

PMF 모델을 이용한 용인·수원 경계지역에서 PM₁₀ 오염원의 확인과 상대적 기여도의 추정

Identification of Atmospheric PM₁₀ Sources and Estimating Their Contributions to the Yongin-Suwon Bordering Area by Using PMF

이형우 · 이태정 · 양성수 · 김동술*

경희대학교 대학원 환경응용과학과 대기오염연구실 및 환경연구센터

(2008년 3월 25일 접수, 2008년 7월 4일 채택)

Hyung-Woo Lee, Tae-Jung Lee, Sung-Su Yang and Dong-Sool Kim*

*College of Environment & Applied Chemistry and Center for Environmental Studies,
Kyung Hee University-Global Campus*

(Received 25 March 2008, accepted 4 July 2008)

Abstract

The purpose of this study was to extensively identify PM₁₀ sources and to estimate their contributions to the study area, based on the analysis of the PM₁₀ mass concentration and the associated inorganic elements, ions, and total carbon. The contribution of PM₁₀ sources was estimated by applying a receptor method because identifying air emission sources were effective way to control the ambient air quality. PM₁₀ particles were collected from May to November 2007 in the Yongin-Suwon bordering area. PM₁₀ samples were collected on quartz filters by a PM₁₀ high-volume air sampler. The inorganic elements (Al, Mn, V, Cr, Fe, Ni, Cu, Zn, Cd, Pb, Si, Ba, Ti and Ag) were analyzed by an ICP-AES after proper pre-treatments of each sample. The ionic components of these PM₁₀ samples (Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Ca²⁺ and Mg²⁺) were analyzed by an IC. The carbon components (OC1, OC2, OC3, OC4, OP, EC1, EC2 and EC3) were also analyzed by DRI/OGC analyzer. Source apportionment of PM₁₀ was performed using a positive matrix factorization (PMF) model. After performing PMF modeling, a total of 8 sources were identified and their contribution were estimated. Contributions from each emission source were as follows: 13.8% from oil combustion and industrial related source, 25.4% from soil source, 22.1% from secondary sulfate, 12.3% from secondary nitrate, 17.7% from auto emission including diesel (12.1%) and gasoline (5.6%), 3.1% from waste incineration and 5.6% from Na-rich source. This study provides information on the major sources affecting air quality in the receptor site, and therefore it will help us maintain and manage the ambient air quality in the Yongin-Suwon bordering area by establishing reliable control strategies for the related sources.

Key words : PM₁₀, Receptor method, PMF, Sources

*Corresponding author.
Tel : +82-(0)31-201-2430, E-mail : atmos@khu.ac.kr

1. 서 론

급속한 도시화 및 산업화가 진행되면서 세계 여러 나라들은 환경오염이라는 피할 수 없는 문제에 직면하였다. 다양한 오염원에서 배출된 오염물질은 시정 악화 및 산성침착 등과 같은 지역규모의 대기오염문제와 오존층 파괴, 온실효과 등과 같은 지구규모의 대기오염문제를 유발하였으며, 더 나아가 인간의 건강과 복지에도 심각한 악영향을 미치고 있는 실정이다(황인조와 김동술, 2003). 특히, 대기 중에 존재하는 미세먼지(PM₁₀)는 인간의 건강에 큰 영향을 미칠 정도로 밀접한 관계를 가진다는 사실은 이미 여러 연구를 통해 밝혀졌다(Gauderman *et al.*, 2000; Dockery *et al.*, 1993). 특히, PM₁₀의 농도가 10 µg/m³ 증가할 때 일별 사망률이 0.5~1.5% 증가하는 것으로 나타났으며(Pope *et al.*, 1995), 호흡기 질환으로 인한 사망이 PM₁₀ 농도와 강한 상관성을 보였다(Schwartz and Dockery, 1992). 또한 PM₁₀이 대기 중에 존재할 경우 태양 복사 에너지의 균형을 깨트리면서 지구의 냉각화 문제를 초래하기도 한다(Polissar *et al.*, 2001). 이처럼 대기환경이나 인체에 지대한 영향을 미치는 PM₁₀은 대기오염 문제를 해결하고 대기질을 개선하는 데 있어 중요한 저감 및 관리 대상물질이다(오미석, 2007).

우리나라의 경우, 1990년대 이후 집중적으로 추진

하고 있는 대기오염 규제정책에도 불구하고, 수도권 지역의 대기오염도 수준은 시정거리의 경우 일평균 수 km에 불과한 수준이다. 따라서 시민들이 느끼는 체감 대기오염도는 매우 높아졌으며 대기오염에 대한 우려는 더욱 심각해졌다. 이는 수도권 지역의 급속한 인구증가와 도시집중화에 따른 대기질이 지속적으로 악화된 결과를 반영한다고 볼 수 있다. 따라서 도시의 체감오염도는 개선될 여지를 보이고 있지 않으며, 대기환경을 개선하기 위한 사회적 비용은 해마다 증대하고 있다. 최근 경기도 지역을 포함한 수도권 지역의 미세먼지 오염도는 정부의 “수도권 대기환경개선에 관한 특별법” 제정 등에서 보는 것과 같이, OECD 국가 중 가장 높은 오염도를 보이고 있으며 오염원의 다양성 및 2차 생성물질의 발생 등으로 그에 대한 관리의 어려움도 수반되고 있다. 따라서 인간의 건강, 오염원, 대기 중 농도와의 관계를 파악하기 위하여 PM₁₀의 오염원을 확인하고 그에 대한 기여도를 추정하는 것은 매우 중요한 과정이다(Zhao and Hopke, 2004).

본 연구에서는 미세먼지 오염도가 빠르게 악화되고 있는 용인·수원 경제지역에 위치한 경희대학교 국제캠퍼스에서 PM₁₀을 채취하고 화학적 분석을 실시하였다. 이를 토대로 각 원소별 상관관계를 분석하여 PM₁₀에 대한 오염원별 기여도를 평가하였다. 특히, 수용모델 중에서 오염원 분류표(source profile)가 확보되어 있지 않은 우리나라 실정에 적합한 양행렬

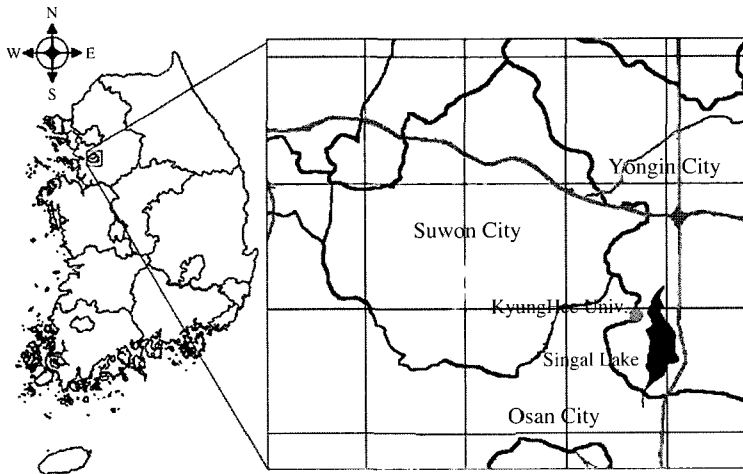


Fig. 1. Location of the study area and the sampling site.

인자분석법(Positive Matrix Factorization: PMF)을 이용하여 PM₁₀의 오염원을 확인하고 기여도를 추정하여, 그에 대한 효과적인 관리방안을 마련하고자 하였다. 이러한 연구결과는 향후 본 연구지역의 대기질을 위한 개별 오염원 중심의 규제, 효율적이고 합리적인 대기환경 정책의 수립 등에 있어 기초자료로 활용될 수 있을 것이다.

2. 연구 방법

2.1 측정지점

본 연구지역의 PM₁₀ 시료는 2007년 5월부터 2007년 11월까지 채취하였다. 시료의 채취장소는 그림 1과 같이 경희대학교 공과대학 옥상(지상 20 m)에서 수행하였다. 본 연구지역은 수원시와 용인시의 경계 지역에 위치하고 있다. 1992년부터 영통택지 조성사업이 시작되어 1997년 사업이 완료됨에 따라 주민들의 입주가 시작되었다. 총 면적은 3.86 km²로서 2007년 7월 현재 약 97,000명 정도의 인구가 거주하는 신흥 개발도시로 조성되었다.

시료의 채취장소는 구체적으로는 수원시에서 동측

으로 약 10 km, 경부고속도로 신갈 나들목에서 서남측으로 약 4 km에 위치하고 있다. 채취점 인근에 저수면적 231 ha의 신갈호수가 있으며, 신갈호 지천유역에 중소 산업시설이 산재되어 있다. 또한 경부고속도로, 영동고속도로, 신갈-안산간 고속도로 등과 수원과 용인을 잇는 42번 국도, 성남과 화성을 연결하는 23번 국지도 등과 같은 크고 작은 산업도로들이 잘 발달되어 있어 교통량이 상당히 많은 편이다(차재두와 김동술, 2005).

본 연구지역 주변의 대기오염 배출업소는 수원시의 경우 3종 9개, 4종 54개, 5종 130개 업소가 있다. 용인시의 경우 대기오염 배출업소는 3종 23개, 4종 197개 5종 417개로 총 637개가 존재한다(통계청, 2005).

2.2 시료채취방법

본 연구에 있어 부유분진 중 공기역학적직경(aerodynamic diameter) 10 μm 이하의 미세먼지(PM₁₀)는 고용량 시료채취 장치인 high-volume air sampler(USA, General Metal Works, Model IP10)를 사용하여 평균 1.28 m³/min의 유량으로 약 24시간 동안 총 53개의 시료를 채취하였다(이태정과 김동술, 1997). 연

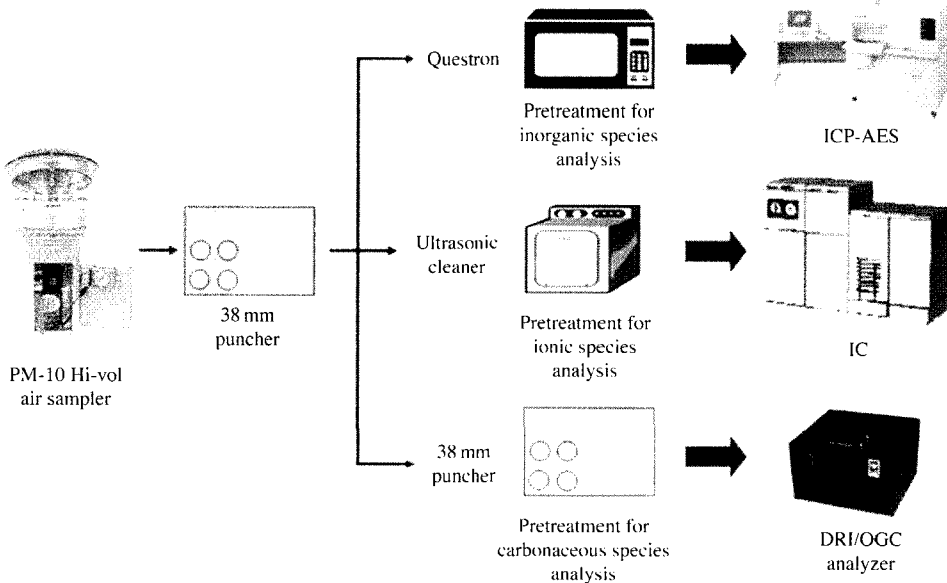


Fig. 2. Process for analyzing chemical elements.

구에 사용한 high-volume air sampler는 분진함유 공기가 유입구로 유입되어 가속 노즐을 통과하며 10 μm보다 큰 입자상 물질은 충돌판(collection shim)에 관성 충돌하여 부착된다. 반면, 10 μm보다 작은 입자상 물질은 상승하는 공기의 흐름을 따라 운송되고 여지에 쌓여 채취된다. 또한, sampler의 정확한 흡입 유량을 산정하기 위하여, 유량보정을 수행하였다. 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 유량을 보정하였다.

시료채취는 수정섬유여지(quartz microfiber filter, QM-A, 8" × 10", Whatman)를 사용하였다. 이 여지는 재질이 SiO₂로서, 약 500°C까지의 고온에 견딜 수 있으며 시료의 채취시 SO₂나 NO₂에 의해 여지의 표면에 생성되는 SO₄²⁻, NO₃⁻ 등과 같은 생성물(artifact)이 거의 발생하지 않아 부유분진의 채취에 적합하다. 여지는 시료채취 전후로 3일간 항온, 항습상태의 전자 데시케이터 (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 간주하였다. 이를 유량으로 나누어 PM₁₀ 농도를 계산하였다.

2.3 시료분석방법

PM₁₀의 특성성분의 분석을 위하여 미세먼지 중 무기원소, 이온, 탄소성분을 그림 2와 같은 절차를 이용하여 분석하였다. 본 연구지역에서 채취한 PM₁₀ 시료 중 무기원소의 분석을 위하여 전처리가 끝난 시료는 ICP-AES 분석법 (DRE ICP, Leeman Labs Inc.)을 이용하여 Al, Mn, V, Cr, Fe, Ni, Cu, Zn, Cd, Pb, Si, Ti, Ba, Ag 14개 항목을 분석하였다. 또한, 수용성 이온성분의 농도를 분석하기 위하여 이온 크로마토그래피 (Dionex사, Model DX-400)를 이용하여, Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻ 8개 항목을 분석하였다. 시료 중에 포함되어 있는 탄소성분은 DRI/OGC 분석기를 사용하여 TOR/IMPROVED (Thermal Optical Reflectance/ Interagency Monitoring of Protected Visual Environments) protocol 법 (Chow

et al., 1993)에 의해 분석하였다. 이 방법을 통해 OC (OC1, OC2, OC3, OC4), OP, EC (EC1, EC2, EC3)를 포함하는 8가지 탄소성분 항목들을 측정할 수 있다. 이 방법은 온도에 따라 분석되는 성분을 각각 OC1, OC2, OC3, OC4, OP, EC1, EC2, EC3으로 명명한다. 먼저 휘발성의 OC 성분을 헬륨 존재하에서 4가지 온도에 따라 분류하는 방식으로 측정한 후 EC를 측정한다. 120°C에서 OC1, 250°C에서 OC2, 450°C에서 OC3, 550°C에서 OC4의 분석이 이루어진다. OC4 측정 후, 연속적인 연소로 인한 필터의 변형으로 OC의 일부가 비휘발성으로 변할 수 있다. 따라서 EC의 과대평가를 최소화하기 위하여 550°C의 2%의 산소와 98%의 헬륨 공기 안에서 산화시켜 필터를 초기 상태로 되돌려준다. 그 때 발생하는 탄소성분을 pyro-

Table 1. Summary of detection limit for inorganic, ionic and carbon components. (unit: mg/L)

Instrument	Species	MDL ^{a)}
ICP-AES	Ba	0.003
	Mn	0.135
	Cr	0.003
	Cd	0.002
	Zn	0.043
	Fe	0.034
	Ni	0.064
	Cu	0.010
	Al	0.026
	V	0.002
	Si	0.188
	Pb	0.040
	Ag	0.008
	Ti	0.009
IC	Na ⁺	0.269
	NH ₄ ⁺	0.101
	K ⁺	0.211
	Mg ²⁺	0.135
	Ca ²⁺	0.505
	Cl ⁻	0.259
	NO ₃ ⁻	0.091
	SO ₄ ²⁻	0.217
DRI/OGC analyzer	OC1	0.002
	OC2	0.043
	OC3	0.148
	OC4	0.148
	OP	0.002
	EC1	0.170
	EC2	0.002
EC3	0.002	

a) MDL: Minimum Detection Limit

Table 2. Analytical uncertainty of ICP-AES, IC and DRI/OGC analyzer.

ICP-AES			IC			DRI/OGC analyzer	
Species	RE (%)	CV (%)	Species	RE (%)	CV (%)	Species	CV (%)
Ba	2.25	1.26	Na ⁺	-1.69	1.07	OC1	4.64
Mn	-0.43	1.06	NH ₄ ⁺	9.55	0.23	OC2	4.39
Cr	2.25	1.26	K ⁺	1.20	1.98	OC3	6.72
Cd	1.25	1.90	Mg ²⁺	2.42	0.89	OC4	17.23
Zn	1.50	1.23	Ca ²⁺	3.29	2.72	OP	5.21
Fe	0.30	1.12	Cl ⁻	-4.99	2.57	EC1	15.20
Ni	0.43	3.09	NO ₃ ⁻	-1.69	12.54	EC2	3.88
Cu	-2.00	3.07	SO ₄ ²⁻	-4.46	5.48	EC3	7.87
Al	-1.00	2.13	-	-	-	-	-
V	1.00	0.75	-	-	-	-	-
Si	17.63	11.08	-	-	-	-	-
Pb	0.50	6.15	-	-	-	-	-
Ag	-3.67	3.87	-	-	-	-	-
Ti	-10.00	1.94	-	-	-	-	-

lized organic carbon, 즉 OP라 한다. 그 후 550°C에서 EC1, 700°C에서 EC2, 850°C에서 EC3 항목이 각각 측정된다. 탄소성분은 자동차오염원에 있어 중요한 marker이기 때문에 디젤자동차와 가솔린 자동차오염원에 대한 탄소성분의 배출 특성을 파악하여, 두 오염원으로 분류할 수 있다.

2. 4 분석 정확도 평가

무기원소, 이온, 탄소성분 분석에 이용된 ICP-AES, IC, DRI/OGC 분석기의 검출한계는 시료의 채취에 사용된 여지의 바탕시험(Blank test)에 대한 3σ 방법으로 산출하였으며, 각 원소의 검출한계는 표 1과 같다.

미량 원소 분석을 실시하는 데 있어 정도관리는 매우 중요하다. 정도관리는 측정치의 참값(true value)에 대한 접근도를 나타내는 정확도 분석과 반복 분석 시 자료의 변동 크기를 나타내는 정밀도(precision) 평가로 나누어진다. 정확도는 상대오차(RE, relative error)로 평가되며 식(1)과 같이 계산할 수 있다. 정밀도는 측정값들의 상대표준편차(RSD, relative standard deviation)와 백분율 값인 변동계수(CV, coefficient of variation)로 나타내어지며 식(2)로부터 계산되어진다.

$$RE(\%) = \frac{\text{Measured mean concentration} - \text{Real concentration}}{\text{Real concentration}} \times 100 \quad (1)$$

$$RSD = \frac{S_{\text{pooled}}}{x_{\text{all}}} \quad (2)$$

where

x_{all} = the average of all replicates

$$S_{\text{pooled}} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{N_1} (x_i - \bar{x})^2 + \sum_{i=1}^{N_2} (x_i - \bar{x})^2 + \sum_{i=1}^{N_3} (x_i - \bar{x})^2 + \dots}{(N_1 + N_2 + N_3 + \dots - N_s)}}$$

where N_s = Data set

N_i = Number of data ∈ set i

$$CV(\%) = \left(\frac{S_{\text{pooled}}}{x_{\text{all}}} \right) \times 100$$

IC, ICP-AES를 이용한 분석에서 분석조건을 검토하기 위하여 일정한 주기로 시료의 농도 수준과 비슷한 표준용액을 주입하였다. 표준용액 농도 분석치를 통해 상대 오차를 계산하였으며, 시료의 반복측정(n=3) 결과를 토대로 상대표준편차를 계산하였다. 반면, 탄소분석의 경우, 아직까지 OC/EC를 구분할 수 있는 표준시료가 존재하지 않기 때문에 동일 시료에 대한 반복측정(n=11)을 통하여 상대표준편차를 계산하였다. 표 2는 각 측정 원소별 상대오차와 상대표준편차를 나타내었다. 측정 정확도를 보면, ICP-AES에서 Si의 상대오차 값이 10%를 초과하며, IC에서는 NH₄⁺의 상대오차 값이 9.55%로 비교적 높은 1수치를 나타내지만, 전반적으로 양호한 수준을

나타내고 있다. 측정 정밀도 결과를 보면, ICP-AES에서는 Si의 CV (%)값은 11.08%로 비교적 큰 값을 가지며, IC에서는 NO₃⁻가 12.54%로 큰 값을 나타내었다. 또한 DRI/OGC 분석기에서는 OC4, EC1이 높은 10%를 초과하는 수치를 나타내었다. 그러나 다른 화학성분에 대하여 비교적 양호한 수준으로 분석되었다.

2.5 PMF 모델링

인자분석(factor analysis)은 상관행렬 구조 형태로 통계적 모형을 구축하고 기본 골격을 형성하는 소수의 인자를 유도하여 변수들 간의 공분산 또는 상관관계를 파악하는 통계기법이다(Gorsuch, 1983). 대기 환경 연구분야에서 인자분석은 오염원의 추정, 입자 중 화학성분의 존재형태 파악 등에 광범위하게 사용하고 있다. 그러나 인자분석은 공분산 행렬에만 의존하여, 불충분한 정보의 제공, 음수(negative value)의 인자부하량 출현, 인자의 회전시에 발생하는 모호성, 즉 물리적으로 완벽한 인자 해석의 불가능 등의 단점을 내포하고 있다. 이와 같은 인자분석의 단점을 극복하기 위하여, 인자분석보다 진보한 PMF 방법론이 개발되었다(Paatero and Tapper, 1994). 인자분석과 PMF 분석의 주된 차이점으로 PMF의 경우, 인자부하량을 항상 양의 값으로 산출할 수 있다. 또한, 상관행렬의 정보에 의존하는 것이 아니라 개개 자료의 최소사승값을 최소로 만들어주는(least-squares minimization) 알고리즘을 가지고 있다. 즉, 개개 자료에 대한 오차 추정(error estimate) 정보에 의존한다. 본 모델은 행렬자료에 대한 각각 자료에 가중치를 주는 알고리즘에 입각하여, 인자부하량이 항상 양의 값으로 오염원 분류 작업시 기존의 인자분석과 비교하여 정확한 추정치를 제공한다. PMF 모델의 장점은 인자분석보다 신뢰성이 높은 정보를 제공하여 오염원의 정성적 분류를 보다 진보적으로 가능하게 한다는 것이다. 반면, 단점은 인자분석에 비해 고도의 전문성이 요구되어 사용하기가 어렵고 분석시간이 길다는 점을 들 수 있다(Qin et al., 2002). PMF 모델식은 식(3)과 같다.

$$X = GF + E \tag{3}$$

여기서, 행렬 X는 차원이 n×m인 자료 행렬로서 n은 시료의 수, m은 분석 화학종을 나타낸다. 즉, X

행렬의 행(row)은 하나의 시료에 대한 화학종들의 농도로, 그리고 열(column)은 각 채취시료들로 구성된다. G 행렬은 n×p 차원, F 행렬은 p×m 차원으로 표시한다. 여기서 p는 추출할 인자의 수를 나타낸다. F 행렬의 행(row)은 특정 오염원에 대한 오염원 분류표를 나타낸다. 이에 대응하는 G 행렬의 열(column)은 특정오염원에 대한 배출량 즉, 각 측정기간에 대한 오염원의 강도(strength)를 의미한다. 일반적으로 G 행렬은 오염원 기여도를 의미하며, G 행렬의 값들을 인자점수(factor score)라 한다. 행렬 G와 F의 값들은 항상 양의 값을 가지게 되며, 또한 행렬 E는 잔차 행렬(residual matrix)을 의미하며 식(4)와 같이 표시할 수 있다(Lee et al., 1999; Paatero, 1998). PMF 분석의 목적은 Q값을 최소화 하는 것인데, 이것은 식(5)과 같이 표현할 수 있다. 여기서 σ_{ij}는 x_{ij}의 표준편차를 나타낸다. 식(5)의 해는 반복적 최소화(iterative minimization) 알고리즘에 의해 구할 수 있다.

$$E_{ij} = X_{ij} - \sum_{h=1}^p G_{ih} F_{hj} \tag{4}$$

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m (E_{ij}^2 / \sigma_{ij}^2) \tag{5}$$

PMF 분석 결과에서 중요한 변수는 EV값(explained variation value)으로서, 이 값은 각 인자의 요소(element)들이 X 행렬의 행 또는 열을 얼마나 설명하는가를 의미한다. EV 분류표(EV profile)는 오염원의 초기 정성적 분류에 이용할 수 있다. EV값은 무차원 값으로서, k번째 인자에서 j번째 화학원소에 대한 EV값은 식(6)에 의하여 계산할 수 있다.

$$EV_{kj} = \frac{\sum_{i=1}^n |G_{ik} F_{ki}| / S_{ij}}{\sum_{i=1}^n \left(\sum_{h=1}^p |G_{ih} F_{hj}| + |E_{ij}| \right) / S_{ij}} \tag{6}$$

여기서, k=1, ..., p이며, s_{ij}는 j번째 시료 중 i번째 원소(x_{ij})의 표준편차를 의미한다. EV값은 0~1 사이의 값을 취하는데, EV_{kj}의 값이 1에 수렴할수록 X 행렬의 j번째 화학원소가 k번째 인자(오염원)를 완벽하게 설명하는 것을 의미한다. 반면, EV_{kj}의 값이 0에 접근할수록, 오염원의 확인 작업이 미흡하다는 것을 의미한다(황인조 등, 2001; Lee et al., 1999; Pa-

Table 3. Summary of PM₁₀ and 30 species mass concentrations used for PMF analysis.

Species	Concentration (µg/m ³)					Number of BDL ^{d)} values (%)	Number of missing values (%)
	Min ^{a)}	Percentile ^{b)}			Max ^{c)}		
		25	50	75			
PM ₁₀	9.013	23.775	44.914	68.444	206.526	0(0.0)	0(0.0)
OC1	0.021	0.106	0.374	0.890	1.637	0(0.0)	0(0.0)
OC2	0.392	0.871	1.211	1.680	2.382	0(0.0)	0(0.0)
OC3	0.563	1.183	1.545	2.268	4.902	0(0.0)	0(0.0)
OC4	0.328	0.757	1.138	1.703	2.555	0(0.0)	0(0.0)
OP	0.295	0.717	1.571	2.605	6.607	0(0.0)	0(0.0)
EC1	0.716	1.902	2.818	4.664	10.209	0(0.0)	0(0.0)
EC2	0.015	0.046	0.073	0.117	0.458	0(0.0)	0(0.0)
EC3	BDL	BDL	BDL	0.012	0.073	33(62.3)	0(0.0)
Na ⁺	0.123	0.289	0.462	0.822	2.919	0(0.0)	0(0.0)
NH ₄ ⁺	0.126	0.938	2.560	4.589	10.535	4(7.5)	0(0.0)
K ⁺	0.023	0.119	0.194	0.430	1.301	0(0.0)	2(3.8)
Mg ²⁺	0.015	0.104	0.225	0.316	0.934	1(1.9)	0(0.0)
Ca ²⁺	0.061	0.536	0.687	1.183	4.505	1(1.9)	1(1.9)
Cl ⁻	BDL	0.066	0.231	0.548	2.123	4(7.5)	0(0.0)
NO ₃ ⁻	0.081	1.093	2.969	7.151	15.069	2(3.8)	3(5.7)
SO ₄ ²⁻	0.454	2.287	6.790	17.509	42.624	0(0.0)	1(1.9)
Ba	0.003	0.010	0.020	0.029	0.083	0(0.0)	0(0.0)
Mn	0.002	0.007	0.016	0.026	0.137	0(0.0)	0(0.0)
Cr	0.004	0.008	0.012	0.020	0.054	0(0.0)	0(0.0)
Cd	0.002	0.004	0.004	0.006	0.010	0(0.0)	0(0.0)
Zn	0.009	0.047	0.115	0.153	0.698	0(0.0)	0(0.0)
Fe	0.007	0.182	0.321	0.490	2.501	7(13.2)	1(1.9)
Ni	BDL	0.005	0.010	0.016	0.033	5(9.4)	0(0.0)
Cu	0.008	0.021	0.037	0.054	1.023	0(0.0)	0(0.0)
Al	0.017	0.070	0.147	0.276	2.459	3(5.7)	0(0.0)
V	BDL	0.002	0.004	0.009	0.024	4(7.5)	3(5.7)
Si	BDL	0.077	0.151	0.263	1.017	3(5.7)	0(0.0)
Pb	0.003	0.027	0.048	0.080	0.176	18(34.0)	0(0.0)
Ag	BDL	BDL	0.001	0.003	0.008	20(37.7)	0(0.0)
Ti	BDL	0.003	0.008	0.015	0.049	11(20.8)	1(1.9)

a) Min: minimum value; b) Percentile: % concentration distribution; c) Max: maximum value; d) BDL: below detection limit

terson *et al.*, 1999).

3. 결과 및 고찰

3.1 PMF 모델링 입력자료 작성

PMF를 이용하여 오염원을 정량적으로 평가하기 위해서는 원자료(raw data)를 적절하게 재구성하여야 한다. PMF 모델링을 위하여 사용한 자료는 무기원소, 이온, 탄소성분을 모두 분석한 2007년 5~11월 까지의 자료를 이용하여 작성하였다. 본 연구에서는 PM₁₀ 오염원의 분석을 위해 무기원소 14종(Ba, Al,

Si, Fe, Mn, Cu, Pb, Cd, V, Ni, Zn, Cr, Ti, Ag), 이온성분 8종(Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺), 탄소성분 8종(OC1, OC2, OC3, OC4, OP, EC1, EC2, EC3)을 포함하는 53×30 행렬 데이터를 작성하였다.

분석한 항목 중에는 결측자료와 검출한계 이하의 자료가 존재한다(표 3). 이러한 자료가 많이 존재하는 경우, 항목 자체를 모델링에서 제외하는 것이 가장 바람직한 방법이나, 항목자체를 제외하는 것보다 적당한 방법을 이용하여 이런 값들을 대체하는 방법이 있다. 본 연구에서는 검출한계 이하의 값에 대해서는 검출한계 값의 1/2로 대체하며, 결측자료에 대

해서는 해당 항목의 기하평균으로 대체하는 방법 (Lee *et al.*, 2002; Polissar *et al.*, 1998)을 사용하였다.

PMF 모델링을 실시하는 데 있어 2개의 입력자료가 필요하다. 한 가지는 바로 위에서 언급한 측정·분석 자료이고, 다른 한 가지는 이들 자료에 대한 불확실도를 담고 있는 자료이다. 이는 PMF 모델링 실행시 개개의 자료에 가중치를 부과하는데, 검출한계 미만의 자료나 결측자료에 대해서는 불확실도를 크게 함으로써 이들 자료의 가중치를 감소시킴으로서, 모델 결과 현실성을 상대적으로 더 부각할 수 있다. 오차추정 연구에서 불확실도 S_{ij} (error)는 식 (7)과 같이 계산할 수 있다 (Polissar *et al.*, 1998). 불확실도를 계산하기 위해서 분할불확도 (fractional error)를 사용하는데, 이는 식 (7)의 k 에 해당한다. 아래 식에서 MDL은 검출한계를 의미하며, x_{ij} 는 i 번째 시료의 j 측정원소의 농도를 의미한다. 일반적으로 측정농도가 증가함에 따라 측정불확도 (analytical uncertainty)도 비례하여 증가한다. 따라서 이 둘의 선형관계를 이용하여, k 를 추정할 수 있다 (Kim *et al.*, 2005).

$$S_{ij} = [MDL]/3 + k \times x_{ij} \quad (7)$$

본 연구에서도 식 (5)를 이용하여 불확도를 계산하였으며, 검출한계 미만의 자료와 결측치에 대해서는 큰 값의 분할불확도를 할당하였다.

3.2 PMF 모델링 과정

연구기간 동안 측정된 미량원소 중 검출한계 이하 (BDL)로 측정된 데이터가 다수 존재하였다 (표 3). 소실된 데이터와 검출한계 이하 값 등 모델 수행을 위한 기본적인 오차항의 계산은 앞 절에서 언급한 내용을 바탕으로 구성하였다. 본 연구지역에서 측정된 PM₁₀의 오염원을 분류하고, 기여도를 산정하기 위하여 PMF 모델에 사용한 자료는 표 3과 같다. 본 연구에서 사용한 α (outlier distance)은 4.0이고 FPEAK은 -1.0에서 1.0까지로 0.2씩 단계별로 변화시켜서 적정 값을 유추하였다. 최적의 FPEAK은 0.0으로 나타났다. PMF의 결과는 각각의 오염원의 종류와 오염원의 기여도를 정량적으로 평가하기 위하여, scaling 상수 (s_k)를 이용하여 표준화 시켜준다 (식 (8)).

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p (s_k g_{ik}) (f_{kj}/S_k) \quad (8)$$

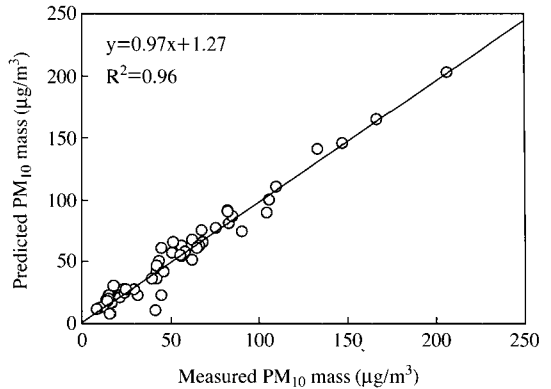


Fig. 3. Measured versus predicted PM₁₀ mass concentration.

여기서, scaling 상수 (s_k)는 i 번째 시료의 PM₁₀ 질량농도 (m_i)와 추정된 오염원 기여도 값의 회귀분석을 통하여 얻어진다 (식 (9)).

$$m_i = \sum_{k=1}^p s_k g_{ik} \quad (9)$$

이 회귀분석은 적절한 오염원의 수를 결정하였는가를 나타내는 중요한 지표로 사용될 수 있다. 만약 회귀분석의 결과 중에 scaling 상수가 음수 값을 가지는 것이 존재한다면, 이것은 너무 많은 오염원들을 추정된 것으로 볼 수 있다. 반면, 각각의 source profile을 대응하는 scaling 상수 (s_k)로 나누었을 때, source profile의 합이 100% (1 µg/µg)을 넘으면, 이때는 너무 적은 오염원을 추정된 것이다. 본 자료를 이용하여 모델링을 수행하고 구한 PM₁₀의 예측치와 실측치를 그림 3에 제시하였다. 모델을 통하여 얻은 r^2 값이 0.96으로 예측치가 실측치를 잘 설명 ($r^2 = 0.95 \sim 0.97$)하고 있다.

3.3 오염원의 확인 및 기여도 추정

국내에는 PM₁₀의 오염원 자료가 부족하여 오염원의 정성적 분류에 어려움이 있다. 이에 본 연구에서는 PMF를 통하여 산출한 각각의 오염원을 확인하기 위하여, Kim and Hopke (2004) 등의 연구 결과를 바탕으로 본 연구지역에 존재하는 8개의 오염원을 그림 4와 같이 분류·확인하였다. 확인한 오염원의 시간변화 (time variation)를 그림 5에 제시하였다. 각 오

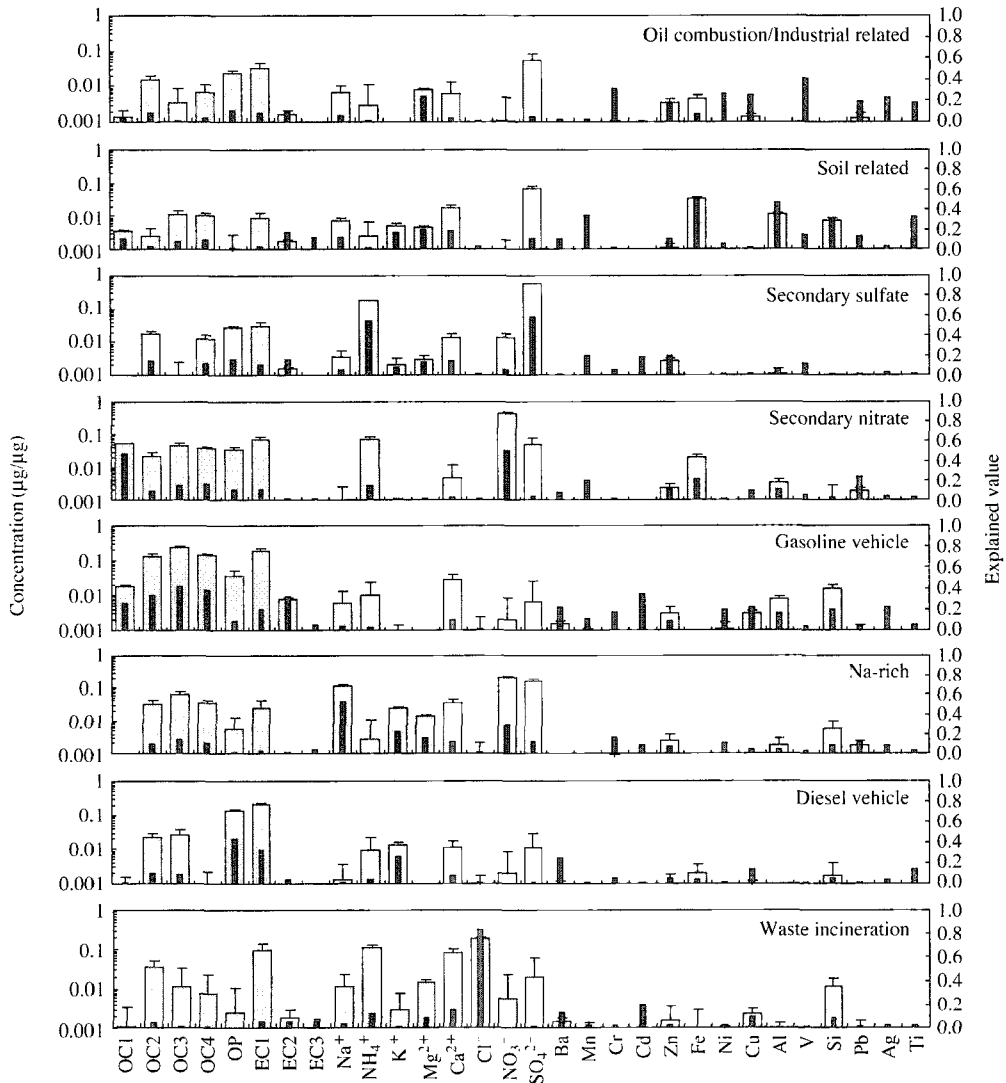


Fig. 4. Source profiles resolved from PM₁₀ samples.

염원의 기여도는 표 4와 그림 5에 나타내었다.

첫 번째 오염원은 OC (OC2, OC4), EC (EC1), Mg²⁺, SO₄²⁻, Zn, Fe, Ni, V 등이 기여하는 것으로 나타나 기름연소산업 관련 오염원 (oil related source)으로 분류하였다. 이 오염원이 PM₁₀에 기여하는 정도는 13.8%로 분석되었다(그림 6). Ni, Cu의 경우는 가장 많이 알려진 기름연소의 marker이며 (Lee *et al.*, 2002; Morawska and Zhang, 2002; Song *et al.*, 2001), 이러한 원소들은 특히 경유나 B-C유 등의 연소에 의

해 주로 배출되는 것으로 알려져 있다 (Hopke, 2000). SO₄²⁻의 경우 연료의 연소과정 중 함께 발생하는 SO₂가 변환된 것으로 사료된다. 본 연구지역 주변에는 기름을 연료로 사용하는 다양한 규모의 제조공장이 산재하기 때문에 이들로부터 발생한 것으로 추정할 수 있다. Fe, Mg²⁺, Ca²⁺ 등은 산업체와 관련하여 일정량 배출되는 것으로 알려져 있으며 (Polissar *et al.*, 2001), 연구지역 주변의 각종 대기오염배출시설에 의해 배출되는 것으로 판단된다.

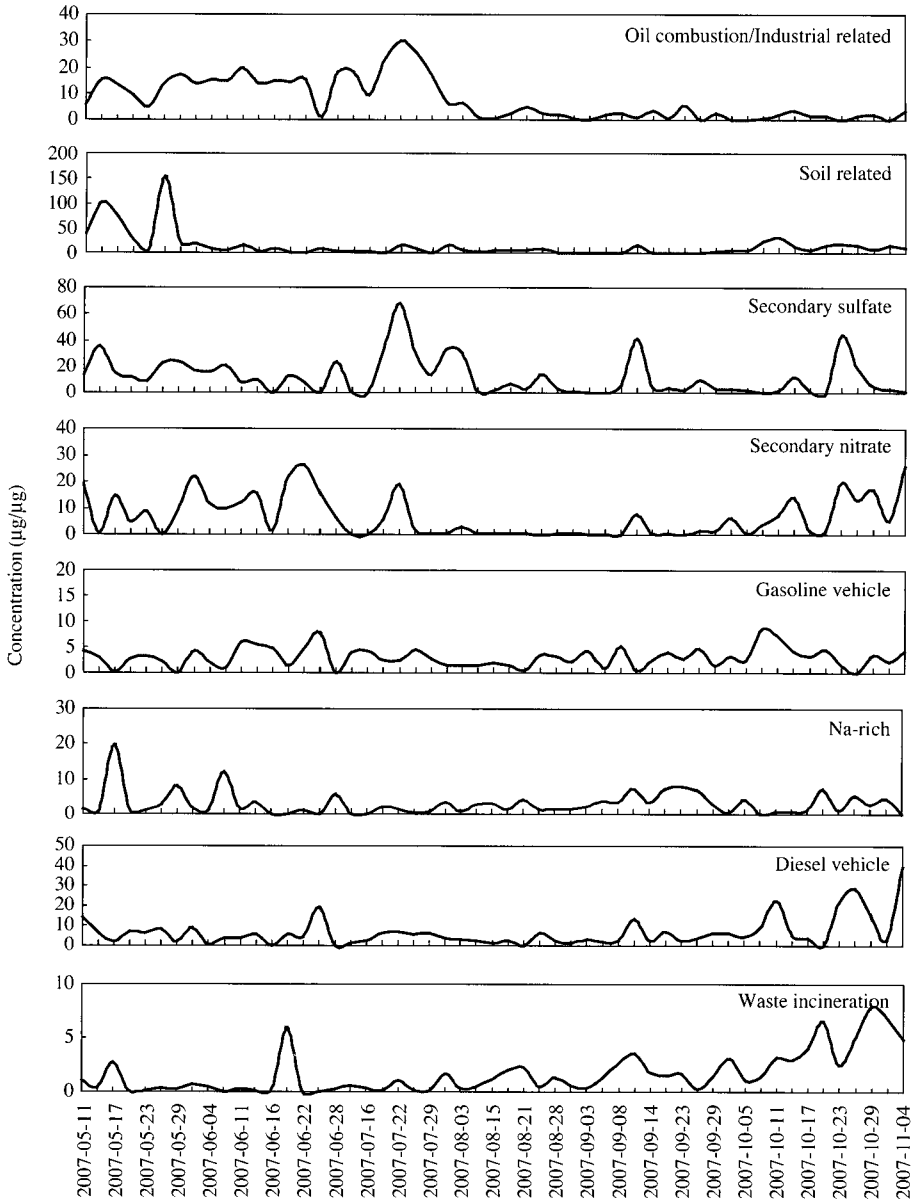


Fig. 5. Time series plot of source contributions.

두 번째 오염원은 Fe, Al, Si, SO_4^{2-} , Ca^{2+} , Mg^{2+} 등이 주로 기여하는 것으로 토양 및 도로비산 관련 오염원 (soil and road dust)으로 분류하였다. 이 오염원이 PM_{10} 에 기여하는 정도는 25.4%로 분석되었다(그림 6). 이 오염원의 경우, 그림 5에서 제시한 바와 같이 2007년 5월에 높은 농도가 나타났다. 이는 봄철

황사의 영향으로 사료된다. 보통 토양 관련 오염원은 Si, Al, Ca^{2+} , K^+ 등이 높은 기여를 한다. Ca^{2+} 은 도로포장시 사용하는 석회석에서 발생하며, 자동차 운행에 따른 마모 등에 의해 주로 배출되므로 도로분진의 marker로 알려져 있다 (Pitts and Pitts, 2000).

세 번째 오염원은 NH_4^+ , SO_4^{2-} 등이 주로 기여하

Table 4. Relative contributions of each individual identified source to the PM₁₀.

Sources	Contribution	
	Average (%)	Standard deviation
Oil combustion/Industrial related	13.8	14.5
Soil and road dust related	25.4	17.0
Secondary sulfate	22.1	15.2
Secondary nitrate	12.3	10.8
Gasoline vehicle	5.6	7.2
Na-rich	5.6	10.3
Diesel vehicle	12.1	10.2
Waste incineration	3.1	5.0

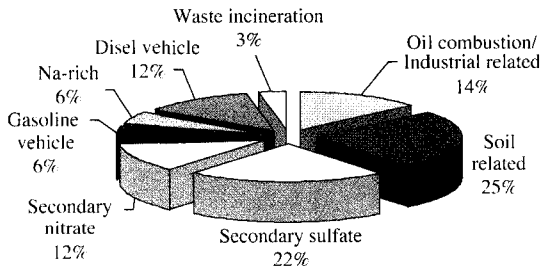


Fig. 6. Relative contributions of the identified sources to the PM₁₀.

는 것으로 조사되어, 이차 황산염 관련 (secondary sulfate) 오염원으로 분류하였다. 이 오염원이 PM₁₀에 기여하는 정도는 22.1%로 분석되었다(그림 6). 이차 황산염 관련 오염원의 경우, 주로 장거리 이동에 의하여 유입되는 오염원으로 산업화가 활발히 진행되고 있는 중국에 의해서도 영향을 받을 것으로 사료된다. 이차 황산염 관련 오염원은 대기 중에 배출된 SO₂ 등의 가스상 물질이 산화하여, NH₃와 결합하여 생성된 이차생성입자로서 (NH₄)₂SO₄, (NH₄)₃H(SO₄)₂와 같은 황산염의 형태로 존재한다. 기본적으로 황산염은 전구물질인 SO₂가 강한 태양광선에 의하여 광화학반응을 일으키며 입자로의 전환이 빨리 일어나기 때문에 여름철에 기여도가 높게 나타난다. 본 오염원에 대한 일별 기여도를 분석한 결과, 다른 계절보다 여름철에 높게 발생하는 것을 확인할 수 있었다.

네 번째 오염원은 NH₄⁺, NO₃⁻ 등이 주로 기여하는 것으로 조사되어, 이차 질산염 관련 (secondary nitrate) 오염원으로 분류하였다. 이 오염원이 PM₁₀에

기여하는 정도는 12.3%로 분석되었다(그림 6). 이차 질산염 관련 오염원은 이차 황산염 관련 오염원과 마찬가지로 화학반응을 통하여 생성되는 오염원이기 때문에 중국 등의 장거리 이동에 의하여 영향을 받을 수 있다. 대기 중에 배출된 NO_x 등의 가스상 물질이 산화하여, NH₃와 결합하여 생성된 이차생성입자로서 HN₄NO₃와 같은 질산염의 형태로 존재한다. 기본적으로 Zhao and Hopke (2004)의 연구에 의하면, 질산염은 낮은 온도와 높은 습도가 secondary nitrate의 형성을 돕기 때문에 겨울철과 봄철에 기여도가 높게 나타난다고 언급하였다. 본 연구를 통해서도 10월말 경의 늦가을 이후 기여도가 증가하는 것을 확인할 수 있었다.

다섯 번째 오염원은 OC (OC1, OC2, OC3, OC4), EC (EC1, EC2), Ca²⁺, Zn, Cu 등의 농도가 높은 것이 특징이다. 이 오염원은 가솔린 자동차(gasoline vehicle)에 의한 오염원이며 이 오염원이 PM₁₀에 기여하는 정도는 5.6%로 분석되었다(그림 6). 일반적으로 가솔린 자동차에서 배출되는 OC는 EC보다 높으며 OC 중에서도 OC3가 높다고 알려져 있다(Kim and Hopke, 2004). 본 연구에서도 분석한 OC 중에서 OC3의 농도가 가장 높게 나타났음을 확인할 수 있다. 특히, Zhao and Hopke (2006)의 연구에서 가솔린 자동차에 의한 탄소성분의 비율이 본 연구와 매우 유사하게 나타났다. 또한, Zn, Br, Cu 등은 자동차 브레이크 라이닝의 마모와 오일첨가제 등에서 배출된다고 알려져 있으며 Ca²⁺는 가솔린차량에서 사용하는 촉매제에서 발생한다(Zhao and Hpoke, 2004).

여섯 번째 오염원은 Na-rich 오염원으로 분류하였다. PM₁₀에 기여하는 정도는 5.6%로 분석되었다(그림 6). 이 오염원은 Na⁺, Cl⁻, SO₄²⁻, Mg²⁺, K⁺, Ca²⁺ 등이 주성분인 해염에 의한 것으로 알려져 있으나(US EPA, 1999a), 본 연구에서는 그림 4와 같이 Na⁺만이 높은 기여도를 보였다. 이는 대기 중에 존재하는 해염성분이 화학반응을 통하여 변형된 것으로 사료된다. Aged sea salt는 Na⁺의 기여가 높고, Cl⁻의 경우 NaCl이 가스상 황산(H₂SO₄)과의 반응에 의해 Na₂SO₄로 변환되어 Cl⁻이 고갈되므로 기여도가 낮다(Lee *et al.*, 2002; Song *et al.*, 2001). 또한, 겨울철 도로의 결빙을 방지하기 위하여 방빙제로 소금을 사용하는 것이 Na-rich 오염원에 기여하는 것으로 알려져 있다(Jeong *et al.*, 2008). 그림 5와 같이 방빙작업

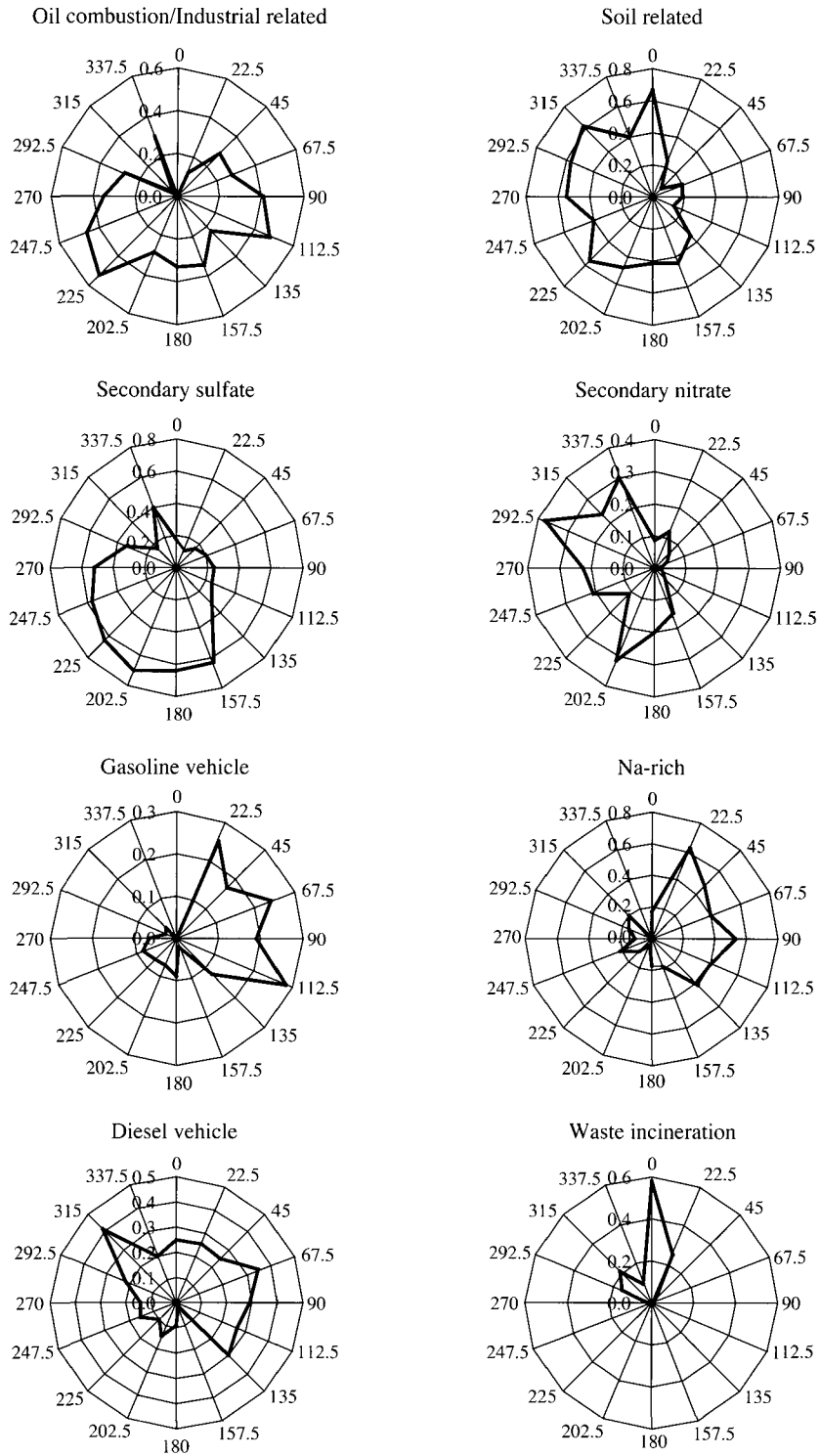


Fig. 7. CPF plots for the highest 20% of the mass contributions.

이 이루어지는 시점인 겨울철과 봄철 초반까지 이 오염원에 대한 기여도가 다른 계절에 비해 높게 나타났다.

일곱 번째 오염원은 OC(OC2, OC3, OP), EC(EC1), Ca²⁺ 등의 농도가 높은 것이 특징이다. 이 오염원은 디젤 자동차(diesel vehicle)에 의한 오염원이며, 이 오염원이 PM₁₀에 기여하는 정도는 12.1%로 분석되었다(그림 6). 일반적으로 디젤 자동차에서 배출하는 EC는 OC보다 높으며(Kim and Hopke, 2004), 세부적으로 디젤엔진 자동차를 일정속도(시속 40 km 이상)로 운행한다면, EC가 OC보다 높게 배출된다고 보고하였다. 그러나 Hutzicker *et al.* (1982)은 디젤자동차의 경우에도 운행속도가 느리거나, 정지-운행을 반복하는 경우 OC의 농도가 EC보다 높다고 보고하였다. 이러한 운행조건에 따라, 디젤 자동차의 경우에도 OC가 배출될 것으로 사료되며, 본 연구에서도 EC 다음으로 배출되었다. Zhao and Hopke (2006)의 연구에서 디젤자동차 오염원과 비교한 결과, 대체로 유사한 경향이 나타났으나 OC3의 경우, 다소 차이를 보였다.

마지막으로 여덟 번째 오염원에서는 OC(OC2), EC(EC1), NH₄⁺, Ca²⁺, SO₄²⁻, Cl⁻ 등의 농도가 높게 기여하는 것으로 조사되어 폐기물소각 관련(waste incineration) 오염원으로 분류하였다. 이 오염원은 PM₁₀에 기여하는 정도가 3.1% 분석되었다(그림 6). 이와 같은 결과는 쓰레기 소각(incineration) 오염원의 특징과 일치한다(US EPA, 1999; Chow, 1995). Cl⁻의 경우 폐기물의 연소과정과 관련하여 주로 배출되는 것으로 알려져 있다. 이 오염원에서 다른 원소들에 비해 대단히 높은 기여가 나타나고 있음을 확인할 수 있다. 또한 본 연구지역의 북서쪽 2 km 내에 일일 600 톤의 쓰레기를 소각할 수 있는 수원시 소각장이 위치해 있다. 또한, 주변에 존재하는 대형 및 중소산업체 등도 소각로를 가동하는 곳이 많아 쓰레기 소각에 의한 영향을 받을 것으로 사료된다(황인조와 김동술, 2003).

3.4 CPF plot 적용

PMF 모델을 통하여 산출한 각 오염원의 유입 방향을 검토하기 위하여 Conditional Probability Function(CPF) plot을 활용하였다. CPF는 측정된 농도 값과 지상의 풍향자료를 이용하여 다양한 풍향에서 발생하는 오염원의 영향을 국지적 규모로 파악해 주는

중요한 분석도구가 된다(Kim and Hopke, 2004). 대기 중 희석효과를 최대한 줄이기 위하여 본 연구에서는 24시간 측정된 시료를 통하여 구한 일별 오염원 기여도 결과 값을 1시간 단위로 동일하게 분배하여 사용하였다. CPF의 계산식은 다음 식(10)과 같다.

$$CPF_{\Delta\theta} = \frac{m_{\Delta\theta}}{n_{\Delta\theta}} \quad (10)$$

여기서, $n_{\Delta\theta}$ 는 전체자료에 대해 $\Delta\theta$ 의 풍향에서 불어오는 바람의 총 발생횟수를 의미한다. $m_{\Delta\theta}$ 는 동일한 풍향에서 적정 기준치를 초과할 때, 발생하는 바람의 횟수를 의미한다. 본 연구에서는 기상자료의 풍속자료가 16 방향이기 때문에 $\Delta\theta$ 를 22.5로 사용하였다. 그리고 이 때, 1 m/sec 이하의 무풍 조건은 계산 대상에서 제외하였다. 각 오염원의 기준 농도치는 상위 20%의 값을 사용하였다.

각 오염원별 CPF 결과를 아래 그림 7에 나타내었다. 본 연구지역의 oil combustion/industrial 관련 오염원의 CPF plot은 남서, 남동 방향에서 오염원 주 유입방향으로 나타내고 있다. 본 연구의 시료채취 장소에서 남서와 남동쪽으로 대기오염배출시설이 밀집해 있기 때문에 연소와 산업시설에서 기인한 오염물질의 유입이라고 사료된다.

토양 및 도로비산 관련 CPF plot은 북서쪽을 오염원 주 유입방향으로 나타내고 있다. 본 연구기간 동안 시료채취 장소 인근(북서쪽)에는 대규모 지하철 공사가 진행 중이었다. 이로 인하여 공사차량이 빈번하게 운행하였다. 공사로 인하여 비산먼지 또한 빈번하게 발생하였을 것으로 사료된다. 또한, 토양 오염원의 경우, 국지적 규모로 이동하기 때문에 인천이나 중국 등의 영향도 있을 것으로 추정된다. CPF plot의 방향은 이러한 주변 지역의 특성을 반영하고 있다.

이차 황산염 관련 오염원 CPF plot은 남서쪽을 오염원의 주 유입방향으로 나타내고 있다. 본 연구기간 동안 시료채취 장소 남서쪽 방향에 위치하고 있는 배출시설의 SO₂ 등의 오염물질에 의한 영향으로 사료된다. 또한, secondary sulfate의 경우, 화학반응을 통한 2차 오염물질이며 장거리 이동에서 발생할 수 있다. 따라서 일부는 인천이나 중국으로부터 유입되었을 것으로 사료된다.

이차 질산염관련 오염원 CPF plot의 경우 북서쪽을 오염원의 주 유입방향으로 나타내고 있고, 남서쪽

방향에서도 오염원이 유입되고 있음을 확인할 수 있다. 시료채취 장소 북서쪽에는 한국지역난방공사 수원지사 등이 위치하고 있어, 이에 대한 영향과 활발한 산업화가 진행 중인 중국에 의한 영향으로 사료된다. 휘발유 자동차 관련 오염원의 CPF plot은 북동쪽을 오염원 주 유입방향으로 나타내고 있다. 연구지역의 시료채취 장소에서 동쪽에는 남북방향으로 경부고속도로가 위치한 곳이기 때문에 차량에서 기인한 오염물질의 유입을 잘 설명하고 있다. Na-rich의 CPF plot의 경우, 북동쪽과 동쪽을 오염원 유입방향으로 나타내고 서쪽을 약하게 가리키고 있다. 이는 연구지점의 동쪽으로 경부고속도로가 남북방향으로 길게 위치하고 있다. 우리나라 지역 특징으로 동쪽에 위치한 강원도 산간지역에서 많은 눈이 내리며, 이로 인한 도로의 결빙을 막기 위하여 염화칼슘액에 소금을 혼합하여 방빙제로 이용하는데 이로 인한 영향으로 사료된다. 또한 서쪽방향에서의 유입은 서해에서 만들어진 해염입자에 의한 것으로 사료된다.

디젤 자동차 오염원의 CPF plot은 가솔린 자동차 관련 오염원과 유사하게 북동쪽을 오염원 주 유입방향으로 나타내고 있다. 그러나 북서쪽 방향으로도 비교적 높은 오염물질의 유입이 이루어지고 있다. 시료채취 장소에서 동쪽에는 남북방향으로 경부고속도로가 위치한 곳이며 북서쪽 방향에는 1번국도와 42번국도가 교차하고 있다. 또한 북서쪽으로 지하철공사 진행 중이기 때문에 대형 디젤차량의 증가로 인한 오염물질의 유입이 많을 것으로 사료된다.

끝으로, 폐기물소각 관련 오염원의 CPF plot은 북쪽을 주방향으로 가리키고 북서쪽으로 약하게 나타나고 있다. 폐기물소각 관련 오염원이 나타내는 방향인 북쪽에는 영통 쓰레기 소각장이 위치하고 있기 때문에 이의 영향을 반영하는 것으로 사료된다.

4. 결 론

2007년 5월부터 11월까지 경희대학교 국제캠퍼스에서 채취한 PM₁₀ 자료를 이용하여 수용방법론 중 PMF 모델을 적용하여 대기오염원의 정량적 기여도를 파악하고자 하였다. PMF 모델에 의한 PM₁₀의 오염원기여도 평가결과, 8개의 오염원을 분류·확인하였다. 오염원별 배출기여도는 이차 황산염과 이차 질

산염 관련 오염원을 포함한 2차 분진 입자가 34.4%로 가장 높은 기여도를 보였다. 토양 및 도로비산관련 오염원이 25.4%의 단일 오염으로 높은 기여도를 보였다. 차량관련 배출원은 디젤 자동차가 12.1%와 가솔린 자동차가 5.6%로 17.7%의 기여도를 보였다. 연소 및 산업관련 오염원은 13.8%, 소각관련 오염원이 3.1%, Na-rich 오염원이 5.6%의 기여도를 추정하였다.

연구결과를 토대로 본 연구지역의 미세분진 오염원을 효율적으로 관리하기 위해서는 다음과 같은 안을 제시할 수 있다. PM₁₀에 영향을 미치는 주요 오염원으로는 2차 오염원이 34.5%로 높게 조사되었다. 이는 광화학 반응에 의한 SO₂와 NO₂ 등 가스상 오염물질의 영향이 큰 것으로 사료된다. 따라서 PM₁₀ 관리를 위해서는 우선적으로 환경 전문인력을 활용하여 지역산업체에서 방출되는 1차 입자상물질의 직접적으로 규제 관리하여야 할 것으로 사료된다. 이와 더불어 광화학반응으로 생성되는 2차 분진의 추가적인 동향을 감시하고 관리하여야 할 것으로 생각된다. 이를 위해, 2차 분진의 형성에 직접적인 영향을 주는 가스상 오염물질의 저감 및 제어관리가 필요할 것으로 사료되며, 국내외 장단거리 운송을 통해 생성되는 2차 오염물질에 대한 정확한 평가 및 대책도 필요하다. 또한, 토양 및 비산먼지 관련 오염원이 25% 이상 높은 기여율을 보였다. 이러한 토양관련 배출원은 불특정 오염원으로 그 관리가 매우 어려우나, 단일 오염원으로서 먼지에 미치는 기여율은 매우 높다. 이러한 점을 고려하여, 도로비산먼지 등의 제어를 위한 기본 방안을 도출해야 할 것으로 사료된다.

차량 오염원의 경우, 약 16.7%의 기여율을 보였다. 특히, 입경이 작을수록 더욱 높은 기여율을 보일 것으로 예상된다. 비록 PM₁₀에서의 기여율은 낮으나 인체 유해성을 고려하여 차량의 배출규제 역시 지속적으로 필요할 것으로 판단된다. 이는 차량오염원이 차지하는 기여도가 다른 인위적 오염원보다 상대적으로 높게 나타났기 때문이다.

본 연구결과는 탄소성분의 분석을 이용하여, 인위적인 오염원인 자동차 오염원을 분리하였다. 특히, 자동차에 대한 탄소성분의 배출특성을 분석하여 가솔린 자동차와 디젤자동차 오염원을 분리하였다는 점에서, 기존의 연구보다 보다 세부적인 오염원 확인을 할 수 있었다. 또한, 용인·수원지역의 대기오염에

영향을 미치는 주요 오염원에 대한 정보를 제공할 것으로 생각되며 효과적인 대기질 관리에 도움을 줄 것으로 사료된다.

감사의 글

본 연구는 2007년 서울지역 환경기술개발센터 『서울 남서지역 외부에서 유입되는 미세먼지량 추정을 위한 프로토콜 개발』과 경기지역 환경기술개발센터 『경기남부지역 미세먼지 배출특성 분석 및 효과적인 관리 방안 연구』의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고 문헌

- 오미석(2007) Cascade Impactor를 이용한 수원지역 부유부진 오염원의 정량적 추정에 관한 연구, 경희대학교 일반대학원 석사논문.
- 이태정, 김동술(1997) 수원지역 입자상 오염물질 중 화학원소의 농도경향 및 오염원 기여도 추정에 관한 연구, 경희대학교 대학원 환경학과 박사논문.
- 차재두, 김동술(2005) 수원지역 대기 중 PM₁₀ 농도 및 무기원소 성분의 장기간 특성연구, 경희대학교 대학원 환경학과 석사논문.
- 통계청(2005) 통계연보 2004.
- 황인조, 김태오, 김동술(2001) PMF 방법론을 이용한 수원지역 PM-10의 오염원 확인, 한국대기환경학회지, 17(2), 133-145.
- 황인조, 김동술(2003) PMF 모델을 이용한 대기 중 PM-10 오염원의 정량적 기여도 추정, 한국대기환경학회지, 19(6), 719-731.
- Chow, J.C., J.G. Watson, L.C. Pritchett, W.R. Pierson, C.A. Frizier, and R.G. Purcell (1993) The DR1 thermal/optical reflectance carbon analysis system: description, evaluation and applications in US air quality studies, *Atmospheric Environment*, 27A(8), 1185-1201.
- Chow, J.C. (1995) Measurement methods to determine compliance with ambient air quality standards for suspended particles, *Air & Waste Manage. Assoc.*, 45, 320-382.
- Jeong, C.H., G.J. Evans, T. Dann, M. Graham, D. Herod, E.D. Zlotorzynska, D. Mathieu, L. Ding, and D. Wang (2008) Influence of biomass burning on wintertime fine particulate matter: Source contribution at a valley site in rural British Columbia, *Atmospheric Environment*, 42(16), 3684-3699.
- Dockery, D.W., C.A. Pope, X.P. Xu, J.D. Spengler, J.H. Ware, M.E. Fay, B. Ferris, and F.E. Speizer (1993) An association between air-pollution and mortality in 6 United States cities, *New England Journal of Medicine*, 329, 1753-1759.
- Gauderman, W.J., R. McConnell, F. Gilliland, S. London, D. Thomas, E. Avol, H. Vora, K. Berhane, E.B. Rappaport, F. Lurmann, H.G. Margolis, and J. Peter (2000) Association between air pollution and lung function growth in southern California children, *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine*, 162, 1383-1390.
- Gorsuch, R.L. (1983) *Factor Analysis*, Lawrence Erlbaum Associates, London.
- 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.
- Hutzicker, J.J., R.L. Johnson, J.J. Shah, and R.A. Cary (1982) Analysis of organic and elemental carbon in ambient aerosols by a thermal-optical method, in: *Particulate Carbon: Atmospheric Life cycle*, edited by: Wolff, G.T. and Klimisch, R.L., Plenum Press, New York, NY.
- Kim, E. and P.K. Hopke (2004) Comparison between conditional probability function and nonparametric regression for fine particle source directions, *Atmospheric Environment*, 38, 4667-4673.
- Kim, E., P.K. Hopke, and Y. Qin (2005) Estimation of organic carbon blank values and error structures of the speciation trend network data for source apportionment, *Air & Waste Manage. Assoc.*, 55, 1190-1199.
- 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.
- Lee, J.H., Y. Youshida, B.J. Turpin, P.K. Hopke, R.L. Poirot, P.J. Liroy, and J.C. Oxley (2002) Identification of sources contributing to Mid-Atlantic regional aerosol, *Air & Waste Manage. Assoc.*, 52(10), 1186-1205.
- Morawska, L. and J. Zhang (2002) Combustion sources of particles. 1. Health relevance and source signatures, *Chemosphere*, 49, 1045-1058.
- Paatero, P. (1998) *User's guide for positive matrix factorization*

- tion program PMF2 and PMF3, part 1: Tutorial University of Helsinki.
- Paatero, P. and U. Tapper (1994) Positive matrix factorization: A non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values, *Environmetric*, 5, 111-126.
- Paterson, K.G., J.L. Sagady, D.L. Hooper, S.T. Bertman, M.A. Carroll, and P.B. Shepson (1999) Analysis of air quality data using positive matrix factorization, *Environ. Sci. & Technol.*, 33(4), 635-641.
- Pitts, F.B.J. and J.N. Pitts (2000) *Chemistry of the Upper and Lower Atmosphere*, Academic Press, San Diego, CA.
- 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 Environ.*, 103(D15), 19045-19057.
- Polissar, A.V., P.K. Hopke, and R.D. Poirot (2001) Atmospheric aerosol over Vermont: Chemical composition and sources, *Environ. Sci. & Technol.*, 35(23), 4604-4621.
- Pope, C.A., D.V. Bates, and M.E. Raizenne (1995) Health effects of particulate air pollution: time for reassessment, *Environmental Health Perspectives*, 103, 472-480.
- Qin, Y., K. Oduyemi, and L.Y. Chan (2002) Comparative testing of PMF and CFA models, *Chemo. Intell. Lab. Syst.*, 61, 75-87.
- Schwartz, J. and D.W. Dockery (1992) Increased mortality in Philadelphia associated with daily air pollution concentrations, *The American Review of Respiratory Disease*, 145, 600-604.
- Song, X.H., A.V. Polissar, and P.K. Hopke (2001) Source of fine particle composition in the northeastern US, *Atmospheric Environment*, 35(31), 5277-5286.
- U.S. EPA (1999a) SPECIATE Ver 3.1.
- U.S. EPA (1999) Air Quality Criteria for Particulate Matter, Volume I, EPA/600/p-99/002a.
- Zhao, W. and P.K. Hopke (2004) Source apportionment for ambient particles in the San Gorgonio wilderness, *Atmospheric Environment*, 38, 5901-5910.
- Zhao, W. and P.K. Hopke (2006) Source identification for fine aerosols in Mammoth Cave National Park, *Atmospheric Research* 80, 309-322.