

수도권 지역 PM₁₀의 PAHs 농도 특성

PAHs Concentrations of PM₁₀ in Seoul Metropolitan Area

홍상범 · 강창희* · 김원형 · 김용표¹⁾ · 이승묵²⁾

김영성³⁾ · 송철한⁴⁾ · 정창훈⁵⁾ · 홍지형⁶⁾

제주대학교 화학과 · 기초과학연구소, ¹⁾이화여자대학교 환경학과,

²⁾서울대학교 보건대학원 환경보건학과, ³⁾한국외국어대학교 환경학과,

⁴⁾광주과학기술원 환경공학과, ⁵⁾경인여자대학 환경보건학부,

⁶⁾국립환경과학원 대기총량과

(2009년 6월 3일 접수, 2009년 7월 5일 수정, 2009년 7월 23일 채택)

Sang-Bum Hong, Chang-Hee Kang*, Won-Hyung Kim,
Yong-Pyo Kim¹⁾, Seung-Muk Yi²⁾, Young Sung Ghim³⁾, Chul-Han Song⁴⁾,
Chang-Hoon Jung⁵⁾ and Ji-Hyung Hong⁶⁾

Department of Chemistry and Research Institute for Basic Sciences,
Jeju National University

¹⁾Department of Environmental Science and Engineering, Ewha Womans University

²⁾Department of Environmental Health, School of Public Health, Seoul National University

³⁾Department of Environmental Science, Hankuk University of Foreign Studies

⁴⁾Department of Environmental Science and Technology, Gwangju Institute of
Science and Technology

⁵⁾Department of Environmental Health, KyungIn Women's College

⁶⁾Environmental Cap System Research Department, National Institute of
Environmental Research

(Received 3 June 2009, revised 5 July 2009, accepted 23 July 2009)

Abstract

The concentrations of PAHs in PM₁₀ fine particles were determined at two sites, which were Jongno, one of the urban core sites of Seoul, and Yongin, a downwind site of Seoul. The average concentration of PAHs in PM₁₀ was $19.92 \pm 18.49 \text{ ng m}^{-3}$ with the range of $1.28 \sim 81.22 \text{ ng m}^{-3}$ at Jongno site of Seoul from August 2006 to August 2007, and $14.06 \pm 9.96 \text{ ng m}^{-3}$ with the range of $1.66 \sim 31.84 \text{ ng m}^{-3}$ at Yongin site from September to November of 2006. In the results of monthly comparison, the concentration of PAHs in August was the lowest level of 3.23 ng m^{-3} , but the highest level of 46.24 ng m^{-3} in January. The seasonal comparison showed the concentration in winter was higher by the factor of 11.9 than in summer. The concentrations of PAHs during a warm period (November ~

*Corresponding author.

Tel : +82-(0)64-754-3545, E-mail : changhee@jejunu.ac.kr

March) increased as 5.1 times higher than those during a cold period (April~October). The concentrations of PAHs were assumed to be largely attributed to the consumption of fossil fuels, temperature, mixing height, and photochemical reactions in Seoul metropolitan area.

Key words : PAHs, PM₁₀, Seoul metropolitan, Yongin

1. 서 론

우리나라는 지난 20년 동안 대기 질 개선을 위해 막대한 투자를 실시하였고, 이 결과 아황산가스, 일산화탄소 등의 오염물질 농도는 획기적으로 저하되었으나, 그러나 광화학 반응에 의한 오존 오염도와 미세먼지 오염도는 여전히 높은 수준을 유지하고 있는 것으로 나타나고 있다. 특히 서울과 수도권 지역의 미세먼지(PM₁₀)는 1998년 이후 꾸준한 증가추세를 보여 왔고, 2001년부터는 서서히 개선되는 경향을 보이고 있지만 다른 주요 도시와 비교하면, 아직도 높은 수준을 유지하고 있다(김용표 등, 2007).

미세먼지 농도를 저감시키기 위해서는 우선 미세먼지 오염현상의 특징을 보다 정확히 규명하고, 다양한 오염원의 기여도를 밝히는 것이 중요하다. 이를 위해 국내에서는 주로 수용모델 기법을 이용하고 있고(김신도 등, 2007), 미세먼지의 수용성 무기이온과 원소 성분 측정 결과들을 활용하고 있다. 그러나 이들 성분들만을 이용할 경우, 배출원이 서로 중복되는 경우가 많아 데이터 해석에 어려움이 있고, 수용모델 결과에서도 불확실성이 초래되고 있다. 최근에는 이러한 불확실성을 최소화시키기 위하여 배출원별로 배출 특성이 뚜렷한 성분들을 측정하고, 이를 모델링에 활용함으로써 모델 결과의 신뢰도를 높이기 위한 연구가 다양하게 시도되고 있다. 특히 미국 등에서는 미세먼지 중의 주요 유기화합물 측정 자료를 이용하여 오염원 기여도를 평가하기 위한 연구가 활발히 수행되고 있다(Brinkman *et al.*, 2009; Marr *et al.*, 2006; Dickhut *et al.*, 2000; Schauer and Cass, 2000; Schauer *et al.*, 1996; Rogge *et al.*, 1991; Daisey *et al.*, 1979).

대기 중의 다환방향족탄화수소(Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, PAHs)는 다양한 연소과정에서 유기 물질의 불완전 연소에 의해 발생되는 대표적인 1차 유기화합물로 가스상과 입자상으로 존재한다. 가스상

으로 존재하는 PAHs는 대기 중의 히드록시라디칼(-OH), 혹은 니트로기(-NO₂)가 첨가되어 페놀류와 방향족 니트로화합물(nitroarene)을 형성할 수 있다. 벤젠고리가 5개 이상인 PAHs 성분들은 대부분 미세먼지에 흡착된 상태로 존재하며 비교적 안정하지만 이들은 발암성을 띠고 있어 보건학적으로 매우 중요하다. 암 연구 국제기구(International Agency for Research on Cancer, IARC)에서는 benz[a]anthracene, benzo[b]fluoranthene, benzo[k]fluoranthene, benzo[a]pyrene, dibenzo[ah]anthracene, indeno[1,2,3-cd]pyrene 등이 동물실험결과 발암 잠재성을 나타내는 것으로 보고하였다(Barale *et al.*, 1991; IARC, 1983).

대부분의 PAHs를 포함하는 미세먼지의 입경크기는 3 μm 이하로 연소연료와 연소방식의 차이에 따라 PAHs 구성비에 차이를 보이는 것으로 조사되고 있다(Gordon, 1988). 따라서 다양한 연소 오염원에서 배출되는 PAHs 성분들의 배출 목록(emission inventory)은 화학질량수지(CMB, Chemical Mass Balance) 모델에서 배출원의 규명과 정량적인 기여도 평가를 위해 활용될 수 있다. Schauer *et al.* (1996)은 CMB 모델에 주요 연소 오염원에서 배출되는 일차 유기화합물(primary organic compounds) 45종을 활용하였고, PAHs 성분들은 배출원에서 수용체까지의 질량보존을 고려하여 benzo[b]fluoranthene, benzo[k]fluoranthene, benzo[e]pyrene, indeno[1,2,3-cd]pyrene, indeno[1,2,3-cd]fluoranthene, benzo[ghi]perylene, coronene 등을 이용하였다.

본 연구에서는 서울 도심과 풍하 지역에서 일정기간 동안 미세먼지를 채취하여 PAHs 성분들을 분석하고, 두 지역의 농도 특성을 서로 비교하였다. 또 US EPA에서 규정한 16종의 PAHs 외에 주요 연소 오염원별 지표물질로 활용이 가능한 일부 PAHs를 추가하여 총 26종의 PAHs를 분석함으로써, 수용모델 입력 자료로 활용 시 모델 결과의 정확도 향상에 기여하고자 하였다. 추가된 PAHs는 가솔린 연료 차량과

디젤 연료 차량 간의 상대적인 기여도 조사를 위해 methylated phenanthrene (3-, 2-, 9-, 1-MP), 목재 소각 지표물질로 retene, 또 쓰레기 소각 지표물질로 triphenylbenzenes (TBZs)를 선정하였다. 그리고 가솔린 연료 내연기관 중 비 촉매 시설 차량의 배출 기여도를 조사하기 위하여 coronene을 추가하고, 수용 모델에서 오염원 기여도 평가의 정확도 향상을 위하여 안정성이 큰 indeno[1,2,3-cd]fluoranthene을 추가하였다.

2. 연구 방법

2.1 미세먼지 시료 채취

미세먼지 시료는 서울 도심지역(서울시 종로구 연건동 소재, 서울대학교 보건대학원 옥상, 지상 17 m)과 서울의 풍하지역(경기도 용인시 처인구 소재, 한국외국어대학교 외국학 종합연구센터 생활관 6층 옥상)에 10 μm Cyclone (PM₁₀)을 연결한 high volume air sampler (Kimoto, model 121 series 및 Graseby, model SAUV-10H)를 각각 설치하여 채취하였다. 분진시료는 석영섬유 필터(Whatman Quartz Microfibre Filter, QM-A, 20.3 × 25.4 cm)를 이용하여 채취하였고, 시료의 채취유량은 700 L/min으로 설정하였다. 연구기간 중 미세먼지 시료는 서울 도심 지역에서 총 86회의 시료를 채취하였고, 2006년 9월~2007년 2월에 1회/3일, 2007년 3월~8월에 5회/월 주기로 시료를 채취하여 PAHs 성분들을 분석하였다. 서울의 풍하지역에서는 1회/1일 주기로 두 차례의 집중 측정을 수행하여 총 31회의 시료를 채취하였다. 이 중 시료 채취 중에 필터가 찢기거나, 샘플러에 문제가 발생한 경우(서울 도심: 총 5회, 용인 지역: 총 4회)에는 최종 데이터 처리에서 제외하였다. 이러한 본 연구의 시료채취 일자를 표 1에 요약하였다.

2.2 미세먼지의 PAHs 분석

미세먼지 중의 PAHs는 초음파 용매추출법으로 추출하였다. 미세먼지 필터(Whatman Quartz Microfibre Filter, QM-A, 20.3 × 25.4 cm)를 4등분한 후, 이 중 한 개를 적당한 크기로 자른 후 이를 시험관(75 mL)에 넣고, 5 ppm surrogate 내부표준물질 4종(naphthalene-d₈; FW 136.22, acenaphthylene-d₁₀; FW 164.27, chrysene-d₁₂; FW 240.36, Perylene-d₁₂; FW 264.38)의

Table 1. Logbook during the measurement periods.

Site	Period	Frequencies
SNU ^a	8/20/06 ~ 2/28/07	3 days
	11/3/06 ~ 11/16/06	1 day
	3/1/07 ~ 8/31/07	5 times/month
No. of samples		86
KFU ^b	9/6 ~ 9/19/06	1 day
	10/31/06 ~ 11/16/06	1 day
No. of samples		31

^aSNU: Building roof of 'School of Public Health, Seoul National University'

^bKFU: Building roof of 'Institute of Foreign Language Education, Hankuk University of Foreign Studies'

혼합용액 50 μL를 첨가하였다. 추출용매는 hexane (Fisher Scientific, H302-4)과 부피비가 2:1인 benzene (Fisher Scientific, B241-4)/isopropanol (Fisher Scientific, A451-4)을 가한 후 초음추출기 (Branson 5210)로 PAHs 성분을 추출하였다. 용매는 hexane 20 mL를 각 2회, 그리고 2:1 benzene/isopropanol 20 mL를 각 3회씩 가하고, 각각 20°C에서 10분 동안 초음파 추출하였다(Rogge *et al.*, 1991). 이 때 시험관은 사용 직전에 에탄올(Fisher Scientific, A995-1)로 세척하여 유기오염물질을 제거한 후 건조시켜 사용하였다. 추출용액의 농축은 감압 회전증발기 (rotary evaporator) 사용 시 발생하는 시료의 손실을 최소화하기 위하여 풍전식 농축기를 사용하여 수행하였다. PAHs 추출용액을 모두 합친 후 주사기필터(Whatman PVDF, ID 25 mm, Pore size 0.45 μm)로 여과하고, 여액을 풍전식 농축기 (Zymark, Turbo Vap 500)에 넣어 40°C에서 500 μL로 농축하였다. PAHs의 정량분석은 농축한 추출용액에 내부 표준물질로 20 ppm phenanthrene-d₁₀ 25 μL를 가하고, 이를 1.5 mL 병에 옮겨 밀폐시킨 후 이를 GC/MS 분석용 시료로 이용하였다.

전처리를 거친 시료용액의 PAHs는 surrogate 표준 물질과 분석용 내부표준물질을 포함하여 총 32종을 GC/MS로 분석하였다. GC/MS는 Hewlett Packard 5890 GC에 5972 MSD를 결합시킨 GC/MSD와 Hewlett Packard 6890 GC에 JEOL 70 HRMS를 결합시킨 GC/HRMS를 병행하여 사용하였고, Selected Ion Monitoring (SIM)법에 의해 정량 하였다. 26종 PAHs의 정량분석용 표준용액은 200~2,000 ppm 농도의 각 표준물질을 적절한 농도(2~2,000 ppb)로 희석하여

Table 2. Instrumental conditions of GC/MSD (Hewlett Packard 5890 GC & 5972 MSD) analysis.

Injection	Splitless
Injection volume	2 μ L
Temperature	Injection port: 270°C, Detector: 310°C 70°C, hold 2.5 min; 10°C/min to 240°C, hold 4 min; 5°C/min to 260°C, hold 1 min; 5°C/min to 300°C, hold 32 min
Oven program	He gas flow
Column	0.82 mL/min at 15.2 psi Ultra-2 (cross-linked 5% phenyl methyl silicone 25 m, ID: 0.2 mm, film thickness; 0.33 μ m)
Ionization	Voltage: 70 eV, Temperature: 180°C
Vacuum	$\sim 10^{-5}$ torr

Table 3. Instrumental conditions of GC/HRMS (Hewlett Packard 6890 GC & JEOL 70 HRMS) analysis.

Injection	Splitless
Injection volume	1 μ L
Temperature	Injection port: 285°C, Detector: 300°C 50°C, hold 2 min; 19°C/min to 240°C; 18°C/min to 285°C; 6.25°C/min to 310°C, hold 30 min
Oven program	He gas flow
Column	0.70 mL/min at 15.2 psi Ultra-2 (cross-linked 5% phenyl methyl silicone 50 m, ID: 0.2 mm, film thickness; 0.33 μ m)
Mode	EI positive
Ionization energy	38 eV
Ionization temperature	Transfer line and ion source chamber: 300°C
Resolution	10,000

조제하였고, 회석용매는 추출에 이용한 용매를 사용하였다. 이 때 GC/MSD와 GC/HRMS의 분석조건은 표 2, 3과 같다.

2. 3 데이터의 정도 관리

PAHs의 분석 정밀도(precision)는 실시료의 PAHs 농도 수준인 100 ppb 표준용액을 사용하여 측정하였다. 이 표준용액의 농도를 7회 반복하여 측정하고 평균농도와 표준편차를 측정하여, 이로부터 상대표준편차(%)를 구하였다. 또한 추출과정과 분석과정의 적합성을 평가하기 위한 목적으로 분석 정확도(accuracy)를 인증표준물질인 NIST SRM 1649a (Urban Dust)를 사용하여 조사하였다. 인증표준물질(CRM)은 시

료 0.1~0.3 g 정도를 취하고 5회 반복하여 추출 및 분석 실험을 거친 후, 인증 값과 분석 값을 비교하여 정확도를 측정하였다. 방법검출한계(MDL, method detection limit)는 각 성분별로 검정 곡선 작성 시에 사용한 최소 농도의 표준용액을 사용하였다. 이 용액을 사용하여 각 성분별로 7회 반복 분석한 표준편차에 3을 곱한 값(3σ)을 검출한계로 결정하였다. 또한 회수율은 두 가지 방법으로 측정하였다. 첫 번째 방법은 바탕필터(blank filter)에 표준용액을 일정량 주입(spike)한 후 시료의 분석과정과 동일한 방법으로 추출, 농축하여 PAHs 각 성분들을 분석하는 방법으로 수행하였다. 이 때 표준용액의 농도는 실시료의 PAHs 농도와 유사한 수준인 500 μ L에서 250~500 ppb 범위가 되도록 조절하였다. 또한 PAHs 성분들의 분자량 크기별로 naphthalene-d₈ (FW 136.22), ace-naphthylene-d₁₀ (FW 164.27), chrysene-d₁₂ (FW 240.36), perylene-d₁₂ (FW 264.38)의 기준물질을 정하여 이를 일정량 바탕필터에 주입한 후, 동일한 방법의 전처리 과정을 거쳐 분석한 결과로부터 회수율을 측정하였고, 이를 앞의 측정 결과와 상호 비교하는 방법으로 회수율의 유효성을 확인하였다. 이 때 바탕필터는 500°C에서 5시간 정도 미리 강열하여 진류 유기물질을 제거하였고, 회수율 측정 결과는 현장 측정 시료의 분석 결과에 적용하여 최종 농도를 보정하는데 이용하였다.

3. 결과 및 고찰

3. 1 분석 데이터의 정도 보증 및 관리

본 연구에서 수행한 분석 데이터의 정도관리(QA/QC) 결과를 표 4에 나타내었다. GC/MS 분석에서 PAHs 성분들의 검출한계(MDL)는 0.25~7.56 ppb의 범위를 나타내었고, 대체적으로 머무름 시간이 짧은 성분들의 검출한계가 상대적으로 더 낮고, 머무름 시간이 길수록 높은 특징을 보였다. 또 100 ppb 농도의 PAHs 표준용액을 7회 반복 분석한 결과로부터 측정한 상대표준편차(%RSD)는 3.74~8.53% 범위를 보였고, 모든 성분들이 10% 미만의 정밀도를 나타내었다. 그리고 신뢰한계(95% 신뢰수준) 역시 모두 10% 보다 작은 것으로 조사되었다. 또한 회수율은 57~128%의 범위를 나타내었으며 이 중 분자량이 작은

Table 4. Results of MDL and precision measurements for PAHs analysis.

PAHs	Abb ^a	MDL ^b	%RSD ^c	CL ^d	PAHs	Abb	MDL	%RSD	CL
Naphthalene	Naph	0.25	6.59	7.64	Benzo(a)Anthracene	BaA	1.88	5.88	5.47
Acenaphthylene	Acy	0.40	7.26	5.34	Chrysene	Chry	0.95	3.74	4.25
Acenaphthene	Ace	0.40	4.51	3.41	Triphenylene	Triphe			
Fluoranthene	Flu	0.65	7.92	5.90	Benzo(b)Fluoranthene	BbF	2.36	6.01	5.55
Phenanthrene	Phen	0.35	4.14	3.69	Benzo(k)Fluoranthene	BkF	2.42	7.65	7.21
Anthracene	Ant	0.51	8.12	7.62	Benzo(e)pyrene	BeP	2.48	5.94	4.06
3-MethylPhenanthrene	3-MP	2.25	4.55	4.19	Benzo(a)pyrene	BaP	3.35	5.05	4.85
2-MethylPhenanthrene	2-MP	2.30	8.53	6.21	1,3,5-Triphenylbenzene	TPBz	1.75	5.65	4.23
9-MethylPhenanthrene	9-MP	2.35	4.86	4.52	Indeno(1,2,3-cd)Fluoranthene	I123cdF	6.68	7.84	6.35
1-MethylPhenanthrene	1-MP	2.40	6.94	6.22	Indeno(1,2,3-cd)Pyrene	I123cdP	6.59	7.10	6.04
Fluoranthene	Flt	0.72	4.48	4.81	Dibenz(ah)Anthracene	DahA	5.46	7.50	7.37
Pyrene	Pyr	0.62	7.10	5.96	Benz(ghi)Perylene	BghiP	3.92	5.20	4.85
Retene	Ret	4.85	5.26	5.24	Coronene	Cor	7.56	6.12	4.25

^aAbbreviation, ^bMethod detection limit (3σ , unit: ppb), ^cRelative standard deviation (%) for 100 ppb PAHs (n=7), ^d95% confidence limit for 100 ppb PAHs (n=7)

Table 5. Results of recovery measurements for PAHs analysis.

PAHs ^a	%Recovery	SD	%RSD	PAHs	%Recovery	SD	%RSD
Naph	57	6.0	10.5	BaA	126	3.0	2.4
Acy	82	8.5	10.4	Chry+Triphe	115	5.9	5.2
Ace	81	7.7	9.4	BbF	127	5.0	4.0
Flu	94	5.3	5.6	BkF	118	6.6	5.6
Phen	93	1.4	1.5	BeP	118	10.0	8.5
Ant	109	7.5	6.9	BaP	120	8.7	7.3
3-MP	107	8.6	8.1	TPBz	119	10.1	8.5
2-MP	104	2.8	2.7	I123cdF	122	8.0	6.6
9-MP	99	4.6	4.6	I123cdP	114	10.3	9.0
1-MP	104	7.6	7.3	DahA	128	3.5	2.7
Flt	105	10.0	9.6	BghiP	117	9.5	8.1
Pyr	101	5.8	5.7	Cor	117	12.0	10.2
Ret	123	9.4	7.7				

^aPAHs: Naph (Naphthalene), Acy (Acenaphthylene), Ace (Acenaphthene), Flu (Fluoranthene), Phen (Phenanthrene), Ant (Anthracene), 3-MP (3-MethylPhenanthrene), 2-MP (2-MethylPhenanthrene), 9-MP (9-MethylPhenanthrene), 1-MP (1-MethylPhenanthrene), Flt (Fluoranthene), Pyr (Pyrene), Ret (Retene)

naphthalene 성분이 57%로 가장 낮은 회수율을 보였고, dibenz(ah)anthracence이 128%로 가장 높은 회수율을 나타내었다(표 5). 이 때 회수율은 바탕필터(Whatman Quartz microfibre filter, QM-A, 20.3 × 25.4 cm)에 PAHs 표준용액 일정량을 가(spike)하여 시료와 동일한 방법으로 추출 과정을 거친 후 각 PAHs를 GC/MS로 분석하여 측정하였다. 바탕필터는 500°C 이상에서 5시간 정도 강열한 후 미세먼지 필터와 동일한 크기로 절단하여 사용하였고, PAHs 표준용액의 양은 시료의 농도를 고려하여 최종 농축 농도가 250 ~ 500 ppb가 되도록 조절하였다. 그리고 농축 과정에

서의 손실율을 최소화시키기 위하여 40°C 내외에서 용매를 증발시킬 수 있는 풍건식 농축기(Zymark, Turbovap 500)를 사용하였다. PAHs 분석의 경우 여과, 농축 등의 전처리 과정에서 불가피하게 손실이 발생되고, PAHs 성분들의 물리, 화학적인 특성에 따라 회수율은 차이를 나타내게 된다. 대체적으로 증기 압이 높고 분자량이 낮은 PAHs 성분들일수록 증기 압이 낮고 분자량이 큰 성분들에 비해 시료추출 과정에서 손실율이 높게 나타나고 있다. 특히 회발성이 크고 대기 중에서 대부분 가스상으로 존재하는 Naphthalene, Acenaphthylene, Acenaphthene, Fluoranthene

Table 6. Relative standard deviations and recoveries measured using NIST SRM 1649a.

PAHs	CV ($\mu\text{g/kg}$) ^a	MV ($\mu\text{g/kg}$) ^b	%RSD ^c	%Recovery ^d
Phenanthrene	4.14±0.37	4.05±0.28	7.0	98
Anthracene	0.43±0.08	0.56±0.02	9.8	130
Fluoranthene	6.45±0.18	6.33±0.25	4.0	98
Pyrene	5.29±0.25	5.17±0.35	6.8	98
Benzo(a)Anthracene	2.21±0.07	2.40±0.11	4.5	108
Chrysene	3.05±0.06	—	—	—
Benzo(b)Fluoranthene	6.45±0.64	5.66±0.20	3.6	88
Benzo(k)Fluoranthene	1.91±0.03	2.60±0.14	4.1	136
Benzo(e)pyrene	3.09±0.19	3.25±0.20	6.1	102
Benzo(a)pyrene	2.51±0.09	2.57±0.18	7.1	105
Indeno(123-cd)Pyrene	3.18±0.72	3.06±0.14	4.5	96
Dibenz(ah)Anthracene	0.29±0.02	0.40±0.04	8.7	138
Benz(ghi)Perylene	4.01±0.91	3.56±0.19	5.4	89

^aNIST certified value with expanded uncertainty, ^bMeasured value with standard deviation (n=6), ^cRelative standard deviation of measured values, ^d% recovery=MV/CV × 100

Table 7. Mean concentrations of PAHs measured at Seoul metropolitan area (Jongno and Yongin sites).

PAHs	PAHs (ng m^{-3})					Yongin Fall
	Spring	Summer	Fall	Winter	Year	
Naph	BDL ^a	BDL	BDL	BDL	BDL	BDL
Acy	BDL	BDL	BDL	BDL	BDL	BDL
Ace	BDL	BDL	BDL	BDL	BDL	BDL
Flu	BDL	BDL	BDL	BDL	BDL	BDL
Phen	0.96±0.69	0.14±0.16	0.99±0.89	3.46±1.72	1.39±1.60	0.86±0.77
Ant	0.08±0.07	0.02±0.02	0.23±0.10	0.40±0.21	0.22±0.20	0.19±0.08
3-MP	0.11±0.06	0.03±0.01	0.30±0.24	0.60±0.23	0.27±0.28	0.15±0.11
2-MP	0.15±0.08	0.04±0.02	0.22±0.14	0.60±0.26	0.27±0.26	0.14±0.12
9-MP	0.10±0.06	0.03±0.01	0.16±0.09	0.39±0.17	0.18±0.17	0.10±0.07
1-MP	0.09±0.07	0.02±0.01	0.17±0.10	0.38±0.19	0.18±0.18	0.11±0.09
Flt	1.44±0.75	0.20±0.09	1.61±1.21	5.23±2.14	2.14±2.26	1.29±1.04
Pyr	1.17±0.57	0.22±0.08	1.43±1.03	4.16±1.75	1.77±1.79	1.11±0.87
Ret	0.33±0.40	0.04±0.02	0.67±0.60	2.37±2.16	0.96±1.47	0.47±0.50
BaA	0.75±0.27	0.27±0.12	1.19±1.04	2.51±1.20	1.21±1.16	0.87±0.67
Chry+Triphe	0.74±0.33	0.18±0.08	1.15±0.93	2.45±1.01	1.16±1.10	0.83±0.60
BbF	1.28±0.54	0.45±0.18	2.41±1.85	4.05±2.01	2.12±1.95	1.82±1.32
BkF	0.99±0.41	0.32±0.14	1.88±1.59	3.04±1.58	1.62±1.55	1.57±1.17
BeP	0.85±0.35	0.30±0.14	1.42±1.09	2.45±1.11	1.29±1.14	1.07±0.72
BaP	0.83±0.42	0.25±0.10	1.76±1.56	2.54±1.64	1.41±1.47	1.28±1.01
TPBz	0.31±0.17	0.26±0.16	N.A. ^b	0.67±0.46	0.41±1.47	N.A. ^b
I123cdF	0.27±0.14	0.09±0.05	0.24±0.21	0.53±0.24	0.28±0.24	0.18±0.12
I123cdP	1.05±0.52	0.30±0.15	1.53±1.19	2.69±1.39	1.43±1.30	1.01±0.65
DahA	0.28±0.16	0.07±0.03	0.32±0.30	0.68±0.31	0.34±0.32	0.23±0.18
BghiP	0.81±0.38	0.28±0.14	1.33±1.01	2.15±1.16	1.18±1.06	0.75±0.45
Cor	0.46±0.25	0.12±0.06	0.56±0.42	0.88±0.46	0.51±0.44	0.19±0.14
ΣPAHs	13.05±6.11	3.54±1.32	19.24±14.79	41.99±17.50	19.92±18.49	14.06±9.96

^aBelow detection limit, ^bNot analyzed

등은 추출용액을 농축하는 과정에서 손실율이 높은 경향을 보이고 있고, 본 연구에서도 Naphthalene이

가장 낮은 회수율을 나타내었다 (Zhou et al., 2005). 미세먼지의 PAHs 성분들은 극미량 수준으로 존재

하기 때문에 다른 성분들에 비해 상대적으로 분석 오차가 크게 나타날 수 있다. 본 연구에서는 이러한 오차 정도를 확인하기 위하여, 도시 미세먼지의 인증 표준물질인 NIST SRM 1649a (Urban Dust)를 이용하여 분석 결과의 정확도를 객관적으로 평가하였고, 그 결과를 표 6에 수록하였다. 표에서 보듯이 NIST SRM 1649a에 미량으로 존재하는 anthracene과 dibenz(ah)anthracene은 각각 9.8, 8.7%의 상대표준편차(%RSD)를 보였으며, 나머지 성분들은 모두 8% 미만의 편차를 나타내는 것으로 조사되었다. 또 NIST의 인증값과 비교한 회수율(%)은 anthracene (130%), dibenz(ah)anthracene (138%), benzo(k)fluoranthene (136%) 등이 대체적으로 큰 오차를 나타내었고, 이를 제외한 나머지 성분들은 88~108%의 회수율을 보여 비교적 정확도가 높은 것으로 확인되었다.

3. 2 미세먼지의 PAHs 농도 특징

서울 도심 지역의 입자상 PAHs 농도는 1.28~81.22 ng m⁻³의 범위를 나타내었고, 평균농도는 19.92 ± 18.49 ng m⁻³으로 조사되었다(표 7). 그리고 본 연구 결과를 서울 도심에서 수행한 선행 연구와 비교해 본 결과, EPA가 규정한 16종 PAHs를 기준으로 입자상 PAHs의 총 농도는 Park et al. (2002)의 연구 결과의 대략 0.65배 수준으로 조사되었다. 그리고 한진석 등(2006)에 의해 보고된 PM_{2.5}의 입자상 PAHs의 총 농도보다는 1.8배 정도 높은 것으로 나타났다. 비록 한정된 기간이긴 하지만 봄철에 비슷한 방법으로 시료를 채취하여 수행한 박찬구 등(2006)의 연구 결과와 본 연구의 봄철 결과는 비슷한 수준을 나타내는 것으로 조사되었다(표 8).

서울의 풍하에 위치한 용인 지역에서는 입자상 PAHs 농도가 1.66~1.84 ng m⁻³의 농도 분포를 보였고, 평균농도는 14.06 ± 9.96 ng m⁻³으로 조사되었다. 손정화 등(2000)의 연구에 의하면, 용인과 근접한 경기도 신갈 지역에서 1996년 2월부터 6월까지 PAHs 농도가 각각 Flu 0.34 ng m⁻³, Pyr 0.73 ng m⁻³, BaA 0.36 ng m⁻³, Chry 0.50 ng m⁻³, BbF 0.67 ng m⁻³, BaP 1.04 ng m⁻³ 등으로 나타나고 있다. 이를 본 연구의 측정 결과와 비교해 보면, 이들 성분들은 각각 3.8, 1.5, 2.4, 1.7, 2.7, 1.2배 더 높은 농도를 보이고 있다.

또한 동일한 가을철 측정 결과를 기초로 서울과 용인 두 지역의 PAHs 농도를 비교해 본 결과, 최소

Table 8. Comparison of PAHs concentrations in Seoul area.

PAHs	PAHs (ng m ⁻³)		
	TSP	TSP	PM _{2.5}
	Other study ^a (Park et al.)	Other study ^b (Park et al.)	Other study ^c (Han et al.)
Naphthalene	0.14 ± 0.07	0.33 ± 0.03	0.96 ± 0.07
Acenaphthylene	0.12 ± 0.10	0.03 ± 0.02	0.08 ± 0.04
Acenaphthene	0.21 ± 0.17	0.12 ± 0.03	0.06 ± 0.05
Fluoranthene	0.26 ± 0.16	0.08 ± 0.03	0.03 ± 0.01
Phenanthrene	1.46 ± 1.21	0.81 ± 0.07	0.46 ± 0.23
Anthracene	0.18 ± 0.16	0.93 ± 0.11	0.01 ± 0.17
Fluoranthene	2.27 ± 2.53	0.95 ± 0.21	0.89 ± 0.43
Pyrene	2.25 ± 2.63	1.06 ± 0.25	0.57 ± 0.29
Benzo(a)Anthracene	1.82 ± 2.44	0.66 ± 0.14	0.40 ± 0.23
Chrysene	2.78 ± 2.87	1.18 ± 0.27	0.65 ± 0.29
Benzo(b)Fluoranthene	4.89 ± 5.19 ^d	1.31 ± 0.38	1.96 ± 1.1
Benzo(k)Fluoranthene	—	1.08 ± 0.36	0.23 ± 0.11
Benzo(a)pyrene	2.55 ± 3.30	0.72 ± 0.31	0.21 ± 0.09
Indeno(123-cd)Pyrene	3.59 ± 5.01	0.58 ± 0.15	0.48 ± 0.30
Dibenz(ah)Anthracene	0.55 ± 0.71	0.10 ± 0.05	0.20 ± 0.13
Benz(ghi)Perylene	3.21 ± 4.28	0.47 ± 0.14	1.70 ± 0.73
ΣPAHs	26.2 ± 29.4	10.41 ± 3.44	9.20 ± 4.80

^aPark et al. (2002) Atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in Seoul, Korea, Atmospheric Environment, 36, 2917-2924.

^bPark et al. (2006) Contributive estimation of polycyclic aromatic hydrocarbons by emission source in Seoul Area. J. KOSAE, 22(3), 287-295 (High Volume Air Sampler, 650 L/min; March 28, 2000 ~ April 24, 2000).

^cHan et al. (2006) Study on the distributions of VOCs, aldehydes, PAHs concentration in Seoul Metropolitan Area, J. KOSAE, 22(5), 574-589 (PM_{2.5}, Medium Volume Air Sampler, 95 L/min; February, May, August, 2005).

^dBenzo[b+k]fluoranthene.

농도는 서로 비슷하지만 최고 농도는 서울이 2배 정도 높았으며, 평균 농도는 서울 지역이 1.5배 더 높은 것으로 조사되었다. 특히 PAHs 성분 중 Cor은 서울 지역이 3배 정도 더 높고, BghiP가 1.9배, MP 성분들이 1.9배~4.1배 더 높은 것으로 조사되었다. 그러나 나머지 PAHs 성분들은 1.3~1.6배 범위로 상대적으로 낮은 차이를 나타내었다. 그리고 두 지역의 PAHs 농도 변화 추이를 조사한 결과 측정 기간 동안 비교적 비슷한 경향을 보였다. 이와 같은 현상은 주로 측정 지역에서 측정된 미세먼지에 영향을 미치는 주요 오염원의 분포가 비슷하기 때문으로 판단된다. 용인 지역에서는 1차, 2차 집중측정 기간에만 시료를 채취하였고 이 시기의 PAHs 농도를 비교해 보면, 1차 측정기간(9월)에 비해 2차 측정기간(11월)에 훨씬 높게 나타났다. 그렇지만 상대적인 증가율은 9

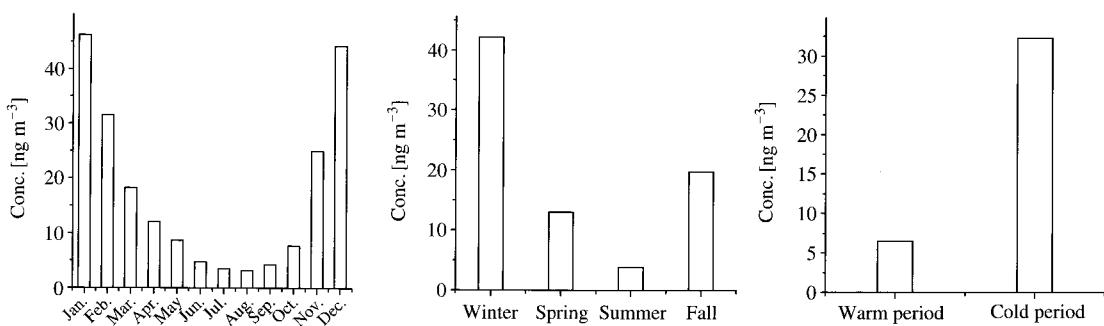


Fig. 1. Concentration variations of PAHs by month, season, and warm/cold periods at Jongno site.

월에 비해 11월에 총 PAHs 농도가 6배 정도 상승하여 서울 도심 지역과 비슷한 증가율을 보였다. 또한 동일한 시기의 서울과 용인 지역 측정 자료를 비교하여 공간적인 분포 특성을 조사해 본 결과, 총 PAHs 농도는 서울 지역이 1차 집중측정 시(9월)에 1.3배, 2차 집중측정 시(11월)에 1.2배 정도 더 높은 결과를 나타내었다.

3.3 PAHs 농도의 주요 영향 인자

서울 도심 지역의 PAHs 농도 특징과 이를 농도에 영향을 미치는 주요 요인들을 파악하기 위하여 월별과 계절별, 그리고 난방(cold)/비난방(warm) 기간별로 구분하여 이 시기의 농도를 비교하였다(그림 1, 2). 우선 총 PAHs(Σ PAHs) 농도의 월별 변화를 보면, 1월에 46.24 ng m^{-3} 으로 가장 높고, 8월에 3.23 ng m^{-3} 으로 가장 낮은 결과를 나타내었다. 그리고 월별 총 PAHs 농도는 가장 낮은 8월에 비해 상대적으로 6, 7, 9월에 1.1~1.4배, 4, 5, 10월에 2.4~3.9배, 2, 3, 11월에 5.6~9.7배, 1, 12월에 14배 정도 상승하였다. 또 계절별 총 PAHs 농도는 여름철(6, 7, 8월) 농도에 비해 각각 봄철(3, 4, 5월)에 3.7배, 가을철(9, 10, 11월)에 5.4배, 겨울철(11, 1, 2월)에 11.9배 농도가 상승하는 결과를 나타내었다. 그리고 난방과 비난방 기간의 PAHs 농도를 비교해 본 결과에서는 난방 시기(11~3월)의 PAHs 농도가 비난방 시기(4~10월)에 비해 5.1배 정도 상승한 것으로 조사되었다.

또한 미세입자의 PAHs 성분들을 벤젠고리의 수에 따라 구분하여 월별 농도 변화 경향을 조사하였다. 이 결과에서 역시 앞의 총 PAHs 농도와 마찬가지로

8월에 대부분의 성분들이 가장 낮은 농도를 나타내었고, 8월에서 12월, 1월로 갈수록 농도가 크게 상승하였다. 우선 벤젠 고리가 3개인 PAHs(Phen, Ant, MPs, Ret) 성분들이 이 기간에 39.7배로 가장 큰 증가율을 보였다. 그리고 벤젠 고리가 4개인 PAHs(Flt, Pyr, BaA, Chry+Triphe, 1,3,5-TPBz) 성분들은 18.3배, 벤젠 고리 5개인 PAHs(BbF, BkF, BeP, BaP, DahA) 성분들이 9.8배, 벤젠 고리 6~7개인 PAHs(I123cdF, I123cdP, BghiP, Cor) 성분들은 8.1배의 증가율을 나타내었다. 또 계절별로 농도 변화의 특징을 비교해 본 결과, 벤젠 고리가 3개, 4개, 5개, 6~7개인 PAHs 성분들은 여름철에서 비해 겨울철에 각각 5.7~25.6배, 3.9~13.3배, 3.0~9.2배, 3.2~7.8배 정도로 농도가 증가한 것으로 나타났다. 한편 난방(11~3월)과 비난방(4~10월) 기간의 PAHs 농도 변화를 비교하여 그 특징을 살펴보았다. 그 결과, 벤젠 고리가 3개, 4개, 5개, 6~7개인 PAHs 성분들이 비난방시기에 비해 난방 시기에 각각 8.6, 5.5, 4.5, 3.8배 정도 더 상승하는 경향을 보였다. 이러한 변화는 그림 3에 나타낸 2003년 화석연료의 월별 사용량 변화와도 잘 일치하는 결과이다.

이상과 같이 PAHs 농도를 시기별로 비교한 결과를 기초로 그 특징을 유추해 보면, PAHs 성분들의 시기별 농도 변화는 화석 연료의 사용량과 가장 밀접한 관계가 있음을 알 수 있다(그림 3 참조). 그리고 PAHs 상분포에 대한 온도의 영향, 혼합고의 변화, 광화학적인 산화 반응조건의 변화 등에 따라 농도가 달라지는 경향을 보이고 있는 것으로 추정된다(에너지관리공단, 2003; Bae et al., 2002; Park et al., 2002;

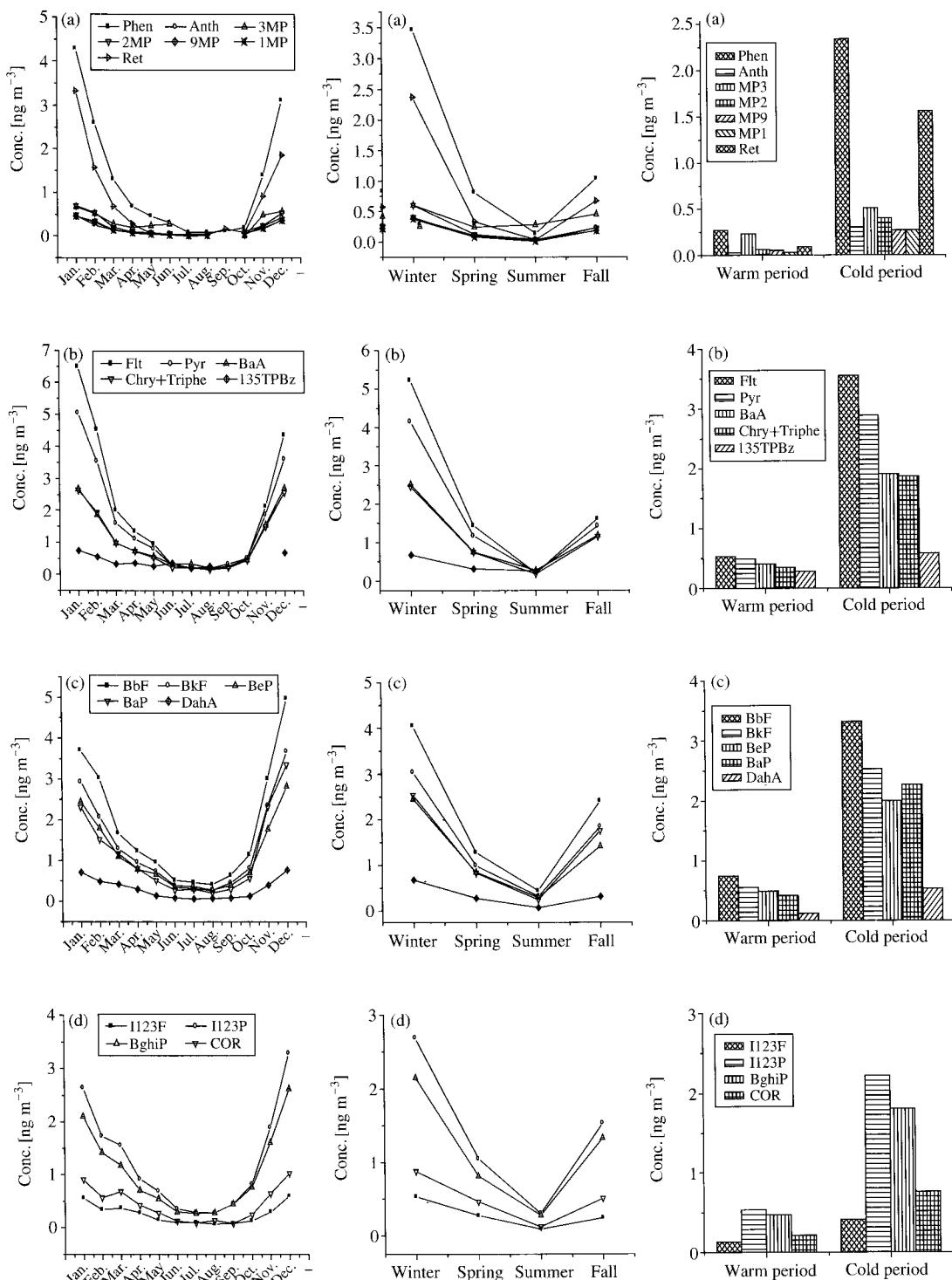


Fig. 2. Concentration variations of PAHs by month, season, and warm/cold periods according to the number of benzene rings of 3 (a), 4 (b), 5 (c), and 6~7 (d), at Jongno site.

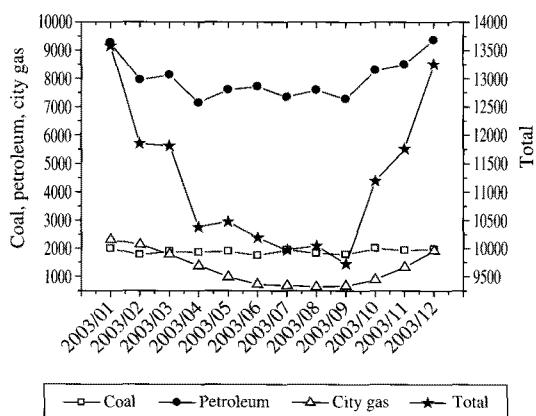


Fig. 3. Monthly variations of energy consumptions (units: toe) in Korea.

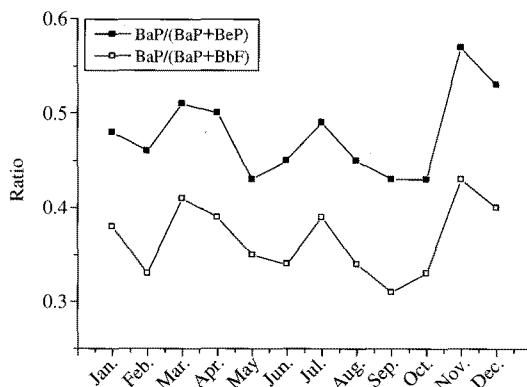


Fig. 4. Monthly variations of BaP/(BaP+BeP), BaP/(BaP+BbF) concentration ratios in Seoul.

백성옥과 최진수, 1998). Park *et al.* (2002)에 의하면, 서울지역은 9월에 비해 12월 오후 3시경에 최고 혼합고가 2.5배 낮아지고, 기온은 20°C 정도, 오존 농도 역시 2.5배 정도 감소하고, 이러한 요인들이 입자상 PAHs의 농도분포에 영향을 미치는 것으로 보고하고 있다. 입자상 PAHs 성분들 중에서 반응성이 큰 것으로 알려진 BaP와 비교적 안정한 BeP 혹은 BbF와의 비, 즉 BaP/(BaP+BeP)와 BaP/(BaP+BbF)는 미세입자의 방출원과 광화학 반응에 의한 입자상 PAHs의 손실을 추정하는 지표로 이용된다(그림 4 참조). 그리고 이 값은 여름철이 겨울철에 비해 상대적으로 낮기 때문에 광화학 반응에 의한 영향을 추정하는

Table 9. Pearson correlation coefficients between PAHs and meteorological parameters in Seoul.

PAHs	Seoul			
	Temp. ^a	Radiation	Humidity	Wind speed
PAHs	-0.74	-0.29 ^b	-0.24 ^b	-0.32 ^a
Ph	-0.77	-0.18	-0.37 ^a	-0.20
An	-0.70	-0.38 ^a	-0.23	-0.40 ^a
3-MP	-0.72	-0.32 ^b	-0.29 ^b	-0.36 ^a
2-MP	-0.73	-0.23	-0.29 ^b	-0.35 ^a
9-MP	-0.75	-0.24	-0.32 ^a	-0.36 ^a
1-MP	-0.75	-0.24	-0.35 ^a	-0.34 ^a
Flt	-0.77	-0.21	-0.32 ^a	-0.25 ^b
Pyr	-0.75	-0.22	-0.31 ^a	-0.28 ^b
Ret	-0.58	-0.21	-0.31 ^a	-0.33 ^a
BaA	-0.67	-0.31 ^a	-0.16	-0.34 ^a
Chry+Triphe	-0.71	-0.31 ^a	-0.18	-0.33 ^a
BbF	-0.64	-0.34 ^a	-0.12	-0.29 ^b
BkF	-0.63	-0.33 ^a	-0.13	-0.31 ^a
BeP	-0.66	-0.33 ^a	-0.14	-0.32 ^a
BaP	-0.60	-0.33 ^a	-0.11	-0.27 ^b
135-TPBz	-0.37	-0.14	-0.24	-0.63 ^a
I123-cdF	-0.66	-0.24 ^b	-0.18	-0.31 ^a
I123-cdP	-0.64	-0.31 ^a	-0.15	-0.32 ^a
DahA	-0.69	-0.26 ^b	-0.21	-0.34 ^a
BghiP	-0.61	-0.31 ^a	-0.14	-0.34 ^a
Cor	-0.63	-0.23	-0.22	-0.35 ^a

^aCorrelation is significant at the 0.05 level (2-tailed)

^bCorrelation is significant at the 0.01 level (2-tailed)

근거가 된다. 본 연구에서 이들 성분비를 조사한 결과, 여름철과 겨울철의 차이는 비교적 낮게 나타났고, 2월과 7월의 이들 성분비는 예상과 다른 경향을 보이고 있다. Park *et al.* (2002)은 1998년 10월부터 1999년 12월까지 PAHs 농도와 풍속, 습도, 일사량과의 상관성 분석을 수행하여, PAHs와 일사량 간에 음의 상관관계 ($r=-0.31$)가 나타나는 것을 확인하였다. 이로부터 광산화 과정에 의해 비교적 반응성이 큰 입자상 PAHs들의 분해 가능성을 제시하였으나 서울 지역의 PAHs 성분의 계절별 농도 분포 특징을 종합적으로 분석한 결과, 여름철의 광화학적인 분해 영향은 크지 않다고 보고하였다.

본 연구에서는 미세입자의 PAHs 분석 결과를 이용하여 PAHs 성분들과 온도, 습도, 일사량, 풍속과의 상관성을 조사하였고, 그 결과를 표 9와 그림 5에 나타내었다. 이 때 기상 자료는 기상청에서 제공하는 서울(108) 지역의 자료를 이용하였고, 통계 프로그램은 SPSS (version 11.5)를 이용하였다. 결과에서 보듯

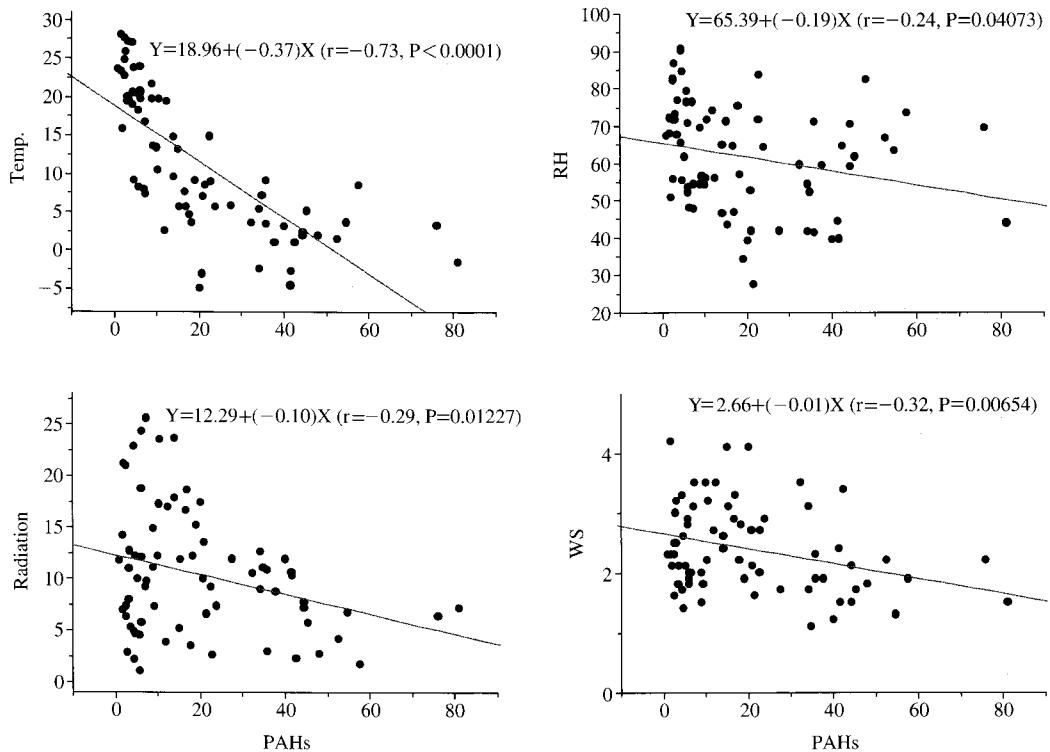


Fig. 5. Scattergrams between PAHs and meteorological parameters in Seoul.

이 서울 지역에서 총 PAHs와 온도와의 상관계수(r)는 -0.74 로 음의 상관성($p=0.01$, 2-tailed)을 나타내었다. 이러한 결과는 Langmuir의 등온흡착 개념을 적용한 PAHs 상분포에 미치는 온도의 영향과 밀접한 관계가 있음을 의미한다. 그러나 풍속, 습도, 일사량과의 상관계수는 각각 -0.32 , -0.24 , -0.29 로 나타났다. 그리고 각각의 입자상 PAHs 성분들 역시 위의 경향에서 크게 벗어나지 않는 것으로 조사되었다.

조기철 등(1994)은 일사량과 입자상 PAHs의 상관성을 분석한 결과, 미세입자에서 I123cdP를 제외한 나머지 모든 성분들이 매우 높은 음의 상관성을 나타내었고, 조대입자에서도 대부분 높은 음의 상관성을 보여 일사량이 높을수록 PAHs의 농도는 감소하는 것으로 보고하였다. 그리고 백성우과 최진수(1998)는 휘발성이 강한 저분자 PAHs는 계절에 다른 온도변화의 영향을 받지 않을 정도로 기체상의 농도가 지배적임을 확인하였다. 그렇지만 벤젠고리가 4~5개로 비교적 휘발성이 약한 중간 정도의 분자량

을 가진 PAHs들은 여름철이 겨울철보다 기체상 농도의 점유율이 크게 나타나 측정된 PAHs의 상분포에 미치는 온도의 영향이 크다는 것을 확인하였다. Park *et al.* (2002) 역시 기상요소 중에는 온도와의 상관성이 가장 높고, 상관계수가 -0.51 로 온도가 감소할수록 PAHs 농도는 다소 증가한다는 것을 확인하였다. 김형섭 등(2006)은 기체상 PAHs 농도와 기온과의 특별한 상관성을 발견하지 못했지만 입자상 PAHs 농도는 기온에 반비례한다는 결과를 보고하였다. 그리고 이러한 기체상 PAHs 농도와 기온과의 상관성은 입자로부터의 재휘발보다는 주로 측정 지점 주위의 배출 등 다른 인자들에 의해 결정되기 때문인 것으로 제안하고 있다.

4. 결 론

2006년 8월부터 2007년 8월까지 서울의 도심 지

역에서 PM₁₀ 미세먼지 시료 총 86개를 채취하고, 2006년 9월과 11월에 서울의 풍하 측에 위치한 용인 지역에서 총 31개의 시료를 채취하여, 26종의 PAHs 성분을 분석하였다. 그리고 그 결과로부터 수도권 지역 PAHs의 농도 특성을 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

서울 지역 입자상 PAHs의 평균농도는 $19.92 \pm 18.49 \text{ ng m}^{-3}$ 로 $1.28 \sim 81.22 \text{ ng m}^{-3}$ 의 범위를 나타내었고, US EPA에서 규정한 16종 PAHs를 기준으로 농도를 비교한 결과, 기준의 연구에 비해 다소 낮은 0.65배의 수준을 나타내었다. 용인 지역의 가을철 PAHs 농도는 $14.06 \pm 9.96 \text{ ng m}^{-3}$ 로 연구기간에 $1.66 \sim 31.84 \text{ ng m}^{-3}$ 의 범위를 나타내었다. 서울과 용인 지역의 가을철 PAHs 농도는 최저 농도는 서로 비슷 하나 최고 농도는 서울이 2배, 평균은 1.5배 정도 더 높은 것으로 조사되었다. PAHs 성분 중에는 Cor이 서울 지역이 3배, BghiP가 1.9배, MP 성분들이 1.9 ~ 4.1배 더 높았으나 나머지 성분들은 1.3 ~ 1.6배 범위로 상대적으로 낮은 차이를 나타내었다.

서울 지역 입자상 PAHs의 월별 농도를 비교해 본 결과, 8월에 3.23 ng m^{-3} 으로 가장 낮았고, 1월에 46.24 ng m^{-3} 으로 가장 높게 나타났다. 그리고 월별 총 PAHs 농도는 8월에 비해 상대적으로 6, 7, 9월에 $1.1 \sim 1.4$ 배, 4, 5, 10월에 $2.4 \sim 3.9$ 배, 2, 3, 11월에 $5.6 \sim 9.7$ 배, 1, 12월에 14배의 증가율을 나타내었다. 또 계절별, 난방/비난방 시기로 분류하여 PAHs의 농도를 비교해 본 결과, 계절별로는 여름철(6, 7, 8월)에 비해 봄철(3, 4, 5월)에 3.7배, 가을철(9, 10, 11월)에 5.4배, 겨울철(11, 1, 2월)에 11.9배 상승하였고, 비난방 시기(4 ~ 10월)에 비해 난방 시기(11 ~ 3월)에 농도가 5.1배 상승한 것으로 조사되었다. 이러한 결과들을 종합해 보면, PAHs의 농도는 화석연료의 사용량에 따라 가장 크게 영향을 받고 있으며, 기온 및 혼합고의 감소, 광산화 반응의 약화 등에 따라 그 농도가 상승하는 경향을 보이는 것으로 추정된다.

감사의 글

이 논문은 2007년도 정부재원(교육인적자원부 학술연구조성사업비)으로 한국학술진흥재단(KRF-2007-355-C00057)과 국립환경연구원 「수도권지역 미세먼

지 오염현상 해석 및 이차먼지 생성변화율 예측」 사업의 지원을 받아 연구되었습니다.

참 고 문 헌

- 김신도, 김동술, 조석연, 김영준, 이정주(2007) 대도시 대기질 관리방안 조사연구: 미세먼지 생성과정 규명과 저감대책 수립, 국립환경과학원 보고서 (RAL-0703114).
- 김용표, 강창희, 김영성, 김용준, 김호, 송철한, 우정현, 이승목, 정창훈, 홍상범(2007) 수도권 미세먼지 오염현상 해석 및 이차먼지 생성변화율 예측, 국립환경과학원 보고서.
- 김형섭, 김영성, 김종국(2006) 2002년 6월부터 11월까지 전 주지역 대기 중 다환방향족 탄화수소의 특성, 한국대기환경학회지, 499-508.
- 박찬구, 윤중섭, 어수미, 신정식, 김민영, 손종열, 모세영(2006) 서울지역 대기중 다환방향족탄화수소의 발생원별 기여도 평가, 한국대기환경학회지, 22(3), 287-295.
- 백성옥, 최진수(1998) 대기 중 다환방향족탄화수소의 기체-입자상 농도분포에 미치는 주변 온도의 영향, 한국기보전학회지, 14(2), 117-131.
- 손정화, 횡인조, 김동술(2000) 대기 중 PM-10의 오염원 추정을 위한 다환방향족탄화수소와 무기원소자료의 예비통계분석: 1996년 2월~6월까지 대규모 영통건설지역 주변을 중심으로, 한국대기환경학회지, 16(1), 11-22.
- 에너지관리공단(2009) 에너지 통계/에너지 소비실적: 2003년도 월별 에너지(석탄, 석유, 도시가스) 소비량, http://www.kemico.or.kr/data/e_static/energy_chart/energy_static_view_main.asp.
- 조기철, 이승일, 김달호, 허귀석, 김희강(1994) 도시대기부유분진중 다환방향족 탄화수소의 농도 및 입경분포 특성, 한국기보전학회지, 10(1), 57-63.
- 한진석, 이민도, 임용재, 이상옥, 김영미, 공부주, 안준영, 홍유덕(2006) 수도권 지역에서 환경 대기 중 유해대기오염물질(VOCs, Aldehydes, PAHs) 농도분포 특성 연구, 한국대기환경학회지, 22(5), 574-89.
- Bae, S.Y., S.M. Lee, and Y.P. Kim (2002) Temporal and spatial variations of the particle size distribution of PAHs and dry deposition fluxes in Korea, Atmospheric Environment, 36, 5491-5500.
- Barale, R., L. Giromini, G. Ghelardini, C. Scapoli, N. Loprieno, M. Pala, F. Valerio, and I. Barrai (1991) Correlations between 15 polycyclic aromatic hydrocarbons

- (PAH) and the mutagenicity of the total PAH fraction in ambient air particle in La Spezia (Italy), *Mutation Research*, 249, 227-241.
- Brinkman, G.L., J.B. Milford, J.J. Schauer, M.M. Shafer, and M.P. Hannigan (2009) Source identification of personal exposure to fine particulate matter using organic tracers, *Atmospheric Environment*, 43(12), 1972-1981.
- Daisey, J.M., M.H. Keyko, and T.J. Kneip (1979) Source identification and allocation of polycyclic aromatic hydrocarbon compounds in the New York city aerosol: methods and applications, in *Polycyclic Aromatic Hydrocarbons*. Edited by P.W. Jones and P. Leber, Ann Arbor Science, Ann Arbor, 201-215.
- Dickhut, R.M., E.A. Canuel, K.E. Gustafson, K. Liu, K.M. Aezayus, S.E. Walker, G. Edgecombe, M.O. Gaynor, and E.H. Macdonald (2000) Automotive sources of carcinogenic polycyclic aromatic hydrocarbons associated with particulate matter in the Chesapeake Bay region, *Environ. Sci. Technol.*, 34, 4635-4640.
- Gordon, G.E. (1988) Receptor models. *Environ. Sci. Technol.*, 22, 1132-1142.
- IARC (1983) IARC Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risks of Chemicals to Humans, Vol. 32, Polynuclear Aromatic Compounds, Part 1, Chemical, Environmental and Experimental Data, Lyon.
- Marr, L.C., K. Dzepina, J.L. Jimenez, F. Resin, H.L. Bethel, J. Arey, J.S. Gaffney, N.A. Marley, L.T. Molina, and M.J. Molina (2006) Sources and transformations of particle-bound polycyclic aromatic hydrocarbons in Mexico City, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1733-1745.
- Park, S.S., Y.J. Kim, and C.H. Kang (2002) Atmospheric poly-cyclic aromatic hydrocarbons in Seoul, Korea, *Atmospheric Environment*, 36, 2917-2924.
- Rogge, W.L., L.M. Hildemann, M.A. Mazurek, G.R. Cass, and B.T. Simoneit (1991) Sources of fine organic aerosol, 1, Charbroilers and meat cooking operations, *Environ. Sci. Technol.*, 25, 1112-1125.
- Schauer, J.J. and G.R. Cass (2000) Source apportionment of wintertime gas-phase and particle-phase air pollutants using organic compounds as tracers, *Environ. Sci. Technol.*, 34, 1821-1832.
- Schauer, J.J., W.F. Rogge, L.M. Hildemann, M.A. Mazurek, G.R. Cass, and B.T. Simoneit (1996) Source apportionment of airborne particulate matter using organic compounds as tracers, *Atmospheric Environment*, 30(22), 3837-3855.
- Zhou, J., T. Wang, Y. Huang, T. Mao, and N. Zhong (2005) Size distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in urban and suburban sites of Beijing, China, *Chemosphere*, 61, 792-799.