

1A1) 극미세먼지에 대한 오염원 기여도 평가

Source Apportionment of Fine Particulate Matter (PM_{2.5})

이 상 일

한국표준과학연구원 삶의질표준본부 측정보증센터

1. 서 론

극미세먼지(PM_{2.5})는 오염원에 의해 직접 배출된 화학물질과 대기 중 광화학 반응에 의해 생성된 화학물질들의 복합체이다. 보건학 연구를 통해 극미세먼지(PM_{2.5})의 인체유해성이 보고됨에 따라 미국 환경부는 1997년부터 극미세먼지를 대기환경기준에 포함하고 대기 중 농도를 관측하고 있다. 현재 미국의 208개 행정구역의 8천8백만 명의 사람들이 극미세먼지의 대기기준치보다 높은 지역에서 거주하고 있다(www.epa.gov/air/data). 한국도 대기오염 관측망 중 60% 이상의 관측소에서 대기 중 미세먼지(PM₁₀) 농도가 기준치보다 높은 것으로 보고되고 있다(환경부, 2007). 이에 따라 기준치이상 지역의 규제기관들은 대기기준치 달성을 위해 효과적인 (극)미세먼지 농도 저감 방안을 마련하여야 한다.

대기 중 극미세먼지 농도 저감 방안은 오염원배출량 데이터베이스를 이용하여 이루어져 왔다. 그러나 이 방법은 대기 중 극미세먼지 농도에 어떤 오염원이 얼마나 기여하는가에 대한 정확한 평가가 없이 이루어져 왔기 때문에 극미세먼지 농도를 저감하기 위한 대책을 수립하는데 한계가 있다. 이에 대한 대안으로 최근에는 대기오염모델을 활용하고 있다.

2. 오염원 기여도 평가 방법

극미세먼지의 오염원 기여도를 산출하는 대기오염모델에는 크게 수용성 모델(receptor-oriented model)과 오염원 모델(source-oriented model) 두 가지가 있다. 수용성 모델은 수용지(receptor)에서 관측된 극미세먼지의 화학적 특성을 기초로 하고 오염원 모델은 오염원의 특성을 기초로 하여 그 기여도를 산정한다.

수용성 모델은 성분보존 법칙에 기초하여 관측된 화학성분과 오염원 기여도와 선형적 관계를 이용하여 오염원 기여도를 산정한다 식(1).

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^N g_{ik} f_{kj} + e_{ij}, \quad i=1, \dots, m, \quad j=1, \dots, n, \quad k=1, \dots, N \quad \text{식(1)}$$

x_{ij} 는 i 번째 시료 중 성분 j 의 농도, f_{kj} 는 k 오염원에서 배출된 극미세먼지 중 성분 j 의 질량농도비율(mass fraction), g_{ik} 는 i 번째 시료에 대한 k 오염원의 기여도, e_{ij} 는 오차(Hopke, 2003).

수용성 모델은 오염원에서 배출된 극미세먼지의 화학적 특성(f_{ij} 또는 source profiles)에 대한 정보가 사전에 필요한지 여부에 따라 두 가지로 나뉜다. Chemical mass balance(CMB)는 사전에 주요 오염원 및 그 극미세먼지의 화학적 특성에 대한 자료가 필요로 한다. 반면에 positive matrix factorization(PMF)과 UNMIX는 수용지에서 측정된 극미세먼지의 화학적 특성 자료만 모델 입력 자료로써 필요로 한다. 다변량(multivariate) 시스템(식(1))에 대한 해답(오염원 기여도)을 찾기 위해 CMB는 effective variance weighted linear regression, PMF는 uncertainty weighted alternative linear regression, UNMIX는 singular value decomposition with edge finding algorithm을 이용한다(Watson et al., 1983; Paatero, 1997; Henry, 2003).

오염원 모델(source-oriented model)은 오존, 침적(deposition), 미세먼지의 대기 중 거동 이해를 위해 개발된 3차원 오일러리언 대기오염모델을 일컫는다. 오염원 모델은 species conservation equation을 기

초로 한다(식-2).

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -\nabla \cdot (u C_i) + \nabla \cdot (K \nabla C_i) + R_i + E_i + A_i \quad \text{식(2)}$$

u 는 3차원 바람 방향장, K 는 난류확산텐서, R_i 는 화학반응, E_i 는 오염원배출, A_i 는 그 외 대기 기작(예, 제거와 침적) 속도(Russell, 2008). 오염원 모델은 배출 모델에 의해 산정된 가스 및 1차성 입자상 오염물질에 대한 배출량, 기상 모델에 의해 산출된 기상변수, 격자(grid) 정보 등을 필요로 한다. 식(2)에서 알 수 있듯 오염원 모델은 대기오염물질의 대기 중 거동 및 변형을 직접 다룬다.

오염원 모델에는 CIT, Urban and Regional Multiscale-One Atmosphere Model(URM), Comprehensive Air Quality Model with extensions(CAMx), Community Multiscale Air Quality(CMAQ) model, CMAQ with Model of Aerosol Dynamics, Reaction, Ionization and Dissolution(CMAQ-MARID) 등이 있다. 이런 오염원 모델을 이용한 오염원 기여도 평가는 brute force나 decoupled direct method(DDM)을 활용한 민감도 평가(sensitivity analysis)를 통해서 이루진다(Odman et al., 2004; Marmur et al., 2006; Knipping et al., 2006). 이와 달리 tracer method는 특정 오염원에서 배출된 오염물질을 추적하여 오염원 기여도를 산정한다(Held et al., 2005; Baek et al., 2007; Bhawe et al., 2007).

3. 기여도평가 결과의 활용 및 문제점

보건학에서는 극미세먼지 오염원과 인체유해성과의 상관관계에 대한 연구를 활발하게 진행하고 있다. 초기 보건학 연구는 극미세먼지에 대한 인체유해성을 평가하였다(Dockery et al., 1993; Pope et al., 1995; Schwartz et al., 1994, Thurston et al., 1994). 이런 초기 연구는 극미세먼지가 인체에 미치는 유해성에 대한 근거를 제시하여 1997년 미국 환경청의 새로운 극미세먼지 대기 기준치 마련에 영향을 미쳤다. 최근엔 극미세먼지내 화학성분과 인체유해성과의 상관관계에 대한 연구가 이루어지고 있다(Metzger et al., 2004; Peel et al., 2005; Tolbert et al., 2000). 그러나 극미세먼지내에는 다양한 화학성분 포함되어 있고 현재 기술로는 모든 성분을 측정 할 수 없기 때문에 그 각각의 화학성분별 인체유해성을 규명하기에는 한계가 있다. 이에 대한 대안으로 최근에는 대기오염 모델을 활용하여 극미세먼지 오염원 기여도를 산출하고 그 결과를 토대로 오염원별 인체유해성 정도를 평가하고 있다(Laden et al., 2000; Mar et al., 2000; Sarnat et al., 2008; Thurston et al., 2005). 이런 연구들은 오염원별 인체유해성에 대한 평가가 이루어져 어떤 오염원이 더 유해한지를 규명하며 이는 극미세먼지 관리 정책 수립에 어떤 오염원이 우선적으로 관리되어야 할지를 알려준다.

극미세먼지가 관측된 수용지에서만 오염원의 기여도를 산출하는 수용성 모델과 도메인내의 오염원 및 그 위치와 직접 연계된 시 공간적 오염원의 기여도를 산출하는 오염원 모델은 서로 다른 결과를 보인다. 오염원 모델은 배출 인벤토리내 모든 오염원의 기여도를 산정하나 수용성 모델은 그렇지 못하다. 오염원 모델에 의해 산정된 오염원 기여도의 일일 변동성은 모델 입력 자료인 배출 인벤토리와 기상변수에 많은 영향을 받는다. 그런데 배출 인벤토리와 기상변수의 일일 변동성이 낮아 산정된 오염원 기여도의 일일 변화가 실제 변동성보다 낮다(Marmur et al., 2006). 반면에 수용성 모델에 의해 산정된 오염원 기여도의 일일변화는 극미세먼지 관측자료에 영향을 받으며 그 변동성은 실제 변동성보다 크다. 이런 단점들에도 대기오염모델을 이용한 오염원 기여도 평가는 극미세먼지 저감 정책 수립과 인체유해성 연구에 아주 유용하기에 모델의 한계점을 보완하기 위한 연구가 활발하게 진행되고 있다.

참 고 문 헌

환경부 (2007) 대기환경연보 (2006).

- Bhave, P.V., G.A. Pouliot and M. Zheng (2007) Diagnostic model evaluation for carbonaceous PM_{2.5} using organic markers measured in the southeastern United States, *Environmental Science and Technology*, 41, 1577-1583.
- Back, J., B. Yan, S.K. Park, S. Lee, Y. Hu, M. Zheng and A.G. Russell (2007) Reconciliation of an emission based model and a source based model via source apportionment of PM_{2.5}-Part 1. organic molecular markers. 26th Annual Conference of American Association of Aerosol Research, Reno, NV, USA.
- Dockery, D.W., C.A. Pope, W. Wu, J.D. Spengler, J.H. Ware, M.E. Fay, B.G. Ferris and F.E. Speizer (1993) An association between air pollution and mortality in six U.S. cities, *New England Journal of Medicine*, 329, 1753-1759.
- Held, T., Q. Ying, M.J. Kleeman, J.J. Schauer and M.P. Fraser (2005) A comparison of the UCD/CIT air quality model and the CMB source-receptor model for primary airborne particulate matter, *Atmospheric Environment*, 39, 2281-2297.
- Henry, R.C. (2003) Multivariate receptor modeling by N-dimensional edge detection, *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 65, 179-189.
- Hopke, P.K. (2003) Recent developments in receptor modeling, *Journal of Chemometrics*, 17, 255-265.
- Knipping, E.M., N. Kumar, B.K. Pun, C. Seigneur, S.Y. Wu and B.A. Schichtel (2006) Modeling regional haze during the BRAVO study using CMAQ-MADRID: 2. Source region attribution of particulate sulfate compounds, *Journal of Geophysical Research-Atmosphere*, 111, D06303.
- Laden, F., L.M. Neas, D.W. Dockery and J. Schwartz (2000) Association of fine particulate matter from different sources with daily mortality in six U.S. cities, *Environmental Health Perspectives*, 108, 941-947.
- Mar, T.F., G.A. Norris, J.Q. Koenig and T.V. Larson (2000) Associations between air pollution and mortality in Phoenix, 1995-1997, *Environmental Health Perspective*, 108, 347-353.
- Metzger, K.B., P.E. Tolbert, M. Klein, J.L. Peel, W.D. Flanders, K. Todd, J.A. Mulholland, P.B. Ryan and H. Frumkin (2004) Ambient air pollution and cardiovascular emergency department visits, *Epidemiology*, 15, 46-56.
- Odman, M.T., A.G. Russell and J.W. Boylan (2004) Estimates of PM_{2.5} levels in the southeastern United States for the year 2010: What else can be done?, *Fuel Processing Technology*, 85, 631-639.
- Paatero, P. (1997) Least squares formulation of robust non-negative factor analysis, *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 37, 23-35.
- Peel, J.L., K.B. Metzger, M. Klein, W.D. Flanders, J.A. Mulholland and P.E. Tolbert (2007) Ambient air pollution and cardiovascular emergency department visits in potentially sensitive groups, *American Journal of Epidemiology*, 165, 625-633.
- Pope, C.A., M.J. Thun, M.M. Namboori, D.W. Dockery, J.S. Evans, F.E. Speizer and D.W. Heath (1995) Particulate air pollution as a predictor of mortality in a prospective study of U.S. adults, *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine*, 151, 669-674.
- Russell, A.G. (2008) EPA Supersites program-related emissions-based particulate matter modeling: Initial applications and advances, *J. Air & Waste Manage. Assoc.*, 58, 289-302.
- Sarnat, J.A., A. Marmur, M. Klein, E. Kim, A.G. Russell, S.E. Sarnat, J.A. Mulholland, P.K. Hopke and P.E. Tolbert (2008) Fine particle sources and cardiorespiratory morbidity: An application of chemical mass balance and factor analytical source-apportionment methods,

Environmental Health Perspectives, 116, 459-466.

- Schwartz, J., D.W. Dockery, L.M. Neas, D. Wypij, J.H. Ware, J.D. Spengler, P. Koutrakis, F.E. Speizer and B.G. Ferris (1994) Acute effects of summer air pollution on respiratory symptom reporting in children, *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine*, 150, 1234-1242.
- Tolbert, P.E., M. Klein, K.B. Metzger, J. Peel, W.D. Flander, K. Todd, J.A. Mulholland, P.B. Ryan and H. Frumkin (2000) Interim results of the study of particulates and health in Atlanta (SOPHIA), *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology*, 10, 446-460.
- Thurston, G.D., K. Ito, C.G. Hayes, D.V. Bates and M. Lippmann (1994) Respiratory hospital admissions and summertime haze air pollution in Toronto, Ontario: consideration of the role of acid aerosols, *Environmental Research*, 55, 271-290.
- Thurston, G.D., K. Ito, T. Mar, W.F. Christensen, D.J. Eatough, R.C. Henry, E. Kim, F. Laden, R. Lall, T.V. Larson, H. Liu, L. Neas, J. Pinto, M. Stolzel, H. Suh and P.K. Hopke (2005) Workshop report: Workshop on source apportionment of particulate matter health effects-intercomparison of results and implications, *Environmental Health Perspectives*, 113, 1768-1774.
- Watson, J.G., J.A. Cooper and J.J. Huntzicker (1984) The effective variance weighting for least-squares calculations applied to the mass balance receptor model, *Atmospheric Environment*, 18, 1347-1355.

www.epa.gov/air/data