

Journal of Korean Society for Atmospheric Environment Vol. 39, No. 5, October 2023, pp. 661-674 https://doi.org/10.5572/KOSAE.2023.39.5.661 p-ISSN 1598-7132, e-ISSN 2383-5346

창립 40주년 기념 특집호



CMB 모델을 이용한 새만금 지역의 PM_{2.5} 오염원 기여도 추정 Estimation of Source Apportionment for PM_{2.5} Data of Saemangeum Area Using the CMB Model

황인조*, 송지한¹⁾

대구대학교 지구과학교육과, ¹⁾온앤아이(주)

InJo Hwang*, Jihan Song¹⁾

Department of Earth Science Education, Daegu University, Gyeongsan, Republic of Korea ¹⁾R&D Center, On&I, Incheon, Republic of Korea

접수일 2023년 6월 27	일
수정일 2023년 8월 10	일
채택일 2023년 8월 21	일

Received 27 June 2023 Revised 10 August 2023 Accepted 21 August 2023

*Corresponding author Tel : +82-(0)53-850-6695 E-mail : ihwang@daegu.ac.kr

Abstract The purpose of this study was to estimate the source apportionment of $PM_{2.5}$ using the CMB model, one of the receptor models, using $PM_{2.5}$ data collected at Saemangeum and surrounding areas from May 2020 to April 2021. Also, in order to obtain optimal modeling result, various combinations of source profiles and analyzed species were used as modeling input data. The $PM_{2.5}$ source in the study area was suggested to have 10 sources such as soil, biomass burning, agricultural burning, gasoline, diesel, seasalt, combustion, industry, ammonium sulfate, and ammonium nitrate, and each source profile were developed. In this study, the average mass in study areas was apportioned to ammonium nitrate (33.2%), ammonium sulfate (24.1%), soil (11.1%), biomass burning (9.7%), and agricultural burning (9.3%). Among the $PM_{2.5}$ sources in the study area, the Saemangeum origin source can be considered as a soil, biomass burning, and the average contribution of the those sources was estimated as 30.1%. These results suggests the possible role for the establish effective emissions reduction strategies of $PM_{2.5}$ in the Saemangeum area.

Key words: CMB model, PM_{2.5}, Saemangeum, Source apportionment

1. 서 론

새만금 개발사업은 우리나라의 서해안 간척을 위한 대규모 국책 토목사업으로 1991년부터 시작하여 전 북의 부안군 변산반도부터 군산시 비응도까지 세계 최장의 약 33.9 km의 방조제가 건설되었다. 방조제 안 쪽의 갯벌은 총면적 약 409 km²의 간척토지(291 km²) 와 호수(118 km²)로서, 농공단지, 신재생에너지 단지, 첨단 산업단지, 관광레저 단지, 환경생태 단지 등의 조 성을 위해 도로공사, 배수로 공사, 구획별 기반공사 등 이 진행되고 있다(SDIA, 2022, https://www.saemangeum.go.kr; Hwang *et al.*, 2008).

그러나 새만금 개발사업의 주변지역은 각종 개발공

사 과정의 매립토에 의한 비산먼지로 각종 민원이 발 생하고 있으며 전북지역의 상대적으로 높은 미세먼지 발생원인 중 하나로 새만금 지역이 주목되고 있는 실 정이다 (Hong *et al.*, 2021). 즉, 간척지의 많은 부분이 대기에 노출되면서 지표면이 건조해지고 식생이 부족 하여 비산먼지의 발생 가능성이 높아진 상황이다 (Hwang *et al.*, 2009). 새만금 개발사업이 착공된 지 30 년 이상이 되면서 습지가 육지로 변화되는 육화현상 에 의해 발생되는 미세먼지의 영향이 심해지면서 새 만금 지역의 고농도 미세먼지의 발생이 빈번해지는 것으로 추정된다 (Hwang *et al.*, 2009). 또한 해안가에 인접한 새만금 간척지는 해풍 (sea breeze)과 육풍 (land breeze) 영향과 계절에 따라 바람의 방향이 크게 바뀌 는 계절풍(monsoon)의 영향을 받아 미세먼지가 내륙 방향으로 이동되는 것으로 판단되며 특히, 봄철에 는 강한 편서풍을 타고 내륙으로 이동하면서 고농도 의 미세먼지 발생이 빈번한 것으로 추정된다(Hwang *et al.*, 2009).

2019년 12월 기준 새만금 사업지구의 육화 비율은 약 46.4%이며 이 중에서 비산먼지의 발생 가능성이 높은 나대지의 비율은 약 14.2% 로서 비산먼지 발생 을 저감할 수 있는 관리대책이 필요하다 (Lee et al., 2022). 이에 따라 전북지방환경청은 새만금 지구 내 비산먼지 저감 및 관리강화를 위해 2021년 11월 10일 '새만금 지구 개발사업 비산먼지 저감대책 협의체'를 구성하여 운영하고 있다(MOE, 2021). 참고로 전북지 역의 2020년 PM₁₀ 평균농도는 33 μg/m³로서 전국 17 개 시도에서 여덟 번째로 높은 농도를 나타내었으며, PM_{2.5}의 경우는 20 μg/m³로서 전국에서 다섯 번째로 높은 농도(2017년에는 28 µg/m³로 전국에서 가장 높 은 농도를 나타냄)를 나타내는 것으로 보고되었다 (NIER, 2021). 그러나 2019년 국가 대기오염물질 배출 량 통계에 의하면 전북지역의 TSP, PM10, PM2.5의 배 출량 비율은 우리나라 전체 배출량의 5.9%, 5.2%, 그 리고 4.1%를 차지하는 것으로 조사되었다(NAIR, 2022). 또한 2019년 전북의 배출원별 대기오염물질 배 출량 현황에서 TSP의 경우는 28,584.3톤이 배출되었 으며 비산먼지 배출원에서 24,208.4톤(84.7%), 생물성 연소 배출원에서 2898.1톤(10.1%)으로, 두 개의 배출 원에서 TSP의 약 95%가 배출되었다. PM10의 경우는 10,869.4톤이 배출되었으며 비산먼지 배출원에서 8,172.9톤(75.2%), 생물성 연소 배출원에서 1287.5톤 (11.8%)으로, 두 개의 배출원에서 PM10의 약 87%가 배출되었다. 또한 PM2.5의 경우는 2019년에 3,626.6톤 이 배출되었으며 비산먼지 배출원에서 1,319.6톤 (36.4%), 생물성 연소 배출원에서 1046.8톤(29.9%), 비 도로 이동 오염원에서 680톤(18.8%) 배출 등으로 이 들 배출원에서 PM, 5의 약 85%가 배출된 것으로 보고 되었다(NAIR, 2022). 즉, 전북지역의 먼지(TSP, PM10, PM2.5 등) 배출은 비산먼지, 생물성 연소, 그리고 비도

로 이동 오염원 등에서 주로 배출되고 있다.

전술한 바와 같이 전북지역의 높은 미세먼지 배출 량 및 농도경향과 새만금 지역의 육지화 및 개발과의 관련성을 파악하고 미세먼지 발생 저감대책을 수립하 기 위해서는 개발이 지금도 진행되고 있는 새만금 지 역의 미세먼지 및 원인물질의 발생특성과 오염물질의 특성을 규명할 필요가 있다. 따라서 본 연구에서는 새 만금을 비롯한 주변 지역에서 측정한 PM2.5 자료를 이 용하여 PM_{2.5}를 배출하는 각 오염원의 기여도를 수용 모델 중 화학질량 수지법(chemical mass balance; CMB) 모델을 이용하여 추정하고자 하였다. 특히, 입 력되는 오염원분류표 및 분석 항목 등의 조합에 따른 최적의 모델링 결과를 도출하고자 하였다. 다양한 수 용모델 중에서 CMB 모델의 경우는 오염원분류표가 확보된 경우에 용이하기 때문에 본 연구에서는 각 오 염원의 오염원분류표를 확보하고 CMB 모델을 사용 하였다.

2. 실험 방법

2.1 PM_{2.5} 시료의 채취 및 분석 방법

대기 중 PM_{2.5} 시료는 총 3개 지점에서 채취하였다. 즉, 새만금 관련 PM_{2.5} 발생지역으로 계화도 시험지 (그림 1의 파란색), PM_{2.5}의 영향을 받을 것으로 예상 되는 영향지역으로 부안군 행안면 옥상(그림 1의 초 록색), 그리고 배경지역으로 장자도(그림 1의 빨간색) 등과 같은 3곳에서 시료를 채취하였다. 계화도 시험지 의 경우는 주변이 모두 전답으로 구성되어 있으며, 새 만금 간척지와는 약 4km 정도 떨어져 위치하고 있다. 부안군 행안면 옥상(농업기술센터)은 바로 옆으로 23 번 국도가 지나고 동쪽으로는 부안군 시내가 위치해 있으며, 계화도 시험지 장소와는 약 6km 정도 떨어져 있다. 또한 장자도는 군산 남서쪽 35 km 정도에 위치 해 있는 고군산군도의 한 섬이다(그림 1).

PM_{2.5} 시료는 2020년 5월부터 2021년 4월까지 총 4 차례(1차: 2020년 5월 20일~2020년 6월 12일; 2차:

663



Fig. 1. Location of the sampling area (www.nsdi.go.kr).

2020년 9월 13일~2020년 10월 8일; 3차: 2020년 12월 4일~2020년 12월 23일; 4차: 2021년 3월 13일~2021년 4월 2일) 측정하였다. 측정기간 동안의 총 시료는 총 154개이다. 시료의 채취는 16.7 L/min의 유량을 갖는 PM_{2.5} 채취기 (KMS-4200, Kemik CO)를 이용하여 24 시간 동안 채취하였다.

PM_{2.5}의 질량농도, 무기원소 및 이온성분 분석을 위 하여 Teflon 여지(47 mm, 2.0 μm, Pall CO., USA)를, 원 소탄소 및 유기탄소 분석을 위하여 석영 여지(47 mm, Whatman Inc, UK)를 사용하였다. 무기원소 분석을 위 하여 Teflon 여지에 중금속 측정용 61% 질산 7 mL와 염산 3 mL를 가하고 microwave 오븐을 이용하여 총 20분간 시료를 가열하여 산 전처리를 수행하고 최종 적으로 초순수를 가하여 50 mL로 mass up하여 시료 분석 전까지 냉장 보관 후, ICP (inductively coupled plasma) 분석법 (ICOE-9800, Shimadzu, Japan)을 이용 하여 As, Ba, Ca, Cr, Cu, Fe, K, Mg, Mn, Ni, Pb, Se, Si, Ti, V, Zn 등의 총 16개 항목을 분석하였다. 이온성분의 분석은 먼저 여지를 추출용기에 넣고 초순수 30 mL를 가한 후 초음파 추출을 하고 50 mL 튜브에 시료 분석 전까지 냉장 보관 후 IC (ion chromatography) 분석법 (IC Metrohm 883, Metrohm Ltd.)을 이용하여 Ca²⁺, K⁺, Mg²⁺, Na⁺, NH₄⁺, SO₄²⁻, NO₃⁻, 그리고 Cl⁻ 등의 8 개 이온성분을 분석하였다. 탄소성분의 분석은 NIOSH5040 분석법 (Carbon aerosol analyzer, Sunset Lab. Inc.)을 이용하여 유기 및 원소탄소 (organic carbon, element carbon)를 분석하였으며, 다음의 문헌에 자세한 내용이 제시되었다 (Song *et al.*, 2022; Jeong and Hwang, 2015).

2.2 CMB 모델

수용모델링은 각종 응용통계학을 바탕으로 한 계량 화학적(chemometrics) 분석기술로서, 일반 대기 중 수 용체 (receptor)에서 주로 입자상 오염물질 (particulate matter; PM)의 물리적, 화학적 특징을 분석하여, 대기 질에 영향을 주는 오염원을 확인하고 정량적 기여도 를 파악하여 효과적인 대기오염 관리 방안을 제시하 는 통계 방법론이다. 다양한 수용모델은 질량수지 모 델, 형태인식 모델, 그리고 기타 모델로 분류할 수 있 다(Zannetti, 2005). CMB 모델은 Miller et al. (1972)과 Friedlander (1973)에 의해 처음 제안되었으며 Watson (1979)에 의해 이론적 체계가 확립되었다. PMF 모델 개발 이전에는 오염원의 정량적 기여도 추정을 위해 가장 보편적으로 사용되었다. CMB 모델은 질량보존 의 법칙 (conservation of mass)과 질량수지 (mass balance)에 이론적 기초를 두고 있으며, 수용체 위치에 서 측정된 원소질량의 합이 오염원 전체 기여질량의 합과 같다는 가정에서 가중최소제곱법 (weighted least square method)으로 오염원의 기여도를 추정한다 (Hwang and Kim, 2013; Hopke, 1985). CMB 모델의 기 본 식은 X=AF와 같이 표현한다. 여기서 X는 채취된 시료 중 화학원소의 질량농도, A는 오염원에서 배출된 화학원소의 중량농도(즉, 오염원분류표), F는 시료 중 오염원에서 대기 중으로 배출된 먼지의 질량농도(즉, 오염원의 기여도)를 의미한다. 즉, 측정 질량농도 X와 오염원분류표 A를 미리 알고 최소제곱법을 이용하여 구하고자 하는 기여도 F를 산출하게 된다. CMB 모델 의 장점은 측정 데이터의 수가 작아도 적용 가능, 기여 도에 대한 불확실도 제공, 사용하기 쉬운 인터페이스 등이다. 반면에 단점은 오염원분류표 필요, 높은 공선 성이 존재하는 오염원의 분리 어려움, 2차 오염원에 대한 기여도 평가에 어려움이 존재한다(Watson et al., 2008; Zannetti, 2005). CBM 모델링 결과에 대한 신뢰 도 평가는 일반적으로 R² 값, % mass, chi-square (χ^2) 값 등을 이용한다. 먼저, 계산된 성분 농도에 의해 설명 되는 측정 농도의 분산(variance) 비를 의미하는 R² 값 은 0.8 이상이어야 한다. 또한 % mass는 (각 오염원의

기여도 합)/(총 질량농도)의 비를 의미하며 100±20% 범위이어야 한다. 마지막으로 χ^2 값은 계산된, 측정된 항목들 오차제곱의 가중 합계를 의미하며, 1 이하는 좋 음, 1~2는 적절, 4 이상은 하나 또는 그 이상의 원소 농 도를 잘 설명하지 못하는 것을 의미한다 (US EPA, 2004; Bong *et al.*, 2003).

2.3 CMB 모델링 절차 및 오염원분류표 개발

CMB 모델을 수행되는 절차는 첫 번째, 연구대상지 역의 대기질에 영향을 미치는 오염원을 확인하는 것 이며 두 번째, 화학원소를 선택하고 세 번째, 오염원분 류표를 작성하며 네 번째, 대기 중에서 측정된 농도값 과 오염원분류표에 대한 불확실도 (uncertainty)를 계 산하고 다섯 번째, 각 오염원의 기여도를 계산하는 것 이다 (Watson *et al.*, 1998).

CMB 모델의 경우 연구대상지역의 PM2.5 오염원에 대한 오염원분류표가 확보되어야 한다. 본 연구의 경 우 연구대상지역에 총 10개(토양, 생체소각, 농업소 각, 휘발유 자동차, 경유 자동차, 해염, 기름연소, 산업 관련, 황산암모늄, 질산암모늄 등)의 PM2.5 오염원이 존재할 것으로 판단하고 각 오염원에 대한 오염원분 류표를 개발하였다. 즉, US EPA에서 제공하는 대기오 염물질 배출 오염원의 가스상 및 입자상물질의 구성 성분들에 대한 정보 database (SPECIATE ver. 5.1), 그 리고 유럽연합 집행위원회(EC, 2023)에서 개발한 유 럽의 오염원분류표 database인 SPECIEUROPE를 이 용하여 각 오염원에 대한 오염원분류표를 생성하였다 (표 S1). 참고로 SPECIATE의 최신 버전은 5.2 버전이 며 총 6845개 오염원의 입자상물질 및 가스상물질의 오염원 구성 성분들이 포함되어 있다. 또한 SPECIEU-ROPE (ver. 2)는 53개 오염원에 대한 총 287개 오염원 분류표가 포함되어 있다(EC, 2023; US EPA, 2023; Pernigotti et al., 2016). CMB 모델링에 입력될 10개 오염 원에 대한 각 항목들의 분율을 표 1 및 그림 S1에 나타 내었으며, 높은 분율을 나타내는 항목들은 각 오염원 의 추적자(marker species)이다.

	Soil	Biomass Burning	Agricultural Burning	Gasoline Vehicle	Diesel Vehicle	Seasalt	Combustion	Industry	Ammonium Sulfate	Ammonium Nitrate
As	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 1.04	0.00±0.11	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
Ba	0.01 ± 0.04	0.00 ± 0.03	0.03 ± 0.26	0.00 ± 0.45	0.07 ± 0.46	0.00 ± 0.00	0.01 ± 0.03	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
Ca	3.02 ± 0.34	0.97 ± 0.39	0.02 ± 0.15	0.21 ± 0.15	0.05 ± 0.03	1.40 ± 0.20	0.00 ± 0.03	3.38 ± 0.40	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
Cr	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.01	0.03 ± 0.02	0.00 ± 0.01	0.00 ± 1.00	0.01 ± 0.01	1.33 ± 0.99	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
Cu	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.03 ± 0.01	0.00 ± 0.01	0.00 ± 1.00	0.01 ± 0.01	0.17 ± 0.02	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
Fe	8.63 ± 0.98	0.15 ± 0.10	0.02 ± 0.01	0.32 ± 0.15	0.02 ± 0.03	0.00 ± 1.00	0.71 ± 0.09	20.50 ± 2.12	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
К	3.17 ± 0.36	8.87 ± 8.00	9.05 ± 3.88	0.00 ± 0.03	0.00 ± 0.03	1.40 ± 0.20	0.00 ± 0.00	2.47 ± 0.05	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
Mg	0.00 ± 0.00	0.07 ± 0.03	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.33 ± 0.04	0.00 ± 0.00	3.24 ± 0.50	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
Mn	0.13 ± 0.01	0.01 ± 0.00	0.00 ± 0.01	1.63 ± 0.63	0.00 ± 0.01	0.00 ± 1.00	0.00 ± 0.00	4.35 ± 0.64	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
Ni	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.01 ± 0.01	0.00 ± 0.01	0.00 ± 1.00	2.48 ± 0.25	1.35 ± 0.05	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
Pb	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.003 ± 0.02	6.00 ± 3.00	0.00 ± 0.03	0.00 ± 1.00	0.00 ± 0.00	0.41 ± 0.05	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
Se	0.00 ± 0.00	0.64 ± 0.34	0.00 ± 0.01	0.00 ± 0.02	0.00 ± 0.01	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
Si	24.50 ± 2.79	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.06	0.00 ± 0.21	0.28 ± 0.16	0.00 ± 1.00	0.00 ± 0.08	2.50 ± 0.15	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
Ti	0.77 ± 0.09	0.02 ± 0.00	0.003 ± 0.05	0.00 ± 0.15	0.01 ± 0.15	0.00 ± 1.00	0.00 ± 0.00	0.10 ± 0.01	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
V	0.04 ± 0.01	0.00 ± 0.01	0.00 ± 0.04	0.00 ± 0.06	0.00 ± 0.06	0.00 ± 1.00	0.42 ± 0.04	0.03 ± 0.01	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
Zn	0.00 ± 0.00	0.03 ± 0.02	0.003 ± 0.00	0.21 ± 0.11	0.04 ± 0.01	0.00 ± 1.00	0.26 ± 0.03	0.64 ± 0.01	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
SO4 ²⁻	0.00 ± 0.11	2.89 ± 2.27	1.72 ± 0.66	0.84 ± 0.72	3.18 ± 0.58	10.00 ± 4.00	14.72 ± 6.24	17.25 ± 0.92	72.70 ± 7.30	0.00 ± 0.00
NO ₃ ⁻	0.00 ± 0.03	0.09 ± 0.06	0.47 ± 0.16	0.59 ± 0.48	0.00 ± 0.39	0.05 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.28 ± 0.99	0.00 ± 0.00	77.50 ± 7.80
Cl⁻	0.00 ± 0.00	2.93 ± 2.11	13.53 ± 6.45	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	40.00 ± 10.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
K^+	0.21 ± 0.04	4.37 ± 1.28	9.22 ± 4.12	0.00 ± 0.15	3.00 ± 0.10	0.00 ± 1.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
Na ⁺	0.08 ± 0.04	0.02 ± 0.01	0.55 ± 0.64	0.00 ± 0.00	0.05 ± 0.22	40.00 ± 4.00	0.25 ± 0.06	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
NH_4^+	0.00 ± 0.00	0.03 ± 0.03	2.21 ± 1.56	1.07 ± 0.66	0.64 ± 0.20	0.00 ± 1.00	0.76 ± 0.08	0.00 ± 0.00	27.30 ± 2.70	22.60 ± 2.30
EC	0.00 ± 0.14	5.01 ± 2.79	12.10 ± 4.76	19.87 ± 9.88	43.37 ± 7.60	0.00 ± 1.00	3.01 ± 1.12	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00
OC	2.50 ± 1.07	47.95 ± 4.93	39.55 ± 9.54	65.47 ± 21.42	49.14±12.69	0.00 ± 1.00	1.99 ± 1.33	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00	0.00 ± 0.00

Table 1. Source profiles of 10 sources developed in this study using SPECIATE and SPECIEUROPE.

(unit: % by weight)

666

		1	2	3	4				1	2	3	4	
TMAC	TOT					Mass by gravimetry (ug/m3)	GUN001	SOIL01	*	*	*	*	Soil (AVG)
S4IC	SO4	*	*	*	*	Sulfate by IC (ug/m3)	GUN002	BIOBUR	*	*		*	Biomass Burning
N3IC	NO3	*	*	*	*	Nitrate by IC (ug/m3)	GUN003	AGRELIR	*		*	*	Agricultural Burping
CLIC	CL	*	*	*	*	Chloride by IC (ug/m3)	0011000						
KPAC	к	*	*	*	*	Soluble Potassium by IC (ug/m3)	GUN004	VEHGAS	*	*	*	*	Vehicle (Gasoline)
NAIC	NA	*	*	*	*	Soluble Sodium by IC (ug/m3)	GUN005	VEHDIE	*				Vehicle (Diesel)
N4TC	NH4	*	*	*	*	Ammonium by IC (ug/m3)	GUN006	MARINE	*	*	*	*	Sea Salt (MARINE)
ECTC	EC	*	*	*	*	Elemental Carbon by TOR (ug/m3)	GUN007	COMBUS	*	*	*	*	Combustion (Oil)
OCTC	OC	*	*	*	*	Organic Carbon by TOR (ug/m3)	GUN008	INDUST	*	*	*	*	Industry
ASXC	AS	*				Arsenic by ICP (ug/m3)	CUNICOO	1140001	-		+		
BAXC	BA	*				Barium by ICP (ug/m3)	GUN009	AMSUL	^	<u>^</u>	^	^	AMMONIUM SULFATE
CAXC	CA	*	*	*	*	Calcium by ICP (ug/m3)	GUN010	AMNIT	*	*	*	*	AMMONIUM NITRATE
CRXC	CR	*	*	*	*	Chromium by ICP (ug/m3)		··· ·· ··					
CUXC	CU	*	*	*	*	Copper by ICP (ug/m3)			Specie	es Source	s Species	Sources	
FEXC	FE	*	*	*	*	Iron by ICP (ug/m3)			0	1	0	3	
KPXC	K-S	*	*	*	*	Potassium by ICP (ug/m3)							
MGXC	MG	*	*	*	*	Magnesium by ICP (ug/m3)			2	Û	2	3	
MNXC	MN	*	*	*	*	Manganese by ICP (ug/m3)			3	1	3	3	
NIXC	NI	*	*	*	*	Nickel by ICP (ug/m3)			(4)	0	(4)	3	
PBXC	PB	*	*	*	*	Lead by ICP (ug/m3)			0	•		0	
SEXC	SE	*	*			Selenium by ICP (ug/m3)			(1)	(2)	(1)	(4)	
SIXC	SI	*	*	*	*	Silicon by ICP (ug/m3)			2	2	2	4	
TIXC	TI	*				Titanium by ICP (ug/m3)			3	0	3	(4)	
VAXC	V	*		*		Vanadium by ICP (ug/m3)						0	
ZNXC	ZN	*	*	*	*	Zinc by ICP (ug/m3)			(4)	(2)	(4)	(4)	

Fitting combination

Fig. 2. Combinations of fitting source profiles and fitting species.

3. 결과 및 고찰

3.1 CMB 모델링을 위한 입력 항목 및 오염원분류표 조합

CMB 모델링을 수행하기 위해서는 시료 분석자료 (X)와 오염원분류표(A)가 확보되어야 한다. 두 개의 자료가 확보되면 다음 단계는 오염원분류표 선택 파 일, 입력 항목 선택 파일, 그리고 측정시료 선택 파일 등을 통하여 최적의 모델링 조합을 찾는 단계이다. 먼 저, 입력되는 오염원분류표에 대한 조합을 생성하였 다. 총 4개의 조합을 생성하였는데 첫 번째, 전술한 바 와 같은 10개 오염원의 모든 오염원분류표를 입력하 는 방법, 두 번째는 전체 10개 오염원 중 농업소각, 경 유 자동차 오염원을 제외하고 총 8개 오염원에 대한 오염원분류표를 입력하는 방법, 세 번째는 전체 10개 오염원 중 생체소각, 경유 자동차 오염원을 제외하고 총 8개 오염원에 대한 오염원분류표를 입력하는 방법, 그리고 네 번째는 전체 10개 오염원 중 경유 자동차 오 염원을 제외하고 총 9개 오염원에 대한 오염원분류표 를 입력하는 방법의 조합을 생성하였다(그림 2).

다음으로는 입력되는 항목에 대한 조합으로서, 첫 번째는 분석된 24개 전체 항목을 모두 입력하는 방법, 두 번째는 전체 24개 항목 중 As, Ba, Ti, V 등을 제외 하고 입력하는 방법, 네 번째는 전체 24개 항목 중 As, Ba, Se, Ti, V 등을 제외하고 입력하는 방법의 조합을 생성하였다(그림 2).

3.2 각 조합에 대한 CMB 모델링 결과

전술한 바와 같이 최적의 CMB 모델링 결과를 도출 하기 위하여 fitting species 및 fitting source profile에 대한 16개 조합을 생성하여 모델링을 수행하였다. PM_{2.5} 측정장소 3곳에 대한 측정기간 동안의 모든 자 료를 입력하여 각 조합에 대한 모델링을 수행하고 각 조합의 모델링 결과를 비교하여 최적의 모델링 조합 및 결과를 도출하였다. 즉, 최적의 조합에 의한 최적의 모델링 결과를 도출하기 위하여 모델링 결과들에 대 한 신뢰도 평가를 수행하였다. 신뢰도 평가를 위한 여 러 가지 지표 중에서 가장 중요한 R², χ², % mass 값을

Source	Species	R ²	X ²	% Mass
1	1	0.86	9.4	81.1
1	2	0.82	10.8	81.2
1	3	0.80	11.6	76.5
1	4	0.82	11.4	80.2
2	1	0.86	10.7	80.3
2	2	0.82	11.5	81.8
2	3	0.80	12.3	77.6
2	4	0.83	12.3	79.9
3	1	0.87	10.0	81.0
3	2	0.83	10.9	81.4
3	3	0.81	11.9	76.7
3	4	0.83	12.0	79.5
4	1	0.87	10.4	80.3
4	2	0.83	11.2	81.8
4	3	0.81	12.1	77.6
4	4	0.84	12.2	79.9
A	VG	0.83	11.3	79.8

Table 2. Estimation of the goodness of fit of each combination for CMB modeling.

이용하여 신뢰도 평가를 수행하였으며 그 결과를 표 2에 나타내었다. 최적의 조합에 따른 최적의 모델링 결과는 표 2에 제시된 3가지 기준으로 조합 ①-①를 최적의 모델링 결과로 선정하였다.

최적의 결과에서 채취장소 3곳의 각 오염원에 대한 채취기간 동안의 기여도 변화를 그림 3에 나타내었다. 전체 채취기간 동안의 기여도에서 누락된 날짜의 기 여도는 모델링 시 각 오염원은 수학적으로 완전히 독 립이어야 한다는 가정을 만족하지 않는 공선성(collinearity) 문제 때문에 기여도가 계산되지 않은 것이다 (US EPA, 2004). 또한 채취장소 3곳의 각 오염원에 대 한 계절별 평균 기여도를 그림 4에 나타내었다. 그림 5 에는 채취장소 3곳의 각 오염원에 대한 평균 기여도와 3곳 전체 평균 기여도를 나타내었다.

토양 오염원은 3곳 모두 봄철(황사의 영향)에 높은 기여도를 나타내며(장자도, 계화도 시험지, 부안군 각 각 22.9%, 15.9%, 13.6%), 장자도(배경지역)의 경우는 13.1%, 계화도 시험지(발생지역)와 부안군 행안면(영 향지역)의 경우는 각각 10.1%의 평균 기여도를 나타 내어 기여도에 큰 차이는 없는 것으로 조사되었다 (NIER, 2022). 또한 3곳의 평균 기여도는 11.1%를 나 타내었다. 이러한 결과는 서울시 PM_{2.5}의 CMB 모델 링에 의한 토양 오염원의 기여도(8%), 경산시 및 제주 도 PM_{2.5}의 PMF 모델링에 의한 토양 오염원의 기여 도(각각 7%, 7.9%) 결과 등과 비교하여 높은 기여도를 나타내었는데(Kim *et al.*, 2018; Kim *et al.*, 2016; Jeong and Hwang, 2015), 이러한 선행연구와 비교하여 본 연 구의 대상지역은 새만금 지역에서의 흙먼지 비산 등 에 의한 영향으로 사료된다.

생체소각 오염원의 경우는 3곳 모두 여름철에 높은 기여도를 나타내었는데, 지역적 특성에 기인하는 것 인지 또는 다른 원인인지에 대한 추후 집중 연구(시 료의 수를 충분히 확보하여)가 필요할 것으로 판단된 다. 생체소각 오염원은 농업 소각 오염원과 비교하여 좀 더 광범위한 소각으로 간주하였다. 즉, 본 연구지역 의 특성상 농촌지역의 특성이 강하여 농업과 관련된 영농폐기물 및 부산물의 소각 행위가 빈번할 것으로 판단하였으며, 생체소각 오염원은 농업소각을 제외한 각종 생체소각 등으로 간주하였다. 농업소각 오염원 의 경우는 채취장소 3곳 모두 가을철, 겨울철, 그리고 봄철에 높은 기여도를 나타내었으며(4.3%~15.6%), 겨 울철의 경우는 실제 시료 채취지점 주변에서 영농 부 산물의 소각 행위가 확인된 경우도 존재한다(Song et al., 2022). 배경지역인 장자도의 경우는 농업소각 오 염원의 평균 기여도(13.1%)가 생체소각 오염원의 평 균 기여도(10.1%)보다 높은 기여도를 나타내었지만, 계화도 시험지와 부안군의 경우는 생체소각 오염원의 평균 기여도(각각 9.7%)가 농업소각 오염원의 평균 기여도(8.1%, 9.3%)보다 높은 기여도를 나타내는 것 으로 조사되었다. 생체소각 및 농업소각 오염원의 3개 장소 전체 평균 기여도는 19%로서 3번째로 높은 기여 도를 나타내어 새만금 및 주변지역의 PM, 5 오염원의 많은 부분을 차지하고 있음을 알 수 있다.

자동차(휘발유+경유) 오염원의 3개 장소 전체 평 균 기여도는 4.4%로서, 휘발유 자동차의 경우는 계화 도 시험지(6.3%)가, 경유 자동차의 경우는 장자도 (2.5%)가 다른 장소에 비해 높은 농도를 나타내었다. 해염 오염원의 경우는 시료 채취장소 모두 서해 바다

667



Fig. 3. Temporal variation of each source contribution during the sampling period in three sampling sites.



Fig. 4. Comparison of the seasonal contributions for each source (a: Agricultural technology center; b: Gyehwado test place; c: Jangjado).

와 인접해 있거나 섬인데도 불구하고 3곳의 전체 평 균 1.7%의 기여도를 나타내는 것으로 조사되었다. 이 러한 결과는 미국 서부 해안가의 해염 기여도에 비해 작은 기여도를 나타내는 것이며 (Hwang and Hopke, 2006), 모델링에 입력된 측정 시료의 수가 충분하지 않은 상황에서의 기여도이기 때문에 충분한 시료의 수가 확보되면 좀 더 정확한 해염 오염원의 기여도를 추정할 수 있을 것으로 사료된다. 산업 관련 오염원의 경우는 부안군 행안면 5.1%, 계화도 시험지가 6.2%, 그리고 장자도의 경우는 7.4%로 조사되었으며, 3개 장소 전체 평균 기여도는 6.2%를 나타내었다. 즉 산업 관련 오염원의 기여도가 작지 않은 이유는 연구대상 지역 주변으로 산업단지 및 농공단지(동쪽 방향 및 북동 방향으로 군산의 4개 농공단지 및 부안 농공단 지, 만경 농공단지, 김제 산업단지 등)들이 존재하며 특히, 연구대상지역 북쪽 방향으로 28 km 지점에 존재 하는 군산 국가산단에서 배출되는 PM2.5의 영향이 클 것으로 사료된다. 참고로 이들 농공단지 및 국가산단 의 주요 입주업종은 목재, 종이, 금속 및 비금속, 석유 화학, 기계 관련 업종들이 입주해 있다(Gunsan-si, 2023; KICOX, 2023).

669

황산암모늄 (ammonium sulfate)의 평균 기여도는 3 개 장소 모두 유사한 기여도 (부안군 24.3%, 계화도 시 험지 22.9%, 장자도 25.0%)를 나타내는 것으로 조사되 었다. 황산암모늄의 기여도는 대부분의 선행연구에서 일반적으로 여름철에 높은 기여도를 나타내는 것으로 알려져 있는데 (Chen *et al.*, 2022; Hwang, 2022; Park *et al.*, 2022; Hwang *et al.*, 2020), 본 연구의 경우는 여름 철보다는 겨울철에 높은 기여도 (농업기술센터와 계 화도 시험지의 경우)를 나타내어 겨울철 난방을 위한 화석연료의 연소 또는 항구의 선박 연료 연소에 의해 배출된 SO₂의 SO₄²⁻로의 변환 때문인 것으로 사료된 다.

질산암모늄 (ammonium nitrate)의 기여도는 10개 오염원의 기여도 중 가장 높은 기여도를 나타내었다 (평균 33.2%, 부안군 32.1%, 계화도 시험지 34.2%, 장 자도 33.2%). 일반적으로 여름철보다는 겨울철에 높



Fig. 5. Average source contributions for the sampling period at three sampling sites.

은 기여도를 나타내는 것으로 알려져 있는데(Nova et al., 2020), 본 연구의 경우도 채취장소 3곳 모두 겨울 철에 높은 기여도를 나타내는 것으로 조사되었다.



본 연구에서는 새만금의 PM_{2.5} 발생지역, 영향지역, 배경지역 등의 3곳에서 2020년 5월부터 2021년 4월까 지 채취한 PM_{2.5} 자료를 수용모델 중 CMB 모델을 이 용하여 새만금 지역의 PM_{2.5} 배출 오염원에 대한 기여 도를 추정하였다. 연구대상지역의 PM_{2.5} 오염원을 총 10개 (토양, 생체소각, 농업소각, 휘발유 자동차, 경유 자동차, 해염, 기름연소, 산업 관련, 황산암모늄, 질산 암모늄 등)로 판단하고 SPECIATE와 SPECIEUROPE 를 이용하여 각 오염원에 대한 오염원분류표를 생성 하였다. 모델에 입력되는 오염원분류표와 분석 항목 의 조합에 따른 최적의 모델링 결과는 모델링 신뢰도 평가 지표들을 이용하여 각 지표 값들이 가장 좋은 조 합을 선택하였다.

연구대상지역 3곳 중 발생지역으로 간주한 계화도 시험지의 경우는 질산암모늄, 황산암모늄, 토양, 생체 소각, 농업소각 오염원 등이 높은 기여도를 나타내었 다. 영향지역인 부안군의 경우도 질산암모늄, 황산암 모늄, 농업소각, 토양, 생체소각 오염원 등이 높은 기 여도를 나타내었다. 반면에 배경지역인 장자도의 경 우는 질산암모늄, 황산암모늄, 토양, 생체소각, 산업관 련 오염원 등이 높은 기여도를 나타내었다. 토양 오염 원의 평균 기여도는 11.1%로서, 새만금 간척에 의한 육화현상에 따른 비산먼지의 영향이 새만금 지역의 고농도 미세먼지 발생의 원인 중 하나로 판단할 수 있 다. 또한 연구지역의 PM25 오염원 중에서 새만금 기 원 오염원은 토양 오염원을 비롯하여 생체소각 및 농 업소각 오염원이라고 할 수 있으며 3개 오염원의 평 균 기여도는 30.1%로 조사되었다.

본 연구의 결과들은 새만금 지역의 비산먼지 및 원 인물질의 발생특성과 오염물질의 특성을 규명하는 기 초자료로서 중요한 역할을 할 것으로 사료된다. 또한 새만금 지역의 육지화 및 개발과의 관련성을 파악하 고 미세먼지 발생 저감대책 수립을 위한 자료로 사용 될 수 있을 것으로 사료된다.

감사의 글

본 연구는 국립농업과학원의 지원(과제번호: PJ01 4910)으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

References

- Bong, C.K., Yun, J.S., Hwang, I.J., Kim, C.R., Kim, D.S. (2003) Estimation of quantitative source contribution of VOCs in Seoul area, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 19(4), 378-396, (in Korean with English abstract).
- Chen, Y., Rich, D.Q., Hopke, P.K. (2022) Long-term PM25 source analyses in New York City from the perspective of dispersion normalized PMF, Atmospheric Environment, 272, 118949. https://doi.org/10.1016/j.atmos env.2022.118949
- European Commission (EC) (2023) SPECIEUROPE 2.0. http:// source-apportionment.jrc.ec.europa.eu/Specieurope/ index.aspx
- Friedlander, S.K. (1973) Chemical element balances and identification of air pollution sources, Environmental Science and Technology, 7(3), 235-240. https://doi.org/10. 1021/es60075a005

Gunsan-si (2023) https://www.gunsan.go.kr/

Hong, S.C., Kim, M.W., Kim, J.H. (2021) Annual distribution of

atmospheric ammonia concentration in saemangum reclaimed land area, Korean Journal of Environmental Agriculture, 40(4), 330-334, (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.5338/KJEA.2021.40.4.37

- Hopke, P.K. (1985) Receptor Modeling in Environmental Chemistry, John Wiley & Sons, New York.
- Hwang, H.S., Lee, I.B., Shin, M.H., Hong, S.W., Seo, I.H., Ryu, J.I., Lee, S.K. (2008) Monitoring of the Fugitive and Suspended Dust Dispersion at the Reclaimed Land and Neighboring Farms: Monitoring in Gunsan, Journal of The Korean Society of Agricultural Engineers, 50(4), 39-50, (in Korean with English abstract).
- Hwang, H.S., Lee, I.B., Shin, M.H., Lee, G.Y., Hong, S.W., Seo, I.H., Yoo, J.I., Bitog, J.P., Kwon, K.S., Kim, Y.H. (2009) Monitoring of the fugitive and suspended dust dispersion at the Saemangeum reclaimed land and neighboring farm areas, Journal of the Korean Society of Agricultural Engineers, 51(5), 9-17. https://doi.org/10.5389/ KSAE.2009.51.5.009
- Hwang, I.J. (2022) Estimation of source apportionment for PM_{2.5} data of air pollution monitoring site in Pohang using the EPA-PMF model, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 38(3), 354-374. https:// doi.org/10.5572/KOSAE.2022.38.3.354
- Hwang, I.J., Hopke, P.K. (2006) Comparison of source apportionments of fine particulate matter at two San Jose STN sites, Journal of Air & Waste Management Association, 56(9), 1287-1300. https://doi.org/10.1080/10473 289.2006.10464586
- Hwang, I.J., 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:// doi.org/10.5572/KOSAE.2013.29.4.459
- 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 supersites, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 36(5), 615-627, (in Korean with English abstract). https://doi.org/10.5572/KOSAE.2020.36.5.615
- Jeong, Y.J., Hwang, I.J. (2015) Source Apportionment of PM_{2.5} in Gyeongsan Using the PMF Model, Journal of Korean Society for Atmospheric Environment, 31(6), 508-519. https://doi.org/10.5572/KOSAE.2015.31.6.508
- Kim, B.M., Seo, J., Kim, J.Y., Lee, J.Y., Kim, Y. (2016) Transported vs. local contributions from secondary and biomass burning sources to PM_{2.5}, Atmospheric Environment, 144, 24-36. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.

671

08.072

- Kim, S.M., Kim, K.S., Hyun, S.S., Kim, J.H., Kim, M.C., Kim, B.J., Lee, K.H. (2018) Chemical composition and source apportionment of PM_{2.5} in Jeju City in 2017, Journal of the Korean Society for Environmental Analysis, 21(2), 61-70.
- Korean Industrial Complex Corporation (KICOX) (2023) https:// www.kicox.or.kr/home/gvrn/
- Lee, S.W., Kang, B.H., Seo, I.H. (2022) Monitoring of particulate matter concentration for forage crop cultivation during winter season in Saemangeum, Journal of Bio-Environment Control, 31(2), 114-124. https://doi.org/ 10.12791/KSBEC.2022.31.2.114
- Miller, M.S., Friedlander, S.K., Hidy, G.M. (1972) A chemical element balance for the Pasadena aerosol, Journal of Colloid and Interface Science, 39(1), 165-176. https:// doi.org/10.1016/0021-9797(72)90152-X
- Ministry of Environment (MOE) (2021) https://me.go.kr/smg/ web/board/read.do
- National Air Emission Inventory and Research Center (NAIR) (2022) National air pollutants emission 2019, 11-148 1019-000001-10.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2021) Annual report of air quality in Korea 2020, NIER-GP 2021-072.
- National Institute of Environmental Research (NIER) (2022) Annual report of air quality in Korea 2021, NIER-GP 2022-048.
- Nava, S., Calzolai, G., Chiari, M., Giannoni, M., Giardi, F., Becagli, S., Severi, M., Trversi, R., Lucarelli, F. (2020) Source apportionment of PM_{2.5} in Florence (Italy) by PMF analysis of aerosol composition records, Atmosphere, 11(5), 484. https://doi.org/10.3390/atmos11050484
- Park, J.M., Lee, T.J., Kim, D.S. (2022) Improving PMF source reconciliation with cluster analysis for PM_{2.5} hourly data from Seoul, Korea, Atmospheric Pollution Research, 13(5), 101398. https://doi.org/10.1016/j.apr.2022.101 398.
- Pernigotti, D., Belis, C.A., Spano, L. (2016) SPECIEUROPE: The European data base for PM source profiles, Atmospheric Pollution Research, 7(2), 307-314. https://doi.

org/10.1016/j.apr.2015.10.007

- Saemangeum Development and Investment Agency (SDIA) (2022) https://www.saemangeum.go.kr/sda/en/main. do
- Song, J.H., Kim, J.S., Hong, S.C., Kim, J.H. (2022) Characteristics of fine particulate matter (PM_{2.5}) in the atmosphere of Saemangum reclaimed land area, Journal of the Korean Society of Agricultural Engineers, 64(3), 25-32. https://doi.org/10.5389/KSAE.2022.64.3.025
- United States Environmental Protection Agency (US EPA) (2004) Protocol for applying and validating the CMB model for PM_{2.5} and VOC, EPA-451/R-04-001, U.S. Environmental Protection Agency, Research Triangle Park, NC.
- United States Environmental Protection Agency (US EPA) (2023) SPECIATE 5.1. https://www.epa.gov/air-emissionsmodeling/speciate
- Watson, J.G. (1979) Chemical element balance receptor model methodology for assessing the source of fine and total particulate matter in Portland, Oregon, Ph.D. Oregon graduate center, Beaverton, OR.
- Watson, J.G., Chen, L.W.A., Chow, J.C., Doraiswamy, P., Lowenthal, D.H. (2008) Source apportionment: Findings from the U.S. supersites program, Journal of Air & Waste Management Association, 58, 265-288, https://doi.org/ 10.3155/1047-3289.58.2.265
- Watson, J.G., Robinsin, N.F., Fujita, E.M., Chow, J.C., Pace, T.G., Lewis, C., Coulter, T. (1998) CMB8 Applications and Validation Protocol for PM_{2.5} and VOCs, Desert Research Institute, Document NO. 1808.2D1.
- Zannetti, P. (2005) Air Quality Modeling. Edited by J.G. Watson and J.C. Chow, The EnviroComp Institute and Air & Waste Management Association, 457-458.

Authors Information

황인조(대구대학교 지구과학교육과 교수) (ihwang@daegu.ac.kr) 송지한(온앤아이(주)대표) (songjh3004@naver.com)

Supplementary Materials

Source	Source profile code								
Cail	3196	3458	3398	3403	3408	3413			
2011	3494	3512	91101	269*					
	3232	3233	3234	3235	3236	3237			
Biomass Burning	3238	3239	3240	3248	3273	3278			
	3767	3768	3769	119*					
Agricultural Burning	3243	3448	3453						
Caralina Mahiala	4895	4896	4897	4898	4899	4900			
Gasoline venicle	270*								
Diesel Vehicle	4859	4860	4892	4893	270*				
Caralt	431012.5	5675	5676	5681	900132.5	111*			
Seasait	50								
	4873	4874	4875	4876	4877	4878			
Compustion	125*	271*							
Industry	283012.5	283022.5	283032.5	283072.5	106*				
Ammonium Sulfate	254102.5	273*							
Ammonium Nitrate	254092.5	272*							

Table S1. Profile codes of SPECIATE and SPECIEUROPE used to obtain source profiles of 10 sources.

*: SPECIEURPOPE source profile code

673



