

## 하이브리드 수용모델을 이용한 서울시 PM<sub>2.5</sub> 오염원의 위치 추적

### Identification of Potential Source Locations of PM<sub>2.5</sub> in Seoul using Hybrid-receptor Models

강병욱 · 강충민<sup>1)</sup> · 이학성<sup>2)</sup> · 선우 영<sup>3),\*</sup>

국립충주대학교 환경공학부, <sup>1)</sup>Harvard 보건대학원, <sup>2)</sup>서원대학교 환경건설정보학과  
<sup>3)</sup>건국대학교 신기술융합학과

(2008년 7월 31일 접수, 2008년 11월 6일 채택)

Byung-Wook Kang, Choong-Min Kang<sup>1)</sup>, Hak Sung Lee<sup>2)</sup> and  
Young Sunwoo<sup>3),\*</sup>

*Division of Environmental Engineering, Chungju National University*

<sup>1)</sup>*Department of Environmental Health, School of Public Health, Harvard University*

<sup>2)</sup>*Department of Environmental, Civil, and Information System, Seowon University*

<sup>3)</sup>*Department of Advanced Technology Fusion, Konkuk University*

(Received 31 July 2008, accepted 6 November 2008)

#### Abstract

Two hybrid receptor models, potential source contribution function (PSCF) and concentration weighted trajectory (CWT), were compared for locating PM<sub>2.5</sub> sources contributing to the atmospheric PM<sub>2.5</sub> concentrations in Seoul. The source contribution estimates by chemical receptor model (CMB) receptor model were used to identify better source areas. Among the sources, soil, agricultural burning, marine aerosol, coal-fired power plant and Chinese aerosol were only considered for the study because these sources were more likely to be associated with the long-range transport of air pollutant. Both methods are based on combining chemical data with calculated air parcel backward trajectories. However, the PSCF analyses were performed with trajectories above the 75<sup>th</sup> percentile criterion values, while the CWT analyses used all trajectories. This difference resulted in locating of different sources, which might be helpful to interpret locating of PM<sub>2.5</sub> sources.

High possible source areas in source contribution of soil and agricultural burning contributing to the Seoul PM<sub>2.5</sub> were inland areas of Heibei and Shandong provinces (highest density areas of agricultural production and population) in China. The "Chinese aerosol" was used as a representative source for the PM<sub>2.5</sub> originated from urban area in China. High possible source areas for the aerosol were the cities in China where are relatively close to the receptor. This result suggests that Chinese aerosol is likely to be a useful tool in studies on source apportionment

\*Corresponding author.

Tel : +82-(0)2-450-3541, E-mail : ysunwoo@konkuk.ac.kr

and identification in Korea.

**Key words :** PM<sub>2.5</sub>, CMB, PSCF, CWT, Seoul

## 1. 서 론

과거 20년 동안의 인체에 대한 환경대기 중 입자상 물질의 영향에 관한 연구결과를 근거로 입자상 물질 농도는 인체의 호흡기(respiratory) 및 심혈관계(cardiovascular)에 악영향을 미치며, 이러한 악영향은 호흡기 및 심혈관계 질환에 의한 초과 사망건수 증가 등의 결과를 초래한다. 또한 환경대기 중 PM<sub>10</sub> 보다는 PM<sub>2.5</sub>농도에 의한 초과 사망건수 및 병원 입원건수는 통계적으로 더 유의하게 큰 증가율을 나타낸다(Klemm *et al.*, 2000; Lighty *et al.*, 2000; Libaca *et al.*, 1999; Schwartz *et al.*, 1996; Dockery and Pope, 1994; Dockery *et al.*, 1993, 1992).

우리나라에서 입자상 오염물질 농도는 장거리 이동된 오염물질 영향을 받기 때문에 관련 연구에 있어서 장거리 이동은 매우 중요하게 다루어져야 한다. 이러한 관점에서 봄철기간 중 중국 북부지역과 몽고에 위치한 사막지대에서 기인하는 황사의 영향은 대표적이라 하겠다. 특히, 황사기간 중 입자상 물질의 지각기원 성분농도가 유의하게 증가하는 것이 관측되었고, 황사기간 외에도 몇몇 연구들은 중국 대기오염물질의 장거리 이동에 따른 국내 대기오염의 영향에 대해서 조사되었다(Kang *et al.*, 2004a, b; Park and Lee, 2004; Choi *et al.*, 2001; Lee *et al.*, 1999). 그러나 이들 연구들은 정성적인 연구가 대부분이고 연구기간도 황사기간에 한정된 연구들이다. 따라서 국내 대기오염에 영향을 미치는 장거리 이동 오염물질의 정량적인 평가가 이루어져야 하며, 이를 위해 좀 더 정확한 오염원 위치 추적이 필요하다.

아시아 지역에서 배출된 기체상 오염물질들(SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, 비메탄계 휘발성 유기화합물 및 NH<sub>3</sub>)과 1차 입자상 오염물질들(유기 및 원소탄소) 중에서 중국에서 기인한 오염물질들의 기여도가 대부분을 차지한다는 연구 결과들이 보고되고 있다(Streets *et al.*, 2003a, b). 특히, 중국 풍하측에 위치한 우리나라의 경우는 더욱 더 중요하며 지속적인 관심

이 필요하다. 중국은 크게 연안 산업지대, 중부지대, 서부지대 등 3개 지역의 산업지대로 분류된다. 그 중에서 연안 산업지대는 12개 연안 지역(Liaoning, Beijing, Tianjin, Hebei, Shandong, Jiansu, Shanhai, Zhejiang, Fujian, Guangdong, Hainan 및 Guangxi)을 포함한 연안 산업지대이다. 이 지역은 중국 전체면적의 14.3%를 차지하는 반면에 전체인구의 41.3%가 거주하고 있다. 또한 이 지역은 가장 산업화된 곳으로 철강 및 화학을 비롯한 2차산업의 중심지이다. 특히 Beijing, Tianjin, Hebei와 Shandong은 기술집약적 산업을 비롯하여 농·수산업의 중심지이며, Shandong에 위치한 Jinan과 Qingdao시에는 수 많은 경·중공업시설이 산재되어 있다. 따라서 우리나라와 가장 근접해 있는 연안 산업지대는 대기오염물질 장거리 이동 관점에서 매우 중요하게 다루어져야 할 것이다.

2001년부터 2002년까지 서울시 PM<sub>2.5</sub>농도를 CMB(chemical mass balance) 수용모델을 이용하여 각 배출원별 기여도를 구한 연구가 보고되었다(Kang *et al.*, 2008; 이학성 등, 2005). 본 연구에서는 이들 각 배출원별 기여도를 공기 역학적 결과와 통계적 분석을 결합한 PSCF(potential source contribution function)와 CWT(concentration weighted trajectory) 위치 추적 모델들을 이용하여 서울시 PM<sub>2.5</sub>농도에 영향을 준 오염원들의 위치를 추적하였다.

## 2. 연구 방법

### 2.1 PM<sub>2.5</sub> 배출원 기여도

본 연구에서 위치 추적 모델이 적용될 수용지점은 서울시이며, 연구기간은 2001년 4월 9일 부터 2002년 2월 8일까지 1년 동안 총 59회 측정결과를 대상으로 하였으며, 측정결과 및 배출원 기여도는 이전 문헌에 자세히 설명하였다(Kang *et al.*, 2006, 2004a). 이전 연구에서 수용지점에서 측정된 미세먼지(PM<sub>2.5</sub>)농도의 배출원 기여도를 산정하기 위하여 총

**Table 1. Average PM<sub>2.5</sub> Source contribution estimates in Seoul (unit: µg/m<sup>3</sup>).**

Source type	Spring (n=15) <sup>1)</sup>	Summer (n=15)	Fall (n=14)	Winter (n=15)	Annual (n=59)
Soil	4.2 (7%) <sup>2)</sup>	0.0 (0%)	0.3 (<1%) <sup>3)</sup>	0.2 (<1%)	1.2 (2%)
Road dust	2.0 (3%)	0.0 (0%)	0.0 (0%)	0.0 (0%)	0.5 (1%)
Gasoline vehicle	0.8 (1%)	4.3 (22%)	3.0 (5%)	3.5 (7%)	2.9 (9%)
Diesel vehicle	8.0 (15%)	9.9 (45%)	11.4 (22%)	6.0 (14%)	8.8 (24%)
Municipal incinerator	0.3 (<1%)	1.5 (7%)	1.7 (3%)	3.0 (6%)	1.6 (4%)
Industrial sources	0.2 (<1%)	0.5 (1%)	0.0 (0%)	0.0 (0%)	0.2 (<1%)
Agricultural/biomass burning	8.7 (15%)	0.0 (0%)	21.7 (31%)	20.9 (40%)	12.7 (21%)
Marine aerosol	0.8 (2%)	0.2 (1%)	0.1 (<1%)	0.1 (<1%)	0.3 (1%)
Coal-fired power plant	0.7 (1%)	0.0 (0%)	4.7 (5%)	2.3 (3%)	1.9 (2%)
Chinese aerosol	17.1 (32%)	0.0 (0%)	13.5 (11%)	9.6 (10%)	10.0 (13%)
(NH <sub>4</sub> )SO <sub>4</sub>	7.2 (13%)	2.5 (12%)	8.5 (9%)	4.1 (8%)	5.5 (10%)
NH <sub>4</sub> NO <sub>3</sub>	4.7 (9%)	2.6 (12%)	12.1 (14%)	6.5 (10%)	6.4 (11%)

<sup>1)</sup>Number of samples; <sup>2)</sup>Percent of the total mass; <sup>3)</sup>Below 0.5%

11개의 배출원들이 선정 되었고, 각각 적합한 방법에 의하여 배출원 구성성분비 (source profiles)가 구축되었다 (이학성 등, 2005). 이들 연구를 통해 구축된 배출원들은 토양, 도로먼지, 휘발유 자동차, 경유 자동차, 점 오염원, 석탄연소 화력발전소, 해염입자, 중국 에어로솔 및 이차입자들 (NH<sub>4</sub>[SO<sub>4</sub>]<sub>2</sub> 및 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>)이었다. 또한 수용지점 및 배출원에서의 PM<sub>2.5</sub>농도 및 배출원 구성성분비를 이용하여 CMB (chemical mass balance) 모델을 이용하여 계절별 및 연간 배출원 기여도를 계산하였다 (Kang *et al.*, 2008; 이학성 등, 2005). 본 연구에서 계절별 배출원 기여도를 사용할 경우 적은 자료수로 인한 모델 결과 유의성 문제가 발생할 수 있으므로 이를 최소화 하기 위하여 연간 배출원 기여도만을 오염원 추적에 사용하였다. CMB 수용모델에 의해 계산된 각 배출원별 계절별 및 연간 기여도를 간략하게 정리하여 표 1에 나타내었다.

## 2. 2 오염원 추적모델

최근까지 다양한 오염원 위치 추적 모델을 이용하여 수용지점에 영향을 미친 오염원 위치를 확인하기 위한 많은 시도가 있었다. 몇몇 연구들은 수용지점에 도달한 공기 역학적 (backward trajectory)을 분석하여 오염원 추적을 시도 (Kang *et al.*, 2004a; Brook *et al.*, 2002; Dutkiewicz *et al.*, 2000)한 반면, 다수의 연구들에서는 공기 역학적 결과와 통계적 방법론 (예를 들면, 확률분석 또는 군집분석)을 결합하여 조금 더 정확한 오염원 추적을 시도하였다 (Brankov *et al.*, 2003;

Polissar *et al.*, 2001; Lucey *et al.*, 2001; Dorling *et al.*, 1992; Ashbaugh *et al.*, 1985). 더불어 최근 연구에서는 수용지점에서의 측정 농도 대신에 수용모델을 이용하여 배출원 기여도를 산정한 후, 배출원 기여도, 공기 역학적 및 통계적 접근법을 통합하여 보다 나은 오염원 추적을 시도하였다 (Poirot *et al.*, 2001; Xie *et al.*, 1999). 본 연구에서도 기존의 배출원 기여도와 역학적 분석 (backward trajectory analysis)을 통한 궤적점 (trajectory end point)을 이용한 2차적인 분석을 통하여 주요 오염원의 위치를 추적하였다. 사용된 오염원 위치추적 수용모델은 PSCF (potential source contribution function)와 CWT (concentration weighted trajectory) 분석이었다.

HYSPLIT (hybrid single particle lagrangian integrated trajectory, version 4.7) 궤적 모델 (Draxler and Rolph, 2003)이 수용지점에 도달한 72시간 동안의 공기 역적을 구하기 위해 이용되었다. 우선, 최적 역적을 위한 비행 고도를 선정하기 위하여, 평균 혼합고를 기준으로 1,000 m, 1,500 m와 3,000 m에 대한 역적을 분석하였다. 이는 산악지역이 많은 동북 아시아의 지형적 특성 때문에 미국 동지에서 보고된 고도에 비해 비교적 높게 선정되었다. 이들 중에서 1,000 m의 경우, 일부 역적들이 수용지점에 도달하기 전에 지면에 도달하는 경우가 종종 확인되어 지형적 영향을 대체로 많이 받는 것으로 판단되어 배제되었고, 3,000 m의 경우는 대체로 균일하고 안정적인 비행경로를 보였지만, 지상 오염원의 영향을 고려

하기에는 적절하지 않은 것으로 판단되었다(Kang *et al.*, 2006). 최종적으로, 장거리 이동 오염물질의 오염원 추적을 위한 최적 고도로서 1,500m가 선정되었다. 또한 더 나은 공간 해상도를 위하여 1,500m에서 수용지점 측정시작 시간(현지시간 09:00)부터 매 6시간(표준시간 18:00, 00:00, 06:00, 12:00)별 역케적이 계산되어 하나의 측정자료에 대해 총 4개의 역케적을 가지게 하였다. 다시 말하면, 하나의 역케적은 73개의 케적점(수용지점 포함)으로 구성되기 때문에 총 측정일인 59일에 대해서는 총  $4 \times 73 \times 59$ 개의 케적점이 분석에 사용되었다. 이는 동아시아 지역을 포함하는 총 2,300개의 지리적 격자(위도 $\times$ 경도= $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ )별로는 평균적으로 7.5개의 케적점이 분석된 것을 의미한다. 본 연구에서 이용된 오염원 위치추적 수용모델들은 다음과 같이 정의된다.

### 2. 2. 1 PSCF (potential source contribution function)

PSCF 모델은 조건부 확률 분석으로 어떤 지리적 격자지역을 지나는 케적이 수용지점에 도달하여 기준치 이상의 높은 농도를 나타낼 확률이다. Ashbaugh *et al.* (1985)이 미국 Grand Canyon에서 환경대기 중황의 농도에 대하여 적용한 것을 시작으로 다양한 해상도 및 비행 고도별로 분석되어 비교적 간단한 방법으로 오염원 위치 추적에 이용되었다. PSCF 모델 값은 다음과 같이 정의된다.

$$PSCF_{(i,j)} = \frac{m(i,j)}{n(i,j)}$$

여기서,  $m(i,j)$ 는 수용지점에서 일정 기준치(본 연구에서는 75분위수)보다 높은 농도를 나타낼 때,  $(i,j)$ 격자를 지나는 케적점 수이며,  $n(i,j)$ 는  $(i,j)$ 격자를 지나 총 케적점의 수를 나타낸다. PSCF 결과를 분석하는 데 있어서 몇몇 주의해야 할 점들이 있다. 첫째, PSCF 결과는 정확한 오염원 위치를 제공하는 것이 아니라 수용지점에 영향을 준 것 같은 높은 확률을 가진 특정 격자지역의 위치만을 지정한다. 다시 말하면, 높은 PSCF 결과를 가진 격자지역은 수용지점에 영향을 주었을 확률이 높은 잠재 오염원 지역이거나 가능한 경로이다. 둘째, PSCF 결과는 모사된 지역의 모든 오염원의 위치를 반영하지는 않는다. 즉, 실제로 고농도의 오염원이 존재하더라도 케적이 고농도 오염원을 지나지 않으면 결과에서 확인할 수

없다. 이는 수용지점에 해당하는 국지지역 오염원들에 대해서도 적용된다. 왜냐하면 모든 케적들은 수용지점 근처를 지나기 때문에 국지지역 오염원을 모사하는 데는 적절하지 않고 HYSPLIT 역케적 모델이 오차범위가 국지지역을 모사하기에는 너무 크기 때문이다. 또 다른 문제점은 비록 높은 확률의 오염원을 갖는 격자지역이라 할지라도 소수의 케적을 가질 경우는 큰 불확실도를 갖게 된다. 이런 문제를 보완하기 위하여 경험 가중치  $W(nij)$ 가 널리 사용된다(Brankov *et al.*, 2003; Lucey *et al.*, 2001; Polissar *et al.*, 2001; Dorling *et al.*, 1992).

Polissar *et al.* (2001)은 모든 격자내 평균 케적점 수를 기준으로 3배수보다 적은 케적점을 갖는 격자를 큰 불확실도를 갖는다고 하였고 이들로부터 수많은 시행착오를 통해 최종적인 경험 가중치  $W(nij)$ 를 선정하여 사용하였다. 본 연구에서도 Polissar 방법과 같이 3배의 평균 케적점 수를 시작으로 하여 많은 시행착오를 통해 다음과 같은 최종적인 경험치를 확정하여 사용하였다.  $n(i,j) < 4$ 인 경우는  $W(nij)$ 는 0.17,  $4 \leq n(i,j) < 9$ 인 경우는  $W(nij)$ 는 0.42,  $9 \leq n(i,j) < 16$ 인 경우는  $W(nij)$ 는 0.70,  $n(i,j) \geq 16$ 인 경우는  $W(nij)$ 는 1.00이었다.

### 2. 2. 2 CWT (concentration weighted trajectory) 모델

PSCF 위치 추적 모델은 일정 기준치(평균, 75분위수, 80분위수 등)보다 높은 농도를 나타낸 역케적들을 동일한 선상에서 계산하기 때문에 이들 중 보다 높은 농도를 갖는 역케적에 대해 과소 평가될 수 있고 분리해서 평가할 수 없다는 한계성을 갖는다. Hsu *et al.* (2003)은 이를 보완하기 위하여 CWT (concentration weighted trajectory) 오염원 위치 추적 모델을 제안하였다. PSCF 모델이 수용지점에서 일정 기준치(본 연구에서는 75분위수)보다 높은 농도를 보인 역케적만을 사용하여 오염원 위치를 추적하는 반면, CWT 모델은 전체 연구기간 중 역케적을 수용지점 농도와 결합하여 지정된 지역내의 오염원 위치별 수용지점에 대한 영향정도를 농도 경사로 표현하기 때문에 PSCF의 한계성을 극복할 수 있다. 따라서 두 모델 결과가 반드시 일치하는 것은 아니다. 본 연구에서는 수용지점 농도 대신에 각 배출원별 기여도를 이용하였고, CWT 모델은 다음과 같이 정의된다.

$$C_{ij} = \frac{1}{\sum_{i=1}^M \tau_{ij}} \sum_{i=1}^M C_i \tau_{ij}$$

여기서,  $C_{ij}$ 는  $(i, j)$ 격자상의 가중평균 기여농도,  $C_i$ 은 수용지점에서 각 배출원 기여농도,  $\tau_{ij}$ 은 수용지점에서의  $C_i$ 농도와 관련되는 궤적점들의 수를 나타내며,  $M$ 은  $(i, j)$ 격자상의 궤적점을 가지는 수용지점에서의 배출원 기여 농도 수이다. 최종적으로 PSCF 모델과 마찬가지로 경험 가중치  $W(nij)$ 를 사용하여 불확실도를 개선하였다.

### 3. 결과 및 고찰

앞에서도 언급 했듯이, 기존의 오염원 위치추적 모델들은 수용지점 인근의 국지 지역 오염원의 위치 추적에는 적합하지 않다. 따라서 수용지점인 서울시에서 2001년부터 2002년까지 수행된 연구 결과를 바탕으로 하여 대기오염물질의 장거리 이동과 관련되는 오염원들에 대하여만 대상으로 하였다. 기존에 분류되어 보고된  $PM_{2.5}$  배출원들(이학성 등, 2005)중에서 대기오염물질의 장거리 이동과 관련될 수 있는 오염원들은 토양, 농업소각, 석탄 화력 발전소, 해염 입자 및 중국 에어로솔이다. 우선, 우리나라에서 대기오염물질의 장거리 이동과 관련해서 중국에 존재하는 오염원을 중요하게 다루어줘야 할 것이다. 하지만, 중국에 존재하는 오염원들에 대한 지리 정보 및 배출량 자료는 매우 한정적으로 이용 가능하였다.

#### 3.1 토양 오염원

토양 오염원은 대기오염물질의 장거리 이동과 관련해서 가장 중요하게 언급되고 있으며 지속적인 관심의 대상이다. 특히, 황사의 대표적 발원지인 중국 북부지역의 테클로마칸 사막과 몽고지역의 고비사막은 대표적인 토양 오염원이라 할 수 있다. 우리나라에서 황사현상은 주로 봄철기간 중에 집중적으로 발생하는 것으로 알려져 있다. 본 연구기간 중에도 2001년 4월 9, 12과 25일에 황사가 관측 되었으며, 이 기간 중  $PM_{2.5}$ 의 구성 성분 중  $Ca^{2+}$ 과  $Mg^{2+}$ 농도가 급격하게 증가된 것이 확인되었다. 또한 PSCF 모델 결과에 의하면, 이들 이온성분들이 황사 발원지로 알려져 있는 사막지대보다는 농업 경작지가 광범위

하게 분포되어 있는 중국 Sandong지역과 국내 서해안 경작지역에서 기인한 것으로 평가되었다(Kang et al., 2006).

연구기간 중 서울시  $PM_{2.5}$ 농도에 대한 토양 오염원의 기여 농도는 평균  $1.2 \mu g/m^3$  ( $PM_{2.5}$ 농도의 2%) 이었고, 다른 계절에 비해 봄철기간에 3배 이상의 높은 기여도 ( $4.2 \mu g/m^3$ ,  $PM_{2.5}$ 농도의 7%)를 나타냈다. 그림 1은 CMB 수용모델을 통해 얻어진 서울시  $PM_{2.5}$  배출원 중 토양 기여 농도를 이용하여 PSCF와 CWT 오염원 위치 추적 모델 결과를 나타낸 것이다. PSCF 모델 결과(75분위수)에 의하면, 오염원 위치는 크게 세가지로 분류된다. 첫째, 중국 북부, 몽고와 러시아에 걸쳐 있는 오염원이다. 이는 주로 사막지대와 같은 건조한 지역을 의미한다. 둘째는 중국 동부에 위치하는 광대한 농업 경작 지역으로 Heibei, Shanxi와 Shandong 지역이다. 셋째는 우리나라 서해안 농업경작지역과 북한 일부지역이다. 반면, CWT 모델 결과는 PSCF 모델에 의해 인지된 오염원 중에서 오직 우리나라 서해안 농업경작지역을 유의한 오염원으로 인지하였다. 이 중에서 농업 경작 지역은 주로 농작물 수확 후 휴면기간 중에 중요한 토양 오염원이 될 수 있을 것이다. 앞서 언급했듯이, PSCF 모델 결과는 75분위수보다 큰 기여도를 갖는 측정 일의 기여도를 이용하였기 때문에 수용지점에 높은 기여도를 초래하는 비교적 잠재력이 큰 오염원을 나타낸 것으로 생각된다. 반면, CWT 모델은 전체 측정일의 기여도를 누적하여 평가된 농도 경사란 점에서 연중에 걸쳐 수용지점에 영향을 준 오염원 위치를 인지한 것이기 때문에 두 모델 결과는 다른 지역을 주요 오염원 위치로 인지한 것으로 보인다. 즉, PSCF 모델 결과는 높은 기여도를 초래한 특정 일(예를들면, 황사기간 등)에 대한 주요 오염원 위치이고, CWT 모델 결과는 전체 연구기간에 대해 누적된 기여도에 대한 주요 오염원 위치이다.

#### 3.2 농업소각 오염원

농업소각 오염원은 주로 농작물 수확 후 잔재물을 소각하는 행위를 말하며, 경작 후 토양을 재충전하거나 농작물 잔재물을 제거하기 위한 목적으로 국내에서뿐만 아니라 중국에서도 빈번히 이루어지고 있다. 특히, 과거 우리나라 농촌지역에서처럼 중국에서는 농작물 잔재물은 가정 난방이나 음식제조에 사용되

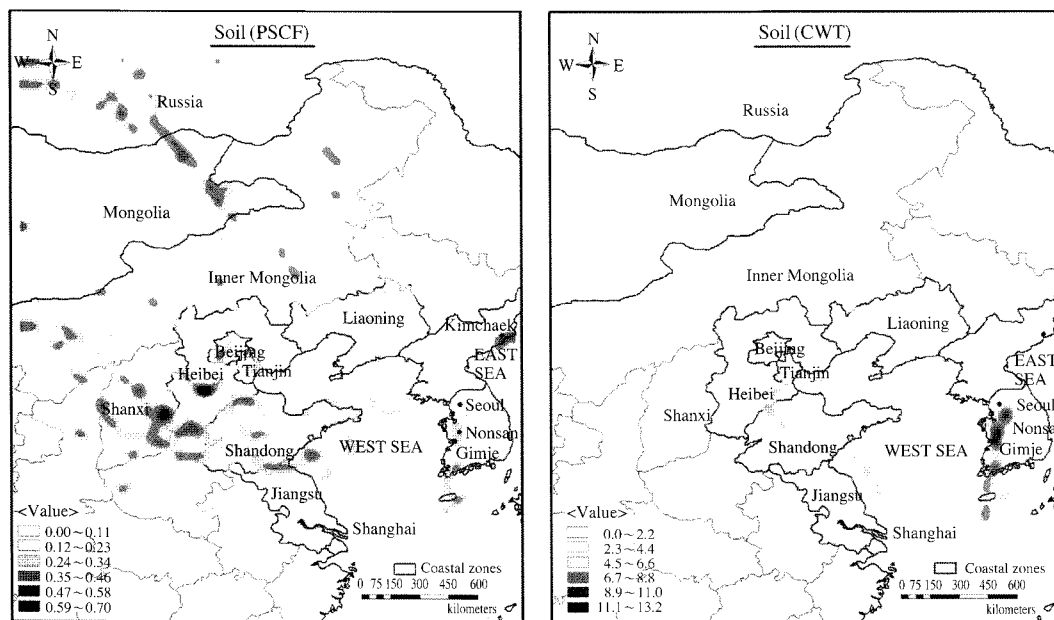


Fig. 1. 75 percentile-PSCF and CWT modeling results for soil sources.

는 주요 에너지원으로 이용되고 있으며, 중요한 PM<sub>2.5</sub> 배출원으로 인식되고 있다 (He *et al.*, 2004). 농업 소각과 관련되는 PM<sub>2.5</sub>의 주요 성분은 유기탄소(organic carbon)와 K<sup>+</sup> 등이다. 이들 성분에 대한 PSCF 결과 (Kang *et al.*, 2006)에 의한 주요 오염원의 위치는 Liaoning 연안지역, Hebei 및 Shandong 내륙지역 및 백두산 근처이었다. 이들 오염원들은 농업 소각과 더불어 난방 및 화전 농업 소각에 의한 것으로 해석될 수 있었다.

서울시 PM<sub>2.5</sub>농도에 대한 CMB 수용모델 결과에 의하면, 농업 소각 오염원은 서울시 PM<sub>2.5</sub>농도에 큰 영향을 준 중요한 오염원 중 하나였다 (Kang *et al.*, 2008). 연평균 기여 농도는 12.7 µg/m<sup>3</sup> (PM<sub>2.5</sub>농도의 21%)이었고, 계절별로는 특히 가을철 (21.7 µg/m<sup>3</sup>, PM<sub>2.5</sub>농도의 31%)과 겨울철 (20.9 µg/m<sup>3</sup>, PM<sub>2.5</sub>농도의 40%)에 높은 기여도를 나타냈다. 그림 2에는 농업소각 오염원에 대한 PSCF (75분위수)와 CWT 결과를 비교하여 나타냈다. 그림에서 PSCF 모델에 의한 주요 오염원들의 위치는 이전 유기탄소와 K<sup>+</sup> 성분 농도를 이용한 PSCF 모델 결과와 대체로 유사한 결과를 나타내고 있었다. 반면, CWT 모델에 의한 주요 오염원의 위치는 Hebei 내륙, Shandong 내륙 및 연

안지역에 위치하고 있다. 이들 지역은 중국의 대표적인 농업지역으로서 방대한 농업경작지가 위치하고 있으며, 농작물 수확 후 잔재물 소각에 따른 전형적인 농업소각 오염원이다. 이처럼 두 모델 결과에서 다른 지역을 주요 오염원으로 인지하는 이유는 앞에서 언급했듯이 PSCF 모델 결과가 수용지점에 높은 기여도를 초래한 오염원인 반면, CWT 모델 결과는 연중 높은 기여도를 초래한 오염원이란 점에서 다르다.

결과적으로 PM<sub>2.5</sub> 배출원 기여도를 이용한 PSCF와 CWT 오염원 위치 추적 모델 결과들에 의하면 서울시 PM<sub>2.5</sub>농도에 영향을 주는 주요 농업소각 오염원은 주로 중국 내륙 및 연안지역에 위치하고 있으며, 이들의 영향에 비해 국내에서 소각되는 농작물 잔재물의 영향은 적은 것으로 사료된다. 이는 기존 문헌에서 대기오염물질 배출량 자료에서도 유사한 연구 결과가 보고되었다. 중국에서 석탄 및 생물연료 (biofuel) 연소에 따른 Black Carbon 배출량을 지역 및 오염원별 결과에 의하면, Hebei와 Shandong 지역에서 농업 소각에 따른 배출량이 가장 많은 지역으로 분류하였고, 석탄 연소와 더불어 가장 중요한 먼지 및 Black Carbon 배출원으로서 농업 소각을 구분

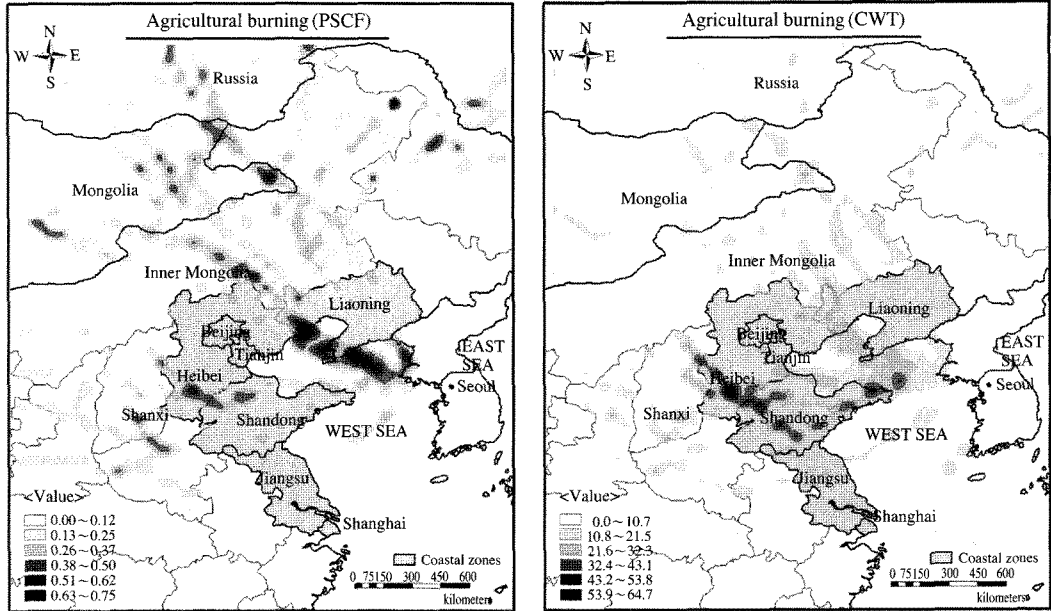


Fig. 2. 75 percentile-PSCF and CWT modeling results for agricultural burning sources.

하였다(Bond *et al.*, 2004; Streets *et al.*, 2001). 또한 중국에서 농업 소각에 의한 먼지 배출은 동아시아 지역에서 농업 소각에 의한 먼지 배출량에 대부분을 차지하며, 이에 비해 우리나라에서 이루어지는 농업 소각에 의한 배출량은 극히 미미한 것으로 추정하였다(Streets *et al.*, 2003a).

### 3.3 석탄 화력 발전소

다른 오염원과는 달리 석탄 화력 발전소는 뚜렷한 점오염원이라 할 수 있다. 하지만 자료를 해석하는 과정에서 주의해야 할 점은 중국에서 광범위하게 이루어지는 난방 및 음식제조 에너지원으로서 석탄연소는 중요한 부분을 차지하고 있다는 것이다. 본 연구에서 사용된 석탄 화력 발전소 배출원 기여도는 중국에서 수입된 석탄을 주 연료로 하는 국내 석탄 화력 발전소에서 분석된 PM<sub>2.5</sub> 구성 성분 농도 자료로부터 구축된 배출원 구성물질 성분비(source profile)를 이용하여 추정되었다(Kang *et al.*, 2008). 또한 이러한 과정을 통해 구축된 PM<sub>2.5</sub> 구성물질 성분비는 가정 난방과 같이 배출 제어 시설을 갖추지 않은 소규모 연소시설에서 배출되는 먼지 구성물질 성분비와는 다를 것으로 추정된다. 따라서 기타 석탄 연

소 오염원으로 인해 발생 할 수 있는 오차를 최소화 할 수 있었을 것으로 사료된다.

서울시 PM<sub>2.5</sub>농도에 대한 배출원 연평균 기여 농도는 1.9 μg/m<sup>3</sup>(PM<sub>2.5</sub>농도의 2%)이었고 계절별로는 여름철을 제외한 계절에 비교적 비슷한 기여도(PM<sub>2.5</sub>농도의 1~5%)를 나타냈다. 그림 3에는 석탄 연소 화력 발전소 배출원 기여농도를 이용한 PSCF 와 CWT 모델 결과를 나타냈다. 중국에는 약 1,670개의 석탄연소 화력 발전소가 산재해 있다(Cartotalk, 2007). 모든 석탄연소 화력 발전소를 지도 위에 나타내는 것보다는 모델 결과에서 인지하고 있는 오염원 위치에 석탄 연소 화력 발전소가 존재하는지 여부를 확인하는 것이 더 간편하고 유용한 방법일 것이다. 왜냐하면 모델 결과에서 인지된 오염원은 중국내 모든 석탄 연소 화력 발전소를 의미하는 것이 아니라 수용지점에 영향을 준 오염원 위치를 나타내는 것이기 때문이다. 대체로 두 모델 결과들은 주요 석탄 연소 화력 발전소 위치를 비교적 정확하게 인지하고 있다(그림 3). 일반적으로 PSCF 모델 결과는 다른 오염원 위치 추적 모델들에 비해 테일링 효과(tailing effect: 오염원의 정확한 위치보다는 방향성을 나타내는 것)가 큰 것으로 보고되고 있다(Poirot *et*

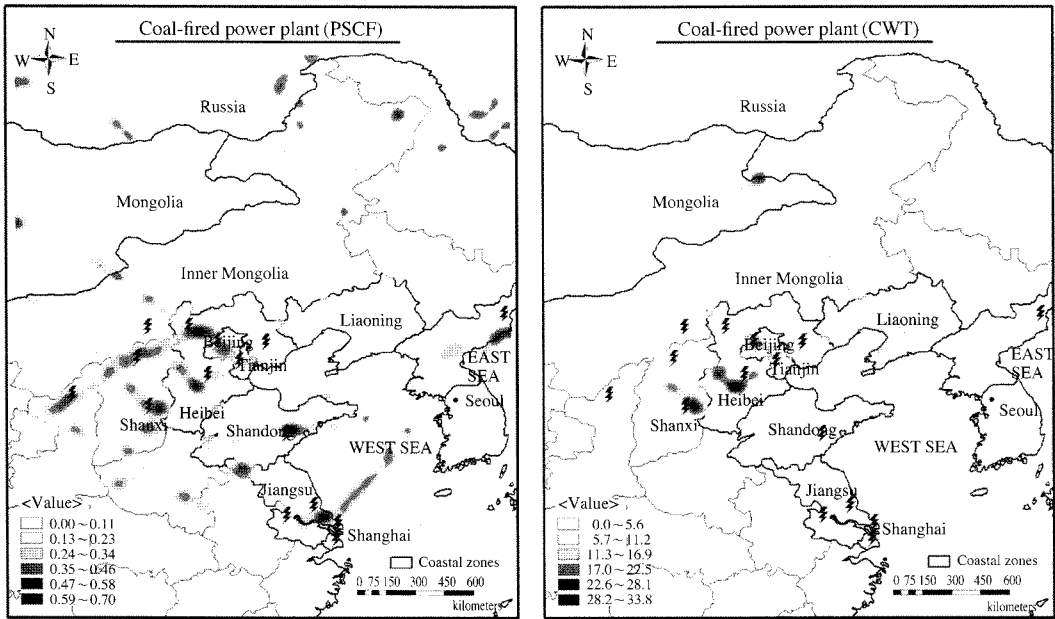


Fig. 3. 75 percentile-PSCF and CWT modeling results for coal-fired power plant.

al., 2001). 본 연구에서도 석탄 연소 화력 발전소의 PSCF 결과도 CWT 결과에 비해 테일링 효과가 두드러지게 나타나고 있다(그림 3). 예를 들면, Shanghai 지역 석탄 화력 발전소의 영향으로 서해상에서도 주요 오염원으로 인식되고 있다. 하지만, 이는 Shanghai 지역 오염원에서 수용지점으로 유입되는 주요 경로로 해석되어야 한다. PSCF 결과와는 달리 CWT 모델 결과는 비교적 뚜렷하게 주요 오염원 위치를 인식하고 있다. CWT 모델 결과에 의하면, 수용지점에 영향을 준 주요 석탄 화력 발전소는 Beijing, Tianjin, Heibei, Shanxi 내륙지역에 위치하고 있다. 이 중 Shanxi지역의 발전소들은 연안 산업지대의 부족한 전력을 공급하기 위해 건설된 대규모 화력 발전소들이다. 또한 중국 북부지역과 몽고(CWT 모델 결과) 및 러시아(PSCF 모델 결과)와의 국경지역에서 몇몇 오염원 위치가 확인되고 있지만, 석탄 연소 화력 발전소의 존재 유무는 확인할 수 없었다. 하지만 중국은 급격한 경제성장으로 전력난을 겪고 있으며, 대기 오염에 관한 인식의 증가로 추가적인 석탄 연소 화력 발전소 건설이 쉽지 않은 상황이다. 이를 해결하기 위하여 인접 국가들(몽고 및 러시아)과의 국경지

역에 석탄 연소 화력 발전소를 건설하고 부족한 전력을 외국으로 부터 수입하고 있다(People's Daily On-line, 2006).

### 3. 4 해염입자 오염원

서울시에서 측정된 PM<sub>2.5</sub>의 해염입자 배출원 연평균 기여 농도는 0.3 μg/m<sup>3</sup>(PM<sub>2.5</sub>농도의 1%)이었으며, 계절별로는 봄철에 약간 높은 기여도(0.8 μg/m<sup>3</sup>, PM<sub>2.5</sub>농도의 2%)를 나타냈지만, 대체로 비슷하다 할 수 있다. 그림 4에 두 오염원 추적 모델 결과를 비교하여 나타냈다. 삼면이 바다로 둘러 싸여 있는 우리나라에서 해염입자 오염원은 서해, 동해 및 남해이며, 이 중에서 서해가 주풍향 풍상측에 위치하였으므로 가장 유력한 오염원일 것이다. 그림에서 보듯이, 두 오염원 위치 추적 모델 결과들도 서해가 서울시 PM<sub>2.5</sub>농도에 영향을 주는 오염원으로 인지하고 있다. 또한 서해와 더불어 일부 내륙지역을 해염입자 오염원으로 인지하고 있지만, 앞서 언급했듯이, 테일링 효과와 관련된 것으로 보인다. 일부 내륙지역을 제외하고 두 모델 결과는 비교적 정확한 해염입자 오염원을 인지하고 있으며, 주로 서울시와 비교적 가까운



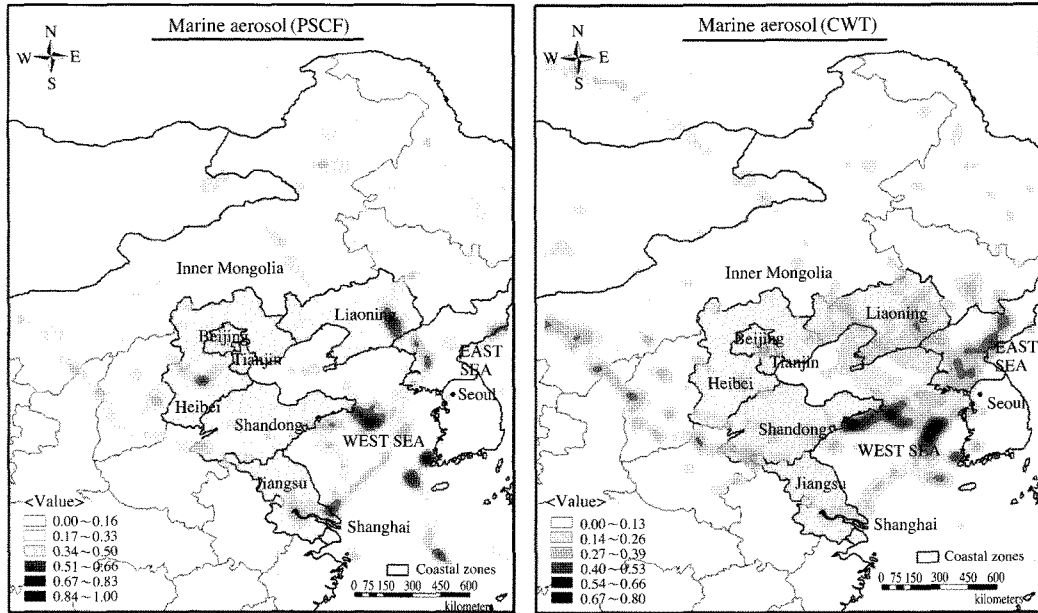


Fig. 4. 75 percentile-PSCF and CWT modeling results for marine aerosol.

거리에 있는 서해상을 주요 오염원으로 인지하였다.

### 3.5 중국 에어로솔

현재까지 많은 연구들에서 우리나라의 대기오염은 풍상측에 위치하고 있는 중국의 영향을 받는다는 결과가 발표되었다 (Kang *et al.*, 2006, 2004a; 김용표, 2006; Lee *et al.*, 1999). 봄철 황사현상이 대표적인 예가 될 것이다. 기존의 연구들이 정성학적 연구인 반면, 아직까지 정량학적 연구가 이루어지지 않고 있다. 이는 중국의 광대한 지역에 걸쳐 다양한 배출원을 갖고 있는 반면, 신뢰성 있는 지리 및 배출량 정보가 아직까지 확립되어 있지 않기 때문이다. 또한 비록 배출원 정보가 정립되어 있다 하더라도 국내 배출원과 명확한 분류는 사실상 불가능하다. 이런 어려운 문제를 해결하기 위한 하나의 방안으로써 중국 에어로솔 (“Chinese aerosol”)이 제안되었다 (Kang *et al.*, 2008; 이학성 등, 2005). 이는 서울시  $PM_{2.5}$ 의 배출원 기여도를 산정하는데 있어서 기존의  $PM_{2.5}$  배출원으로 설명할 수 없는 장거리 이동된  $PM_{2.5}$ 를 구분하기 위한 것이다. 요약하자면, 중국 에어로솔은 중국 주요 도시지역에서 수용지점으로 유입되는 도시 에어로솔로서 기존의 오염원들로 설명할 수 없는

$PM_{2.5}$ 의 일부분이다. 이는 배출원 구성물질 성분비로 사용하는데 있어서 몇가지 가정을 갖는다. 첫째, 중국 도시지역에서 유입되는  $PM_{2.5}$ 는 서울시  $PM_{2.5}$ 농도에 영향을 미치는 배출원 중 하나이다. 둘째, 배출원 구성물질 성분비(source profile)를 위해 사용된 중국 도시지역  $PM_{2.5}$  구성성분비는 중국내 다른 도시지역에서 존재하는  $PM_{2.5}$ 와 유사한 성분비를 갖는다. 셋째, 중국 도시지역에 존재하는  $PM_{2.5}$  구성성분비는 서울시  $PM_{2.5}$ 와 유사한 오염원에 의해 생성되었다 할 지라도 장거리 이동 과정을 통해 다른 성분비를 가지게 된다. 더불어 중국 도시지역 연료 사용 패턴은 서울시 연료 사용 패턴과 다르기 때문에 국지적으로 생성된  $PM_{2.5}$ 는 다른 구성성분비를 가질 것이다. 중국 에어로솔은 본 연구기간과 비슷한 시기에 중국 Beijing에서 사계절 동안 측정된  $PM_{2.5}$  구성성분으로부터 만들어졌다. 따라서 오염원 위치 추적을 통해 중국 에어로솔이 Beijing에서 유입되었는지를 확인하는 것은 상호 보완적으로 유의성 평가에 중요한 단서를 제공할 것으로 기대되었다.

서울시  $PM_{2.5}$ 농도에 대한 중국 에어로솔의 연평균 기여 농도는  $10.0 \mu g/m^3$  ( $PM_{2.5}$ 농도의 13%)이었고, 여름철을 제외한 모든 계절에 중요한 오염원(9.6~

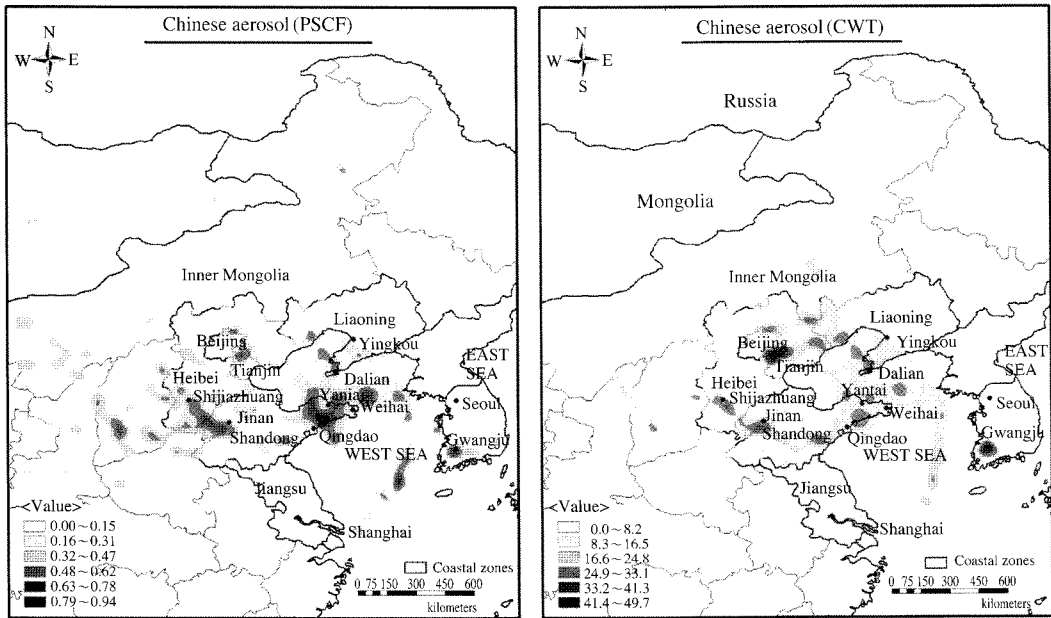


Fig. 5. 75<sup>th</sup> percentile-PSCF and CWT modeling results for Chinese aerosol.

17.1  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ , PM<sub>2.5</sub>농도의 10~32%)으로 평가되었다. 그림 5는 두 모델을 이용하여 주요 오염원 위치를 추적한 결과를 비교하여 나타냈다. 두 오염원 위치 추적 모델은 Beijing, Tianjin, Shijiazhuang, Jinan, Yantai, Qingdao 및 Dalian 등 수용지점과 비교적 가까운 거리에 있는 주요 도시들을 오염원으로 인지하였다. 또한 두 모델에 인지된 오염원들은 매우 유사한 지역에 위치하고 있다. 따라서 오염원 위치 추적 모델 결과로부터 중국 에어로솔은 중국 주요 도시에서 수용지점인 서울시로 유입되는 장거리 이동 PM<sub>2.5</sub>라고 할 수 있을 것이다. 또한 중국 주요 도시들과 더불어 전라남도 광주시 인근지역도 중국 에어로솔 오염원으로 분류되었다. 이는 이 지역 환경대기 중 PM<sub>2.5</sub> 구성성분비가 중국 에어로솔에 사용된 Beijing PM<sub>2.5</sub> 구성성분비와 유사하였기 때문에 오염원으로 인식한 것으로 추정된다.

#### 4. 결 론

CMB 수용모델에 의한 서울시 PM<sub>2.5</sub>의 각 배출원별 기여도를 오염원 위치 추적 모델인 PSCF와 CWT

모델을 통하여 각 배출원별 오염원 위치를 추적하였다. 본 연구에서 평가된 오염원들은 장거리 이동과 관련된 것으로 보이는 토양, 농업소각, 석탄 연소 화력 발전소, 해염입자 및 중국 에어로솔이었다. 서로 다른 기준치를 근거로 하는 두 모델은 동시에 사용하였을 때 상호 보완적으로 단점을 보완하여 더 나은 오염원 위치 추적을 가능하게 하였다. 또한 CWT 모델은 PSCF에 비해 뚜렷한 오염원 위치를 제시하였으며, 전체 연구기간에 걸쳐 수용지점에 영향을 준 주요 오염원 위치를 추적하는 데 적합하였다. PSCF와 CWT 모델을 이용한 오염원 추적 결과는 다음과 같이 요약될 수 있다.

2001년부터 2002년까지 서울시 PM<sub>2.5</sub>농도에 영향을 준 장거리 이동 PM<sub>2.5</sub>오염원들은 다음과 같이 요약될 수 있었다. 1) 토양 오염원의 경우, 기존의 사막지대와 더불어 중국 및 국내 농업 경작지가 중요한 오염원으로 평가될 수 있었다. 특히, 국내 서해안 농업 경작지는 가장 중요한 오염원이었다. 2) 농업 소각 오염원은 서울시 PM<sub>2.5</sub>에 가장 큰 영향을 준 오염원이었으며, 주로 중국 Shandong과 Hebei 내륙지역에 위치한 방대한 농업 경작지에서 농작물 수확 후 잔재물 소각에 의해 발생된 PM<sub>2.5</sub>인 것으로 평가

되었다. 3) 석탄 연소 화력 발전소는 주로 중국 Beijing, Hebei와 Shanxi지역에 위치한 발전소가 서울시 PM<sub>2.5</sub>에 영향을 준 것으로 평가 되었고, 이들 지역은 중국 연안 산업지대에 필요한 전력을 생산하는 지역으로 추정된다. 4) 해염입자는 서해가 주요한 오염원이었으며, 사계절에 걸쳐 고르게 영향을 주고 있었다. 5) 중국 에어로솔은 대부분 우리나라와 비교적 가까운 거리에 위치한 중국내 주요 도시들에서 기인한 것으로 평가될 수 있었으며, 서울시 PM<sub>2.5</sub>농도에 중요한 영향을 미친 오염원들 중 하나로 평가되었다.

## 감사의 글

이 논문은 충주대학교 대학구조개혁지원사업비(교육인적자원부 지원)와 국토해양부가 주관하고 한국건설교통기술평가원이 시행하는 2007년도 첨단도시개발사업(과제번호: 07도시재생B04)지원 사업으로 이루어진 것으로 이에 감사를 드립니다.

## 참고 문헌

- 김용표 (2006) 서울의 미세먼지에 의한 대기오염, 한국대기환경학회지, 22(5), 535-553.
- 이학성, 강충민, 강병욱, 이상권 (2005) 수용모델을 이용한 서울지역 미세입자 (PM<sub>2.5</sub>)에 영향을 미치는 배출원 특성에 관한 연구, 한국대기환경학회지, 21(3), 329-341.
- Ashbaugh, L.L., W.C. Malm, and W.D.A. Sadeh (1985) Residence time probability analysis of Sulfur concentrations at Grand Canyon national park, Atmos. Environ., 19, 1263-1270.
- Bond, T.C., D.G. Streets, K.F. Yarber, S.M. Nelson, J.H. Woo, Z. Klimont (2004) A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion, J. Geophy. Res., 109, D14203, doi:10.1029/2003JD003697.
- Brankov, E., R.F. Henry, K.L. Civerolo, W. Hao, S.T. Rao, P.K. Misra, R. Bloxam, and N. Reid (2003) Assessing the effects of transboundary ozone pollution between Ontario, Canada and New York, USA, Environ. Pol., 123, 403-411.
- Brook, J.R., C.D. Lilyman, M.F. Shepherd, A. Mamedov (2002) Regional transport and urban contributions to fine particle concentrations in Southeastern Canada, J. Air & Waste Manage. Assoc., 52, 855-866.
- Cartotalk (2007) <http://www.cartotalk.com/index.php?showtopic=1378&hl=china+power+plants>
- Choi, J.C., M. Lee, Y. Chun, J. Kim, and S. Oh (2001) Chemical composition and source signature of spring aerosol in Seoul, Korea, J. Geophy. Res., 106, 18067-18074.
- Dockery, D.W. and C.A. Pope III (1994) Acute respiratory effects of particulate air pollution, Annu. Rev. Public. Health, 15, 107-132.
- Dockery, D.W., C.A. Pope III, X. Xu, J.D. Spengler, J.H. Ware, and M.E. Fay (1993) An association between air pollution and mortality in six U.S. Cities, N. Engl. J. Med., 329, 1753-1759.
- Dockery, D.W., J. Schwartz, and J.D. Spengler (1992) Air pollution and daily mortality: Associations with particulates and acid aerosols, Environ. Res., 59, 362-373.
- Dorling, S.R., T.D. Davies, and C.E. Pierce (1992) Cluster analysis: A technique for estimating the synoptic meteorological controls on air and precipitation chemistry-results from Eskdalemuir, South Scotland, Atmos. Environ., 26, 2583-2602.
- Draxler, R.R. and G.D. Rolph (2003) HYSPLIT (Hybrid SingleParticle Lagrangian Integrated Trajectory) model access; available at NOAA ARL READY web site, <Http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html> (accessed 2005). NOAA Air Resources Laboratory: Silver Spring, MD, 2003.
- Dutiewicz, V.A., M. Das, and L. Husain (2000) The relationship between regional SO<sub>2</sub> emissions and downwind aerosol sulfate concentrations in the Northeastern US, Atmos. Environ., 34, 1821-1832.
- He, L.Y., M. Hu, X.F. Huang, B.D. Yu, Y.H. Zhang, and D.Q. Liu (2004) Measurement of emissions of fine particulate organic matter from Chinese cooking, Atmos. Environ., 38, 6557-6564.
- Hsu, Y., T.M. Holsen, and P.K. Hopke (2003) Comparison of hybrid receptor models to locate PCB sources in Chicago, Atmos. Environ., 37, 545-562.
- Kang, C.M., H.S. Lee, B.W. Kang, S.K. Lee, and Y. Sunwoo (2004a) Chemical characteristics of acidic gas pollutants and PM<sub>2.5</sub> species during hazy episodes in Seoul, South Korea, Atmos. Environ., 38, 4749-4760.
- Kang, C.M., Y. Sunwoo, H.S. Lee, B.W. Kang, and S.K. Lee (2004b) Atmospheric concentrations of PM<sub>2.5</sub> trace

- elements in the Seoul urban area of South Korea, *J. Air Waste Manag. Assoc.*, 54, 432-439.
- Kang, C.M., B.W. Kang, and H.S. Lee (2006) Source identification and trends in concentrations of gaseous and fine particulate principal species in Seoul, South Korea, *J. Air Waste Manag. Assoc.*, 56, 911-921.
- Kang, C.M., B.W. Kang, Y. Sunwoo, and H.S. Lee (2008) Application of representative PM<sub>2.5</sub> source profiles for the chemical mass balance study in Seoul, *J. KOSAE*, 24(E1), 32-43.
- Klemm, R.J., R.M. Mason Jr., C.M. Heilig, L.M. Neas, and D.W. Dockery (2000) Is daily mortality associated specifically with fine particles? Data reconstruction and replication of analyses, *J. Air Waste Manag. Assoc.*, 50, 1215-1222.
- Lee, H.S., C.M. Kang, B.W. Kang, and H.K. Kim (1999) Seasonal variations of acidic air pollutants in Seoul, South Korea, *Atmos. Environ.*, 33, 3143-3152.
- Liabaca, M., I. Olaeta, E. Campos, J. Villaire, M. Tellez-Rojo, and I. Romieu (1999) Association between levels of fine particulate and emergency visits for pneumonia and other respiratory illnesses among children in Satiago, Chile, *J. Air Waste Manag. Assoc.*, 49, 154-163.
- Lighty, J.S., J.M. Veranth, and A.F. Sarofim (2000) Combustion aerosols: Factors governing their size and composition and implications to human health, *J. Air Waste Manag. Assoc.*, 50, 1565-1618.
- Lucey, D., L. Hadjiiski, P.K. Hopke, J.R. Scudlark, and T. Church (2001) Identification of sources of pollutants in precipitation measured at the Mid-Atlantic US coast using Potential Source Contribution Function (PSCF), *Atmos. Environ.*, 35, 3979-3986.
- Park, S.U. and E.H. Lee (2004) Parameterization of Asian Dust (Hwangsa) particle-size distributions for use in dust emission models, *Atmos. Environ.*, 38, 2155-2162.
- People's Daily Online (2006) [http://english.people.com.cn/200606/16/eng20060616\\_274534.html](http://english.people.com.cn/200606/16/eng20060616_274534.html)
- Poirot, R.L., P.R. Wishinski, P.K. Hopke, and A.V. Polissar (2001) Comparative application of multiple receptor methods to identify aerosol sources in Northern Vermont, *Environ. Sci. Technol.*, 35, 4622-4636.
- Polissar, A.V., P.K. Hopke, and J.M. Harris (2001) Source regions for atmospheric aerosol measured at Barrow, Alaska, *Environ. Sci. Technol.*, 35, 4214-4226.
- Schwartz, J., D.W. Dockery, and L.M. Neas (1996) Is daily mortality associated specifically with fine particles? *J. Air Waste Manag. Assoc.*, 46, 927-939.
- Streets, D.G., S. Gupta, S.T. Waldhoff, M.Q. Wang, T.C. Bond, and B. Yiyun (2001) Black carbon emissions in China, *Atmos. Environ.*, 35, 4281-4296.
- Streets, D.G., T.C. Bond, G.D. Carmichael, S.D. Fernandes, Q. Fu, D. He, Z. Klimont, S.M. Nelson, N.Y. Tsai, M.Q. Wang, J.-H. Woo, and K.F. Yarber (2003a) An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year of 2000, *J. Geophys. Res.*, 108, 30-1-30-23.
- Streets, D.G., K.F. Yarber, J.-H. Woo, and G.R. Carmichael (2003b) Biomass burning in Asia: Annual and seasonal estimates and atmospheric emissions, *Global Biogeochem. Cycles*, 17, 10-1-10-20.
- Xie, Y.-L., P.K. Hopke, P. Paatero, L.A. Barrie, and S.-M. Li (1999) Locations and preferred pathways of possible sources of Arctic aerosol, *Atmos. Environ.*, 33, 2229-2239.