J. ENVIRON. TOXICOL.
Vol. 21, No. 1, 57~69 (2006)

춘천의 가정에서 미세분진 ($PM_{2.5}$)과 입자상 다환방향족탄화수소에 대한 계절적 노출 변동

김 희 갑※, 정 경 미

강원대학교 환경과학과

Seasonal Variations of Human Exposure to Residential Fine Particles ($PM_{2.5}$) and Particle-Associated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Chuncheon

Hekap Kim※ and Kyung-Mi Jung

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

ABSTRACT

Lately human exposure to fine particles smaller than 2.5 μm in aerodynamic diameter ($PM_{2.5}$) has become a great concern in Korea due to their possible cause of elevated mortality, lung function decrements, and more frequent hospital admissions for asthma. This study was conducted to investigate seasonal variations of human exposure to residential $PM_{2.5}$ and particle-associated polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs). Ten homes in Chuncheon, Korea were visited for continuous 72 hour sampling of $PM_{2.5}$ in the living rooms using a MiniVol Portable Sampler from December 22, 2002 to November 3, 2003. During the same period, outdoor $PM_{2.5}$ samples were collected on the top of the Natural Sciences Building of Kangwon National University which is located in the middle of the ten households. Samples were analyzed for $PM_{2.5}$ mass concentrations and six selected PAHs. In two smoking homes, the highest $PM_{2.5}$ concentrations were measured ranging from 51.1 to 69.7 $\mu g/m^3$ on average in all seasons, indicating smoking is a very important contributor to the elevation of indoor particle concentrations. Seasonal comparison showed that indoor particle concentrations were higher than outdoor ones except winter. Total PAH concentrations in smoking homes were highest in winter among the seasons primarily due to low ventilation rate, followed by the outdoor site and nonsmoking homes. BaP toxic equivalents (TEQs) were calculated for five PAHs. The TEQ for smoking homes in winter was highest followed by the outdoor site in winter. It is concluded that smoking and ventilation rate are two important contributors to the elevation of indoor $PM_{2.5}$ and PAH concentrations.

Key words : fine particle, indoor, polycyclic aromatic hydrocarbons, $PM_{2.5}$, seasonal variation

서 론

역학연구에 따르면 실외공기 중 공기역학적 직경이 2.5 μm 이하인 미세분진 ($PM_{2.5}$)에 대한 노출

※To whom correspondence should be addressed.
Tel: +82-033-250-8577, Fax: +82-033-251-3991
E-mail: kimh@kangwon.ac.kr

은 사망률, 호흡 기능, 그리고 심장혈관 질환으로 인한 입원 등과 밀접한 관련이 있는 것으로 알려져 있다(Schwartz *et al.*, 1996; Korrick *et al.*, 1998; Neas *et al.*, 1999; Peters *et al.*, 2000). 그런데 이와 같은 연구 결과는 실외분진의 농도가 실내분진의 농도와 큰 차이가 없다는 것을 전제로 하고 있다고 볼 수 있다. 왜냐하면 대부분의 사람들은 실외에서 적은 시간을 보내고, 실내에서 80~90% 이상의 시간을 보내기 때문이다(Jenkins *et al.*, 1992; Özkaynak and Spengler, 1996).

지금까지 실내외 간의 분진 농도 관계에 대해 비교적 많은 연구들이 수행되었다. 흡연이나 요리와 같은 실내 배출원이 뚜렷하게 없거나 청소 등과 같은 실내 활동이 없는 가정에서 실외공기 중의 분진은 실내분진의 주된 오염원인 것으로 확인되었고, 이 경우 실내분진의 농도는 실외분진의 농도보다 낮아 실내 : 실외 농도비는 1보다 작은 것으로 나타났다(Wallace, 1996; Monn *et al.*, 1997; Kingham *et al.*, 2000; Monn, 2001). Wallace (1996)는 미세분진의 실내 배출원이 없다면 실내분진의 농도는 실외 농도의 약 65% 수준일 것으로 추정했다. 반면에 Dockery와 Spengler (1981)는 실외 공기가 집 안으로 침투하는 정도가 자연환기를 하는 경우에는 실내분진 농도의 약 70%, 그리고 공기조절기를 가동시키는 가정에 대해서는 약 30% 기여하는 것으로 평가하였다. 한편 뚜렷한 실내 배출원이 없는 가정에서 실외분진은 $PM_{2.5}$에 대해 실내 농도에 약 75% 기여하고, 흡연과 가스를 사용하는 요리와 같은 뚜렷한 배출원이 있는 가정에서는 55~60% 정도 기여하는 것으로 보고하였다(Özkaynak *et al.*, 1996). 그리고 교통량이 많은 거리에 인접해 있는 가정에서 실외 $PM_{2.5}$의 농도는 교통량이 낮은 지역에 위치한 가정에 비해 15~20% 더 높은 것으로 나타나 거리의 교통량이 실외분진의 주요한 요인임을 알 수 있었다(Fischer *et al.*, 2000).

실내분진의 배출원에 대해 수행된 여러 연구에서 가장 크게 중요한 배출원은 흡연이고(Dockery and Spengler, 1981; Neas *et al.*, 1994), 그 외에 그릴로 굽는 요리 (grilling)나 기름으로 튀기는 요리 (frying) 과정(He *et al.*, 2004), 진공 청소, 먼지 털기, 장작이나 숯을 이용한 난로 등도 주요 오염원인 것으로 확인되었다(Santanam *et al.*, 1990; Quackenboss *et al.*, 1991; Özkaynak *et al.*, 1996; Chiang *et al.*, 1999). 또한 환기는 실내공기 중 분진의 농도를 좌우하는 중요한 요인인 것으로 밝혀졌는데, 흡연자가 있는 가정에 있어서 환기를 비교적 자주하는 여름에 비해 환기를 적게 하는 겨울에 분진의 농도가 훨씬 더 높게 측정되었다(Spengler *et al.*, 1981; Quackenboss *et al.*, 1991).

한편 Koistinen 등(2001)이 Finland의 Helsinki에 거주하는 201명의 참가자들을 대상으로 실시한 연구에서 $PM_{2.5}$에 대한 개인노출은 흡연자이든 비흡연자이든 상관없이 거주지의 실외, 거주지의 실내 및 작업장 실내의 농도보다 높았다. 또한 흡연자에게 있어서의 개인노출은 간접흡연자 및 비흡연자보다 높았으며 흡연자가 가정에서 흡연을 할 때 평균 실내농도는 흡연자가 없는 경우보다 약 2배 정도 높게 측정되었다. 단순회귀분석의 결과, 개인노출에 대해 가장 잘 예측할 수 있는 것은 거주지의 실내 농도인 반면에, 거주지의 실외와 고정된 장소에서의 대기 중 농도만으로는 개인노출을 충분히 예측하지 못하는 것으로 나타났다. 따라서 대기 중 부유분진에 대한 노출로부터 비롯되는 건강영향을 평가하는데 있어서 개인노출량을 측정할 수 없을 경우에는, 거주지의 실내분진 농도를 측정하여 개인노출 대신에 사용하는 것이 가능하다는 것을 암시하였다.

$PM_{2.5}$ 중에는 많은 화학종들이 함유되어 있는데, 그 중에서 비교적 분자량이 큰 다환방향족탄화수소(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)는 돌연변이를 유발하며 동물실험에서는 암을 일으키는 것으로 알려져 있어(IARC, 1985; Mumford *et al.*, 1990), PAHs에 대한 노출과 그로 인한 건강영향은 많은 연구자들의 관심 대상이 되어 왔다. PAHs에 대한 노출은 PAHs가 함유된 음식을 섭취하는 과정을 통해 가장 많이 일어나고, 그 다음으로는 흡입을 통해 많이 일어나는 것으로 평가되어(Buckley and Lioy, 1992; Buckley *et al.*, 1995) 대기 중의 미세분진에 대한 노출의 중요성이 강조되어 왔다.

이와 같은 PAHs는 불완전연소 결과 생성되는 화합물들로서 실외에서는 소각, 자동차의 배기가스나 산업체에서 동력을 생산하는 과정에서(DHHS, 1995), 그리고 실내에서는 흡연, 요리, 난방, 흡연 및 양초 연소 등의 과정에서 발생하는 것으로 알려져 있다(Traynor *et al.*, 1990; Mumford *et al.*, 1991). 실내에서의 PAHs의 농도는 실내뿐만 아니라 실외의

배출원으로부터도 영향을 받기 때문에, 일반적으로 시골 지역보다는 교통량이 많거나 산업시설이 많은 도시 지역에서 더 높은 것으로 나타났으며 (Waldman *et al.*, 1991), 흡연이나 요리와 같은 주요 실내 활동이 많고 환기율이 낮은 가정에서는 실외보다 실내에서 농도가 더 높은 것으로 보고되었다 (Liu *et al.*, 2001). 배출원의 종류에 따라 PAHs의 생성에 기여하는 정도가 차이가 있는 것으로 나타났는데, 실내 배출원은 세 개의 고리를 갖는 PAHs의 농도에 크게 기여하는 반면에, 실외의 배출원은 고리가 5~7개의 PAHs에 주로 기여하는 것으로 추정되었다 (Naumova *et al.*, 2002).

이 연구에서는 한 중소도시의 일부 가정에 대해 1년에 걸쳐 계절별로 $PM_{2.5}$를 채취하여 미세분진과 입자상의 일부 PAHs에 대한 노출을 비교하여 평가하고 설문조사 결과를 토대로 주요 실내 배출원을 규명하였다. 또한 같은 기간에 걸쳐 이 가정들의 가운데 위치한 지점에서 실외분진 시료를 채취해 계절별로 실내에서의 농도와 비교하였다. 이 연구 수행을 위하여 강원도 춘천에 있는 10가정이 참여하였으며, 각 가정마다 계절별로 일회에 걸쳐 72시간의 실내 공기 분진시료를 채취하였다.

방 법

1. 시료 채취 및 설문조사

강원도 춘천에 위치하고 있는 10가정의 주부와 접촉하여 본 연구의 취지를 설명한 후에 시료 채취 및 설문조사에 대한 동의를 얻었다. 이 가정들은 실외분진 시료가 채취된 강원대학교로부터 약 2.5 km 이내의 거리에 있으며 약 4.8 km^2의 면적 내에 포함되는 것으로 추정되었다. 두 가정을 제외하면 나머지 가정들은 비교적 교통량이 많은 도심 지역에 위치하였다 (Fig. 1).

미세분진 시료는 10가정의 거실에서 약 1 m의 높이에서 72시간 동안 연속하여 채취하였다. 한정된 시료채취기 때문에 하나의 채취기를 사용하여 각 가정을 순회하면서 가정마다 계절별로 일회씩 시료를 채취하였다. 겨울에는 2002년 12월 22일~2003년 3월 3일, 봄에는 2003년 3월 26~6월 6일, 여름에는 6월 25일~9월 1일, 그리고 가을에는 10월 9일~11월 3일에 걸쳐 시료를 채취하였다. 두 가정은 가을에 채취기로부터 비롯되는 소음에 대한 불편함을 나타내어 더 이상 연구에 참여하기를

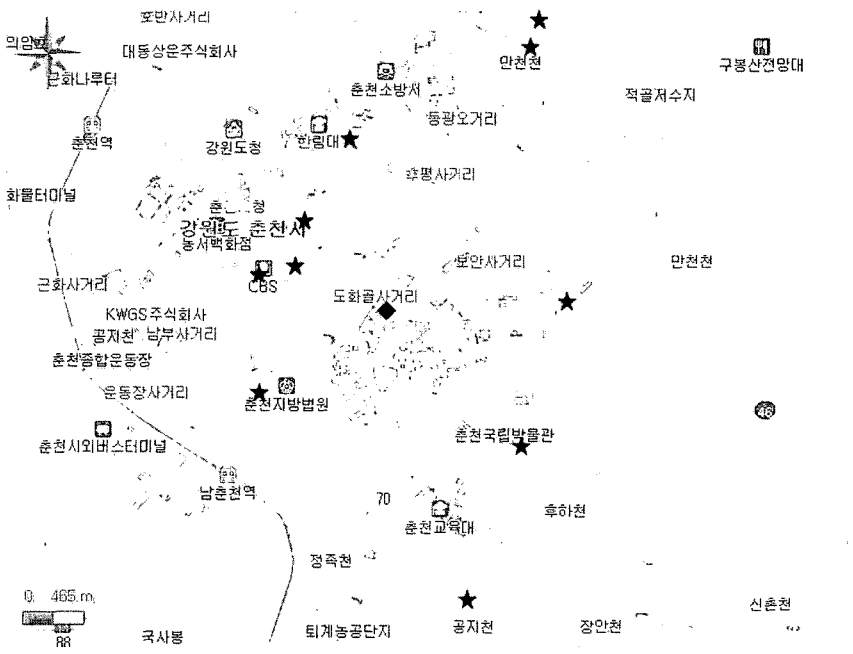

Fig. 1. Location of residential indoor sampling sites (★) and an outdoor sampling site (◆).

거절하여 가을 시료는 8가정으로부터 채취하였다.

또한 같은 기간에 강원대학교 자연과학대학 2호관 옥상(4층 건물)에서 24시간 동안에 걸쳐 $PM_{2.5}$를 채취하였으며, 겨울에는 2002년 12월 26일~2003년 1월 12일, 봄에는 2003년 3월 24일~4월 22일, 여름에는 7월 30일~8월 9일, 그리고 가을에는 9월 23일~29일에 걸쳐 채취하였다.

실내 $PM_{2.5}$의 채취에는 MiniVol^{TM} Portable Air Sampler (Airmetrics사)가, 그리고 실외분진의 채취에는 FH 95 Particulate Sampler (Thermo ESM Andersen사)가 사용되었다. 필터로는 직경 47 mm, 공극 크기 1.0 μm의 glass fiber filter (Type A/E, Pall Co사)가 사용되었다.

시료 채취와 더불어 각 가정별로 설문지를 나누어 주어 주부들이 직접 작성하도록 하였다. 설문지의 내용에는 거주지의 위치(주소), 건평, 가족 수, 주방 및 난방 연료, 시료 채취 기간의 환기시간 및 여러 가지의 실내 활동, 즉 청소, 흡연 여부, 흡연 장소 및 흡연 개수, 요리의 종류와 조리 시간 등이 포함되었다. Table 1은 각 가정에 대한 기본적인 정보를 보여주고 있고, Table 2는 시료 채취 기간에 있었던 실내 활동을 요약하여 정리하였다.

필터는 채취 전후에 온도 20~23°C, 상대습도 30~40%로 유지되는 항온항습실에서 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 여섯 가지의 PAHs에 대해 분석하였다.

2. PAHs에 대한 분석

채취한 분진시료는 문헌을 검토한 후 비교적 흔히 검출되는 여섯 가지의 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 (CH_3CN, 99.9%)은 Duksan사로부터 구입하여 별도의 정제 없이 사용하였다.

각 PAH별로 DCM을 용매로 사용하여 1차 표준용액을 제조한 후, 각 표준용액별로 일정한 부피를 취해 CH_3CN로 희석하여 2차 표준용액을 만들었다. 2차 표준용액을 공필터에 spike한 후 분진시료와 동일한 과정을 따라 추출하고 농축한 후 HPLC로 분석하여 정량을 위한 검량선을 작성하였다.

필터 시료는 다음의 과정에 의해 분석하였다. 반으로 자른 필터는 40 mL의 유리 용기에 넣고 7 mL의 DCM을 가한 후 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,

Table 1. Basic information on ten investigated homes

Home	Family size	Place of residence	Indoor smoking?	Fuel for heating/cooking
C1	4	Residential	Yes (living room)	Petroleum/LPG
C2	6	Residential	No	Petroleum/LPG
C3	4	Roadside	No	Petroleum/LPG
C4	3	Residential (apartment, 8th)	Yes (bathroom)	Central heating/LNG
C5	5	Roadside	No	Petroleum/LPG
C6	2	Residential	No	Petroleum/LPG
C7	2	Residential	No	Petroleum/LPG
C8	4	Residential (apartment, 4th)	No	Central heating/LNG
C9	3	Residential (apartment, 7th)	No	Petroleum/LNG
C10	4	Residential area	No	Electricity/LNG

Table 2. Indoor human activities in each home during the sampling period

Home	Winter	Spring	Summer	Fall
C1	NV 30 min VC 20 min BC 10 min SM 18 ea (living room) PR 80 min	NV 205 min BC 130 min SM 3 ea FF 40 min CF 15 min	NV 230 min VC 15 min SM 16 ea PR 50 min FF 7 min	NV 205 min BC 146 min SM 12 ea FF 38 min PR 50 min
C2	NV 65 min VC 120 min FF 30 min CR 30 min PR 30 min	NV 2,460 min VC 120 min FF 50 min PR 30 min	NV 2,700 min VC 150 min FF 60 min CR 60 min	NV 180 min VC 10 min PR 60 min FR 60 min
C3	NV 65 min VC 65 min PR 60 min	NV 120 min VC 30 min	NV 1,860 min VC 10 min PR 10 min	NV 390 min VC 40 min
C4	NV 84 min VC 30 min SM 8 ea (bathroom) PR 14 min	NV 157 min VC 30 min BC 5 min SM 6 ea FF 23 min	NV 350 min VC 20 min BC 20 min SM 6 ea FF 18 min PR 15 min HR 13 min EF 6 min	NV 285 min VC 30 min SM 8 ea HR 9 min
C5	NV 5 min BC 5 min SM 3 min (4 ea)	NV 30 min VC 20 min BC 20 min PR 20 min FF 10 min	NV 70 min VC 5 min CR 15 min PR 25 min	NV 5 min BC 30 min
C6	NV 30 min BC 30 min	NV 50 min BC 30 min SM 1 min (1 ea)	NV 1,800 min BC 120 min FF 60 min	NV ? min BC 35 min FR ? min
C7	NV 45 min VC 10 min PF 5 min	NV 1,400 min VC 5 min DF 5 min	NV 1,357 min VC 20 min	NV 775 min VC 15 min EF 10 min
C8	NV 80 min VC 20 min FF 15 min	NV 80 min BC 90 min PR 50 min	NV 4,320 min BC 35 min	NV 15 min VC 5 min PR 20 min
C9	NV 35 min VC 10 min BC 10 min FR 60 min	NV 20 min VC 30 min	NV 80 min VC 70 min	
C10	NV 55 min BC 75 min	NV 700 min BC 60 min	NV 450 min VC 10 min FF 10 min DF 25 min	

NV, natural ventilation; VC, vacuum cleaning; BC, broom cleaning; SM, smoking; PR, pork roasting; FF, fish frying; FR, fish roasting; CF, chicken frying; CR, chicken roasting; HR, ham roasting; EF, egg frying; PF, pepper frying; DF, dumpling frying; DF, doughnut frying.

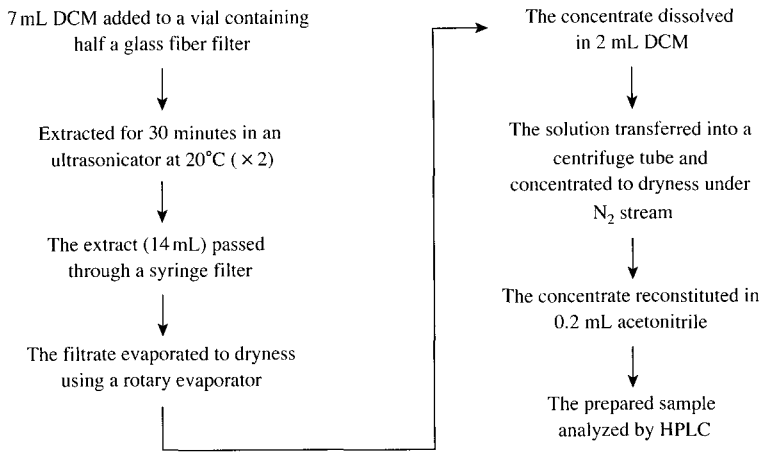

Fig. 2. A procedure for preparing PAHs analytical samples.

DCM 2 mL를 사용하여 15 mL의 원심분리관으로 옮기고 질소 기류로 시료를 농축하였다. 농축된 분석시료는 0.2 mL의 CH_3CN으로 재용해한 후에 20 μL를 HPLC에 주입하여 여섯 가지의 PAHs에 대해 분석하였다. Fig. 2에는 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 화합물의 정량분석을 위해 사용되었다. 분리에 사용된 칼럼은 Hypersil Green PAH column (100 mm × 4.6 mm, 5 μm particle size, Thermo Electron Co.)이었다. 이동상으로는 CH_3CN과 물의 혼합용매를 사용하였으며, 1 mL/min의 유속으로 5분 동안 두 용매의 비를 50 : 50으로 유지하다가, 25분까지 CH_3CN의 비율이 50%에서 100%가 되도록 gradient elution 한 후에, CH_3CN이 100%인 조건에서 10분 동안 흘려주었다. 연속적으로 시료를 분석할 경우 분석칼럼의 평형상태를 유지하기 위해 초기의 조건인 CH_3CN 50%에서 5분 동안 흘려주어, 시료 한 개당 소요되는 분석시간은 총 45분이었다. HPLC에 사용된 두 종류의 검출기의 운용 조건은 Table 3에 나타내었다.

Table 3. 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		260/400	ANT
16.9 ~ 18.9		285/460	FLU
18.9 ~ 26	254	270/380	PYR, BaA, CHR
26 ~ 45		285/405	BaP

3. QA/QC

각 계절별로 세 지역을 순회하면서 분진시료를 채취할 때마다 두 개의 공 필터를 petri dish에 넣어 현장으로 운반하여 공 시료를 얻었으며, 이러한 시료들은 분진시료를 분석하기 전에 분석하여 시료를 운반하거나 저장하는 동안에 PAHs로 오염되었는지의 여부를 점검하기 위해 사용되었다. 분석결과 모든 공필터 시료에서 PAHs의 성분들은 검출되지 않는 것을 확인하였다.

시료의 정량분석을 위한 검량선은 제조한 표준용액을 공필터에 spike한 후에 분진시료와 동일한 과정으로 추출하고 농축하여 분석한 결과를 이용하여 작성하였다. 각 PAH에 대해 작성한 검량선의 결정계수(r^2)는 모두 0.997 이상으로 좋은 직선성을 나타냈다.

PAHs 분석에 대한 방법검출한계 (MDL)는 S/N 비 3을 기준으로 추정하였을 때 0.012 ~ 0.029

ng/m^{3}의 범위를 나타냈고, 회수율(recovery, %)은 ANT의 81.2%에서부터 PYR의 115.0%의 범위까지 분포하였다. 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 보정하지는 않았다. 일곱 개의 반복 시료에 대해 얻어진 변동계수(CV)는 1.2~5.8%의 분포를 보여 비교적 좋은 재현성을 나타냈다. Table 4에는 각 화합물별로 MDL과 회수율을 나타냈다.

결과 및 토의

시료를 채취하는 기간에 각 가정에서 있었던 활동은 Table 2에 정리하였다. 모든 가정을 통틀어 사흘 동안에 걸친 환기시간의 중앙값을 계절별로 비교하였을 때, 여름(1,357분)>가을(205분)>봄(139분)>겨울(50분)의 순서로 겨울의 환기시간은 여름에 비해 약 1/30배 정도에 지나지 않았다.

대부분의 가정에서는 시료 채취 기간 동안에 실내 활동 중 분진의 주요 발생원에 속하는 진공 및 빗자루 청소, 고온에서 익히는 요리(돼지고기, 닭고기, 생선) 등의 활동이 있었다. 두 가정(C1과 C4)에서는 모든 계절을 통틀어 흡연 활동(3~18개비)이 있어 고농도의 $PM_{2.5}$와 PAHs가 예상되었으며, C5 가정과 C6 가정에서는 방문객에 의해 각각 겨울과 봄에 4개비 및 1개비의 담배를 흡연하였다.

1. 미세분진의 비교

계절별로 하나의 실외 지점과 각 10가정에서의 $PM_{2.5}$ 질량농도를 그래프로 나타내었다(Fig. 3). 흡연 가정인 C1에서 $PM_{2.5}$의 농도는 모든 계절에 높게 측정되었는데(71.8~83.3 μg/m^3), 이는 시료 채취 기간에 흡연한 담배의 개수가 봄(3개비)을 제외하고는 10개비 이상(12~18개비)이고, 또한 흡연 장소가 거실로 시료 채취기에 가까이 위치하고 있었기 때문으로 판단된다. 반면에 또 다른 흡연 가정인 C4에서의 농도는 C1에서의 농도와 비교해 볼 때, 겨울(70.8 μg/m^3)에는 서로 유사한 수준이었으나 다른 세 계절에는 C1보다 훨씬 낮은 농도를 나타내었으며 실제로 비흡연가정과 큰 차이가 없는 것으로 나타났다. 이는 C4 가정이 C1에 비해 교통량이 적은 지역에 위치하고 있을 뿐만 아니라, C1 가정에 비해 봄을 제외하고는 흡연 개수가 적은데다가(6 또는 8개비) 흡연 장소가 화장실이었기 때문에 흡연 중 배출된 담배연기가 집안에서 확산, 희석되어 낮은 농도로 측정되었을 것으로 생각된다.

C9 가정에서는 봄에 $PM_{2.5}$의 농도가 다른 계절뿐만 아니라 모든 지점에 대해 가장 높았는데(86.0 μg/m^3), 이는 C9의 가정이 교통량이 많지도 않고 아파트의 7층에 위치하고 있으며, 시료 채취 기간 동안에 실내 배출 활동으로 진공 청소 외에는 없었지만, 다른 가정에 비해 겨울, 봄 및 여름 동안에 비교적 환기율이 낮아 설문지에 누락되었을지도 모르는 실내 활동에 의해 발생된 분진이 지속적으로 축적되었을 것으로 추정된다.

Table 4. 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.

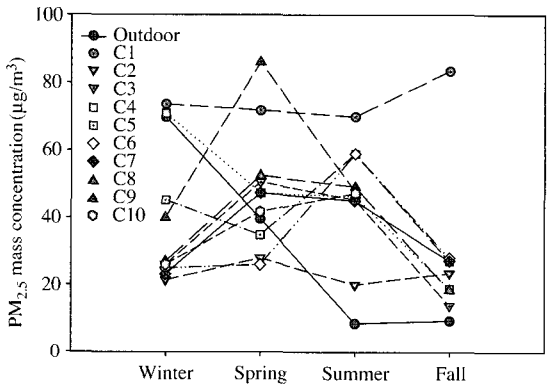

Fig. 3. Seasonal change of $PM_{2.5}$ mass concentrations in 10 homes and an outdoor site.

Table 5. Comparison of indoor and outdoor[1] $PM_{2.5}$ concentrations ($\mu g/m^3$) in Chuncheon

	Winter			Spring			Summer			Fall		
	Indoor		Outdoor	Indoor		Outdoor	Indoor		Outdoor	Indoor		Outdoor
	S[2]	NS[3]		S	NS		S	NS		S	NS	
N	2	8	6	2	8	15	2	8	2	2	6	6
Mean	72.2	29.1	69.7	59.5	45.8	39.6	58.1	44.9	8.5	51.1	22.9	9.3
SD[4]	2.0	8.5	40.3	17.4	19.0	13.9	16.7	11.0	0.9	45.6	5.7	4.2
Range	70.8~73.6	21.4~45.1	19.6~120.9	47.2~71.8	25.9~86.0	17.1~64.2	46.3~69.9	20.0~58.8	7.9~9.2	18.8~83.3	13.8~27.9	3.1~27.9

[1]Samples were collected from a fixed site. [2]Smoking homes. [3]Nonsmoking homes. [4]Standard deviation.

실내분진의 농도를 흡연가정(2)과 비흡연가정(8)으로 나누어 실외분진의 농도와 비교하였다(Table 5, Fig. 4). 흡연가정에서의 각 계절별 평균 농도는 51.1~72.2 $\mu g/m^3$로 계절에 따른 큰 차이 없이 비교적 고르고 높은 농도 분포를 보인 반면에, 비흡연가정에서의 계절별 평균 농도는 겨울과 가을에는 비교적 낮은 농도를 나타내었고(29.1 및 22.9 g/m^3) 봄과 여름에는 비교적 높은 농도를 나타냈다(44.9 및 45.8 $\mu g/m^3$). 각 계절별로 등분산을 가정하여 흡연가정과 비흡연가정 사이의 평균값을 비교하여 분석한 결과, 봄, 여름 및 가을에는 통계적으로 차이가 없었지만($p>0.05$), 겨울에는 통계적으로 유의한 차이를 나타냈다($p=1.39\times10^{-4}$). 그렇지만, 모든 계절에 있어서 비흡연가정에 비해 흡연가정에서 평균값이 1.3~2.5배 높아 실내 활동 중 흡연이 다른 활동에 비해 미세분진의 농도 상승에 기여하는 주요한 요인임을 알 수 있었다. 반면에, 실외에서의 농도는 계절에 따른 변화가 커 겨울>봄>>여름≈가을의 순으로 농도가 높았다. 이와 같은 결과는 Neas 등(1994)의 연구 결과와 잘 일치하였는데, 그들은 미국의 1,273 가정에 대해 연평균 $PM_{2.5}$의 농도를 조사하였는데, 흡연가정에서는 48.5 $\mu g/m^3$이었던 반면에 비흡연가정에서는 17.3 $\mu g/m^3$로 흡연가정의 약 1/3 수준으로 나타났다.

실외에서 측정한 값들의 평균과 10가정에서의 측정값들의 평균을 사용하여 계절별로 실내외 농도비(실내 : 실외)를 계산하였을 때, 흡연가정에서는 겨울, 봄, 여름, 및 가을에 각각 1.04, 1.50, 6.84 및 5.49인 반면에, 비흡연가정에서는 0.42, 1.16, 5.28 및 2.46이었다. 즉, 겨울을 제외하면 나머지 세 계절에는 실내에서의 농도가 실외에서의 농도보다 더 높은 것으로 나타났다. 반면에 겨울에는 흡연가정에 대해서는 실외에서의 농도와 거의 유사한 수준이었고, 비흡연가정에서는 실내보다 실외에서의 농도가 더 높은 것을 알 수 있다. 이는 다른 계절에 비해 겨울에 난방의 증가와 화석연료의 불완전 연소로부터 실외에서의 미세분진 농도가 크게 증가하고, 겨울에는 낮은 환기율 때문에 미세분진이 실내로 유입되는 양이 제한적이기 때문이라고 할 수 있다.

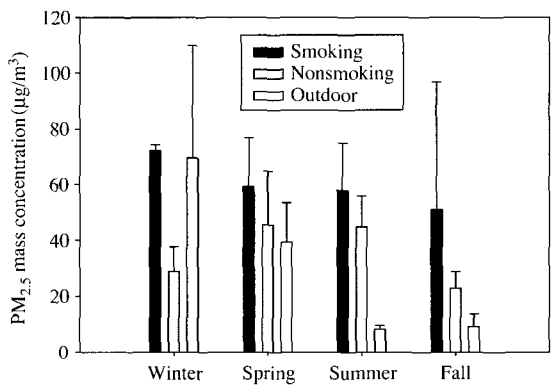

Fig. 4. Seasonal comparison of $PM_{2.5}$ concentrations among *smoking homes, nonsmoking homes, and an outdoor site.*

Monn 등(1997)에 의한 연구에서는 PM_{10}의 실내외에서의 농도를 서로 비교하였을 때, 어떠한 실내 배출원도 없는 가정에서의 실내/실외 농도비는 1 이하인(0.67 및 0.71) 반면에, 배출원이 없지만 가족수가 많은 가정에서는 1.40이었고, 가스로 요리하는 가정에서는 평균 1.2, 그리고 흡연을 하는 두 가

정에서는 평균 2.0으로 나타나 실내 활동의 종류에 따라서 실내 공기 중 분진의 농도가 달라지고 특히 흡연이 주요한 실내 분진의 상승 요인임을 알 수 있었다. 홍콩에서 실시된 연구에서도 흡연가정에서의 $PM_{2.5}$의 평균 농도는 50.6 μg/m^{3}인 반면에, 비흡연가정에서의 농도는 42.7 μg/m^{3}로 흡연가정에서의 농도가 비흡연가정에 비해 18.5% 높았다(Chao and Wong, 2002). 전준민 등(2001)의 연구에서는 여천공단 주변에 위치한 10 가정을 대상으로 실외 시료는 옥상에서, 그리고 실내 시료는 주방에서 MiniVol을 사용하여 $PM_{2.5}$를 계절별로 채취하였다. 실내외 농도의 비는 겨울, 봄 및 여름에 대해 각각 1.41, 1.38 및 1.13으로 이 연구에서의 결과와는 다른 양상을 나타냈다. 그리고 흡연자가 있는 가정과 비흡연가정 사이의 농도 차이가 발견되지 않았는데, 저자들은 실내 시료 지점이 흡연활동이 주로 일어나는 거실이나 방이 아닌 주방이었기 때문인 것으로 해석하였다. 실내에서의 겨울, 봄 및 여름에 측정한 농도의 평균은 66.5, 37.1 및 41.7 μg/m^{3}으로 이 연구 결과와 유사한 수준이었다.

흡연가정을 제외하고 비흡연가정과 실외에서의 평균 농도를 비교하여 보았을 때, 겨울에만 실외에서의 농도가 실내보다 높았고, 나머지 세 계절에 있어서는 모두 실외보다는 실내에서 높게 측정되었다. 이와 같은 결과는 겨울에는 자동차 연료의 불완전 연소와 더불어 난방의 증가로 인해 실외에서의 미세분진의 농도가 실내에 비해 더 크게 증가하고, 낮은 기온 때문에 대부분의 가정에서 환기를 적게 시키기 때문에(사흘 동안 5~80분) 외기로부터 미세분진의 유입이 적기 때문인 것으로 생각된다(Chao and Wong, 2002). 이와는 반대로 여름의 경우에는 환기시간이 다른 계절에 비해 길기(70~4,320분, 중앙값 1,357분) 때문에 실내공기와 실외공기가 교환되는 시간이 길어 실내분진의 농도는 실외분진의 농도에 큰 영향을 받을 것으로 추측되었다. 그렇지만, 이 연구의 결과를 보면 실외에서 여름에는 농도가 매우 낮았는데, 그 이유로는 시료를 채취하는 기간 이전에 매일 지속되는 강우에 의해 대기 중의 부유분진이 대부분 침적되었기 때문으로 판단된다. 춘천기상대의 측정 자료에 의하면, 7월 21일부터 측정 전날인 7월 29일까지 매일 강우가 내려 총 강수량은 211 mm를 기록하였으며, 또 다른 측정일인 8월 9일의 이틀 전까지는 8월 2일부터 매일 105 mm의 강수량을 나타내 그러한 해석을 뒷받침해 주고 있다.

이와 같은 결과로 미루어 볼 때 실내분진의 농도는 실내에서의 인간 활동과 더불어 환기에 의해 결정되는 반면에, 실외에서의 농도는 자동차나 난방과 같은 주요 배출원 뿐만 아니라 강우와 같은 기상에 의해서도 크게 영향을 받는다는 것을 알 수 있다.

2. PAHs 농도 비교

각 계절별로 각 10가정과 실외 지점에서의 총 PAHs의 농도를 그래프로 나타냈다(Fig. 5). 겨울에는 흡연가정인 C1에서 농도가 가장 높았고, 다음으로는 실외 지점이 높았으며, 세 번째로는 또 다른 흡연 가정인 C4에서 높았다. 그 다음으로는 C8과 C5에서 유사한 농도로 높았는데, 특히 C5 가정에서는 방문자가 흡연하고(3개비) 환기시간이 짧아(5분) 비교적 높은 농도를 나타낸 것으로 판단되었다.

봄에는 흡연 가정인 C4에서 농도가 가장 높았으며, 다음으로는 C5>C1>C6 가정의 순으로 높았지만 농도의 차이는 거의 없었고, 대부분의 가정에서 낮은 수준을 나타냈다. C5 가정의 경우에는 돼지고기와 쇠고기 요리 및 청소와 같은 실내 활동이 있었고 환기시간이 30분으로 짧았기 때문에, C1 가정의 경우에는 흡연활동에 의하여, 그리고 C6 가정의 경우에는 비록 1개비의 담배를 피우긴 했어도 환기시간이 짧아(50분) 총 PAHs의 농도에 기여했을 것으로 추측되었다.

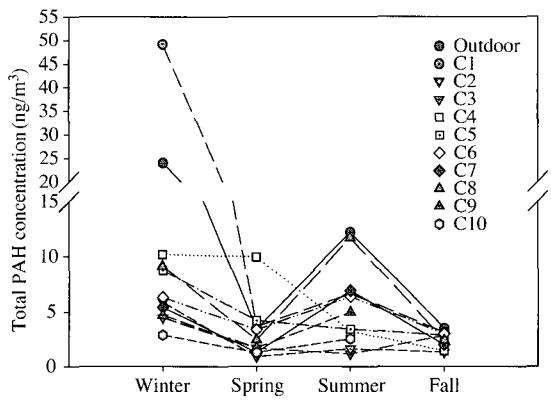

Fig. 5. Seasonal comparison of total PAH concentrations in 10 homes and an outdoor site.

여름의 경우에는 실외에서 미세분진의 농도가 모든 가정에서보다 낮게 측정되었지만 (Fig. 4), 총 PAHs의 농도는 겨울 다음으로 높게 나타났다. 이는 일반적으로 여름과 같이 온도가 높은 계절에는 4개 이하의 고리를 갖는 반휘발성의 PAHs는 기체 상태로 존재하는 비율이 증가하여 (백성옥과 최진수, 1998), 미세분진 중에 함유되어 있는 비율이 낮아 그 농도가 낮을 것으로 예측한 것과는 반대의 결과를 나타냈는데, 부분적인 설명이기는 하지만 시료 채취 전까지 계속해서 흐리고 비가 온 날씨 때문에 빛에 의한 PAHs의 분해가 덜 일어났기 때문일 것으로 생각된다. C8 가정에서의 농도는 실외에서의 농도와 거의 유사한 수준으로 높게 측정되었는데, 설문 조사 내용과 지리적인 위치를 가지고 그 이유를 설명할 수가 없다. 한편 가을에 측정한 총 PAHs의 농도는 실외나 실내에서 측정한 농도에 있어 거의 차이가 나타나지 않았으며 전반적으로 낮은 수준이었다.

흡연가정, 비흡연가정 및 실외공기로 나누어 총 PAHs의 농도를 비교하였다 (Fig. 6). 겨울에는 흡연가정과 실외에서 높은 농도를 나타낸 반면에, 비흡연가정에서는 매우 낮은 수준을 나타내었다. 봄에는 흡연가정에서 가장 높은 농도를 나타낸 반면에, 여름에는 실외에서의 농도가 실내에서의 농도에 비해 약 2.5배 정도 높게 측정되었다. 한편 가을에서의 농도는 흡연가정, 비흡연가정 및 실외 간에 거의 차이를 나타내지 않았다.

이와 같은 결과로 미루어 보아 여름과 겨울을 제외한 환기가 비교적 적은 두 계절인 겨울과 봄에는 흡연가정에서 가장 높은 농도를 나타내었다. 중국에서 12종의 PAHs를 대상으로 측정한 결과에서는 여름과 가을에 흡연가정과 비흡연가정을 비교하였을 때 흡연가정에서 더 높게 측정되는 것을 알 수 있어, 흡연이 PAHs의 주요 발생원이라는 것을 보여 주었다 (Liu *et al.*, 2001).

미세분진의 농도와 PAHs 농도와의 상관분석을 통해 두 변수간의 관계를 알아보았다. 각 자료의 분포는 정규분포가 아니므로 (Kolmogorov-Smirnov test, $p<0.001$) 비모수 검정을 실시한 결과, 상관계수인 Kendall의 tau_b는 0.196 ($p=0.085$), 그리고 Spearman의 rho는 0.266 ($p=0.107$)으로 95%의 신뢰수준에서 유의한 상관관계를 보이지 않았다. 즉, 미세분진의 농도가 증가함에 따라 비례적으로

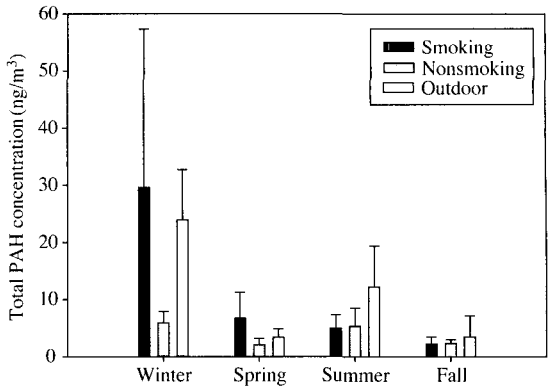

Fig. 6. Seasonal comparison of total PAH concentrations among smoking homes, nonsmoking homes, and an outdoor site.

PAHs의 농도가 증가하지 않는다는 것을 알 수 있다. 그 이유로는 이 연구에서의 분석 대상 PAHs가 3개부터 5개까지의 고리를 갖는 화합물들이기 때문에 계절 (온도)에 따라 입자상과 기체상에 분포하는 비율이 매우 다르고, 시료를 채취하는 시점과 장소에 따라 입자상 PAHs의 조성과 농도가 변할 수 있기 때문이라고 생각한다.

Nisbet and LaGoy (1992)는 각 PAH에 대한 발암성을 BaP를 기준 화합물로 하여 toxic equivalency factor (TEF)를 설정하였다. BaP를 1로 놓고 이에 대한 상대적인 발암성을 FLU와 PYR은 0.001, BaA는 0.1, 그리고 CHR은 0.01로 정하였다. 이를 토대로 하여 실내외로 나누어 각각의 TEF값에 공기 중의 농도를 곱한 후에 각 화합물에 대한 값들을 모두 합해 BaP toxic equivalent (TEQ)를 구하여 서로 비교하였다 (Table 6).

실내외를 통틀어 겨울에 흡연가정에서 가장 높은 TEQ를 나타냈으며 (7.10), 다음으로는 겨울 실외 (5.75), 여름 실외 (3.98), 여름 흡연가정 (1.97)의 순으로 높았으며, 봄의 흡연가정에서 가장 낮은 TEQ를 나타냈다. 따라서 겨울에 흡연자가 있는 가정에서와 실외에서 PAHs에 대한 노출로부터 비롯되는 발암위해도가 상대적으로 높은 것으로 나타났다. 또한 이러한 TEQ의 크기 순서는 BaP의 농도가 높은 순서와 차이가 없는데, 그 이유는 다섯 가지의 PAHs의 총 발암위해도 (TEQ) 중 BaP의 발암위해도가 차지하는 비율이 평균 96.2% (72.2~

Table 6. Comparison of BaP toxic equivalents (TEQs) among nonsmoking homes, smoking homes, and an outdoor site

	Winter			Spring			Summer			Fall		
	Indoor		Outdoor	Indoor		Outdoor	Indoor		Outdoor	Indoor		Outdoor
	S[1)]	NS[2)]		S	NS		S	NS		S	NS	
Mean	7.10	1.94	5.75	0.411	0.874	0.647	1.97	1.22	3.98	1.33	1.29	0.858
SD	5.95	0.69	2.46	0.123	0.603	0.241	1.31	0.45	5.25	0.32	0.23	1.18

[1)]Smoking homes. [2)]Nonsmoking homes.

99.7%)로, BaP의 농도가 다섯 종의 PAHs에 대한 노출로부터 비롯되는 상대적인 발암위해도를 나타내는 대표적인 화합물이 될 수 있음을 시사하였다.

스위스에서 16가지의 PAHs를 부유분진과 기체상으로 구분하여 농도를 측정하여 BaP TEQ를 작업장과 일반 환경으로 나누어 비교하였을 때 (Petry *et al.*, 1996), BaP가 총 발암성에 대해 기여하는 비율이 작업장에서는 흑연 공장의 27%에서부터 코크스 공장의 67%까지 분포한 반면에, 일반 환경의 두 도시를 대상으로 측정한 기여율은 53%와 60%를 차지하여 50% 이상의 발암성을 BaP가 차지하는 것으로 나타났다. 따라서 저자들은 BaP의 농도를 PAH 혼합물의 농도의 대용화합물(surrogate)로 사용할 수 있음을 시사하였다.

반면에, 일본에서 여름과 겨울에 22가정을 대상으로 실시한 연구(Ohura *et al.*, 2004)에 따르면, naphthalene의 TEF는 0.001로 작지만 그 농도가 두 계절 모두에서 BaP 농도의 각각 4,700 및 2,800배 정도 높아 BaP보다 4.6 및 2.8배 발암위해도에 더 높게 기여하는 것으로 나타났다. 그 이유로 일본에서는 naphthalene이 방충제 (insect repellent)의 성분으로 실내외서 널리 사용되기 때문인 것으로 설명되었다. 따라서 실내에서의 PAHs에 대한 노출의 발암위해도를 산정할 때에는 naphthalene과 같은 PAHs에 속하는 화학종이 함유되어 있는 소비재가 사용되고 있는지의 여부를 파악하는 것이 선행되어야 할 것임을 시사하였다.

이 연구에서 계산된 TEQ 값들은 입자상의 다섯 가지 PAHs에 대한 노출로부터 비롯되는 상대적 발암위해도를 계산한 것이기 때문에 기체상과 입자상의 PAHs로부터 비롯되는 총 발암위해도를 나타내는 것은 아니다. 그렇지만 이 연구에서의 목적이 미세분진에 대한 흡입노출량을 계절별로 비교하고자 하는 데에 있기 때문에, 이러한 수치를 서로 비교함으로써 미세분진에 대한 노출로부터 비롯되는 상대적 발암위해도를 추정하여 비교할 수 있는 자료로는 활용될 수 있다고 본다.

결 론

춘천지역의 10가정과 실외 한 지점을 대상으로 미세분진의 농도와 그 중에 함유된 PAHs를 측정하여 얻은 결론은 다음과 같다.

1) 실내에서 미세분진의 농도는 요리, 청소 등과 같은 실내 활동에 의해 증가하지만, 흡연 활동이 기여하는 바가 가장 커서 흡연가정에서의 농도는 비흡연가정에 비해 항상 높을 뿐만 아니라 사계절 모두 유사한 수준으로 계절적인 차이를 거의 나타내지 않았다.

2) 실내외 미세분진의 농도를 비교하여 보았을 때 겨울을 제외한 나머지 세 계절에는 흡연 여부에 관계없이 항상 실외보다는 실내에서의 농도가 높았는데, 이는 실내에서의 흡연, 요리 등의 다양한 활동에 기인하였다.

3) 반면에 겨울에는 실외에서의 농도가 흡연가정과는 유사한 수준이었지만, 비흡연가정보다는 더 높게 나타났는데 이는 겨울에 난방의 증가와 화석연료의 불완전한 연소로부터 미세분진의 농도가 증가했기 때문으로 판단된다.

4) 미세분진의 농도는 실내에서는 흡연과 같은 활동과 환기 정도에 의해 지배되는 반면에, 실외에서는 화석연료의 사용으로부터 비롯되는 배출량과 더불어 기온, 강수량과 같은 기상인자에 의해 결정된다.

5) 입자상의 PAHs에 대한 노출은 실내외 모두 계절에 따라 다른 분포를 보이지만, 실내에서는 특히 흡연에 의해 농도가 크게 증가하여 PAHs에 대

한 노출과 상대적인 발암위해도가 크게 증가함을 알 수 있었다.

참 고 문 헌

백성옥, 최진수. 대기 중 다환방향족탄화수소의 기체-입자상 농도분포에 미치는 주변 온도의 영향, 한국대기보전학회지 1998; 14: 117-131.

전준민, 김성우, 김윤신. 여천공단 내 실내·외 미세분진 중의 화학원소 농도 및 발생원 추정, 대한환경공학회지 2001; 23: 305-317.

Buckley TJ and Lioy PJ. An examination of the time course from human dietary PAH exposure to urinary elimination of 1-hydroxypyrene, Br J Ind Med 1992; 49: 113-124.

Buckley TJ, Waldman JM, Dhara R, Greenberg A and Quyang Z. An assessment of a urinary biomarker for total human environmental exposure to benzo[*a*]pyrene (BaP), Int Arch Occup Environ Health 1995; 67: 257-266.

Chao CY and Wong KK. Residential indoor PM_{10} and $PM_{2.5}$ in Hong and the elemental composition, Atmos Environ 2002; 36: 265-277.

Chiang T-A, Wu P-F and Ko Y-C. Identification of carcinogens in cooking oil fumes, Environ Res 1999; Sec A 81: 18-22.

Department of Health and Human Services (DHHS) Agency for Toxic Substances and Disease Registry. Toxicological Profile for Polycyclic Aromatic Hydrocarbons. 1995.

Dockery DW and Spengler JD. Indoor-outdoor relationships of sulfates and particles, Atmos Environ 1981; 15: 335-343.

Fisher PH, Hoek G, van Reeuwijk H, Briggs DJ, Lebret E, van Wijnen JH, Kingham S and Elliot PE. Traffic-related difference in outdoor and indoor concentrations of particles and volatile organic compounds in Amsterdam, Atmos Environ 2000; 34: 3713-3722.

He C, Morawska L, Hitchins J and Gilbert D. Contribution from indoor sources to particle number and mass concentrations in residential houses, Atmos Environ 2004; 38: 3405-3415.

IARC. Monographs on the evaluation of the carcinogenic risk of chemicals to humans. International Agency for Research on Cancer. Polynuclear aromatic compounds, bituminous, coal-tar and derived products, shale oils and soots. International Agency for Research on Cancer, Lyon, France, 1985 Vol. 35, Part 4.

Jenkins PL, Philips TJ, Mulberg JM and Hui SP. Activity patterns of Californians: use of proximity to indoor pollution sources, Atmos Environ 1992; 26A: 2141-2148.

Kingham S, Briggs D, Elliott P, Fischer P and Lebret E. Spatial variations in the concentrations of traffic-related pollutants in indoor and outdoor air in Huddersfield, England, Atmos Environ 2000; 34: 905-916.

Koisinen KJ, Hänninen O, Rotko T, Edwards RD, Moschandreas D and Jantunen MJ. Behavioral and environmental determinants of personal exposures to $PM_{2.5}$ in *EXPOLIS*-Helsinki, Finland, Atmos Environ 2001; 35: 2473-2481.

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.

Liu Y, Zhu L and Shen X. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in indoor and outdoor air of Hangzhou, China, *Environ Sci Technol* 2001; 35: 840-844.

Monn C, Fuchs A, Högger D, Junker M, Kogelschatz D, Roth N and Wanner H-U. Particulate matter less than 10 μm (PM_{10}) and fine particles less than 2.5 μm ($PM_{2.5}$): relationship between indoor, outdoor and personal concentrations, Sci Total Environ 1997; 208: 15-21.

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.

Mumford JL, Helmes CT, Lee X, Seidenberg J and Nesnow S. Mouse skin tumorigenicity studies of indoor coal and wood combustion emissions from homes of residents in Xuan Wei, China with high lung cancer mortality, Carcinogenesis 1990; 11: 397-403.

Mumford JL, Williams RW, Walsh DB, Burton RM, Svendsgaard DJ, Chuang JC, Houk VS and Lewtas J. Indoor air pollutants from unvented kerosene heater emissions in mobile homes: studies on particles, semivolatile organics, carbon monoxide and mutagenicity, Environ Sci Technol 1991; 25: 1732-1738.

Naumova YY, Eisenreich SJ, Turpin BJ, Weisel CP, Morandi MT, Colome SD, Totten LA, Sock TH, Winer AM, Alimokhatari S, Kwon J, Shendell D, Jones J, Maberti S and Wall SJ. Polycyclic aromatic hydrocarbons in the indoor and outdoor air of three cities in the US. Environ Sci Technol 2002; 36: 2552-2559.

Neas LM, Dockery DW, Ware JH, Spengler JD, Ferris BG and Speizer FE. Concentrations of indoor particulate matter as a determinant of respiratory health in children.

Am J Epidemiol 1994; 139: 1088-1099.

Nisbet ICT and LaGoy PK. Toxic equivalency factor (TEFs) for polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), Regul Toxicol Pharmacol 1992; 16: 290-300.

Ohura T, Amagai T, Fusaya M and Matsushita H. Spatial distributions and profiles of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in two industrial cities in Japan.

Özkaynak H and Spengler JD. In: Spengler JD and Wilson R (Eds), Particles in Our Air, Concentrations and Health Effects. Harvard University Press, Boston, MA, 1996: pp. 63.

Özkaynak H, Xue J, Spengler J, Wallace L, Pellizzari E and Jenkins P. Personal exposure to airborne particles and metals—results from the particle team study in Reverside, California, J Expos Anal Environ Epidem 1996; 6: 57-78.

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.

Petry T, Schmid P and Schlatter C. The use of toxic equivalency factors in assessing occupational and environmental health risk associated with exposure to airborne mixtures of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), Chemosphere 1996; 32: 639-648.

Quackenboss JJ, Krzyzanowski M and Lebowitz MD. Exposure assessment approaches to evaluate respiratory health effects of particulate matter and nitrogen dioxide, J Expos Anal Environ Epidemiol 1991; 1: 83-107.

Santanam S, Spengler JD and Ryan PB. Particulate matter exposure estimates from an indoor-outdoor source apportionment. Proceedings of Indoor Air '90, Toronto, Canada, 1990; 2: 583-588.

Schwartz J, Dockery DW and Neas LM. Is daily mortality associated specifically with fine particles? J Air Waste Manage Assoc 1996; 46: 927-939.

Spengler JD, Dockery DW, Turner WA, Wolfson JM and Ferris BG. Long-term measurements of respirable sulfates and particles inside and outside home, Atmos Environ 1981; 15: 23-30.

Traynor GW, Apte MG, Sokol HA, Chuang JC, Tucker WG and Mumford JL. Selected organic pollutant emissions from unvented kerosene space heaters, Environ Sci Technol 1990; 24: 1265-1270.

Waldman JM, Lioy PJ, Greenberg A and Butler JP. Analysis of human exposure to benzo[*a*]pyrene via inhalation and food ingestion in the total human environmental exposure study (THEES), J Expos Anal Environ Epidemiol 1991; 1: 193-225.

Wallace L. Indoor particles; a review, J Air Waste Manage Assoc 1996; 46: 98-126.