

2010년도 서울시 대기 중 PM_{2.5}의 성분특성 및 발생원 추정에 관한 연구

Chemical Characteristics and Source Apportionment of PM_{2.5} in Seoul Metropolitan Area in 2010

문광주* · 박승명 · 박종성 · 송인호 · 장성기 · 김종춘 · 이석조
국립환경연구원 기후대기연구부 대기환경연구과
(2011년 10월 25일 접수, 2011년 11월 14일 수정, 2011년 11월 29일 채택)

Kwang Joo Moon*, Seung Myung Park, Jong Sung Park, In Ho Song,
Sung Ki Jang, Jong Chun Kim and Seok Jo Lee
*Department of Air Quality Research, Climate and Air Quality Research Division,
National Institute of Environmental Research*

(Received 25 October 2011, revised 14 November 2011, accepted 29 November 2011)

Abstract

This study is aimed to estimate the PM_{2.5} source apportionment at Seoul intensive monitoring site located in Seoul metropolitan area. Time-resolved chemical compositions of PM_{2.5} are measured in real time using ambient ion monitor, semi-continuous carbon monitor, and on-line XRF at Seoul intensive monitoring site in 2010. The mass concentration of PM_{2.5} was simultaneously monitored with eight ionic species (SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, NH₄⁺, Na⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺), two carbonaceous species (OC and EC), and fourteen elements (Si, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Zn, As, Se, Pb) in 1-hr interval. The data sets were then analyzed using EPA PMF version 3 to identify sources and contributions to PM_{2.5} mass. EPA PMF modeling identified eight PM_{2.5} sources, including soil dust, secondary sulfate, secondary nitrate, motor vehicle, coal combustion, oil combustion, biomass burning, and municipal incineration. This study found that the average PM_{2.5} mass was apportioned to anthropogenic sources such as motor vehicle, fuel combustion, and biomass burning (61%) and secondary aerosols, including sulfate and nitrate (38%).

Key words : PM_{2.5}, Source apportionment, PMF, Seoul intensive monitoring site

1. 서 론

서울을 포함한 수도권 지역은 높은 인구밀도와 많은 교통량으로 인해 오존이나 미세먼지 등에 의한 대

기오염이 심각한 실정이다. 특히 도로변 비산먼지나 자동차 배출원, 주거지역 연료연소 배출원 등의 오염원들은 도심지역 미세먼지 농도를 증가시키고 있다. 이러한 수도권 지역 대기환경에 대한 관심이 점차 높아지면서 수도권 대기환경관리 기본계획에 따라 대기 중 PM₁₀ 농도를 줄이기 위한 다양한 대기개선 정책들이 수행되고 있다(NIER, 2005). 또한 20세기 말부

*Corresponding author.
Tel : +82-(0)2-3157-0372, E-mail : iamian@korea.kr

터 미국을 비롯한 선진국들이 대기 중 입자상 물질에 의한 건강상의 악영향으로부터 국민을 보호하기 위해 PM_{10} 기준에 $PM_{2.5}$ 에 대한 대기환경기준을 추가로 채택함에 따라 국내에서도 $PM_{2.5}$ 에 대한 환경기준 마련을 위해 서울을 비롯한 주요 도시지역을 중심으로 사전연구를 수행하고 있다(NIER, 2009).

도심 대기 중 $PM_{2.5}$ 는 매우 다양한 인위적 오염원의 영향을 받으며, 지역 배출원뿐만 아니라 비교적 넓은 지역의 농도 변화를 유발하는 장거리 이동 오염물질, 대기 중 광화학 반응에 의해 생성되는 2차 에어로솔 등의 영향을 받아 매우 복잡한 농도변화 거동을 나타낸다. 따라서 향후 대기 중 $PM_{2.5}$ 농도 감소를 위한 효과적인 정책을 수립하기 위해서는 우선적으로 도심지역 $PM_{2.5}$ 의 복잡한 화학적·물리적 거동을 파악하고 발생원을 규명하는 것이 필요하다. 최근 들어 수용모델을 이용하여 대기 중 $PM_{2.5}$ 에 대한 배출원별 기여도를 정량적으로 추정하는 연구가 활발히 수행되고 있다(Kim *et al.*, 2010; NIER, 2009; Lee *et al.*, 2005). 그러나 기존 연구들 대부분은 24시간 채취한 여지의 분석 자료를 수용모델에 적용하여, 몇 시간 단위로 $PM_{2.5}$ 농도가 증가하는 오염사례가 상당 수 발생하는 도심지역 대기오염 특성을 반영하기에는 한계가 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위해 국립환경과학원에서는 2008년부터 수도권 대기오염 집중측정소를 설치하여 서울 지역 $PM_{2.5}$ 의 질량농도 및 성분조성을 높은 시간 해상도로 상시·정밀 측정하고 있다.

본 연구에서는 2010년도 수도권 대기오염 집중측정소에서 1시간 단위로 실시간 측정된 $PM_{2.5}$ 의 질량 및 주요성분 농도를 EPA PMF version 3.0 모델에 적용하여 서울 지역 대기 중 $PM_{2.5}$ 농도에 영향을 미치는 배출원들을 파악하고, 각 배출원별 기여도를 산출하였다.

2. 연구방법

2.1 측정방법

본 연구를 위해 서울시 은평구 불광동에 위치한 수도권 대기오염 집중측정소(37° 36'N, 126° 56'E, 67 m a.s.l.)에서 2010년 1월 1일부터 12월 31일까지 1시간 간격으로 $PM_{2.5}$ 의 질량 및 성분조성을 실시간 모니터링 하였다. PM_{10} 과 $PM_{2.5}$ 질량농도의 경우 임

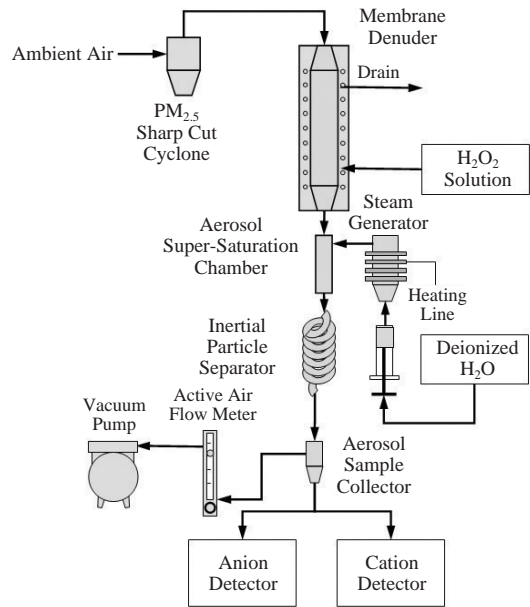


Fig. 1. Schematic diagram of AIM system.

팩터 방식으로 분리된 입자를 16.7 lpm의 유속으로 석영여지에 채취한 뒤 β -ray 흡수법을 사용하는 FH-62 C-14 (Thermo Sci.)와 BAM 1020 (MetOne Ins.)으로 1시간 간격 모니터링 하였다. $PM_{2.5}$ 내 이온 및 탄소, 금속성분 농도는 ambient ion monitor (URG-9000D, URG Co.), semi-continuous OCEC analyzer (Sunset Lab.), online-XRF (Xact-420, Cooper Co.)로 측정하였다. 이온성분의 경우 SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- , NH_4^+ , Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} 의 8항목을 측정대상으로 하였고, 측정 장비의 구조는 그림 1과 같다. 3 lpm의 유속으로 유입된 공기시료 중 산성가스 성분들은 디누더 내 과산화수소 용액이 흐르는 막을 투과하여 제거되고, $PM_{2.5}$ 사이클론을 거쳐 유입된 입자상 물질은 과포화 챔버를 통과하면서 액적으로 성장하여 관성에 의해 분리된다. 액상으로 채취된 시료는 이온크로마토그래피 (Dionex, ICS-2000)에 주입되어 IonPac AS19, CS12A 컬럼으로 분석된다.

탄소성분의 경우 8 lpm의 유속으로 사이클론을 통해 유입된 $PM_{2.5}$ 를 석영여지에 채취한 뒤 입자 내 유기 및 원소탄소의 농도를 TOT (Thermal-optical transmission) 방식으로 그림 2와 같이 수정된 NIOSH 5040 프로토콜을 사용하여 연속 측정하였다. 수정된 방법은

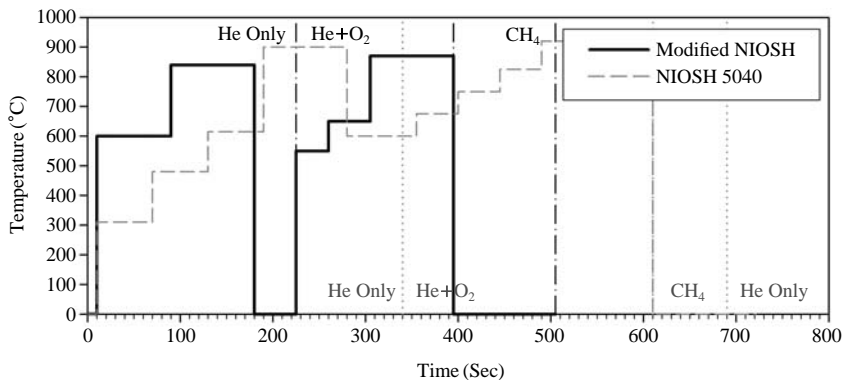


Fig. 2. Temperature set points and gas valve changes in the NIOSH method.

현장에서의 시료 채취시간을 증가시키기 위해 분석시간과 승온단계를 짧고 단순화시켰다. 1회 측정시 시료 채취 시간은 45분이고, 분석 시간은 9분이다. 유기탄소의 배경농도 수준은 주기적으로 디누더 앞단에 여지를 장착하여 점검하고 측정결과에서 제거하였다.

금속성분은 Si, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Zn, As, Se, Pb를 포함한 14종에 대해 모니터링을 수행하였다. 측정방식은 16.7 lpm의 유속으로 임팩터를 통해 유입된 PM_{2.5}를 테플론 여지에 채취한 뒤 X-ray 형광 스펙트럼으로 금속성분을 분석한다. 이때 1시간 간격으로 측정하고 24시간 간격으로 자동교정을 수행하였다.

2.2 측정자료 분석

PMF (Positive Matrix Factorization) 모델은 측정자료가 가지고 있는 정보를 효과적으로 이용할 수 있도록 Paatero (Paatero, 1997)에 의해 개발되었다. PMF는 모든 산출 값이 음의 값이 될 수 없다는 조건을 기반으로 하며, Gauss-Newton 접근법을 사용하여 매번의 반복계산마다 모든 변수 값을 업데이트하여 계산하는 알고리즘으로 각 자료의 최소자승 값이 최소가 되게 하는 방법이다. PMF는 특히 불확도가 큰 입력 자료에 대해 낮은 가중치를 주는 가중기작을 사용하여 검출한계 이하의 자료나, 결측자료, 이상치가 모델 결과에 미치는 영향을 줄일 수 있다. 이러한 이유로 대기환경 분야에서 측정자료를 사용한 수용모델, 특히 대기 중 입자상 물질에 영향을 미치는 발생원 및 그 정량적 기여도 추정에 많이 사용되어 왔다 (Moon *et al.*, 2008; Hwang and Hopke, 2007; Kim *et*

al., 2007; Han *et al.*, 2006; Begum *et al.*, 2004; Polissar *et al.*, 2001; Ramadan *et al.*, 2000). 그러나 PMF는 이원배치와 삼원배치분석에서만 사용이 가능하고, 삼원배치분석 시 자료의 크기가 커지면 분석 효율이 급격히 떨어지는 문제가 있다. PMF의 이러한 문제점을 해결하기 위해 개발된 것이 ME (Multi-linear Engine)이다 (Ramadan *et al.*, 2003; Paatero, 1999). ME는 크게 모델의 구조를 결정하는 부분과 반복계산을 통해 측정값과 산출 값의 차이를 최소화하는 두 부분으로 구성되는데 모델 구조를 결정하는 변수 및 변수 결정방법은 PMF와 유사하다 (Hwang and Hopke, 2011). 단, ME는 각 자료의 가중기작에서 결측 자료 및 검출한계 미만의 자료에 대한 보다 유연한 접근법을 제공한다 (US EPA, 2008).

본 연구에서는 PMF보다 불확도가 낮고 배출원 분리가 잘되는 ME-2의 반복 알고리즘을 사용하는 EPA PMF version 3.0을 이용하여 대기 중 PM_{2.5}의 발생원을 추정하였다. EPA PMF 분석 시 환경 측정자료에서 자주 나타나는 이상치가 전체 모델 결과에 미치는 영향을 줄이기 위해 robust 모드를 사용하였다 (Paatero, 1996). 이때 이상치의 경계 편차를 의미하는 변수 α 는 환경 자료에서 일반적으로 사용하는 $\alpha = 4$ 를 사용하였다. 또한 최적의 인자 수와 성분조성을 결정하고, 가장 현실적인 모델링 결과를 산출하기 위해 F_{peak} 변수를 사용하여 인자의 회전도를 결정하였다. F_{peak} 값을 -1에서 1까지 변화시켜 모델링을 수행하여 Q값의 변화폭이 작고 각 인자들의 독립성을 확보하면서 현실성 있는 오염원분류표가 생성되도록 F_{peak} 값을 결정하였다 (Han *et al.*, 2006; Paatero

et al., 2002). 그 결과 F_{peak} 값이 0일 때 최적의 인자 수를 8개로 결정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 측정기간 중 기상조건

기상청에서 측정한 불광동 AWS 자료를 사용하여 2010년 기상조건을 살펴보면, 평균 기온은 12.2°C이

었고, 평균 습도 64%, 평균 풍속 2.5 m/s, 풍향은 북서풍과 동남풍이 불어올 때 풍속이 가장 빨랐고, 그림 3에서와 같이 북서풍 계열과 남동풍 계열의 발생 빈도가 각각 35%, 26%로 전체 자료의 약 60% 이상 차지하였다. 그림 4의 월별 기상조건을 살펴보면, 총 강수량은 1,939 mm로 그 중 75%가 7~9월에 집중되었다. 측정기간 중 총 14회의 황사가 관찰되었다 (KMA, 2011).

3.2 수도권 대기 중 $PM_{2.5}$ 의 성분조성

측정기간 중 PM_{10} , $PM_{2.5}$ 평균 질량농도 및 $PM_{2.5}$ 평균 성분조성은 표 1과 같다. 황산암모늄 (ammonium-sulfate, AMSUL)과 질산암모늄 (ammonium-nitrate, AMNIT) 성분 농도, 토양 유추성분 (crustal mass, CM) 과 미량 유해중금속 (trace metal, TM), 유기물질 (organic matter, OM)의 성분농도는 (1)~(5)의 식을 사용하

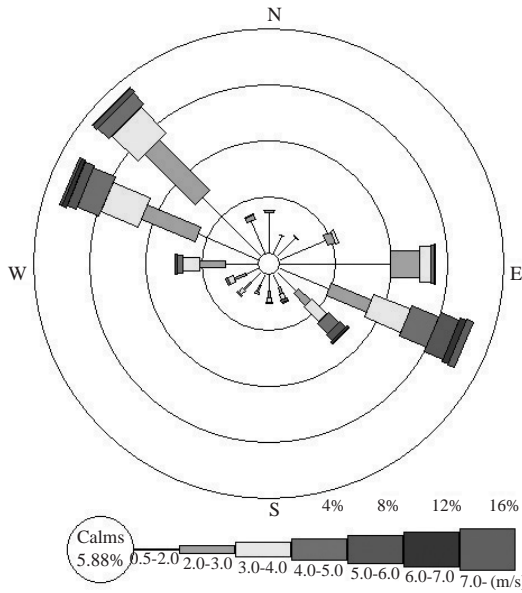


Fig. 3. Wind rose at Seoul intensive monitoring site in 2010.

Table 1. Summary statistics for the $PM_{2.5}$ and species concentrations ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) at Seoul intensive monitoring site.

Items	Average	Standard deviation	Maximum	Minimum	Number of samples
PM_{10}	50.1	43.7	1157.0	2.0	8746
$PM_{2.5}$	26.6	22.0	245.0	0.0	8727
AMSUL	9.67	9.63	86.06	0.00	7244
AMNIT	6.37	7.97	73.90	0.00	7244
EC	1.49	1.00	16.89	0.00	8553
OM	5.64	4.58	47.71	0.00	8553
CM	1.57	1.42	39.53	0.44	5506
TM	0.08	0.05	0.92	0.01	5506

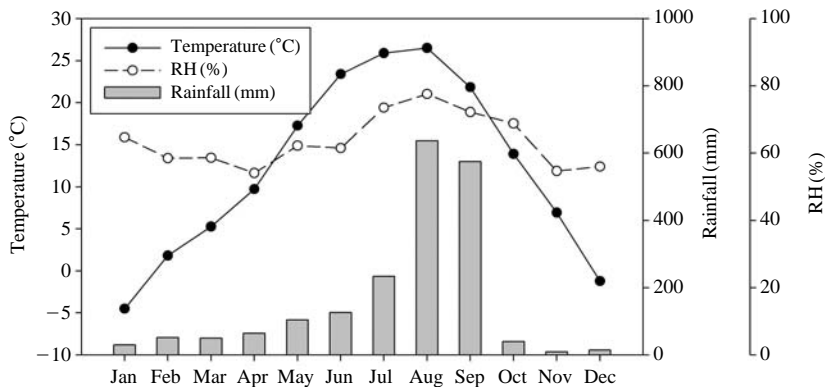


Fig. 4. Monthly variation of meteorological condition at Seoul intensive monitoring site in 2010.

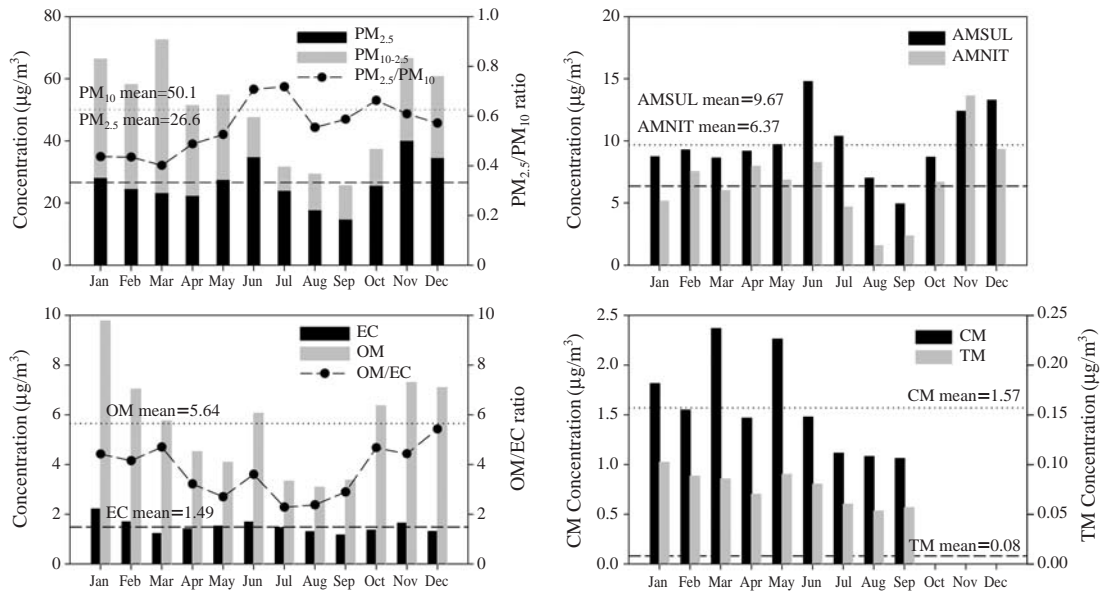


Fig. 5. Monthly variation of chemical composition of PM_{2.5} at Seoul intensive monitoring site in 2010.

여 산출하였다. 이때 2010년 수도권 대기오염 집중 측정소 측정결과로부터 산정된 k 값은 1.46으로 대 상지역에 따라 1.2~2.5 사이의 범위를 가지는 이전 연구결과와 유사한 수준을 나타내었다 (El-Zanan *et al.*, 2005).

$$\text{AMSUL} = 1.38 \times [\text{SO}_4^{2-}] \quad (1)$$

$$\text{AMNIT} = 1.297 \times [\text{NO}_3^-] \quad (2)$$

$$\text{CM} = 3.73 \times [\text{Si}] + 1.63 \times [\text{Ca}] + 2.42 \times [\text{Fe}] + 1.94 \times [\text{Ti}] \quad (3)$$

$$\text{TM} = [\text{V}] + [\text{Cr}] + [\text{Mn}] + [\text{Co}] + [\text{Ni}] + [\text{As}] + [\text{Se}] + [\text{Pb}] \quad (4)$$

$$\text{OM} = k \times [\text{OC}] \quad (5)$$

$$(k = (\text{PM}_{2.5} - (\text{AMSUL} + \text{AMNIT} + \text{CM} + \text{TM} + \text{EC})) / \text{OC})$$

PM_{2.5}의 평균 성분농도를 살펴보면, 이온성분인 황 산암모늄과 질산암모늄이 각각 9.67 μg/m³, 6.37 μg/m³로 PM_{2.5} 질량농도의 50% 이상을 차지하였고, 그 외 유기물질이 5.64 μg/m³, 토양 유추성분 1.57 μg/m³, 원소탄소 1.49 μg/m³ 순으로 높게 나타났다.

그림 5의 PM_{2.5} 성분조성의 월변화 경향을 살펴보면, 난방연료의 연소 등 대기 중 오염물질의 배출이 가장 많은 11월과 1~2월에 전반적으로 높은 농도

를 나타내었고, 금속성분이 결측된 10~12월을 제외 하고 황사가 9차례나 발생했던 봄철에 PM₁₀과 함께 PM_{2.5} 중 토양 유추성분의 농도가 가장 높았다. 황산 암모늄의 경우 겨울철뿐만 아니라 대기 중 광화학반 응에 의한 이차 에어로솔 생성이 활발한 여름철에도 농도가 높게 나타났으며, 비교적 강수량이 적었던 6 월에 최고 농도를 나타내었다. PM₁₀, PM_{2.5} 질량농도 및 PM_{2.5} 성분농도는 강수량이 많았던 8~9월에 가 장 낮은 값을 나타냈다.

3.3 발생원 성분조성 및 기여도 변화

본 연구에서는 Online-XRF로 측정시 측정결과의 불확도가 큰 Si 항목과 측정항목이 중복되는 K⁺ 항목을 모델링에서 제외시키고, PM_{2.5} 중 이온성분 7종 및 탄소성분 2종, 금속성분 13종의 1시간 농도 값을 EPA PMF version 3.0에 적용시켜 입자상 물질의 발생원을 추정하였다. 단, 측정값의 불확도가 다소 크고 검출한계 미만의 자료가 많은 Cl⁻, Na⁺, NH₄⁺, Mg²⁺, Ca²⁺ 항목과 0.2 < S/N ratio < 2인 OC, V, Co, Ni, As, Se 성분에 대해 가중치를 낮게 주어 모델링을 수행 하였다. 전체 측정기간 중 황사가 관측된 기간과 금속성분이 결측된 10~12월 자료, 결측 항목이 있는

Table 2. Marker species of PM_{2.5} sources.

	Source	Marker species	References
1	Soil dust	Ca ²⁺ , Ca, Ti, Fe, K	EPA profile 41340
2	Secondary sulfate	SO ₄ ²⁻ , NH ₄ ⁺	(NH ₄) ₂ SO ₄
3	Secondary nitrate	NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺	NH ₄ NO ₃
4	Motor vehicle	NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺ , EC, Ca, Fe, Zn, Cl, K	Watson <i>et al.</i> , 1979
5	Coal combustion	SO ₄ ²⁻ , EC, As, K, Zn, Ca, Fe, Pb	Mamuro <i>et al.</i> , 1979
6	Oil combustion	SO ₄ ²⁻ , EC, V, Ni, K, Ca, Fe	EPA profile 41340
7	Biomass burning	SO ₄ ²⁻ , EC, OC, K, Cl	EPA profile 42320
8	Municipal incineration	SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻ , Cl ⁻ , Fe, Ca, Zn, Pb	EPA profile 17106

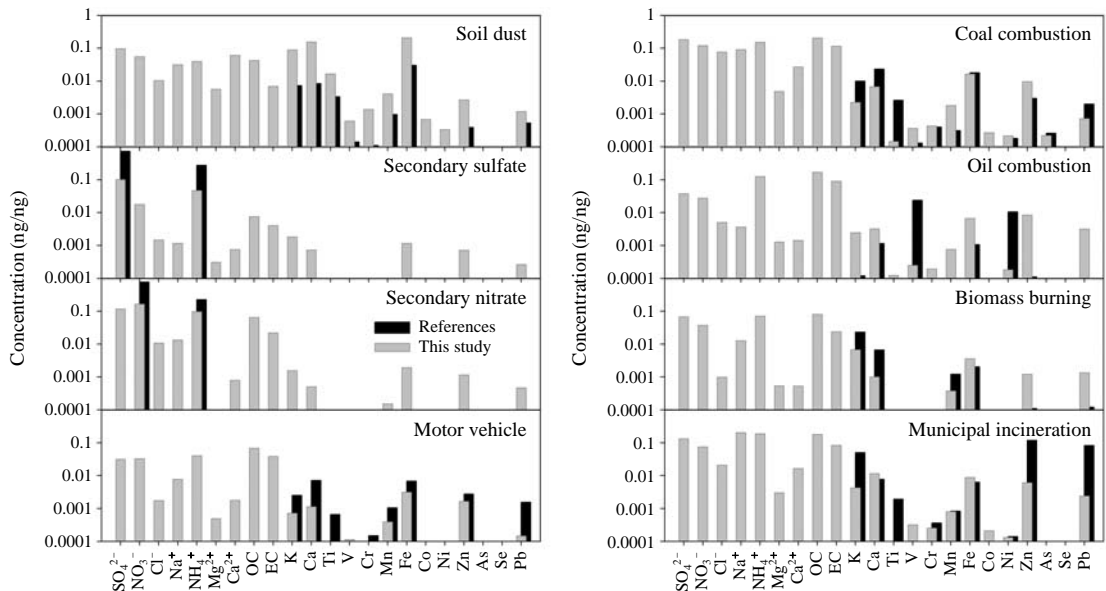


Fig. 6. Source profiles resolved from PMF compared with the corresponding profiles in references.

자료를 제외하고 최종적으로 4,983개의 원자료를 선택하였고, 각 측정값의 불확도는 각 측정항목의 불확도와 검출한계로부터 계산된 값을 사용하였다 (Polissar *et al.*, 1998). 산출된 PM_{2.5} 질량농도와 측정된 PM_{2.5} 질량농도 간의 비교를 통해 평가된 PMF 분석 효율은 두 PM_{2.5} 질량농도 사이의 기울기가 0.95, 결정계수(R²)가 0.79로 비교적 높게 나타나, 산출된 인자들이 측정된 PM_{2.5}의 농도변화를 상당히 잘 설명하고 있는 것으로 나타났다.

PMF에서 계산된 인자별 성분조성은 기존의 연구결과와 미국 EPA 오염원 분류표인 SPECIATE version 3.1에 보고된 발생원별 성분조성과 비교하였고, 표 2의 주요 지표성분을 중심으로 발생원을 추정하

였다. 그 결과, 서울지역 대기 중 PM_{2.5} 농도에 영향을 미치는 발생원으로는 토양입자와 같은 자연 발생원과 함께 황산암모늄, 질산암모늄 형태의 대기 중 광화학반응에 의해 생성된 이차 에어로졸, 자동차 배출원, 석탄 및 석유 연소, 생체 연소, 폐기물 소각과 같은 인위적 오염원을 포함한 총 8종의 발생원이 추정되었다. 각 발생원별 성분조성은 그림 6과 같았다. 특히 연소와 관련된 인위적 배출원들은 전반적으로 OC와 EC의 성분조성이 높게 나타났다. 그 중 SO₄²⁻와 As, Pb의 농도가 높은 인자는 석탄연료 연소 배출원 (Mamuro *et al.*, 1979), SO₄²⁻와 V, Ni의 성분조성이 높은 인자는 석유연료 연소 배출원으로 추정되었다 (Watson, 1979). 생체연료 연소 배출원은 K, SO₄²⁻,

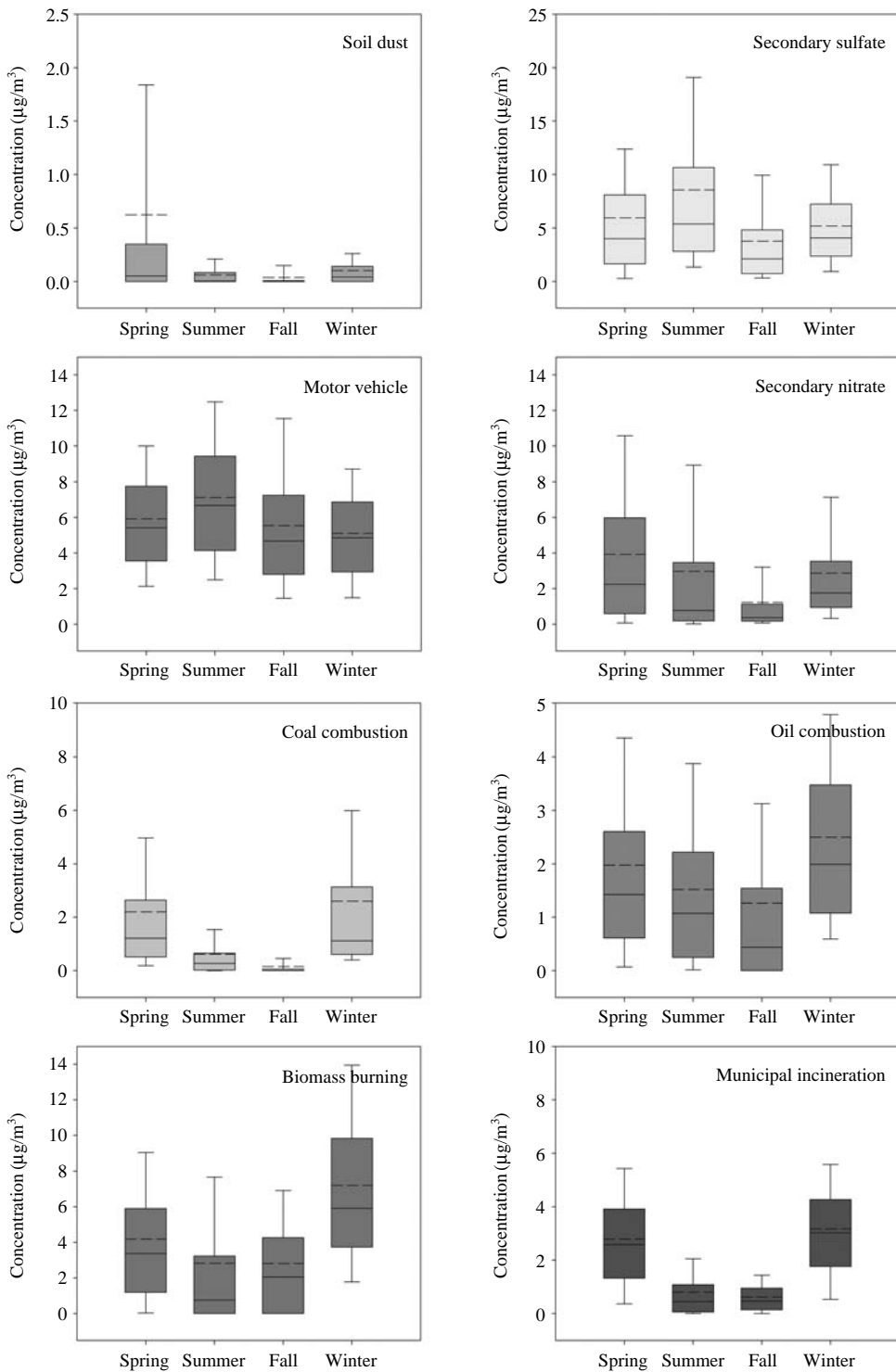


Fig. 7. Seasonal variation of the contributions of the resolved sources.

Cl⁻의 성분조성이 높게 나타났고 (Song *et al.*, 2001; Cheng *et al.*, 2000), 폐기물 소각 배출원은 Cl, SO₄²⁻, Fe, Zn 성분을 특징적으로 포함하는 것으로 나타났다 (Kang, 2002; Chueinta *et al.*, 2000). 자동차 배출원은 가솔린 자동차 기준으로 NO₃⁻, Ca, Fe, Cl⁻ 성분으로 구분되었다.

그림 7과 같이 발생원별 기여도의 계절별 변화 경향을 살펴보면, 황사기간을 분석에서 제외했지만 토양입자의 기여도가 봄철에 가장 높게 나타났다. 황산염과 질산염을 포함하는 이차 에어로솔의 기여도는 광화학 반응이 활발히 발생하는 여름과 봄철에 최대 값을 나타냈고, 다양한 연소 배출원들은 난방 등의 이유로 대기오염물질 배출이 가장 많은 겨울철에 최대 기여도를 나타냈다. 자동차 배출원의 경우 다른 발생원들에 비해 계절별 기여도 편차가 크지 않았는데, 에어컨 사용 등으로 연료 소모가 많은 여름철에

비교적 기여도가 높았다.

측정기간 중 PM_{2.5} 질량농도에 대한 각 발생원의 평균 기여율은 그림 8과 같았다. 토양입자는 약 1.0% 정도로 낮은 기여율을 나타낸 반면, 황산염, 질산염을 포함하는 이차 에어로솔은 PM_{2.5} 질량의 약 38%, 다양한 연소 배출원을 포함하는 인위적 오염원은 약 61.4%의 높은 기여율을 나타냈다. 인위적 오염원 중에서는 자동차 배출원이 가장 높은 23.9%를 차지했고, 생체 연소가 16.4%로 기여도가 높았다. 이러한 결과는 표 3과 같이 서울지역에서 다양한 측정 방법 및 수송모델을 사용하여 수행되었던 연구결과들과 비교해 유사한 기여도를 나타냈고, 다만 이번 연구의 경우 황사기간을 분석에서 제외하여 토양 입자의 기여율이 다소 낮게 나타났다.

그림 9는 산출된 잠재적 발생원들의 월별 농도변화이다. 금속성분 농도가 결측된 10~12월을 제외하

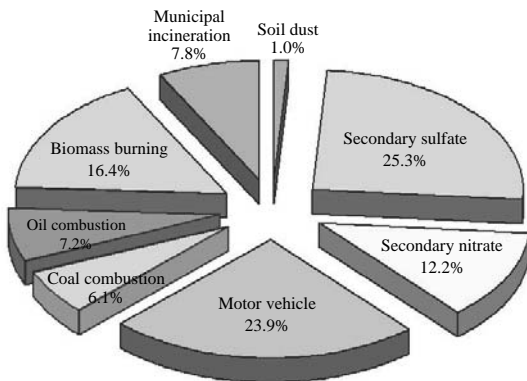


Fig. 8. Average source apportionment of PM_{2.5} at Seoul intensive monitoring site in 2010.

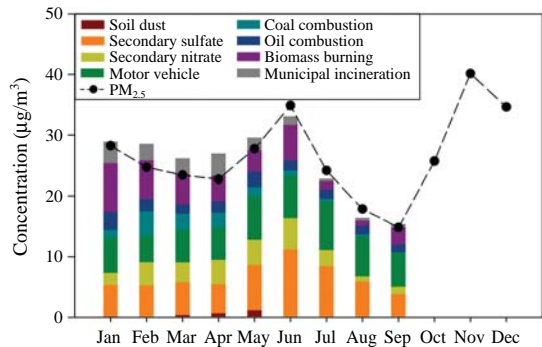


Fig. 9. Monthly variation of total mass concentration using each of the resolved sources at Seoul intensive monitoring site in 2010.

Table 3. Comparison of source contributions of PM_{2.5} in Seoul with the result of previous works. (Units: %)

Source type	This study					Lee <i>et al.</i> (2005)		Kang <i>et al.</i> (2008a)	Kang <i>et al.</i> (2008b)	Lee <i>et al.</i> (2009)
	Annual	Spring	Summer	Fall	Winter	Spring	Fall	Annual	Annual	Annual
Soil dust	1.0	2.2	0.2	0.2	0.3	10.5	0.3	3.3	2.9	19.6
Secondary sulfate	25.3	21.6	35.1	24.4	18.5	13.4	9.1	10.6	10.5	15.1
Secondary nitrate	12.2	14.2	11.9	7.9	10.2	8.9	13.9	12.3	11.2	5.2
Motor vehicle	23.9	21.4	29.6	36.0	17.8	16.1	26.9	22.5	33.0	13.9
Coal combustion	6.1	8.0	2.5	1.0	9.4	1.4	4.6	3.7	2.3	7.4
Oil combustion	7.2	7.2	6.3	8.2	8.4	-	-	-	-	11.3
Biomass burning	16.4	15.1	11.1	18.2	24.5	15.5	31.1	24.4	21.5	8.8
Municipal incineration	7.8	10.2	3.2	4.0	10.9	0.5	3.2	3.1	4.3	4.1

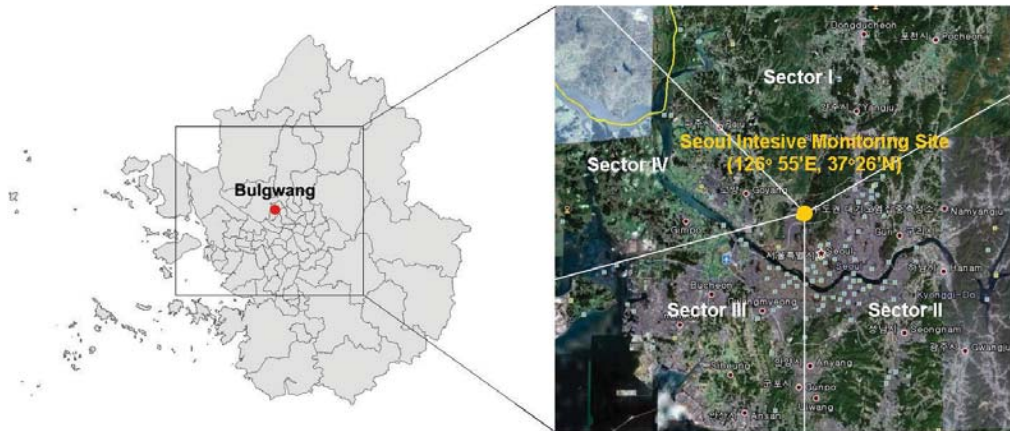


Fig. 10. Sectional categorization around Seoul intensive monitoring site.

고 전반적으로 황산염 및 질산염을 포함하는 이차 에어로솔의 기여도가 대기 중 광화학반응이 활발히 일어나는 여름 중에서도 강우량이 적었던 6월에 최대 농도를 나타내었고, 생체연료 연소, 석유 및 석탄 연료 연소를 포함한 연소배출원은 겨울철인 1~2월에 기여농도가 높았다.

3.4 권역별 발생원 기여도

수도권 대기오염 집중측정소는 그림 10에 나타나듯이 서울 도심지역에서 북서쪽으로 치우쳐 위치하고 있다. 특히 측정소를 중심으로 북쪽으로는 북한산 국립공원이 인접해 있고, 북서쪽으로는 고양, 파주와 같은 신도시 지역과 김포와 강화도를 포함한 수도권 교외지역이 위치해 있다. 남서쪽으로는 경인고속도로와 같이 교통량이 많은 도로망과 함께 인천 남동공단, 안산 시화공단과 같은 경기도 내 주요 공업단지들이 위치해 있다. 이러한 측정지점의 위치적 특성을 고려하여 대기 중 PM_{2.5} 농도에 영향을 미치는 발생원들의 위치를 추정하기 위해 표 4와 같이 측정소를 중심으로 유입풍향을 크게 4개의 범위로 구분하였다. 1 권역은 북한산 및 북한 영향권에 해당하며, 2 권역은 서울 도심지역 영향권, 3 권역은 인천 및 경기도 공단지역 영향권, 4 권역은 수도권 교외지역 및 서해안 영향권에 해당한다.

유입 풍향 권역별 PM_{2.5} 질량농도에 대한 발생원 기여도를 살펴보기 위해 1시간 단위로 산출되는 발생원별 기여농도를 풍향자료를 기초로 권역별로 구

Table 4. Classification of wind direction.

Item	Regional characteristics	Range of wind direction
Sector I	Mt. Bukhan area	0~60°, 315~360°
Sector II	Seoul metropolitan area	60~180°
Sector III	Industrial region in Incheon and Gyeonggi-do	180~255°
Sector IV	Rural and the yellow sea area	255~315°

분하여 평균농도를 살펴보았다. 단, 풍속이 1 m/sec 미만인 자료는 풍향별 기여도 분석에서 제외하였다. 전체 자료에 대한 권역별 발생 빈도는 서울 도심지역인 2 권역이 40.6%로 가장 많았고, 다음으로 북서풍 계열의 4 권역이 33.3%로 자주 관찰되었다. 그 외 북한산 지역인 1 권역이 16.9%, 수도권 내 공단지역이 위치한 3 권역이 9.3%로 가장 적게 발생하였다.

그림 11과 같이 권역별 평균 발생원 기여농도를 살펴보면, 발생 빈도는 가장 낮지만 인천 및 안산, 시화 등 경기도 주요 공단지역을 포함하는 3 권역에서 바람이 불어올 때 PM_{2.5} 질량농도 뿐만 아니라 자동차 배출가스, 석탄 및 석유연료 연소와 같은 일차 오염물질 배출원과 황산염과 질산염을 포함하는 이차 에어로솔의 기여농도가 가장 높게 나타났다. 이는 이 지역으로부터 바람이 불어올 때 이러한 오염원에서 발생한 PM_{2.5}가 함께 유입될 가능성이 가장 큰 것을 의미한다. 다음으로 수도권 교외지역인 4 권역에서 바람이 불어올 때 PM_{2.5} 질량농도가 높게 나타났다. 특히 이 경우 토양 입자와 생체 연소 배출원의 기여

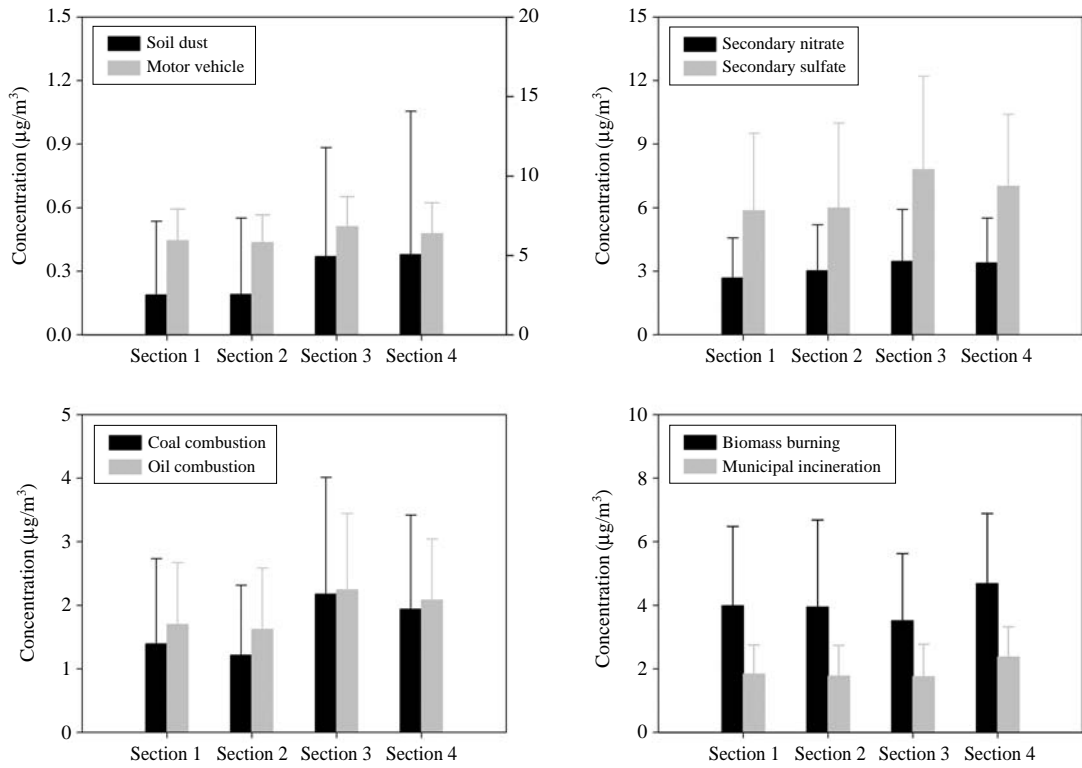


Fig. 11. Comparison of PM_{2.5} source contributions among four sectors.

농도가 가장 높은 것으로 나타나 교외 지역의 농업 활동으로 발생한 PM_{2.5}가 서울 도심지역에 영향을 미치는 것으로 나타났다.

4. 결 론

본 연구에서는 수도권 대기오염 집중측정소에서 측정된 PM_{2.5}의 화학조성 자료를 EPA PMF 분석에 적용하여 2010년도 서울지역 대기 중 PM_{2.5} 농도에 영향을 미치는 잠재적 배출원들의 기여도를 추정하였다. 그 결과 총 8종의 잠재적 발생원들이 추정되었다. 황사를 제외한 기간에 대한 발생원별 기여도 산출결과, 토양 입자와 같은 자연적 발생원의 영향은 1% 정도로 작았고, 이차 에어로솔이 38%, 인위적 오염원은 60% 이상 큰 기여율을 나타냈다. 특히 인위적 오염원 중에서 자동차 배출원과 생체연료 연소의 기여율이 40%로 이차 에어로솔의 영향과 유사하게

나타났다. 풍향에 따른 오염원 기여도를 비교한 결과, 자동차 배출원과 석탄 및 석유연료 연소 배출원, 이차 에어로솔의 기여도는 경기도 주요 공단지역을 포함하는 남서풍 계열의 바람이 불 때 가장 높았고, 토양 입자와 생체연료 연소 배출원은 수도권 교외지역을 포함하는 북서풍 계열 바람이 불 때 가장 기여 농도가 높게 나타났다. 이러한 결과는 수도권 교외지역에서의 농업활동이 서울 지역 대기 중 PM_{2.5} 농도에 영향을 미칠 가능성을 보여준다. 향후 이러한 배출원 추정결과는 국내 배출원 조사 자료와 연계하여 추가적으로 검토할 필요가 있다.

대기 중 입자상 오염물질에 대한 효과적인 저감대책을 마련하기 위해서는 우선적으로 대기 중 입자상 물질의 발생원 및 이들의 영향을 정량적으로 평가하는 것이 중요하므로 이번 연구가 향후 PM_{2.5}와 관련된 대기개선 정책의 수립 방향에 의미있는 결과를 제공할 것으로 기대된다. 앞으로 수도권에서 수행될 다양한 대기개선 정책의 개선효과와 오염원의 배출

특성 변화가 대기 중 PM_{2.5} 농도에 미치는 영향을 정량적으로 파악하기 위해서는 지속적인 정도관리를 통해 측정자료의 정확도를 향상시키고 시간 해상도가 높은 측정자료를 장기간 축적하여 서울지역 대기 중 PM_{2.5} 발생원 추정결과의 신뢰도를 높여 나가야 할 것이다.

참 고 문 헌

- Begum, B.A., E. Kim, S.K. Biswas, and P.K. Hopke (2004) Investigation of sources of atmospheric aerosol at urban and semi-urban areas in Bangladesh, *Atmospheric Environment*, 38, 3025-3038.
- Cheng, Z.L., K.S. Lam, L.Y. Chan, T. Wang, and K.K. Cheng (2000) Chemical characteristics of aerosols at coastal station in Hong Kong - I. Seasonal variation of major ions, halogens and mineral dusts between 1995 and 1996, *Atmospheric Environment*, 34, 2771-2783.
- Chueinta, W., P.K. Hopke, and P. Paatero (2000) Investigation of sources of atmospheric aerosol at urban and sub-urban residential area in Thailand by positive matrix factorization, *Atmospheric Environment*, 34, 3319-3329.
- El-Zanan, H.S., D.H. Lowenthal, B. Zielinska, J.C. Chow, and N. Kumar (2005) Determination of the organic aerosol mass to organic carbon ratio in IMPROVE samples, *Chemosphere*, 60, 485-496.
- Han, J.S., K.J. Moon, S.J. Lee, Y.J. Kim, S.Y. Ryu, S.S. Cliff, and S.M. Yi (2006) Size-resolved source apportionment of ambient particles by positive matrix factorization at Gosan background site in East Asia, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 211-223.
- Hwang, I.J. and P.K. Hopke (2007) Estimation of source apportionments of fine particulate matter at two San Jose STN sites, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 56, 1287-1300.
- Hwang, I.J. and P.K. Hopke (2011) Comparison of Source Apportionment of PM_{2.5} using PMF2 and EPA PMF Version 2, *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 5(2), 86-96.
- Kang, B.W., C.M. Kwang, H.S. Lee, and Y. Sunwoo (2008a) Identification of potential source locations of PM_{2.5} in Seoul using hybrid-receptor models, *J. KOSAE*, 24(6), 662-673. (in Korean with English abstract)
- Kang, C.M. (2002) Characteristics of the Fine Particles and Source Apportionments using the CMB model in Seoul Area, Doctoral dissertation, Konkuk University, Seoul, Korea.
- Kang, C.M., B.W. Kang, Y. Sunwoo, and H.S. Lee (2008b) Application of representative PM_{2.5} source profiles for the chemical mass balance study in Seoul, *J. KOSAE*, 24(E1), 32-43. (in Korean with English abstract)
- Kim, H.J., J.Y. Ahn, K.J. Moon, J.C. Kim, J.S. Kim, M.D. Lee, S.J. Lee, H.E. Jeon, J. Oh, J.S. Choi, S.M. Park, J.S. Park, S.U. Lee, K.R.L. Arun, and E.S. Shin (2010) Study on the characteristics on physical and chemical properties of PM_{2.5}, *J. KOSAE*, 16(2), 81-88. (in Korean with English abstract)
- Kim, M., S.R. Deshpande, and K.C. Crist (2007) Source apportionment of fine particulate matter (PM_{2.5}) at a rural Ohio River Valley site, *Atmos. Environ.*, 41, 9231-9243 (doi: 10.1016/j.atmosenv.2007.07.061).
- KMA (Korea Meteorological Administration) (2011) Annual report of Asian dust (in Korean).
- Lee, H.S., C.M. Kang, B.W. Kang, and S.K. Lee (2005) A study on the PM_{2.5} source characteristics affecting the seoul area using a chemical mass balance receptor model, *J. KOSAE*, 21(3), 329-341. (in Korean with English abstract)
- Lee, H.W., T.J. Lee, and D.S. Kim (2009) Identifying ambient PM_{2.5} sources and estimating their contributions by using PMF : Separation of gasoline and diesel automobile sources by analyzing ECs and OCs, *J. KOSAE*, 25(1), 75-89. (in Korean with English abstract)
- Mamuro, T.A. and T.K. Mizohata (1979a) Elemental Compositions of Suspended Particles Released from Various Boilers, Annual Report of the Radiation Center of Osaka Prefecture, 20, 917.
- Moon, K.J., J.S. Han, Y.S. Ghim, and Y.J. Kim (2008) Source apportionment of fine carbonaceous particles by positive matrix factorization at Gosan background site in East Asia, *Environmental International*, 34, 654-664.
- NIER (National Institute of Environmental Research) (2005) Study on the amendment of air quality standard (II), pp. 98-112.
- NIER (National Institute of Environmental Research) (2009) Study on the characteristic on physical and chemical properties of PM_{2.5}, pp. 102-110.
- Paatero, P. (1996) User's Guide for Positive Matrix Factorization Programs PMF2.EXE and PMF3.EXE, University of Helsinki, Helsinki.
- Paatero, P. (1997) Least squares formulation of robust non-

- negative factor analysis, *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 37, 23-35.
- Paatero, P. (1999) The multilinear engine-A table-driven, least squares program for solving multilinear problems, including the n-way parallel factor analysis model, *J. Graphical Statistics*, 8, 854-888.
- Paatero, P., P.K. Hopke, X.H. Song, and Z. Ramadan (2002) Understanding and controlling rotations in factor analytic models, *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 60, 253-264.
- 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. Geophys. Res.*, 103(15), 19045-19057.
- Polissar, A.V., P.K. Hopke, and R.D. Poirot (2001) Atmospheric aerosol over Vermont: chemical composition and sources, *Environmental Science and Technology*, 35, 4604-4621.
- Ramadan, Z., B. Eickhout, X. Song, L.M.C. Buydens and P.K. Hopke (2003) Comparison of Positive Matrix Factorization and Multilinear Engine for the source apportionment of particulate pollutants, *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 66, 15-28.
- Ramadan, Z., X.H. Song, and P.K. Hopke (2000) Identification of sources of Phoenix aerosol by positive matrix factorization, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 50, 1308-1320.
- Song, X.H., A.V. Pollissar, and P.K. Hopke (2001) Sources of fine particle composition in the northeastern US, *Atmospheric Environment*, 35, 5277-5286.
- US EPA (U.S. Environmental Protection Agency) (2008) EPA Positive Matrix Factorization (PMF) 3.0 Fundamentals & User Guide, EPA-600/R-08/108, July.
- Watson, J.G. (1979) Chemical Element Balance Receptor Model Methodology for Assessing the Source of Fine and Total Suspended Particulate Matter in Portland, Oregon, PhD Thesis, Oregon Graduate Center, Beaverton.