

논문

한국에서의 PMF Source Profiles 리뷰를 기반으로 분석한 울산 2020년 PM_{2.5} 배출원 및 변동 특성

Source Characteristics and Their Changes in PM_{2.5} in Ulsan: Based on PMF Results for 2020 Observations and a Review of Source Profiles Reported in Korea

박재훈, 박용미, 한수빈, 변명화, 이태훈, 손운석¹⁾, 이그림²⁾, 강현정²⁾,
김효선²⁾, 박대용²⁾, 최원식*

부경대학교 지구환경시스템과학부 환경대기과학 전공,

¹⁾부경대학교 지구환경시스템과학부 환경공학 전공,

²⁾국립환경과학원 대기환경연구과

접수일 2022년 12월 9일
수정일 2023년 1월 6일
채택일 2023년 1월 18일

Received 9 December 2022

Revised 6 January 2023

Accepted 18 January 2023

*Corresponding author

Tel : +82-(0)51-629-6640

E-mail : wschoi@pknu.ac.kr

Jaehun Park, Yongmi Park, Subin Han, Myounghwa Byun, Taehun Lee,
Youn-suk Son¹⁾, Greem Lee²⁾, Hyun-Jung Kang²⁾, Hyo-Seon Kim²⁾,
Dae-Yong Park²⁾, Wonsik Choi*

Major of Environmental Atmospheric Sciences, Division of Earth and Environmental System Sciences,
Pukyong National University, Busan, Republic of Korea

¹⁾Major of Environmental Engineering, Division of Earth and Environmental System Sciences,
Pukyong National University, Busan, Republic of Korea

²⁾Air Quality Research Division, Climate and Air Quality Research Department, National Institute of Environmental Research,
Incheon, Republic of Korea

Abstract Ten averaged source profiles with variations were determined by reconstructing source profiles from previous studies in Korea to reduce uncertainty in identifying sources in PMF modeling. The reconstructed source profiles were applied to EPA-PMF modeling with observations at the Yeongnam supersite (Yeongnam region Air Quality Research Center) in 2020. Eight sources (sea salt, soil, coal combustion, oil combustion, traffic, industry, secondary sulfate, secondary nitrate and biomass burning) were successfully identified except for one source (Cu & Br related). The most contributing source to PM_{2.5} annually in Ulsan in 2020 was secondary nitrate and biomass burning ($5.29 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 40.7%), followed by secondary sulfate ($3.10 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 23.9%) and traffic ($0.98 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 7.5%). In summer, secondary sulfate contributed most significantly to PM_{2.5} concentration (41.1%) as expected. However, secondary nitrate and biomass burning were dominant in most seasons (32.6% in spring, 43.4% in autumn, and 58.0% in winter). Compared to the previous PMF results obtained at the same site in 2016, the contribution of secondary nitrate increased significantly up to 10.7%. This finding suggests that the role of nitrate in PM_{2.5} formation has possibly increased recently, and thus the nitrate formation mechanism should be elucidated to mitigate PM_{2.5} levels in the southeastern coastal region of Korea. In addition, we expect that the findings of this study can provide a basis to determine the sources in PMF modeling, in which the researcher's subjectivity can intervene.

Key words: PM_{2.5}, Receptor models, EPA-PMF, Source contribution

1. 서 론

공기역학적 직경이 2.5 μm 이하인 입자상 물질을 의미하는 초미세먼지 (PM_{2.5})는 인류의 건강을 위협하는 대표적인 대기오염물질이다. 세계보건기구 (World Health Organization, WHO) 산하 국제암연구소 (International Agency for Research on Cancer, IARC)는 초미세먼지를 1군 발암물질로 지정하였으며 (IARC, 2013), 최근 세계보건기구가 발표한 보고서에 따르면 매년 초미세먼지 노출로 인한 조기 사망자의 수는 2016년 기준 420만 명에 달한다고 추정하였다 (WHO, 2021). 이에 한국에서는 2019년 초미세먼지 오염을 국가재난사태로 선포하는 등 국가차원에서 대기 중 초미세먼지 저감을 위한 노력을 경주하고 있다 (Park *et al.*, 2020). 2011년 캘리포니아 로스앤젤레스에서는 미국에서 가장 교통량이 많은 고속도로인 I-405의 일부 구간에서 통행이 중단되어 교통량이 70% 정도 감소된 사건이 발생하였는데 이 기간 초미세먼지의 농도 역시 약 70% 감소되어 효과적인 저감대책이 수립된다면 초미세먼지 농도의 저감은 즉각적으로 이루어질 수 있음을 제시된 바 있다 (Choi *et al.*, 2013). 또, 여러 연구에서 2008년 베이징 올림픽 기간 동안 엄격한 교통량 통제와 산업단지 배출 규제 등 각종 대기오염물질 농도가 대폭 감소한 것을 확인하였다 (Wang *et al.*, 2009a, b).

이와 같은 초미세먼지의 효율적인 관리 및 저감대책을 위해서는 관리대상지역과 오염원 사이의 정성적 및 정량적 관계 규명이 선행되어야 한다 (Cheong, 2005). 다수의 연구자들은 연구대상 지역의 주요 오염원 및 기여도 추정을 하기 위하여 수용점에서 측정된 자료를 기반으로 분석하는 다양한 수용모델을 활용하고 있다. 대표적인 수용모델은 변수들 간의 상관관계 또는 공분산을 바탕으로 잠재적인 인자를 추출하는 인자분석법 (Factor Analysis)과 오염원분류표행렬을 바탕으로 잠재적인 인자를 추출하는 CMB (Chemical Mass Balance), 오염원분류표가 없어도 적용할 수 있고 인자의 부하량이 항상 양수로 계산되는

PMF (Positive Matrix Factorization), 시료의 화학적 정보를 바탕으로 self-modeling이라는 방식을 통하여 인자를 추출하는 UNMIX 등이 있다 (Watson *et al.*, 2008; Henry, 1997). 이와 같은 수용모델들은 각 분야에서 광범위하게 사용되어 국내외 수용모델이 적용된 연구 논문과 보고서는 2004년 기준 1,200편 이상인 것으로 집계된 바 있다 (Watson and Chow, 2004).

여러 종류의 수용모델 가운데 국내에서 가장 많이 사용되는 모델은 PMF모델이다 (Hwang and Kim, 2013). PMF 모델링은 Paatero와 Tapper (1994)에 의하여 개발된 수용모델로, 기존 수용모델의 단점을 보완하며 현실성 있는 인자를 산출하기 위하여 각 자료의 최소제곱값이 최소가 되게 하는 최소사승법 (least square minimization)의 오차추정 알고리즘을 따르는 인자분석법이며, 전통적인 인자분석법보다 진보된 모델로서 오염원분류표없이 측정자료만을 사용하여 오염원 분류 및 기여도 추정이 가능하도록 개발되었다 (Paatero and Tapper, 1994). 제 1세대 인자분석법은 공분산 행렬에만 의존하여 기여도가 음수로 나타나거나 인자회전에 따른 해석 상 모호성 등의 단점이 있지만 PMF는 기여도가 항상 양수로 계산되고 각 자료에 대한 오차추정에 기반하기 때문에 더 효과적인 오염원 분류가 가능하다고 알려져 있다 (Hwang and Kim, 2013).

PMF는 측정자료만으로 오염원과 그 기여도를 추정할 수 있다는 장점으로 국내외에서 널리 사용되고 있지만 그만큼 입력자료의 질이 모델링 결과 신뢰도에 큰 영향을 주기 때문에 우선적으로 입력자료의 수가 충분해야 하며 ($n \geq 100$) 입력자료 전처리 및 불확실도 계산방법 등 전반적인 입력자료 생산과정의 신뢰도 확보가 필수적이다 (Hwang and Kim, 2013). 또한 동일한 자료를 사용하여 모델링을 진행하여도 수행과정에 선택사항이 많아서 연구자의 배경지식 및 모델 숙련도에 따라 오염원의 수, 종류, 기여도 등이 상이할 수 있다는 단점이 존재한다. 특히 대다수의 국내 수용모델 연구는 오염원 확인 단계에서 미국 환경보호청 (US, EPA)이 측정기반으로 생성한 오염원

분류표(eg. SPECIATE)와 같은 해외 자료를 활용하고 있는데, 우리나라는 미국과 환경 및 배출원 조건이 다르므로 이에 따른 해석상의 불확실성이 존재한다(Park, 2001). 이에 Hwang과 Kim(2013)은 우리나라 환경을 고려한 오염원분류표의 개발 및 자료구축과 갱신이 국가적인 차원에서 수행되어야 한다고 주장한 바 있으나(Hwang and Kim, 2013) 오염원분류표 개발에 대한 국가적 노력은 여전히 미비한 실정이다.

한편, 국립환경과학원(National Institute of Environmental Research; NIER)은 2013년부터 꾸준히 PMF 모델 운영방법의 표준화작업을 수행하여 왔으며 최근에는 수용모델 적용을 위한 국가 집중측정망 자료의 전처리방법 및 PMF 모델의 전반적인 운영방법을 구체적으로 제시하였다(NIER, 2021a, 2017, 2013). 그러나 여전히 오염원 확인 단계에서는 몇몇 인자들에 대해 연구자마다 의견이 나뉘는 등, 국내 오염원별 주요 마커 성분을 객관적으로 제시하기에는 어려움이 있었다.

이에 본 연구에서는 통계적인 측면에서 오염원분류표의 객관적인 기준을 제시하고자 이미 다양한 방법으로 검증이 완료된 선행연구의 오염원별 인자 프로파일을 수집하여 이를 재구성함으로써 오염원별 평균 인자 프로파일을 제시하고, 이에 기반하여 2020년 영남권 PM_{2.5}의 오염원 분류 및 기여도 추정에 적용하고자 하였다.

2. 재료 및 방법

2.1 선행연구 오염원분류표 수집 및 재구축

정확한 오염원 분류를 위해 가장 핵심적인 부분 중 하나인 오염원별 구성인자의 비율(프로파일)을 정확하게 파악하는 것이다. 그러나 전술하였듯이 국내 지역 오염원별 프로파일에 대한 자료가 미흡하기 때문에 대부분의 선행연구들은 모델링 결과를 바탕으로 여러가지 검증방법을 추가적으로 수행하였다. 일반적인 검증방법에는 (1) 측정된 PM_{2.5} 질량농도와

모델링 결과로 재구성된 PM_{2.5} 농도의 결정계수 이용(EPA, 2014), (2) displacement error estimation, bootstrap error estimation 수행을 통한 모델링 불확실성 확인(Paatero *et al.*, 2014), (3) 오염원별 기여도의 시계열 분석(Yi and Hwang, 2014), (4) 기상자료가 결합된 수용모델(CPE, PSCF 등)을 이용하여 예상 배출원 위치와 실제 배출원 위치를 비교 분석하는 방법(NIER, 2017) 등이 있다.

본 연구에서는 이러한 검증 과정을 거친 선행연구 중, 국내 지역의 PM_{2.5}를 대상으로 모델링한 문헌을 수집하였으며(표 1), 문헌에 제시된 각 오염원별 구성인자 프로파일을 디지털화함으로써 수치화 하였다(수치화를 위해 오픈소스 digitizing 프로그램인 Engauge Digitizer 사용).

2.2 PMF (Positive Matrix Factorization) 모델

본 연구에서는 EPA-PMF (ver. 5.0)를 사용하였다. PMF는 불확도 자료를 바탕으로 각 자료에 가중치를 부여하며, 항상 양의 값을 가지도록 강제하여 현실성 있는 오염원분류표와 기여도를 제공함으로써 환경 자료의 적용성이 뛰어나다고 알려져 있다(Reff *et al.*, 2007). PMF 모델 방정식은 다음과 같이 표현할 수 있다(식 1).

$$X = GF + E \quad \text{or} \quad x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \quad (1)$$

위 식에서 i 는 시료, j 는 화학종, k 는 오염원을 나타낸다. x_{ij} 는 시료 i 에서 측정된 화학종 j 의 농도를 의미하며, g_{ik} 는 시료 i 에 대한 오염원 k 의 상대적인 기여도를, f_{kj} 는 오염원 k 의 프로파일에서 화학종 j 의 농도를 의미한다. 그리고 e_{ij} 는 시료 i 에서 차지하는 화학종 j 에 대한 모델링 잔차(error)를 의미한다.

PMF 모델은 각 자료의 불확실도에 근거한 잔차의 제곱의 총 합으로 주어지는 목적함수(objective function) Q 가 최소가 되는 조건을 가지고 방정식을 반복 계산한다(식 2). 아래 식에서 σ_{ij} 는 시료 i 에서 측정된 화학종 j 에 대한 불확실도이다.

Table 1. Summary of previous studies used in this study.

No.	Period	Location*	Species#	Factor#	Data sources	Reference
1	1 year	Busan	22	8	Independent measurements	Jeong <i>et al.</i> , 2017
2	1 year	SD, JB, HN, BN (average)	25	9	National monitoring network (supersite)	Sung <i>et al.</i> , 2017
3	1 year	Gwangju	30	8	Independent measurements	Yu <i>et al.</i> , 2021
4	1 year	SD	19	10	National monitoring network (supersite)	Hwang <i>et al.</i> , 2020
5	1 year	JB	19	9	National monitoring network (supersite)	Hwang <i>et al.</i> , 2020
6	1 months	BN	23	7	National monitoring network (supersite)	Lim <i>et al.</i> , 2016
7	6 months	Daebu Island	21	9	Independent measurements	Kim <i>et al.</i> , 2018a
8	1 year	YN	25	11	National monitoring network (supersite)	CPAPH, 2020
9	1 year	Jeju Island	19	6	Independent measurements	Kim <i>et al.</i> , 2018b
10	18 months	Pyeongtaek	31	7	Independent measurements	Heo <i>et al.</i> , 2020
11	18 months	Pocheon	31	7	Independent measurements	Heo <i>et al.</i> , 2020

*SD: Greater Seoul Metropolitan Area, JB: Jungbu Air Quality Monitoring District (AQMD), HN: Honam AQMD, BN: Baengnyeong island, YN: Yeongnam AQMD

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left(\frac{e_{ij}}{\sigma_{ij}} \right)^2 \quad (2)$$

또한 PMF와 같은 인자분석 모델링은 인자의 회전 시 발생하는 모호성을 제어하기 위하여 FPEAK, FKEY, GKEY와 같은 rotational tool을 사용한다 (Hopke, 2000). 본 연구에서는 EPA-PMF에서 제공하는 rotation tool 중 FPEAK를 사용하여 회전자유도 (rotational freedom)를 제어하였으며, 최적의 FPEAK 값의 선택기준에는 특별한 이론적 근거는 없고 연구자의 시행착오 (trial and error) 방법에 의해 선정된다 (EPA, 2014; Hopke, 2000). 일반적으로 FPEAK를 변화시키며 각 인자의 독립성을 확보하고 변동성을 최소화할 수 있는 dQ 가 최소일 때의 FPEAK값을 선정하거나 Q 값이 증가하기 시작할 때의 FPEAK값을 선정하며 (Paatero *et al.*, 2005), 본 연구에서는 FPEAK를 -1.0부터 1.0까지 0.1씩 변화시키며 dQ 가 최소일 때의 FPEAK를 선택하였다.

2.3 영남권 대기환경연구소

국내 대기환경연구소 (국가 집중측정망)는 2020년 10월 기준, 전국 9개 권역 (백령도, 수도권, 경기권, 중

부권, 충청권, 호남권, 전북권, 영남권, 제주도)에 분포하여 PM_{2.5}와 그 구성 성분 (무기이온, 탄소, 미량원소)의 질량농도 등을 1시간의 시간해상도로 측정하고 있다. 영남권 대기환경연구소는 울산광역시 성안동에 위치하여 (35.58°N, 129.32°E) 2013년 2월부터 주민의 건강보호와 영남권 대기오염 특성 파악을 목적으로 대기질을 24시간 상시측정 중이다 (NIER, 2021b).

대기환경연구소에서 사용하는 측정장비의 정보는 표 2에 제시하였다. 측정방법을 간단하게 요약하면, PM_{2.5}의 질량농도는 대기 중 에어러솔을 16.7 L/min의 유량으로 임팩터를 거쳐 석영필터에 채취한 후 베타선 흡수법 기반의 BAM-1020 (Met One Ins.)으로 측정하였으며, 이온성분은 3 L/min의 유량으로 채취 후 IC (Ion Chromatography)로 측정하였다. 탄소성분 (OC/EC, 유기탄소와 원소탄소)은 8 L/min으로 석영필터에 45분간 채취하여 15분간 NIOSH (National Institute for Occupational Safety and Health) 5040 protocol을 따르는 열광학적 투과법 (TOT, Thermal-Optical Transmittance) 방식과 비분산적외선법 (NDIR, Non Dispersive InfraRed) 방식으로 측정하였다. 측정과정 및 방법에 대한 자세한 내용은 국립환

Table 2. Summary of instrumentation being operated at Air Pollution Monitoring Supersites.

	Equipment	Principle	Resolution
PM _{2.5}	BAM-1020 (Met One Ins.)	Beta-ray attenuation	1 hour
Ion	Ambient Ion Monitor (URG Co., 9000D)	IC (Ion Chromatography)	1 hour
Organic and elemental carbon	Semi-continuous OC/EC carbon aerosol analyzer (Sunset Laboratory INC., USA)	TOT (thermal-optical transmittance)/ NDIR (Non Dispersive Infrared)	1 hour
Trace elements	Online-XRF (Cooper Co., Xact 640)	XRF (X-ray fluorescence)	1 hour

경과학원에서 출판한 다양한 문헌에 제시되어 있다 (NIER, 2021b, 2015).

본 연구에서는 2020년 1월부터 12월까지 (1년) 영남권 대기환경연구소에서 측정된 PM_{2.5} 및 구성 성분 질량농도의 실시간 측정자료 (1시간)를 사용하였으며, 화학종은 PM_{2.5} 및 무기이온성분 8종 (SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺), 탄소성분 2종 (OC, EC), 미량원소 17종 (Si, S, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, As, Se, Br, Ba, Pb) 등 총 28종을 사용하였다.

2.4 모델링 입력자료

모델링 입력자료는 국립환경과학원에서 제시한 가이드라인을 따라 전처리 및 불확실도 자료를 생산하여 신뢰도를 확보하였다 (NIER, 2021a). 즉, 원시자료 8,784개 중 PM_{2.5}의 질량농도가 0 또는 결측치인 시료 704개, Ion balance와 mass closure의 범위가 ± 50%를 넘는 시료 1,757개를 제외하고 총 6,323개의 시료를 모델링 입력자료로 사용하였다. 또한, 입력자료 중 화학종의 농도가 결측치인 경우에는 EPA-PMF 기본 설정 값인 해당 화학종의 중앙값으로, 불확실도를 중앙값의 4배로 대체하였다 (Polissar *et al.*, 2001). 농도가 MDL (minimum detection limit) 이상일 때는 불확실도를 $\sqrt{(Conc \times 0.1)^2 + \left(\frac{MDL}{2}\right)^2}$ 으로 계산하였으며, 농도가 MDL 이하인 경우에는 그 값을 MDL/2값으로, 불확실도를 (5×MDL)/6값으로 대체하였다 (EPA, 2014; Hwang and Hopke, 2006; Paatero and Hopke, 2003; Polissar *et al.*, 1998). MDL 이하인 값과 결측치가 전체자료의 90% 이상인 Ba는 모델링

입력자료에서 삭제하였다.

또한, EPA-PMF 내에서 PM_{2.5}를 total variable로 설정하여 계산결과에 미치는 영향을 최소화하고 계산된 오염원 기여도가 PM_{2.5}와 같은 단위를 갖게 하였으며, S/N (signal to noise) ratio가 0.2 미만인 화학종은 bad category로 분석에서 제외하고 S/N ratio가 0.2 이상 2 미만의 화학종은 weak 카테고리 설정하여 불확실도를 3배 증가시켰다 (Paatero and Hopke, 2003). 마지막으로, 질량농도의 이중계산을 피하기 위하여 결측치가 많고 S/N ratio가 상대적으로 낮은 S, Ca²⁺, K⁺ 대신 SO₄²⁻, Ca, K를 사용하였다 (NIER, 2017). 최종 입력자료의 mass balance의 결정계수 (R²)는 약 0.89로 양호하였으며, 입력자료에 대한 기본 통계 정보는 표 3에 제시하였다.

3. 결과 및 토의

3.1 평균 오염원분류표

국내 지역의 PM_{2.5}를 대상으로 PMF를 수행한 9개 문헌에서 확인된 11개의 오염원분류표를 정리하여 총 91개의 오염원을 확인하였으며, 각 오염원을 이차생성 질산염, 이차생성 황산염, 산업 관련, 토양 관련, 차량 관련, 생물연소 관련, 도로먼지 관련, 석유연소 관련, 석탄연소 관련, 해염 관련, 기타 등 총 11가지의 범주형 오염원으로 그룹 지었다. 기타를 제외한 각 그룹은 5회 이상 확인된 오염원이며, 그룹별 구성성분의 평균 질량분율 및 표준편차를 계산하여 평균 오염원분류표를 작성하고 각각의 오염원 정보를 다음의 표로 정리하였다 (그림 1, 표 4).

Table 3. Summary of basic statistics of PMF input data.

		Category	S/N	Min	25th	Median	75th	Max
PM _{2.5} (μg·m ⁻³)		Weak	0	1	7	12	20	70
Inorganic ions (μg·m ⁻³)	SO ₄ ²⁻	Strong	8.10	0.07	1.48	2.38	3.64	35.63
	NO ₃ ⁻	Strong	8.02	0.02	0.82	1.90	4.19	31.74
	Cl ⁻	Strong	6.03	0.01	0.11	0.18	0.29	2.41
	Na ⁺	Strong	2.00	0.01	0.07	0.08	0.14	1.19
	NH ₄ ⁺	Strong	7.68	0.04	1.07	1.96	3.30	14.31
	K ⁺	Bad	1.97	0.01	0.04	0.05	0.05	0.60
	Mg ²⁺	Bad	4.58	0.01	0.02	0.02	0.03	0.41
	Ca ²⁺	Bad	3.03	0.01	0.03	0.04	0.06	0.86
Carbon (μg·m ⁻³)	OC	Strong	3.61	0.18	1.27	2.11	2.98	15.12
	EC	Strong	8.04	0.01	0.27	0.41	0.60	9.59
Metals (ng·m ⁻³)	Si	Strong	8.51	0.05	75.59	113.93	159.02	1201.00
	S	Bad	8.33	210.59	2642.41	4276.00	6646.00	43451.00
	K	Strong	3.49	20.00	59.59	101.86	163.03	926.26
	Ca	Strong	6.20	2.50	19.58	31.93	49.29	910.54
	Ti	Strong	2.52	1.50	1.50	5.19	8.58	135.11
	V	Weak	0.66	0.50	0.50	0.50	0.50	51.45
	Cr	Strong	2.99	0.25	0.63	1.12	1.91	199.42
	Mn	Strong	8.25	0.15	4.75	9.39	17.28	305.35
	Fe	Strong	8.83	3.27	76.98	130.39	209.53	1367.00
	Ni	Strong	4.11	0.10	0.31	0.67	1.31	30.16
	Cu	Strong	7.20	0.10	1.65	2.82	4.70	190.16
	Zn	Strong	8.82	0.26	18.19	33.72	58.14	2995.00
	As	Strong	7.51	0.05	0.99	2.11	4.53	501.41
	Se	Strong	2.81	0.15	0.15	0.58	1.14	76.60
	Br	Strong	7.83	0.20	3.70	5.98	9.61	316.89
	Pb	Strong	8.22	0.15	5.40	9.97	18.12	1237.00

이차생성 질산염과 토양 관련 오염원은 수집한 11 개 선행연구 모두에서 나타났다. 이차생성 질산염 오염원의 기여도 상위 3종(NO₃⁻, NH₄⁺, Cl⁻)의 평균 기여도는 각각 76.9%, 31.8%, 28.3%였으며, 토양 관련 오염원은 전반적으로 지각 성분(Ca, Al, Ti, Mg, Si 등)의 비율이 우세하였고 기여도 상위 3종(Ca, Al, Ti)의 평균 기여도는 각각 57.0%, 51.7%, 38.9%였다.

이차생성 황산염 오염원과 산업 관련 오염원은 10 개의 선행연구에서 제시되었으며, 이차생성 황산염의 기여도 상위 3종(SO₄²⁻, NH₄⁺, V)의 평균 기여도는 각각 61.9%, 44.7%, 28.7%였다. 산업 관련 오염원은 금속 성분 중심의 인위적 성분(Cr, NO₂⁻, Co, Mn, Fe 등)의 비율이 우세하였으며 기여도 상위 3종(Cr, NO₂⁻, Co)의 평균 기여도는 각각 43.2%, 40.5%,

35.7%였다. 산업 관련 오염원은 상대적으로 다수의 화학종이 기여도 분포를 이루고 있는데, 이는 권역마다 다양한 산업형태가 결합되어 나타난 영향으로 사료되며 단순히 기여도가 높은 성분으로 오염원을 구분하는 것보다 연구대상 지역의 산업형태 특징을 파악한 후에 오염원을 해석하는 것이 적합할 것으로 판단된다.

차량 관련 오염원은 8개의 선행연구에서 확인되었으며 기여도 상위 3종(OC (WSOC), EC, Mg)의 평균 기여도는 각각 43.1% (31.8%), 36.4%, 23.9%를 차지하였다. 석유연소 관련 오염원과 생물연소 관련 오염원은 7개 선행연구에서 제시되었으며 기여도 상위 3종의 평균 기여도는 석유연소 관련 오염원(V, Ni, Sr)이 63.5%, 43.9%, 12.9%, 생물연소 관련 오염원(F⁻, K⁺

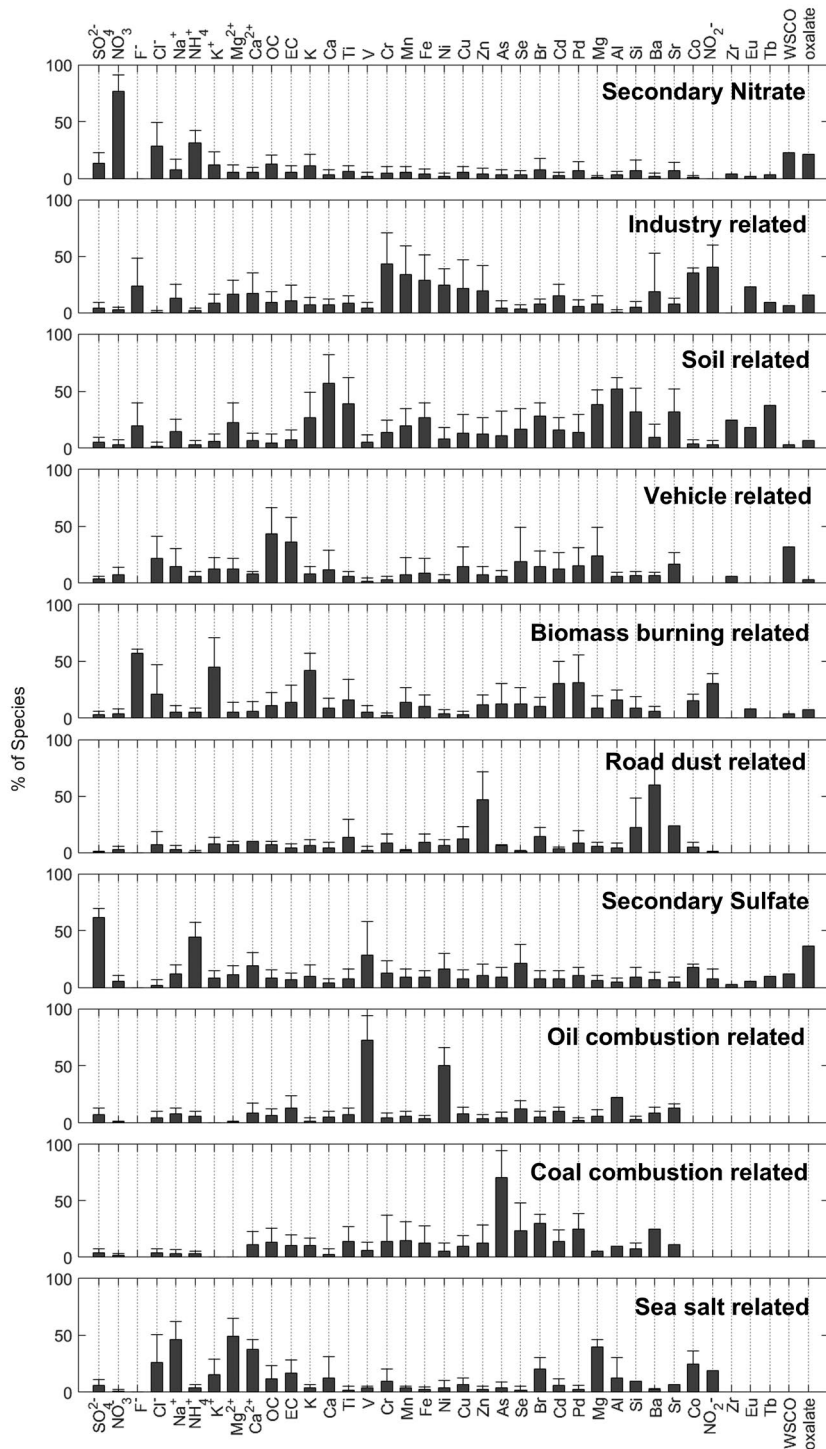


Fig. 1. Reconstructed average source profiles from 9 previous studies. Vertical bars represent standard deviations of collected profiles.

Table 4. Information of the averaged source profiles from 9 previous studies.

Sources	Three major contributors in the profiles	Frequency in previous studies	References*
Secondary nitrate	NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺ , Cl ⁻	11	1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11
Soil-related	Ca, Al, Ti	11	1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11
Secondary sulfate	SO ₄ ²⁻ , NH ₄ ⁺ , V	10	1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 10, 11
Industry-related	Cr, NO ₂ ⁻ , Co	10	2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11
Vehicle-related	OC (WSOC), EC, Mg	8	1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8
Oil combustion-related	V, Ni, Sr	7	1, 2, 4, 5, 6, 7, 8
Biomass burning-related	F ⁻ , K ⁺ (K), Pb	7	2, 3, 4, 5, 8, 10, 11
Coal combustion-related	As, Br, Pb	6	2, 4, 5, 6, 7, 8
Road dust-related	Ba, Zn, Si	5	1, 4, 5, 10, 11
Sea salt-related	Mg ²⁺ , Na ⁺ , Ca ²⁺	5	7, 8, 9, 10, 11

*Reference number corresponds to the number of previous studies shown in Table 1.

(K), Pb)이 57.2%, 44.9% (41.9%), 31.4%로 나타났다.

석탄연료 관련 오염원은 6개의 선행연구에서 제시하였고 기여도 상위 3종(As, Br, Pb)의 평균 기여도는 각각 60.3%, 29.6%, 21.5%로 나타났다. 5개의 선행연구에서 제시된 도로먼지 관련 오염원의 기여도 상위 3종(Ba, Zn, Si) 평균 기여도는 60.1%, 46.8%, 22.2%였다. 해염입자 관련 오염원의 기여도 상위 3종(Mg²⁺, Na⁺, Ca²⁺)의 평균 기여도는 49.2%, 38.8%, 37.3%였다. 해염입자 오염원은 Na⁺와 Cl⁻ 등이 주요 구성성분인 것으로 알려져 있으나 평균 오염원분류표에서는 Na⁺에 비하여 Cl⁻의 기여도가 상대적으로 작은 비율로 계산되었다. 이는 해염입자 관련 오염원으로 묶은 프로파일 5개 중 3개가 aged sea salt 오염원으로 분류된 까닭으로 사료되며, aged sea salt는 NaCl이 대기 중에서 이동하며 가스상의 황산(H₂SO₄)과 반응하여 Na₂SO₄로 변환되면서 Cl⁻의 비율이 감소한다고 알려져 있다(Lee *et al.*, 2002; Song *et al.*, 2001).

본 선행연구 결과에 기반한 평균 오염원분류표는 이차생성 오염원과 지역 특색이 적은 일차생성 오염원(차량, 선박, 생물연소 등)에 대하여 객관적인 지표로 사용될 수 있으나, 산업별 특성이 강한 배출원(금속 제련, 섬유산업, 석유화학 등)의 경우에는 주요 구성성분이 달라지므로 특정 산업으로 세분화하기 어렵다는 한계가 있을 수 있다. 전술하였듯이, 산업활동과 관련된 오염원에 적용시 해당 지역의 산업 특성을

충분히 고려하는 것이 중요할 것으로 보인다.

3.2 2020년 영남권 PM_{2.5} 오염원 및 기여도 평가

본 연구에서는 2020년 영남권 오염원 확인을 위하여 Q value, IM, IS 등을 이용하여 최적의 인자 개수를 9개로 결정하였으며, rotation tool FPEAK를 -1.0부터 1.0까지 0.1씩 증가하며 반복수행 후 최적의 FPEAK값을 -0.1로 선택하였다(Hwang and Kim, 2013; Paatero and Tapper, 1994). Base 모델링으로 획득한 최적의 오염원인 9개의 오염원 인자에 대한 프로파일을 본 연구에서 획득한 오염원 재구성 분류표와 비교하여 오염원을 식별하였다. 최종 식별된 오염원은 해염, 토양, 석탄연소, 석유연소, 차량, 산업, 이차생성 황산염, 이차생성 질산염(생물연소포함)이었다(그림 2). 영남권 PMF 모델링 결과, 9개의 오염원 중 그림 2의 Factor 8을 제외한 나머지 오염원 프로파일은 평균 오염원분류표와 대부분 일치하는 양상을 보였다. Factor 8은 Cu와 Br이 높은 비율(각각 63.4%와 54.5%)을 차지하였다. 그러나 본 연구에서 재구성한 평균 오염원분류표에서는 이와 유사한 오염원을 찾지 못하였다. 이 오염원이 오염원의 수를 결정하면서 나타난 오류인지 확인하기 위해 오염원 개수를 증가하거나 감소하여 보았으나 해당 오염원의 프로파일은 오염원의 수와 관계없이 지속적으로 확인되었

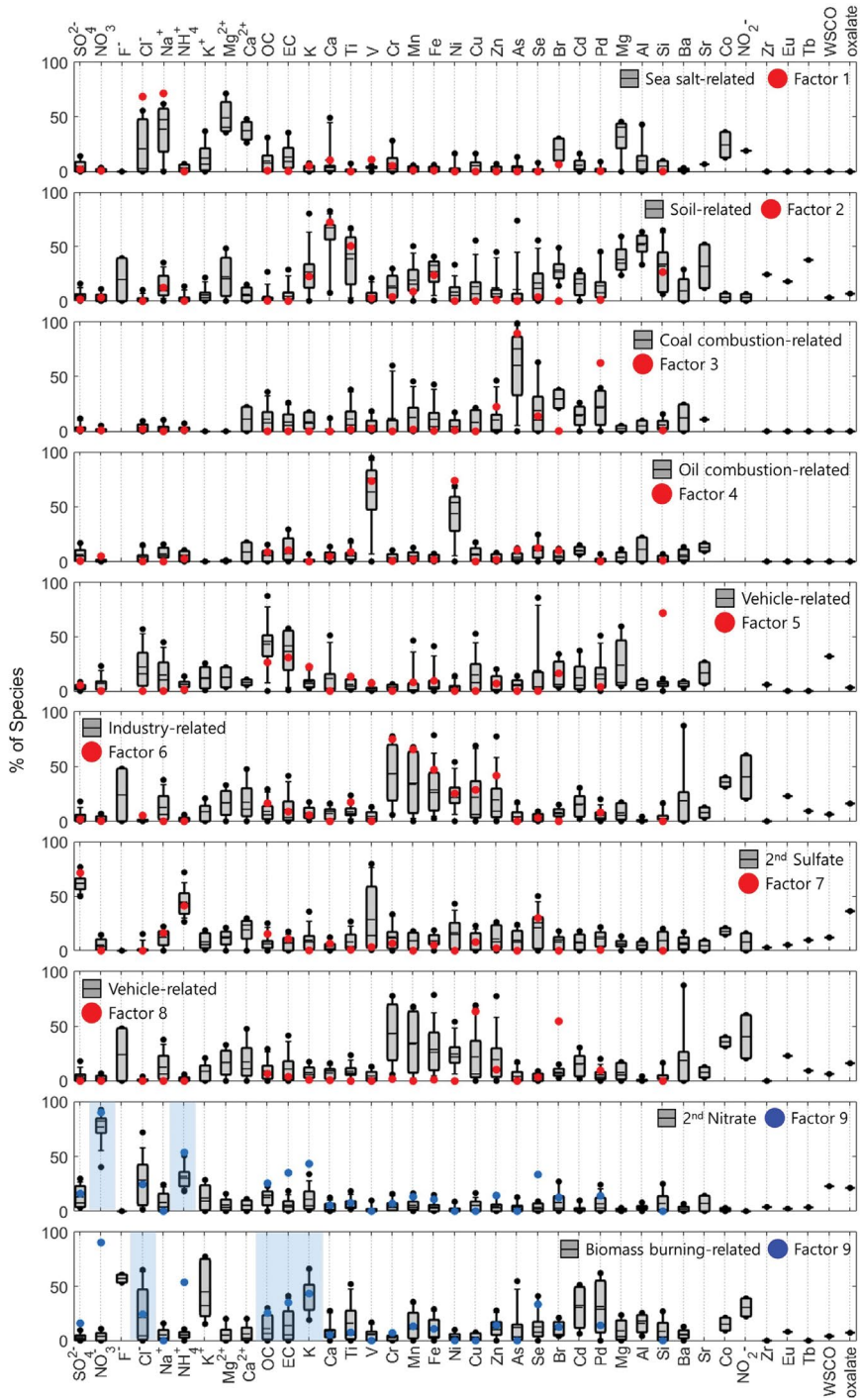


Fig. 2. Comparison of source profiles between the Yeongnam supersite results in 2020 obtained in this study (red circles) vs. reconstructed profiles obtained from previous studies (box plots). Last two profiles represent for Factor 9 in this study (blue circles) and reconstructed profiles from previous studies for secondary nitrate (upper) and biomass burning (bottom).

다. 다만 Cu는 브레이크와 같은 제동 장치의 마모로 배출되기도 하고 (Sternbeck *et al.*, 2002), 국내에서 PM₁₀의 오염원 추정 연구에서는 Br이 자동차 관련 오염원의 주요 마커 성분으로 활용되기도 하였다 (Lim *et al.*, 2010). 따라서, 이 오염원이 자동차 배출 오염원의 비연소 배출을 나타낼 가능성이 있다. 또한, 측정지점 인근에 자동차 공업단지가 위치하고 있어 관련 산업단지의 영향도 배제할 수 없다. 그러나, 본

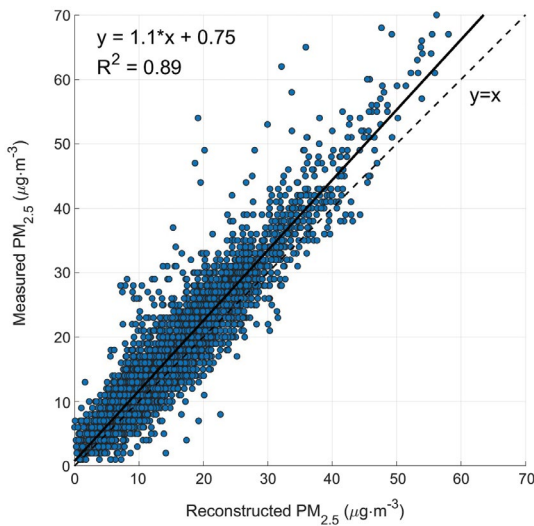


Fig. 3. Comparison of PM_{2.5} mass concentrations reconstructed with nine factors from PMF modeling vs. observations.

연구에서는 이 오염원을 단정할 수 없으므로 Cu, Br 관련 오염원으로 따로 분류하였다.

PMF 모델링을 통해 획득한 9개의 오염원 (factor)의 기여도를 재구성하여 계산한 PM_{2.5} 농도는 측정된 PM_{2.5} 질량농도의 89%를 설명할 수 있어 좋은 일치를 보여주었다(그림 3; 결정계수 R²=0.89).

이와 더불어 본 연구에서는 식별된 9개 오염원의 월별 및 계절별 기여도 분포를 조사함으로써 식별된 오염원을 추가적으로 확정하였다. 각 오염원의 주요 특징과 세부적인 월별/계절별 변동 추이는 다음과 같다(그림 4; 표 5).

연평균 오염원의 기여도는 생물연소를 포함한 이차생성 질산염이 40.7%로 가장 높은 기여도를 나타내었다. 이차생성 질산염에 생물연소를 포함한 이유는 아래에 상세히 설명하였다. 그 뒤를 이어 이차생성 황산염이 23.9%를 차지하였고, 이 둘의 합은 전체 오염원의 64.6%로 대부분을 차지하였다. 산업 관련과 차량 배출 오염원은 각각 8.8%와 7.5%로 기여도에 대해 2위 그룹을 형성하였다. 앞에서 논의한 Cu, Br 관련 오염원(3.5%)을 포함한다면 이들의 전체적인 기여도는 19.8%를 차지한다. 세 번째 기여도 그룹으로는 토양(5.5%), 석유연소(4.7%), 해염(4.1%) 관련 오염원이 차지하였고, 석유연소를 제외한 토양과 해염은 자연적인 발생원에 가까워 이들만의 기여도 합은 9.6%였다. 울산에서 가장 적은 기여도를 가진 오염원은 석탄

Table 5. Average contributions and percentages of apportioned sources in the Southeastern district of air quality in 2020.

	Spring (AM)		Summer (JJAS)		Fall (ON)		Winter (DJFM)		Annual	
	µg·m ⁻³	%	µg·m ⁻³	%	µg·m ⁻³	%	µg·m ⁻³	%	µg·m ⁻³	%
2 nd Nitrate & Biomass burning	4.06	32.57	1.62	14.32	5.03	43.42	8.78	57.96	5.29	40.71
2 nd Sulfate	3.37	27.04	4.66	41.12	1.85	15.93	2.34	15.43	3.1	23.88
Industry	0.85	6.82	1.24	10.93	1.58	13.66	0.99	6.52	1.14	8.75
Traffic	1.33	10.67	0.79	7	0.76	6.54	1.08	7.13	0.98	7.54
Soil	0.79	6.32	0.67	5.95	0.85	7.32	0.65	4.3	0.71	5.45
Oil combustion	0.78	6.24	1	8.83	0.37	3.22	0.35	2.28	0.61	4.72
Sea salt	0.62	4.97	0.56	4.95	0.47	4.03	0.49	3.26	0.53	4.06
Cu, Br related	0.45	3.63	0.51	4.51	0.53	4.55	0.38	2.49	0.46	3.52
Coal combustion	0.22	1.75	0.27	2.4	0.16	1.35	0.1	0.64	0.18	1.37
Total	12.47	100	11.32	100	11.59	100	15.15	100	13	100

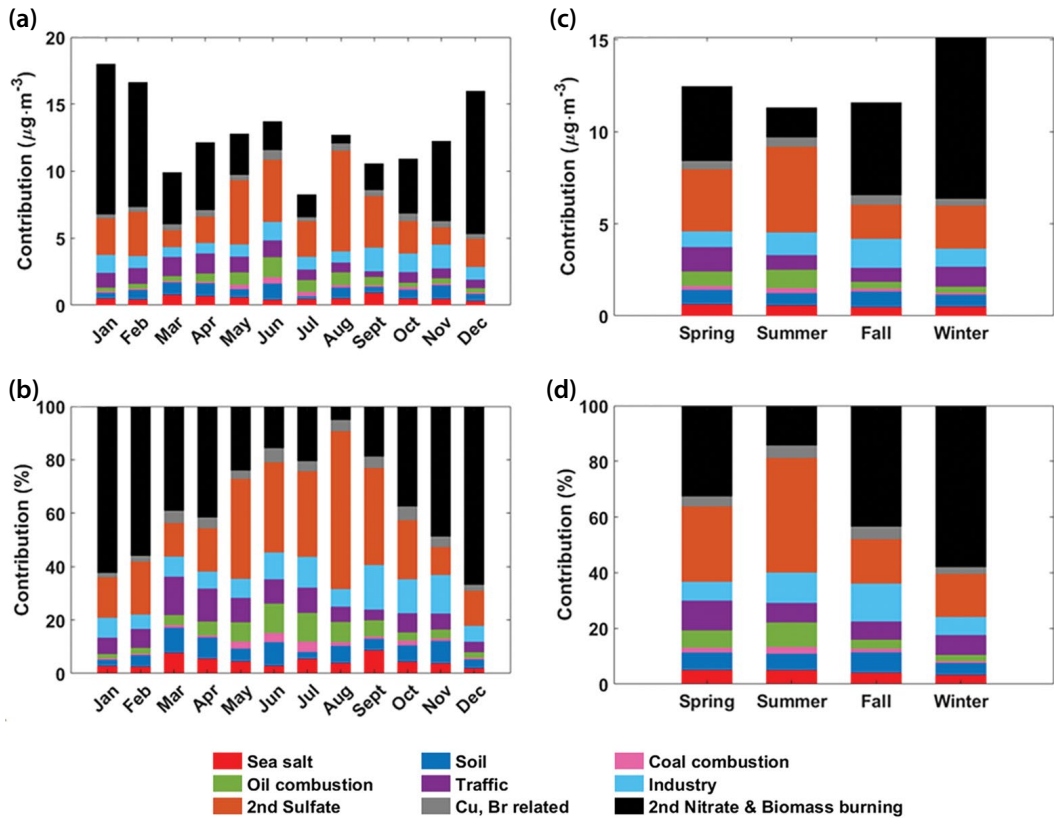


Fig. 4. Monthly & Seasonal contributions of apportioned sources to the PM_{2.5} concentrations in the Southeastern district of air quality in 2020 (unit of a & c: mass concentrations, b & d: percent concentrations).

연소 관련 오염원(1.4%)으로 판별되었다.

전반적인 오염원의 기여도는 이차생성 질산염과 황산염을 제외하고는 계절에 따라 비교적 일정하게 유지되는 경향을 보였다(표 5). 이차생성 질산염은 가스상과 입자상에 대한 열역학적 평형이 온도에 민감하게 반응하기 때문에 온도가 높은 여름에는 주로 가스상으로 존재하여 PM_{2.5}의 질산염 비중이 낮아지고 온도가 낮은 겨울에는 입자상 질산염의 비중이 급격하게 증가하는 경향을 나타낸다(Seinfeld and Pandis, 2016; Belis *et al.*, 2013; McMurry *et al.*, 2004). 이에 반해 황산염은 온도에 상관없이 휘발성이 낮아 대부분 입자상으로 존재하기 때문에(Seinfeld and Pandis, 2016) 여름에는 황산염의 비중이 질산염에 비해 커지지만 겨울에는 질산염의 비중이 가장 높은 특성을 보

여준다. 이러한 계절적 특성은 본 연구에서 분류된 오염원의 계절적 변동에서도 잘 나타난다(그림 4).

오염원별로 프로파일 특성과 계절적 변동성을 세부적으로 살펴보면, 먼저 이차생성 질산염과 생물연소 오염원(Factor 9)은 재구축한 오염원 분류표 상의 NO₃⁻와 NH₄⁺ 기여도(각각 90.3% 및 53.8%)가 높은 이차생성 질산염 오염원과 K, EC, OC, Cl⁻의 기여도(각각 43.3%, 35.0%, 25.5%, 24.4%)가 높은 생물연소 관련 오염원의 특성을 함께 보여주었다(그림 2의 마지막과 끝에서 2번째 프로파일). 오염원 개수의 조정을 통하여 이차생성 질산염과 생물연소 오염원을 분리하고자 하였으나 분리되지 않았다. 이차 질산염은 대기로 배출된 NO_x가 산화과정을 거치면서 NH₃와 결합하여 NH₄NO₃와 같은 질산염 형태로 존재하는

것이 주요한 생성기작이다. 앞에서 설명한 것과 같이 온도에 따라 열역학 평형상수가 영향을 받아 여름에는 기여도가 낮고 상대적으로 기온이 감소하는 겨울철에 기여도가 커지는 전형적인 계절적 변동성을 나타내었다(그림 4). 생물연소 오염원은 대표적인 마커 성분인 K와 농업 폐기물 연소 시 발생하는 OC, EC, Cl⁻ 등이 주요 구성성분으로 알려져 있으며(Cheng *et al.*, 2014; Harrison *et al.*, 2012; Zhang *et al.*, 2010, EPA profile 42320), 한국에서는 추수 이후 빈번하게 이루어지는 불법 노천소각 등의 영향으로 겨울철에 높은 기여도가 나타난다(Hwang *et al.*, 2020). 따라서 두 오염원의 시간적 변동 패턴이 유사하여 하나의 오염원으로 작용하였을 것으로 판단된다. 여름 기간에만 따로 모델링을 수행하였을 때는 생물연소와 이차생성 질산염이 분리된 것이 이를 뒷받침한다(본문에서는 그림 생략).

이차생성 황산염(그림 2의 Factor 7)은 SO₄²⁻와 NH₄⁺(각각 71.6% 및 41.3%) 등이 주요 성분으로 나타났고 재구축한 오염원 분류표의 이차생성 황산염 프로파일과도 일치하였다. 이차생성 황산염은 여름의 평균 기여도가 41.1%로 특히 높았으며 이는 앞에서 언급한 것처럼 전형적인 이차생성 황산염의 계절적 특성이다. 이차생성 황산염은 기체상의 균질반응과 가스상과 액상이 포함된 이질반응을 포함한 다양한 산화반응을 통해 생성되기 때문에 정확한 원인을 제시하기는 어려우나(Seinfeld and Pandis, 2016; Wang *et al.*, 2005), 기체상의 균질반응은 연료 연소를 통해 대기 중에 배출된 SO₂가 산화과정을 거친 후 NH₃와 결합하여 (NH₄)₃H(SO₄)₂, (NH₄)₂SO₄와 같은 황산염 형태로 존재하게 된다. SO₂의 기체상 산화과정은 수 일정도의 시간규모로 천천히 발생하기 때문에(Seinfeld and Pandis, 2016), 많은 경우 이차생성 황산염은 장거리 수송 및 노화된 공기 껍과 연관이 있는 것으로 알려져 있다(Almeida *et al.*, 2020; Manoussakas *et al.*, 2017; Seinfeld and Pandis, 2016). 또한 여름철 활발한 광화학 과정이 OH라디칼을 증가시켜서 효율적인 산화반응 및 입자로의 전환을 야기하기 때

문에 계절적으로 여름철에 황산염의 기여도가 증가하는 특징을 보인다(Kim and Hopke, 2004; Chan *et al.*, 1999). 본 연구의 이차생성 황산염 오염원의 월별 및 계절별 기여도 분포에서도 이러한 특징이 잘 나타났다. 7월의 이차생성 황산염 오염원의 농도 및 기여도 감소는 장마에 의한 지속적인 강우에 기인한 것으로 보인다(Timmerman *et al.*, 2020). 특히, 8월에 황산염 기여도 및 농도가 급격하게 증가한 후(전월 대비 약 1.85배), 9월에 다시 크게 감소한 현상은(그림 4a) 2020년 이례적으로 길었던 장마로 인하여(6월 중순~8월 중순) 2020년 7월 및 8월의 총 강우량(822 mm)이 예년 대비 146%로 증가하였고, 강우일수 또한 약 일주일 증가한 영향으로 보인다(Kim *et al.*, 2020). 계절적 변동성 이외에도 8월에는 2020년 6월 12일 분화하기 시작한 일본 니시노시마 화산의 영향으로 일시적인 고농도가 관측되었음이 제시된 바 있다(NIER, 2021b).

연평균 PM_{2.5} 농도에 3번째로 큰 기여도(8.8%)를 나타낸 Factor 6는 Cr, Mn, Fe을 주요 성분(각각 75.0%, 65.7%, 47.1%)으로 하고 Cu와 Zn도 기여도가 큰 특징을 보여, 재구축한 오염원 분류표의 산업 관련 프로파일과 일치하였다. 영남권 대기환경연구소 인근에는 자동차 및 조선 공업과 석유정제 등 중화학 공업단지가 위치하여 금속원소(Cr, Mn, Fe, Cu)의 비중이 큰 산업단지가 주원인으로 작용했을 것으로 사료된다. 계절별 기여도는 가을(13.66%)과 여름(10.93%)이 봄(6.82%)과 겨울(6.52%)보다 컸는데, 이는 오염원이 풍상에 위치한 계절적으로 우세한 풍계에 기인하였을 것으로 보인다. Factor 5는 연평균 기여도가 4번째로 컸고(7.5%), Si, EC, OC 등이 주요 성분으로 구성되었다(각각 71.7%, 30.8%, 26.4%). 차량 관련 오염원은 여러 종류의 차량에서 발생하는 배기 및 비배기 오염물질을 포함하며, 일반적으로 배기연소와 관련된 탄소질 화합물(EC와 OC)과 브레이크 및 타이어의 물리적 마모로 인한 미량원소(Zn, Pb, Cu, Ba)와 지각종(Si, Al, Ca, Fe, Mn, Ti 등)이 포함되는 것으로 알려져 있어(Almeida *et al.*, 2020), 본 연구

의 Factor 5와 일치하는 특성을 보인다. 차량 관련 오염원의 계절별 기여도는 봄(10.67%) > 겨울(7.13%) > 여름(7.00%) > 가을(6.54%) 순으로 나타났다. 주요 기여도를 가지는 타 오염원에 비해 계절별 차이가 적어 국지적으로 꾸준히 발생하는 특성에 영향을 받은 것으로 판단된다.

토양 관련 발생원으로 결정된 Factor 2는 Ca와 Ti 등의 지각성분이 가장 많은 기여를 하는 재구축된 오염원 분류표의 토양 발생원과 일치하였고 연평균 기여도는 전체 PM_{2.5} 농도의 5.5%를 차지하여 5번째로 큰 기여도를 나타내었다. 토양 발생원은 일반적으로 국내 황사의 빈도가 증가하는 봄철에 기여도가 증가하는데(Hwang *et al.*, 2020), 본 연구의 계절별 평균 기여도에서도 봄철이(6.32%) 겨울철(4.3%)에 비해 약 1.5배 높은 기여도를 보였다. 또한, 국립기상과학원이 발행한 황사 보고서에 따르면 2020년 국내 황사 관측 7회 중, 봄철 3회, 여름철 1회, 가을철 2회, 겨울철 1회로 보고되어 국내 토양 관련 발생원의 특성이 반영된 것으로 판단된다(NIMS, 2021). 이와 유사한 기여도를 보인 자연적 발생원은 해염이었고 연평균 PM_{2.5}의 4.1%를 차지하였다(Factor 1). 이 발생원은 Na⁺와 Cl⁻이 주요 구성 성분으로(각각 71.4%와 68.5%) 재구축 오염원 분류표의 해염 관련 발생원과 일치하였다. 해염 발생원의 계절별 분포는 북서풍이 우세하여 해양의 영향이 줄어드는 가을과 겨울에 기여도가 감소하고 해양으로부터의 계절풍이 강한 여름에 증가하여 해염 관련 발생원의 특성을 반영하는 것으로 나타났다.

연간 PM_{2.5} 농도에 토양 및 해염과 유사한 정도로 기여를 하는 Factor 4(4.7%; 그림 2)는 Ni과 V이 가장 많이 기여하면서(각각 73.9%와 73.5%), 재구축 오염원 분류표의 석유연소 관련 오염원과 일치하였다. 계절별 기여도는 여름(8.83%) > 봄(6.24%) > 가을(3.22%) > 겨울(2.28%) 순으로 나타났다. 측정지점에서 약 10 km 떨어진 곳에 울산항과 미포항 등의 항만과 석유화학공업단지를 포함한 울산미포국가산업단지 위치하고 있는데(그림 5a), 여름철에 남풍 계열

의 계절풍이 우세한 영향으로 항만 및 공단에서 발생한 석유연소(선박배출)의 영향을 받은 것으로 사료된다. 실제로 풍향별 고농도 분포 특성을 보여주어서 잠재적인 국지적 오염원의 위치를 지시하는 CPF(Conditional Probability Function) 결과는(그림 5b) 울산미포국가산업단지와 울산항 등의 항만이 풍상에 위치하는 조건에서 관련 오염원들의 고농도가 집중되어 있음을 보여준다(이차생성 황산염, 석탄연소, 산업배출, 석유연소(선박배출) 등). 이차생성 질산염은 북서풍으로부터 고농도가 출현했으며 이는 주로 겨울철 한국 내륙과 중국 동부에서 발생원을 가지는 PSCF(Potential Source Contribution Function)의 결과와 일치한다(Heo *et al.*, 2019; Jo *et al.*, 2018).

마지막으로 전체 기간의 PM_{2.5} 농도에 가장 낮은 기여도를 보인(1.4%) Factor 3는 석탄연소 오염원으로 판단하였다(그림 2). Factor 3 오염원은 As와 Pb 등이 높은 기여율(89.4% 및 62.4%)을 보였고 이는 재구축 오염원 분류표의 석탄연소 관련 오염원과 유사하였다. 석탄연소 오염원은 타계절에 비해 여름철에 우세한 특징을 보였는데, 이는 여름철 냉방기 가동을 위한 전기 수요가 급증함에 따라서 화력발전소의 가동률 증가가 주원인으로 사료된다. CPF 결과도 영남권 대기환경연구소를 기준으로 영남화력발전소(울산광역시 중구 남화동 인근)가 위치한 남쪽과 남동쪽 방향에서 고농도 유입이 많은 것으로 나타나 이를 뒷받침한다(그림 5b).

3.3 동남권 PM_{2.5} 오염원 기여도 변동

본 연구에서 획득한 2020년 영남권 PM_{2.5}의 오염원 기여도와 선행연구(CPAPH, 2020)에서 PMF를 이용하여 제시한 2016년 영남권 PM_{2.5}의 오염원 기여도를 비교하였다(그림 6). 선행연구에서 확인된 영남권 PM_{2.5}오염원은 이차생성 질산염(26%), 이차생성 황산염(24%), 해양입자(13%), 석탄연소 1(10%), 선박배출(7%), 차량배출(4%), 지각 물질(4%), 생물연소(4%), 석탄연소 2(1%), 도로 먼지(4%), 철강산업(3%)으로 총 11개의 오염원이 나타났다. 두 결과에서

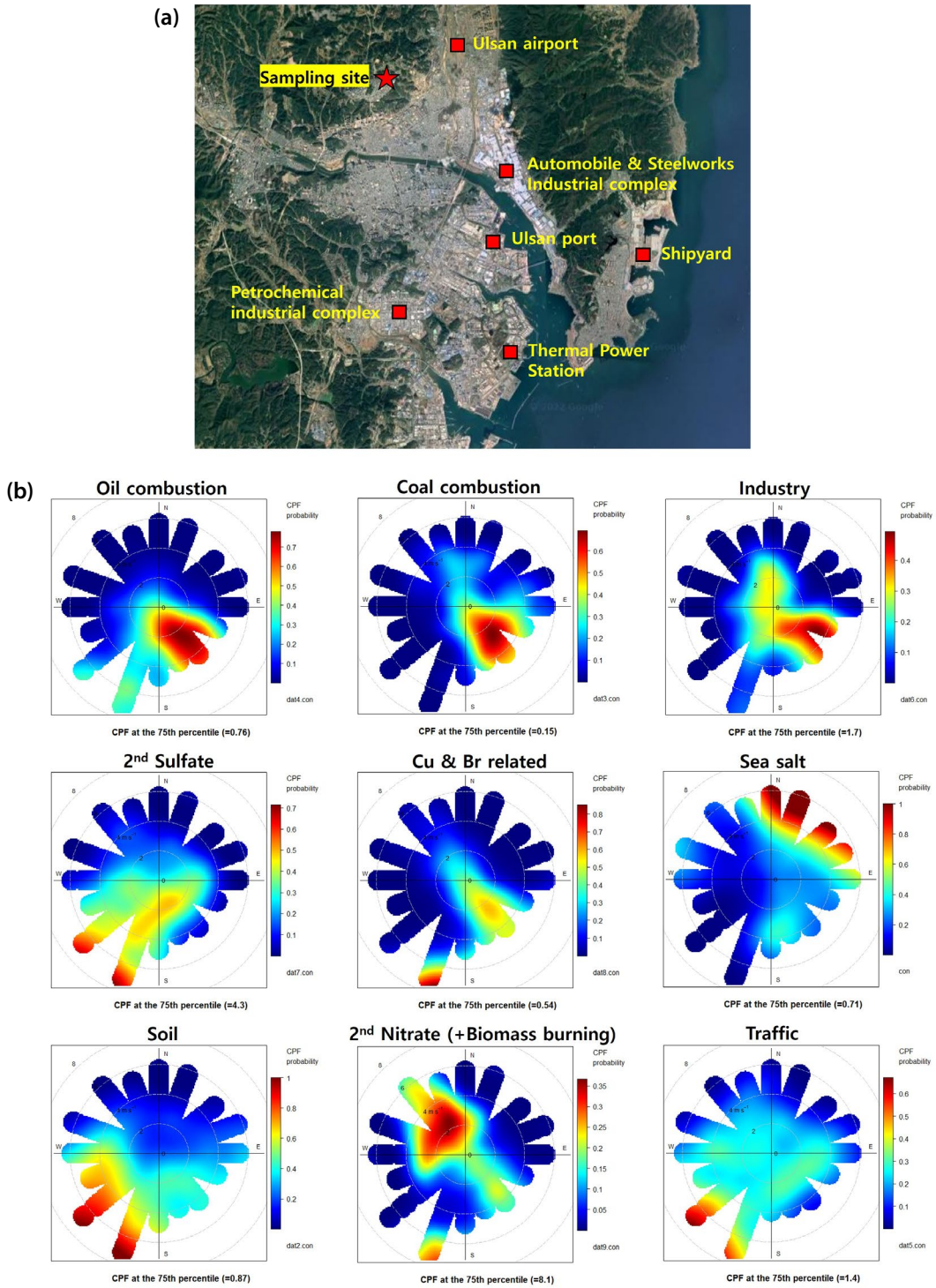


Fig. 5. (a) Map of locations of potential PM_{2.5} and precursors sources. (b) A CPF (Conditional Probability Function) plot for factors in Yeongnam region in 2020 (Calculated based on top 25% contribution).

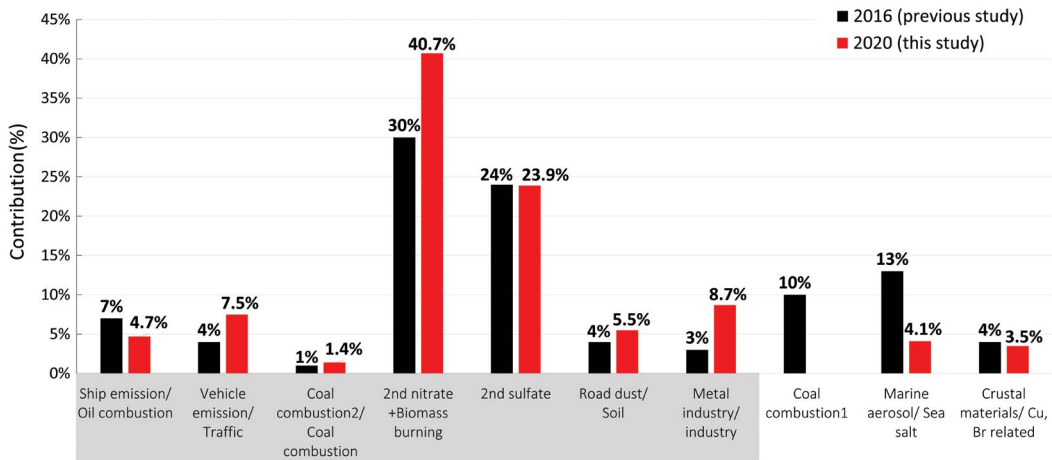


Fig. 6. Comparison of PMF modeling results at Yeongnam Supersite (black bar (previous study) vs. red bar (this study)).

공통적으로 나타난 오염원의 기여도는 2020년에 이차생성 황산염과 석유연소(선박배출) 오염원은 소폭 감소하였으며(각각 -0.1%와 -2.3%) 이차생성 질산염(생물연소포함), 산업, 차량, 토양, 석탄연소 2 오염원은 증가하였다(각각 10.7%, 5.7%, 3.5%, 1.5%, 0.4%). 선행연구의 석탄연소 1 오염원은 본 연구 결과에서는 구분되지 않았으나 이것이 2020년 COVID-19 팬데믹으로 인한 사회경제적 활동 제약에 기인한 것인지 선행연구와 본 연구의 PMF 분석 방법의 차이에 기인한 것인지 현재로는 명확하지 않다. 그러나 이러한 한계점이 동일지역에서 보다 객관적이고 일반화할 수 있는 방법을 통한 지속적인 오염원 추적 연구의 필요성을 제시한다.

2016년 대비 이차생성 황산염과 석유연소(선박배출)의 기여도 감소는 2020년 1월부터 국제해사기구(International Maritime Organization, IMO)에서 황산화물(SO_x) 배출량 감소를 위하여 시행하는 대폭 강화된 선박 환경규제(IMO 2020, 황함유량 0.5% 이하의 선박연료유 사용 의무화)의 영향이 나타났을 가능성이 있다(Kwon, 2020).

또한 2020년에 이차생성 질산염 + 생물연소 오염원의 기여도는 크게 증가하였는데, 이것이 COVID-19 팬데믹으로 인한 사회경제적 변화에 기인한 2020

년만의 특성인지, 영남권 PM_{2.5}의 구성성분에서 질산염의 기여도가 증가하고 있는 추세인지 정확하게 판단하기 위해서는 과거의 장기적인 측정 결과에 기반한 자료해석을 통한 종합분석이 필요하다. 하지만 2018년과 2019년 겨울동안 전국적으로 나타난 PM_{2.5} 고농도 사례에 대한 연구 결과(Byun *et al.*, 2022), 모든 고농도 사례에서 백령도를 제외한 5개의 대기관리권역(수도권, 중부권, 호남권, 영남권, 제주도)의 PM_{2.5}는 질산염이 가장 높은 비율을 구성하고 있었다. 또한 영남권 PM_{2.5}를 구성하는 질산염의 비율이 2018년 사례(1건) 대비 2019년 사례(2건)에 최대 9% 증가한 것으로 나타났다. 이를 통하여 영남권의 PM_{2.5} 농도를 결정하는 주요 오염원 중, 질산염의 기여도가 높은 것은 명확한 것으로 사료된다.

4. 결론 및 요약

본 연구에서는 국내 PMF 모델의 취약점이었던 오염원 결정과정의 불확실성을 줄이는 방법으로 과거 검증과정을 거친 국내 선행연구들의 PM_{2.5} 오염원분류표의 리뷰를 통해 재구성함으로써 평균 오염원분류표를 작성하였다. 이를 영남권 대기환경연구소의

PM_{2.5} 및 구성성분 자료를 이용한 PMF 모델링에 적용하여 2020년 영남권의 오염원 확인 및 기여도 추정을 수행하였다.

국내지역을 대상으로 PMF가 수행된 9개 선행연구에서 91개의 오염원을 확인하였으며, 5회 이상 확인된 오염원을 각각 합산하여 구성성분별 평균 및 표준편차를 계산하였다. 최종적으로 이차생성 질산염, 이차생성 황산염, 산업 관련, 토양 관련, 차량 관련, 생물연소 관련, 도로먼지 관련, 석유연소 관련, 석탄연소 관련, 해염 관련 오염원 등 총 10개의 평균 오염원분류표를 작성하였다.

2020년 영남권 대기환경연구소에서 측정한 PM_{2.5} 성분자료 (1년)에 적용한 결과 9개의 오염원을 분리할 수 있었으며 1개(Cu 및 Br 관련 오염원)의 오염원을 제외하고 8개의 오염원(해염 오염원, 토양 오염원, 석탄연소 오염원, 석유 오염원, 차량 오염원, 산업 오염원, 이차생성 황산염 오염원, 이차생성 질산염 및 생물연소 오염원)을 성공적으로 식별할 수 있었다. 또한 두 오염원이 결합되어 나타난 경우에도 식별이 가능하였다(이차생성 질산염과 생물연소 오염원).

2020년 영남권 PM_{2.5}에 가장 많은 영향을 준 오염원은 이차생성 질산염 및 생물연소 오염원 ($5.29 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 40.71%)이었으며 이차생성 황산염 오염원 ($3.10 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 23.88%), 차량 오염원 ($0.98 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 7.54%) 순으로 기여도가 높았다. 계절별 기여도에서는 이차생성 질산염 및 생물연소 오염원이 여름을 제외하고 가장 높은 기여도(봄: 32.57%, 가을: 43.42%, 겨울: 57.96%)를 보였으며 여름에는 이차생성 황산염 오염원이 가장 높은 기여도(41.12%)를 차지하였다. 또한 2016년 대비 영남권에서 이차생성 질산염의 기여도가 크게 증가한 것으로(10.7%) 나타나 영남권의 이차생성 질산염 생성 원인에 대한 규명이 요구된다.

본 연구결과는 국내연구자들 사이에서 PMF 모델이 광범위하게 사용되고 있는 반면, 연구자에 따라 오염원 해석이 상이할 수 있다는 문제점에 대한 해결 방법으로써 PMF 모델링 과정 중 오염원 결정단계에서 참고할 수 있도록 통계적으로 객관성 있는 기준을

마련한 것에 의미가 있다. 또한 이를 바탕으로 2020년 영남권 PM_{2.5}의 오염원 확인 및 기여도를 산정한 결과는 대기질 관리 측면에서 질산염 관리의 중요성 및 생성기작 원인 규명의 필요성을 제시하였다. 이는 권역별 PM_{2.5}의 오염원 특성 연구에 유용하게 활용될 수 있으며, 더 나아가 지자체 및 정부의 대기질 개선을 위한 정책수립 방향에 도움을 줄 수 있을 것으로 기대된다.

감사의 글

이 논문은 과학기술정보통신부의 재원으로 한국연구재단-동북아-지역 연계 초미세먼지 대응 기술개발사업(2020M3G1A1115001)과 국립환경과학원 영남권 대기환경연구소의 지원(NIER-2021-03-03-001)을 받아 수행되었습니다.

References

- Almeida, S.M., Manousakas, M., Diapouli, E., Kertesz, Z., Samek, L., Hristova, E., Šega, K., Padilla Alvarez, R., Belis, C.A., Eleftheriadis, K. (2020) Ambient particulate matter source apportionment using receptor modelling in European and Central Asia urban areas, *Environmental Pollution*, 266, 115199. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2020.115199>
- Belis, C.A., Karagulian, F., Larsen, B.R., Hopke P.K. (2013) Critical review and meta-analysis of ambient particulate matter source apportionment using receptor models in Europe, *Atmospheric Environment*, 69, 94-108.
- Byun, M.H., Park, J.H., Han, S.B., Kim, D.G., Jung, D.H., Choi, W.S. (2022) Spatial Distributions of PM_{2.5} Concentrations, Chemical Constituents, and Acidity for PM_{2.5} Pollution Events and Their Potential Source Contribution: Based on Observations from a Nationwide Air Quality Monitoring Network for 2018-2019, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 38(4), 508-523, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2022.38.4.508>
- Center for Particulate Air Pollution and Health (CPAPH) (2020)

- Characteristics of PM_{2.5} by region: Emissions, Meteorology, Concentrations (accessed on Sep. 23, 2020).
- Chan, Y.C., Simpson, R.W., Mctainsh, G.H., Vowles, P.D., Cohen, D.D., Bailey, G.M. (1999) Source apportionment of PM_{2.5} and PM₁₀ aerosols in Brisbane (Australia) by receptor modelling, *Atmospheric Environment*, 33, 3251-3268.
- Cheng, Y., Engling, G., He, K.B., Duan, F.K., Du, Z.Y., Ma, Y.L., Liang, L.L., Lu, Z.F., Liu, J.M., Zheng, M., Weber, R.J. (2014) The characteristics of Beijing aerosol during two distinct episodes: Impacts of biomass burning and fireworks, *Environmental Pollution*, 185, 149-157. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2013.10.037>
- Cheong, J.P., Lee, S.H., Jang, Y.H. (2005) Development and Evaluation of Previous Studies of PSCF Model, *Proceeding of the 40th Meeting of Korean Society for Atmospheric Environment*, 121-123.
- Choi, W., Hu, S., He, M., Kozawa, K., Mara, S., Winer, A.M., Paulson, S.E. (2013) Neighborhood-scale air quality impacts of emissions from motor vehicles and aircraft, *Atmospheric Environment*, 80, 310-321. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.07.043>
- Harrison, R.M., Beddows, D.C.S., Hu, L., Yin, J. (2012) Comparison of methods for evaluation of wood smoke and estimation of UK ambient concentrations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(17), 8271-8283. <https://doi.org/10.5194/acp-12-8271-2012>
- Henry, R.C. (1997) History and fundamentals of multivariate air quality receptor models, *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 37(1), 37-42.
- Heo, J.B., Hopke, P.K., Yi, S.M. (2019) Source apportionment of PM_{2.5} in Seoul, Korea, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 4957-4971. <https://doi.org/10.5194/acp-9-4957-2009>, 2009
- Heo, J.W., Kim, H.J., Park, M.B. (2020) Application of PMF receptor model and Estimation of contribution of fine particle in Pocheon/Pyeongtaek, Gyeonggi-do Institute of Health and Environment (GIHE), 71-6410578-000056-01.
- Hopke, P.K. (2000) A guide to Positive Matrix Factorization, in *Workshop on UNMIX and PMF as applied to PM_{2.5}*, Edited by Willis, R. D., RTP, NC, EPA 600/A-00/048.
- Hwang, I.J. and Kim, D.S. (2013) Research trends of receptor models in Korea and foreign countries and improvement directions for air quality management, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment* 29(4), 459-476, (in Korean with English abstract). <https://www.dbpia.co.kr/Journal/PDFViewNew?id=NODE02230877>
- Hwang, I.J., Hopke, P.K. (2006) Comparison of source apportionments of fine particulate matter at two San Jose STN sites, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 56(9), 1287-1300. <https://www.tandfonline.com/doi/pdf/10.1080/10473289.2006.10464586>
- Hwang, I.J., Yi, S.M., Park, J.S. (2020) Estimation of source apportionment for filter-based PM_{2.5} data using the EPA-PMF model at air pollution monitoring super-sites, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 36(5), 620-632, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.5.620>
- International Agency for Research on Cancer (IARC) (2013) *Outdoor Air Pollution, IARC Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans, Vol 109*.
- Jeong, J.H., Shon, Z.H., Kang, M., Song, S.K., Kim, Y.K., Park, J., Kim, H. (2017) Comparison of source apportionment of PM_{2.5} using receptor models in the main hub port city of East Asia: Busan, *Atmospheric Environment*, 148, 115-127. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.10.055>
- Jo, G.G., Kim, D.W., Song, M.J. (2018) PM_{2.5} concentrations and chemical compositions in Jeonju from 2017 to 2018, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(6), 876-888, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2018.34.6.876>
- Kim, E., Hopke, P.K. (2004) Source apportionment of fine particles in Washington, DC, utilizing temperature resolved carbon fractions, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 54(7), 773-785. <https://doi.org/10.1080/10473289.2004.10470948>
- Kim, S., Kim, T.Y., Yi, S.M., Heo, J. (2018a) Source apportionment of PM_{2.5} using positive matrix factorization (PMF) at a rural site in Korea, *Journal of environmental management*, 214, 325-334. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2018.03.027>
- Kim, S.M., Kim, K.S., Hyun, S.S., Kim, J.H., Kim, M.C., Kim, B.J., Lee, K.H. (2018b) Chemical Composition and Source Apportionment of PM_{2.5} in Jeju City in 2017, *Journal of the Korea Society for Environmental Analysis*, 21(2), 61-70. <https://doi.org/10.1016/j.apr.2017.02.004>
- Kim, Y.T., Park, M.H., Kwon, H.H. (2020) Spatio-Temporal Summer Rainfall Pattern in 2020 from a Rainfall Frequency Perspective, *Journal of Korean Society Disaster and Security*, 13(4), 93-104, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.21729/ksds.2020.13.4.93>

- Kwon, S.I. (2020) The Domestic Regulations on Ship Emission, *Journal of the Korean Society of Automotive Engineers*, 42(6), 58-61.
- Lee, J.H., Yoshida, Y., Turpin, B.J., Hopke, P.K., Poirot, R.L., Liou, P.J., Oxley, J.C. (2002) Identification of sources contributing to mid-Atlantic regional aerosol, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 52(10), 1186-1205. <https://doi.org/10.1080/10473289.2002.10470850>
- Lee, Y.J., Park, M.K., Jung, S., Kim, S.J., Jo, M.R., Song, I.H., Lyu, Y.S., Lim, Y.J., Kim, J.H., Jung, H.J., Lee, S.U., Choi, W.J., Ahn, J.Y., Lee, M.H., Kang, H.J., Park, S.M., Seo, S.J., Jung, D.H., Hyun, J.K., Park, J.S., Hwang, T.K., Hong, Y.D., Hong, J.H., Shin, H.J. (2015) Characteristics of particulate carbon in the ambient air in the Korean Peninsula, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 31(4), 330-344, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5572/KOSAE.2015.31.4.330>
- Lim, J.H., Ahn, J.Y., Seo, S.J., Seo, Y.K., Hong, Y.D., Han, J.S. (2016) Source Identification and Apportionment of PM_{2.5} in Baengnyeong Island, Korea in 2015, *Journal of the Korean Society of Urban Environment*, 16(4), 461-471, (in Korean with English abstract). <https://www.earticle.net/Article/A301388>
- Lim, J.M., Lee, J.H., Moon, J.H., Chung, Y.S., Kim, K.H. (2010) Source apportionment of PM₁₀ at a small industrial area using Positive Matrix Factorization, *Atmospheric Research*, 95(1), 88-100. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2009.08.009>
- Manousakas, M., Papaefthymiou, H., Diapouli, E., Migliori, A., Karydas, A.G., Bogdanovic-Radovic, I., Eleftheriadis, K. (2017) Assessment of PM_{2.5} sources and their corresponding level of uncertainty in a coastal urban area using EPA PMF 5.0 enhanced diagnostics, *Science of the Total Environment*, 574, 155-164. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.09.047>
- McMurry, P.H., Shepherd, M.F., Vickery, J.S. (2004) *Particulate Matter Science for Policy Makers: a NARSTO Assessment*, 542, Cambridge University Press, ISBN-13: 9780521842877.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2013) The contribution assessment for the sources of roadside fine particles by a receptor model, NIER-SP2013-046.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2015) Annual report of air quality in Korea 2014, NIER-GP2015-087.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2017) An estimate of internal and external sources contributing to ambient particulate matter and a guideline on the application of air quality receptor models (II), NIER-SP2016-422.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2021a) Establishment of guidelines for the PMF modeling and applications, NIER-SP2020-273.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2021b) 2020 Annual Report of Intensive Air Quality Monitoring Station, NIER-GP2021-113.
- National Institute of Meteorological Sciences (NIMS) (2021) 2020 Yellow Dust Report, ISSN-2765-6071.
- Paatero, P., Hopke, P.K. (2003) Discarding or down weighting high-noise variables in factor analytic models, *Analytica Chimica Acta*, 490, 277-289. <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S000326700216434>
- Paatero, P., Tapper, U. (1994) Positive matrix factorization: A non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values, *Environmetrics*, 5(2), 111-126. <https://doi.org/10.1002/env.3170050203>
- Paatero, P., Eberly, S., Brown, S.G., Norris, G.A. (2014) Methods for estimating uncertainty in factor analytic solutions, *Atmospheric Measurement Techniques*, 7(3), 781-797. <https://doi.org/10.5194/amt-7-781-2014>
- Paatero, P., Hopke, P.K., Begum, B.A., Biswas, S.K. (2005) A Graphical Diagnostic Method for Assessing the Rotation in Factor Analytical Models of Atmospheric Pollution, *Atmospheric Environment*, 39(1), 193-201. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2004.08.018>
- Park, J., Park, J., Chae, Y. (2020) Attributable Mortality Risk Comparison of National Warning System Criteria: Focusing on Heat-Wave and Particulate Matter, *Journal of Environmental Policy and Administration*, 28(4), 147-179. <https://doi.org/10.15301/jepa.2020.28.4.147>
- Park, J.H., Park, B.H., Kim, S.H., Yang, Y.C., Lee, K.W., Bae, S.J., Song, H.M. (2021) Estimation of contribution by pollutant source of VOCs in industrial complexes of Gwangju using receptor model (PMF), *Journal of Environmental Science International*, 30(3), 219-234, (in Korean with English abstract). <https://doi.org/10.5322/JESI.2021.30.3.219>
- Park, S.S. (2001) A combined methodology for estimating atmospheric aerosol sources using PM_{2.5} particles and PAH compounds, Doctoral dissertation, Kwangju Institute of Science and Technology, 115.
- Polissar, A.V., Hopke, P.K., Paatero, P., Malm, W.C., Sisler, J.F. (1998) Atmospheric aerosol over Alaska: 2. Elemental composition and sources, *Journal of Geophysical Research*

- earch: Atmospheres, 103(D15), 19045-19057. <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1029/98JD01212>
- Polissar, A.V., Hopke, P.K., Poirot, R.L. (2001), Atmospheric aerosol over Vermont: chemical composition and sources, *Environmental Science & Technology*, 35(23), 4604-4621. <https://pubs.acs.org/doi/full/10.1021/es0105865>
- Reff, A., Eberly, S.I., Bhavne, P.V. (2007) Receptor modeling of ambient particulate matter data using positive matrix factorization: review of existing methods, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 57(2), 146-154. <https://doi.org/10.1080/10473289.2007.10465319>
- Seinfeld, J.H., Pandis, S.N. (2016) *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*, John Wiley & Sons. Hoboken.
- Song, X.H., Polissar, A.V., Hopke, P.K. (2001) Sources of fine particle composition in the northeastern US, *Atmospheric Environment*, 35(31), 5277-5286. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(01\)00338-7](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(01)00338-7)
- Sternbeck, J., Sjödin, Å., Andréasson, K. (2002) Metal emissions from road traffic and the influence of resuspension-results from two tunnel studies, *Atmospheric Environment*, 36, 4735-4744. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(02\)00561-7](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(02)00561-7)
- Sung, M.Y., Moon, K.J., Park, J.S., Kim, H.J., Jeon, H.E., Choi, J.S., Ahn, J.Y., Hong, Y.D. (2017) Chemical Composition and Source Apportionment using the PMF Model of the Ambient PM_{2.5} in 2013 over Korea, *Journal of the Korean Society of Urban Environment*, 17(2), 145-156, (in Korean with English abstract). <https://www.earticle.net/Article/A311377>
- Timmerman, A., Lee, J.Y., Ha, K.J., Yun, J.H., Bódai, T., Moon, S.Y., Kim, I.W., Lee, S.S. (2020) The strong rainy season on the Korean Peninsula in 2020: Is global warming the main cause?, IBS Center for Climate Physics, Pusan University, Busan. https://www.ibs.re.kr/cop/bbs/BBSMSTR_00000000735/selectBoardArticle.do?nttlid=19049
- U.S. Environmental Protection Agency (US EPA) (2014) Positive Matrix Factorization (PMF) 5.0 Fundamentals and User Guide, USEPA. https://www.epa.gov/sites/production/files/201502/documents/pmf_5.0_user_guide.pdf
- Wang, M., Zhu, T., Zheng, J., Zhang, R.Y., Zhang, S.Q., Xie, X.X., Han, Y.Q., Li, Y. (2009a) Use of a mobile laboratory to evaluate changes in on-road air pollutants during the Beijing 2008 Summer Olympics, *Atmospheric Environment*, 43(2009), 4535-4543. <https://doi.org/10.5194/acp-9-8247-2009>
- Wang, X., Westerdahl, D., Chen, L.C., Wu, Y., Hao, J.M., Pan, X.C., Guo, X.B., Zhang, K.M. (2009b) Evaluating the air quality impacts of the 2008 Beijing Olympic Games: on-road emission factors and black carbon profiles, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(2009), 8247-8263. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2009.06.054>
- Wang, Y., Zhuang, G., Tang, A., Yuan, H., Sun, Y., Chen, S., Zheng, A. (2005) The ion chemistry and the source of PM_{2.5} aerosol in Beijing, *Atmospheric Environment*, 39, 3771-3784.
- Watson, J.G., Chow, J.C. (2004) Receptor models for airquality management, *The Magazine for Environmental Managers*, October 2004, 15-24.
- Watson, J.G., Chen, A.L.W., Chow, J.C., Doraiswamy, P., Lowenthal, D.H. (2008) Source apportionment: findings from the US supersites program, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 58(2), 265-288. <https://doi.org/10.3155/1047-3289.58.2.265>
- World Health Organization (WHO) (2021) Ambient (outdoor) air pollution. [https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/ambient-\(outdoor\)-air-quality-and-health](https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/ambient-(outdoor)-air-quality-and-health) (Accessed on 22 September 2021).
- Yi, S.M., Hwang, I.J. (2014) Source Identification and Estimation of Source Apportionment for Ambient PM₁₀ in Seoul, Korea, *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 8(3), 115-125. <https://doi.org/10.5572/ajae.2014.8.3.115>
- Yu, G.H., Park, S.S. (2021) Chemical characterization and source apportionment of PM_{2.5} at an urban site in Gwangju, Korea, *Atmospheric Pollution Research*, 12(6), 101-092. <https://doi.org/10.1016/j.apr.2021.101092>
- Zhang, X., Hecobian, A., Zheng, M., Frank, N.H., Weber, R.J. (2010) Biomass burning impact on PM_{2.5} over the southeastern US during 2007: integrating chemically speciated FRM filter measurements, MODIS fire counts and PMF analysis, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(14), 6839-6853. <https://doi.org/10.5194/acp-10-6839-2010>

Authors Information

박재훈(부경대학교 지구환경시스템과학부 환경대기과학 전공 석사과정) (jhpark0812@pukyong.ac.kr)

박용미(부경대학교 지구환경시스템과학부 환경대기과학 전공 박사과정) (ygm23@pukyong.ac.kr)

한수빈(부경대학교 지구환경시스템과학부 환경대기과학 전공

- 박사과정) (sbhan@pukyong.ac.kr)
- 변명화(부경대학교 지구환경시스템과학부 환경대기과학 전공 석사과정) (bmh3901@pukyong.ac.kr)
- 이태훈(부경대학교 지구환경시스템과학부 환경대기과학 전공 석사과정) (lth8315@pukyong.ac.kr)
- 손윤석(부경대학교 지구환경시스템과학부 환경공학 전공 부교수) (sonys@pknu.ac.kr)
- 이그림(국립환경과학원 대기환경연구과 연구원) (greemlee@korea.kr)
- 강현정(국립환경과학원 대기환경연구과 연구원) (humble@korea.kr)
- 김효선(국립환경과학원 대기환경연구과 연구원) (hskim127@korea.kr)
- 박대용(국립환경과학원 대기환경연구과 연구원) (dypark0228@korea.kr)
- 최원식(부경대학교 지구환경시스템과학부 환경대기과학 전공 부교수) (wschoi@pknu.ac.kr)