

3E2)

양의 인자분석을 이용한 대전 1, 2 공단 지역의 오염원 확인 Source Apportionment in Daejeon 1st and 2nd industrial complexes using Positive Matrix Factorization

장미숙 · 임종명 · 전통 · 이현석 · 이진홍 · 정용삼*

충남대학교 환경공학과, *원자력연구소 방사화분석연구실

1. 서 론

PMF(Positive Matrix Factorization) 모델은 기존의 인자분석 모델이 갖는 인자부하량의 음수 문제를 해결하기 위해 인자부하량과 공통인자를 양수로 제한하여 결과 해석에 명확성을 주었다. 또한 환경연구에서 많이 나타나는 outlier와 log-normal 분포모형을 선택사항으로 도입하고 있어 현재 환경관련 연구에 응용성이 높다. 본 연구에서는 대전 1, 2 공단 지역의 PM 10 중 미량금속과 이온성분의 농도를 분석하고 PMF를 이용하여 오염원을 확인하고자 한다.

2. 연구 방법

2.1 시료채취 및 분석

연구지역은 대전에서 가장 오염이 심하리라고 판단되는 1, 2 공단지역이며, 시료 채취 위치는 공단의 남쪽 하단 중앙부에 위치한 대화동사무소 건물 옥상(지상 약 6.5m)에서 이루어졌다. PM 10 시료는 High Volume Air Sampler(Sierra Andersen : SAUB-10H model, Whatman cellulose filter grade 41, 8×10in)를 이용하여 2000년 4월부터 2001년 1월까지, 한달에 2~4번씩 주중 하루를 선택하여 24시간 동안 채취하였다. 미량금속의 분석은 비파괴적으로 동시에 다원소 분석이 가능하며 상당히 낮은 검출한계를 갖고 있는 기기증성자방사화분석법(Instrumental Neutron Activation Analysis)을 이용하여 이루어졌다. Cd, Ni, Pb, Si 성분은 기기증성자방사화분석법에 대해 감도가 낮거나 분석되지 않는 성분으로 PM 10 여지를 Microwave로 전처리한 후 유도결합플라즈마방법(Inductively Coupled Plasma/MS)에 의해 분석하였다. 이온성분은 Ion Chromatography(Dionex, USA)를 이용하여 분석하였다. 모든 분석 농도 자료는 sample-to-blank가 2 이하인 자료를 제거하여 바탕농도에 의한 영향을 배제하였으며, 평균에서 표준편차의 3배 이상인 시료농도는 outlier로 간주하여 제거하였다.

2.2 양의 인자분석

PMF 모델은 (1)식을 반복적으로 재가중되는 최소자승법을 이용하여 해석하는 방법으로 (2)식과 같이 잔차를 표준편차로 가중시킨 값에 대하여 자승의 합이 최소가 될 때까지 반복한다. 여기서, G와 F는 모두 양의 값으로 제한된다.

$$x_{ij} = \sum_{h=1}^p g_{ih} f_{hj} + e_{ij} \quad \text{where, all elements of } G \text{ and } F \text{ are required to be non-negative}$$

p is a number of factors
G is the factor scores matrix
F is the factor loadings matrix
E is the residual matrix

(1)

$$\text{Minimizing the sum of squares, } Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m (e_{ij}/s_{ij})^2 \quad \text{where, } S_{ij} \text{ is the standard deviation matrix}$$

(2)

42개 시료와 분석된 미량금속 28종, 이온 2종에 대하여 양의 인자분석이 수행되었다. 표준편차는 simple rule of thumb 방법과 분석농도의 10%로 주는 간단한 방법으로 계산하였다. Error model은 EM=-12와 EM=-14 모델을 채택하고 outlier distance는 2, 4, 8, 인자수는 7~15개로 하여 결과를 비교하였으며, 서로 다른 5개의 의사난수 seed 값에서 20번의 반복과정을 통해 Q 값의 국부최소치가 발견되지 않도록 하였다. 반복제어에서는 세 번째 limit repulsion(lims) 값은 0.01, chi2 test 값은 0.3으로 하였

다. 분석 결과에서 Q값, rotmat 및 잔차행렬을 검토하여 최적 조건을 결정하였고 FPEAK값을 -1에서 1 까지 0.1씩 증가하면서 회전에 의한 변화를 살펴보았다.

3. 결과 및 고찰

오염원의 정성적인 평가는 VOC/PM speciation data system(version 3.1)의 프로파일 자료와 연구논문들을 참고하여 이루어졌다. 최적의 인자수 결정실험에서 선택된 EM=-12, seed=3, outlier distance=2, 인자수=11 조건에서 FPEAK에 의한 회전실험 결과 0.4에서 Q값이 낮으면서도 잔차행렬이 ±2 이내에 많이 분포하였고 인자부하량의 유의성이 높았다. F1은 인위적 오염성분인 Cd, Zn, Ba의 인자부하량이 높았는데 Al, Fe, K, Sc, Th 등과 함께 나타나고 있어 재비산된 오염먼지/도로먼지로 사료되며 총분산의 12.2%를 차지하고 있다. F2는 Mg, Al, Sc, Th, Ce 등의 인자부하량이 높아 토양먼지로 판단되며 총분산의 12.1%를 설명하였고, F3은 Sm, Ti이 주성분으로 지각성분으로 판단되며 총분산의 9.2%를 설명하고 있었다. F1, F2, F3은 모두 dust 성분으로 대전 1, 2 공단지역의 최대오염원으로 평가되었다. F4는 Br과 Sb 및 Zn의 작용이 크게 나타나 자동차오염원으로 총분산의 9%를 차지하였다. F5는 Ti의 인자부하량이 가장 높았지만 Cd, Ni, Cl, Mn, V 등 쓰레기 연소 특히 municipal waste의 연소성분과 유사하여 소각오염원으로 판단하였다. F5는 총분산의 8%를 차지하였다. F6과 F10은 금속재련 및 용해와 관련된 오염원으로 총분산의 8%, 5%를 각각 설명하였고, 연료연소에 의한 오염은 F7에서 나타났고 총분산의 7.9%를 설명하였다. F8은 Si의 인자부하량이 가장 높았지만 다른 토양/지각 관련 성분의 인자부하량이 낮고 Cu, Ba, 황화합물 등 인위적인 오염원과 함께 나타나고 있어 1, 2 공단의 주산업분류에 속하는 금속관련업 중 합금공정에서 발생되는 것으로 판정하였다. F8은 총분산의 7.2%를 차지하였다. F9는 요오드의 주오염원으로, F11은 해염입자의 영향으로 판단하였으며 총분산의 5.6%와 4%를 각각 차지하였다.

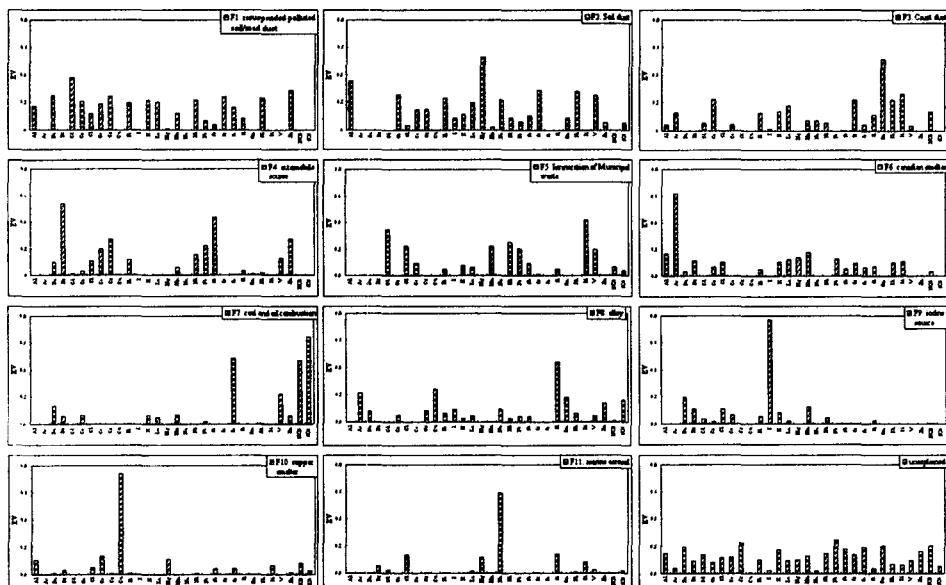


Fig. 1. Source profiles based on EV values.

참 고 문 헌

- Paatero Pentti (1994) Users Guide for Positive Matrix Factorization programs PMF2 and PMF3,
 Part1 : tutorial, Part2 : reference, University of Helsinki, last changed on 2000.
 장미숙(2002) 대기 중 PM 10 내 미량금속의 화학적 특성, 인체 위해도 및 오염원 확인 - 대전 1, 2
 공단 지역, 공학박사 학위논문, 충남대학교.