

PMF 모델을 이용한 대기 중 PM-10 오염원의 정량적 기여도 추정

Estimation of Quantitative Source Contribution of Ambient PM-10 Using the PMF Model

황인조* · 김동술¹⁾

경희대학교 산학협력기술연구원

¹⁾경희대학교 환경응용화학대학 대기오염연구실 및 환경연구센터

(2003년 6월 19일 접수, 2003년 9월 17일 채택)

In-Jo Hwang* and Dong-Sool Kim¹⁾

Industrial Liaison Research Institute, Kyung Hee University

¹⁾*School of Environment & Applied Chemistry/Environmental Research Center,
Kyung Hee University*

(Received 19 June 2003, accepted 17 September 2003)

Abstract

In order to maintain and manage ambient air quality, it is necessary to identify sources and to apportion its sources for ambient particulate matters. The receptor methods were one of the statistical methods to achieve reasonable air pollution strategies. Also, receptor methods, a field of chemometrics, is based on manifold applied statistics and is a statistical methodology that analyzes the physicochemical properties of gaseous and particulate pollutant on various atmospheric receptors, identifies the sources of air pollutants, and quantifies the apportionment of the sources to the receptors.

The objective of this study was 1) after obtaining results from the PMF modeling, the existing sources of air at the study area were qualitatively identified and the contributions of each source were quantitatively estimated as well. 2) finally efficient air pollution management and control strategies of each source were suggested.

The PMF model was intensively applied to estimate the quantitative contribution of air pollution sources based on the chemical information (128 samples and 25 chemical species). Through a case study of the PMF modeling for the PM-10 aerosols, the total of 11 factors were determined. The multiple linear regression analysis between the observed PM-10 mass concentration and the estimated G matrix had been performed following the FPEAK test. Finally the regression analysis provided quantitative source contributions (scaled G matrix) and source profiles (scaled F matrix). The results of the PMF modeling showed that the sources were apportioned by secondary aerosol related source 28.8 %, soil related source 16.8%, waste incineration source 11.5%, field burning source 11.0%, fos-

* Corresponding author

Tel : +82-(0)31-201-2466, E-mail: lynhij@khu.ac.kr

sil fuel combustion source 10%, industry related source 8.3%, motor vehicle source 7.9%, oil/coal combustion source 4.4%, non-ferrous metal source 0.3%, and aged sea-salt source 0.2%, respectively.

Key words : Receptor methods, PMF, Scaled G matrix, Scaled F matrix, Sources

1. 서 론

대기오염 모델은 대기오염 물질의 확산, 대류, 화학반응, 침전 등을 고려하여 모델구역의 대기오염물질 농도, 침착량, 체류시간 등을 예측하여 오염원의 효율적 제어, 방지대책, 대기질의 관리방안 수립 등에 이용할 수 있는 종합적인 도구로서 지난 수 십년간 지속적으로 개발되어 왔다(대기환경연구회, 2000). 각 오염원이 대기환경에 미치는 영향에 관한 연구는 오염원의 질량 기여도(mass contribution) 추정 연구라고도 하는데, 보통 분산모델(dispersion model)과 수용모델 또는 수용방법론(receptor model or receptor methods)으로 구분할 수 있다. 두 방법 모두 질량보존의 법칙과 질량수지에 그 이론적 기초를 두고 있다(Gordon, 1988). 모델 연구의 초기 단계에서는 오염원 배출자료와 기상변수들을 기초로 하는 오염원 중심의 분산모델(source-oriented dispersion models)이 활발하게 이용되어 특정지역의 대기질을 예측, 평가할 수 있었으며 환경영향평가시 중요한 역할을 수행하였다. 분산모델을 수행하기 위해서는 모델 자체의 연구 뿐만 아니라 배출원 조사, 기상자료의 확보, 분산변수 등의 결정을 위한 현장실험, 오염물질간의 물리, 화학적 반응에 대한 동력학적인 연구가 필수적이다. 그러나 이 과정에서 배출자료의 오차, 확산변수의 불확실도, 기지(既知)의 오염원만을 대상으로 한다는 점, 배출자료의 부족, 복잡한 모델 개발에 따른 시간과 비용 등의 문제가 야기되었다(황인조 등, 2001; Budiansky, 1980; Cooper and Watson, 1980). 이와 같은 한계성을 보완하기 위하여 과거에는 단순히 분산모델의 보조적 수단이었던 수용방법론이 지속적으로 개발되었다. 특히, Miller *et al.* (1972)에 의해 화학원소수지(chemical element balance; CEB) 모델이 처음 개발된 이후 최근까지 연구가 활발히 진행되고 있다. 수용방법론은 분석장비와 시료 채취장비의 질적, 양적인 발전과 컴퓨터의 보급과 확산으로 인하여

다량의 자료를 쉽게 획득할 수 있으며 방대한 양의 자료 처리와 통계분석이 가능해짐에 따라 그 활용영역이 점차 확대되고 있는 실정이다(이태정과 김동술, 1997).

수용방법론은 각종 응용통계학을 기반으로 한 계량화학적 분석기술로서, 일반대기 중 수용체에서 가스상·입자상 오염물질의 물리·화학적 특성을 분석한 후 대기질에 영향을 미치는 오염원을 확인하고 기여도를 정량적으로 파악하여 합리적인 대기오염 관리를 수행할 수 있는 통계적 방법이다. 또한 수용방법론은 입자상 및 가스상 오염물질의 분석에 다각도로 응용할 수 있으며, 합리적인 대기오염 관리를 유도하는 기초기술이라 할 수 있다. 수용방법론은 첫 번째, 대기오염물질에 대한 오염원의 확인과 오염원의 기여도 추정은 대기 중 오염물질의 화학적 특성(조성)을 이용하여 추정할 수 있으며 두 번째, 수용체에서 채취된 분진의 원소농도는 수용체에 영향을 미치는 모든 오염원에서 배출된 각 원소의 선형적 합과 같다는 기본적인 가정을 기본으로 한다(Hidy and Friedlander, 1972). 대기환경학에서 수용방법론의 적용범위는 실내공기오염과 같은 미시규모(micro scale), 대도시의 오염원 파악과 시정감소와 같은 지역규모(local scale), 동북아시아의 산성비와 황사현상과 같은 광역규모(global scale)로 확대되고 있다(김동술과 황인조, 2002).

한편, 수용방법론 중 국내에서 활발히 연구가 진행되었던 부분은 전량분석법으로 금속원소를 분석하는 부분이다. 유기화합물 및 특정유해가스의 측정기술은 미진하여 아직도 외국에 분석을 의뢰하는 경우가 적지 않다. 또한 이들 자료를 활용하는 통계분석법의 응용도 극히 한정되어 고비용의 측정자료를 효율적으로 이용하지 못하고 있다. 이와 같은 연구침체의 주원인은 대기환경에 대한 기초연구 투자가 극히 적기 때문이며 환경기초기술의 개발이 경제성장의 걸림돌로 생각되는 정책적 분위가 탓도 있다. 이는 또한 이 분야의 연구가 실용화 또는 상용화 단계로

Table 1. Air pollutant emitting facilities in Suwon area (Jan. 2002).

	Textile industry	Metal industry	Chemical industry	Food industry	Nonferrous industry	Others	Sum
Third class	-	-	1	-	-	2	3
Fourth class	1	4	1	-	1	9	16
Fifth class	3	45	4	1	5	130	188
Sum	4	49	6	1	6	141	207

(출처: 수원시, 2002)

나타내어, 이러한 풍향들이 연구지역에 주로 영향을 미치는 것으로 조사되었다. 연구기간동안의 평균 풍속은 1.2 m/s이었으며, 0.5~2.1 m/s가 63.8%, 2.1~3.6 m/s가 13.4%의 빈도를 나타내었다. 한편, 연구기간동안의 황사발생은 1999년에 한차례, 2000년에 여섯 차례, 2001년에도 여섯 차례가 발생한 것으로 나타났다(기상연보, 1999~2001).

2. 2 시료의 채취방법 및 분석방법

부유분진 중 PM-10은 고용량 시료채취 장치인 high-volume air sampler (USA, General Metal Works, Model IP10)를 사용하여 평균 1.13 m³/min의 유량으로 약 24시간동안 시료를 채취하였다. 또한 PM-10 high-volume air sampler의 정확한 흡입유량을 산정하기 위하여 유량보정을 수행하였는데, 보통 3~4주에 1회 정도 axial blower의 carbon brushes (Model GB1)를 교환한 후 Slack-Tube[®] Manometers (USA, Dryer Instruments Inc.)와 high volume orifice fit (USA, Graseby/GMW)를 이용하여 EPA Method TO-13의 calibration of sampling systems 항목에 의거하여 유량보정을 수행하였다.

시료의 채취에 사용된 여지는 수정섬유여지(quartz microfiber filter, QM-A, 8' × 10'', Whatman)를 사용하였다. 여지는 시료채취 전후로 3일간 항온, 항습상태의 전자 메시게이터 (Sanplatec Corp., Model Oyin 09678BN) 내에 보관하여 항량시킨 후 0.01 mg의 감도를 갖는 전자저울 (A & D Co., Model HM-202)로 칭량하였다. 칭량 전후의 무게차를 분진의 무게로 간주하였으며 이를 유량으로 나누어 분진농도를 계산하였다.

대기 중의 PM-10을 채취한 여지는 무기원소 및

이온성분의 분석을 위하여 자체 제작한 스테인레스 재질의 펀처 (stainless steel puncher, 직경 38 mm)를 이용하여 원형으로 일정 부분(5조각)을 절취하였으며, 절취된 여지에 대해 전처리를 수행하였다. 수정섬유여지에 채취된 대기 중 PM-10의 무기원소 분석을 위한 전처리 방법은 미국 EPA가 1992년 10월 13일에 고시한 CWA (Clean Water Act)의 microwave 전처리법을 준용하여 Questron (Questron사, Model Q-15 MicroPrep)을 이용한 질산-염산 전처리 방법을 사용하였다 (Link *et al.*, 1998; 황인조와 김동술, 1997). 또한, PM-10의 수용성 이온성분을 분석하기 위하여 절취한 여지를 초순수에 침적시켜 초음파 추출기로 추출하는 전처리 방법을 이용하였으며 이는 다음의 문헌을 참고할 수 있다 (Appel, 1993).

본 연구지역에서 채취한 PM-10 시료 중 무기원소의 분석을 위하여 전처리가 끝난 시료는 ICP-AES 분석법 (DRE ICP, Leeman Labs Inc.)을 이용하여 Al, Mn, Ti, V, Cr, Fe, Ni, Cu, Zn, As, Se, Cd, Ba,

Table 2. A summary of PM-10 sampling and analytical methods.

	1999		2000		2001	
Sampling particles	PM-10		PM-10		PM-10	
Sampler	High-volume air sampler		High-volume air sampler		High-volume air Sampler	
Filter media	Quartz filter		Quartz filter		Quartz filter	
Sampling period	Mar. 4 ~ Dec. 30		Jan. 7 ~ Dec. 29		Jan. 15 ~ Dec. 22	
Sampling duration	24 hr		24 hr		24 hr	
NO. of samples	Spring	19	Spring	20	Spring	24
	Summer	12	Summer	15	Summer	14
	Fall	15	Fall	8	Fall	7
	Winter	5 ^a	Winter	12 ^b	Winter	6 ^c
	Total	51	Total	55	Total	51
Analytical methods	Gravimetric method ^d		Gravimetric method		Gravimetric method	
	ICP-AES ^e		ICP-AES		ICP-AES	
	IC ^f		IC		IC	
	EA ^g		EA		EA	

a: December 1999 samples, b: January, February, and December 2000 samples, c: January, February, and December 2001 samples, d: Sampling method for aerosol mass, e: Analytical method for inorganic elements, f: Analytical method for ionic components, g: Analytical method for total carbon

Ce, Pb, Si 등 16개 항목을 분석하였다. 또한 수용성 이온성분의 농도를 분석하기 위하여 이온 크로마토 그래피(Dionex사, Model DX-400)를 이용하여 Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} 등 8개 이온성분을 분석하였다. 시료 중에 포함되어 있는 탄소 성분(carbonaceous species)은 Elemental Analyzer (Model Flash EA 1112, ThermoQuest CO.)를 이용하여 분석하였다. 시료 중에 포함되어 있는 탄소성분을 분석하기 위해서는 적당량의 시료 준비가 필요하다. 즉, 시료는 반드시 900°C에서 완전연소가 이루어져야 하며 원소분포가 균일하여야 정확한 분석이 가능하며, 시료의 무게는 0.01~500 mg 정도가 적당하다. 표 2에 PM-10 시료의 채취방법과 계절별 시료의 수, 각 분석방법 등을 나타내었다.

3. 결과 및 고찰

3.1 PMF 모델링 결과

PMF 모델을 수행하기 위해서는 먼저 입력 자료를 구성해야 하는데, 총 157개의 시료 중 29개의 시료를 제외하고 최종적으로 128개 시료와 25개 항목으로 된(행 128개, 열 25개로 구성된 행렬) 입력 자료를 재구성하였다. 원자료의 재구성이 완료되면 PMF 모델이 읽어 들일 입력파일(INI 파일)을 작성해야 한다. 다음 단계는 작성된 입력파일을 이용하여 모델링을 수행하고 최적의 인자 수(오염원의 수)를 결정한다. 본 연구에서 PMF 모델링을 수행한 결과 최적의 인자수를 11개로 결정하였으며, 인자의 수가 최종적으로 정해진 후, 입력파일에서 FPEAK 변수를 변화시키면서 FPEAK test(FPEAK 값의 변화에 따른 Q값의 변화)를 수행하여 FPEAK 값을 결정한다. 입력파일에서 다른 변수들은 고정하고 결정된 FPEAK 값만 변경하여 PMF 모델을 수행하면 최종적으로 G 행렬과 F 행렬이 계산된다. 이 때 PMF 모델링은 농도 데이터만 이용이 되었고 PM-10의 질량농도는 고려되지 않았기 때문에 G 행렬과 F 행렬의 값들은 실제 오염원 기여도와 오염원 분류표(source profile)를 나타낸다고 볼 수 없다. 그러므로 실제 단위의 오염원 기여도($\mu\text{g}/\text{m}^3$ 또는 ng/m^3)와 오염원 분류표($\text{ng}/\mu\text{g}$ 또는 ng/ng)를 얻기 위해서는 scaling 계수(S_k)가 사용되며 이 scaling 계수는 다중회귀 분석(multiple

linear regression; MLR)을 이용하여 얻을 수 있다.

PMF 모델링 결과 생성된 F 행렬의 값들을 scaling 계수 S_k 로 나누어 주면 실제 단위의 F 행렬(scaled F 행렬)을 구할 수 있으며, 이는 실제 단위를 갖는 실제 오염원 분류표(source profile)를 의미한다. 이 scaled F 행렬은 11개 오염원의 정성적 분류에 이용되며 각 오염원에 대한 고찰은 다음의 문헌을 참고할 수 있다(황인조와 김동술, 2003). 각 오염원에 대한 정성적 확인이 이루어진 후, 최종적으로 G 행렬의 값들에 scaling 계수 S_k 를 곱하여 주면 실제 단위의 G 행렬(scaled G 행렬)을 구할 수 있다. 이는 실제 단위를 갖는 실제 오염원 분류표와 실제 오염원 기여도를 의미한다. 상기의 자세한 과정은 다음의 문헌을 참고할 수 있다(황인조와 김동술, 2003; 황인조 등, 2001).

Table 3. Average seasonal source contribution for PM-10 using the PMF model in Suwon area.

Season (NO. of samples)		Spring (55)	Summer (30)	Fall (26)	Winter (17)
Field burning	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	12.2	5.4	3.2	20.3
	%	10.6	9.7	4.3	21.8
Waste incineration	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	10.1	4.2	15.8	14.2
	%	8.8	7.6	21.2	15.2
Secondary aerosol	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	22.1	23.8	15.7	23.7
	%	19.2	42.6	21.0	25.4
Aged seasalt	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.2	0.1	0.1	0.08
	%	0.2	0.2	0.1	0.1
Soil related	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	30.3	2.1	2.8	7.2
	%	26.3	3.7	3.7	7.7
Fossil fuel combustion	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	6.9	7.3	20.1	7.8
	%	6.0	13.0	26.9	8.4
Secondary Sulfate	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	4.8	6.9	3.3	2.0
	%	4.2	12.4	4.4	2.2
Nonferrous Metal	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	0.5	0.1	0.1	0.3
	%	0.5	0.2	0.2	0.4
Industry Related	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	12.6	2.7	3.8	4.8
	%	10.9	4.8	5.1	5.1
Motor Vehicle	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	8.8	3.2	7.7	7.5
	%	7.7	5.7	10.3	8.1
Oil, coal combustion	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	6.5	0.04	2.1	5.4
	%	5.7	0.1	2.8	5.8
Total Mass	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	115.0	55.8	74.7	93.3

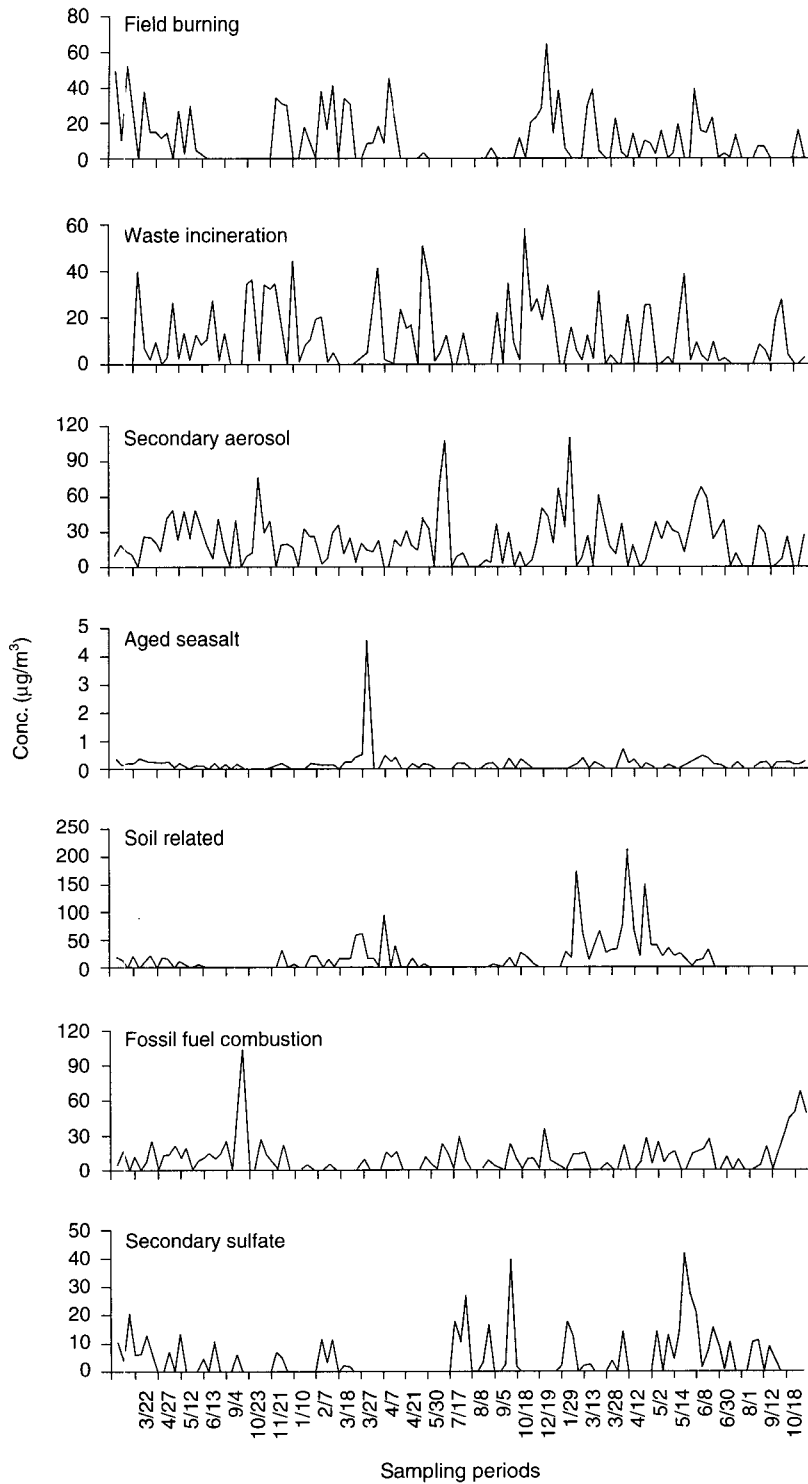


Fig. 2. Temporal variation of source contribution in Suwon area.

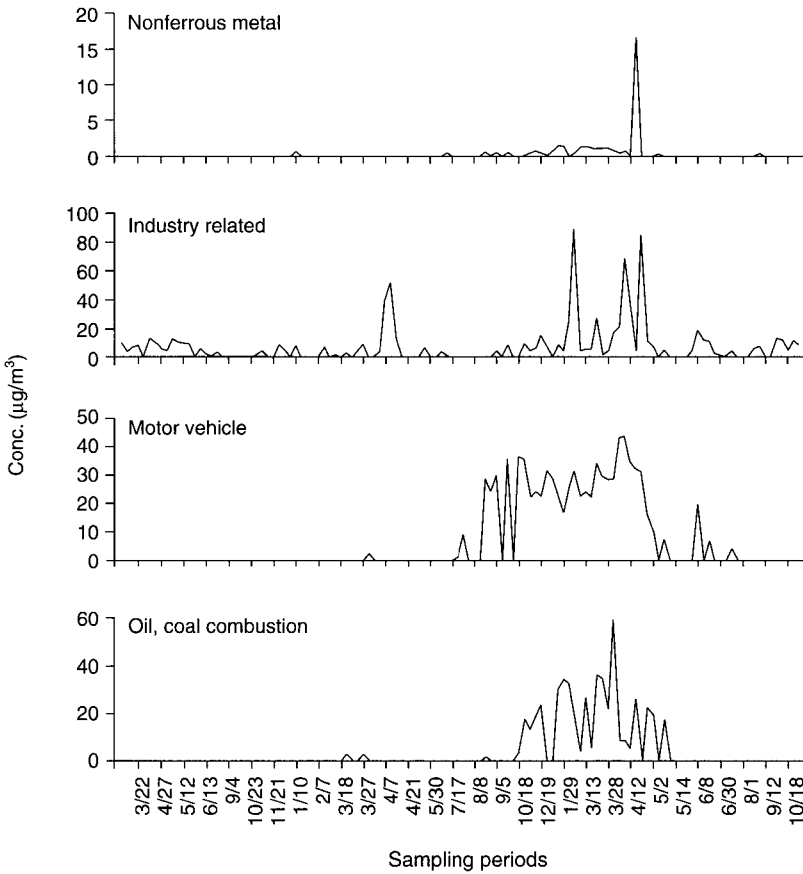


Fig. 2. Continued.

3.2 각 오염원의 정량적 기여도 평가 및 고찰

본 연구에서는 PMF 모델링의 최적 변수들을 결정하고 이 변수들을 이용하여 모델링을 수행하여 최적 인자수를 결정하였다. 최적의 인자수를 선택한 후 FPEAK test를 수행하여 G행렬과 F행렬을 산출하고 다중회귀 분석을 수행하여 최종적으로 scaled G행렬과 scaled F행렬을 구하였다. 최종적으로 오염원 분류표를 의미하는 scaled F행렬을 이용하여 각 오염원의 존재를 확인하였으며, 각 오염원의 기여도를 의미하는 scaled G행렬을 이용하여 각 오염원의 정량적 기여도를 추정하였다. 본 연구대상 지역에서 연구 기간동안 각 오염원의 기여도 변화를 그림 2에 나타내었다. 또한 각 오염원의 계절별 평균 질량 기여도와 평균 질량 백분율을 표 3에 나타내었다. 기여도의 평가에서 유의해야 할 점은 다중회귀 분석을 수행할

때 PM-10 질량농도에 기여하는 오염원이 모두 확인된 것으로 가정하였기 때문에 기여도에서 확인되지 않는 미확인 기여도 부분이 존재하지 않는다는 것이다.

불법소각 오염원은 겨울철과 봄철에 각각 21.8% (20.3 µg/m³), 10.6% (12.2 µg/m³)로 여름철과 가을철에 비해 높은 기여도를 나타내었다. 불법소각은 농업 관련 식물성 소각(biomass burning)을 포함하여 각종 생활쓰레기의 불법소각, 건축 공사현장에서의 건축 폐기물, 목재 등의 소각이 포함된다. 본 연구대상 지역 주변은 예전에 농경지가 발달하여 봄철에 농업 관련 소각이 빈번한 편이었지만 현재는 주변지역이 주거지역과 상업지역으로 변해 가는 과정에 있어 농업관련 소각의 영향은 그리 크지 않을 것으로 사료된다. 반면에 연구대상 지역 주변이 점차 주거지역과

상업지역으로 변해 가는 과정에서 시행되는 크고 작은 공사장 특히, 연구지역의 서쪽에 위치한 신영통 지역에서 1998년부터 현재까지 진행되고 있는 대단위 아파트 공사장에서 폐 건축자재 불법소각에 의한 영향은 클 것으로 사료된다.

쓰레기 소각 오염원의 기여도는 가을철 21.2% ($15.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 겨울철 15.2% ($14.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 봄철 8.8% ($10.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 여름철 7.6% ($4.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 순으로 조사되어 가을철과 겨울철에 높은 기여도를 나타내었다. 쓰레기 소각 오염원의 경우는 그림 2에 나타난 바와 같이 특정 연도, 달, 계절에만 배출되는 것이 아니라 시료채취 기간동안에 지속적으로 일정한 기여를 하는 것으로 조사되었다. 수원지역 207개 대기오염물질 배출업소 중 소각시설로 분류된 곳은 약 27개 업소로서 전체 대기오염물질 배출업소 중 약 13% 정도를 차지하고 있다. 특히, 시료 채취장소 바로 앞쪽에 학교에서 발생한 생활쓰레기를 소각하는 소각로가 위치해 있으며, 북서쪽으로 약 2km 떨어진 곳에 하루에 600톤의 쓰레기를 소각할 수 있는 수원시 소각장이 2000년 4월부터 가동을 시작하여 본 연구지역에 영향을 미치는 것으로 사료된다.

2차 입자 관련 오염원은 여름철 42.6% ($23.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 겨울철 25.4% ($23.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 가을철 21.0% ($15.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 봄철 19.2% ($22.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 순으로 조사되어 전 계절에 걸쳐 높은 질량 기여도를 나타내었다. 또한 2차 sulfate 관련 오염원은 여름철 12.4% ($6.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 가을철 4.4% ($3.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 봄철 4.2% ($4.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 겨울철 2.2% ($2.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 순으로 나타나 2차 입자 관련 오염원은 여름철에 가장 많은 기여를 하고 있는 것으로 조사되어 여름철의 태양 빛에 의한 광화학 반응에 의해 2차 입자가 생성된다는 연구결과와 일치하였다. 특히, 여름철의 경우 거의 50%에 가까운 기여도를 보이고 있어 본 연구지역의 여름철 주요 오염원으로 판단된다. Chow *et al.* (1992)의 미국 LA 지역 PM-10 오염원의 기여도 추정 연구결과에 의하면, PM-10 농도 $243 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 중 ammonium-sulfate는 $26.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, ammonium-nitrate의 경우는 $123 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 정도의 질량 기여도를 나타내어 PM-10 농도의 약 40~50% 정도를 차지하는 것으로 보고된 바 있다. 또한 김관수 등(2001)의 연구결과에서 수원지역 PM-10 오염원 중 여름철 2차 입자의 기여도는 약 36%를 차지하는 것으로 조사되었으

며, Chow *et al.* (1992a)의 미국 캘리포니아 지역 PM-10 오염원의 기여도 추정 연구에서는 2차 입자의 기여도가 34~69% 정도를 차지한다고 보고한 바 있어 본 연구결과와 유사한 경향을 나타내었다. 해염 오염원은 자연 발생 오염원으로서 전 계절에 걸쳐 0.1~0.2% ($0.08 \sim 0.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 낮은 기여도를 나타내어 계절별 기여도 경향도 거의 유사하였으며 본 연구지역의 대기질에는 큰 영향을 미치지 않는 것으로 조사되었다. 해염 오염원의 기여도가 낮은 이유는 본 연구지역에 유입되는 해염의 대표 직경이 PM-10보다 크기 때문이다. Chow *et al.* (1992)에 의하면 미국 캘리포니아 지역의 해염 기여도는 1.2~1.5%를 나타내었는데, 이는 캘리포니아가 바다 근처에 위치하기 때문에 본 연구에서의 해염 기여도에 비해 높은 기여도를 나타낸 것으로 생각된다. 또한 비철금속 관련 오염원의 경우도 모든 계절에서 0.2~0.5% ($0.1 \sim 0.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 낮은 기여도를 나타내어 해염 오염원과 마찬가지로 계절별 기여도 변화 경향에 차이가 존재하지 않았다.

토양 관련 오염원은 봄철 26.3% ($30.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 겨울철 7.7% ($7.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 가을철, 여름철이 각각 3.7% ($2.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $2.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 순으로 조사되어 봄철에 가장 높은 기여도를 나타내었다. Chan *et al.* (1999)은 호주 Brisbane에서 토양 오염원의 기여도를 25%로, 이태정과 김동술(1997)은 25.2%로 추정된 바 있다. 토양 오염원은 자연발생 오염원으로서 바람과 차량의 통행 등에 의해 도로, 지표면의 입자상 물질이 부유하거나 봄철의 경우는 서풍과 북서풍의 영향으로 중국으로부터 유입되는 황사의 영향을 받을 것으로 사료된다. 특히, 2000년과 2001년 봄철에 발생한 황사는 발생 기간도 길었을 뿐만 아니라 농도 또한 매우 높게 나타나 이 기간동안의 토양 오염원 기여도에 많은 영향을 준 것으로 사료된다(그림 2). 또한 연구대상지역의 서쪽에 위치한 신영통 지역에서 1998년부터 현재까지 진행되고 있는 대단위 아파트 공사 현장에서 공사 차량의 빈번한 출입에 의해 부유되는 토양 분진과 주변 도로의 포장시에 발생하는 토양 분진도 일정 부분 영향을 준 것으로 생각된다.

화석연료 연소 오염원은 가을철 26.9% ($20.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 여름철 13.0% ($7.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 겨울철 8.4% ($7.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 봄철 6.0% ($6.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 순으로 조사되었다. 화석연료 연소 오염원의 조성은 기름, 석탄 연소 오염원

의 조성과 유사하지만 화석연료 연소 오염원의 오염원 분류표에서 주로 기여하는 것이 TC 성분으로 나타나 경유의 연소에 의해 배출되는 오염원일 가능성이 크며, 화석연료 연소 오염원에서 석탄의 연소는 제외하였다. 참고로 수원지역 경유 사용량은 점차 증가하는 추세이며, 시료채취 기간동안에 지속적으로 일정한 기여를 하는 것으로 조사되었다(그림 2).

산업공정 관련 오염원의 경우는 봄철 10.9% ($12.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 겨울철 5.1% ($4.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 가을철 5.1% ($3.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 여름철 4.8% ($2.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 순으로 조사되어 봄철에 가장 높은 기여도를 나타내었으며 여름철, 가을철, 겨울철은 거의 비슷한 기여도를 나타내었다. 이는 산업공정 관련 오염원의 경우 계절에 관계없이 일정하게 오염물질을 배출하기 때문이다. 즉, 이러한 오염원은 연구대상 지역의 대기질에 큰 영향을 미치지 않지만 지속적으로 꾸준히 일정한 양의 기여를 하는 것으로 생각할 수 있다. 본 연구지역 주변에 존재하는 총 207개의 대기오염물질 배출업소 중에서 대규모, 중소규모 산업시설은 약 100여개 업소가 존재하며 이러한 배출시설에서 배출되는 PM-10이 주로 기여하는 것으로 사료된다.

자동차 관련 오염원의 기여도는 5.7% ($3.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$) ~ 10.3% ($7.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 범위를 나타내었는데, 이는 자동차 관련 오염원 역시 계절에 큰 영향을 받지 않고 비교적 일정하게 오염물질을 배출하기 때문으로 사료된다. 그러나 본 연구지역 주변의 상황(주거지역 증가에 따른 차량의 증가, 주변 도로 확장에 따른 차량 통행량 증가, 기존 고속도로 및 지방도로 차량의 통행 등)을 고려할 때 기여도가 과소평가 된 것으로 생각된다. 그 이유는 화석연료 연소 오염원이 경유 연소에 의한 오염원일 가능성이 크기 때문에 자동차 관련 오염원은 경유 자동차의 영향이 일부 배제된 휘발유 차량의 기여도만을 의미하는 것으로 생각되며, 두 오염원에 대한 지속적인 연구가 추후에 이루어져야 할 것으로 사료된다.

마지막으로 기름, 석탄 연소 오염원은 겨울철 5.8% ($5.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 봄철 5.7% ($6.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 가을철 2.8% ($2.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 여름철 0.1% ($0.04 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 순으로 조사되어 겨울철과 봄철에 높은 기여도를 나타내었다. 연구지역의 난방용 기름 사용량은 현재 도시가스의 보급으로 점차 줄어드는 추세이며 석탄 소비량 역시 90년대 초반부터 급격히 감소하는 경향을 보이고 있

어 기름, 석탄 연소 오염원의 기여도는 점차 줄어드는 것으로 사료된다. 그러나 수원지역에 4개의 아파트 단지에서는 난방용으로, 그리고 산업용 보일러에서 공업용으로 현재도 B-C유를 지속적으로 사용하고 있으며, 또한 석탄 소비량이 계속 감소하는 추세이기는 하지만 무시할 수 없는 양이 사용되고 있는 실정 이므로 기름, 석탄 연소 오염원은 연구지역의 대기질에 꾸준히 기여할 것으로 사료된다.

3.3 각 오염원의 계절별 기여도 평가 및 고찰

그림 3은 각 오염원의 계절별 평균 질량 기여도를 비교하여 나타낸 것이며, 또한 월별 평균 질량 기여도를 그림 4에 나타내었다. 먼저 봄철에는 PM-10 평균 농도 $115.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 중에서 토양 오염원이 $30.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (26.3%)으로 가장 많은 기여를 하는 것으로 나타났다. 특히, 4월에 $39.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (31.4%)으로 가장 높은 기여도를 나타내었다(그림 4). 다음으로는 2차 입자 관련 오염원(2차 입자 오염원+2차 sulfate 오염원)이 $26.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (23.4%) 기여하는 것으로 조사되었다. 산업공정 관련 오염원과 불법소각 오염원이 각각 $12.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (11.0%), $12.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (10.6%) 기여하는 것으로 나타났다. 다음으로는 쓰레기 소각 오염원, 자동차 관련 오염원, 화석연료 연소 오염원, 기름, 석탄 연소 오염원이 각각 $10.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (8.8%), $8.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (7.7%), $6.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (6.0%), $6.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (5.7%) 기여하는 것으로 조사되었다. 봄철의 각 오염원 기여도 경향의 특징은 자연적 오염원의 기여도가 다른 계절에 비해 크다는 것이다. 전술한 바와 같이 봄철은 우리나라의 기상학적 특징에 의해 중국으로부터 불어오는 황사의 영향을 많이 받으며, 다른 계절에 비해 빠른 풍속의 영향으로 토양 분진의 비산 또한 토양 오염원의 높은 기여도에 영향을 주게 된다. 한편, 봄철의 실제 측정 PM-10 농도는 $119.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 PMF 모델링에 의해 산출된 PM-10 농도($115.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$)와 거의 유사한 범위를 보이고 있었다.

여름철에는 PM-10 평균 농도 $55.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 중에서 2차 입자 관련 오염원이 $30.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 기여하는 것으로 조사되어 PM-10 농도의 약 55%를 차지하고 있었다. 월별로는 7월에 57%, 6월에 55%, 8월에 51%의 기여도를 나타내어(그림 4) 여름철의 주요 오염원은 2차 입자 관련 오염원으로 사료된다. 다음으로는 화석연료 연소 오염원, 불법소각 오염원, 쓰레기 소각

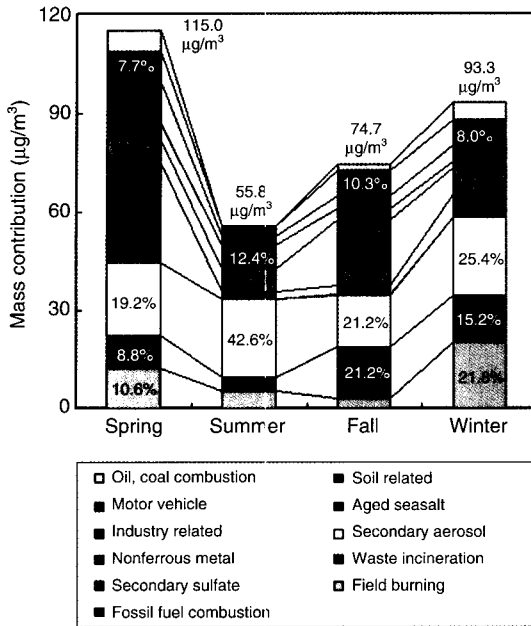


Fig. 3. Result of seasonal source contribution (µg/m³).

오염원, 자동차 관련 오염원이 각각 7.3 µg/m³ (13.1%), 5.4 µg/m³ (9.7%), 4.2 µg/m³ (7.5%), 3.2 µg/m³ (5.7%) 기여하는 것으로 나타났다. 여름철 토양 오염원의 기여도는 봄철에 비해 상당히 낮았으나 2차 입자 관련 오염원의 기여도는 봄철과 유사한 질량 기여도를 나타내고 있었다. 여름철의 실제 측정 PM-10 농도(71.5 µg/m³)와 PMF 모델링에 의해 산출된 PM-10 농도(55.8 µg/m³)와의 비는 78%로 실제 농도에 비해 과소평가 되었다.

가을철의 경우는 74.7 µg/m³ 중에서 화석연료 연소 오염원이 20.1 µg/m³ (26.9%)으로 가장 많은 기여를 하는 것으로 조사되었다. 특히 10월에 30.0 µg/m³ (36.4%)으로 가장 높은 기여도를 나타내었다(그림 4). 다음으로는 2차 입자 관련 오염원, 쓰레기 소각 오염원이 각각 19.0 µg/m³ (25.4%), 15.8 µg/m³ (21.2%)으로 높은 기여도를 나타내었다. 화석연료 연소 오염원, 쓰레기 소각 오염원의 기여도가 봄철과 여름철에 비해 많은 부분을 차지하고 있었으며, 특히 쓰레기 소각 오염원의 경우는 다른 계절에 비해 높은 기여도를 나타내었다.

마지막으로 겨울철의 경우는 93.3 µg/m³ 중에서 2

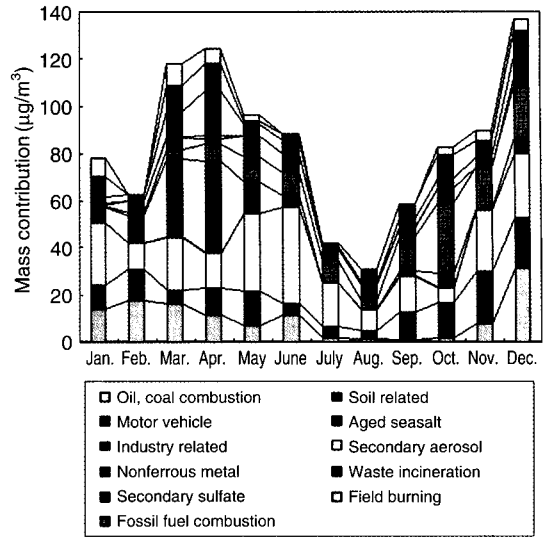


Fig. 4. A comparison of monthly source contribution (µg/m³).

차 입자 관련 오염원과 불법소각 오염원이 각각 25.7 µg/m³ (27.5%), 20.3 µg/m³ (21.8%)으로 높은 기여도를 나타내었다. 특히, 불법소각 오염원은 12월에 31.7 µg/m³ (23.2%)으로 가장 높은 기여도를 나타내었으며(그림 4), 다른 계절에 비해 1.7~6배 정도 높은 기여도를 나타내는 것으로 조사되었다. 또한 쓰레기 소각 오염원의 경우도 14.2 µg/m³ (15.2%)으로 봄철, 가을철과 유사한 기여도를 나타내었다.

4. 각 오염원의 효율적 제어 및 관리방안 고찰

이상과 같이 각 오염원의 월별, 계절별 평균 질량 기여도에 대해 고찰을 하였으며, 최종적으로 본 연구의 연구기간인 1999년부터 2001년까지의 전체 평균 기여도를 그림 5에 나타내었다. 실제 연구기간 전체 평균 PM-10 농도는 93.2 µg/m³이며, PMF 모델링 결과 계산된 연구기간 전체 평균 PM-10 농도는 90.2 µg/m³으로서 아주 유사한 값을 나타내었다. 평균 PM-10 농도 90.2 µg/m³ 중 2차 입자 관련 오염원(2차 입자 오염원+2차 sulfate 오염원)이 28.8% (26.0 µg/m³)의 기여도를 나타내어 연구지역의 대기질에 가장 많은 영향을 미치는 오염원으로 조사되었다. 그

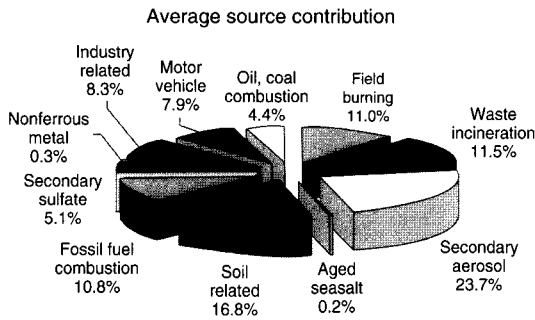


Fig. 5. Average source contribution for the whole period of sampling using the PMF model in Suwon area.

다음으로는 토양 관련 오염원이 16.8% ($15.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 기여도를 나타내었다. 그 다음으로는 쓰레기 소각 오염원 11.5% ($10.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 불법소각 오염원 11.0% ($9.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 화석연료 연소 오염원 10.8% ($9.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 산업공정 관련 오염원 8.3% ($7.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 자동차 관련 오염원 7.9% ($7.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 기름, 석탄 연소 오염원 4.4% ($4.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 비철금속 관련 오염원 0.3% ($0.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 해염 오염원 0.2% ($0.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 순으로 기여도를 나타내었다.

이러한 결과로 본 연구지역의 대기질에 영향을 미치는 여러 오염원의 기여도를 파악할 수 있으며, 본 연구지역 오염원의 효율적 제어, 방지대책과 관리방안의 수립 등을 통해 본 연구지역의 대기질 개선을 위한 기초 자료로 이용할 수 있을 것이다. 즉, 평균 PM-10 농도의 83% ($74.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$)가 인위적 오염원에 의한 영향이었으며, 나머지 17% ($15.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$)가 토양 관련 오염원, 해염 오염원 등과 같은 자연적 오염원에 의한 영향으로 조사되었다. 따라서 본 연구지역의 대기질 개선을 위해서는 인위적 오염원 중에서 28.8% ($26.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 기여도를 나타내는 2차 입자 관련 오염원에 대한 효율적인 제어 방안과 관리 대책이 시급하다고 할 수 있다. 또한 16.8% ($15.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 기여도를 나타낸 토양 관련 오염원의 경우는 봄철의 황사 영향을 많이 받는 자연적 오염원이지만, 본 연구지역 주변에서 시행되는 각종 대·소규모 토목공사에 의한 비산 토양 분진의 영향도를 볼 것으로 사료된다. 특히, 본 연구지역의 남서쪽으로 2004년 완공 예정인 화성태안지구 택지 개발, 2005년 완공 예정인 화성태안 3지구 택지 개발, 2007년 완공 예정인

화성·동탄지구 택지 개발 등이 예정되어 있어 비산 토양 분진이 본 연구지역의 대기질에 더 많은 영향을 줄 것으로 예상된다. 이에 따라 연구지역 주변의 각종 토목 공사 현장과 택지 개발 현장에서 발생하는 비산 토양 분진에 대한 적절한 저감 대책과 관리 방안이 필요할 것이다.

한편 불법소각 오염원은 11.0% ($9.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 기여도를 나타내었는데, 전술한 바와 같은 각종 토목 공사 현장과 택지 개발 현장에서 불법소각이 빈번하게 발생하여 본 연구지역의 대기질에 더 많은 영향을 줄 것으로 예상되므로 이에 관련된 규제 및 감시, 홍보 활동이 요구된다. 또한 7.9% ($7.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 기여도를 나타낸 자동차 관련 오염원의 경우도 본 연구지역의 대기질에 더 많은 영향을 줄 것으로 판단된다. 즉, 영통지구의 확장에 따른 교통량 증가, 택지 개발 현장의 공사 차량, 택지 개발 완료 후 주민들의 입주에 따른 도로의 확장 및 교통량 증가 등에 의해 자동차 관련 오염원의 기여도는 증가할 것으로 예상되며, 이에 따른 대책이 시급한 것으로 사료된다. 마지막으로 각각 11.5% ($10.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$)와 10.8% ($9.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 기여도를 나타낸 쓰레기 소각 오염원과 화석연료 연소 오염원의 경우는 대기오염물질을 제어할 수 있는 적절한 방지 장치의 설치와 유지·보수 등을 통하여 대기 중으로 배출되는 대기오염물질의 양을 최대한 줄이고, 점진적인 청정연료로의 교체 등과 같은 관리 방안이 필요할 것이다.

5. 결 론

1999년 3월부터 2001년 12월까지 경희대학교 수원캠퍼스에서 채취한 PM-10 자료를 이용하여 수용방법론 중에서 가장 최근에 개발된 PMF 모델을 적용하여 본 연구지역에 존재하는 각 오염원의 정량적 기여도를 파악하고자 하였다. 또한 이를 토대로 본 연구지역의 오염원에 대한 효율적인 제어 및 관리방안을 제시하고자 하였으며, 본 연구의 수행을 통하여 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

본 연구지역에서 1999년부터 2001년까지의 전체 평균 기여도는 2차 입자 관련 오염원이 28.8% ($26.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 기여도를 나타내어 연구지역의 대기질에 가장 많은 영향을 미치는 오염원으로 조사되었으며,

다음으로는 토양 관련 오염원이 16.8% ($15.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 쓰레기 소각 오염원 11.5% ($10.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 불법소각 오염원 11.0% ($9.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 화석연료 연소 오염원 10.8% ($9.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 산업공정 관련 오염원 8.3% ($7.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 자동차 관련 오염원 7.9% ($7.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 기름, 석탄 연소 오염원 4.4% ($4.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 비철금속 관련 오염원 0.3% ($0.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 해염 오염원 0.2% ($0.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 순으로 조사되었다.

따라서 본 연구지역의 대기질 개선을 위해서는 인위적 오염원 중에서 28.8%의 기여도를 나타내는 2차 입자 관련 오염원에 대한 효율적인 제어 방안과 관리 대책이 시급하다고 할 수 있다. 또한 16.8%의 기여도를 나타낸 토양 관련 오염원의 경우는 봄철의 황사 영향을 많이 받는 자연적 오염원이지만, 본 연구지역 주변에서 시행되는 각종 대·소규모 토목공사에 의한 비산 토양 분진의 영향도 고려하여 연구지역 주변의 각종 토목 공사 현장과 택지 개발 현장에서 발생하는 비산 토양 분진에 대한 적절한 저감 대책과 관리 방안이 필요할 것이다. 한편, 불법소각 오염원은 11.0%의 기여도를 나타내었는데, 각종 토목 공사 현장과 택지 개발 현장에서 불법소각이 빈번하게 발생하여 본 연구지역의 대기질에 더 많은 영향을 줄 것으로 예상되므로 이에 관련된 규제 및 감시, 홍보 활동이 요구된다. 또한 7.9%의 기여도를 나타낸 자동차 관련 오염원의 경우도 본 연구지역 주변의 특성상 본 연구지역의 대기질에 더 많은 영향을 줄 것으로 예상되며, 이에 따른 대책이 시급한 것으로 사료된다. 마지막으로 각각 11.5%와 10.8%의 기여도를 나타낸 쓰레기 소각 오염원과 화석연료 연소 오염원의 경우는 적절한 방지 장치의 설치와 유지·보수 등을 통하여 대기 중으로 배출되는 대기 오염물질의 양을 최대한 줄이고, 점진적인 청정연료로의 교체 등을 통하여 본 연구지역의 대기질 개선이 가능할 것이다.

본 연구에서 사용된 PMF 모델은 수용방법론 중에서 가장 최근에 개발된 모델로서, 구미를 중심으로 연구가 활발히 진행되고 있지만 국내의 경우는 PMF 모델링 연구가 전무한 상황에서 국내에 처음으로 적용한다는 것에 본 논문의 의의가 있다고 할 수 있다. 특히, PMF 모델은 오염원의 정량적 기여도 추정 연구에 필수적인 오염원 분류표에 대한 자료가 전무한 우리나라의 실정에 맞는 수용방법론이라 할

수 있다. 또한 다른 연구에 비해 더 많은 오염원 추적자(marker)의 분석 특히, 입자상 탄소성분의 분석 등을 통하여 국내에서 연구된 바 있는 여타의 다변량 수용방법론에 비해 PMF 모델은 여러 개의 오염원이 중복 출현될 가능성을 줄여 더 정확한 오염원을 확인할 수 있다는 점에서 과거 연구와 비교하여 차별화된다고 할 수 있다.

사 사

본 연구의 일부는 1999년 한국학술진흥재단의 대학부설연구소 지원과제(99-005-E00025)의 일환으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

- 기상연보(1999~2001) 한국기상청.
- 김관수, 황인조, 김동술(2001) 수원지역 대기 중 PM-10 오염원의 정량평가를 위한 수용방법론의 개발, 한국대기환경학회지, 17(2), 119-131.
- 김동술, 황인조(2002) 미세먼지의 발생 메커니즘 및 미세먼지 오염원의 추정 방법론, 공기청정기술, 15(1), 38-53.
- 대기환경연구회(2000) 대기환경개론, 동화기술.
- 수원시(2002) <http://www.suwon.ne.kr>.
- 이태정, 김동술(1997) 수원지역 입자상 오염물질의 오염원 기여도의 추정, 한국대기보전학회지, 13(4), 285-296.
- 황인조, 김동술(1997) Submicron 부유분진의 화학적 조성 및 분포에 관한 연구, 한국대기보전학회지, 14(1), 11-23.
- 황인조, 김동술(2003) PMF 모델을 이용한 대기 중 PM-10 오염원 확인, 한국대기보전학회지, 19(6), 701-717.
- 황인조, 김태오, 김동술(2001) PMF 방법론을 이용한 수원지역 PM-10의 오염원 확인, 한국대기환경학회지, 17(2), 133-145.
- Anttila, P., P. Paatero, U. Tapper, and O. Järvinen(1995) Source identification of bulk wet deposition in Finland by positive matrix factorization, Atmospheric Environment, 29(14), 1705-1718.
- Appel, B.R.(1993) Atmospheric sample analysis and sampling artifacts, in *Aerosol measurement principles, techniques, and applications*. Edited by K. Willeke and P.A. Baron, Van Nostrand Reinhold, New

- York, 233-259.
- Budiansky, S. (1980) Dispersion modeling, *Environ. Sci. & Technol.*, 14, 370-374.
- Chan, Y.C., R.W. Simpson, G.H. Mctainsh, P.D. Vowles, D.D. Cohen, and G.M. Bailey (1999) Source apportionment of PM_{2.5} and PM₁₀ aerosols in Brisbane (Australia) by receptor modeling, *Atmospheric Environment*, 33(19), 3251-3268.
- Chow, J.C., C.S. Liu, J. Cassmassi, J.G. Watson, Z. Lu, and L.C. Pritchett (1992) A neighborhood-scale study of PM₁₀ source contributions in Rubidox, CA, *Atmospheric Environment*, 26A(4), 693-706.
- Chow, J.C., J.G. Watson, D.H. Lowenthal, P.A. Solomon, K.L. Magliano, S.D. Ziman, and L.W. Richards (1992a) PM₁₀ source apportionment in California's San Joaquin Valley, *Atmospheric Environment*, 26A(18), 3335-3354.
- Cooper, J.A. and J.G. Watson (1980) Receptor oriented methods of air particulate source apportionment, *JAPCA*, 30(10), 1116-1125.
- Gordon, G.E. (1988) Receptor models, *Environ. Sci. & Technol.*, 22(10), 1132-1142.
- Hidy, G.M. and S.K. Friedlander (1972) The nature of the Los Angeles aerosol. *Proceedings of the 2nd International Clean Air Congress*, Academic Press, New York, 391-404.
- Hopke, P.K. (2000) A guide to Positive Matrix Factorization, in *Workshop on UNMIX and PMF as applied to PM_{2.5}*. Edited by R.D. Willis, RTP, NC, EPA 600/A-00/048.
- Lee, E., C.K. Chan, and P. Paatero (1999) Application of positive matrix factorization in source apportionment of particulate pollutants in Hong Kong, *Atmospheric Environment*, 33(19), 3201-3212.
- Link, D.D., P.J. Water, and H.M. Kingston (1998) Development and validation of the new EPA microwave-assisted leach method 3051A, *Environ. Sci. & Technol.*, 32(22), 3628-3632.
- Miller, M.S., S.K. Friedlander, and G.M. Hidy (1972) A chemical element balance for the Pasadena aerosol, *J. Colloid and Inter. Inter. Science*, 39(1), 165-176.
- Paatero, P. and U. Tapper (1994) Positive matrix factorization: A non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values, *Environmetrics*, 5, 111-126.
- Polissar, A.V., P.K. Hopke, and R.D. Poirrot (2001) Atmospheric aerosol over Vermont: Chemical composition and sources, *Environ. Sci. & Technol.*, 35(23), 4604-4621.
- Polissar, A.V., P.K. Hopke, P. Paatero, W.C. Malm, and J.F. Sisler (1998) Atmospheric aerosol over Alaska, 2. Elemental composition and sources, *J. of Geophysical Research*, 103(D15), 19045-19057.
- Ramadan, Z., X.H. Song, and P.K. Hopke (2000) Identification of sources of Phoenix aerosol by positive matrix factorization, *Air & Waste Manage. Assoc.*, 50(8), 1308-1320.