

PMF 모델을 이용한 도심지역 PM_{2.5} 오염원 기여도 분석

구태완^{1*†} · 홍민선¹ · 문수호² · 김호정²

¹아주대학교 환경안전공학과, ²다산지역발전연구원
(2019년 8월 27일 접수: 2019년 9월 27일 수정: 2019년 9월 27일 채택)

The PM_{2.5} Emission Source Contribution Analysis using The PMF Model in Urban Area

Tai-Wan Koo^{1*†} · Min-Sun Hong¹ · Su-Ho Moon² · Ho-Jung Kim²

¹Department of Environmental and Safety, Ajou University

²DASAN Region Development Institute

(Received August 27, 2019; Revised September 27, 2019; Accepted September 27, 2019)

요약 : 본 연구에서는 PMF 모델을 이용하여 PM_{2.5}에 대한 오염원 확인 및 오염원별 기여도를 분석하였다. A시의 배출원별 기여도 순위는 Secondary Sulfate가 19.8%로 가장 기여도가 높고, 그 다음으로는 Mobile 19.5%, Industry 16.0%, Biomass Buring 14.1%, Secondary Nitrate 14.1%, Oil Combustion 11.6%, Aged Sea Salt 2.6%, Soil 2.5% 등으로 분석되었다. Sulfate와 Ammonium 농도가 배출원별 프로파일에서 기여도가 가장 높은 오염원으로 분석되었는데, 이는 대기 중에서 가스상 전구물질(SO_x와 암모니아 가스)이 광화학 반응하여 생성된 2차 에어로졸인 것으로 분석되었다.

주제어 : 초미세먼지, PMF 모델, 2차 에어로졸, 광화학반응, 전구물질

Abstract : In this study, The PMF model was used to identify pollutant sources and their contribution to pollution sources of PM_{2.5}. The contribution of A city to each source was 19.8% for Secondary Sulfate, followed by Mobile 19.5%, Industry 16.0%, Biomass Buring 14.1%, Secondary Nitrate 14.1%, Oil Combustion 11.6%, Aged Sea Salt 2.6%, Soil 2.5% and so on. Sulfate and Ammonium concentrations were the highest contributing sources in the source profile, which was analyzed to be Secondary Aerosols produced by Photochemical Reactions of gaseous precursors (SO_x and ammonia gas) in the atmosphere.

Keywords : PM_{2.5}, PMF model, Secondary Aerosols, Photochemical Reactions, Precursor

[†]Corresponding author
(E-mail: koo90@ajou.ac.kr)

1. 서론

최근 들어 시민의 건강을 위협하고, 또한 시정 장애를 유발하는 것으로 나타나고 있는 미세먼지로부터 인체환경 위해성에 대한 경각심이 한층 고조되고 있다[1].

미세먼지의 특징은 장거리이동에 의한 영향이 크고, 그 영향은 국지적이지 않고 지역규모로 일어나고 있으며, 황사처럼 특정한 시기에 집중적으로 영향을 미치지 않고, 연중 꾸준히 영향을 미치고 있는 실정이다. 미세먼지는 도로, 사업장, 공사장 및 생활주변 등과 같이 다양한 장소에서 발생되고 있으며, 지형, 풍향, 기후 등의 영향으로부터 다양한 형태로 발생하고 있기 때문에 정확한 대기오염 수준을 파악하기 위해서 대기오염에 영향을 미치는 요소들에 대한 면밀한 분석이 필요한 실정이다[2].

일반적으로 입자상물질은 공기 중에 떠 있는 액체상 및 고체상의 작은 입자로, 직경이 10 μm 보다 작은 입자를 미세먼지(PM_{10}), 직경이 2.5 μm 보다 작은 입자를 초미세먼지($\text{PM}_{2.5}$)라고 정의한다. 그 중에서도 각종 산업활동 및 자동차 등 인위적인 오염원으로부터 주로 발생하는 $\text{PM}_{2.5}$ 는 대기 중에서 제거가 어렵고, 입자의 크기가 매우 작기 때문에 폐포까지 침투하여 건강에 심각한 영향을 줄 수 있다. $\text{PM}_{2.5}$ 에 노출되면 호흡기계 및 심혈관계 관련 질환으로 인한 입원 증가뿐 아니라 사망발생 위험이 유의하게 증가한다는 결과들이 보고되고 있다[3].

현재 국내에서는 이러한 $\text{PM}_{2.5}$ 를 관리하기 위해 여러 정책들을 도입하고 있지만 효율적인 관리를 위해서는 수용모델(Receptor model)을 통한 오염원의 규명과 오염원의 정량적인 기여도 평가가 선행될 필요가 있다[4].

수용모델은 수용체(Receptor)에서 오염원에 의하여 파급된 오염물질의 정도를 파악하여 그 영향을 주는 오염원을 정량적으로 파악하는 모델이다[5]. 수용모델은 수십년 동안 전 세계적으로 검증되었고, 폭넓게 사용되고 있으며, PM_{10} 및 $\text{PM}_{2.5}$ 를 포함한 오염물질에 대한 저감대책을 수립함에 있어 주요한 역할을 하고 있다[6].

특히, 다수의 수용모델 중 가장 많이 사용되고 있는 양행렬인자분석법(PMF ; Positive Matrix Factorization)은 오염원분류표가 제대로 마련되어 있지 않은 국내에 적용할 수 있는 적합한 모델이라 할 수 있다[7].

국내의 PMF 모델을 이용한 선행 연구는 PMF를 이용한 제주도 고산에서의 입경별 오염원 기여도 추정 연구[8], 구미시 PM_{10} 오염원의 기여도 추정 연구[9], 서울시 $\text{PM}_{2.5}$ 의 오염원 기여도 추정 연구[10]가 진행된 바 있다.

따라서, 본 연구에서는 PMF 모델을 이용하여 $\text{PM}_{2.5}$ 에 대한 오염원 확인 및 오염원별 기여도를 평가하고, 지역적 특성에 따른 미세먼지 농도 수준 분석을 통하여 효과적인 대응 및 관리 방안을 마련하고자 하였다. 이러한 연구 결과는 향후 국내의 $\text{PM}_{2.5}$ 에 대한 배출원 관리정책을 수립하기 위한 유용한 기초자료로 활용하고자 한다.

2. 연구범위 및 분석방법

2.1. 대상지역 개요

본 연구에서는 $\text{PM}_{2.5}$ 의 연평균 농도가 상대적으로 높은 A시 지역을 연구대상 지역으로 선정하였다.

대상지역은 서쪽으로 평택항과 공단이 접해있고, 충남의 당진 국가산업단지와 석탄화력발전소가 인접해 있어 해당 시설에서 배출되는 $\text{PM}_{2.5}$ 의 영향을 받는 지리적인 특성을 가지고 있다. 특히, 항만은 원료의 이동, 하역 및 야적 등에서 많은 미세먼지를 배출하고 있으며, 항만시설과 선박 등이 주변지역 대기질에 미치는 영향이 높기 때문에 항만에서 발생하는 $\text{PM}_{2.5}$ 가 도심 주거지역 대기질에 영향을 미칠 것으로 예측된다[11, 12].

2.2. PMF 모델

Paatero and Tapper(1994)에 의해 소개된 PMF 모델은 수용체에서 채취한 입자상 혹은 가스상의 대기오염물질을 분석하여 주변 지역의 대기오염 배출원들이 수용체에 미치는 영향 및 기여율 등을 변형된 인자 분석 통계기법으로 추정하는 것이다. PMF 모델은 측정 데이터 값의 불확도 및 표준편차를 고려하여 인자 부하량의 음수 값을 배제하고, 항상 양의 값으로 계산하며, 오염원의 정량적인 추정이 가능하게 하는 통계 분석이다. PMF 모델을 통해 여러 대상의 오염원을 그룹화시켜 변수 속에 있는 대기오염물질에 대한 오염원의 인자들을 찾아내는 것으로 최근 입자상 물질의 오염원 추정 및 기여율 등의 파악을 위해 PMF 모델이 많이 활용되고 있다[13].

아래 식(1)은 PMF 모델식을 나타낸 것으로, 행렬 X는 n개의 시료 중 측정된 m개의 분석 화학종으로 나타내어진 차원이 n×m 인 자료 행렬이다.

$$X = GF + E \quad (1)$$

즉, X 행렬의 행(Row)은 하나의 시료에 대한 분석 화학종의 농도이고 열(Column)은 각각의 채취시료(Samples)들을 의미한다. G는 n×p 행렬이며, F는 p×m 행렬이다. 여기서 p는 추출된 인자의 수(오염원의 수)를 의미한다. F 행렬의 행은 특정오염원에 대한 오염원 분류표(Source profile)를 나타내며 이에 대응하는 G 행렬의 열은 특정오염원에 대한 배출량, 즉, 각 측정 기간에 대한 오염원의 강도(Strength)를 의미한다[14, 15]. 그리고 행렬 E는 잔차 행렬(Residual matrix)을 의미하며 아래 식(2)와 같이 표시할 수 있다[16, 17].

$$E_{ij} = X_{ij} - \sum_{h=1}^p G_{ih}F_{hj} \quad (2)$$

(i = 1 ~ n, j = 1 ~ m, h = 1 ~ p)

PMF 모델의 특징은 측정자료와 불확도(Uncertainty) 자료를 활용하여 가중 최소자승법(Weighted least-squares fit)의 수식을 활용하는 것이다. 또한, PMF 모델은 검출한계 이하의 자료 및 Missing 자료를 모델링 과정에서 각 분석화학종의 분석 오차 평가에 입각하여 그와 상응하는 값을 추정하여 사용할 수 있기 때문에, 버려지는 데이터 수를 최소화할 수 있는 장점이 있다. u_{ij} 는 X_{ij} 의 불확도를 나타낸다. 식(3)에 도식한 Q값은 반복적인 알고리즘을 통하여 최소화(Iterative minimization) 된다.

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \frac{E_{ij}^2}{u_{ij}^2} \quad (3)$$

EPA PMF 모델은 분석값과 함께 불확도를 입력해야 하며, 본 연구에서는 불확도의 산출을 위해서 식(4)와 식(5)를 활용하였다.

$$U = 2 \times MDL \quad (C \leq MDL) \quad (4)$$

$$U = \sqrt{(P \times C)^2 + (MDL)^2} \quad (C > MDL) \quad (5)$$

여기서, U($\mu\text{g}/\text{m}^3$)는 불확도, MDL(Minimum

detection limit)는 장비의 최소검출한계, C($\mu\text{g}/\text{m}^3$)는 시료의 농도를 나타낸다. P값은 오차율(Error fraction)로 본 연구에서는 선행 연구에서 적용한 10 %로 설정하여 모델을 수행하였다[18, 19].

유기탄소(OC; Organic carbon)와 원소탄소(EC; Elemental carbon)의 경우 원소탄소의 표준물질 등이 없는 관계로 장비에서 자동으로 구해지는 값을 활용하여 불확도를 산정하였다.

2.3. 샘플링 및 실험방법

PMF 모델을 통한 오염원 기여도 산출을 위해서 사용된 PM_{2.5} 구성성분 데이터 샘플은 i) A시를 대표할 수 있는 3개 지점에서 측정을 하여 분석된 샘플 27개와 ii) A시 보건환경연구원에서 측정 분석한 A시 샘플 6개(2018년 7월~12월, 월 평균 데이터)로 총 33개를 사용하였다.

PM_{2.5}의 성분특성 분석은 Thermal Optical Reflectance(TOR) 방법을 이용하여 유기탄소(OC)와 원소탄소(EC)의 탄소성분을 분석하였고, Ion Chromatograph를 이용해서 SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Cl^- , Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} 등의 이온성 물질을 분석하였다.

또한, 중금속을 포함하는 미량원소(Mg, Al, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Sr, Mo, Cd, Sn, Ba, Pb, Ca, P, S 등)는 ICP-MS 분석기기를 통하여 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. PM_{2.5} 주요 성분

Table 1은 본 연구에서 분석한 OC, EC, SO_4^{2-} , NO_2^- , NH_4^+ , Cl^- , Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Mg, Al, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Sr, Mo, Cd, Sn, Ba, Pb, Ca, P, S의 성분농도를 나타낸다. PM_{2.5}의 농도는 연평균 32.16 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 분석되었으며, 최소값은 4.44 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 최대값은 130.50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 나타났다. PM_{2.5}의 조성은 이온성분, 탄소성분, 금속성분 그리고 결합수를 포함한 기타성분으로 구성되어 있다.

본 연구 기간 동안 OC의 농도가 낮게 평가되어 PMF 모델링에서는 Organic Matter(OM = 1.7×OC)를 입력변수로 고려하였다.

일반적으로 PM_{2.5}의 OM은 자동차 등의 연소 과정에서 발생하는 1차 유기물입자(Primary

particle)와 인위적 가스상 유기화합물 (Anthropogenic VOCs)/생물학적 가스상 유기화합물(Biogenic VOCs)이 대기 중에서 광화학반응으로 생성되는 2차 유기물입자(Secondary particle)를 포함한다.

OM은 GC-MS 혹은 Aerosol Mass Spectrometer 분석법을 통하여 직접 분석하거나,

OC 농도를 이용하여 간접적으로 추정할 수 있다.

분석된 OC 농도의 1.4~1.8배를 OM 농도로 추정하는 것이 문헌에서 보고된 수준이며, 특히 도심지역의 경우, 1.7배를 고려한다. 본 연구에서는 OM 농도값을 OC 농도의 1.7배를 이용하여 도출하였다.

Table 1. The concentration of 33 species in PM_{2.5}

unit : $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Species	Category	S/N (Signal-to-Noise)	Min	25th	Mean	75th	Max
PM _{2.5}	Weak	7.6	4.44	18.78	32.16	111.09	130.5
EC	Strong	6.3	0.17596	0.42755	2.27525	5.38096	11.51196
OC	Bad	6.2	0.49606	1.07324	6.03842	9.97142	25.9465
OM	Strong	6.2	0.8433	1.82450	10.26531	16.95141	44.10905
Cl ⁻	Strong	7.5	0.06875	0.17500	0.37254	1.04625	1.39167
NO ₃ ⁻	Strong	6.4	0.15208	0.31667	1.65842	2.87917	14.42083
SO ₄ ²⁻	Strong	6.1	0.17917	0.25833	1.84063	3.72917	12.73542
NH ₄ ⁺	Strong	5.9	0.05	0.13125	0.87917	2.05625	7.34375
Na ⁺	Strong	9.2	0.04167	0.05208	0.06667	0.19792	0.32083
K ⁺	Strong	9.2	0.03125	0.05417	0.06458	0.1125	0.41458
Mg ²⁺	Bad	8.9	0.00625	0.03958	0.04792	0.08125	0.2625
Ca ²⁺	Bad	8.6	0.02083	0.0625	0.07708	0.20625	0.46875
Na	Bad	8.1	0.12358	0.27742	0.68288	1.16329	2.21808
K	Bad	6.6	0.14121	0.27871	1.34854	2.03092	9.91983
Ca	Strong	6.6	0.23963	0.3475	0.86046	2.72088	10.64788
Mg	Strong	7.1	0.10854	0.23533	0.57946	1.34229	4.31296
Fe	Strong	7.2	0.12525	0.35833	1.072	1.94838	4.71833
Cu	Strong	7.7	0.00127	0.05883	0.11717	0.22808	0.91142
Cr	Strong	5.2	0.00007	0.00019	0.07546	0.13263	0.56342
Mn	Strong	3.3	0.00004	0.00013	0.00042	0.05467	0.16213
Zn	Strong	4.9	0.00482	0.01391	0.04429	0.315	1.03771
Al	Strong	5.7	0.00316	0.0044	0.02875	0.09117	0.31617
Ti	Strong	7.7	0.05251	0.06909	0.15063	0.398	0.70413
Hg	Strong	5.8	0	0.00003	0.01553	0.03063	0.13825
Sr	Strong	7.1	0.00033	0.00133	0.00481	0.0072	0.04013
Pb	Strong	3.3	0.00009	0.00022	0.00063	0.06133	0.13779
Li	Bad	5.7	0.00142	0.00846	0.05621	0.10079	0.49913
Sb	Bad	5.7	0.00013	0.00104	0.00342	0.00802	0.04317
Ni	Strong	6.1	0.00086	0.00213	0.00958	0.0185	0.08275
Cd	Strong	7.7	0.00148	0.00231	0.00692	0.0105	0.02283
As	Strong	5.7	0.00022	0.00051	0.00091	0.00429	0.01908
V	Strong	4.4	0.00002	0.00005	0.00011	0.00138	0.00529
Ba	Bad	3.5	0	0	0	0.00038	0.00183

3.2. PMF 모델 결과

PM_{2.5}에 대한 PMF 모델을 수행한 결과 총 8개의 오염원을 각각 산출하였다. 각각의 오염원은 2차 질산염, 2차 황산염, 자동차배출 오염원, 생물성 연소 오염원, 산업공정 및 산업연소 관련 오염원, 선박연소를 포함하는 오일연소 오염원, 해염입자, 토양기인 오염원으로 분류된다. Fig. 1은 PMF 모델을 통하여 산출된 A시 PM_{2.5} 오염원(배출원) 프로파일 결과이며, 오염원(배출원)별

PM_{2.5}의 구성성분 농도와 비율을 나타낸다.

PMF 모델을 통하여 산출된 각 오염원에 대한 명명과 확인은 미국 환경청의 Speciate 4.4 source profile library 자료와 국내의 문헌을 종합적으로 활용하였으며, 각각의 오염원 결정의 중요 마커물질 및 설명에 대한 내용은 Fig. 2와 같으며, 오염원(배출원)별 물질성분이 차지하는 비율을 나타낸다.

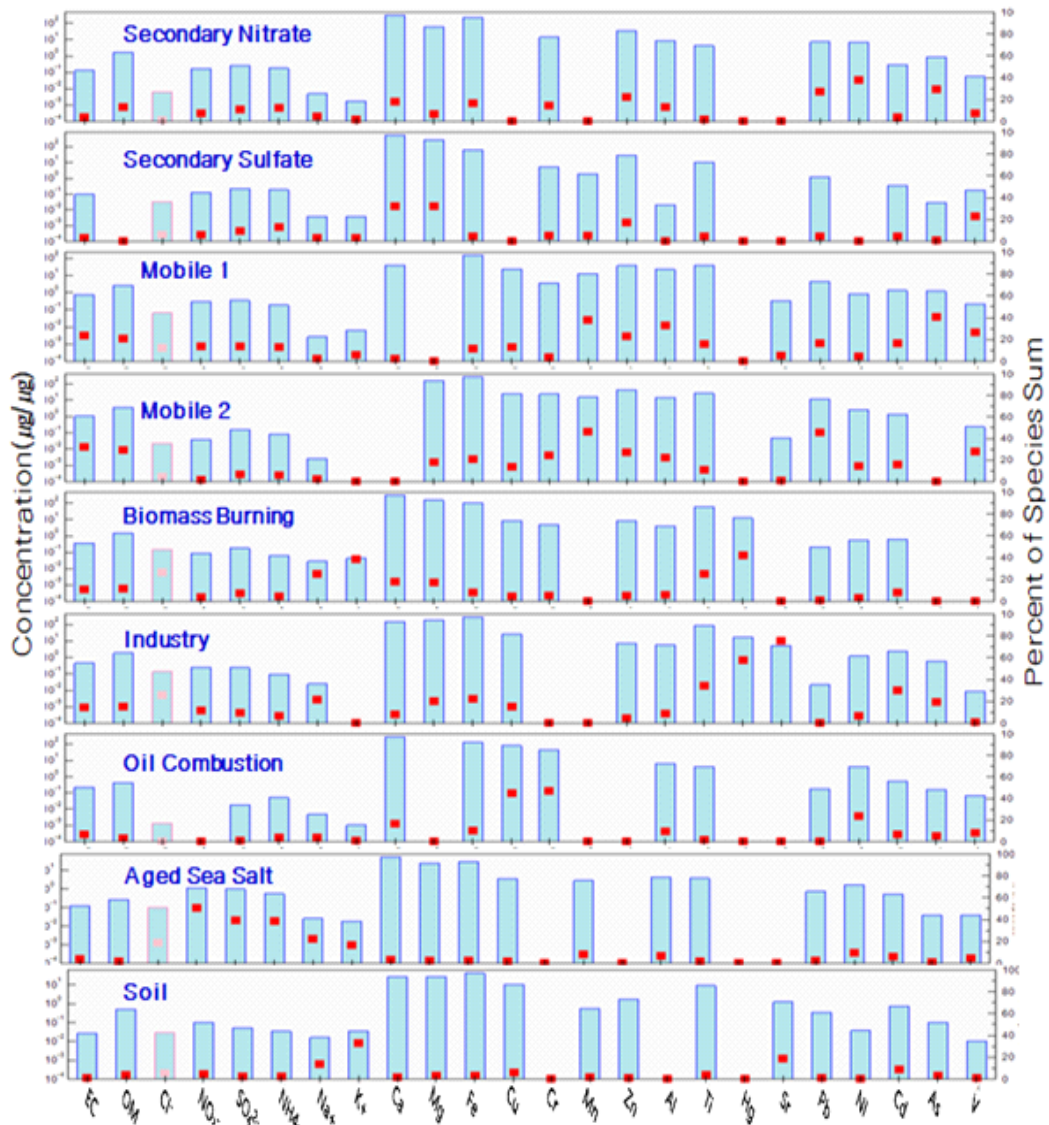


Fig. 1. Emission source profile.

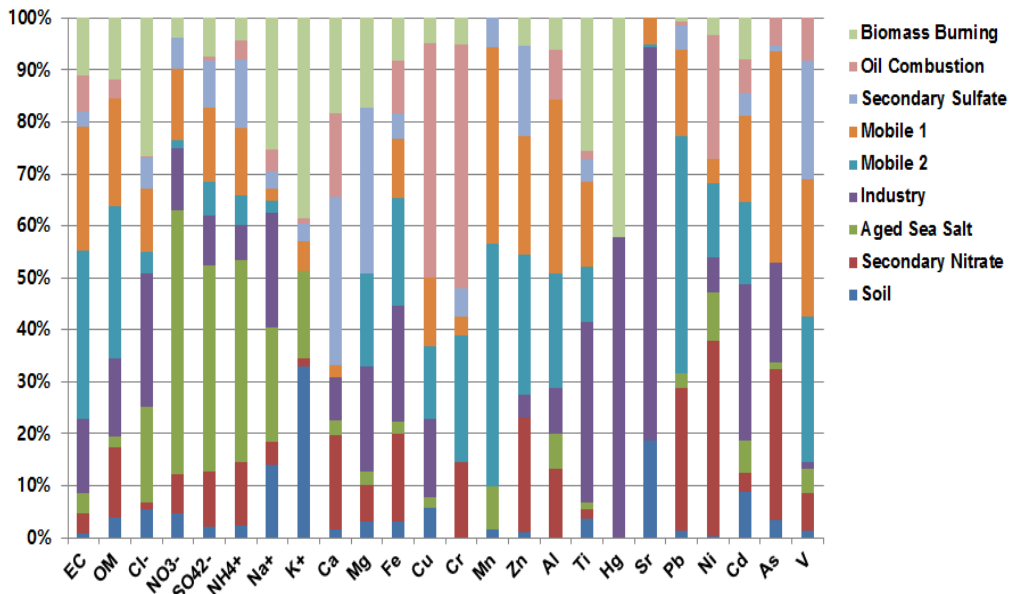


Fig. 2. Emission source distribution.

A시의 배출원별 기여도 순위는 Fig. 3과 같다. Secondary Sulfate가 19.8 %로 가장 기여도가 높고, 그 다음으로는 Mobile 19.5 %, Industry 16.0 %, Biomass Buring 14.1 %, Secondary Nitrate 14.1 %, Oil Combustion 11.6 %, Aged Sea Salt 2.6 %, Soil 2.5 % 등으로 분석되었다.

2차로 생성되는 물질인 황산암모늄염의 경우 Sulfate와 Ammonium 농도가 배출원별 프로파일에서 높게 나타나는 오염원으로 대기 중에서 가스상 전구물질(SOx와 암모니아 가스)이 광화학 반응하여 생성된 2차 에어로졸이다. 일반적으로 오염원 기여율은 여름철에 높게 나타나는데 이는 기온이 높을 때 대기 중 황산염의 생성이 활발하기 때문인 것으로 판단된다. 본 연구에서는 2차 생성물질인 황산암모늄의 PM_{2.5} 기여도는 19.8 %로 제일 높게 나타났다.

자동차배출 오염원은 가솔린과 디젤 차량의 오염원을 포함하고 있다. 일반적으로 오염원은 OC와 EC의 구성 비율이 높은 특징을 가지고 있으며, 이들 외에도 몇 가지의 미량원소들로 구성되어 있다. 휘발유 차량에 비해 디젤 차량에서 미량원소가 보다 많이 포함되어 있는 것으로 보고되고 있다. Zn, Ba, Cu 등은 자동차 브레이크 라이닝의 마모와 오일 첨가제 등에서 배출되고,

Cu와 Fe는 브레이크 패드 또는 자동차 머플러 등에서 발생하는 것으로 알려져 있다. 본 연구에서는 자동차배출 오염원의 PM_{2.5} 기여도는 19.5 %로 분석되었다.

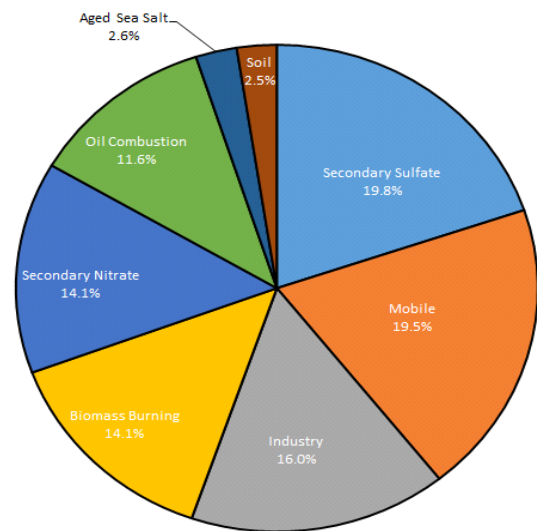


Fig. 3. Emission source contribution in PM_{2.5}.

산업공정 및 산업연소 오염원은 EC와 S, 그리고 Ni, Fe, Cu, Zn, Cd, Pb 등의 미량원소들의 농도가 높은 특성을 보이는 오염원으로 PM_{2.5}의 평균 16.0 %의 기여율로 분석되었다. Cu, Fe, Mn, Zn은 비철금속 및 금속 제련 공정에서의 배출이 크며, Ni은 오일연소에서 많이 배출된다. 이 오염원은 주변 도시 및 외곽에 자리한 산업공정과 Heavy crude oil 연소가 상대적으로 높은 산업시설들에서 배출된 것으로 추정된다. 특히, 소성로 및 용광로의 주요 Tracers는 Fe, Cu, Pb, Cd, AS 및 Mn으로 알려져 있으며, 주변의 산업 시설 중 제철 및 비철금속과 같은 금속 가공시설에서 기인된 것으로 판단된다.

생물성 연소 오염원의 경우 OC, EC, K⁺, SO₄²⁻, Cl⁻의 농도가 오염원 프로파일에서 가장 높은 것이 특징이며, PM_{2.5} 농도에 평균 14.1 % 기여하는 것으로 나타났다. 특히, 높은 OC와 K⁺는 노천소각과 관련된 주요 추적자(Marker species)로 평가되고 있으며, A시는 농사 및 공업 활동이 혼재된 지역으로 폐기물, 목재, 노천소각 등의 생물성 연소가 자주 일어나는 곳으로 판단되며, 특성상 상대적으로 겨울철에 기여도가 높은 것을 알 수 있다.

광화학 반응으로 생성되는 2차 물질인 질산암모늄염은 Nitrate와 Ammonium 농도가 오염원 프로파일에서 높게 나타나는 오염원으로 본 연구에서는 PM_{2.5} 농도에 평균 14.1 % 기여하는 것으로 나타났다. 일반적으로 2차 생성 질산암모늄염은 겨울/봄철 등 상대적으로 기온이 낮고 습도가 높을 때 입자화가 잘 일어난다. 이는 가스상 전구물질인 NO_x와 암모니아 가스가 대기 중에서 반응하여 질산염으로 변환되는 속도가 질산염이 가스상 물질로 분해되는 속도보다 빠르기 때문인 것으로 판단된다. 이에 여름철에는 2차 생성 질산염이 가스상으로 환원되어 입자상 농도가 낮아지게 되며, 2차 질산염은 화학반응을 통해 생성되는 오염원이기 때문에 장거리 이동의 영향을 받을 수 있다. 특히, 대기 중에 방출된 NO_x 등이 암모니아 등과 결합하여 질산염의 형태로 존재하여 미세먼지의 농도를 높게 된다. 오일연소 오염원은 Ni과 V의 농도가 높은 오염원 프로파일의 형태를 보인다. Ni과 V는 오일연소의 주요 마커물질이다. 오일연소는 Heavy oil(즉, 병커

C유, 중유 등)의 저질 오일을 대량으로 사용하는 산업공정 및 산업연소에서 발생하며, 특히, 선박에서 사용하는 연료의 연소에서 Ni과 V의 농도가 높은 특성을 띠는 오염원 프로파일이 생성된다. 본 오염원은 산업공정 및 산업연소(선박연소 포함) 오염으로 추정할 수 있으며, 오일 연소의 PM_{2.5} 기여도는 11.6 %로 나타났다.

해염입자는 일반적으로 Na, Mg, Al 농도가 높은 특징을 나타낸다. Aged 해염은 Na의 기여가 높고, 반면에 Cl의 경우는 NaCl이 가스상 황산(H₂SO₄)과의 반응에 의해 Na₂SO₄로 변환되어 Cl이 고갈되기 때문에 Cl은 낮은 기여도를 보인다. 더불어, 해염입자의 주성분은 Na⁺, Cl⁻, SO₄²⁻, Mg²⁺, Ca²⁺로 알려져 있으며 본 연구에서는 해염입자의 PM_{2.5} 기여도는 2.6 %로 나타났다. 마지막으로, 토양기인 오염원은 Mg, Al, Ca, Ti, Fe 등 대표적인 지각성분의 농도가 높은 토양 및 도로 비산과 관련된 오염원이며, 본 연구에서 토양기인 오염원의 PM_{2.5} 기여도는 2.5 %로 나타났다. 토양기인 오염원은 봄철에 기여율이 높고, 특히 황사 발생 시 대단히 높은 기여도를 나타내며, 반면 높은 습도와 많은 강우량에 의해 여름철에는 토양의 영향이 낮은 것으로 보고되고 있다.

3.3. PMF 모델 결과의 불확실성 검증

EPA PMF 5.0은 모델링의 에러를 평가할 수 있는 Bootstrap 방법과 Displacement error estimation 방법 등을 포함하고 있다. 이에 본 연구에서 사용한 데이터의 PMF 모델 결과와 모델링 수행과정 및 해석상의 불확실성을 검증하기 위하여 Bootstrap 방법을 시행하였고, Fig. 4에 제시하였다.

오염원별 화학성분의 Percentage 값이 Bootstrapping한 값의 범위를 넘어 Outlier로 분류되면 해당 오염원에서의 주요 Indicator로서의 역할을 할 수 없음을 의미한다. 전체적으로 에러 검증에서 지표로 사용되는 물질 결과가 Outlier 범위를 벗어나지 않은 것으로 분석되어 본 연구에서 분석된 결과가 높은 정확도를 보이는 것으로 분석되었다.

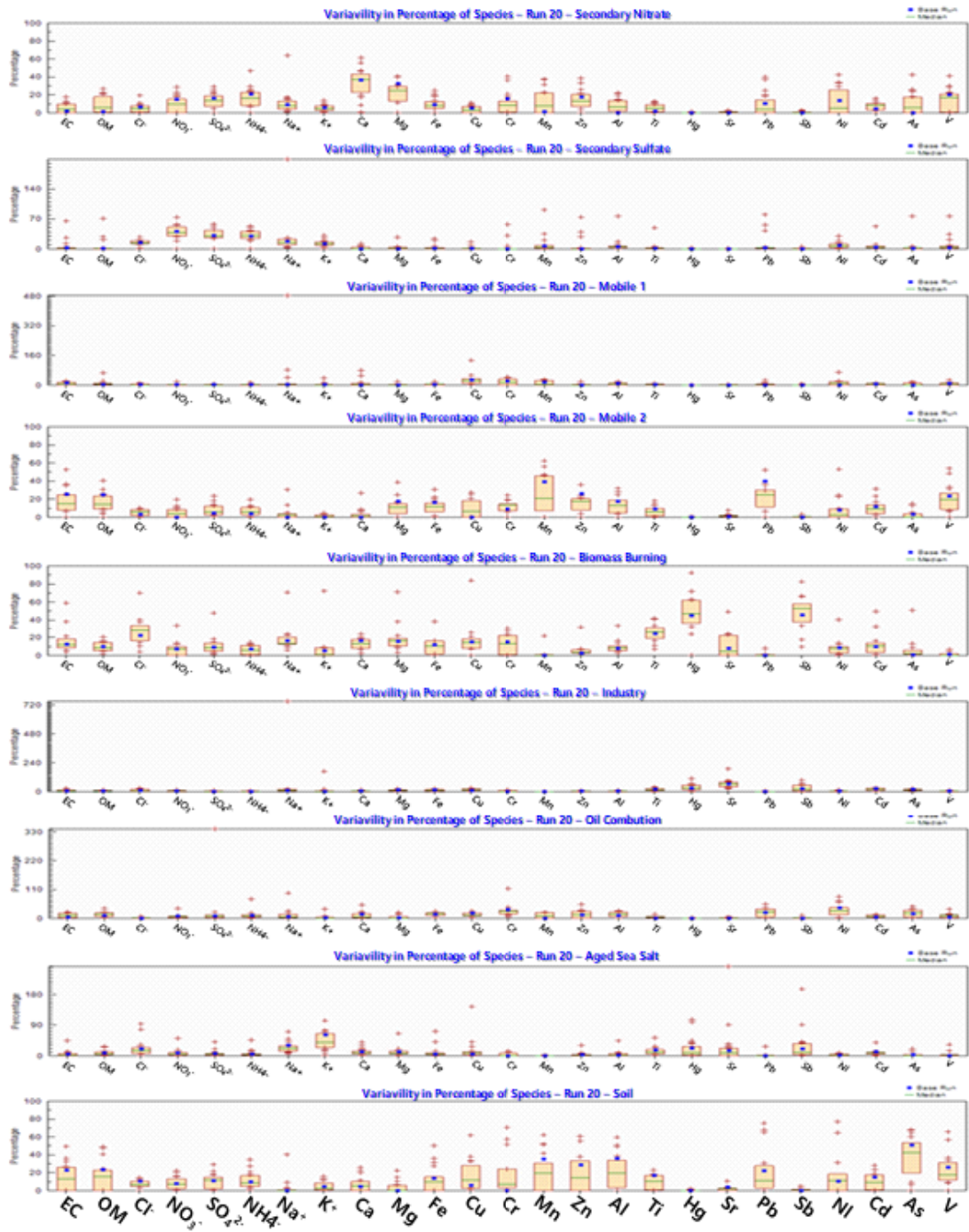


Fig. 4. Verification of PMF model using bootstrap.

4. 결론

본 연구에서는 PMF 모델을 이용하여 PM_{2.5}에 대한 오염원 확인 및 오염원별 기여도를 분석하였으며, 그 결과는 다음과 같이 요약할 수 있다.

A시의 배출원별 기여도 순위는 Secondary Sulfate가 19.8 %로 가장 기여도가 높고, 그 다음으로는 Mobile 19.6 %, Industry 16.0 %, Biomass Buring 14.1 %, Secondary Nitrate 14.1 %, Oil Combustion 11.6 %, Aged Sea Salt 2.6 %, Soil 2.5 % 등으로 분석되었다.

Sulfate와 Ammonium 농도가 배출원별 프로파일에서 가장 높게 나타나는 오염원으로 대기 중에서 가스상 전구물질(SO_x와 암모니아 가스)이 광화학 반응하여 생성된 2차 에어로졸이다. 일반적으로 오염원 기여율은 여름철에 높게 나타나는 데 이는 기온이 높을 때 대기 중 황산염의 생성이 활발하기 때문인 것으로 판단된다. 특히, A시의 경우 항만을 접하고 있어 해염입자에 의한 기여도가 상대적으로 높은 것으로 나타났다. 일반적으로 해염입자는 Na, Mg, Al 농도가 높은 특징을 나타낸다. Aged 해염은 Na의 기여가 높고, 반면에 Cl의 경우는 NaCl이 가스상 황산(H₂SO₄)과의 반응에 의해 Na₂SO₄로 변환되어 Cl이 고갈되기 때문에 Cl은 낮은 기여도를 보인다.

본 연구 결과는 향후 국내의 PM_{2.5}에 대한 효과적인 대응 및 관리 방안 마련과 배출원 관리정책을 수립하기 위한 유용한 기초자료로 활용될 수 있을 것으로 판단된다.

References

1. S. W. Han, "Analysis of the properties of Particle Matter in Busan and Daegu. Busan University(Master thesis)", (2014).
2. J. C. Ko, K. W. Ryu, I. G. Park, "The dispersion characteristics analysis of PM10 and PM2.5 in industrial complex using atmospheric dispersion model", *J. KSET*, Vol.19, No.4 pp. 366-374, (2018).
3. B. H. Kim, D. S. Kim, "Studies on the environmental behaviors of ambient PM2.5 and PM10 in Suwon area", *J. KOSAE*, Vol.16, No.2 pp. 89-101, (2000).
4. G. H. Park, W. G. Do, E. C. Yoo, "Reduction of air pollutants through facility improvement of bus platform and risk assessment", *The annual report of Busan metropolitan city institute of health & environment*, Vol.20, No.1 pp. 163-175, (2011).
5. E. J. Park, M. S. Kang, D. E. You, D. S. Kim, S. D. Yu, K. Chung, K. Park, "Health risk assessment of heavy metals in fine particles collected in Seoul metropolitan area", *Journal of Environmental Toxicology*, Vol.20, No.2 pp. 179-186, (2005).
6. GIHE, "Annual Report of Air Quality in Gyeonggi-do 2016", Gyeonggi-do Institute of Health & Environment, (2017).
7. Y. Jeong, I. Hwang, "Source Apportionment of PM2.5 in Gyeongsan Using the PMF Model", *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, Vol.31, No.6 pp. 508-519, (2015).
8. K. J. Moon, J. S. Han, B. J. Kong, I. R. Jung, S. S. Cliff, T. A. Cahill, and K. D. Perry "Size-resolved source apportionment of ambient particles by positive matrix factorization at Gosan, Jeju Island during ACE-Asia", *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, Vol.22, No.5 pp. 590-603, (2006).
9. I. J. Hwang, Y. H. Cho, W. G. Choi, H. M. Lee, and T. O. Kim, "Quantitative estimation of PM₁₀ source contribution in Gumi city by the positive matrix factorization model", *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, Vol.24, No.1 pp. 100-107, (2008).
10. S. M. Yi, I. J. Hwang, "Source Identification and Estimation of Source Apportionment for Ambient PM_{2.5} in Seoul, Korea", *Asian J. Atmos. Environ.*, Vol.8, No.3 pp. 115-125, (2014).
11. E. J. Kim, C. G. Lee, J. H. Kim, Y. K. Park, "Evaluation of Environmental Benefit and Cost for Management of Air Quality-[Based on Fine Dust Pollution on Donghae Harbor]", *J. of Korean Oil*

- Chemists' Soc.*, Vol.29, No.4 pp. 561-569, (2012).
12. J. H. Kim, Y. K. Park, "Fine dust(PM10) emission calculated of Dong-Hae harbor around area using inverse modeling technique", *J. of Korean Oil Chemists' Soc.*, Vol.32, No.4 pp. 649-660, (2015).
 13. I. Hwang, D. Kim, "Research Trends of Receptor Models in Korea and Foreign Countries and Improvement Directions for Air Quality Management", *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, Vol.29, No.4 pp. 459-476, (2013).
 14. H. W. Lee, T. J. Lee, S. S. Yang, D. S. Kim, "Identification of atmospheric PM10 sources and estimating their contributions to the Yongin-Suwon bordering area by using PMF", *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, Vol.24, No.4 pp. 439-454, (2008).
 15. I. Hwang, D. Kim, "Source identification of ambient PM-10 using the PMF model", *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, Vol.19, No.6 pp. 701-717, (2003).
 16. P. Paatero, "User's Guide for Positive Matrix Factorization Programs PMF2 and PMF3, Part 1: Tutorial; 2000", (2000).
 17. E. Lee, C. K. Chan, P. Paatero, "Application of positive matrix factorization in source apportionment of particulate pollutants in Hong Kong", *Atmospheric Environment*, Vol.33, No.19 pp. 3201-3212, (1999).
 18. B. Liu, J. Yang, J. Yuan, J. Wang, Q. Dai, T. Li, X. Bi, Y. Feng, Z. Xiao, Y. Zhang, "Source apportionment of atmospheric pollutants based on the online data by using PMF and ME2 models at a megacity, China", *Atmospheric Research*, Vol.185, pp. 22-31, (2017).
 19. J. H. Tan, J. C. Duan, F. H. Chai, K. B. He, J. M. Hao, "Source apportionment of size segregated fine/ultrafine particle by PMF in Beijing", *Atmospheric Research*, Vol.139, pp. 90-100, (2014).