

서울시 PM-10 오염원의 정량적 기여도 추정 Quantitative Source Estimation of PM-10 in Seoul Area

유정석¹⁾ · 김동술²⁾ · 김윤신³⁾

¹⁾한국중공업 기술연구소 에너지 환경연구소,

²⁾경희대학교 환경학과 대기오염연구소,

³⁾한양대학교 의과대학

Jeong-Seok Yoo¹⁾, Dong-Sool Kim²⁾, Yoon-Shin Kim³⁾

¹⁾Research and Development Center, Korea Heavy Industry & Construction Co.,

²⁾Air Pollution Lab., Dept. of Environmental Science, Kyung Hee University,

³⁾College of Medicine, Hanyang University

Abstract

Recently in Korea, due to the significant drop of lead and bromine levels as a marker of autoemission source in the urban areas, the conventional application of receptor methods has many difficulties to properly apportion mass contribution of some sources. It is then needed to urgently develop alternative source profiles and identify new emission markers. Thus, the study has extensively examined the results obtained from using PAHs and elemental data for receptor modeling and has provided an opportunity to identify alternative source compositions and to determine a proper number of the ambient emission sources in Seoul area.

The purpose of the study is to identify the sources of PM-10 and to estimate their mass contributions in Seoul area. Thus, a receptor model, target transformation factor analysis(TTFA) has been massively applied. The TTFA offers the possibility of determining the number of sources and their elemental compositions as well as their quantitative mass contributions. The input data used in this study are composed of two separate sets: fine ($d_p < 2.5\mu\text{m}$) and coarse($2.5\mu\text{m} < d_p < 10\mu\text{m}$) mode aerosol samples. Each sample was simultaneously collected by a PM-10 dichotomous sampler during the daytime(8 AM to 8 PM) and the nighttime(8 PM to 8 AM) from February to October 1993 in the Sungdong-Gu, Seoul. All the samples were analyzed to determine the levels of 10 inorganic elements by an XRF system as well as 14 PAHs by a HPLC. However, only 8 inorganic elements and 7 PAHs were used for the various statistical analysis.

1. 서 론

최근 대기오염 개선의 노력에도 불구하고, 꾸준한 산업화와 도시의 인구집중은 수도권 지역의 대기질을 악화시키고 있다. 이제는 스모그 현상, 가시거리 감소 등의 현상이 빈번히 발생하고 있으며, 발생 건수도 매년 증가 추세에 있다. 이와 같은 현상에 대하여 최근 대기 연구

자들은 대기오염의 근본 원인을 밝히기 위해, 오염발생원(source)의 특성파악에 관한 연구를 수행하고 있다(Kitto, 1993). 현재 서울 지역에서 대기 오염의 주 오염원은 자동차, 산업장 및 난방시설의 연소 관련 오염원에 의한 것으로 추정하고 있다(서영화와 구자공, 1992). 대기환경의 개선을 위한 대기질의 평가 및 예측은 분산모델과 수용모델 두 분야로 발전하였는데, 초기에는 이 두 영역이 서로 대립되는 학문영역이었으나, 최근에

는 분산모델과 수용모델이 결합하여 분산모델의 결과를 확인 및 검증하는 등 상호보완적인 관계로 발전하고 있다. Ma 등(1994)은 대기측정망자료, 지형자료, 화학적 질량수지법을 사용한 수용모델 및 ISCLT를 사용한 분산모델 등을 분석시 동시에 고려하여 특정오염원에 대한 영향을 평가 및 예측한 바 있다. 또한, 최근 환경분석기술 및 시료채취장치의 발전으로 양질의 대량 자료를 신속히 얻을 수 있으며, 컴퓨터의 보급 확산으로 방대한 자료의 수치분석과 통계분석이 경제적으로 실행될 수 있어 다양한 응용통계를 사용하는 수용모델의 영역이 확대되고 있다.

수용모델의 초기 개발은 Miller, Friedlander와 Hidy(1972)에 의해 소개된 화학원소수지(chemical element balance; CEB) 모델이다. 이 모델은 오염원분류표(source profile)를 알고 있다는 가정 하에 개발된 것으로, 우리나라와 같이 오염원 분류표가 부재한 곳에는 적용할 수 없다. 따라서, 일반 대기시료를 바탕으로 적용할 수 있는 인자분석(factor analysis)으로 수용모델을 수행할 수 있으며, 이 모델은 도시 분진자료(Alpert and Hopke, 1980a; Severin, et al., 1983)에 적용된 바 있고, 실내대기(Nitta, et al., 1993) 및 빗물 속의 오염원 파악(Bridgman, 1992)을 위해 적용된 바 있다. 그러나 이 분석방법은 오염원의 정성적 확인은 가능하게 하지만, 오염원의 기여도를 정량적으로 계산하는 것은 불가능하다. 이와 같은 단점을 보완하여 Hopke와 Albert(1981)는 목표변환 인자분석법(Target Transformation Factor Analysis; TTFA)을 개발하고 적용하였다(Alpert and Hopke, 1980b; Hopke, 1985). 이 방법은 대량의 대기중 측정자료를 바탕으로 오염원을 인자분석법으로 파악하고, 파악된 오염원 벡터(vector)를 물리적으로 해석가능하도록 회전시켜 정량적 기여도를 산출하는 방법이다. 우리나라에서는 김태오와 김동술(1990)이 부산시의 총부유분진(TSP) 자료를 이용하여, 김동술과 이태정(1993)이 수원지역의 입경별 분진자료를 이용하여 TTFA를 응용한 바 있다. 하지만, 기존의 연구에서는 주로 거대분진의 금속원소만을 대상으로 오염원의 특성을 파악한 것이다. 최근 수용모델의 응용연구는 미세분진에 대한 오염원의 분리에 적용이 되고, 변수로서 분진의 금속원소를 사용하는 대신 분진중의 유기화합물 및 가스상 물질을 사용하는 방향으로 발전하고 있다. Scheff 등(1994)의 연구에서는 두 상(two-phase)에 대한 화학적 질량수지법(CMB: chemical mass balance)을 사용하여 시카고지역의 대기 중 PM-10과 NMHC

(nonmethane hydrocarbon)의 오염원을 동시에 추정하는 바 있다. 이들은 이를 위해 단일 상을 위주로 한 수용모델과는 달리, 다양한 오염원 기여도 추정의 해상력을 높이기 위하여, 한 모델에 물리적으로 이질적인 두 개 종류의 화학적 자료를 결합하였다.

본 연구에서는 우리나라 실정에 적용할 수 있는 수용모델 중 TTFA의 적용 방법과 응용 방법을 개선하여 제시하였다. 비록 본 연구에서는 단일 상의 자료를 사용하였지만, 분진 중의 금속원소만을 대상으로 오염원을 분리추정한 결과와 분진중의 금속원소와 다환방향족 탄화수소(polycyclic aromatic hydrocarbons: PAHs)를 함께 고려하여 오염원을 분리추정한 결과를 상호 비교분석하였다. 또한, 복잡한 도심지에서의 각종 오염원의 분리 효율을 높이기 위하여 대기중 분진의 농도에 영향을 줄 수 있는 각종 변수를 다각적으로 고려하였으며, 마지막으로, 1995년부터 시행되는 PM-10(공기역학적 입자의 직경이 $10\mu\text{m}$ 이하인 분진)에 대한 오염원을 분리 및 추정하고, 추정된 오염원의 기여도를 바탕으로 대기질 개선전략을 제시하였다.

2. 이론적 배경

수용모델의 기본이론은 질량보존과 질량수지 개념에 바탕을 두고 시작한다. 한 개의 분진 입자는 수 많은 무기 및 유기 화합물로 구성되어있으며, 여지에 포집된 입자들은 화학분석을 통하여 성분을 알 수 있다. 우선 분진 중에 화학종(chemical species)의 농도에 대한 일반적 질량수지식을 간단히 행렬식(matrix)으로 표시하면 식(1)과 같이 표시할 수 있다.

$$X = AF \quad (1)$$

여기서, X는 $n \times m$ 행렬로써, 대기분진 중 화학종별 질량분율(mass fraction)이며, A는 $n \times p$ 행렬로써 배출오염원에 관한 정보를 지니고 있기 때문에 오염원 분류표라 부른다. F는 $p \times m$ 행렬로써 대기중에 배출된 분진의 질량농도들에 관한 정보 즉 오염원이 수용체에 미치는 기여도를 표시한다. 여기서, n, m, p는 각각 화학종의 수, 시료 분진의 수, 오염원의 수를 의미한다. 식 (1)은 수용모델의 근간을 이룬다.

일반적으로 CMB모델에서는 식 (1)에 포함된 변수중 분진의 화학성분농도 X와 오염원자료 A는 미리 알고 있다는 가정하에 입력되므로 F는 가중최소사승법(weighted least square method)을 통하여 구할 수 있다.

그러나 A를 모를 경우에는 인자분석법이나 주성분 분석법(principal component analysis)과 같은 다변량해석법을 이용하여 오염원의 수를 결정하고 오염원자료를 얻을 수 있다. 그러나 인자 분석법이나 주성분분석법의 가장 큰 문제점은 오염원을 정량화할 수 없다는 문제점이 내재되어 있다. 인자분석법의 목적은 각 변수들 간의 상관관계를 이용하여 유사한 형태의 요인을 찾아내어 집단화시킴으로써 오염원의 수를 결정하고 이것을 기준으로 오염원분류표를 작성하는데 있다.

TTFA에서는 인자분석을 위한 상관행렬을 구성함에 있어서 각 화학종 변수들 간의 상관성을 이용하는 R-mode 분석과 각 시료간의 상관성을 이용하는 Q-mode 분석법을 채택하고 있다. 일반적으로 대기시료의 경우 Q-mode를 사용하고 있으며, 이를 수식으로 표현하면 식 (2)와 같다.

$$(XV_Q^{-1})' \cdot (XV_Q^{-1}) = C_Q \quad (2)$$

여기서, V_Q 는 식 (3)에 주어진 화학종의 농도를 나타내는 대각행렬이다.

$$V_{jj} = \left[\sum_{i=1}^m x_{ij}^2 \right]^{1/2} \quad (3)$$

식 (3)에서 얻은 상관행렬은 식 (4)식에 의해 대각화되어 진다.

$$Q^{-1} C Q = \Lambda \quad (4)$$

여기서 Λ 는 고유치(eigenvalues)의 대칭행렬이며, 차수를 축소한 것이다. TTFA의 내재된 첫째 문제는 오염원의 숫자 즉 인자의 수를 결정하는 것이다. Hopke(1980) 등은 인자수 p를 결정하는 방법을 제시하였는데, 고유치의 현저한 감소를 나타내는 구간에서 인자수를 가정하고, 원자료(raw data)와의 비교를 통하여 적정 여부를 확인하는 것이다. 즉 p개의 인자로 A와 F행렬을 정리한 후, 해당 수용체지역에 대한 오염원의 근원이 정성적으로 확인되어야 한다. 대각화 과정에서 제작된 A행렬은 실제 오염원 목록과는 다르며, 상관행렬의 대각화를 나타내는 무수한 행렬중의 하나이기 때문이다. 이 행렬을 물리적으로 의미있는 오염원 목록과 결부시키기 위해서, A행렬의 기하학적 조정이 필요하다. 인자의 축을 회전(rotation)시키는 이 과정을 목표변환이라 부르며, 상관행렬 C의 고유벡터를 이용하게 된다.

TTFA에서의 회전과정은 가중 최소자승법에 의해 인자의 축과 임의의 입력 성분표를 선형적으로 대응시키는 것이다. 인자의 축과 입력된 성분벡터가 겹치도록 축을 회전시킴으로써 새로운 오염원 성분표를 작성할 수 있다. 일단 오염원 자료가 작성되면 CMB 모델에서의 같이 가중최소자승법을 통하여 각 오염원의 질량기여율을 계산할 수 있다. 다음은 목표변환의 과정을 수식으로 표시한 것이다.

$$r = (A^T W A)^{-1} A^T W b \quad (5)$$

또한,

$$b = A r \quad (6)$$

여기서, r은 회전행렬 R(rotation matrix)의 한 벡터이고, b는 임의로 가정된 오염원의 성분벡터이며 반복계산작업에 의해 새로운 입력치 b'가 생성된다. W는 가중치로서 각 화학종 변수의 분산(variance)의 역수인 요소를 갖는 대각행렬이다. 따라서 이들 회전 벡터를 식 (1)에 적용하면,

$$X = A R R^{-1} F \quad (7)$$

식 (5)에서 b에 의해 정의된 회전벡터 r은 식(6)에 의해 b'라는 새로운 오염성분 벡터를 계산해준다. 또한, b'는 식(5)에 새로운 입력자료로 이용되어 새로운 회전 벡터 r'가 구해진다. 이와 같은 반복작업이 b'와 b사이의 값이 특정 값보다 작은 값으로 수렴할 때까지 계속되며, p개의 오염원 전체에 대해 계산되어 B라는 완성된 오염원 분류표가 만들어진다. 결과적으로 질량기여도 F는 가중 최소자승법에 의해 구해진다. 즉,

$$F = (B^T W B)^{-1} B^T W X \quad (8)$$

여기서, F는 질량기여도, B는 오염원 분류표, 그리고 X는 측정치의 자료행렬이다.

최종적으로 완성된 오염원 분류표의 불확실도를 평가 하므로써 분석이 완결된다. 대기중 오염농도의 오차는 오염원 분류표와 질량기여도 양쪽의 오차가 증가할수록 증가되기 때문에, A와 F간의 계산오차를 평가할 필요가 있다. 이들 오차에 관한 내용은 Roscoe와 Hopke (1981)에 의해 평가된 바 있으며, 기타 자세한 수학적 개념과 원리는 Hopke(1985)를 참조할 수 있다.

3. 실험 및 연구방법

3. 1 연구지역의 특성

측정지역은 서울특별시 성동구 행당동의 한양대학교 의과대학 지붕이다. 이곳은 도심지의 동쪽에 위치하며, 한강을 남쪽으로 끼고 청계천과 중랑천의 지류가 만나는 곳에 위치해 있다. 성동구는 준 공업지역과 주거지역으로 구분되어 있으며, 측정지점의 동쪽으로는 논농사와 밭농사가 일부 행해지고 있다. 시내쪽 지역은 일부 대규모 배출시설을 제외하면, 대부분 중소기업체가 위치하고 있다. 이 지역에 배출업소로 지정된 업소는 총 167개 업소이고, 연료사용량에 따른 업종 분류는 1종은 없고, 2종 5개 업소, 3종 6개 업소, 4종 12개 업소, 5종 142개업소로 구성된다. 배출업소는 준 공업지역으로 지정되어있는 성수동과 화양동에 대부분 밀집해 있는데, 성동구 주변에 있는 배출업소를 업종 별로 구별하여 보면 표 1과 같다. 기술 정비업소 59개 및 금속가공 업소가 26개로 총 배출업소의 절반을 차지하고 있다(성동구청, 1994).

3. 2 원 자료의 구성

본 연구에 사용된 자료는 한양대학교에서 이단분진포집기(cascade impactor)로 포집하여 분석한 분진중의 금속원소와 PAH의 대기중 농도자료(심규호, 1994; 장지훈, 1994)로 분진은 경희대학교에서 XRF 및 HPLC를 사용하여 분석되었다. 자세한 화학분석의 절차와 방법은 이들의 논문을 참고할 수 있다. 총 시료는 금속원소의 경우 1993년 2월부터 10월까지 무작위로 측정되었으며, 오전 8시와 저녁 8시를 기점으로 낮시간과 밤시간으로 나누어 각각 3일간 포집되었다. 각 시료는 1) 2.5 μm 이하 입자(이하 미세입자군으로 칭함)와 2) 2.5~10 μm 사이의 입자(이하 거대입자군으로 칭함)로 분리

되었으며, 낮시간과 밤시간에 각각 11개인 총 65개의 시료를 얻었다. 금속원소의 측정 항목은 10개 항목이었으나, 자료의 처리과정상 극심한 오차를 보인 Co와 V를 분석에서 제외하고 8개의 변수를 사용하였다. 마찬가지로 PAH의 경우 1993년 1월부터 10월까지 무작위로 측정되었으며, 낮과 밤 시간대에 각각 10개와 11개의 시료를 얻었다. 각 시료는 역시 3일간 낮과 밤시간 대에 연속으로 측정된 것이다. 이 경우 입경별 PAHs의 분석은 이루어지지 않았으며, 단지 총 PM-10에 대한 PAHs의 분석이 수행되었다. 왜냐하면, 미세입자의 PAHs 분석은 분석기자체의 분석한계를 벗어났기 때문이다. 측정 PAHs의 수는 총 14개 항목이었으나, 금속원소와 PAH의 다중상관분석을 통하여 PAHs중 비교적 상관성이 높은 항목만을 선정하여 변수로는 7개 항목을 이용하였다. 이와 같이 분석항목 중 일부 항목을 변수에서 제외시킨 이유는 이들 화학종에 대한 오염원의 특성을 확인할 방법이 현재까지는 존재하지 않으며, 이들 항목을 분석에 참여시킬 경우 최종 분석오차가 급증하였기 때문이다. 이는 화학분석상의 오차로도 이해되어 통계분석에서는 제외시켰다.

3. 3 자료처리 과정

수용체 지역에서의 응용은 미국 일리노이대학에서 개발된 Factor Analysis to Apportion Sources in Aerosols(FANTASIA: Alpert, Hopke, Roscoe, 1982)라는 FORTRAN 프로그램을 이용하였다. FANTASIA는 주 프로그램과 일련의 보조 프로그램으로 구성되어 있는데, 프로그램 입수 당시, 모든 보조 프로그램은 CDC cyber 175용으로 작성되었기 때문에 개인용 컴퓨터용으로 경희대에서 일부 수정하였다. 이 프로그램에 대한 신뢰도는 많은 검증과정과 일부지역의 적용을 통하여 이미 확인된 바 있다(김태오 등, 1990; 이

Table 1. Number of emission sources located in Sungdong-Gu, Seoul(Source: Sungdong-Gu District Office, 1994).

Vehicle Servicing	: 59	Metal Finishing	: 26
Textile Processing and Manufacturing	: 22		
Apartment Complex Heating System	: 13	Paper Manufacturing	: 11
Printing	: 8	Chemical Manufacturing	: 5
Food Processing	: 4	Pharmaceutical industry	: 4
Glass Processing	: 3	Shoe-making Industry	: 2
Butchery	: 1	Stone Processing	: 1
Drug Manufacturing	: 1	Wood Processing	: 1
Rubber Processing	: 1	Cement Industry	: 1
Plastic Processing	: 1	Electronics Manufacturing	: 1

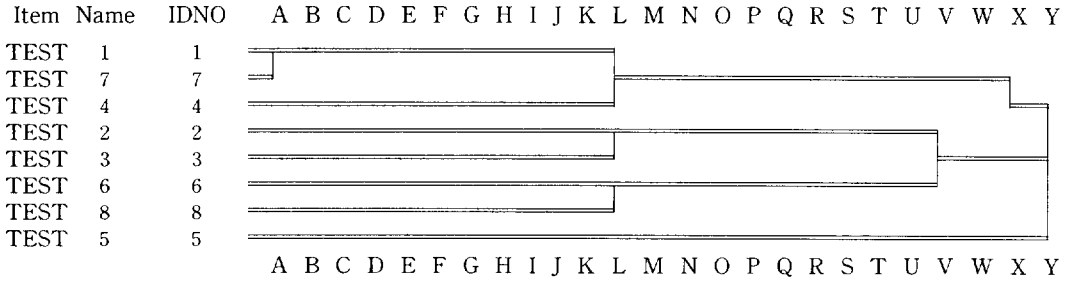


Fig. 1. Dendrograms for the data set of daytime fine particle to obtain proper combinations.

Table 2. Data structures and variable dimensions used for this study.

Data set ID	Sampling Period	Chemical Variable	PM-10 Size	No. Samples
Group 1	day	metal 8	Fine	11
Group 2	day	metal 8	Coarse	11
Group 3	day	metal 8 + PAH 7	Fine + Coarse	10
Group 4	night	metal 8	Fine	11
Group 5	night	metal 8	Coarse	11
Group 6	night	metal 8 + PAH 7	Fine + Coarse	11

Table 3. Results of dimensionality for the fine particle group during the daytime(for Group 1).

FACTOR	EIGENVALUE	RMS	CHI-SQUARE	EXNER	AVERAGE % INDICATOR	ERROR
1	1.0087E+01	1.8601E+01	3.8277E+04	.444468	2.2219E-03	60.33
2	5.3753E-01	6.8960E+00	6.8197E+03	.284970	2.0944E-03	43.39
3	2.0009E-01	4.9533E+00	4.7500E+03	.194677	2.2570E-03	25.01
4	9.8557E-02	2.7728E+00	2.1264E+03	.128714	2.6068E-03	19.64
5	4.0787E-02	1.7354E+00	1.2957E+03	.087973	3.6575E-03	13.31
6	3.0508E-02	1.1014E+00	9.3939E+02	.033707	3.8617E-03	8.09
7	4.6272E-03	3.3978E-01	2.2352E+02	.011603	7.5195E-03	2.04

태정과 김동술, 1993; 김동술 등, 1994).

이단분진포집기로 포집된 자료의 처리는 표 2와 같이 총 6개 집단으로 나누어 수행하였다. 자료처리과정을 낮 시간대의 미세입자군(Group 1)을 예로 기술하면 다음과 같다. 표 3은 FANTASIA 1단계를 실행한 결과로써, 고유치, Chi-square, Exner 함수 등의 결과를 표시한 것이다. 이 방법은 최적 인자의 수를 얻기 위한 시도로서, 주관적인 판단이 개입될 수 있다. 표 3의 각각의 값들이 큰 낙차 폭을 보이는 부분에서 잠정적인 최대 인자수를 결정하고, 분석과정에서 차수를 축소시키는 방법을 택하였다. 또한, 인자의 수를 결정할 때, 군집 분석을 보조적으로 활용하였다. 그림 1은 각 군집의 유사도(degree of similarity)를 표시한 수상도(den-

drogram)로서 좌측으로 갈수록 군집의 수는 증가하지만, 유사도는 높아진다. 우선, 낮시간대에 포집한 미세입자군의 경우 낙차의 폭은 인자의 수가 4~6개 인 영역에서 발견되어, 인자수를 6개로 설정하고 검토과정을 수행하였다. 이 과정에서 목표변환 회기분석법의 결과치가 음의 값이 산출되었다. 오염물질의 질량(mass)이나 통계치의 scaling factor가 음의 값이 도출될 수 없으므로 이 경우 인자의 조합을 모든 경우에 대해 재설정하고 검토하였으며, 인자의 조합이 불가능할 경우 비로서 인자의 수를 축소하였다. 이러한 과정을 반복하여 재실행한 결과, 인자의 수가 4개이고 1, 2, 5, 6 벡터를 선택하고 조합할 때 만족한 결과가 도출되었다. 이와 같은 방법으로 나머지 5개 집단에 대해서도 시행착오를 반복

한 결과, Group 2, 4, 5의 인자수는 각각 4개로 분리 확인되었으며, Group 3은 5개로 분리확인되었고, Group 6은 통계분석에 실패하여 인자수를 얻을 수 없었다. 이는 시료의 수가 부족한 것이 주원인이라고 사료된다.

4. 연구결과 및 고찰

4. 1 오염원 분류

금속원소에 관한 오염원 목록자료는 Hopke(1985)의 오염원 자료를 참고하였으며, PAH의 오염원 목록자료는 Westerholm과 Li(1994), Daisey 등(1986)의 자료를 참고로 하였다. 또한, 오염물질의 단변수 특성 및 주변지역의 여건과 풍향, 풍속을 고려하여 오염원을 분리하였다. 도시지역의 특성상 오염원이 다양하고 대체로 오염원이 혼재하기 때문에 오염원 분리에 많은 어려움이 있었다.

일반적으로 오염원에 대한 질량기여도를 산출하기 위해서는, 분석 화학종의 항목을 증가시켜 분진 중 이들이 차지하는 질량분율이 경험상 총 질량의 70~80% 이상이 될 때 오염원의 정확한 질량기여도를 산출할 수 있다. 그러나 본 연구에서 사용한 화학종의 질량분율은 미세입자군의 경우 총 질량의 3.8%만이 측정되었고 거대입자군의 경우 총 질량의 15.1%만이 측정되었다. 따라서, 본 연구에서는 총 질량에 관한 오염원 기여도를 산출하기 위해서 대표값이라는 개념을 사용하였다. 즉, 측정된 8개 항목의 원소와 7개 PAH를 추적자로 사용하여 전체의 분진질량을 대표한다고 가정하고 이를 총질량기여도를 산출할 때 이용하였다. 이러한 가정을 해결하는 방법은 측정 화학종의 숫자를 무한히 증가시키면 되겠으나, 이는 현실적으로 불가능하다.

미세입자군 Group 1과 4에 대한 분석을 통해 각각 4개의 오염원이 확인되었다. 첫째, Si, Fe, K, Ca의 농도가 높게 추정된 토양오염원, 둘째, Fe가 높게 추정된 철분 관련오염원, 셋째, K, Ca, Zn, Pb, Mn 등이 높게 추정된 기름 관련오염원, 넷째, K, Zn, Pb가 높게 추정된 자동차 오염원으로 분리되었다. 반면 거대입자군 Group 2와 5의 경우 토양오염원이 이중으로 발견되었고, 그 중 한가지는 시멘트 관련오염원으로 추정되었다. 또한, 기름연소 관련오염원과 금속관련오염원도 분리되었다. 표 4는 Group 1에 대해 추정된 오염원 분류표를 보여주고 있다. 이 분류표를 이용하여 가장 최소자승법을 수행하면, 오염원의 기여도를 산출할 수 있다.

낮시간대에는 오염원의 분리능을 높이기 위하여, PAHs를 금속원소와 함께 변수로 사용하여 분석한 결과, Group 3에 대해 표 5와 같은 오염원을 추정할 수 있었다. 오염원의 파악을 위해 PAHs의 오염원분류표(Westerholm and Li, 1994; Daisey, et al., 1986)를 참고하였다. 기름관련 오염원은 FLUR(Fluoranthene), PY(Pyrene), BAA(Benzo(a) anthracene) 순으로 농도차이를 보였으며, 동시에 금속원소의 경우는 K, Ca, Pb, Zn 순으로 농도차이를 보였다. 이 결과는 금속원소만을 사용하여 오염원을 추정한 결과와 일치하였으나, 거대입자군의 경우는 다소 차이를 보였다. PAH와 관련된 자동차 오염원은 PHE(Phenaphthrene), PY(Pyrene), FLUR(Fluoranthene)의 순으로 분리되었다. 이때, 분석에 변수로서 동반된 금속원소의 경우, 금속원소만을 변수로 사용하여 추정된 오염원의 분류기준과 완전히 일치하지는 않았으나, 유사한 경향을 보였다.

마찬가지로 Group 6에 대해 밤시간대의 오염원의 분

Table 4. Estimated source profile matrix for fine particle group during the daytime(for Group 1).

Unit: (ng/m³)

ELEMENT	Soil Source	Ferrous Related Source	Vehicle Related Source	Oil Burning Source	AVG PRED CONTRIB	AVG OBS CONTRIB	AVG % ERROR
1 Ca	.105E+03	.945E+01	.412E+01	.103E+03	.220E+03	.225E+03	15.9
2 Cu	.160E+01	.295E+02	.502E+01	.282E+01	.390E+02	.390E+02	18.2
3 Fe	.125E+03	.107E+03	.128E+02	.540E+02	.299E+03	.318E+03	31.0
4 K	.101E+03	.786E+00	.772E+02	.199E+03	.378E+03	.380E+03	6.4
5 Mn	.826E+01	.130E+02	.279E+02	.143E+02	.635E+02	.621E+02	9.1
6 Pn	.322E+00	.961E+01	.249E+02	.821E+02	.117E+03	.126E+03	25.2
7 Si	.562E+03	.104E+02	.210E+02	.972E-01	.594E+03	.603E+03	7.2
8 Zn	.750E+00	.520E+02	.470E+02	.790E+02	.179E+03	.167E+03	18.5

Table 5. Estimated source profile matrix for PM-10 during the daytime(for Group 3). Unit: (ng/m³)

ELEMENT	Soil Source	Metal Related Source	Vehicle Related Source	Ferrous Related Source	Oil Burning Source	AVG PRED CONTRIB	AVG OBS CONTRIB	AVG ERROR
1 Ca	.157E+03	.503E+01	.909E+01	.550E+01	.101E+03	.278E+03	.311E+03	86.2
2 Cu	.155E+02	.282E+00	.601E+01	.110E+02	.212E+01	.349E+02	.349E+02	39.2
3 Fe	.236E+03	.102E+01	.109E+01	.156E+03	.367E+02	.430E+03	.363E+03	49.3
4 K	.138E+03	.170E+01	.335E+02	.152E+02	.122E+03	.311E+03	.332E+03	19.0
5 Mn	.595E+01	.511E+00	.374E+01	.189E+02	.129E+02	.420E+02	.487E+02	49.2
6 Pb	.112E+02	.803E+00	.740E+01	.220E-03	.824E+02	.101E+03	.105E+03	67.3
7 Si	.484E+03	.762E+00	.156E+02	.445E+02	.203E+02	.565E+03	.719E+03	103.2
8 Zn	.584E+02	.168E+00	.208E+02	.117E+00	.773E+02	.157E+03	.144E+03	39.9
9 PHE	.680E+00	.236E-01	.896E+00	.407E+00	.411E+00	.242E+01	.226E+01	54.5
10 FLUR	.106E+01	.638E-02	.327E+00	.108E-01	.100E+01	.241E+01	.164E+01	305.3
11 PY	.118E+01	.192E+00	.514E+00	.446E+01	.966E+00	.735E+01	.622E+01	88.0
12 BAA	.282E-02	.170E-01	.278E+00	.349E+00	.921E+00	.157E+01	.168E+01	114.1
13 BKF	.741E-01	.202E-01	.163E+00	.325E+00	.892E+00	.147E+01	.139E+01	56.9
14 BAP	.183E-01	.146E-01	.216E-01	.570E-01	.463E+00	.574E+00	.606E+00	19.5
15 BP+I123	.498E+00	.245E-02	.419E+00	.506E-01	.153E+00	.112E+01	.101E+01	59.0

(PHE: Phenaphthrene, FLUR: Fluoranthene, PY: Pyrene, BAA: Benzo(a)anthracene, BKF: Benzo(K)Fluoranthene, BAP: Benzo(a)pyrene, BP+I123: Benzo(ghi)perylene+Indeno(123-cd)pyrene)

리능을 높이기 위하여, PAH를 금속원소와 함께 변수로 사용하여 분석하였으나, 분석결과는 매우 극심한 오차를 보였으며, 낮시간대 PAH 농도에 대한 단변수 경향과도 차이를 보였다. 이것은 측정 분석상의 오류가 있거나, 대기중 PAH 농도분포의 특이한 현상으로 이해되어 본 연구에서는 이 방법을 이용한 오염원의 기여도 추정에서 실패하였다.

입자를 거대입자군과 미세입자군으로 나누었을 때, 일반적으로 미세입자군에 인위적 오염원이 주로 자리잡고 있으며, 거대입자군의 경우 자연적 오염원이 주종을 이루고 있었다. 연구지역의 특성상 도로 주변지역이며, 금속 가공업체가 산재하기 때문에 금속원소의 농도경향은 주야로 불규칙하게 영향을 받고 있었다.

4. 2 서울시 대기질의 오염원 기여도 평가

서울시 대기질 오염원의 기여도를 그림 2에 표시하였다. 우선, 낮과 밤시간대에 각각 27.7%, 25.4%가 토양의 영향으로 파악되었다. 기름연소 관련 오염원의 경우는 낮시간대가 39.4%이었고, 밤시간대가 46.0%로 나타났는데 이는 난방시스템의 영향으로 파악된다. 낮과 밤시간대의 자동차 오염원의 기여도는 각각 14.2%와 9.5%로 낮시간대에 영향이 크게 나타났다. 또한, 시멘트

관련오염원은 낮과 밤에 각각 5.0%, 0.1%로 나타났다. 이것은 주변의 공사지역과 시멘트 공장의 영향으로 사료되며, 낮시간의 활동이 크게 부각되었다.

입경의 크기와 오염원의 영향을 살펴보면, 미세입자의 경우 토양에 의한 자연적 영향은 11.8%로 미약하였으나, 인위적 오염원인 연소 관련오염원과 자동차 오염원에 의한 영향은 각각 49.7%와 22.3%로 높게 추정되었다. 반면, 거대입자의 43.8%가 토양오염원에서 기여를 받고 있었으며, 금속 가공업체의 기여도는 16.1%로 나타났다. 자동차오염원과 철분관련 오염원은 기여하지 않았다. 다시 한번, 여기서 주의할 점은 거대입자의 크기는 2.5~10 μ m 사이의 분진이라는 점이다.

표 6은 22개 대기시료에 대한 오염원의 평균 기여도를 질량농도 μ g/m³ 단위로 표시한 것으로 특히, 낮시간대에 금속원소 자료만을 이용하여 추정한 오염원의 기여도와 금속원소와 PAH 자료를 함께 이용하여 추정한 오염원의 기여도가 각각 계산되었다. 도표에 의하면, 오염원의 기여도는 토양, 자동차, 연소 관련오염원 모두 유사하게 계산되었으나, 단지 금속관련 오염원에서 6.1과 14.5 μ g/m³로 차이를 보였다. 즉, 낮시간대에 금속원소만을 입경별로 분석하였을 때, 시멘트 관련 오염원이 토양오염원과 분리될 수 있었으나, PAHs와 금속원소를

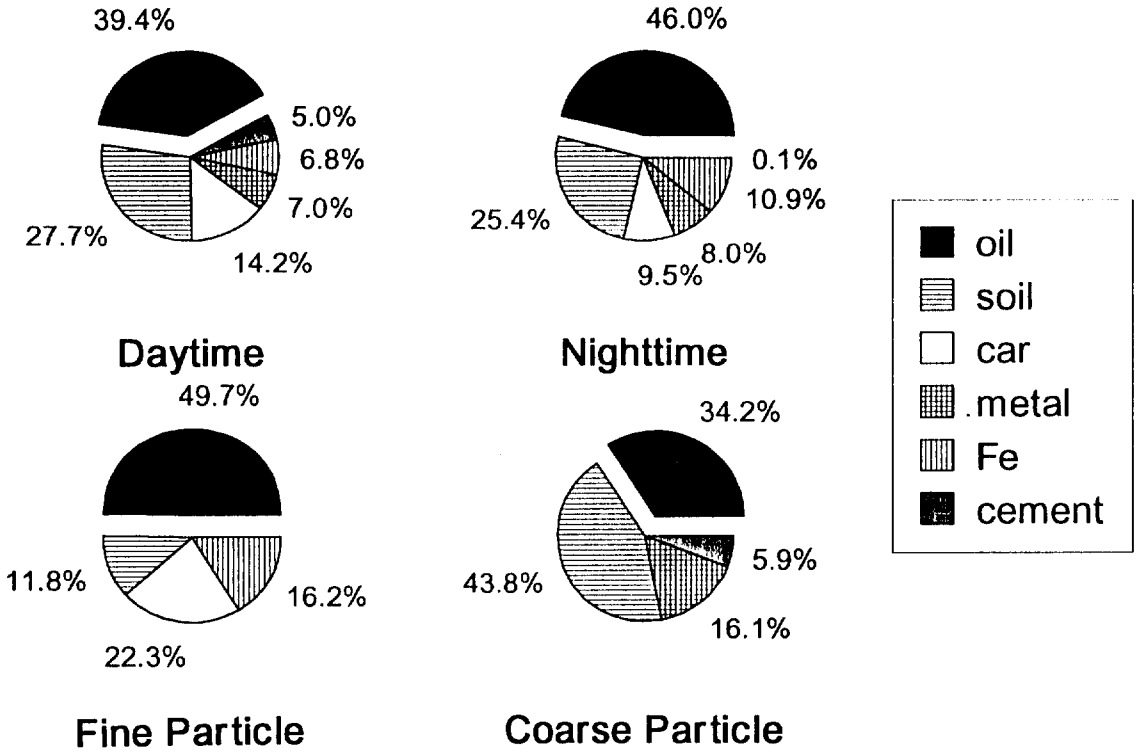


Fig. 2. Average percent contribution of each source to the total average mass.

Table 6. Results of average mass contribution obtained from multiple regression analyses for the 22 ambient samples collected in Sungdong-Gu, Seoul. (Unit: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

Data Set ID	Sampling Periods	PM10 Size	Soil Source	Ferrous Related Source	Oil Burning Source	Vehicle Related Source	Metal Related Source	Cement Related Source
Group 1	day	Fine	5.4	5.9	19.5	12.4	-	-
Group 2	day	Coarse	18.8	-	14.6	-	6.1	4.4
Group 3	day	F+C	29.6	5.6	35.6	12.0	14.5	-
Group 4	night	Fine	5.0	8.4	24.3	7.3	-	-
Group 5	night	Coarse	14.6	-	11.2	-	6.2	0.1
Group 6	night	F+C	not available					
Group 7	Group1+Group2		24.2	5.9	34.1	12.4	6.1	4.4
Group 8	Group3+Group4		19.6	8.4	35.5	7.3	6.2	0.1

전체 PAH에 대해 분석하였을 경우 이들 오염원은 분리할 수 없었다. 따라서, 입경별 분석이 수용모델의 해상도를 증가시키는데 중요한 역할을 함을 알 수 있다. 종합적으로 금속원소 변수와 함께 오염원 추적 화학종으로

PAH를 사용할 경우 다소의 오차를 보였으나, 오차의 절대치는 무시할 수 있을 정도로 작아, 오염원의 분리 및 기여도 산출에는 큰 무리가 없었다.

그림 3과 그림 4는 낮시간을 대상으로 시료포집 기간

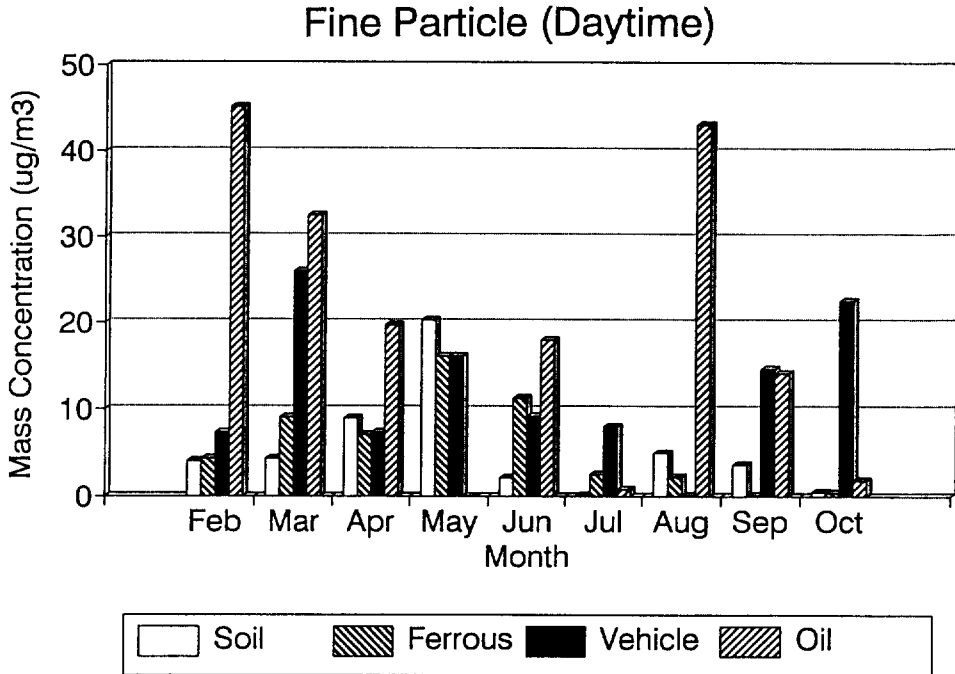


Fig. 3. Estimated mass contributions of each source obtained from the fine particle data.

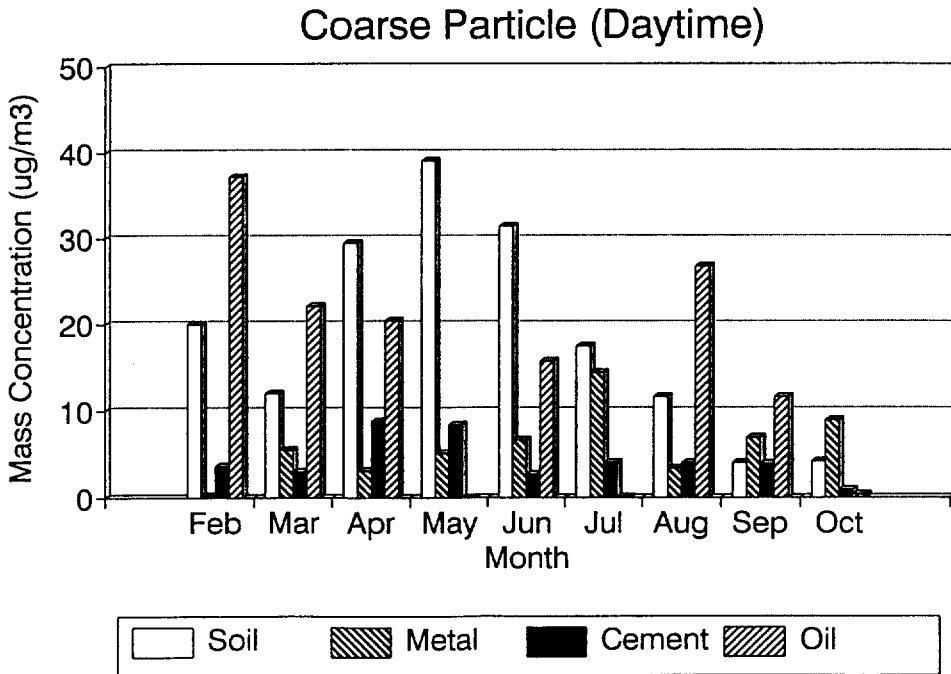


Fig. 4. Estimated mass contributions of each source obtained from the coarse particle data.

내의 분진 기여도를 월별로 표시한 것이다. 낮시간대와 밤시간대의 분진의 농도경향은 거의 같았다. 미세입자의 경우 기름관련 오염원이 기여하는 비중이 높게 표시되었으며, 거대입자의 경우 토양이 차지하는 비중이 높게 표시되었다. 월별 변화를 살펴보면 4월과 5월에 토양의 영향이 높게 추정되었는데, 이는 황사현상에 의해 영향을 받은 것으로 사료되며, 93년도 기상청에서 발표한 황사시기와 일치하였다. 6, 7, 8월 달 여름 기간동안에는 기름관련 오염원이 낮게 나타났는데, 여름기간 동안 가정난방의 감소로 야기된 결과이다. 따라서, 가정난방과 산업활동에 의한 기름 연소관련 오염원 중에 가정난방의 영향도 큰 비중을 차지하고 있음을 알 수 있다. 자동차관련 오염원은 꾸준히 일정한 영향을 주고 있음을 알 수 있다. 특히, 측정지역이 도로 지역이기 때문에 연중 일정한 영향을 받는 것으로 생각된다. 10월에는 오염의 수준이 대체로 낮게 나타났는데, 이는 측정기간동안 있었던 강우의 영향 때문이었다.

4. 3 대기질 개선에 관한 고찰

1995년 1월 부터 시행되고 있는 대기환경의 규정에 의하며, PM-10 농도는 연평균 $80\mu\text{g}/\text{m}^3$ 를 초과할 수 없다. 본 연구의 실험기간중 PM-10의 농도는 평균 $89.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 조사되어 당시의 농도는 현행기준을 초과하고 있었다. 그러나 인체의 건강을 위주로 기준을 설정한 미국이 경우 PM-10의 기준은 $50\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이다. 본 실험의 측정회수가 작아 환경기준과 비교하는 것은 다소 무리가 있지만, 서울시의 PM-10 농도는 장기기준치를 약간 상회하고 있었다. 따라서, 우리나라의 경우 비록 행정목표치를 기준치로 설정하고 있지만, 이에 대한 기준강화 및 PM-10에 대한 합리적 규제방안이 마련되어야 한다. 이를 위해서는 오염원에 대한 정량적인 영향 파악이 필요하다.

대기질을 개선하기 위한 방안을 개발하기 위해서는 분산모델 뿐만 아니라, 수송모델 측면에서 각각의 오염원에 대한 영향을 서울시 전반에 대해 평가하여 합리적이고 경제적인 방법을 마련해야 할 것이다. 서울시 성동구 주변의 대기질만을 한정하여 개선하고자 할 때, 전체의 16.2%를 차지하는 금속관련 업소의 관리와 12.0%를 차지하는 자동차 오염원의 저감 방안이 구체적으로 강구되어야 할 것으로 사료된다. 또한, 이 지역 오염에 가장 큰 영향을 준 오염원은 총 PM-10 분진의 42.2%를 차지하는 기름관련 연소오염원이었다. 가정난방에 의한 영향도 산업활동 이상의 영향을 주는 것으로 사료되므로, 이들에 대한 추후 대책이 마련되어야 할 것이다. 또한,

시멘트 관련오염원의 기여도가 낮시간대에 5.0%를 차지하고 있었으며, 인근 공사현장 및 레미콘 공장의 철저한 관리가 요구된다. 결론적으로 면오염원 규모의 산업시설에 대한 방지시설 및 관리상태의 점검, 가정난방의 가스연료로의 전환 또는 난방설비의 대기오염 방지기술 도입, 불법소각 및 open burning의 금지방안 등의 마련이 필요하다. 특히 1995년 1월 부터 시행되고 있는 쓰레기 종량제는 불법소각을 확산시키고 있어 대기오염의 급속한 악화를 예상하게 하며, 이에 대한 대책이 시급하다.

5. 결 론

본 연구에서는 다양한 오염원이 산재하고 있는 서울시의 도심지역의 대기오염원을 정량적으로 추정하기 위해, 금속원소 및 PAHs의 농도를 변수로 사용하여 수송모델의 하나인 목표변환 인자분석법을 응용하였다. 서울시 성동구 주변의 오염원은 다양하지만, 주요 오염원의 PM-10 분진오염원의 질량기여도가 다음과 같이 추정되었다. 낮시간대의 경우, 미세입자군에서 기름연소 관련오염원이 차지하는 기여도는 49.7%이었고, 자동차 오염원은 22.3%로 추정되었다. 거대입자의 경우, 토양오염원이 주요 오염원으로서 기여도는 43.8%였다. 밤시간대 미세입자군의 경우, 기름연소 관련오염원이 54.0%이었으며, 자동차와 철분 관련 오염원의 기여도가 각각 16.1%, 18.7%로 추정되었다. 거대입자의 경우, 토양 관련오염원의 기여도가 45.5%로 높게 나타났다. 특히, 총 PM-10 중 기름연소 관련오염원이 낮과 밤시간대에 각각 39.4%, 46.0%로 높게 추정된 것은 도시지역의 주요 오염원이 기름연료의 연소와 관련되어 있음을 의미한다. 또한, 연구지역 주변의 특성상 철을 다루는 중소기업체가 산재하여 철분 관련오염원의 영향이 비교적 높게 관찰되었다. 낮과 밤시간대 간의 특이한 차이점은 오염원 중에 시멘트관련 오염원으로 각각 5.0%, 0.12%로 낮시간대가 밤보다 높게 나타났다.

본 연구에서는 수송모델에서 필수적인 측 C, S, Cl, Ni, Br의 농도를 분석하지 않아 오염원의 특성분리에 어려움이 있었다. 하지만, 분석과정에서 측정변수의 사용확대와 단변수 통계분석을 병행하여 수송모델을 수행한 결과, 오염원의 분리능이 크게 향상되었으며, 도시지역에서 연소관련 오염원 등 미세분진의 오염원의 특성을 파악할 수 있었다. 특히, 최근 유연회발유 전면 사용 금지로 그동안 수송모델에서 자동차 오염원의 추적자로 사용되어 왔던 Pb 및 Br는 그 역할을 상실하게 된 시점

에서, 본 연구는 PAHs를 금속원소와 함께 변수로 사용하여 이러한 어려움을 해결하였다. 추후, 특정 PAHs는 도시지역의 대기오염원에 대한 기여도 파악연구에 커다란 도움을 줄 것으로 사료된다.

참 고 문 헌

- 김동술, 이태정(1993) 입경분류에 입각하여 목표변환인자 분석법을 이용한 수원지역 분진 오염원의 정량적 기여도 추정, 한국대기보전학회, 9:1: 44-50.
- 김동술, 김신도, 김윤신, 신용배, 이태정(1994) 서울시 지하철역내 분진오염원의 정량적 기여도의 결정, 16:3: 309-319.
- 김태오, 김동술, 나진균(1990) Target transformation factor analysis를 이용한 부산시 분진 오염원의 양적 추정, 대기보전학회 6:2: 135-146.
- 서영화, 구자공(1992) 대기 분진의 무기 화학적 조성 분석과 Chemical Mass Balance에 의한 오염원의 기여도 산출, 대기보전학회지, 8:2: 112-120.
- 심규호(1994) 다환 방향족 탄화수소(PAHs)의 실내의 농도조사에 관한 연구, 한양대학교 환경대학원, 석사학위논문.
- 장지훈(1994) 호흡성분진중 금속성분의 실내외 농도에 관한 조사연구, 한양대학교 환경대학원 석사학위논문.
- Alpert, D.J. and P.K. Hopke(1980 a) A quantitative determination of source in Boston urban aerosol, Atmospheric Environment, 14: 1137.
- Alpert, D.J. and P.K. Hopke(1980 b) A determination of the sources of airborne particles collected during the regional air pollution study, Atmospheric Environment, 15:5: 675-687.
- Bridgman, H. A.(1992) Evaluating rainwater contamination and sources in southeast Australia using factor analysis, Atmospheric Environment, 24A:13: 2401-2412.
- Daisey, J.M., J.L. Cheney, and P.J. Lioy(1986) Profiles of organic particulate emission from air pollution source: Status and need for receptor source apportionment modeling, JAPCA., 36:1: 17-33.
- Hopke, P.K.(1980) The application of factor analysis to quantitative source apportionment in atmospheric aerosol: Source/air quality relationships, American Chemical Society Symposium Series No.167.
- Hopke, P.K., D.J. Alpert, and B.A. Roscoe (1982) FANTASIA-A program for target transformation factor analysis to apportion source in environmental samples, Computers & Chemistry 7:3: 149-155.
- Hopke P.K.(1985) Receptor modeling in environmental chemistry, John & Wiley Interscience Publication, New York.
- Kitto, M.E.(1993) Trace-element patterns in fuel oils and gasolines for use in source apportionment, AWMA., 43: 1381-1388.
- Ma, H.W., D.L. Fox, S. Mukerjee, R.K. Stevens, R.B. Kellogg, and D.C. Stiles (1994) Integrating dispersion modeling, Receptor modeling and air monitoring to apportion incinerator impacts for exposure assessment, AWMA., 94-WP75B. 05., Presented at the 87th Annual Meeting of AWMA.
- Miller, M.S., S.K. Friedlander, and G.M. Hind (1976) A chemical element balance for the Pasadena aerosol, J. Coll. Inter. Science, 39: 165-176.
- Nitta, H., M. Ichkawa, M. Sato, S. Konish, and M. Ono(1993) A new approach based on covariance structure model to source apportionment of indoor fine particles in Tokyo, Atmospheric Environment, 28:4: 631-636.
- Roscoe B.A. and P.K. Hopke(1981) Error estimation of factor loadings and scores obtained with target transformation factor analysis, Anal. Chim. Acta, 160: 121-134.
- Scheff, P.A., R.A. Wadden, and J. Lin(1994) Source allocation of hazardous air pollutants in Chicago, AWMA., 94-TP26 B. 04., Presented at the 87th Annual Meeting of AWMA.
- Severin, K.G., B.A. Roscoe, and P.K. Hopke (1983) The use of factor analysis in source determination of particle emissions, Particulate Science and Technology, 1: 183-192

- Sungdong-Gu District Office(1994), Environmental Division, Personal Communication.
- Weiner, P.H., E.R. Malinowski, and A.R. Levinston(1970) Factor analysis of solvent shifts in proton magnetic resonance, J. phys. Chem., 74: 4537-4542.
- Westerholm, R. and H. Li(1994) A multivariate statistical analysis of fuel-related polycyclic aromatic hydrocarbon emissions from heavy-duty diesel vehicles, Environ. Sci. & Technol., 28:5: 965-972.