

중소도시, 대도시 및 산업지역에서 채취한 미세먼진 (PM_{2.5})과 입자상 다환방향족탄화수소의 계절적인 분포 특성

김 희 갑*, 정 경 미¹, 김 태 식²

강원대학교 환경과학과, ¹국립환경과학원, ²한림성심대학 보건환경과

Characteristics of Seasonal Distributions of Fine Particles (PM_{2.5}) and Particle-Associated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Urban, Metropolitan and Industrial Complex Sites

Hekap Kim *, Kyung-Mi Jung¹ and Tae-Sik Kim²

Department of Environmental Science, Kangwon National University, Chuncheon, Gangwon-do 200-701, Korea

¹National Institute of Environmental Research, Incheon 404-708, Korea

²Department of Health and Environment, Hallym College, Chuncheon, Gangwon-do 200-853, Korea

ABSTRACT

This study was conducted to investigate seasonal distributions of fine particles (PM_{2.5}) and associated polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) at three cities. PM_{2.5} samples were collected on glass fiber filters at urban (Chuncheon), metropolitan (Seoul), and industrial complex sites (Ulsan) from September, 2002 to February, 2004 using the Andersen FH 95 Particulate Sampler. About five 24-hour samples were collected from each site per season. The filters were analyzed for mass and six selected PAHs concentrations. PM_{2.5} concentrations were the highest either in winter or spring, which could be attributed to the increase of fossil fuel combustion in winter or the transport of yellow sand to the Korean peninsula from China in spring, respectively. Regional PM_{2.5} concentrations were higher in the order of Seoul > Chuncheon > Ulsan without statistical difference among cities. The filters were extracted using dichloromethane in an ultrasonicator and analyzed for six PAHs (anthracene, fluoranthene, pyrene, benzo[*a*]anthracene, chrysene, and benzo[*a*]pyrene) with HPLC. Total PAHs concentrations were statistically different among seasons in each site, and the highest concentrations were observed in winter at each sampling site. For total samples collected, the median total PAHs concentrations in Chuncheon (4.6 ng/m³) and Seoul (4.4 ng/m³) were approximately two times higher than that in Ulsan (2.1 ng/m³). Chrysene was a component found in the highest proportion among total PAHs at each site. Carcinogenic risks calculated based on the BaP toxic equivalency factors (TEFs) over the whole sampling period were higher in the order of Chuncheon > Seoul > Ulsan. This study suggests that the atmosphere of Chuncheon is contaminated with particulate matter and PAHs at the levels equivalent to those of Seoul and that an appropriate measure needs to be taken to mitigate human health risks from inhalation exposure to airborne fine particles.

Key words : fine particles, PAHs, PM_{2.5}, polycyclic aromatic hydrocarbons, seasonal distribution

* Corresponding author.

Tel: +82-33-250-8577, Fax: +82-33-251-3991

E-mail: kimh@kangwon.ac.kr

서 론

우리나라에서는 수도권을 비롯한 대도시로의 인구 집중 및 차량의 증가로 인해 대기분진 중 호흡성(PM_{10}) 분진 및 미세먼진($PM_{2.5}$)의 농도가 증가되고 있으며, 이로 인한 주민 건강 위협의 가능성이 제기되어 왔다. 따라서 대기분진의 관리 및 기준안을 수립하기 위해서는 구체적인 모니터링 및 역학연구 자료를 확보해야 할 시점에 이르렀다고 할 수 있다. 이러한 가운데 서울시와 울산시를 대상으로 시계열적 또는 경시적(longitudinal) 연구방법을 적용하여 대기오염과 일별 사망발생 사이에는 서로 유의한 상관관계가 있다는 것이 보고되어(이종태 등, 1998; 임중한 등, 1998; Lee *et al.*, 1999), 도시에서 분진을 포함한 대기오염이 건강에 악영향을 주고 있음을 시사하였다.

분진은 자연적, 인위적, 그리고 2차적인 기원에 의해 생성되는 것으로 알려져 있다(Phalen, 2002). PM의 자연적인 기원에는 바람에 의해 생성된 먼지, 안개, 산불과 같은 화재, 화산 폭발, 식물에 의한 화분 생성, 곰팡이에 의한 포자 생성 및 많은 미생물에 의한 활동이 포함된다. 반면에, 인위적인 PM의 배출원은 크게 두 가지로 분류되는데, 하나는 이동배출원(자동차, 트럭, 비행기, 배, 기차 등)이고 다른 하나는 고정배출원(발전소, 공장, 광산, 농장, 가정, 폐기물 처리장 등)이다. 2차 PM은 기체나 증기가 액체 또는 고체로 변형되는 것과 같은 대기 중에서의 반응에 의해 생성된다. PM은 크게 입자의 크기에 따라 조대분진($2.5 < d < 10 \mu m$), 미세먼진($d < 2.5 \mu m$, $PM_{2.5}$) 및 초미세입자($d < 0.1 \mu m$)의 세 가지로 분류된다.

이 중에서 $PM_{2.5}$ 는 일반적으로 화석연료의 연소, 식물의 연소(산불), 금속의 제련 등과 같은 과정에서 생성되는 것으로 알려져 있으며(Tucker, 2000), 인체의 폐포 깊숙이 도달할 수 있기 때문에 그 중에 함유되어 있는 화학성분들이 체내에 흡수되기 쉽다. 많은 역학연구에서 $PM_{2.5}$ 에 노출될 경우에 사망률이 증가하거나, 호흡 기능이 저하되거나, 또는 심장혈관 질환으로 인한 입원 환자수가 증가하는 것으로 보고되었다(Schwartz *et al.*, 1996; Korrick *et al.*, 1998; Neas *et al.*, 1999; Peters *et al.*, 2000).

그렇지만, 이와 같은 연구 결과를 해석하는데 있

어서 $PM_{2.5}$ 의 측정 방법이 서로 다를 뿐만 아니라(Levy *et al.*, 2000), 어떤 특정한 지점에서 측정할 환경 농도를 이용하여 개인의 노출 수준을 추정할 때 비롯될 수 있는 불확실성이 문제점으로 제기되기도 하였다(Bahadori *et al.*, 1999). 그러던 중 미국 환경보호청(U.S. EPA)은 Federal Reference Method(FRM) 및 Federal Equivalent Method(FEM) $PM_{2.5}$ 채취기 목록과 사양을 공표하여(U.S. EPA, 2003), 이러한 채취기들이 대기환경 중에서 $PM_{2.5}$ 농도가 법적 기준치인 연간 $15 \mu g/m^3$ 이하, 일별 $65 \mu g/m^3$ 이하(U.S. EPA, 1997)를 충족하는지 모니터링하기 위한 장비로 널리 사용되고 있다. 이 연구에서는 FRM 또는 FEM 채취기의 목록에 포함되어 있지 않지만, FRM 채취기로서의 조건을 충족하는 채취기로 알려져 있는 Andersen FH 95 Particulate Sampler(Thermo Electron Co.)를 사용함으로써 측정 결과에 대한 신뢰성을 높이고자 하였다.

분진에 의한 건강 영향에는 입경에 따른 물리적 특성 이외에도 분진 중에 함유되어 있는 화합물의 조성 및 농도가 중요한 역할을 한다. 이와 같은 분진의 화학적 특성은 지역 및 계절에 따라 큰 차이를 보이기 때문에, 건강 영향 연구에 있어서 대상자들이 직접 접촉하는 분진을 채취하여 그 성분을 분석하는 것이 중요하다고 할 수 있다(김창환 등, 1999; Adams *et al.*, 2001; Monn, 2001).

다환방향족탄화수소(polycyclic aromatic hydrocarbons, 이하 PAHs)는 강한 발암성과 돌연변이원성을 나타내는 화합물들을 많이 포함하고 있을 뿐만 아니라, 일반 환경 어디에서나 널리 분포되어 있어 사람들은 이러한 화합물들에 지속적으로 노출되고 있기 때문에 주된 관심 대상이 되어왔다(IARC, 1983; WHO, 1987; Menzie *et al.*, 1992). 이와 같은 PAHs는 주로 화석연료의 연소, 폐기물의 소각, 가솔린 및 디젤 자동차의 배기가스, 고온에서 식품 조리, 담배 연기 등의 인위적인 활동으로부터 배출되는 것으로 알려져 있다(Rogge *et al.*, 1991; Westerholm *et al.*, 1991).

낮은 분자량을 갖는 PAHs(벤젠고리가 2 또는 3개)는 대기에서 주로 기체상으로 존재하며, 비교적 높은 분자량을 갖는 PAHs(벤젠고리 5개 이상)는 미세먼진에 흡착되어 입자상으로 존재한다. 그렇지만, 각 PAH의 기체상과 입자상 사이에서의 분포는 온도에 따라 큰 영향을 받는 것으로 알려져 있다.

백성욱과 최진수(1998)의 연구에서는 phenanthrene이나 anthracene과 같은 벤젠고리가 3개인 PAHs는 입자상으로 여름철에는 평균 5% 이하, 그리고 겨울철에는 30% 이하로 존재하는 것으로 나타나 대부분이 기체상으로 존재하는 것으로 나타났다. 반면에 fluoranthene, pyrene, benzo[a]anthracene, chrysene 등과 같은 벤젠고리가 4개인 PAHs에 대해서는 입자상이 차지하는 비율이 분자량에 따라 차이가 크게 나타났다. 앞의 두 종의 PAHs (MW 202.26)의 입자상 비율이 여름에는 3~6%이고 겨울에는 50% 내외였던 반면에, 뒤의 두 PAHs (MW 228.29)의 입자상 비율은 여름 및 겨울에 각각 40% 및 90% 정도를 차지하였다. 한편 고리가 5개인 benzo[a]pyrene (MW 252.32)의 여름 및 겨울에 입자상이 차지하는 비율은 각각 90 및 99%로 계절에 관계없이 대부분이 입자상에 분포하는 것으로 나타났다.

입자상 PAHs의 농도는 겨울철에 가장 높았고 여름철에 가장 낮았는데, 이는 겨울철에 난방연료의 사용량이 증가할 뿐만 아니라 PAHs의 주된 발생원인 화석연료의 연소과정이 불완전하게 일어나기 때문인 것으로 판단되었다(백성욱과 최진수, 1996; 백성욱과 최진수, 1998; 정용 등, 1998a). 백성욱과 최진수(1996)의 연구에서는 대구시내에서 PAHs의 농도를 지역간에 비교하였을 때 공업지역이 가장 높고, 다음으로는 상업지역 및 주거지역, 그리고 교외지역에서 가장 낮게 나타났다. 그렇지만, 겨울철에 대해서만 네 지역간에 비교하였을 때에는 가장 낮은 농도가 교외지역이 아닌 주거지역에서 나타났는데, 저자들은 그 원인으로 주거지역에서는 도시가스과 같은 청정연료를 사용하는 반면에 교외지역에서는 무연탄과 같은 재래식연료를 사용하기 때문인 것으로 해석하였다.

이 연구는 도시의 특성에 따라 중규모의 도시인 춘천, 대도시인 서울, 그리고 석유화학산업단지가 위치한 울산 등의 세 도시를 선정하고, 계절별로 PM_{2.5}를 채취하여 질량 및 PAHs 농도의 지역 및 계절별 분포 특성을 알아보고자 실시하였다. PAHs는 고리의 개수 및 분자량에 따라 기체상과 입자상 사이에 분포하는 비율이 계절(온도)에 따라 다름에도 불구하고, 미세분진 중에 함유된 농도에 한정을 하였고, 일부 PAHs에 대해 얻은 농도를 이용하여 세 지역간에 발암위해도를 비교하여 평가하

였다.

연구 방법

1. 연구 대상 지역

이 연구는 춘천, 서울, 그리고 울산의 세 도시를 대상으로 실시되었다. 중도시인 춘천은 주변이 산으로 둘러싸여 있는 분지이고, 인구는 약 26만 명이며, 시료를 채취한 강원대학교(자연대 2호관 4층 건물 옥상) 주변에는 상가와 주택가가 분포하고 있다. 대도시인 서울은 인구가 약 1,030만 명인 대도시이며, 시료의 채취는 한양대학교 제2의학관 4층 건물 옥상에서 실시되었다. 울산은 109만 명 정도의 인구를 갖는 도시이고, 시료 채취가 실시된 선암초등학교(2층 건물 옥상) 인근에는 석유화학단지가 위치하고 있다. 따라서 시료 채취가 실시된 세 지역은 각각 중도시지역, 대도시지역, 그리고 산업지역으로 구분될 수 있다.

2. 미세분진 시료 채취 및 중량 측정

세 지역에서 미세분진 (PM_{2.5})은 Thermo ESM Andersen사의 FH 95 Particulate Sampler (이하 FH 95)를 사용하여 채취하였다. 이 분진채취기는 16.7 L/min의 유속으로 작동되며, 필터로는 직경 47 mm의 glass fiber filter (Pall Co.)가 사용되었다. 2002년 가을(9월)부터 2004년 2월까지 각 계절별로 세 지역을 순회하면서 24시간 분진시료를 5~6일 내외로 연속해서 채취하였다. 단, 춘천에서 2003년 봄에는 황사 현상이 발생하여 15개의 시료를 채취하였다. 비나 눈이 올 경우에는 시료 채취를 중단하고, 하루 이상이 경과한 후에 시료 채취를 재개하였다.

필터는 채취 전후에 온도 20~23°C, 상대습도 30~40%를 유지한 연구실에서 데시케이터 안에 24~48시간 동안 넣어 두었다가, 0.01 mg까지 측정할 수 있는 전자저울 (Model AP250D, Ohaus사)로 세 번 반복하여 칭량한 후에 평균치를 질량농도 계산에 사용하였다. 무게를 잰 필터는 Petri dish에 넣어 parafilm으로 밀봉한 후에 -21°C에서 보관하였다가 PAHs에 대해 분석하였다.

3. 다환방향족탄화수소 (PAHs)에 대한 분석

채취한 분진시료는 대기에서 흔히 검출되는 여

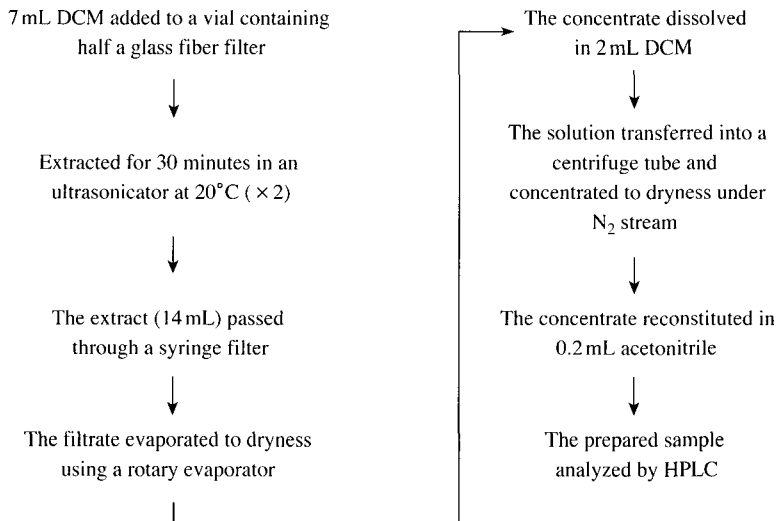


Fig. 1. The procedure for preparing PAHs analytical samples.

섯 가지 종류의 PAHs, 즉 벤젠고리가 3개이고 분자량이 178.23인 anthracene (ANT), 고리가 4개이고 분자량이 202.26인 fluoranthene (FLU)과 pyrene (PYR), 고리가 4개이고 분자량이 228.29인 benzo[a]anthracene (BaA)과 chrysene (CHR), 그리고 고리가 5개이고 분자량이 252.32인 benzo[a]pyrene (BaP)에 대해 분석하였다.

각 PAH의 표준물질 중 ANT (99%), FLU (98%), PYR (98%) 및 CHR (98%)은 Sigma-Aldrich사에서, BaA (98%)와 BaP (98%)는 Fluka Chemie사에서, 그리고 추출용매로 사용된 dichloromethane (DCM, 99.5%)은 DC Chemical사에서, 그리고 이동상으로 사용된 acetonitrile (CH₃CN, 99.9%)은 Duksan사로부터 구입하였다.

각 PAH별로 DCM을 용매로 사용하여 1차 표준용액을 제조한 후, 각 표준용액마다 일정한 부피를 취해 CH₃CN에 혼합하여 희석함으로써 2차 표준용액을 제조하였다. 이 2차 표준용액을 공필터에 spike한 후에 분진시료와 동일한 과정을 따라 추출하고 농축한 후 HPLC로 분석하여 정량을 위한 검량선을 작성하였다.

필터시료는 다음과 같은 절차를 따라 분석하였다. 반으로 자른 필터는 40 mL의 유리 용기에 넣은 후 7 mL의 DCM을 추출용매로 사용하여 초음파로 20°C에서 30분 동안 추출하였다. 이와 같은 추출은

다시 한 번 반복하여 실시하였고, 모은 추출액 (14 mL)은 주사기 필터 (hydrophobic PTFE, 직경 13 mm, 공극 0.20 μm, ADVANTEC사)로 여과하였다. 감압회전증발기를 사용하여 여과액 중 대부분의 용매를 제거한 후에, DCM 2 mL를 사용하여 15 mL의 원심분리관으로 옮기고 질소 기류로 용매를 제거하여 농축하였다. 농축된 분석시료는 0.2 mL의 CH₃CN으로 재용해한 후에 20 μL를 HPLC에 주입하여 여섯 가지의 PAHs에 대해 분석하였다. Fig. 1에는 시료의 전처리 과정을 요약하여 나타내었다.

PAHs 분석에 사용된 기기는 Varian사의 HPLC (ProStar Model 210)이었으며, UV/VIS (Model ProStar 320, Varian사)와 형광검출기 (Model 470 Fluorescence Detector, Waters사)를 직렬로 연결하여 검출하였다. UV/VIS 검출기는 각 PAH 화합물의 머무름시간을 확인하기 위해, 그리고 형광검출기는 각 화합물에 대한 정량분석을 위해 사용되었다. 분리에 사용된 칼럼은 Hypersil Green PAH column (100 mm × 4.6 mm, 5 μm particle size, Thermo Electron Co.)이었다. 이동상으로는 CH₃CN과 물의 혼합용매를 사용하였으며, 1 mL/min의 유속으로 5분 동안 두 용매의 비율 50:50으로 유지하다가, 25분까지 CH₃CN의 비율이 50%에서 100%가 되도록 gradient elution을 한 후에, CH₃CN이 100%인 조건에서 10분 동안 용매를 흘려주었다. 연속적으로 시

Table 1. Wavelength programs of the UV/VIS and fluorescence detectors (FD)

Retention time (min)	UV/VIS wavelength (nm)	Fluorescence Ex/Em (nm)	Measured PAH
0~16.9	254	260/400	ANT
16.9~18.9		285/460	FLU
18.9~26		270/380	PYR, BaA, CHR
26~45		285/405	BaP

료를 분석할 경우 분석칼럼의 평형상태를 유지하기 위해 두 이동상의 비율을 초기의 조건인 CH₃CN 50%에서 5분 동안 흘려주어, 시료 한 개당 소요되는 분석시간은 총 45분이었다. HPLC에 사용된 두 종류의 검출기의 운용 조건은 Table 1에 나타내었다.

4. QA/QC

각 계절별로 세 지역을 순회하면서 분진시료를 채취할 때마다 두 개의 공 필터를 petri dish에 넣어 현장으로 운반하여 공시료를 얻었으며, 이러한 시료들은 분진시료를 분석하기 전에 분석하여 시료를 운반 또는 저장하는 동안에 PAHs로 오염되었는지의 여부를 점검하였다. 분석 결과 모든 공필터 시료에서 분석하고자 하는 PAHs의 성분들은 검출되지 않는 것을 확인하였다.

시료의 정량분석을 위한 검량선은 제조한 표준용액을 공필터에 spike한 후에 분진시료와 동일한 과정으로 추출하고 농축한 후 HPLC로 얻어진 결과를 이용하여 작성하였다. 각 PAH에 대해 작성된 검량선의 결정계수(*r*²)는 모두 0.997 이상으로 좋은 직선성을 나타냈다.

또한 PAHs 분석에 대한 방법검출한계 (MDL)는 S/N비 3을 기준으로 추정하였을 때 0.012~0.029 ng/m³의 범위를 나타냈고, 회수율 (recovery, %)은 ANT의 81.2%에서부터 PYR의 115.0%까지 분포하였다. 그렇지만, 공필터에 표준물질을 직접 spike하여 시료의 분석과 동일한 절차를 따라 추출하고 농축하여 분석한 결과를 가지고 검량선을 만들었기 때문에, 시료 중에 함유된 PAHs를 정량할 때 각 PAH별로 회수율에 대해 별도로 보정할 필요는 없었다. 일곱 개의 반복 시료에 대해 얻어진 변동계수(CV)는 1.2~5.8%의 분포를 보여 비교적 좋은 재현성을 나타냈다. Table 2에는 각 화합물별로

Table 2. Method detection limits (MDL) and recovery (%) for six PAHs

Compound	MDL (ng/m ³) ¹⁾	Recovery (%) ²⁾
ANT	0.014	81.2±5.8
FLU	0.015	97.5±4.0
PYR	0.029	115.0±3.9
BaA	0.022	97.0±1.2
CHR	0.020	104.5±2.6
BaP	0.012	100.1±2.9

¹⁾Based on S/N ratio of 3.

²⁾Mean ± coefficient of variation (CV) of seven measurements.

MDL과 회수율을 나타냈다.

결과 및 고찰

1. 세 지역에서 계절별 PM_{2.5} 농도 비교

서울, 울산 및 춘천에서 측정된 PM_{2.5}의 질량농도를 계절별로 시료 채취 기간, 시료 개수, 평균, 중앙값, 표준편차, 최소값 및 최대값으로 나타냈다. 또한 표의 제일 오른쪽 칸에는 각 지역별로 채취한 모든 시료에 대한 기술통계치를 나타내었다 (Table 3).

지역마다 계절에 따라 PM_{2.5} 농도의 차이가 뚜렷하여, 중앙값을 기준으로 볼 때 춘천에서는 2002년 겨울에 가장 높은 PM_{2.5}의 농도(61.7 µg/m³)를 나타냈고, 2003년 여름에 가장 낮은 농도(8.5 µg/m³)를 나타내었다. 반면에, 서울 및 울산에서 PM_{2.5}의 농도는 2003년 봄에 가장 높은 농도를(각각 55.7 및 82.5 µg/m³), 그리고 2003년 여름에 가장 낮은 농도를 나타내었다(각각 27.6 및 14.4 µg/m³). 이와 같이 PM_{2.5}의 농도가 일반적으로 겨울 또는 봄에 가장 높은 농도를 나타낸 이유로 겨울철에는 난방으로 인해 화석연료의 사용이 증가할 뿐만 아니라 기온이 낮아 연소과정이 불완전하기 때문이며 (Vecchi *et al.*, 2004), 봄에는 중국으로부터 장거리 수송되어 오는 황사로 인해 부유분진의 농도가 증가하기 때문으로 판단된다(신은상과 김희강, 1992; 김희갑 등, 2002; 김민영 등, 2003).

모든 자료에 대한 PM_{2.5}의 질량농도는 평균을 기준으로 볼 때 서울(43.3 µg/m³), 울산(41.3 µg/m³), 춘천(36.3 µg/m³)의 순서로 농도가 높았지만, 일원

Table 3. Descriptive statistics on the concentrations of PM_{2.5} collected from three cities

Site		Fall, 2002	Winter, 2002	Spring, 2003	Summer, 2003	Fall, 2003	Winter, 2003	Total
Chuncheon	Sampling period	9/27~11/16	12/26~1/11	3/24~4/18	7/30~8/9	9/23~9/29	12/3~12/14	9/27/02~12/14/03
	No. of samples	5	6	15	2	6	6	40
	Mean	22.3	69.7	39.6	8.5	9.3	42.3	36.3
	Median	24.6	61.7	40.4	8.5	9.4	39.1	32.2
	SD ¹⁾	10.9	40.3	13.9	0.9	4.2	11.8	25.9
	Minimum	5.4	19.6	17.1	7.9	3.1	29.3	3.1
	Maximum	35.0	120.9	64.2	9.2	14.6	57.4	120.9
Seoul	Sampling period	10/29~11/3	2/4~2/10	5/1~5/6	9/1~9/9	10/23~11/24	1/14~1/27	10/29/02~1/27/04
	No. of samples	5	6	6	6	6	6	35
	Mean	30.5	45.8	60.4	31.8	43.3	45.6	43.3
	Median	30.0	41.3	55.7	27.6	38.2	40.1	41.3
	SD	15.3	10.8	13.2	15.8	20.2	19.0	17.9
	Minimum	16.7	36.7	47.9	16.2	22.6	26.4	16.2
	Maximum	55.4	66.7	82.5	60.6	73.1	78.1	82.5
Ulsan	Sampling period	10/8~10/13	2/12~2/18	5/19~5/24	8/10~8/14	10/14~10/19	2/5~2/10	10/8/02~2/10/04
	No. of samples	4	6	5	4	5	5	29
	Mean	26.9	63.2	80.0	20.1	21.7	24.5	41.3
	Median	24.6	65.2	82.5	14.4	22.3	21.9	27.2
	SD	10.4	23.1	12.8	14.1	6.3	6.8	27.3
	Minimum	18.3	25.0	63.8	10.8	11.5	20.0	10.8
	Maximum	40.0	87.1	96.7	40.9	27.2	36.4	96.7

¹⁾Standard deviation.

배치 분산분석 결과 세 지역간의 평균값에는 차이가 없었다($P=0.430$). 중앙값을 기준으로 볼 때에는 서울 ($41.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 춘천 ($32.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 울산 ($27.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$)의 순서로 높았지만, 독립 K-표본 Kruskal-Wallis 검정을 실시한 결과 세 지역간의 차이는 발견되지 않았다($P=0.161$). 따라서 세 지역간의 PM_{2.5}의 농도는 거의 유사한 수준이었다.

여천공단 내 10개 가정의 실외에서 1997년 2, 5월 및 7, 8월에 PM_{2.5}의 농도를 측정된 결과(전준민 등, 2001), 겨울에 $47.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 여름에는 $36.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 그리고 봄에는 $26.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 측정되어 겨울에 가장 높은 농도를 냈으며, 세 계절을 모두 포함한 평균농도는 $37.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 이 연구에서와 유사한 농도를 나타냈다. 반면에 2000년부터 2001년에 걸쳐 이 연구에서와 동일한 지점인 서울의 한양대학교 의학관 옥상에서 PM_{2.5}를 측정된 결과에서는

(조용성 등, 2003) 일반적인 계절 분포인 겨울철 농도가 가장 높았으며 ($33.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 여름에 가장 낮은 농도를 기록하였고($14.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 사계절을 모두 포함한 평균농도는 $24.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 이 연구에서 측정된 농도의 약 반 정도의 수준으로 측정되었다. 또한 서울 성북구에 위치한 동덕여대 옥상에서 측정된 결과에서는 2, 3월에 걸친 PM_{2.5}의 평균농도는 $39.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 그리고 4월 말의 평균은 $37.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이었다(박은정 등, 2005).

이 연구에서 얻어진 PM_{2.5}의 질량농도를 미국 NAQSS의 24시간 PM_{2.5} 일일 평균 기준치인 $65 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (U.S. EPA, 1997)와 비교하여 초과일수 및 초과비율을 알아보았다. 2002년 가을과 2003년 여름에는 세 지역 모두에서 기준치를 초과하는 일수가 단 하루도 없었던 반면에, 2002년 겨울과 2003년 봄에는 초과일수가 높게 나타났다. 2002년 겨울

Table 4. The concentrations (median \pm standard deviation) of five PAHs on filters collected from three cities

Season	Site	FLU	PYR	BaA	CHR	BaP	Total
Fall, 2002	Chuncheon	0.015 \pm 0.65	0.029 \pm 0.84	0.11 \pm 0.43	0.38 \pm 1.1	0.22 \pm 0.93	0.67 \pm 3.96
	Seoul	1.9 \pm 1.0	2.0 \pm 1.0	1.9 \pm 1.7	3.1 \pm 1.3	3.2 \pm 2.0	12.0 \pm 3.6
	Ulsan	0.12 \pm 0.55	0.22 \pm 0.13	0.078 \pm 0.057	0.89 \pm 0.45	0.61 \pm 0.34	1.8 \pm 1.3
Winter, 2002	Chuncheon	4.7 \pm 1.4	4.7 \pm 2.8	3.5 \pm 1.0	5.4 \pm 2.0	3.9 \pm 3.0	24.0 \pm 8.7
	Seoul	0.80 \pm 1.06	0.70 \pm 1.06	0.53 \pm 0.25	1.5 \pm 0.5	0.89 \pm 0.28	4.7 \pm 3.1
	Ulsan	0.88 \pm 0.68	1.0 \pm 0.7	0.46 \pm 0.45	1.5 \pm 2.1	0.60 \pm 0.45	4.3 \pm 3.3
Spring, 2003	Chuncheon	0.81 \pm 0.37	1.0 \pm 0.5	0.31 \pm 0.21	0.86 \pm 0.29	0.66 \pm 0.23	3.4 \pm 1.4
	Seoul	0.82 \pm 1.56	1.3 \pm 0.4	0.54 \pm 0.61	0.95 \pm 0.42	0.66 \pm 0.21	4.8 \pm 1.8
	Ulsan	0.30 \pm 0.17	0.70 \pm 0.36	0.16 \pm 0.23	1.1 \pm 1.1	0.58 \pm 0.42	2.9 \pm 2.1
Summer, 2003	Chuncheon	0.24 \pm 0.08	0.65 \pm 0.17	0.058 \pm 0.416	9.0 \pm 5.1	0.22 \pm 3.65	12.2 \pm 7.2
	Seoul	0.16 \pm 0.07	0.58 \pm 0.19	0.13 \pm 0.09	0.77 \pm 0.19	0.35 \pm 0.17	2.0 \pm 0.5
	Ulsan	0.11 \pm 0.06	0.51 \pm 0.20	0.096 \pm 0.059	0.77 \pm 0.09	0.20 \pm 0.03	1.6 \pm 0.3
Fall, 2003	Chuncheon	0.58 \pm 0.41	0.85 \pm 1.23	0.85 \pm 0.51	1.0 \pm 0.7	0.35 \pm 1.14	3.5 \pm 3.6
	Seoul	0.46 \pm 0.36	0.95 \pm 1.35	0.71 \pm 0.56	0.93 \pm 0.73	0.53 \pm 1.20	3.3 \pm 4.0
	Ulsan	0.14 \pm 0.11	0.029 \pm 0.005	0.17 \pm 0.22	0.020 \pm 0.000	0.012 \pm 0.000	0.42 \pm 0.30
Winter, 2003	Chuncheon	3.0 \pm 1.8	2.3 \pm 2.1	2.1 \pm 1.1	4.7 \pm 2.6	0.65 \pm 0.69	12.7 \pm 7.4
	Seoul	5.1 \pm 1.9	4.2 \pm 1.8	0.77 \pm 1.36	4.4 \pm 2.3	0.28 \pm 0.50	16.6 \pm 6.2
	Ulsan	1.3 \pm 0.5	0.60 \pm 0.36	0.022 \pm 0.068	0.99 \pm 0.45	0.012 \pm 0.000	2.9 \pm 1.2

에 춘천과 울산에서는 채취일 중 각각 50% (3/6)가 이 기준치를 초과하였고, 서울에서는 6일 중 하루 (17%)가 초과하였다. 2003년 봄에는 춘천에서 15일 중 하루도 이 기준치를 초과하지 않았지만, 서울과 울산에서는 채취일 중 각각 33% (2/6) 및 80% (4/5)가 이 기준치를 초과하였다. 반면에 2003년 가을과 겨울에는 서울에서만 각각 6일 중 하루 (17%)가 이 기준치를 초과하였다. 이와 같은 결과로 미루어 볼 때 대상 지역에서 특히 겨울과 봄에 미세분진에 의한 대기오염이 인체 건강에 영향을 줄 수 있음을 시사하고 있다.

2. PAHs의 농도 및 분포 특성

Table 4에서는 계절별, 지역별로 나누어 PAH 각각 및 총 농도에 대한 중앙값과 표준편차를 나타냈다. 분자량이 작아 대기 중에서 대부분 기체상으로 존재하는 ANT는 춘천에서는 85.0%, 서울에서는 85.7%, 그리고 울산에서는 89.7%가 검출한계 (0.014 ng/m³) 이하로 나타나 자료의 분석에서 제외시켰다. 한편, BaP의 경우에는 2003년 가을과 겨울의 모든 울산 시료에서 검출한계 (0.012 ng/m³) 이하였다.

중앙값과 표준편차를 이용하여 계절별로 다섯

가지 PAHs의 총 농도를 지역간에 비교하였을 때, 2002년 겨울(24.0 ng/m³)과 2003년 여름(12.2 ng/m³)에는 춘천에서 다른 두 지역에 비해 약 6~8배 높은 값을 나타내었고, 2002년 가을에는 서울(12.0 ng/m³)이 울산 및 춘천에 비해 각각 7배 및 18배 높은 값을 나타내어, 각 계절별로 세 지역간에는 큰 차이를 나타내었다. 이는 통계적으로 비모수검정 중 독립 K-표본 Kruskal-Wallis 검정을 실시하였을 때, 2002년 가을에는 신뢰수준 90%에서, 2003년 봄과 겨울에는 95% 수준에서, 그리고 2002년 겨울과 2003년 봄 및 가을에는 99%의 신뢰수준에서 각 계절별로 지역간에 유의한 차이를 나타내었다. 세 지역 중에서 울산이 전반적으로 다른 지역에 비해 낮은 수준을 나타내었는데, 이는 시료를 채취한 선암초등학교가 위치한 지점이 공단에 인접해 있어 오염물질의 배출량은 비교적 높을 것으로 예상되지만, 바다가 가까이 위치하고 있어 동해로부터의 맑은 공기가 시료 채취 지역의 오염된 공기를 희석시키기 때문인 것으로 생각된다. 반면에 춘천은 규모가 비교적 작은 도시임에도 불구하고 높은 농도의 PAHs를 나타내었는데, 이는 총 배출량은 비교적 적지만 춘천이 내륙에 위치하고 있고 주위의 사면이 높은 산으로 둘러싸여 있는 전

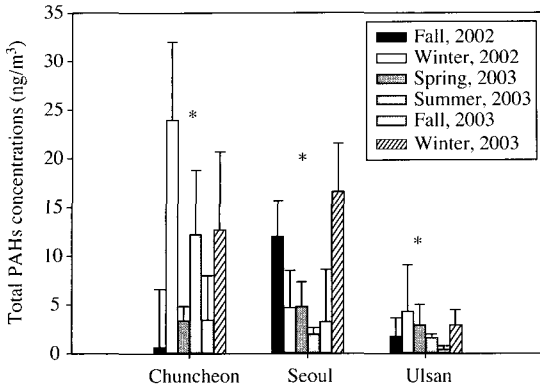


Fig. 2. Seasonal variations of total PAHs in each study site. *Significantly different at a 99% confidence level.

형적인 분지형의 도시이기 때문에 주변으로의 확산에 의한 희석이 잘 일어나지 않기 때문인 것으로 판단된다. 게다가 춘천은 대도시인 서울의 풍하측에 위치하고 있어, 서울로부터 다른 오염물질들과 함께 미세분진도 춘천으로 수송되어 음으로써 비교적 고농도를 나타낸 것으로 사료된다.

Fig. 2에서는 지역별로 계절에 따른 다섯 가지 PAHs의 총 농도를 서로 비교하였다. 춘천에서는 2002년 겨울의 농도가 다른 계절에 비해 매우 높았으며, 특이할만하게 2003년 여름의 농도가 2003년 겨울과 거의 유사한 수준으로 높게 측정되었다. 서울에서는 2003년 겨울에 가장 높은 농도를 나타냈고, 2002년 가을에 그 다음으로 높았으며, 2003년 여름에 가장 낮은 농도를 보였다. 반면에 울산의 경우에는 모든 계절을 통해 다른 두 지역에 비해 총 PAHs의 농도가 낮게 측정되었지만, 일반적인 계절 분포인 2002년 겨울에 가장 높은 농도를 나타냈다. 그렇지만 울산에서의 가장 낮은 농도는 2003년 가을에 나타났으며, 그 다음의 낮은 농도는 2003년 여름에 측정되었다.

전체적으로 볼 때 지역간에 다소 차이가 있기는 하지만, PAHs의 농도는 여름에 낮고 겨울에 가장 높은 경향을 나타내어 다른 연구에서와 유사한 결과를 나타내었다(박성은과 정용, 1992; 조기철 등, 1994; 정용 등, 1998a; Caricchia *et al.*, 1999; Menichini *et al.*, 1999; Guo *et al.*, 2003). 이와 같이 여름에 입자상 PAHs의 농도가 낮은 이유는 높은 기온과 많은 일사량으로 인해 열 및 광분해가 촉진될

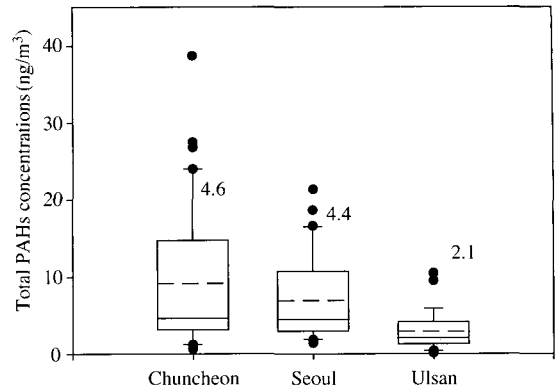


Fig. 3. Comparison of total PAHs among three cities. The solid lines in the box plots and the numbers above the boxes indicate median values.

뿐만 아니라, 분자량이 작은 PAHs가 입자상보다는 기체상으로 존재하는 비율이 높기 때문이다. 또한 여름에는 잦은 호우로 인해 대기 중의 오염물질이 씻겨 제거되기 때문이다(Masclat *et al.*, 1988; Kaupp and McLachlan, 1999). 반면에, 겨울에 PAHs의 농도가 높은 이유는 난방의 증가로 인해 화석연료의 사용이 증가되고 낮은 기온 때문에 연소과정이 불완전하여 PAHs의 발생량이 증가하기 때문인 것으로 해석된다(Baek *et al.*, 1991; 백성욱과 최진수, 1998; 최진수와 백성욱, 2003).

Fig. 3에서는 모든 계절을 통틀어 세 지역간에 다섯 가지 PAHs의 농도의 합을 비교하였다. 중앙값은 춘천과 서울이 거의 유사한 수준인 4.6과 4.4 ng/m³이었고, 울산은 두 지역의 반 정도 되는 2.1 ng/m³이었다. 자료가 정규분포가 아니고 분산도 서로 동일하지 않기 때문에 비모수검정인 Kruskal-Wallis 검정을 실시한 결과, 지역간의 총 PAHs의 농도는 99%의 유의수준에서 통계적으로 모두 같지는 않아 울산이 춘천 및 서울보다 측정된 다섯 가지 PAHs의 총 농도가 낮았다.

Lee 등(2003)은 2002년 청주에서 겨울(1, 2월)과 여름(7, 8월)에 대기 분진 및 PUF (polyurethane foam) 시료를 채취하여 11가지의 PAHs에 대해 측정하였는데, 본 연구에 포함된 다섯 가지 PAHs의 입자상 농도 합은 겨울에 4.8 ng/m³이고 여름에는 0.14 ng/m³로 약 34배 겨울에 높았다. 청주에서의 겨울철 농도는 같은 해 서울(4.7 ng/m³) 및 울산

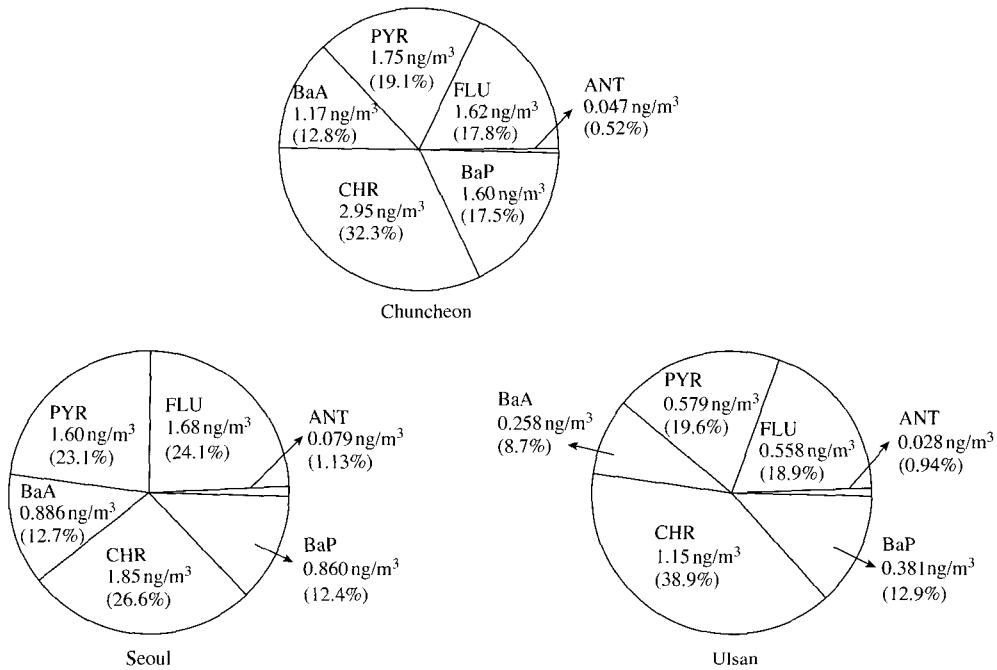


Fig. 4. Concentration distributions of the five PAHs in three cities.

(4.3 ng/m³)에서와 유사한 수준이었지만, 춘천에 비해서는 (24.0 ng/m³) 매우 낮은 수준이었다. 반면에 2003년 여름에 세 지역에서 측정된 PAHs의 농도는 2002년 여름에 청주에서 측정된 값에 비해 춘천은 87배 (12.2 ng/m³), 서울은 14배 (2.0 ng/m³), 그리고 울산은 11배 (1.6 ng/m³) 더 높았다.

Fig. 4에서는 각 지역별로 모든 계절을 통틀어 각 PAH의 농도의 평균을 모두 더한 값의 분포를 보여주고 있다. 세 지역에서 모두 CHR의 농도가 가장 높은 비율을 차지하였고, 특히 울산에서는 다른 두 지역에 비해 농도가 낮기는 하지만 CHR의 비율이 약 40%에까지 이르렀다. 춘천과 울산에서는 CHR > PYR > FLU > BaP > BaA의 분포를 보인 반면에서, 서울에서는 CHR > FLU > PYR > BaA > BaP의 분포를 나타냈다. 한편 2002년 겨울에 청주에서 측정된 결과에서는 FLU > PYR > CHR > BaA > BaP의 순서로 농도 분포를 보였고, 여름에는 CHR의 농도가 가장 높아 (0.051 ng/m³) 나머지 BaA, PYR, BaP 및 FLU에 비해 약 두 배 높게 나타났다 (Lee *et al.*, 2003). FLU, PYR, CHR 및 BaA와 같은 4개의 고리를 갖는 PAHs는 특히 디

젤 차량에서 많이 배출되는 것으로 알려져 있어 (Masclet *et al.*, 1988; 정용 등, 1998b; 최성우와 윤성훈, 2000) PAHs의 주된 오염원이 자동차에서 비롯되고 있음을 보여 주었다.

3. BaP 독성등가에 의한 PAHs 발암위해도 비교

Nisbet and LaGoy (1992)는 BaP를 기준으로 각 PAH 화합물에 대한 상대적인 발암성을 독성등가 계수 (Toxic Equivalency Factors, TEFs)로 제안하였다. 이 연구에서 분석된 다섯 가지 PAH 각각의 측정 농도의 평균을 각각의 TEF와 곱하여 독성등가 농도 (Toxic Equivalent, TEQ)를 산출한 후에 이들의 합을 발암위해도로 산출하여 지역간에 비교하였다 (Table 5). 각 지역별로 계산된 TEQ값은 춘천이 1.73 ng/m³로 가장 높고, 서울 0.971 ng/m³, 그리고 울산 0.419 ng/m³ 순이었다.

따라서 이 연구에서 측정된 다섯 가지의 PAHs만을 고려할 때, PM_{2.5} 중에 함유된 PAHs에 대한 흡입노출과 관련된 건강위해도는 춘천 > 서울 > 울

Table 5. BaP toxic equivalents (TEQs) of particulate PAHs at three sampling sites

Component	TEF	Chuncheon		Seoul		Ulsan	
		Mean conc. (ng/m ³)	TEQ	Mean conc. (ng/m ³)	TEQ	Mean conc. (ng/m ³)	TEQ
FLU	0.001	1.62	0.0016	1.68	0.00168	0.56	0.00056
PYR	0.001	1.75	0.0018	1.60	0.0016	0.58	0.00058
BaA	0.1	1.12	0.112	0.89	0.089	0.26	0.026
CHR	0.01	2.95	0.0195	1.85	0.0185	1.15	0.0115
BaP	1	1.60	1.60	0.86	0.86	0.38	0.38
Total			1.73		0.971		0.419

산의 순인 것으로 나타났다. 이 연구에서는 기체상의 PAHs가 측정되지 않았을 뿐만 아니라 다른 PAHs 성분들이 측정되지 않아 춘천이 다른 두 지역에 비해 PAHs로 인한 발암위해도가 높다고 단정할 수는 없지만, 일반적으로 청정한 공기를 보유하고 있는 것으로 생각되어 왔던 춘천이 대도시인 서울 수준으로 미세분진과 PAHs로 오염되어 있다는 것을 알 수 있다.

Fang 등 (2004)은 대만에서 여름부터 겨울에 걸쳐 산업, 도시 및 시골 지역에 대해 기체상과 입자상의 PAHs를 분석하여 서로 비교하였을 때, 산업 (17 vs. 4.24 ng/m³) 및 도시 (12.6 vs. 5.26 ng/m³) 지역에서는 BaP TEQ가 기체상에서 더 높게 나타난 반면에, 시골 (7.27 vs. 8.97 ng/m³) 지역에서는 입자상이 발암위해도에 약간 더 높게 기여하는 것으로 나타났다. 그리고 입자상과 기체상으로 통틀어 BaP TEQ를 비교하였을 때에는 산업지역 > 도시지역 > 시골 지역의 순이었지만, 입자상만을 고려하였을 때에는 시골지역 > 도시지역 > 산업지역의 순으로 나타나 도시의 특성에 따라 입자상과 기체상의 PAHs의 분포가 달라 기여하는 발암위해도가 다르다는 것으로 보여주었다.

이 연구에서는 사용 가능한 시료 채취기가 하나이었기 때문에 각 도시마다 한 지점으로부터 시료를 채취하여 측정된 자료가 각 도시를 대표할 수 없는 한계를 가지고 있다. 그럼에도 불구하고 시료를 채취한 지점이 각 도시마다의 특성을 나타내는 환경을 가지고 있어, 이 연구에서의 결과는 중소도시, 대도시 및 산업도시에서 미세분진 및 그 중에 함유된 PAHs의 구성 특성을 어느 정도 보여주고 있다고 할 수 있다. 보다 나은 자료를 얻기 위해서는 각 도시마다 더 많은 지점으로부터 시료를 채

취하는 것이 필요하다.

결론

중도시인 춘천, 대도시인 서울, 그리고 산업도시인 울산을 순회하면서 미세분진 (PM_{2.5})을 채취하여 질량농도 및 PAHs의 농도를 서로 비교한 결과 다음의 결론을 얻었다.

PM_{2.5}의 농도는 각 지역별로 겨울 또는 봄에 높게 나타났는데, 이는 겨울에는 난방 등의 목적으로 화석연료의 사용이 다른 계절에 비해 증가하고, 그리고 봄에는 중국으로부터 한반도로 황사가 유입되기 때문인 것으로 생각된다. 그렇지만, 채취한 모든 분진시료에 대해 세 지역간 PM_{2.5}의 농도를 비교하였을 때 통계적인 차이가 없었다.

다섯 가지 PAHs의 총 농도를 계절별로 나누어 지역간에 비교하였을 때, 모든 경우에 통계적인 차이를 나타내었고, 춘천 또는 서울에서 가장 높은 농도를 나타냈다. 특히 화석연료의 사용이 증가하는 겨울에 높은 PAHs의 농도를 나타냈고, 춘천을 제외하고 여름 또는 가을에 가장 낮은 농도를 나타냈다. 그리고 모든 시료를 통틀었을 때 세 지역 모두에서 PAHs 중 chrysene의 농도가 가장 높은 비율을 나타내, 디젤 차량으로 인한 배출이 PAHs 배출의 주요한 부분을 차지하는 것을 보여주었다. 다섯 가지 PAHs에 대하여 BaP 독성동가계수 (TEF)를 적용시켜 산출한 발암위해도는 춘천 > 서울 > 울산의 순으로 나타났다.

이와 같은 결과로 미루어 볼 때, 일반적으로 청정한 공기를 보유하고 있는 것으로 알려진 춘천이 서울이나 울산과 같은 대도시나 산업도시와 거의

유사한 수준으로 미세분진에 의해 오염되어 있어, 이로부터 비롯되는 건강영향 연구와 더불어 미세분진에 의한 대기오염의 원인을 밝히기 위한 후속연구가 차후에 필요할 것으로 사료된다. 반면에 석유화학단지가 위치하고 있는 울산은 다른 두 지역과 유사한 수준으로 미세분진에 의해 오염되어 있기는 하지만, 많은 발암물질을 함유하고 있는 PAHs에 덜 오염되어 있음을 알 수 있다.

따라서 미세분진에 의한 오염을 비롯한 대기오염은 그 지역에서의 자체 발생량 뿐만 아니라 주변 도시의 성격, 기상적인 요인, 지형적인 여건 등에 의해 영향을 받기 때문에 이러한 요인들을 복합적으로 고려해 다루어야 함을 알 수 있다.

감사의 글

이 연구는 환경부의 차세대 핵심환경기술개발사업 (Eco-technopia 21 Project)의 지원에 의해 수행되었으며, 이에 감사 드립니다.

참 고 문 헌

김민영, 조석주, 김광래, 이민환. 황사기간 중 PM_{2.5}, PM₁₀, TSP 농도 특성에 관한 연구, J. Kor Earth Sci Soc 2003; 24: 315-324.

김창환, 전보경, 최금찬. 도시지역의 PM₁₀과 PM_{2.5}의 계절 농도 및 특성에 관한 연구, 동아대학교 환경문제연구 소 연구보고 1999; 22: 29-37.

김희갑, 정경미, 김동진, 이종태. 춘천에서 2002년 봄철 황사 발생기간 동안에 채취된 미세분진 중 무기성분의 특성, 한국환경독성학회지 2002; 17: 333-339.

박성은, 정용. 서울시 대기부유분진의 농도와 다환방향족 유기물질에 의한 발암위해성, 한국대기보전학회지 1992; 8: 247-256.

박은정, 강미선, 유대은, 김대선, 유승도, 정규혁, 박광식. 서울북부 지역 미세먼지에 함유된 유해 중금속의 분석 및 건강위해성평가, 한국환경독성학회지 2005; 20: 179-186.

백성욱, 최진수. 환경대기중 다환방향족탄화수소의 출현양상과 거동(I)-지역적 및 계절적 농도 분포, 대한환경공학회지 1996; 18: 465-480.

백성욱, 최진수. 대기 중 다환방향족탄화수소의 기체-입자상 농도분포에 미치는 주변 온도의 영향, 한국대기보

전학회지 1998; 14: 117-131.

신은상, 김희강. 서울시에서 대기부유먼지에 대한 황사의 영향, 한국대기보전학회지 1992; 8: 52-57.

이종태, 이성임, 신동천, 정용. 울산시의 대기 중 분진과 일별 사망에 대한 연구, 예방의학회지 1998; 31: 82-90.

임종한, 이종태, 김동기, 신동천, 노재훈. 서울지역 대기오염이 호흡기계질환 수진 건수에 미치는 단기영향에 관한 연구, 대한산업의학회지 1998; 10: 333-342.

전준민, 김성우, 김윤신. 여천공단내 실내·외 미세분진 중의 화학원소 농도 및 발생원 추정에 관한 연구, 대한환경공학회지 2001; 23: 305-317.

정 용, 박성은, 황만식, 홍지연. 대기 중 다환방향족 탄화수소류의 오염도 변화 특성, 한국환경독성학회지 1998a; 13: 43-53.

정 용, 박성은, 황만식. 대기 부유분진 중 다환방향족 탄화수소류의 계절적 입경농도 분포 변이, 한국대기보전학회지 1998b; 14: 577-588.

조기철, 이승일, 김달호, 허귀석, 김희강. 도시대기부유분진 중 다환방향족 탄화수소의 농도 및 입경 분포 특성, 한국대기보전학회지 1994; 10: 57-63.

조용성, 이홍석, 김윤신, 이종태, 박진수. 서울 성동구 지역 미세먼지의 화학적 조성에 관한 연구, 한국환경과학회지 2003; 12: 665-676.

최성우, 윤성훈. 대구지역 부유분진중 Polycyclic Aromatic Hydrocarbons의 발생원 특성, 한국환경위생학회지 2000; 26: 34-40.

최진수, 백성욱. 도시 대기 중 PM₁₀에 함유된 다환방향족 탄화수소의 농도분포특성과 주요 영향인자, 한국대기환경학회지 2003; 19: 33-44.

Adams HS, Nieuwenhuijsen, MJ, Colville, RN, McMullen, MAS and Khandelwal, P. Fine particle (PM_{2.5}) personal exposure levels in transport microenvironment, London, UK, Sci Total Environ 2001; 279: 29-44.

Baek SO, Goldstone M, Kirk P, Lester JN and Perry R. Polycyclic aromatic hydrocarbons: sources, fate and behavior, Int J Water Air Soil Pollution 1991; 60: 279-300.

Bahadori T, Suh H and Koutrakis P. Issues in human particulate exposure assessment: Relationship between outdoor, indoor, and personal exposures, Human Ecol Risk Assess 1999; 5: 459-470.

Caricchia AM, Chivarini S and Pezza M. Polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban atmospheric particulate matter in the city of Naples (Italy), Atmos Environ 1999; 33: 3731-3738.

Guo H, Lee SC, Ho KF, Wang XM and Zou SC. Particle-associated polycyclic aromatic hydrocarbons in urban air of Hong Kong, Atmos Environ 2003; 37: 5307-5317.

IARC. Polycyclic Aromatic Compounds, Part 1: Chemical,

- Environmental and Experimental Data. Vol. 32. Lyon, France, IARC Working Group on the Evaluation of the Carcinogenic Risk of Chemicals to Humans, 1983.
- Kaupp H and McLachlan MS. Atmospheric particle size distribution of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans (PCDD/Fs) and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and their implications for wet and dry deposition. *Atmos Environ* 1999; 33: 85-95.
- Korrick SA, Neas LM, Dockery DW, Gold DR, Allen GA, Hill LB, Kimball KD, Rosner BA and Speizer FE. Effects of ozone and other pollutants on the pulmonary function of adult hikers. *Environ Health Perspect* 1998; 106: 93-99.
- Lee HS, Kang B-W, Kwon D-H, Yeo H-G and M-Y. A study on the concentration characteristics of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in Chongju, J Kor Soc Atmos Environ 2003; 19: 89-97.
- Lee JT, Shin D and Chung Y. Air pollution and daily mortality in Seoul and Ulsan, Korea. *Environ Health Perspect* 1999; 107: 149-154.
- Levy JI, Hammitt JK and Spengler JD. Estimating the mortality impacts of particulate matter: What can be learned from between-study variability? *Environ Health Perspect* 2000; 108: 109-117.
- Masclat P, Mouvier G and Nikolaou K. Relative decay index and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons. *Atmos Environ* 1988; 20: 439-446.
- Masclat P, Pistikopolous P, Beybe S and Mouvier G. Long range transport and gas/particle distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons at a remote site in the Mediterranean sea. *Atmos Environ* 1988; 22: 639-650.
- Menichini E, Monfredini F and Merli F. The temporal variability of the profile of carcinogenic polycyclic aromatic hydrocarbons in urban air: a study in a medium traffic area in Rome, 1993-1998. *Atmos Environ* 1999; 33: 3739-3750.
- Menzie CA, Potocki BB and Santodonato J. Exposure to carcinogenic PAHs in the environment. *Environ Sci Technol* 1992; 26: 1278-1284.
- Monn C. Exposure assessment of air pollutants: a review on spatial heterogeneity and indoor/outdoor/personal exposure to suspended particulate matter, nitrogen dioxide and ozone. *Atmos Environ* 2001; 35: 1-32.
- Neas LM, Schwartz J, Dockery DW, Gold DR, Allen GA, Hill LB, Kimball, KD, Rosner BA and Speizer FE. A case-crossover analysis of air pollution and mortality in Philadelphia. *Environ Health Perspect* 1999; 107: 629-631.
- Nisbet C and LaGoy P. Toxic equivalency factors (TEFs) for polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs). *Regul Toxicol Pharmacol* 1992; 16: 290-300.
- Peters A, Liu E, Verrier RL, Schwartz J, Gold DR, Mittleman M, Baliff J, Oh JA, Allen G, Monahan K and Dockery DW. Air pollution and incidence of cardiac arrhythmia. *Epidemiol* 2000; 11: 11-17.
- Phalen RF. Particulate Air Pollution Controversy-ACase Study and Lessons Learned. Kluwer Academic Publishers, 2002.
- Rogge WF, Hildemann LM, Mazurek MA, Cass GR and Simonelt BRT. Source of fine organic aerosol. I. Charbroilers and meat cooking operations. *Environ Sci Technol* 1991; 25: 1112-1125.
- Schwartz J, Dockery DW and Neas LM. Is mortality associated specifically with fine particles? *J Air Waste Manage Assoc* 1996; 46: 927-939.
- Tucker WG. An overview of PM_{2.5} sources and control strategies. *Fuel Process Technol* 2000; 65-66: 379-392.
- U.S. EPA. National Ambient Air Quality Standards for Particulate Matter, Final Rule 40 CFR, part 50. *Fed Regist* 1997; 62: 38651-38760.
- U.S. EPA. List of Designated Reference and Equivalent Methods. National Exposure Research Laboratory, Research Triangle Park, NC, USA, October 9, 2003.
- Vecchi R, Marcazzan G, Valli G, Ceriani M and Antoniazzi C. The role of atmospheric dispersion in the seasonal variation of PM₁ and PM_{2.5} concentration and composition in the urban area of Milan (Italy). *Atmos Environ* 2004; 38: 4437-4446.
- Westerholm R, Almen J, Li H, Rannug U and Rogen A. Exhaust emissions from gasoline fuelled light duty vehicles operated in different driving conditions: a chemical and biological characterization. *Atmos Environ Part B* 1992; 26(B): 79-90.
- WHO. Air Quality Guidelines for Europe. WHO European Ser No 23, 1987.
- <http://www.thermo.com/com/cda/product/detail/1,1055,19890,00.html>