

인자분석을 통한 대기 입자상 물질의 입경별 발생원 추정 -Drum impactor를 이용한 2002년 5월 제주도 고산지역 측정을 중심으로

Size-segregated Sources of Aerosol Estimated by Factor Analysis -For the Measurement using Drum Impactor at Gosan, Jeju Island in May 2002

한진석 · 문광주* · 공부주 · 류성운¹⁾ · 김영준¹⁾

인천시 서구 경서동 종합환경연구단지 내 국립환경연구원 대기화학과, ¹⁾광주과학기술원
(2004년 4월 19일 접수, 2004년 9월 23일 채택)

J.S. Han, K.J. Moon, B.J. Kong, S.Y. Ryu¹⁾, Y.J. Kim¹⁾

Department of Atmospheric Chemistry, National Institute of Environmental Research
¹⁾ADEMRC, Kwangju Institute of Science and Technology

(Received 19 April 2004, accepted 23 September 2004)

Abstract

Size-segregated measurements of aerosol composition are used to estimate the transport of natural and anthropogenic aerosols at Gosan site during May 2002. The results of measurement show that not only soil dust but also anthropogenic aerosols, including sulfur and enriched trace metals such as Pb, Zn, Cu, are transported to Gosan.

This study combines the size- and time-resolved aerosol composition measurements with factor analysis in order to identify some source materials. As a result, coarse particles ($2.5\ \mu\text{m} \sim 12\ \mu\text{m}$) are influenced by soil, sea-salt, coal, coal combustion, and nonferrous sources. But fine particles have different sources. The fine particles, which the diameter is from $0.56\ \mu\text{m}$ to $2.5\ \mu\text{m}$, are more affected by road dust, oil combustion, industry, municipal incineration, and ferrous metal sources. The very fine particles, from $0.09\ \mu\text{m}$ to $0.56\ \mu\text{m}$, mainly supplied by biomass burning, oil combustion, nonferrous and ferrous metal sources.

Key words : Source estimation, Drum impactor, Size distribution, Trace element

1. 서 론

최근 아시아는 황사를 포함하여 자연적 혹은 인위적으로 생성되는 입자상 물질의 발생원으로 주목받고 있다. 특히 동북아시아 지역은 많은 인구와 높은

에너지 소비율에 의해 주요 인위적 오염물 발생원으로 알려져 있고, 최근 대기화학적 측면에서 이 지역의 중요성이 부각됨에 따라 몇몇 연구 활동이 수행 중에 있다. 예를 들면, IGAC (International Global Atmospheric Chemistry Program)의 일부로 APARE (East Asia/North Pacific Regional Experiment) 연구가 수행 중이고 이와 함께 PEM-WEST (Pacific Exploratory Mission-West)와 PEACAMPOT (Perturbation of East

* Corresponding author

Tel : +82-(0)32-560-7358. Email : iamian@hanmail.net

Asian Continental Air Mass to Pacific Oceanic Troposphere)와 같은 항공 집중측정도 수행되었다(Carmichael *et al.*, 1997). 특히, 우리나라의 경우, 이러한 동북아시아의 편서풍지대 중심에 위치하고 있어 장거리 이동의 영향에 대한 연구가 활발히 이루어지고 있다(국립환경연구원, 2003).

일반적으로 입자의 입경분포와 그 조성은 지역규모 대기오염물질의 장거리 이동 정도와 영향을 결정하는 중요한 인자이다(김용표, 1999). 특히 입자 내 화학성분들은 입자가 장거리 이동될 경우 매우 유사한 입경분포를 가지는 것으로 알려져 있기 때문에(Hillamo *et al.*, 1993), 수용지점에서 얻은 자료로부터 발생원을 추정하고자 하는 수용모델의 활용을 위해서는 수용지점에서의 성분농도에 대한 짧은 시간 간격의 연속측정 자료의 확보가 중요하다. 그 중에서도 입자상 물질 내 다양한 원소성분들의 입경분포는 이러한 입자상 물질들이 외부지역으로부터 이동되었을 가능성을 밝히는데 매우 좋은 자료를 제공한다. 우리나라에서는 일부 도심지역 및 제주도 고산에서 다단 임팩터를 사용한 입자의 입경분포와 그 조성을 측정할 예가 있으나(김용표, 1999; 이종훈 등, 1995) 주로 질량농도와 수용성 이온성분에 대해 48시간 혹은 72시간 간격으로 비연속적인 측정을 수행하였다. 원소 성분의 입경분포 연구에 대한 예도 있지만(최규훈 등, 2003), 이 경우 $PM_{2.5}$ 와 PM_{10} 측정을 통한 대략적인 입경분포 파악에 머물렀다. 이때 입자의 크기가 작아질수록 공기계의 유입에 따른 오염원의 영향에 민감하게 변화하는 것이 관찰되어 입

자상 물질의 구체적인 오염원 추정을 위해서는 보다 세분화된 입경분포에 대한 측정이 필요한 것으로 나타났다.

입자의 발생원 추정방법으로 최근에 가장 많이 이용되는 화학질량수지법(chemical mass balance, CMB)과 다변량분석법(multivariate analysis)이 있는데, 이 중 다변량 분석법은 오염원에 대한 자료(Source profiles)가 충분하지 않아도 인자분석법(factor analysis)을 이용하여 중요 배출원의 기여도를 산출할 수 있어 많이 이용되고 있다. 단, 기존의 연구에서는 주로 $PM_{2.5}$ 나 PM_{10} 측정결과에 대한 인자분석을 수행하여, 인자들이 여러 오염원의 혼합된 형태로 나타나 세부적인 오염원 추정이 어려운 문제가 있었다(최규훈 등, 2003; 신은상 등, 2002; 강병욱 등, 2000; 최만식 등, 1999). 따라서 세부 입경별 성분의 연속측정 결과에 대한 인자분석은 보다 구체적인 오염원 추적과 함께 오염원에 대한 새로운 정보를 제공할 가능성이 클 것으로 생각된다.

본 연구에서는 기존의 입경분포 측정과는 달리 8-stage DRUM (Davis Rotating Unit for Monitoring) impactor를 사용하여, 총 19종의 원소에 대해 3시간 간격 연속 측정을 실시하였다. 측정은 한반도 지역의 배경 농도와 동북아시아 지역에서 대기오염물질의 이동을 연구하는데 좋은 조건을 갖추고 있는 고산 측정소(김용표, 1996b)에서 2002년 5월에 수행하였다. 이러한 대기 중 입자상 물질 내 원소성분의 입경별 연속측정 결과를 이용하여, 1)인자분석을 통해 오염원을 정성적으로 추정하고, 2)입경별 인위적 오염

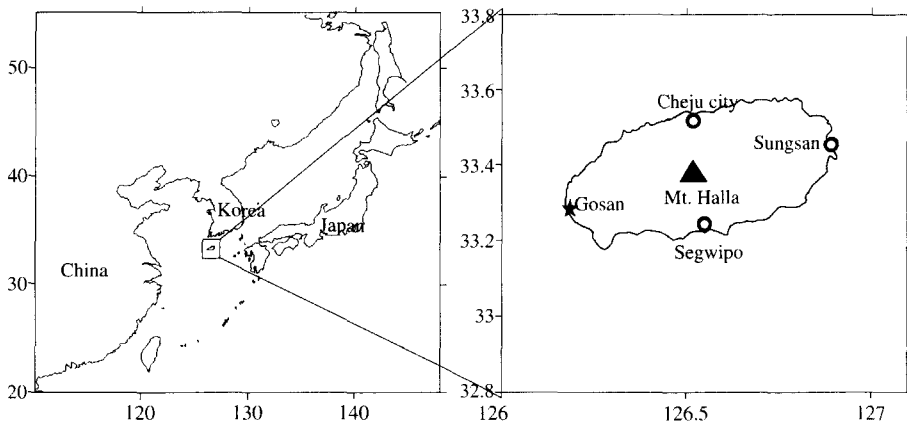


Fig. 1. Location of Gosan sampling site.

성분들의 유입가능성을 살펴보고자 하였다.

2. 측정 방법

2.1 시료 채취 지점

본 연구를 위한 시료 채취는 2002년 5월 4일부터 5월 30일까지 제주도 고산에서 실시되었다. 이 지역은 우리나라에서도 가장 오염이 적은 지역에 해당하고, 중국과 일본, 한국 본토의 경제지역에 위치하여 대기오염물질의 장거리이동 연구에 최적의 위치로 알려져 있다(Carmichael *et al.*, 1997). 측정지점의 위치는 그림 1과 같다.

2.2 시료 채취 및 분석 방법

입경별 원소성분의 측정을 위해 8-Stage DRUM Impactor를 사용하여 대기 중 입자상 물질을 3시간 간격으로 연속 채취하였다. 이때 DRUM impactor의 각 단별 절단입경은 0.09, 0.26, 0.34, 0.56, 0.75, 1.15, 2.5, 5.0, 12 μm 이다. 본 연구에서 사용된 장비는 Cahill *et al.* (1985)에 의해 기술된 초기 DRUM 장비와는 달리 원형 오리피스가 아닌 슬릿형 분사구를 가지며 공기유량이 5L/min에서 10L/min으로 증가된

형태를 사용하였다. 가동되는 동안, 입자상 물질들은 3시간에 약 1 mm씩 이동하는 회전하는 원통에 씌워진 아피존 그리스(Apiezon grease)로 코팅된 필름막 위에 채취되고, 그 결과 3시간 간격의 분석 자료를 얻을 수 있다(Reid *et al.*, 2003). 채취된 필름은 California Davis 대학의 DELTA 그룹에서 S-XRF(Synchrotron X-ray fluorescence)를 사용하여 분석되었다. S-XRF 테이터는 4-18 keV 에너지를 가지는 백광을 사용하여 Lawrence Berkeley National Laboratory에서 ALS (Advanced Light Source) Line 10.3.1으로 분석하였다(Graham *et al.*, 2002). DRUM 필터의 S-XRF를 이용한 분석방법은 기존의 연구들(Reid *et al.*, 1994)에서와 같고, 요약하면 다음과 같다. 필름에 채취된 시료는 주사면적이 $1.0 \times 1.0 \text{ mm}$ 인 빔으로 스캔되고, X-ray는 시료로부터 5 cm 떨어진 위치에서 Si(Li) X-ray detector로 검출된다. 빔은 시료의 각 지점에서 약 30초간 주사된 뒤 다음 지점으로 이동하여 연속적으로 분석이 이루어진다. 이와 같은 운전조건하에서 전이금속성분들은 대략 0.1 ng/m^3 의 검출감도를 나타냈다. 원자번호가 10 이상인 원소성분들에 대한 분석결과와 정리는 이미 잘 알려져 있는 국제적인 XRF 코드인 AXIL을 사용하여 오프라인에서 수행되었다. Na부터 Cu까지의 원소성분에 대한 농도가 측정되었으나, Na와 같은 가벼운 원소들의 경우 낮은 X-ray 에너지를 방출하므로, 간섭에 의한 측정오차가 매우 크게 나타났다. 따라서 본 연구에서는 이와 같이 측정오차가 큰 가벼운 원소성분들을 제외한 S, Si, Al, Fe, Ca, Cl, Cu, Zn, Ti, K, Mn, Pb, Ni, V, Se, As, Rb, Cr, Br의 19종의 원소를 분석 대상으로 하였다. 각 성분에 대한 입경별 측정결과와 불확도는 표 2와 같다. 이때 다른 입경영역에 비해 Stage 7과 8에서 측정값에 대한 불확도가 비교적 높게 나타났다.

Table 1. XRF analysis conditions using beamline 10.3.1*.

Energy range (keV)	6 ~ 15 (with multiplayer mirrors)
Monochromator	White light, multiplayer mirrors in Kirkpatrick-Baez configuration
Photon Flux (photons/s)	31010 at 12.5 keV
Spectral resolution (E/E)	25 at 12.5 keV
Spatial resolution (m)	1.0×1.0
Detectors	Si (Li) x-ray detector
Sensitivity of detection	$\sim 0.1 \text{ ng/m}^3$

* : Analyzed by Delta Group in Univ. of California Davis.

Table 2. Uncertainty of measurement for each trace element.

Stage	Al	Si	S	Cl	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Se	Br	Rb	Pb
1	137	172	14.4	50.0	17.0	21.6	6.75	0.23	0.21	0.67	38.0	0.11	6.05	4.44	0.38	0.08	0.36	0.32	1.52
2	31.8	52.4	6.35	22.67	7.72	7.82	2.60	0.11	0.07	0.26	13.9	0.04	0.10	0.37	0.16	0.04	0.12	0.14	0.60
3	10.4	23.6	20.3	8.18	7.97	3.94	1.15	0.07	0.05	0.16	6.67	0.03	0.07	0.63	0.13	0.05	0.09	0.11	0.60
4	11.3	22.5	142	0.95	8.18	0.51	0.17	0.04	0.03	0.09	1.05	0.03	0.06	0.57	0.14	0.05	0.10	0.10	0.67
5	0.88	1.67	13.5	0.23	2.86	0.18	0.09	0.03	0.01	0.03	0.32	0.02	0.02	0.17	0.06	0.03	0.04	0.06	0.24
6	1.60	3.27	49.4	0.48	7.38	0.13	0.08	0.10	0.02	0.04	0.30	0.05	0.04	0.22	0.08	0.04	0.09	0.06	0.28
7	0.72	0.94	5.27	0.21	1.42	0.10	0.07	0.03	0.02	0.02	0.09	0.03	0.03	0.08	0.11	0.04	0.05	0.07	0.40
8	5.30	14.7	10.1	6.04	2.17	1.07	0.45	0.08	0.03	0.05	1.81	0.05	0.05	0.19	0.15	0.05	0.10	0.11	0.55

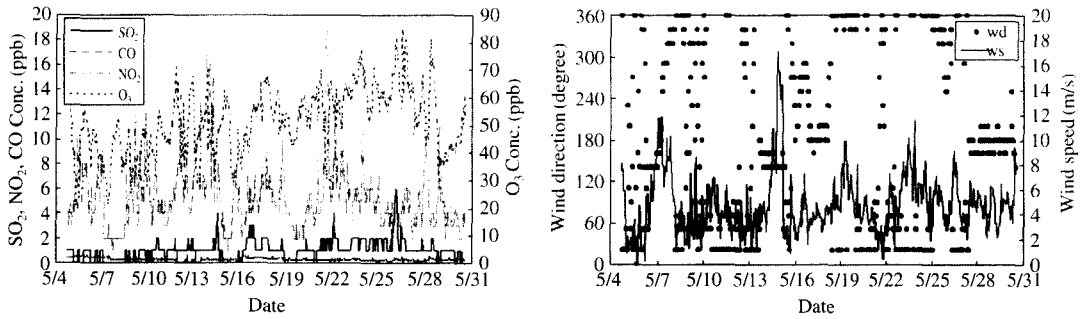


Fig. 2. Air quality and meteorological characteristics at Gosan in Jeju during measurement period (measured by Gosan observatory).

3. 결과 및 고찰

3.1 측정기간 중 기상과 대기오염도

측정기간 중 고산 기상대에서 측정된 이 지역의 대기오염도와 풍향, 풍속, 기온 강우 등의 기상자료는 그림 2와 같다. 측정기간 중 평균 기온은 16.5°C이고, 평균 습도는 83%로 비교적 높게 나타났다. 평균 풍속은 4.8 m/s이고, 풍향은 이동성 고기압의 영향을 받는 봄철의 기상 특성상 변화가 심했으나 주로 북북동과 남남서에서 불어온 것으로 나타났다. 같은 기간 동안의 대기 중 SO₂, NO₂, O₃, CO, PM₁₀ 평균 농도는 각각 1 ppb, 5.3 ppb, 50.9 ppb, 0.3 ppm, 41.2 μg/m³이었다.

3.2 입경별 농도분포

측정기간 중 에어로솔 내 원소성분들의 평균농도는 Si가 2,344 ng/m³으로 가장 높았고, 다음으로 S 2,084 ng/m³, Cl 985 ng/m³, Al 932 ng/m³, Fe 874 ng/m³, K 721 ng/m³, Ca 483 ng/m³, Ti 155 ng/m³로 높게 나타났고, 그 외의 Zn, Cu, Pb, Mn, V, Rb, Cr, Ni, As, Se은 100 ng/m³ 미만의 낮은 농도로 표 3과 같이 나타났다. 이때 각 원소성분의 입경별 분포경향을 살펴보기 위해 크게 조대 영역(2.5~12 μm), 미세 영역(0.09~0.56 μm), 그 중간에 해당하는 비교적 미세한 중간 영역(0.56~2.5 μm)의 세 입경 영역으로 나누어 평균농도를 살펴보았다. 그 결과 Si, Al, Fe, Ca, Cl, Cu, Zn, Ti는 Stage 1과 2의 조대 영역에 70% 이상 존재하고 있고, S, Pb, Se, As는 Stage 3과 5사이에서 40% 이상, S, Ni, V, Se, As는 Stage 6 이하에서

20% 이상 분포하는 것으로 나타났다. 이로부터 입자의 입경에 따라 입자상 원소성분의 농도에 영향을 미치는 배출원 및 이들의 기여율이 다름을 짐작할 수 있었다.

3.3 인자분석을 통한 오염원 추정

미량원소간의 상관관계를 평가하고 유사한 거동을 하는 미량원소 성분들의 그룹을 찾아 입경별로 영향을 미치는 오염원을 조사하기 위해, SPSS 8.0(SPSS Inc., 1997) 프로그램을 사용하여 입경별 인자분석(factor analysis)을 수행하였다. 이때 8단의 각 입경영역에서 19가지 원소성분들에 대해 27일간 3시간 간격으로 측정된 자료를 사용하였다. 우선 해당 자료의 인자분석 적용가능성을 점검하기 위해 KMO 표준적합도와 Bartlett의 단위행렬점검을 수행한 결과, 여덟 단계의 입경영역에서 모두 p-value가 0.001 이하의 값을 가졌고, KMO MSA (Measure of sampling adequacy) 값이 1단에서부터 각각 0.784, 0.872, 0.871, 0.844, 0.884, 0.868, 0.859, 0.741로 모두 0.7 이상의 적합성을 보였다. 이때 적절한 인자수를 결정하기 위해서 고유치(eigenvalue)와 분산(variance) 등을 고려하였다. 특히 총 분산의 50% 이상에 대한 설명력을 가지는 동시에, 고유치가 1 이상인 범위에서 스크리 도표(Scree plot)에서 Sharp bread point를 포함하도록 인자의 수를 선택하였다. 회전방법은 가장 널리 사용되는 배리맥스(Varimax)법을 사용하였다. 계산된 고유치와 인자 부하량(Factor loading)은 표 4와 같이 나타났다.

인자분석의 결과, Stage 1 (5.0~12 μm), Stage 2

Table 3. The average concentrations of trace elements during the sampling period.

(ng/m³)

Stage	Al	Si	S	Cl	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn
1	530±232 (56.5%)	1199±531 (50.7%)	167±122 (7.9%)	519±335 (51.3%)	231±101 (31.5%)	298±207 (60.8%)	94.3±46.8 (60.1%)	0.92±0.53 (21.5%)	2.28±2.22 (63.1%)	9.21±4.83 (53.1%)
2	230±222 (24.4%)	561±525 (23.7%)	85.1±48.3 (4.0%)	297±313 (29.3%)	108±84.4 (14.8%)	111±87.5 (22.7%)	36.7±26.9 (23.4%)	0.44±0.31 (10.1%)	0.56±0.41 (15.5%)	3.49±3.01 (20.2%)
3	112±100 (11.9%)	299±272 (12.6%)	273±266 (12.8%)	114±154 (11.3%)	112±93.8 (15.4%)	55.8±32.2 (11.4%)	16.0±12.8 (10.2%)	0.40±0.32 (9.2%)	0.36±0.26 (10.1%)	2.15±1.45 (12.4%)
4	22.0±28.8 (2.3%)	74.2±76.5 (3.1%)	546±823 (25.5%)	6.59±5.36 (0.7%)	89.7±89.8 (12.2%)	6.47±4.80 (1.3%)	1.97±1.09 (1.3%)	0.30±0.27 (6.9%)	0.15±0.11 (4.2%)	1.11±0.83 (6.4%)
5	5.75±3.66 (0.6%)	20.0±12.1 (0.8%)	191±121 (8.9%)	1.87±1.08 (0.2%)	39.9±27.9 (5.5%)	2.07±1.16 (0.4%)	0.98±0.31 (0.6%)	0.14±0.20 (3.2%)	0.04±0.06 (1.1%)	0.31±0.23 (1.8%)
6	13.5±12.5 (1.4%)	38.3±22.2 (1.6%)	663±407 (31.0%)	5.53±3.60 (0.5%)	104±104 (14.2%)	1.41±0.93 (0.3%)	0.89±0.70 (0.6%)	1.32±1.12 (30.8%)	0.05±0.05 (1.3%)	0.43±0.36 (2.5%)
7	2.15±1.57 (0.2%)	7.47±8.88 (0.3%)	71.6±48.8 (3.4%)	1.10±0.79 (0.1%)	18.8±21.1 (2.6%)	0.63±0.15 (0.1%)	0.42±0.13 (0.3%)	0.19±0.18 (4.3%)	0.02±0.04 (0.5%)	0.10±0.07 (0.6%)
8	24.2±109 (2.6%)	167±264 (7.1%)	140±291 (6.5%)	66.9±343 (6.6%)	29.2±93.0 (4.0%)	14.3±71.3 (2.9%)	5.73±24.2 (3.7%)	0.59±0.58 (13.8%)	0.16±0.78 (4.3%)	0.53±2.50 (3.0%)
Total	939	2367	2136	1012	733	489	157	4.29	3.61	17.3
Stage	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Se	Br	Rb	Pb	
1	540±253 (61.1%)	1.04±0.82 (32.4%)	85.8±246 (95.8%)	63.0±153 (67.8%)	0.63±0.53 (24.7%)	0.14±0.13 (14.3%)	0.14±0.13 (46.3%)	1.50±1.26 (40.5%)	5.63±8.92 (31.0%)	
2	199±158 (22.5%)	199±158 (9.9%)	1.20±2.33 (1.3%)	5.01±3.30 (5.4%)	0.30±0.29 (11.9%)	0.07±0.05 (6.8%)	0.07±0.05 (11.8%)	0.51±0.57 (13.8%)	1.35±1.01 (7.5%)	
3	94.7±73.1 (10.7%)	0.31±0.19 (9.6%)	0.84±1.01 (0.9%)	8.74±6.33 (9.4%)	0.39±0.31 (15.5%)	0.16±0.13 (16.1%)	0.16±0.13 (8.5%)	0.47±0.43 (12.6%)	3.63±3.08 (20.0%)	
4	14.7±10.2 (1.7%)	0.27±0.21 (8.4%)	0.62±0.54 (0.7%)	7.91±6.80 (8.5%)	0.40±0.24 (15.8%)	0.25±0.24 (25.9%)	0.25±0.24 (10.7%)	0.42±0.35 (11.3%)	4.71±3.75 (26.0%)	
5	4.36±2.80 (0.5%)	0.10±0.09 (3.2%)	0.19±0.13 (0.2%)	2.23±1.19 (2.4%)	0.16±0.08 (6.3%)	0.07±0.3 (7.4%)	0.07±0.03 (2.6%)	0.18±0.06 (5.0%)	1.00±0.74 (5.5%)	
6	4.11±3.47 (0.5%)	0.57±0.39 (17.7%)	0.36±0.27 (0.4%)	2.93±2.05 (3.2%)	0.35±0.30 (13.7%)	0.18±0.12 (18.5%)	0.18±0.12 (10.7%)	0.20±0.11 (5.4%)	1.28±1.05 (7.1%)	
7	1.00±0.66 (0.1%)	0.21±0.07 (6.6%)	0.18±0.07 (0.2%)	0.81±0.31 (0.9%)	0.09±0.04 (3.7%)	0.05±0.02 (4.8%)	0.05±0.02 (1.9%)	0.17±0.03 (4.5%)	0.10±0.13 (0.5%)	
8	25.4±129 (2.9%)	0.39±0.53 (12.3%)	0.35±1.00 (0.4%)	2.34±8.63 (2.5%)	0.22±0.64 (8.5%)	0.06±0.12 (6.2%)	0.06±0.12 (7.5%)	0.26±0.43 (6.9%)	0.44±2.13 (2.5%)	
Total	883	3.20	89.6	93.0	2.54	0.98	0.98	3.71	18.15	

(2.5~5.0 μm), Stage 3 (1.15~2.5 μm), Stage 4 (0.75~1.15 μm), Stage 5 (0.56~0.75 μm), Stage 7 (0.26~0.34 μm)에서는 4개의 인자가 각 입경영역 총 분산의 70% 이상을 설명하였고, Stage 6 (0.34~0.56 μm)에서는 3개의 인자가 총 분산의 75%의 설명력을 보였다. 또한 가장 미세입경 영역인 Stage 8 (0.09~0.26 μm)에서도 4개의 인자가 총 분산의 61%를 설명하므로, 이로부터 서로 다른 원소성분들과 연관된 이러한 인자들에 의해 각 입경별 성분조성의 변화가 상당부분 설명되고 있음을 확인할 수 있었다.

각 인자에 대한 오염원 추정은 기존의 Source pro-

file을 기준으로 이루어졌다. 단, 이러한 오염원들의 입경별 성분조성에 대한 연구결과 부족으로 인해 본 연구에서는 평균성분조성 자료를 사용하였다. 이때 Source profile (Watson *et al.*, 1994; EPA, 1987; Mamuro *et al.*, 1979; Small *et al.*, 1979; Taback *et al.*, 1979; Watson, 1979; Gladney, 1976)을 근거로 하여 결정된 각 오염원의 주요 지표성분들은 다음 표 5와 같이 나타났다.

이 지표성분을 중심으로 오염원을 추정된 결과, 초대역역인 Stage 1, 2, 3에서 Si, Fe, Al, Mn, K, Cu, Ti, V, Ca, Rb와 높은 상관성을 갖는 첫 번째 인자는 주

로 토양에서 기원한 것으로 추정되었다(EPA profile 41350). Cl, Br와 Cu를 포함하는 두 개의 인자도 같

은 조대입경영역에서 공통적으로 나타나는데, Cl, Br을 포함하는 인자의 경우, 분포하는 입경영역을 고려

Table 4. Factor loading matrix of factor analysis*.

	Stage 1				Stage 2				Stage 3				Stage 4			
	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4
Al	0.88	0.24	0.04	-0.31	0.96	-0.05	0.08	0.08	0.94	0.26	-0.10	0.03	0.98	0.04	0.09	0.04
Si	0.92	0.03	0.08	-0.28	0.97	-0.01	0.07	0.06	0.92	0.13	-0.05	-0.02	0.96	0.01	0.12	0.06
S	-0.07	0.08	0.76	-0.02	0.33	0.89	-0.07	0.05	0.51	0.63	0.15	-0.06	0.97	0.05	-0.02	0.04
Cl	-0.06	0.11	0.04	0.89	-0.08	0.95	0.02	-0.04	-0.17	-0.21	0.82	-0.01	0.93	0.28	0.13	0.13
K	0.85	-0.10	0.29	-0.05	0.94	0.16	0.10	0.08	0.79	0.43	0.12	0.00	0.88	0.30	0.09	0.08
Ca	0.72	-0.08	0.06	0.05	0.94	0.12	0.06	0.11	0.79	0.22	0.08	0.05	0.27	0.02	0.83	0.11
Ti	0.85	0.13	-0.22	-0.03	0.89	0.02	0.09	0.11	0.91	0.10	-0.01	0.05	0.80	0.02	0.49	0.12
V	0.84	-0.01	0.04	-0.13	0.79	-0.05	0.06	0.06	0.72	0.52	-0.06	-0.01	0.22	0.87	0.12	0.16
Cr	0.41	0.59	-0.29	0.13	0.80	0.11	0.04	0.23	0.68	0.57	-0.13	0.05	0.70	0.35	0.35	0.17
Mn	0.91	0.11	0.12	0.00	0.95	0.04	0.10	0.11	0.65	0.67	0.03	0.08	0.27	0.14	0.46	0.79
Fe	0.97	0.14	-0.06	-0.03	0.97	0.01	0.12	0.12	0.93	0.28	-0.06	0.07	0.28	0.29	0.82	0.30
Ni	0.29	0.78	0.04	0.09	0.82	0.08	0.10	0.34	0.33	0.87	-0.03	0.08	0.03	0.35	0.14	0.80
Cu	-0.13	0.93	0.25	-0.01	0.07	-0.08	0.07	0.84	0.08	0.09	-0.04	0.96	0.25	0.83	0.31	0.29
Zn	-0.11	0.93	0.27	0.00	0.31	0.06	0.00	0.80	0.08	0.87	-0.01	0.21	0.10	0.07	0.16	0.95
As	0.30	0.38	0.60	0.25	0.43	0.07	0.74	0.08	0.43	0.42	0.20	0.23	0.74	0.49	0.15	0.16
Se	0.27	0.25	0.77	0.16	0.33	0.11	0.72	0.12	0.43	0.57	0.36	0.04	0.74	0.50	0.24	0.17
Br	-0.21	-0.12	0.15	0.85	-0.06	0.91	0.18	-0.03	0.12	0.13	0.88	-0.03	0.72	0.56	0.19	0.21
Rb	0.75	0.13	0.36	0.23	0.72	-0.02	0.56	0.07	0.78	0.25	0.14	0.12	0.81	0.19	0.16	0.07
Pb	0.01	0.86	0.14	-0.14	0.37	0.01	-0.75	0.11	0.19	0.81	-0.20	-0.11	-0.08	0.34	0.77	0.31
Eigen value	7.13	3.79	2.09	1.89	9.34	2.63	2.05	1.63	7.51	4.65	1.76	1.07	8.20	2.91	2.88	2.65
Variance %	37.52	19.97	10.99	9.94	49.13	13.85	10.80	8.57	39.51	24.47	9.25	5.60	43.17	15.32	15.14	13.96

	Stage 5				Stage 6			Stage 7				Stage 8			
	1	2	3	4	1	2	3	1	2	3	4	1	2	3	4
Al	0.33	0.89	0.09	-0.04	0.84	0.38	0.19	0.82	0.09	-0.04	-0.02	0.82	0.34	0.06	-0.08
Si	0.35	0.82	-0.18	0.03	0.58	0.67	0.30	0.84	0.37	0.15	0.04	0.70	0.38	-0.01	-0.20
S	0.73	0.34	-0.25	0.11	0.38	0.79	0.31	0.88	0.22	0.28	0.06	0.65	0.66	0.06	0.03
Cl	0.72	0.46	-0.07	-0.02	0.53	0.72	0.25	0.91	0.02	0.15	-0.08	0.80	0.41	0.12	0.17
K	0.66	0.47	0.14	-0.15	0.75	0.36	0.16	0.91	-0.06	0.04	-0.04	0.78	-0.02	0.08	0.22
Ca	0.12	0.87	0.16	-0.01	0.82	0.26	0.15	0.42	0.66	-0.01	-0.01	0.19	0.07	0.12	-0.09
Ti	-0.01	0.89	0.11	0.07	0.78	0.16	0.13	-0.26	0.64	-0.04	-0.11	-0.18	0.31	-0.13	0.14
V	0.79	0.13	-0.21	0.17	-0.05	0.89	0.23	0.57	0.00	0.71	0.06	0.11	0.90	-0.08	0.09
Cr	0.57	0.19	0.20	0.26	0.53	0.01	0.14	-0.04	0.54	-0.06	0.27	-0.23	0.02	0.88	0.16
Mn	0.82	0.38	0.17	0.11	0.74	0.30	0.46	0.68	0.63	-0.13	0.13	0.39	-0.02	0.78	-0.04
Fe	0.54	0.76	0.20	0.01	0.81	0.37	0.29	0.77	0.57	0.11	0.10	0.14	0.05	0.94	0.12
Ni	0.79	0.21	-0.04	0.07	-0.05	0.49	0.80	0.34	0.15	0.76	0.05	0.03	0.93	0.11	0.25
Cu	0.77	0.09	0.17	0.02	0.55	0.35	0.63	0.29	0.63	0.21	0.00	0.08	0.21	0.36	0.77
Zn	0.75	0.30	0.31	0.16	0.39	0.14	0.84	0.74	0.56	-0.03	0.17	0.72	0.09	0.30	0.29
As	0.18	0.02	0.06	0.94	0.25	0.72	0.02	0.09	0.07	0.15	0.80	0.38	0.03	0.03	0.02
Se	0.53	-0.05	0.11	0.16	0.62	0.56	0.14	-0.01	0.03	-0.14	0.81	0.62	0.10	0.02	0.14
Br	0.75	0.14	-0.32	-0.01	0.31	0.83	0.21	0.73	-0.06	0.13	0.19	0.74	-0.14	0.00	0.08
Rb	0.06	0.18	0.84	0.06	0.71	0.19	-0.08	0.23	0.14	-0.60	0.07	-0.20	-0.30	-0.12	-0.55
Pb	0.81	0.27	0.25	-0.32	0.65	0.11	0.40	0.52	0.47	-0.15	-0.02	0.36	-0.02	0.06	0.05
Eigen value	6.98	4.60	1.33	1.20	6.72	4.92	2.69	7.02	3.03	1.72	1.50	4.88	2.81	2.58	1.35
Variance %	36.75	24.19	6.98	6.30	35.36	25.92	14.14	36.96	15.95	9.03	7.92	25.68	14.78	13.56	7.13

* Rotation method : Varimax with Kaiser Normalization.

했을 때 해염에 의해 생성된 에어로졸일 가능성이 큰 것으로 나타났고, Cu를 포함하는 인자의 경우 Cu와 함께 Zn, Pb, Cr과 같은 성분들과 관계된 것으로 보아 비철금속산업과 관련된 배출원으로 판단되었다 (Mamuro *et al.*, 1979). Stage 1, 2, 5, 7의 조대 및 미

세영역에서 모두 나타나는 Se, As와 관계된 인자의 경우, As, Se가 토양을 제외하고는 석탄연소 시 배출되는 지표성분 (Song *et al.*, 2001)으로 알려져 있으므로 석탄 연소 배출원으로 생각되며 (신은상, 2002; Gladney *et al.*, 1976), 미세영역인 Stage 4에서 나타나는 Al, Ti, Ca, Si, Fe, Pb, Br 등을 포함하는 인자는 Source profile로부터 도로변 비산먼지에 관련된 오염원 (EPA profile 41130)으로 추정되었다. Stage 7, 8에서 공통적으로 관찰되는 K, Cl, S를 포함하는 인자와 V, Ni, S를 포함하는 인자의 경우, K와 S는 생체 연소의 지표성분이고 V, Ni의 경우 오일연소의 지표 성분이므로 각각 생체 연소 (Biomass burning)와 기름 연소 오염원을 나타내는 것으로 사료되었다 (신은상, 2002; Song *et al.*, 2001; Chan *et al.*, 1999; 나덕재 등, 1999; EPA profile 42320, 13505). 그리고 같은 입경 영역의 Fe, Cu, Mn, Zn에 관계된 인자의 경우 철강산업과 관련성이 높게 나타났다 (Watson, 1979). 이때 각 인자에 대한 오염원 추정 시, 본 연구에서는

Table 5. Marker elements of various sources.

Source	Marker element
Soil (EPA)	Si, Al, Fe, Ca, Ti
Road dust (EPA)	Si, Al, Fe, Ca, K, S, Pb, Ti
Sea salt (EPA)	Cl, S, K, Br
Coal combustion (Gladney <i>et al.</i> , 1976)	Al, Fe, K, Ca, As, Se
Oil fired boiler (EPA)	S, V, Ni, Si
Biomass burning (EPA)	K, Cl, S, Al, Fe
Industry (EPA 13504)	S, Si, Ni, Al, V, Fe, Ca
Incineration (EPA)	Cl, Zn, S, Al, Ca, Fe
Gasoline vehicle (Watson, 1994)	Si, S, Ca, Fe, Pb
Nonferrous metal (Mamuro <i>et al.</i> , 1979)	Cu, S, Al, Fe, Cl, Zn, Se, As
Ferrous metal (Watson, 1979)	Mn, K, Fe, S, Si

Table 6. Element loading and possible sources in individual factors.

	Factors			
	1	2	3	4
Stage 1 (5~12 μm)	Si, Fe, Mn, Al, K, Ti, V, Ca, Rb Soil	Cu, Zn, Pb, Cr Nonferrous metal source	Se, S, As Coal combustion	Cl, Br Sea salt
Stage 2 (2.5~5 μm)	Si, Fe, Al, Mn, K, Cu, Ti, V, Cr, Rb Soil	Cl, Br, S (K, Ca) Sea salt	As, Se Coal combustion	Cu, Zn Nonferrous metal source
Stage 3 (1.15~2.5 μm)	Al, Fe, Si, Ca, K, V, Mn, Cr, Rb Soil	Ni, Zn, Pb, S, Mn, V, Cr, Se Nonferrous metal source	Br, Cl (S, K) Sea salt	Cu (Nonferrous metal source)
Stage 4 (0.75~1.15 μm)	Al, S, Si, Cl, K, Ti, Rb, Se, As, Br, Cr Road dust	V, Cu Oil heating furnace	Ca, Fe, Pb (Mn, Cu, Cr, Se) Ferrous metal source	Zn, Ni, Mn (Fe, Cu) Nonferrous/Industry
Stage 5 (0.56~0.75 μm)	Mn, Pb, Ni, V, Cu, Br, Zn, S Industry	Al, Ti, Ca, Si, Fe Ferrous metal source	Rb (Zn, Pb, Cr) Municipal Incineration	As (Cr, Se, V, S) Coal combustion
Stage 6 (0.34~0.56 μm)	Al, Ca, Fr, Ti, K, Mn, Rb, Pb, Cl, K, Se (Si, Cl, Se) Ferrous metal source	V, Br, S, As, Cl, Si (Al, Ni, Se) Oil heating furnace	Zn, Ni, Cu (Mn, Si, S, Pb) Nonferrous/Industry	
Stage 7 (0.26~0.34 μm)	K, Cl, S, Si, Al, Fe, Zn, Br (Mn, V, Pb, Ca) Biomass burning	Ca, Ti, Cu, Mn (Zn, Pb, Cr) Ferrous metal source	Ni, V (S, Cl, Si) Oil fired boiler	Se, As (Cr, Br, Zn) Coal combustion
Stage 8 (0.09~0.26 μm)	Al, K, Cl, Br, Si, Zn, S (Se, As) Biomass burning	V, Ni, S (Si, Cl) Oil fired boiler	Fe, Cr, Mn (Cu, Zn) Ferrous metal source	Cu (Zn, Ni, K, Se, Fe) Nonferrous metal source

인자분석 결과의 용이한 해석을 위해 인자를 회전시켜 변수인 각 성분들이 어느 한 인자에서만 큰 factor loading을 나타내도록 하였다. 그 결과, 하나의 성분이 둘 이상 오염원의 영향을 동시에 받는 경우에는 상대적으로 많은 영향을 미치는 인자로만 분리되어 나타나 그 외 다른 오염원에 의한 영향을 설명하지 못하는 문제가 발생하였다. 따라서 표 5에 나타나 있듯이 여러 오염원에 공통적으로 포함되어 있는 지표성분인 S, Fe, Al, Si, Ca 뿐만 아니라, 분산 값이 큰 인자에 포함된 성분들 중 일부는 상대적으로 분산이 적은 인자에도 어느 정도 기여하고 있다고 가정하여 오염원을 추정하였다. 그 결과는 표 6과 같이 정리되었다.

이와 같이 추정된 오염원들의 입경별 분포를 살펴 보면, 토양 및 해염성분들은 주로 Stage 1부터 3사이 (1.15~12 μm)의 조대영역에 존재하는 반면, 기름 및 석탄연소, 철강산업으로부터 배출된 오염성분들의 경우 Stage 4에서부터 Stage 8까지 (0.09~1.15 μm) 미세입자영역에 분포하는 것으로 추정되었다. 또한 생체 연소에 의해 발생한 입자들은 Stage 7과 8 (0.09~0.34 μm)사이의 매우 미세한 입자영역에 존재하는 것으로 나타났다.

3.4 입경별 성분의 농도비

오염원 추정결과를 확인하기 위해 특정 입경영역에서 나타난 성분들 간의 비율 살펴본 결과, 그림 3

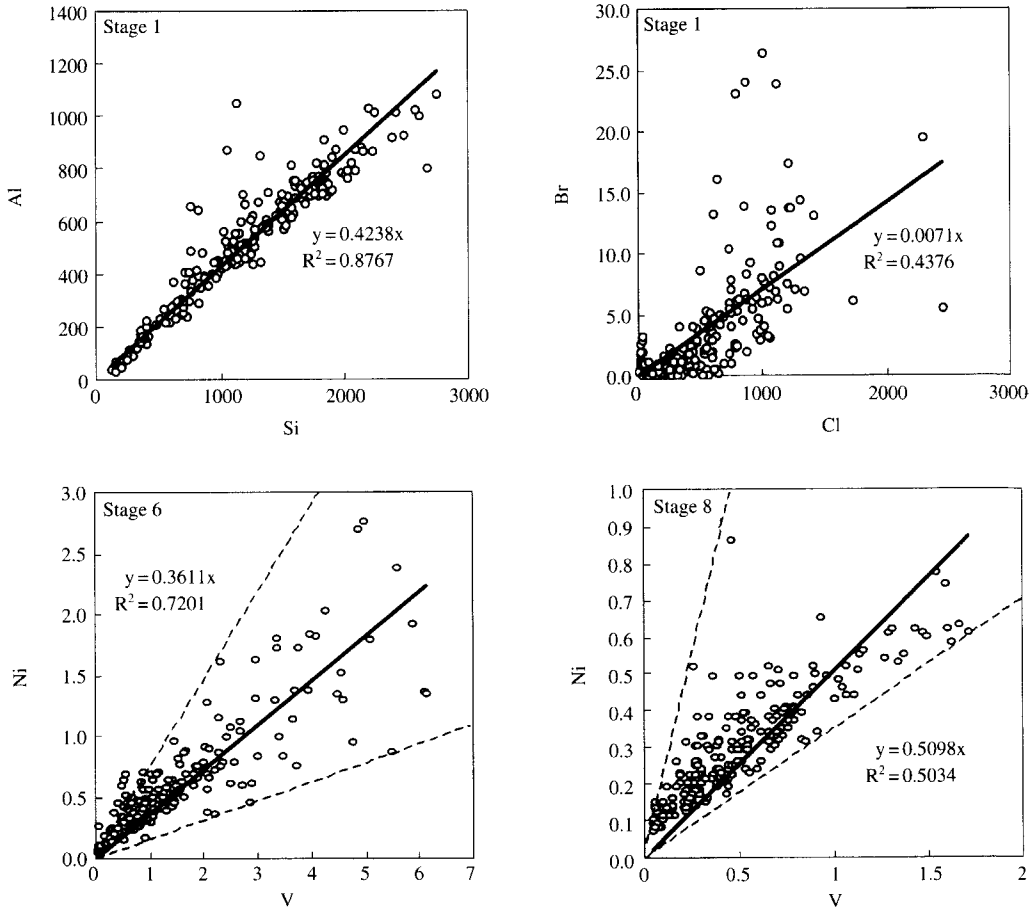


Fig. 3. Correlations between trace elements at stage 1 (5.0~12 μm), stage 6 (0.34~0.56 μm) and stage 8 (0.09~0.26 μm).

과 같이 나타났다. 우선 Stage 1의 Al/Si, Br/Cl 값은 각각 0.42, 0.0071로, 토양의 Al/Si 비 0.37 (EPA) 및 해염의 Br/C 비 0.01 (Watson, 1979)와 각각 유사하게 나타나, 이 조대입경영역에서는 토양 및 해염에 의해 발생한 오염원의 영향을 받고 있음을 확인할 수 있었다. 또한 미세입경영역인 Stage 6와 Stage 8에서는 Ni/V 비가 각각 0.36과 0.51로 나타나, 기름 보일러 배출원의 Ni/V비 0.44 (EPA)와 유사한 값을 나타내었다. 이때 각 오염원의 source profile로부터 계산된 원소성분비와 측정값의 성분비에 차이가 나타나는 이유는 각 원소성분이 측정기간 전반에 걸쳐 동일한 오염원의 영향을 받은 것이 아니라, 세부기간 별로 서로 다른 오염원의 영향을 받았거나 여러 오염원이 혼합된 형태로 영향을 받았기 때문으로 사료된다. 그 결과 그림 3의 Stage 1에 대한 Cl과 Br의 상관그래프에서 측정결과가 두 개, 혹은 그 이상의 그룹으로 나누어져 서로 다른 성분비를 나타내었고, Stage 6과 8의 Ni와 V의 상관그래프에서와 같이 다른 오염원의 영향 정도에 따라 데이터의 산포도가 다르게 나타나는 것을 확인할 수 있었다. 이러한 결과는 앞에서 언급했듯이 한 성분비에 대한 여러 오염원의 영향을 모두 고려할 수 없는 인자분석의 한계를 잘 나타내며, 앞으로 이러한 한계점을 보완하는 세부적인 분석을 통해 보다 정확하고 구체적인 오염원 추정이 가능함을 보여준다.

4. 결 론

Drum sampler를 이용한 입경별 원소성분의 연속 분석을 통해 배출원을 추정하기 위하여 제주도 고산에서 2002년 5월 4일부터 30일까지 측정을 수행하였다. 그 결과 원소성분의 측정기간 평균농도는 Al, Cl, Fe, K는 약 1,000 ng/m³ 수준이었고, Ti, Cu, Zn은 약 100 ng/m³ 수준, Pb, Ni, V, Rb, Cr, As는 2~20 ng/m³ 수준으로 나타났다. 이때 Al, Fe, Ca, Cl, Cu, Ti는 주로 조대영역(2.5~12 μm)에 80% 이상 존재한 반면, S, Ni, V, Se, As, K는 약 20~40%가 미세영역(0.09~0.56 μm)에 존재하였다. 그리고 이 두 입경범위의 중간에 해당하는 입경영역(0.56~2.5 μm)에서는 S, Pb, Se, As가 40% 이상 존재하는 것으로 나타났다.

입경별로 유사한 거동을 보이는 미량원소 성분들

의 오염원을 조사하기 위해 입경별 인자분석(factor analysis)을 수행한 결과, 각 입경영역에서 3개에서 4개의 인자들이 총 분산의 60% 이상을 설명하는 것으로 나타났다. 이때 입경별 인자분석 결과와 Source profile로부터 결정된 대표적인 오염원의 지표성분은 다음과 같이 나타났다.

- Soil : Si, Al, Fe, Ca, K, Mn, Ti, V, Rb
- Sea salt : Cl, Br
- Coal combustion : S, As, Se
- Oil fired boiler : S, V, Ni, Si
- Ferrous : Fe, Al, Ti, Ca, Mn
- Nonferrous : Zn, Ni, Cu
- Biomass burning : K, Cl, S

인자분석 결과로부터 입경별로 기여 가능성이 큰 오염원을 확인할 수 있었는데, 조대영역(2.5~12 μm)의 경우 주로 토양, 해염, 석탄연소, 비철금속산업 등의 영향을 받는 것으로 나타났고, 미세영역(0.09~0.56 μm)에서는 생체 연소, 기름 및 석탄연소, 철강 및 비철금속산업의 영향을 받은 것으로 나타났다. 그리고 이 두 입경범위의 사이에 있는 입경영역(0.56~2.5 μm)에서는 도로변 비산먼지, 기름보일러, 철강 및 비철금속산업, 쓰레기 소각 및 석탄연소 생성물들의 영향을 많이 받는 것으로 추정되었다. 마지막으로 이러한 입경별 다양한 오염원의 영향은 고산지역이 오염물 배출원이 거의 없는 청정지역임을 감안할 때 주변 지역에서 배출된 오염물질에 의한 것으로 사료된다. 이와 같이 각 입경영역에서 추정된 오염원의 지표성분에 대한 성분비를 계산한 결과, 상당부분 Source profile의 성분비와 유사하게 나타나 본 측정 자료의 세부적인 분석을 통해 구체적인 오염원 추정이 가능함을 보여주었다. 앞으로 이와 같은 다양한 원소성분의 입경별 연속측정 자료와 함께 측정지점 주변지역에 위치한 배출원에 대한 자료와 풍향 및 공기계의 이동경로와 같은 기상인자들을 함께 고려할 경우, 대기 중 입자상 오염물질의 배출원과 이들의 영향을 보다 정확하게 평가할 수 있을 것으로 생각된다.

감사의 글

본 연구는 환경부 차세대핵심환경기술개발사업인

“미량독성 유해물질의 장거리 이동특성과 영향평가 기술” (과제번호 2001-44001-8) 지원으로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

강병욱(1998) 수용모델을 이용한 PM_{2.5}의 배출원 추정, 박사논문, 건국대학교

김영성, 김진영, 김연제, 문길주, 문광주, 한진석, 김상우, 윤순창, 권성안(2003) 2001년 11월 오염시기와 2002년 봄 황사시기 제주도 고산에서의 잔류성 유기오염물질 농도 변화, 한국대기환경학회지, 19(5), 469-490.

국립환경연구원(2003) 동북아대기오염 감시체계구축 및 환경보전협력사업(IV).

국립환경연구원(1987) 대기중 입자상물질의 생성 및 동태에 관한 연구.

국립환경연구원(1986) 대기중 Aerosol 동태에 관한 조사연구.

김용표, 배귀남, 지준호, 진현철, 문길주(1999) 제주도 고산에서의 에어로솔 입경분포별 조성: 1998년 4월 측정 연구, 한국대기환경학회지, 15(5), 677-685.

김용표, 김진영, 박세욱, 김성주, 심상규, 문길주, 박영준, 허철구(1996b) 고산에서의 1994년 3월~4월 측정연구(I) 입자상 오염물질의 이동, 한국대기보전학회지, 12(1), 79-90.

나덕재, 이병규(2000) 산업도시 대기 중 PM₁₀의 농도 및 금속원소 성분의 특성 연구, 한국대기환경학회지, 16(1), 23-25.

신은상, 최민규, 선우영, 정용삼(2002) 서울지역의 PM₁₀ 중 미량원소의 특성 평가, 한국대기환경학회지, 18(5), 363-372.

이중훈, 백남준, 김용표, 문길주(1995) 1993년 8월의 서울지역 시정 연구, 한국대기보전학회지, 11(3), 291-298.

최규훈, 김기현, 강창희, 이진홍(2003) 황사와 비황사기간의 중금속 농도분포 특성: 2001년 황사기간에 대한 비교연구, 한국대기환경학회지, 19(1), 45-56.

한진석, 김영성, 문광주, 안준영, 김정은, 류성윤, 김영준, 공부주, 이석조(2003) 2001년 11월 오염시기와 2002년 봄 황사시기 제주도 고산에서의 미량원소 농도 변화, 한국대기환경학회지, 19(5), 469-490.

한진석, 문광주, 류성윤, 안준영, 공부주, 홍유덕, 김영준, Drum impactor를 이용한 대기 입자상 물질 중 원소성분의 입경분포 특성: 제주도 고산지역의 2002년 봄철(3.29~5.30) 측정 연구, 한국대기환경학

회지, 20(4) 535-569.

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 modelling, Atmospheric Environment, 33, 3251-3268.

Gladney, E.S., J.A. Samll, G.E. Gordon, and W.H. Zoller (1976) Composition and Size distribution of In-Stack Particulate Material at a Coal-Fired Power Plant, Atmospheric Environ, 10, 1071-1077.

Han, J.S., K.J. Moon, J.Y. Ahn, Y.D. Hong, Y.J. Kim, S.Y. Ryu, S.S. Cliff, and T.A. Cahill (2004) Characteristics of ion components and trace elements of fine particles at Gosan, Korea in springtime from 2001 and 2002, Environmental Monitoring and Assessment, 92, 73-9.

Hillamo, R.E., V.M. Kerminen, W. Maenhaut, J.L. Jaffrezo, S. Balachandran, and C.I. Davidson (1993) size distributions of atmospheric trace elements at Dye 3, Greenland-I. Distribution characteristics and dry deposition velocities, Atmospheric Environment 27A, 2787-2802.

Kang, C.M. (2002) Characteristics of the Fine Particles and Source Apportionments using the CMB model in Seoul Area, Ph. D. Thesis, Konkuk Univ.

Mamuro, T., A. Mizohata, and T. Kubota (1979a) Elemental Compositions of Suspended Particles Released from Iron and Steel Works, Annual Report of the Radiation Center of Osaka Prefecture 20, 19-28.

Mamuro, T., A. Mizohata, and T. Kubota (1979b) Elemental Compositions of Suspended Particles Released from Various Boilers, Annual Report of the Radiation Center of Osaka Prefecture 20, 9-17.

Mamuro, T., A. Mizohata, and T. Kubota (1979c) Elemental Compositions of Suspended Particles Released from Various Small Sources (I), Annual Report of the Radiation Center of Osaka Prefecture 20, 37-45.

Mamuro, T., A. Mizohata, and T. Kubota (1979d) Elemental Compositions of Suspended Particles Released from Various Small Sources (II), Annual Report of the Radiation Center of Osaka Prefecture 20, 47-53.

Mamuro, T., A. Mizohata, and T. Kubota (1979e) Elemental Compositions of Suspended Particles Released in Glass Manufacture, Annual Report of the Radiation Center of Osaka Prefecture 20, 19-28.

Hopke, P.K. (1985) Receptor Modeling in Environmental

- Chemistry, JOHN WILLY & SONS.
- Reid, E.A., J.S. Reid, M.M. Meier, M.R. Dunlap, S.S. Cliff, A. Broumas, K. Perry, and H. Maring (2003) Characterization of African dust transported to Puerto Rico by individual particle and size segregated bulk analysis, *Journal of Geophysical Research*, 108 (D19), 8591.
- Reid, J.S., T.A. Cahill, and M.R. Dunlap (1994) Geometric/ Aerodynamic Equivalent Diameter Ratios of Ash Aggregate Aerosols Collected in Burning Kuwaiti Well Fields, *Atmospheric Environment*, 28(13), 2227-2234.
- Hillamo, R.E., V.M. Kerminen, W. Maenhaut, J.L. Jaffrezo, S. Balachandran, and C.I. Davidson (1993) Size distributions of atmospheric trace elements at Dye 3, Greenland-I. Distribution characteristics and dry deposition velocities, *Atmospheric Environment* 27A, 2787-2802 .
- Taback, I.J., A.R. Brienza, J. Macko, and N. Brunetz. (1979) Fine Particle Emissions from Stationary and Miscellaneous Sources in the South Coast Air Basin, Report No. KVB5806-7 83, KVB Inc, Tustin, CA
- US EPA (1987) Protocol for applying and validating the CMB model, EPA-450/4-87-010.
- Watson, J.G. (1979) Chemical Element Balance Recetor Model Methodology for Assessing the Source of Fine and Total Suspended Particulate Matter in Portland, Oregon, Ph. D. Thesis, Oregon Graduate Center, Beaverton.
- Watson, J.G., J.C. Chow, Z. Lu, E.M. Fujita, D.H. Lowenthal, D.R. Lawson, and L.L. Ashbaugh (1994) Chemical Mass Balance source apportionment of PM₁₀ during the Southern California Air Quality Study, *Aerosol Science and Technology* 21, 1-36.
- Xin-Hua Song, V. Alexandr, and K. Polissar, Hopke (2001) Sources of fine particle composition in the north-eastern US, *Atmospheric Environment*, 35, 5277-5286.