 되며 이 내용 역시 향후 관측이 마무리된 이후 오존 관측값을 검증, 해석하는 과정에서 중요한 참고자료로 활용된다.

오존존데 준비과정에는 다양한 농도의 오존발생 및 μA 이하의 단위로 오존센서 전류를 측정할 수 있는 장비를 구축하여야 한다. 해당 장비를 활용하여 각 절차별로 대략 1-2시간가량의 준비과정이 요구되는데 본 연구에서는 평균적으로 초기화 과정에서 ~2시간, 중간 준비 과정에서 ~1시간, 최종 준비 과정에서 ~1.5시간 정도 소요됨을 확인하였다. 모든 과정은 오존 시약 교체 후 센서의 반응속도를 측정하는 부분을 공통적으로 포함한다. 지금까지 언급한 오존존데 준비 과정을 수행하기 위한 실험 장비 및 준비 상황 예시는 Fig. 1과 같이 요약된다.

2.1 비양 사전 작업

우선적으로 오존존데 관측 자료를 전달받기 위한 지상 수신 장치를 설치해야 한다. 지상 수신 장치는 크게 내부에 설치하여 수신된 오존존데 신호를 물리

적인 값으로 변환해주는 수신부(receiver)와 외부에 설치하여 오존존데로부터 발송되는 신호를 증폭해주는 안테나(antenna) 장비로 구분할 수 있다. 안테나의 종류는 크게 지향성 안테나(e.g., Yagi antenna)와 무지향성(e.g., helical antenna)로 나뉘며 무지향성 안테나의 경우 존데의 이동방향을 신경 쓰지 않아도 되는 편리함이 있으나 수신율의 측면에서는 지향성 안테나의 성능이 더 우수하다. 관측 여건이 좋을 경우 두 가지 안테나를 동시에 운영하는 것이 가장 좋으나 전파 통신 여건이 좋지 않은 상황에서는 지향성 안테나를 활용하는 것이 자료의 손실을 줄일 수 있는 방안이다. 본 연구에서는 두 장비를 모두 운영하여 관측자료를 최대한 확보하는데 주력하였다.

지상 장비에 의해서 수신된 오존존데의 신호는 NOAA/GML (National Oceanic and Atmospheric Administration/Global Monitoring Laboratory)에서 고층관측자료 송수신을 지원하기 위해 개발한 Skysonde server 및 Skysonde client 소프트웨어에 의해서 저장되어 물리적인 값으로 변환되므로 이 두 프로그램을 미리 컴퓨터에 설치하여 성능 확인을 해두어야 한다. 일차적으로 Skysonde server 상에서 송수신에 필요한 주파수 대역을(일반적으로 401-405 MHz 대역의 주파수를 활용) 오존존데의 자료 송신에 활용되는 라디오존데 설정에 맞추어 압력, 온도, 습도와 GPS에 의한 위치신호, 그리고 오존존데 관측값의 신호를 전달받는다. 이렇게 Skysonde server에 의해 처리된 신호는 Skysonde client에 입력되어 물리적인 값으로 변환된 후 초기 관측값으로 제공된다. 또한 Skysonde client는 오존존데 관측 중 자료표출, 실시간 위치 및 추정되는 낙하지점 등 자세한 실시간 정보를 제공하므로 관측 상황을 점검하는데 유용하다.

2.2 초기화 준비 과정

오존존데 센서는 화학적 농도 측정 방법을 활용하므로 초기화가 필요하며 초기화 준비 과정은 비양 2주 전에 다음 단계들을 순차적으로 진행하는 방식으로 이루어진다(Smit et al., 2014).

- (1) 오존존데 테스트 장비의 'No ozone' 포트에 오존존데의 흡기구(inlet)를 삽입하여 오존이 없는 공기를 10분간 주입한 후 오존존데 펌프의 전류 및 유출/유입 압력을 측정하여 기록.
- (2) 높은 오존 농도의 공기를 'High ozone' 포트를 통해 30분간 주입.
- (3) 다시 오존이 없는 공기를 5분간 주입.
- (4) 오존존데 센서에 주사기를 이용하여 환원극 용액 3 ml를 먼저 주입하고 2-5분 후 산화극 용액 1.5 ml 주입. 주사기는 환원극, 산화극을 구분하여 사용하며 사용 후 증류수에 세척하여 보관.

환원극, 산화극 용액은 NASA 오존존데 연구팀에서 사용하는 0.5% KI Half buffer 제조 방법을 따라 준비함(EN-SCI Corporation, 1996).

- (5) 이후 오존이 없는 공기를 30분간 추가 주입.
- (6) 오존이 없는 공기 30분 주입 후의 오존 센서 전류를 측정하여 기록.
- (7) UV 램프의 강도 조절을 통해 중간 오존 농도의 공기를 주입하여 오존센서의 전류량을 $5 \mu\text{A}$ 수준으로 맞춘 후 10분간 평형 유지.
- (8) UV 램프를 끄고 다시 오존이 없는 공기를 주입하기 시작하여 $4 \mu\text{A}$ 에서 $1.5 \mu\text{A}$ 로 오존센서의 전류량이 감소하는 반응시간을 측정.
- (9) 오존이 없는 공기를 10분간 주입 후 오존센서의 전류량을 측정.
- (10) 오존센서 단자를 단락 후 오존센서를 저장.

참고로 오존존데의 초기화를 위해서는 원하는 만큼의 오존을 생성하고 오존존데의 미세전류를 측정할 수 있는 오존존데 전용 테스트 장비(Ozone Testing Unit)가 필요하다(Fig. 1 참조).

2.3 중간 준비 과정

중간 준비 과정은 비양 4-7일 전에 수행하며 다음과 같은 6단계로 구성된다. 이 과정은 비양 전 최종 준비 과정에서도 반복되는 절차이고 기상 조건 등에 의해 오존존데 비양이 1주 이상 연기될 경우 다시 반복해야 한다. 참고로 필수 절차는 아니고 현업을 위한 관측에서는 생략되는 경우가 많으나, 비양 전에 개별 오존센서의 특성을 이해하고 관측자료의 신뢰도를 높이는 데 도움이 되는 과정이다.

- (1) 초기화 준비과정에서 사용되었던 오존센서 용액의 교체.
- (2) 오존이 없는 공기를 10분 주입 후 오존센서의 전류 측정.
- (3) 중간 오존 농도의 공기 주입을 통해 오존센서의 전류량을 $5 \mu\text{A}$ 수준으로 맞춘 후 10분간 평형 유지.
- (4) 오존이 없는 공기를 주입하기 시작하여 $4 \mu\text{A}$ 에서 $1.5 \mu\text{A}$ 로 오존센서의 전류량이 감소하는 반응시간 측정.
- (5) 오존이 없는 공기 10분간 주입 후 전류 측정.
- (6) 오존센서 단자를 단락시킨 후 보관.

2.4 비양 전 최종 준비 과정

비양 전의 최종 준비과정은 중간 준비 과정과 유사하게 용액의 교체 후 오존센서의 반응속도 테스트를 그대로 진행한 후에 추가적으로 발견되는 정보들을 기록해 둔다. 최종과정에서 기록되는 배경전류(IB)는 오존존데 센서에 오존이 없다고 가정하고 측정된 전

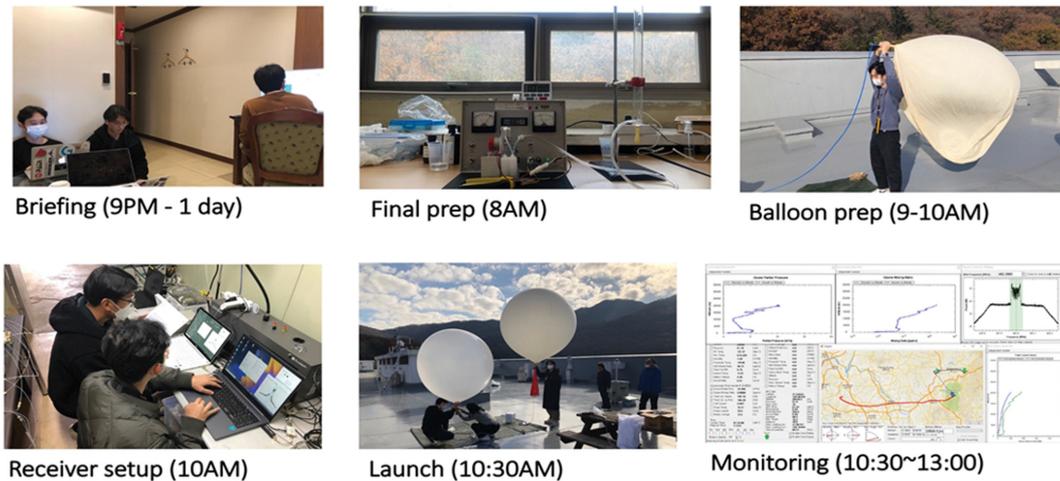


Fig. 2. Procedure of the ozonesonde launch on the day of measurement.

류를 의미하며, 오존이 낮은 대기경계층이나 대류권 상부의 불확실성에 크게 기여하는 변수 중 하나로 알려져 있다(Tarasick et al., 2021). 최종 준비 과정을 진행하면서 배경전류를 여러 번 측정하며 오존을 주입하기 전에 측정된 전류값을 IB0, 오존센서 반응속도 측정 후에 10분간 오존이 없는 공기를 주입하여 측정된 전류값을 IB1로 명명한다. 일반적으로 0.1 μA 는 지상에서 3-4 ppbv의 오존 혼합비에 해당하는 신호이다. 이후 관측 시 외부 공기를 빨아들이는 오존존데 펌프의 유량을 정확히 측정해야 하는데 이를 위해 준비 과정들이 이루어진 실험실의 온도, 습도, 기압을 측정하고 오존존데의 펌프가 100 ml의 공기를 흡입하는데 소요되는 시간(sec/100 ml)을 5차례 반복 측정한다. 일반적으로 연구에 활용된 EN-SCI사 2Z 오존존데의 유량값은 평균 27-32초의 범위를 가지는데 해당 유량값은 오존 농도 계산에 직접적인 영향을 미치는 중요한 값이므로 5개의 측정값을 평균하여 오존 농도 값 결과 산출에 활용한다. 모든 과정이 끝나고 마지막으로 사용될 배경전류(IB2)를 측정하여 Skysonde client의 입력값으로 활용한다. 이때 입력하는 IB2는 전체 프로파일에서 측정되는 전류값을 상쇄하는 상수값이며, 오존농도에 직접적으로 영향을 미치는 변수이다. 오존존데 센서의 배경전류는 IB1, IB2 모두 0.05 μA 이하의 값을 추천하나, 실제 실험해보면 그보다 조금 높은 경우도 발생한다. 특히 오존 농도가 높게 나타나는 지역에서 오존존데를 준비하는 경우 배경전류가 높게 나타나곤 하는데, 이럴 때는 오존이 없는 공기를 오존센서에 10-30분가량 추가로 주입하여 최대한 낮은 IB2 값을 측정하고 최종 준비 과정을 마무리한다.

2.5 비양 당일 작업

비양 당일에는 날씨 브리핑, 오존존데 최종 준비, 비양 도구 준비, 메타 자료 입력, 비양 후 모니터링과 같은 일련의 작업을 수행한다(Fig. 2 참조). 오존센서 최종 준비 과정이 완료되면 오존센서를 라디오존데와 연결한 뒤 안전한 스티로폼 용기에 포장하는 단계를 거치고, 풍선에 헬륨 기체를 주입한 후에 낙하산, 열레 등 비양 과정에서 요구되는 소모품을 연결하면서 동시에 Skysonde server에 관측 지역 주요 기상/환경 인자의 입력 및 라디오존데 통신 주파수를 조정하는 작업을 완료한다. 이 모든 작업이 문제없이 끝나면 오존존데를 띄우게 되며 이후 2-3시간 동안 비양 과정을 Skysonde server(수신율) 및 client(자료)를 통해 모니터링하면서 관측 시 돌발상황 여부를 대비하는 과정으로 전체 과정이 수행된다.

정상적인 관측값의 산출을 위해서는, 비양 전 최종 준비과정에서 기록된 배경전류(IB2), 오존센서 펌프 유속, 실험실 온도, 습도 등 오존량을 산정하는데 활용되는 값을 오존존데 관측 전체 과정을 제어하는 Skysonde client 소프트웨어에 정확히 입력하여야 한다. 이 값은 향후 수정이 가능하나, 정상적인 모니터링을 위해서는 정확한 값을 미리 기입하는 것을 추천한다. 또한 관측 자료의 특성 및 신뢰성을 확보하기 위하여 오존존데 작업 기록지(checklist)에 관측 당일에 사용된 비교 관측 장비의 지상값을 함께 기록해두면 도움이 된다. 이밖에 기록이 필요한 요소들은 라디오존데, 비양용 풍선 종류, 관측시간, 지상 날씨(온도, 습도, 풍향, 풍속) 등의 정보인데 이는 라디오존데 비양과 동일하며 오존존데의 측정값에는 영향을 미치지 않는다. 지상날씨의 기록을 위해서는 Automatic

Weather System (AWS)과 같은 장비의 측정값을 추천 하지만 불가피한 경우 휴대용 기상측정장비(e.g., Kestrel Weather Meter 3500)를 대신 활용할 수 있다.

2.6 관측 시 주의 사항

앞서 언급한 오존존데 최종 준비 과정을 거치고 나면 오존존데는 바로 관측할 수 있는 상태가 되는데, 최대한 준비 직후 비양이 이루어지는 것이 좋으나 기상 및 공동 관측 등으로 일정 조정이 필요하다면 일반적으로 24시간 이내의 관측은 추가적인 과정 없이 이루어져도 괜찮은 것으로 알려져 있다(GAW Report #201). 오존존데 센서의 준비 과정에서 제시된 일정은 어느 정도는 유연성 있게 조절해도 좋으나, 사전 준비 과정에 걸리는 시간이 다른 관측 장비에 비해 상대적으로 길기 때문에 심하게 지연되거나 급하게 진행되는 되는 일을 막기 위해서 사전에 충분한 계획을 세우고 준비하는 것이 요구된다.

성층권 중층(~30 km)까지의 관측을 위해 일반적으로 대용량의 풍선(풍선 중량 ~1.2 kg)을 사용하고 헬륨을 주입하는 과정에서 풍선의 직경이 약 1.5-1.8 m 까지 팽창하므로, 바람이 심하게 부는 날은 헬륨 주입을 실내 또는 사방이 막힌 공간에서 진행하는 것이 좋으며 부득이하게 야외에서 준비하는 경우는 비양 직전(약 2-3분 전)에 헬륨을 주입을 완료하여 안정된 관측을 도모할 필요가 있다. 비양 후 정상적인 상승 속도를 가정하면 오존존데는 10분에 약 3 km를 상승하여 100분 정도 지나면 30 km 상층에서 풍선이 터지면서 상승이 중단된다. 오존존데는 3시간 이상 관측이 가능하기 때문에 비양 종료 후 하강하면서 추가 관측자료를 수집하는데 성층권에서의 빠른 하강으로

인해 오존존데의 물리적 반응속도가 하강속도를 따라 가지 못하므로 정량적인 분석에는 잘 활용되지 않는다. 그러나 상승과정에서 오존의 STE와 같은 특이 현상이 관측되었을 때 이 현상이 하강 관측 시에도 다시 나타나는지와 같은 정성적인 판단에는 유용한 정보로 활용될 수 있으므로 함께 저장해두면 좋다.

3. 관측 정보

본 연구에서 다루는 오존존데 관측은 2020년부터 천리안 2B 위성에 탑재되어 세계최초로 정지궤도 상에서 대기환경 감시 업무를 수행 중인 GEMS (Geostationary Environment Monitoring Spectrometer) 위성 센서 관측 자료 중 오존 관측 자료의 검증 을 위해 계획되었다. 이에 2021년 가을 국내외 다수 연구진들이 참여한 GEMS 위성 자료 검증 캠페인 GMAP (GEMS Map of Air Pollution) 2021 기간에 한국외국어대학교 용인 글로벌 캠퍼스 자연과학대학(위도: 37.34°N, 경도: 127.26°E)에서 실험을 수행하였다. 수도권 지역 항공 보안 문제와 관련하여 인근 공군기지(성남 공항)와의 논의를 통해 주말(토, 일요일)에만 오존존데 관측을 수행하는 것으로 협의하였으며 오존 연직 분포의 하루 중 변동성을 살펴보고자 오전과 오후로 나누어 일 2회의 비양을 수행하였다. 다만 GMAP 2021 캠페인은 위성자료 비교를 주요 목적으로 하므로 구름과 강수가 있어 위성자료가 산출되지 않는 날은 관측을 수행하지 않았다. 이와 같은 조건에 따라 2021년 10월 23일(토), 10월 24일(일), 11월 6일(토), 11월 13일(토), 11월 14일(일)에 걸쳐 오전/오후 총 10회의 오존존데 관측이 수행되었다. 오존존데를 비양



Fig. 3. An example showing the horizontal movement of ozonesonde during measurement.

하기 직전에는 한국의국어대학교에 설치된 지상 오존 관측 장비(Thermo Ozone Analyzer Model 49C)의 측정값과 비교를 통해 지표에서 오존값이 5% 범위에서 유사하게 측정됨을 최종 확인하였다.

오존존데 관측지점에 브루어 또는 돕슨 분광계를 통한 오존전량이나, 지상 오존 관측망이 있으면 오존존데 관측값을 비교, 검증하는데 있어 매우 중요한 참고 자료로 활용할 수 있기 때문에 최초 오존존데 비양 장소를 결정할 때 이러한 관측소의 위치도 함께 고려할 필요가 있다.

존데를 이용하여 대기의 연직 분포를 관측할 때 세계기상기구(World Meteorological Organization, WMO)가 제시하는 $5-7 \text{ m s}^{-1}$ 수준의 연직속도(WMO, 2008)를 확보하기 위해 본 연구에서는 1.2 kg 중량의 라텍스 고무풍선에 47 L 저장용기 기준으로 약 85 bar의 헬륨을 주입하여 비양을 실시하였고, 약 30 km 고도까지 5 m s^{-1} 수준의 속도를 유지하며 1초 간격의 오

존 관측이 성공적으로 진행됨을 확인하였다. 다만 풍속이 강한 경우는 연직속도의 변동이 크며, 추가로 수평 경로도 크게 영향을 받으므로, 비양 하루 전 날씨 브리핑과 모델 자료에 기반하여 비양 당일의 날씨와 존데 경로를 파악하고, 비양 후에도 이동경로 정보를 자세히 확인하였다(e.g., Fig. 3).

4. 결과 및 분석

4.1 대류권 오존 연직 분포 특성

오존존데로 관측한 오존값을 관측 후 검보정 소프트웨어인 Skysonde processor를 이용하여 압력보정(pressure adjustments)과 오존존데 펌프 온도보정(Ozonesonde pump temperature correction)을 진행한 뒤 오존 연직구조를 살펴보았다. 본 연구에서는 오존 연직 분포에 미치는 대기 역학 및 화학적 과정의 차이를 감안하여 대류권과 성층권의 분석을 나누어서

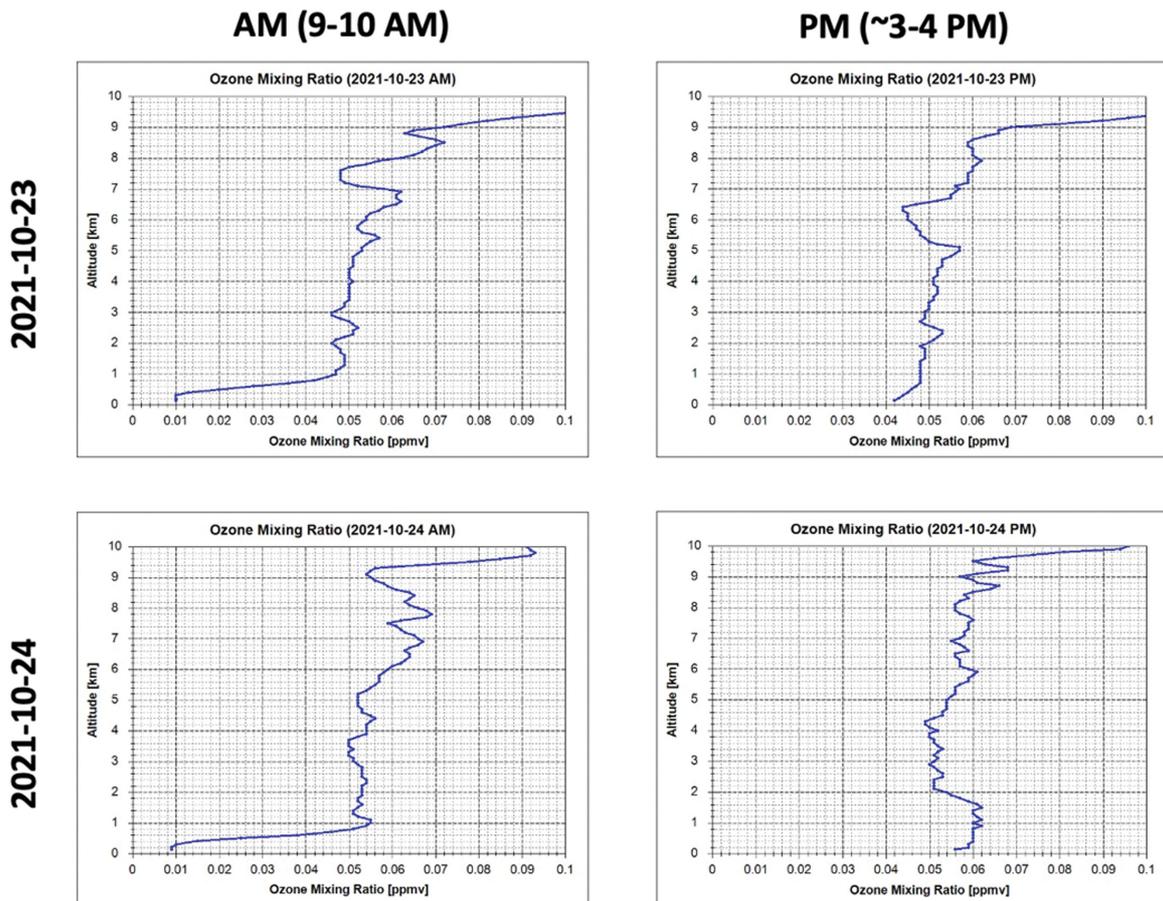


Fig. 4. Tropospheric ozone vertical profile at Yongin in the morning (left) and afternoon (right) for 23 (top) and 24 (bottom) October, 2021.

진행하였다. 우선 대류권 오존의 연직 분포를 살펴보면, 10월 23일, 24일 오존 관측 결과는 대류권 대부분의 고도에서 약 50-60 ppbv로 높은 수준의 오존 농

도를 나타내고 있어서 기존에 포항에서 오존준데로 측정된 한반도 대류권 오존량과(Park et al., 2019; Park et al., 2020) 유사함을 재확인하였다. 대류권 중층에

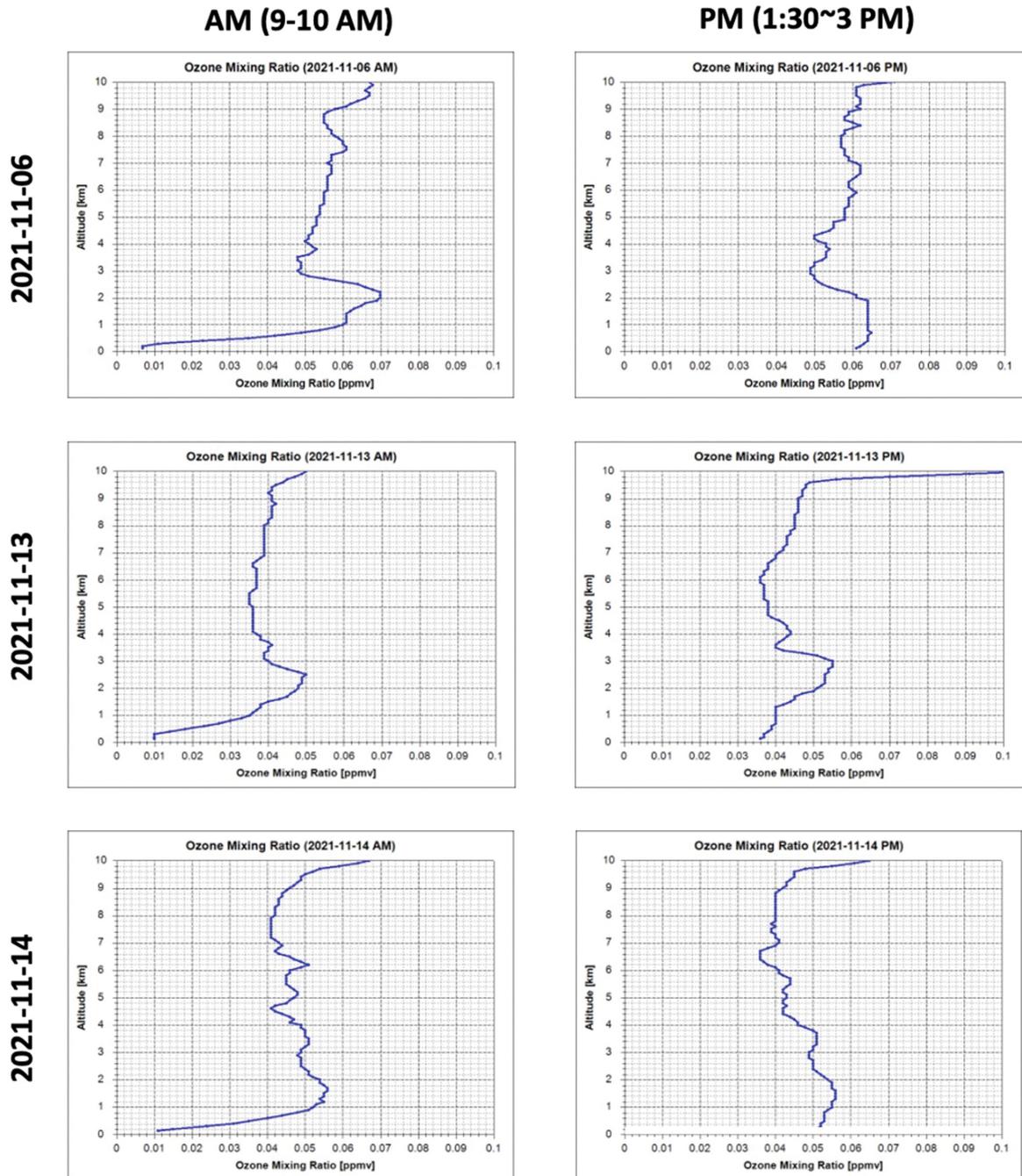


Fig. 5. Tropospheric ozone vertical profile at Yongin in the morning (left) and afternoon (right) for 6 (top), 13 (middle) and 14 (bottom) November, 2021.

서는 일반적으로 오존의 화학적 생성이 지표에 비해 크게 나타나지 않음에도 불구하고 오존 관측값이 지표와 유사한 50 ppbv 수준을 유지하고 있는데(Fig. 4) 대기경계층을 넘은 중층 대류권에서도 오존량이 지표면과 유사하게 발견되는 특징은 2016년 KORUS-AQ 캠페인에서도 발견된 특징으로서(Crawford et al., 2021) 한반도 및 동아시아 지역 배경대기 오존량 매우 높은 점을 잘 보여주고 있다.

추가로 본 연구에서는 대기경계층에서의 오존 연직 분포가 오전과 오후에 매우 큰 차이를 보이는 흥미로운 부분을 발견할 수 있었다. 관측이 이루어진 10-11 월 기간 동안 오전의 지상 오존값은 약 10 ppbv 수준으로 매우 낮은 값을 나타내며 0-1 km 두께의 대류권 하층에서는 고도에 따라 빠르게 오존이 증가, 1 km 이상의 고도에서는 다소 완만한 형태로 오존이 증가하는 연직 구조를 보였다. 반면 오후에는 지표면 근처의 오존이 40-50 ppbv 범위로 충분히 높고 나타나고 있으며 대기경계층 및 자유 대류권에서 연직 방향으로 유사한 수준의 오존량이 나타나는 것이 확인되

었다. 이렇게 뚜렷한 일변동성은 약 1 km 미만의 하층대기에서만 나타나는데, 기본적으로 대기의 연직 안정도 및 대기 광화학 과정과 관련이 있는 것으로 보인다. 태양 복사에 의한 지표 가열이 없는 밤의 지표 대기는 냉각되어 매우 안정한 상태를 가지며 화학적으로는 오존 적정(ozone titration) 현상에 의해 오존량이 급감하게 된다. 이 현상이 일출과 함께 약해질 수 있는데 관측이 이루어진 한국외국어대학교의 경우 인근이 산으로 둘러싸여 낮은 오존량 및 냉각된 대기 상태가 일출 후에도 어느 정도 지속되는 것으로 예상된다. 하지만 오후에는 지표면 근처의 오존 생성과 대기경계층의 연직 혼합이 활발해져 지상의 오존량이 대류권 하부와 유사한 수준으로 증가하는 것으로 보인다. 관측에서 나타난 대기경계층과 대류권 중층 자유 대기의 뚜렷한 오존 일변동 차이는 두 층의 오존 농도가 서로 다른 메커니즘에 의해 결정됨을 암시한다. 특히 대류권 중상부에서의 오존 생성 유입, 또는 원격지에서의 유입되는 과정에 대한 이해가 부족하며, 추가 연구를 통해 이 지역 배경 오존 농도가 높게 나

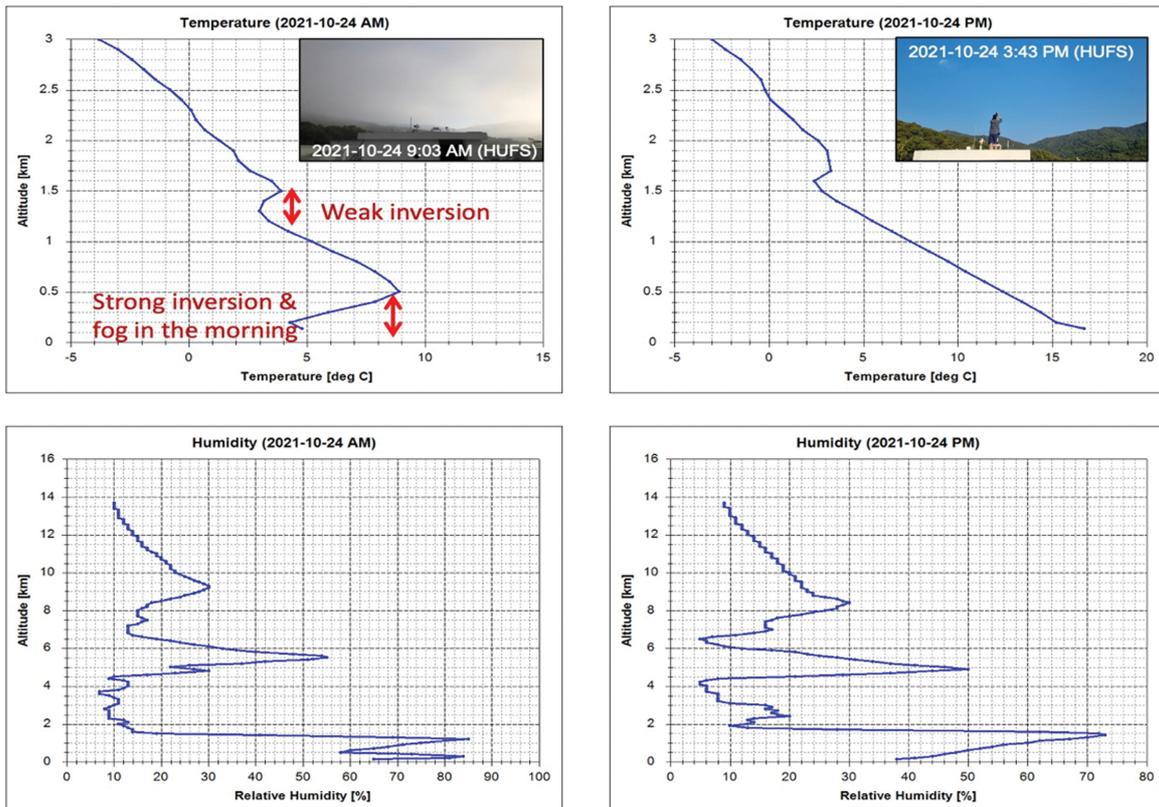


Fig. 6. Examples of vertical profiles in 24 October 2021 at Yongin: Tropospheric air temperature (top) and relative humidity (bottom) in the morning (left) and afternoon (right).

타나는 원인에 대해 살펴볼 필요가 있다. 대기 경계층에서 나타나는 이러한 오전, 오후의 오존 연직 구조 차이는 11월에 관측한 다른 모든 사례에서도(11월 6, 13, 14일) 동일하게 발견되었다(Fig. 5).

2021년 10, 11월에 관측한 5일간의 자료를 살펴보면 대기경계층 위 자유 대기의 오존 농도는 40-60 ppbv 수준의 값을 일관적으로 나타내고 있는데, 이 수치는 2016년 5-6월에 수행된 KORUS-AQ 시기 용인 인근 태화산 지역의 오존존데 관측 결과와(Sullivan et al., 2019) 비교해보면 약 20-30 ppbv 정도 낮은 값이며 SHADOZ 연구팀이 중위도 오존존데 관측 자료의 평균적인 특성을 분석한 결과(Stauffer et al., 2018) 및 다른 아시아 지역 오존존데 관측 결과와(Park et al., 2020) 유사한 수치를 나타내는 것을 알 수 있다. 즉, 여름철과는 달리 용인지역 가을의 대기경계층 상부 오존량은 다른 지역에 비해 심각하게 높다고 이야기할 정도는 아니다. 다만 광화학 현상이 약한 가을임에도 지표 근처 대기경계층 내에서 60 ppbv 이상의 높은 오존 농도가 일부 나타나고 있는데(10월 24일, 11월 6일), 이것은 용인 지역에서 국지적인 오존 생성이 존재함을 의미한다. 이러한 대기경계층 특성이 상부의 오존 농도까지 지배하지 않는 것은 용인 지역 여름철 2 km 고도 이상의 고농도 오존은 용인 지역 이외의 다른 지역의 기여에 의한 것으로 생각할 수 있음을 암시한다. 이는 용인 지역이 서울의 풍하 측에 위치하여 대기오염 물질의 수송 영향을 직접적으로 받는다는 선행연구와도 일관된다(Chong et al., 2018; Choi et al., 2021).

대기 물리적인 측면에서도 오전, 오후 지표면 오존량 차이의 이유를 찾아볼 수 있다. 존데 관측에서 얻어지는 기온의 연직 분포 자료를 살펴보면 오전에 대류권 하층에서 역전층이 다수 나타남이 확인되는데, 특히 10월 24일 사례를 통해서 오전 오후의 차이가 잘 설명된다(Fig. 6). 이러한 역전층은 밤과 새벽에 발생하는 복사냉각에 의해서 지표면 근처 대기의 온도가 감소하면서 나타나는데 낮시간에 비해 지표면 기온을 10도 이상 낮추는 효과가 있다. 이러한 지표면 냉각에 의해 역전층이 발생하고 대기 경계층의 연직 안정도가 매우 높아지면서 대기화학 물질들의 연직 혼합이 제한된다. 이러한 과정은 외부에서 오존 및 오존 발생을 유발하는 전구 물질의 유입을 제한할 수 있다. 지표면 역전층의 발생은 복사냉각에 의한 안개(복사안개)의 발생으로도 추정할 수 있는데, 실제 본 연구에서 상대습도의 연직 분포를 분석해보면 많은 오전 사례에서 하층의 상대습도 증가에 따른(Fig. 6) 복사안개 발생이 잘 설명된다. 오후에는 태양 복사가 강해지면서 대기하층의 온도가 상승하고 상대습도의 감소에 의한 안개의 소산이 잘 나타나며(Fig. 6) 이에

따라 오존의 연직 차이도 약화됨이 확인된다(Fig. 4). 특히 오후에는 100 m 고도 상승에 따라 기온이 약 1°C씩 감소하는 건조단열감률 특성이 아주 잘 나타나고 있어 연직 방향 대기 혼합이 활발했음을 유추할 수 있다. 향후 여기에 대기복사량(특히 자외선) 분석까지 더해진다면 좀 더 면밀한 분석이 가능해질 것으로 생각된다.

4.2 성층권 오존 연직 분포 특성

앞서 대류권 오존 연직 분포 특성 분석에 더하여 성층권 오존 연직 분포의 특성도 함께 살펴보았다. 본 연구에서 최대 30-33 km 고도까지 오존존데 관측이 이루어지는 것을 확인하였고 대류권계면에 해당하는 약 10 km 정도 고도에서 25 km 까지 급격하게 오존이 증가하다가 25 km 이상 고도에서부터 변화량이 다소 줄어들면서 오존의 최대치를 보이는 양상을 통해 한 반도 상공 성층권 오존층의 형태가 잘 관측됨을 파악하였다. 성층권 오존존데 관측 결과는 위성 자료의 검증을 위해 많이 활용되고 있으므로(e.g., Thompson et al., 2017) 본 연구에서도 Aura 위성의 MLS (Microwave Limb Sounding; Livesey et al., 2015) 관측자료와의 비교를 수행해 보았다(Fig. 7). 전체적으로 성층권에서 MLS 위성 오존 연직 분포는 기준이 되는 오존존데 관측 자료와 상당히 높은 유사성을 보이고 있음이 확인된다. 다만 대류권 상부-성층권 하부(Upper Troposphere and Lower Stratosphere, UTLS) 지역에서 STE가 발생하며 오존이 증가하는 현상을 일부 위성 자료가 관측하고 있지 못하는데, UTLS 지역은 일반적으로 대기과동 및 혼합 활동이 강하여 연직 변동성이 강하게 나타나기 때문에(Ryu and Kim, 2020) 약 1 km 수준의 유효 연직 해상도 한계를 가지는 위성 오존 자료는 해당 변동성을 잘 나타내지 못하는 것으로 보인다. 참고로 오존존데가 하강하는 과정에서 측정된 오존 관측값(Fig. 7, 녹색선)이 20 km 이상 고도에서 다른 오존값들과 차이를 많이 보이는데 이는 앞서 언급한대로 빠른 하강시 오존존데의 반응성이 하강속도를 따라오지 못해 발생하는 오차로 볼 수 있다. 일반적으로 오존존데가 대류권으로 재진입하면 하강속도가 약 $5-10 \text{ m s}^{-1}$ 로 감소하므로 정성적으로 의미 있는 정보를 얻을 수 있으나, 해당 지점은 산으로 둘러싸여 있어 하강 시 대류권 자료가 수신되지 않았다.

오존존데 관측을 통해 오존 연직 분포 뿐만 아니라 오존전량(Total column ozone) 값도 계산이 가능하다. 대부분의 오존이 성층권에 존재하고 있기 때문에 오존전량은 여전히 성층권 오존량 변동성을 탐지하는데 기본적인 변수로 활용되고 있으며, 오존존데 관측에서 오존전량을 계산하면 자료의 활용성이 훨씬 더 높

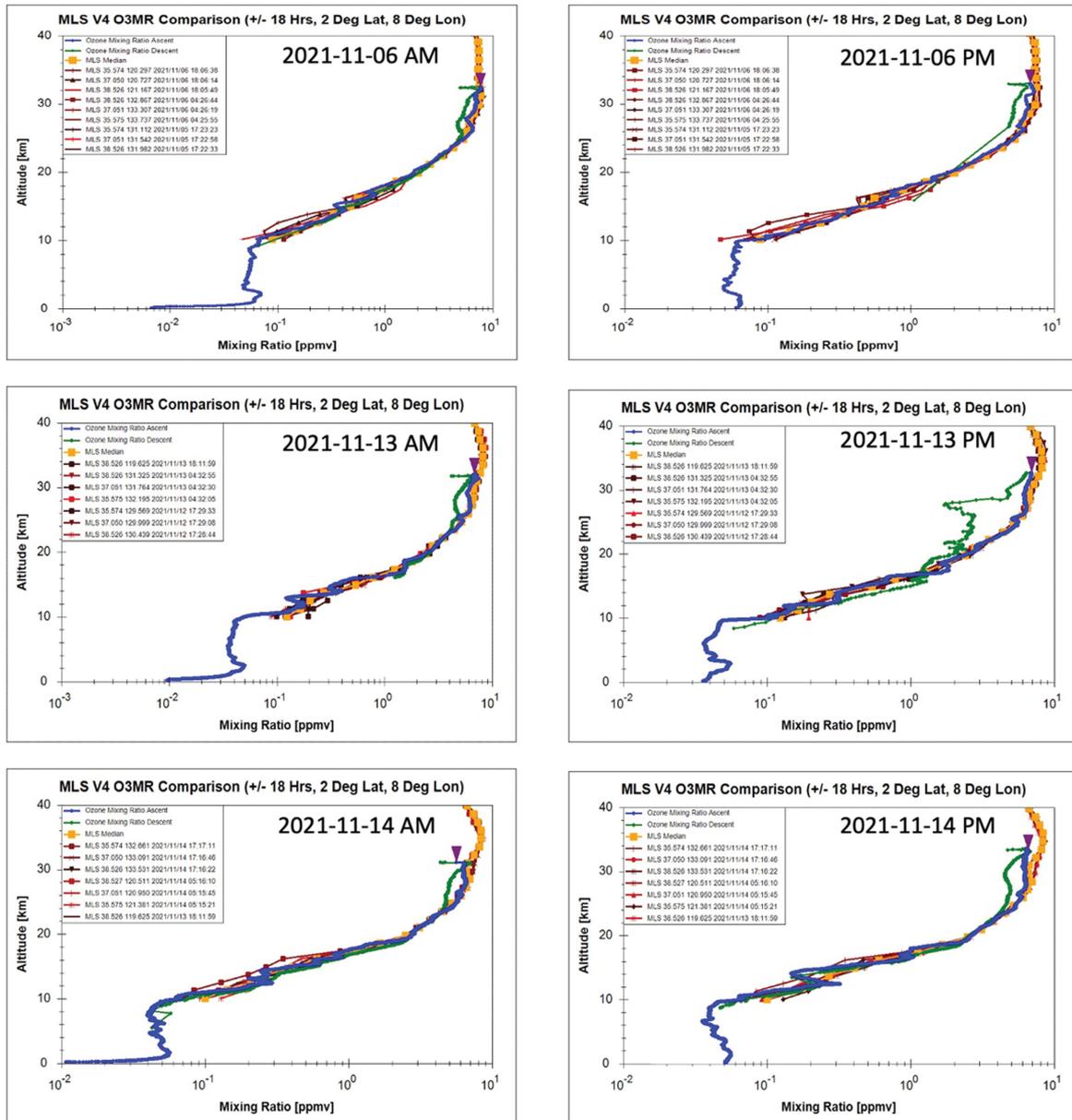


Fig. 7. Ozone vertical profile from the surface to the stratosphere in the morning (left) and afternoon (right) from the ozonesonde and satellite measurements: cases for 6 (top), 13 (middle), and 14 (bottom) November, 2021.

아지게 된다. 오존존데 비양 종말 고도는 약 30-33 km로 오존층의 대부분을 관측하긴 하지만 오존존데가 다다르지 못하는 성층권 상부에 약 15%의 오존이 존재하기 때문에 이 부분을 보완하여 오존전량을 계산한다. 이에 오존존데의 비양 종말 고도(30-33 km) 상부의 오존량은 위성자료를 통해 보정하거나 알려져 있는 기후값을 외삽(extrapolation)해주는 방법으로 보완

할 수 있다. 본 연구에서는 기후값을 외삽하는 방법, 미국 Nimbus 위성에 탑재된 SBUV (Solar Backscatter Ultraviolet Radiometer) 센서의 오존 관측값을 이용해 보정하는 방법, Aura 위성의 MLS 센서 오존 관측값을 이용해 보정하는 방법, 이렇게 3가지 방식을 통해 오존존데의 오존전량값을 최종적으로 계산하였다.

위의 방법으로 계산한 오존존데 관측 기반 오존전량

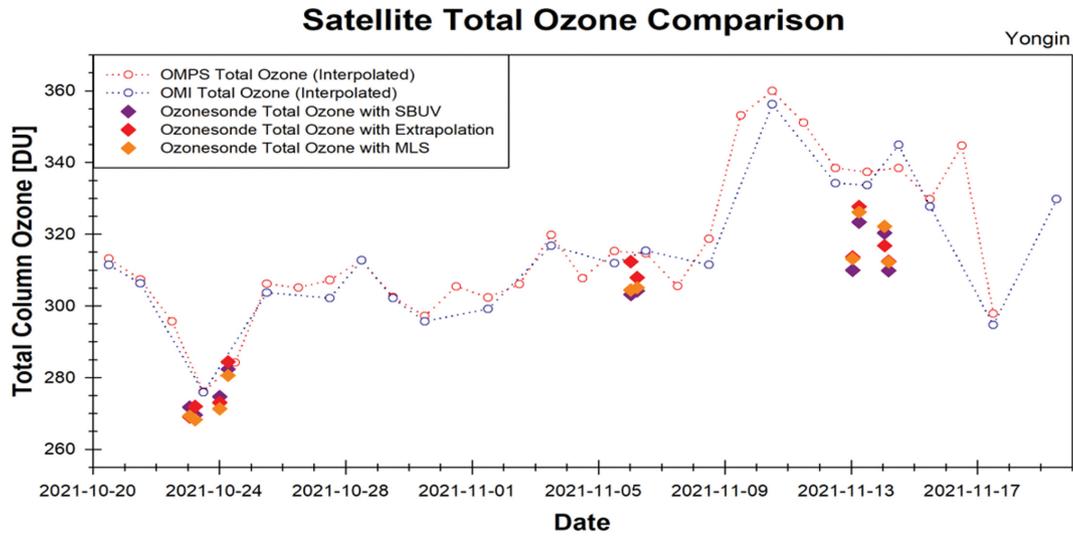


Fig. 8. Time-series of total column ozone values at Yongin during the GMAP 2021 campaign period. Lines are satellites (OMPS and OMI) and dots are ozonesondes.

과 Suomi-NPP 위성에 탑재된 OMPS (Ozone Mapping and Profiler Suite; Flynn et al., 2014) 및 Aura 위성의 OMI (Ozone Monitoring Instrument; Levelt et al., 2006) 센서 관측에서 제공하는 오존전량의 시계열을 비교하였다(Fig. 8). 전반적으로는 오존존데 관측에서 계산해낸 오존 전량이 다소 낮게 나타나는 특징이 보인다. 세부적으로 10월 23-24일과 11월 6일 경우에는 10 DU 이하의 차이를 보였으나 11월 13-14일의 관측 결과는 최대 약 20 DU 수준의 관측 오차를 보였다. 향후 면밀한 추가조사가 요구되지만 오차의 원인에 대해서는 우선 오존존데 관측 자체의 품질을 생각해 볼 수 있다. 11월 13-14일의 경우, 관측 일정이 다소 급하게 정해지는 바람에 오존존데 센서의 초기/중간/최종 준비과정의 일정이 앞선 관측에 비해서는 다소 불균일하게 이루어진 부분이 있었는데(관측 일정 연기로 중간과정을 2번 이상 진행하거나 준비된 장비의 갑작스러운 이상으로 중간과정 없이 관측을 진행) 해당 과정의 불확실성이 오존센서의 민감도 및 자료의 정확도에 영향을 주었을 가능성이 있다. 두 번째로는 북반구의 경우 돕슨-브루어 순환에 의해 오존전량의 월변동성이 나타나는데 보통 9-10월에 최저 수준을 보이다가 11월부터 다시 증가하는 추이를 보인다(Park et al., 2011). 즉 11월부터 성층권 오존량이 증가하면서 오존전량도 커지는데 이에 오존 비양한계 고도 이상에서 오존량의 차이가 10월보다 좀 더 많이 발생할 수 있는 가능성이 존재한다. 향후 추가 관측 자료를 통한 연구를 통해 해당 부분을 개선하고자 한다.

5. 요약 및 결론

본 연구에서는 GMAP 2021 캠페인 기간 동안 수도권권의 풍하 측에 위치한 용인 지역에서 오존존데 관측을 수행하였다. 관측에 사용한 오존존데 장비와 시약은 ECC 타입과 0.5% KI Half Buffer를 사용하였으며, 오존존데 준비과정은 ASOPOS의 내용을 준수하였다. 사전 준비 과정은 초기화 준비 과정, 중간 준비 과정 그리고 최종 준비 과정으로 이루어져 있으며, 관측을 진행하면서 발생했던 불확실한 부분은 SHADOZ 오존존데 팀을 통해 확인 절차를 밟았다. 단계별로 이루어져야 하는 오존존데 준비 과정을 본문에 자세히 작성하였으며, 안테나 신호 송수신 및 검출 용액 제조를 포함한 관측 필수정보들을 추가하였다.

관측 기간 동안 총 10회의 관측을 수행하였으며, 10-11월의 오존 연직 분포를 살펴볼 수 있었다. 가을 입에도 불구하고 대기경계층에서는 꽤 높은 오존량이 측정되는 것을 볼 수 있었으나 대기경계층 상부 자유대기에서는 2016년 5-6월 KORUS-AQ 기간 동안 용인 지역에서 측정된 오존량에 비해 낮게 나타나는 점이 확인되었다. 이는 용인지역 대류권 상층의 여름철 높은 오존 농도가 자체적인 생성 및 배출 보다는 서울 등 타 지역에서 수송되어 영향을 주었을 가능성을 보여준다. 또한 오존존데의 오전과 오후 관측에서 대비되는 대기경계층 연직구조를 통해 용인 지역의 지표 오존량 변동성에 영향을 줄 수 있는 대기 물리, 화학적 특성을 추정해 볼 수 있었다. 향후 역학적 분석을 통해 이 부분에 대한 이해도를 높이고자 한다. 성

층권의 경우 기존 연구에서 밝혀진 한반도 상공 성층권의 오존 변동성을 잘 탐지하는 것을 확인할 수 있었다. 다만 10월과 11월의 차이점으로부터 오존존데 관측의 정교성 및 오존전량 계산 방법의 개선 필요성 역시 깨닫게 되었다.

일반적으로 대기 중 오존의 특성은 대류권의 경우 오존의 생성이 높게 나타나는 여름을 중심으로, 성층권의 경우 극지 오존층이 파괴되는 시점인 늦겨울-초봄의 시간대 특성에 무게를 두고 분석되는 편이다. 하지만 최근 지구온난화에 따라 오존 고농도 사례가 가을까지 이어진다는 연구 결과(Zhang and Wang, 2016) 및 한반도 오존이 꾸준히 증가하고 있음을 보이는 연구 결과들(Yoo et al., 2015; Yeo and Kim, 2021) 간주할 때 한반도 배경 오존 농도 분포에 대한 정보 구축 역시 중요함을 알 수 있으며 오존존데 관측 자료가 위성 자료 검증에 중요하게 활용되는 특성 역시(Thompson et al., 2017) 가을철 관측의 필요성을 보여주고 있다. 이와 같은 측면에서 본 연구 결과가 앞으로 유용하게 활용될 수 있을 것으로 기대한다.

감사의 글

지상 오존 관측 자료 제공 및 원활한 관측이 이루어질 수 있도록 도움을 주신 한국외국어대학교 이태형 교수님과 연구원분들께 감사의 말씀을 드립니다. 본 연구는 환경부 국립환경과학원의 연구비(NIER2021-01-02-038) 및 2022년도 연세대학교 연구비(2021-22-0076)의 지원으로 수행되었습니다.

REFERENCES

- Bak, J., K. H. Baek, J. H. Kim, X. Liu, J. Kim, and K. Chance, 2019: Cross-evaluation of GEMS tropospheric ozone retrieval performance using OMI data and the use of an ozonesonde dataset over East Asia for validation. *Atmos. Meas. Tech.*, **12**, 5201-5215, doi:10.5194/amt-12-5201-2019.
- Boxe, C. S., and Coauthors, 2010: Validation of northern latitude tropospheric emission spectrometer stare ozone profiles with ARC-IONS sondes during ARCTAS: sensitivity, bias and error analysis. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 9901-9914, doi:10.5194/acp-10-9901-2010.
- Brewer, A. W., 1949: Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapour distribution in the stratosphere. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **75**, 351-363.
- _____, and J. R. Milford, 1960: The oxford-kew ozone sonde. *Proc. Roy. Soc. London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, **256**, 470-495.
- Butchart, N., 2014: The Brewer-Dobson circulation. *Rev. Geophys.*, **52**, 157-184, doi:10.1002/2013RG000448.
- Chipperfield, M., S. S. Dhomse, W. Feng, R. L. McKenzie, G. J. M. Velders, and J. A. Pyle, 2015: Quantifying the ozone and ultraviolet benefits already achieved by the montreal protocol. *Nat. Commun.*, **6**, 7233, doi:10.1038/ncomms8233.
- Crawford, J. H., and Coauthors, 2021: The Korea-United States Air Quality (KORUS-AQ) field study. *Elem. Sci. Anth.*, **9**, 00163, doi:10.1525/elementa.2020.00163.
- Choi, W.-K., and H.-S. Kim, 2010: Annual variation and trends of the arctic tropopause pressure. *Atmosphere*, **20**, 355-366 (in Korean with English abstract).
- Choi, Y., and Coauthors, 2021: Temporal and spatial variations of aerosol optical properties over the Korean peninsula during KORUS-AQ. *Atmos. Environ.*, **254**, 118301, doi:10.1016/j.atmosenv.2021.118301.
- Chong, H., and Coauthors, 2018: Regional characteristics of NO₂ column densities from pandora observations during the MAPS-Seoul campaign. *Aerosol Air Qual. Res.*, **18**, 2207-2219, doi:10.4209/aaqr.2017.09.0341.
- Dobson, G. M. B., 1956: Origin and distribution of the polyatomic molecules in the atmosphere. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, **236**, 187-193.
- EN-SCI Corporation, 1996: *Instruction Manual - Model 1Z ECC-O3 Sondes*, Boulder, Colorado, 26.
- Flynn, L., and Coauthors, 2014: Performance of the ozone mapping and profiler suite (OMPS) products. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **119**, 6181-6195, doi:10.1002/2013JD020467.
- GCOS AOPC-XIII, 2007: GCOS-GAW Agreement Establishing the WMO/GAW Global Atmospheric Ozone Monitoring Networks as Global Baseline Networks of GCOS. *WMO*, **114**, 1-2.
- Hofmann, D. J., B. J. Johnson, and S. J. Oltmans, 2009: Twenty-two years of ozonesonde measurements at the South Pole. *Int. J. Remote Sens.*, **30**, 3995-4008.
- Holton, J. R., P. H. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood, and L. Pfister, 1995: Stratosphere-troposphere exchange. *Rev. Geophys.*, **33**, 403-439.
- Hwang, S. H., J. Kim, and G. R. Cho, 2007: Observation of secondary ozone peaks near the tropopause over the Korean peninsula associated with stratosphere-troposphere exchange. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **112**, D16305.
- Kim, J.-H., and Coauthors, 2001: Study on the characteristics of tropospheric ozone in the Korea peninsula using Pohang ozonesonde data. *Atmosphere*, **11**, 98-

- 102 (in Korean with English abstract).
- _____, H.-J. Lee, and H.-S. Lee, 2003: Analysis of Korea tropospheric ozone structures with Pohang ozone-sonde data. *Atmosphere*, **13**, 304-307 (in Korean with English abstract).
- Kim, J.-Y., Y. H. Youn, K. B. Song, and K. H. Kim, 2000: Characteristics of vertical ozone distributions in the Pohang Area, Korea. *J. Korean Earth Sci. Soc.*, **21**, 287-301 (in Korean with English abstract).
- Kobayashi, J., and Y. Toyama, 1966: On various methods of measuring the vertical distribution of atmospheric ozone (III). *Papers in Meteorology and Geophysics*, **17**, 113-125.
- Komhyr, W. D., 1969: Electrical concentration cells for gas analysis. *Ann. Geophys.*, **25**, 203-210.
- Levelt, P. F., E. Hilsenrath, G. W. Leppelmeier, G. H. J. van den Oord, P. K. Bhartia, J. Tamminen, J. F. de Haan, and J. P. Veefkind, 2006: Science objectives of the ozone monitoring instrument. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **44**, 1199-1208.
- Livesey, N. J., and Coauthors, 2015: EOS MLS Version 4.2 x Level 2 data quality and description document. Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology, Pasadena, CA, **15** [Available online at <http://mls.jpl.nasa.gov/>].
- Mills, G., and Coauthors, 2018: Tropospheric ozone assessment report: Present-day tropospheric ozone distribution and trends relevant to vegetation. *Elem. Sci. Anth.*, **6**, 47, doi:10.1525/elementa.302.
- Newman, P. A., and Coauthors, 2002: An overview of the SOLVE/THESEO 2000 campaign. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **107**, SOL-1.
- Oh, J., S. W. Son, K. Williams, D. Walters, J. Kim, M. Willett, and J. Kim, 2018: Ozone sensitivity of tropical upper-troposphere and stratosphere temperature in the MetOffice Unified Model. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **144**, 2001-2009.
- Park, J.-K., S.-Y. Kim, and S.-W. Son, 2019: Evaluation of the troposphere ozone in the reanalysis datasets: comparison with pohang ozonesonde observation. *Atmosphere*, **29**, 53-59, doi:10.14191/Atmos.2019.29.1.053 (in Korean with English abstract).
- Park, S.-S., J. Kim, N. Cho, Y. G. Lee, and H. K. Cho, 2011: The variations of stratospheric ozone over the Korean Peninsula 1985-2009. *Atmosphere*, **21**, 349-359, doi:10.14191/Atmos.2011.21.4.349 (in Korean with English abstract).
- _____, _____, H. K. Cho, H. Lee, Y. Lee, and K. Miyagawa, 2012: Sudden increase in the total ozone density due to secondary ozone peaks and its effect on total ozone trends over Korea. *Atmos. Environ.*, **47**, 226-235, doi:10.1016/j.atmosenv.2011.11.011.
- _____, H. K. Cho, J. H. Koo, H. Lim, H. Lee, J. Kim, and Y. G. Lee, 2019: Monitoring and Long-term trend of total column ozone from dobson spectrophotometer in Seoul (1985-2017). *Atmosphere*, **29**, 13-20, doi:10.14191/Atmos.2019.29.1.013 (in Korean with English abstract).
- Park, S., S. W. Son, M. I. Jung, J. Park, and S. S. Park, 2020: Evaluation of tropospheric ozone reanalyses with independent ozonesonde observations in East Asia. *Geosci. Lett.*, **7**, 1-12, doi:10.1186/s40562-020-00161-9.
- Randel, W. J., and E. J. Jensen, 2013: Physical processes in the tropical tropopause layer and their roles in a changing climate. *Nature Geoscience*, **6**, 169-176, doi:10.1038/ngeo1733.
- Ryu, H., and J. Kim, 2020: Analysis of the ozone transport and seasonal variability in the tropical tropopause layer using MERRA-2 reanalysis data. *Atmosphere*, **30**, 91-102, doi:10.14191/Atmos.2020.30.1.091 (in Korean with English abstract).
- Shin, D., S. Song, S. B. Ryoo, and S. S. Lee, 2020: Variations in ozone concentration over the mid-latitude region revealed by ozonesonde observations in Pohang, South Korea. *Atmosphere*, **11**, 746, doi:10.3390/atmos11070746.
- Smit, H. G. J., and Coauthors, 2007: Assessment of the performance of ECC-ozonesondes under quasi-flight conditions in the environmental simulation chamber: Insights from the Juelich Ozone Sonde Intercomparison Experiment (JOSIE). *J. Geophys. Res. Atmos.*, **112**, D19306.
- _____, and Panel for the Assessment of Standard Operating Procedures for Ozonesondes, 2014: Quality assurance and quality control for ozonesonde measurements in GAW, *World Meteorological Organization, GAW Report# 201* [Available online at https://library.wmo.int/doc_num.php?explnum_id=7167].
- Stauffer, R. M., A. M. Thompson, and J. C. Witte, 2018: Characterizing global ozonesonde profile variability from surface to the UT/LS with a clustering technique and MERRA-2 reanalysis. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **123**, 6213-6229, doi:10.1029/2018jd028465.
- Stohl, A., and Coauthors, 2003: Stratosphere-troposphere exchange: A review, and what we have learned from STACCATO. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **108**, 8516, doi:10.1029/2002JD002490.

- Stolarski, R. S., D. W. Waugh, L. Wang, L. D. Oman, A. R. Douglass, and P. A. Newman, 2014: Seasonal variation of ozone in the tropical lower stratosphere: Southern tropics are different from northern tropics. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **119**, 6196-6206, doi:10.1002/2013JD021294.
- Sullivan, J. T., and Coauthors, 2019: Taehwa research forest: a receptor site for severe domestic pollution events in Korea during 2016. *Atmos. Chem. Phys.*, **19**, 5051-5067, doi:10.5194/acp-19-5051-2019.
- Tarasick, D. W., and Coauthors, 2019: Quantifying stratosphere-troposphere transport of ozone using balloon-borne ozonesondes, radar windprofilers and trajectory models. *Atmos. Environ.*, **198**, 496-509, doi:10.1016/j.atmosenv.2018.10.040.
- _____, and Coauthors, 2021: Improving ECC ozone-sonde data quality: Assessment of current methods and outstanding issues. *Earth Space Sci.*, **8**, e2019EA000914, doi:10.1029/2019EA000914.
- Thompson, A. M., and Coauthors, 2017: First reprocessing of Southern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ) ozone profiles (1998-2016): 2. Comparisons with satellites and ground-based instruments. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **122**, 13000-13025, doi:10.1002/2017JD027406.
- _____, R. M. Stauffer, K. Wargan, J. C. Witte, D. E. Kolonige, and J. R. Ziemke, 2021: Regional and seasonal trends in tropical ozone from SHADOZ profiles: Reference for models and satellite products. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **126**, e2021JD034691, doi:10.1029/2021JD034691.
- Wang, P., Y. Chen, J. Hu, H. Zhang, and Q. Ying, 2018: Attribution of tropospheric ozone to NO_x and VOC emissions: considering ozone formation in the transition regime. *Environ. Sci. Technol.*, **53**, 1404-1412, doi:10.1021/acs.est.8b05981.
- WMO, 2008: Observing Systems. Part II, Guide to Meteorological Instruments and Methods of Observations, *World Meteorological Organization*, WMO-No. **8**, 681 pp.
- Yeo, M. J., and Y. P. Kim, 2021: Long-term trends of surface ozone in Korea. *J. Clean. Prod.*, **294**, 125352, doi:10.1016/j.jclepro.2020.125352.
- Yoo, J. M., M. J. Jeong, D. Kim, W. R. Stockwell, J. H. Yang, H. W. Shin, M. I. Lee, C. K. Song, and S. D. Lee, 2015: Spatiotemporal variations of air pollutants (O₃, NO₂, SO₂, CO, PM₁₀, and VOCs) with land-use types. *Atmos. Chem. Phys.*, **15**, 10857-10885, doi:10.5194/acp-15-10857-2015.
- Zhang, Y., and Y. Wang, 2016: Climate-driven ground-level ozone extreme in the fall over the Southeast United States. *Proc. Natl. Acad. Sci.*, **113**, 10025-10030, doi:10.1073/pnas.1602563113.