

경기도 내 대기 중 다이옥신 분포 특성에 관한 연구

Atmospheric Distribution of PCDD/F Concentrations in Gyeonggi-do, South Korea

허종원* · 민윤기 · 김동기 · 최일우 · 김종수 · 송일석 · 이강웅¹⁾

경기도보건환경연구원, ¹⁾한국외국어대학교 환경학과

(2015년 9월 4일 접수, 2015년 10월 4일 수정, 2015년 10월 26일 채택)

Jong-Won Heo*, Yoon-Ki Min, Dong-Gi Kim, Il-Woo Choi, Jong-Soo Kim,
Il-Seok Song and Gangwoong Lee¹⁾

Gyeonggi-do Institute of Health and Environment

¹⁾*Department of Environmental Science, Hankuk University of Foreign Studies*

(Received 4 September 2015, revised 4 October 2015, accepted 26 October 2015)

Abstract

Atmospheric concentrations of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and furans (PCDD/Fs) were investigated at urban-residential (Group I: Suwon, Guri and Goyang), industrial (Group II: Ansan, Siheung and Bucheon), urban-rural mixed (Group III: Yangju, Pocheon and Dongducheon) and rural regions (Group IV: Yangpyeong) in Gyeonggi-do from February 2012 to November 2012 quarterly. The concentrations of PCDD/Fs ranged from 0.018 to 0.109 pg TEQ m⁻³ in Group I (mean value: 0.061 pg TEQ m⁻³), 0.059 to 0.367 pg TEQ m⁻³ in Group II (mean value: 0.179 pg TEQ m⁻³), 0.072 to 0.836 pg TEQ m⁻³ in Group III (mean value: 0.334 pg TEQ m⁻³) and 0.014 to 0.066 pg TEQ m⁻³ in Group IV (mean value: 0.034 pg TEQ m⁻³), respectively. In spite of the less PCDD/F emission sources than Group II (industrial regions), the level of PCDD/Fs in urban-rural mixed area showed the highest values with high fluctuation. It's likely that the Group III was affected by fugitive emissions such like biomass burning and unregulated open burning. The mean contribution of particle phase to total PCDD/F concentration was above 83% because most of PCDD/F congeners were partitioned into particle phase. We evaluated their gas-to-particles equilibriums with the regression between the particle-gas partition coefficient, K_p (m³ μg⁻¹) and corresponding sub-cooled liquid vapor pressure (P_L). The logarithm- K_p of PCDD/Fs was poorly correlated with P_L at low ambient temperature (below 10°C) and the slope (m) values for log-log plots of the K_p vs. P_L was steeper in the Group 2 and Group 3 than residential area. It implies that the slope values were likely influenced by both the direct emission source of PCDD/Fs and ambient temperature.

Key words: PCDD/Fs, Gas-particle partition, Ambient air

*Corresponding author.

Tel : +82-(0)31-250-2614, E-mail : heo7777@gg.go.kr

1. 서 론

다이옥신 (Polychlorinated dibenzo-p-dioxin and dibenzofurnas; PCDD/Fs)은 대표적인 잔류성유기오염 물질(Persistent organic pollutants; POPs)로서 환경 중의 높은 잔류성, 생물 농축성, 장거리이동의 특성을 지니고 있다(UNEP, 1999; Lohmann and Jones, 1998). 이런 POPs의 특성으로 인해 인간의 건강과 환경생태계의 악영향을 줄 수 있어 사회적으로 많은 관심을 받는 대표적인 오염물질이며, 스톡홀름 협약 발효 이후 전 세계적인 관심이 증가하고 있다. 잔류성유기오염물질 중 다이옥신은 비의도적으로 발생한 화합물이며, 대부분은 소각시설 등과 같은 연소공정이 주요 배출원이다(Choi *et al.*, 2008). 이들 화합물의 장거리이동 특성으로 인해 전 지구적으로 검출되고 있으며, 대부분의 POPs는 대기 이동 (Atmospheric transport) 후, 건식/습식 침강(dry/wet deposition)에 의해 토양 속에 존재 후 수증 및 퇴적층으로 이동하여, 수생생태계 영향을 미치는 것으로 알려졌다(Abad *et al.*, 2007; Lohmann *et al.*, 1999; Lohmann and Jones, 1998). 이처럼 다이옥신 대부분은 대기 중으로 배출되므로, 이에 대한 지역적 오염원과 이동을 파악하기 위해서는 대기 모니터링의 역할이 중요하다(Heo and Lee, 2014; Wang *et al.*, 2009). 환경부에서 실시하고 있는 국내의 경기도 지역에 대한 다이옥신에 대한 대기 모니터링 지역은 한정된 지역(4지역: 안산, 시흥, 성남, 포천)에서만 실시하고 있으며(NIER, 2010), 국내논문들도 대부분 소각 및 공단 주변의 대기 농도 질에 대한 평가만 주로 이뤄지고 있어(Heo *et al.*, 2010; Lee *et al.*, 2007; Oh *et al.*, 2006), 주거지역에 대한 지역별 특성을 살펴보기에는 한계가 있다. 또한, 대기로 배출된 다이옥신은 가스상과 입자상 형태로 존재하며, 가스상은 토양 혹은 수체로 분배 평형, 습식 침착 등의 방법으로 이동하며, 입자상은 건식/습식 침착의 형태로 이동하게 된다. 이처럼 가스-입자분배는 환경 매체 간 거동의 특성을 파악하는 중요한 인자이며, 지역 특성을 평가하는 데 유용한 기초자료로 평가된다(Kim, 2005). 본 연구에서는 경기도 10개 역에서의 다이옥신 모니터링 결과를 통해 시간적/지역적 농도 경향을 평가하여 잔류성유기오염물질 관리정책 수립에 필요한 정보를 제공하며, 가스-입자 분

배 특성을 비교함으로써 환경조건 및 지역 발생원의 영향 등이 고려된 분배 특성을 파악하는 데 주안점을 두었다.

2. 실험 방법

2.1 샘플링 지점 및 시료채취

경기도 내 대기를 종합적으로 평가하기 위해서 그림 1과 같이 수원(SW), 안산(AS), 시흥(SH), 부천(BC), 구리(GR), 양주(YJ), 동두천(DDC), 포천(PC), 고양(GY), 양평(YP) 등 10개 지역에서 조사하였다. 각 시료 채취지점에서는 일반 대기오염물질과 기상 자료를 상시 측정하고 있는 대기오염측정망을 설치 운영하고 있다.

10개 조사지역은 도시-주거지역(Group I: SW, GY, GR), 공업지역(Group II: AS, SH, BC), 도농 복합지역(Group III: YJ, DDC, PC), 교외지역(Group IV: YP) 등으로 크게 4가지로 구분된다. Group I의 수원, 고양 및 구리는 경기도 내 대표적인 주거지역이며, 주변에는 대기배출시설이 없는 지역이다. 주요 대기배출 오염원은 자동차와 같은 이동 배출원이다. Group II 중 안산과 시흥은 경기도 내 국가산업단지(안산, 시흥 스마트 허브)를 지니고 있는 대표적인 공업지역이며, 이들 지역에는 잔류성유기오염물질 등을 배출하는 다양한 배출원(소각로 등)이 있다. 부천 지역은 주변에 다양한

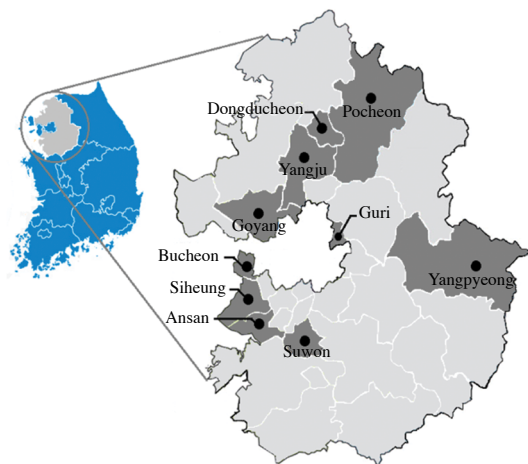


Fig. 1. The location of sampling sites.

Table 1. Metrological data and air pollutant concentration for sampling time.

Date	Suwon (SW)			Ansan (AS)			Siheung (SH)			Bucheon (BC)			Goyang (GY)								
	Feb.	May	Aug.	Nov.	Feb.	May	Aug.	Nov.	Feb.	May	Aug.	Nov.	Feb.	May	Aug.	Nov.					
Wind speed (m s ⁻¹)	1.8	1.5	1.5	2.0	0.9	0.8	0.9	1.0	1.7	1.9	1.6	2.0	1.8	1.7	1.5	1.8	1.4	1.4	1.1	1.1	1.6
Mean temp. (°C)	-6.1	18.0	26.4	4.6	-5.4	17.9	26.7	5.3	-5.1	18.1	27.2	5.9	-6.4	18.5	26.5	4.4	-6.8	18.0	26.6	4.1	4.1
TSP (µg m ⁻³)	70	82	41	63	104	118	61	101	95	114	53	80	96	98	54	91	81	74	44	44	59
PM ₁₀ (µg m ⁻³)	48	55	26	39	47	63	44	48	54	63	33	47	59	57	33	49	58	66	45	45	48
SO ₂ (ppm)	0.009	0.007	0.003	0.006	0.011	0.011	0.008	0.006	0.009	0.010	0.007	0.006	0.011	0.007	0.005	0.005	0.010	0.005	0.004	0.004	0.004
NO ₂ (ppm)	0.077	0.052	0.031	0.074	0.068	0.043	0.021	0.097	0.064	0.046	0.031	0.086	0.079	0.050	0.036	0.079	0.038	0.033	0.023	0.023	0.052
CO (ppm)	0.9	0.6	0.6	0.7	0.9	0.5	0.4	0.7	0.5	0.5	0.4	0.7	0.6	0.5	0.4	0.6	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5

Date	Yangju (YJ)			Dongducheon (DDC)			Pocheon (PC)			Giuri (GR)			Yangpyeong (YP)								
	Feb.	May	Aug.	Nov.	Feb.	May	Aug.	Nov.	Feb.	May	Aug.	Nov.	Feb.	May	Aug.	Nov.					
Wind speed (m s ⁻¹)	1.3	1.5	1.6	1.7	1.3	1.7	1.3	1.7	0.9	1.1	1.3	1.4	0.5	0.8	0.7	0.9	1.3	1.1	0.7	1.1	1.3
Mean temp. (°C)	-8.5	17.2	21.6	2.9	-8.5	17.2	21.1	2.8	-9.3	17.4	21.3	2.3	-7.0	17.5	26.3	3.5	-8.2	19.2	25.4	3.4	3.4
TSP (µg m ⁻³)	100	86	64	97	139	84	30	79	107	79	46	90.1	75	64	43	66	73	64	29	67	67
PM ₁₀ (µg m ⁻³)	109	71	46	71	82	67	45	48	122	90	37	65.0	30	45	28	25	58	46	23	35	35
SO ₂ (ppm)	0.012	0.003	0.004	0.007	0.015	0.007	0.005	0.007	0.015	0.008	0.007	0.006	0.004	0.004	0.004	0.004	0.005	0.004	0.004	0.004	0.004
NO ₂ (ppm)	0.046	0.025	0.022	0.045	0.059	0.033	0.017	0.049	0.075	0.028	0.019	0.048	0.059	0.045	0.029	0.056	0.054	0.020	0.011	0.011	0.027
CO (ppm)	0.8	0.4	0.4	0.6	0.8	0.4	0.3	0.6	0.9	0.4	0.4	0.6	0.8	0.4	0.6	0.6	0.8	0.5	0.4	0.4	0.6

소규모 공장 등이 밀집된 지역이다. Group III은 서울 북쪽 지역의 도농 복합도시로서, 특히 농경지나 나대지 등이 널리 분포하며 비포장도로 및 건설활동도 도심지역보다 상대적으로 높은 특성을 보인 지역이다 (Kim and Choi, 2011). 또한, 포천, 양주, 동두천은 미세먼지 및 대기배출시설이 많이 산재하고 있으며, 특히, 폐기물 고형 연료(RDF: Refuse-Derived Fuel)를 사용하는 소각시설(6개소) 및 가구, 도장, 염색 등의 환경위해가 큰 중소형 대기 배출업소가 방대하게 있다. Group IV의 양평은 상수도보호구역과 동시에 전형적인 농촌 지역으로 대기 배출시설이 없는 지역이다.

2012년 1년 동안 분기마다(2월 2일~5일(겨울), 5월 17일~20(봄), 8월 10일~13일(여름), 11월 14일~17일(가을)) 샘플링을 실시하였다. 시료 채취 시 기상 조건 및 일반 대기오염물질의 농도를 표 1에 간단히 정리하였다.

대기시료 채취는 하이볼륨샘플러(Sibata, HV-700F, Japan)를 사용하였으며, 이전 연구와 동일하게 시료 채취는 EPA-Method TO-9A 방법에 따라 수행하였다(Heo *et al.*, 2010). 샘플링 유속은 400 L min^{-1} 로, 3일간 샘플링을 실시하여 총 포집된 유량은 1728 m^3 이다. 입자와 가스상 농도를 각각 산출하기 위해서, 석영필터($20 \times 25 \text{ cm}$; ADVENTEC, QR-100, Japan)와 두 개의

PUF(Polyurethane Foam, length $5 \times 2 \text{ cm}$, diameter 9 cm ; Sibata, 080130-0941A, Japan) 각각 구별하여 측정 분석하였다.

2.2 분석방법과 정도관리

샘플링이 완료된 시료의 다이옥신 분석절차는 이전 연구(Heo *et al.*, 2010)와 같이 각각 EPA Method 1613에 따라 수행하였다. 석영필터 및 PUF는 속실렛 추출장치(Soxhlet extractor)를 이용하여 톨루엔으로 16시간 이상 추출하였으며, 추출 전에 $^{13}\text{C}_{12}$ -labeled 표준물질을 주입하였다. 추출 후 다층실리카겔 및 알루미늄 정제과정을 실시하였다. 본 연구의 대상물질은 고분해능 가스크로마토그래피/질량분석계(HRGC/HRMS, Trace GC Ultra/DFS, Thermo Scientific, Germany)를 이용하였으며, 분해능 10,000 이상에서 각 동질체의 2개 이온을 선택한 SIM(Selected Ion monitoring) Mode에서, 다이옥신은 2378-치환 이성질체 17종을 각각 정성/정량했다. 본 연구에서는 독성등가환산농도(Toxicity Equivalent, TEQ)로 표현하기 위해서 다이옥신은 국제독성등가계수(International-Toxic Equivalency Factors, I-TEFs)를 사용하였다. 다이옥신 분석을 위해 DB-5MS ($60 \text{ m} \times 0.2 \text{ mm} \times 0.25 \mu\text{m}$; J&W Scientific, USA) 칼럼을 사용하였으며, 시료의 추출 및 정제까지

Table 2. Recovery, limit of detection (LOD) and limit of quantitation (LOQ) on PCDD/F.

PCDD/F labeled standard	Recovery	PCDD/F native compounds	LOD	LOQ
	Average (%) N=80		pg m^{-3}	pg m^{-3}
$^{13}\text{C}_{12}$ -2,3,7,8-TCDF	109.8 ± 10.4	C_{12} -2,3,7,8-TCDF	0.001	0.005
$^{13}\text{C}_{12}$ -1,2,3,7,8-PeCDF	111.0 ± 10.1	C_{12} -1,2,3,7,8-PeCDF	0.004	0.015
$^{13}\text{C}_{12}$ -2,3,4,7,8-PeCDF	112.7 ± 12.2	C_{12} -2,3,4,7,8-PeCDF	0.001	0.005
$^{13}\text{C}_{12}$ -1,2,3,4,7,8-HxCDF	100.8 ± 11.0	C_{12} -1,2,3,4,7,8-HxCDF	0.003	0.010
$^{13}\text{C}_{12}$ -1,2,3,6,7,8-HxCDF	98.3 ± 10.7	C_{12} -1,2,3,6,7,8-HxCDF	0.006	0.019
$^{13}\text{C}_{12}$ -1,2,3,7,8,9-HxCDF	104.9 ± 12.7	C_{12} -1,2,3,7,8,9-HxCDF	0.002	0.007
$^{13}\text{C}_{12}$ -2,3,4,6,7,8-HxCDF	95.2 ± 12.3	C_{12} -2,3,4,6,7,8-HxCDF	0.007	0.023
$^{13}\text{C}_{12}$ -1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	101.2 ± 12.7	C_{12} -1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	0.004	0.015
$^{13}\text{C}_{12}$ -1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	91.1 ± 13.7	C_{12} -1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	0.006	0.019
		C_{12} -OCDF	0.016	0.053
$^{13}\text{C}_{12}$ -2,3,7,8-TCDD	94.9 ± 10.7	C_{12} -2,3,7,8-TCDD	0.003	0.010
$^{13}\text{C}_{12}$ -1,2,3,7,8-PeCDD	107.4 ± 14.7	C_{12} -1,2,3,7,8-PeCDD	0.006	0.020
$^{13}\text{C}_{12}$ -1,2,3,4,7,8-HxCDD	94.0 ± 11.2	C_{12} -1,2,3,4,7,8-HxCDD	0.002	0.007
$^{13}\text{C}_{12}$ -1,2,3,6,7,8-HxCDD	94.5 ± 11.4	C_{12} -1,2,3,6,7,8-HxCDD	0.004	0.014
$^{13}\text{C}_{12}$ -1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	97.7 ± 14.5	C_{12} -1,2,3,7,8,9-HxCDD	0.010	0.032
$^{13}\text{C}_{12}$ -OCDD	91.5 ± 13.1	C_{12} -1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	0.006	0.020
		C_{12} -OCDD	0.006	0.020

의 다이옥신 평균 회수율은 $100 \pm 14\%$ 로 대부분 기준 회수율(50~120%) 이내로 양호한 결과를 보이며, 세부적인 각 이성질체 회수율을 표 2에 나타냈다. 김정 곡선 작성 시에 사용한 최저농도 표준액을 사용하여, 이성질체별로 7회 반복 분석한 결과치의 표준편차 3배를 검출한계(LOD), 10배를 정량한계(LOQ)로 결정하였다. 또한, 매 실험 시 바탕시료(Blank)를 분석하였으며, 검출한계(LOD)보다 높은 이성질체만 농도를 보정하였다.

3. 결 과

3.1 다이옥신 농도 분포

경기도 내 10개 지역 내의 다이옥신 지역별 특성 등 가 총 평균 농도는 그림 2에 나타내었다. 경기도지역 내의 다이옥신 평균 농도는 $0.176 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$ 으로 나타났으며, 이는 유럽의 선행 연구 결과와 비교 시, 스페인 0.024, 그리스 0.073, 포르투갈 0.066, 이탈리아 0.098, 스페인 카탈루냐 $0.095 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$ 값에 비해 높은 농도를 주고 있으나(Mari *et al.*, 2008; Abad *et al.*, 2007; Coutinho *et al.*, 2007; Caserini *et al.*, 2004; Mandalakis *et al.*, 2002), 중국의 공업지역보다는 낮은 농도의 특성을 보여주고 있다(Li *et al.*, 2011; Li *et al.*, 2008). 그동안의 연구 결과를 살펴볼 때 경기도 대기 중 다이옥신 농도는 2000년 $0.482 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$ 에서 60% 이상 감소는 하는 추세를 보였으며(Min *et al.*, 2013; Heo *et al.*, 2010), 이는 국내의 다이옥신 배출원에 대한 법적 관리 강화 및 개선 유도 등을 통해 다이옥신 발생 감소가 이뤄진 것으로 판단된다. 하지만 환경부에서 실시한 2009년부터 2013년도까지 국내의 잔류성유기오염물질(POPs) 측정망 실태조사 보고서(NIER)에 따르면, 국내 전국 대기의 다이옥신 연평균 농도는 각각 0.051, 0.046, 0.045, 0.038, $0.034 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$ (5년간 평균 $0.043 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$)로 조사되었으며, 경기도 지역의 농도는 전국 대기농도보다 높은 농도 분포를 보이고 있다. 국내 대기배출시설은 총 4만여 개소로 이 중 45%가 수도권에 밀집되어 있으며, 특히 경기도에 집중되어 있는데, 전체 대기배출업체 중 35%를 차지하는 특성 때문에 다른 지역에 비해 높은 농도를 보이는 것으로 판단된다.

본 연구에서의 2012년도의 도시 지역(Group I) 3개 지역의 대기 중 다이옥신 농도는 거의 비슷한 농도 범위 수준을 보여주고 있으며, 교외 지역인 YP지역이 $0.034 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$ 으로 가장 낮은 농도로 나타났다. 공업지역인 AS, SH, BC의 다이옥신 평균 농도는 각각 $0.226 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$, $0.182 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$, $0.129 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$ 로 나타났다. 반면 도농 복합지역 YJ, DDC, PC의 농도는 각각 $0.419 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$, $0.317 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$, $0.268 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$ 로 4개의 그룹 중 가장 높은 농도 분포를 보였다. 그룹별 PCDD/F 농도의 변동성은 PCDD/F 배출원 존재하는 지역(Group II, Group III)이 크며, 도시주거지역이 낮은 변동성을 보인다(그림 3).

흥미로운 것은 도농 복합지역(Group III: YJ, DDC, PC 평균 농도: $0.334 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$)이 공업지역(Group II: AS, SH, BC 평균 농도: $0.179 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$)보다 높은 농도로 특성을 보여주는 점이다. 공업지역에 비해 소각로 및 대기배출시설이 많지 않은 지역에서 높은 농도 특성 보이는 것은 공업/도시지역과 다른 미파악된 새로운 다이옥신의 배출원 또는 관리부실의 영향이 있는 것으로 유추할 수 있다.

본 연구에서의 지역별 미세먼지(PM_{10})를 표 1과 그림 2에 나타냈다. 지역별 PM_{10} 농도 비교시 상대적으로 도농 복합지역이(Group III- YJ, DDC, PC 평균 농도: $75 \mu\text{g m}^{-3}$) 다른 지역에 보다 높게 나타났으며, 미세먼지농도에 따라 다이옥신 농도가 높아지는 특성을 확인했다. 선행 연구에 따르면 PCDD/F의 농도는 대부분 입자상에 부착되어 있으며, 특히 입경이 더욱 작을수록, 다이옥신 농도가 높은 특성을 갖는 것으로 보고했다(Kurokawa *et al.*, 1998; Kaupp and McLachlan, 1998).

특히, Kim and Choi (2012)의 연구에 따르면, 도농 복합지역 Group III의 미세먼지 오염도가 더 높은 이유는 배출시설에 관리의 부족과 비산먼지와 일상 주변에서 발생하는 농업 잔재물이나 생활폐기물 노천소각 등과 같은 생물성 연소(biomass burning)에 의한 배출 기여도가 높으므로 미세먼지가 높은 것으로 평가하고 있다(Jung *et al.*, 2014). 특히, 다이옥신의 발생은 대부분 불완전한 연소 환경에서 발생하므로 교외지역의 노천소각, 생물성 연소 등의 중점적인 관리가 필요할 것으로 판단된다.

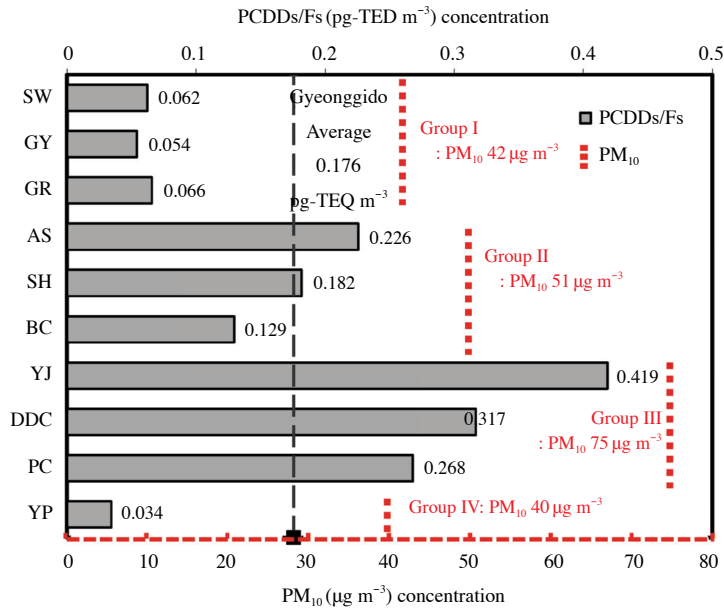


Fig. 2. Average atmospheric PCDD/F concentrations (pg-TEQ m^{-3}) at 10 sites and average PM_{10} concentrations ($\mu\text{g m}^{-3}$) of each group.

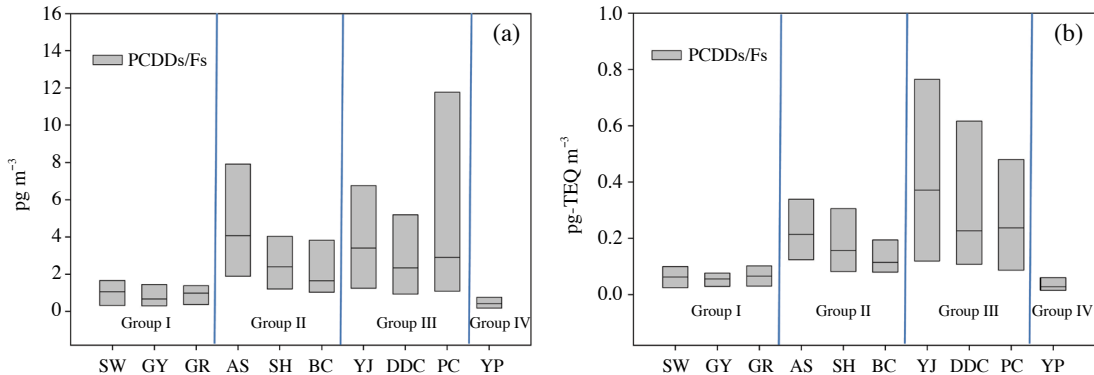


Fig. 3. Box-plots of the PCDD/F concentrations at 10 sites: (a) real concentrations and (b) TEQ concentrations.

3.2 계절별 다이옥신 농도

선행 연구에서는 계절적 특성은 주로 대부분 난방과 같은 화석연료의 사용이 높은 겨울철에 높은 농도를 보였으나 (Min *et al.*, 2013; Shin *et al.*, 2011; Raun *et al.*, 2005; Correa *et al.*, 2004; Lohmann and Jones, 1998), 본 연구에서는 SO_2 와 CO의 농도가 겨울철에 높음에도 불구하고 다이옥신 농도는 겨울철에 높지 않

은 특성을 나타냈다. 반면, SH와 BC 사이트를 제외한 모든 지역에서 5월과 11월이 높은 농도의 특성을 보이고 있으며, 특히 Group III 지역에서는 다이옥신 대기 환경기준 $0.6 \text{ pg-TEQ m}^{-3}$ 에 초과하는 시점도 있었으며, 공단지역 Group II보다 높은 농도의 분포 특성을 나타냈다.

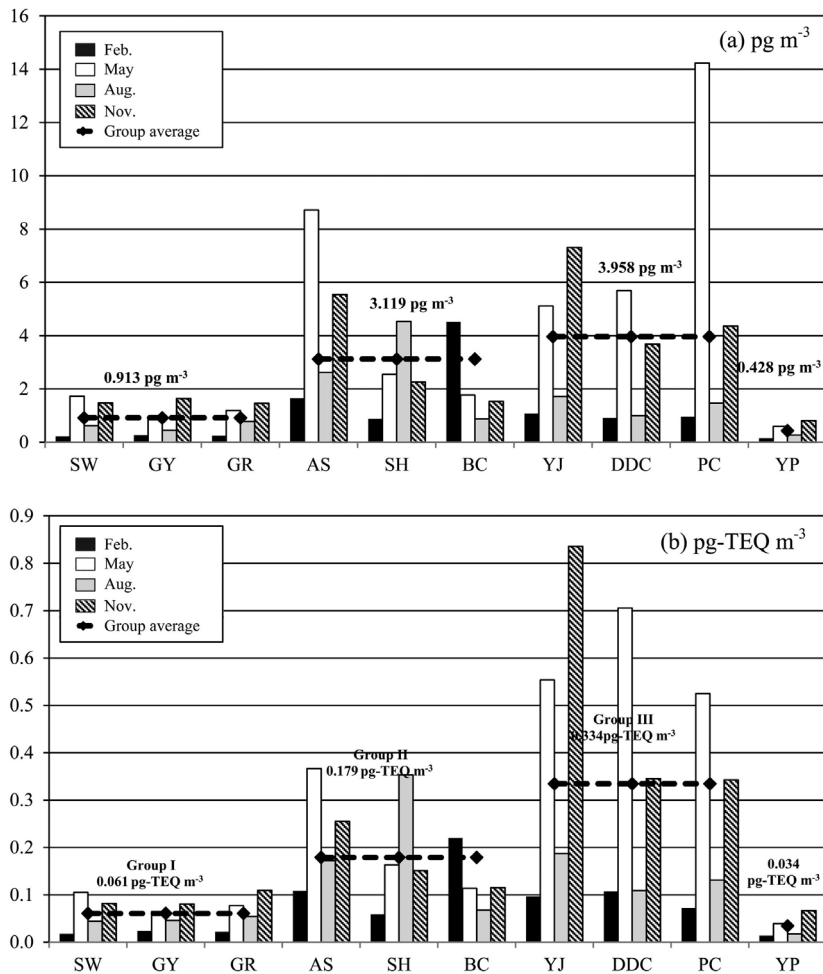


Fig. 4. Seasonal variation of PCDD/Fs at 10 sites.

3.3 다이옥신 동족체 및 이성질체별 분포

그림 5는 지역별 실농도 (pg m^{-3})와 독성등가농도의 이성질체 분포 특성을 나타냈다. 실농도로 표현할 때 개별 이성질체 중 고 염소화물 OCDD (Group I: 17.2%, Group II: 11.3%, Group III: 10.0%, Group IV: 13.1%), 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF (Group I: 19.8%, Group II: 19.4%, Group III: 16.7%, Group IV: 20.9%), OCDF (Group I: 15.4%, Group II: 27.7%, Group III: 16.0%, Group IV: 14.2%)이 높은 비율로 차지하고 있는 주요 이성질체이며, 총 실농도와 고 염소화물 중 이들 세 이성질체 농도 (OCDD, 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF 및 OCDF)

의 합의 관계는 높은 상관관계 ($R^2=0.90, p<0.001$)를 나타냈다.

지역 특성에 따른 동족체 분포는 Group I 지역은 전형적인 도심지역으로, OCDD가 OCDF보다 높은 특성을 보였으며, 이는 선행된 도심 지역 대기 중 동족체 농도분포 특성과 일치하는 것으로 나타났다 (Raun *et al.*, 2005; Lohmann and Jones, 1998). 공업지역 Group III에서 대기 중 OCDF가 가장 높은 기여율을 보이는 것으로 나타나, OCDF가 소각 시설 주변 및 공단지역 주변에서 주로 많이 검출된다고 보고한 선행 연구 (Oh *et al.*, 2001)와 유사한 결과를 나타냈다.

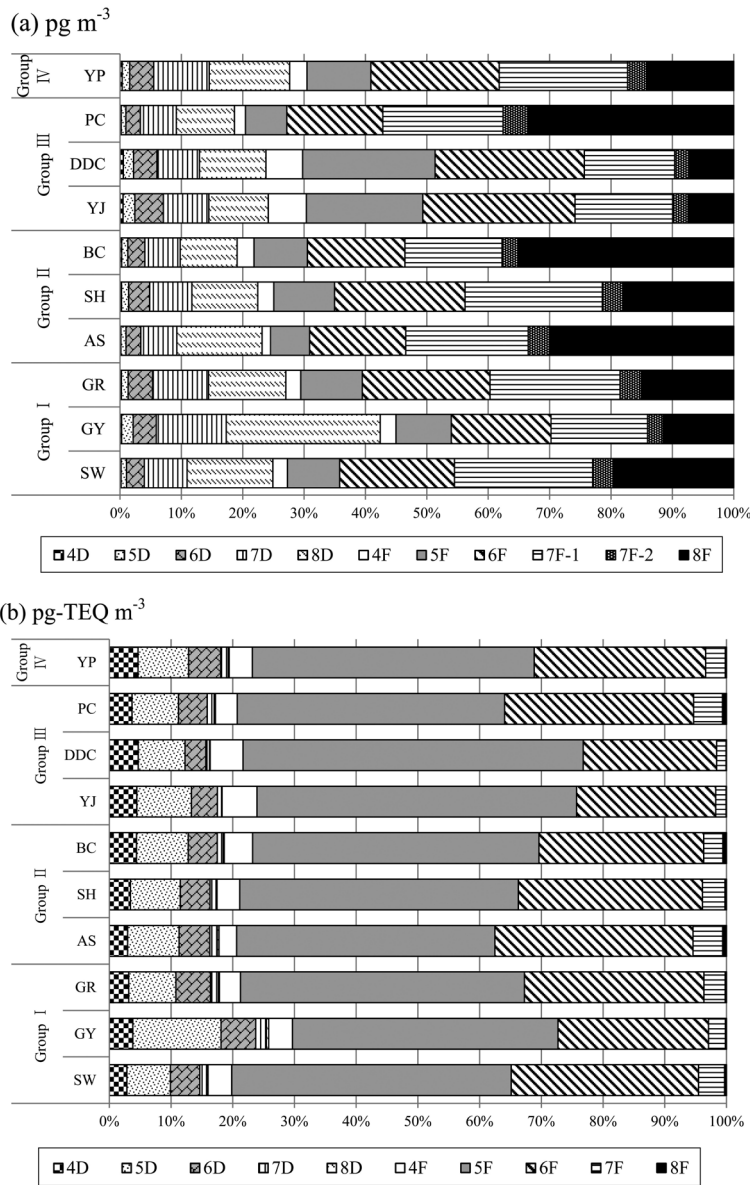


Fig. 5. The distribution of PCDD/F congener profiles and homologue groups: (a) real concentration and (b) TEQ concentration (4D: 2,3,7,8-TCDD, 5D: 1,2,3,7,8-PCDD, 6D: 1,2,3,4,7,8-HxCDD + 1,2,3,6,7,8-HxCDD + 1,2,3,7,8,9-HxCDD, 7D: 1,2,3,4,6,7,8-HpCDD, 8D: OCDD, 4F: 2,3,7,8-TCDF, 5F: 1,2,3,7,8-PCDF + 2,3,4,7,8-PCDF, 6F: 1,2,3,4,7,8-HxCDF + 1,2,3,6,7,8-HxCDF + 2,3,4,6,7,8-HxCDF, + 1,2,3,7,8,9-HxCDF, 7F1: 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF, 7F2: 1,2,3,4,7,8,9-HpCDFs, 7F: 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF + 1,2,3,4,7,8,9-HpCDFs 8F: OCDF).

독성등가환산농도에서는 2,3,4,7,8-PCDF 분포 비율이 대부분 지역에서 평균 43% 이상으로 나타났으며, 총 독성등가농도와 2,3,4,7,8-PeCDF의 관계는 높은 상

관관계성을 ($R^2=0.98$, $p<0.001$) 보여주고 있다. 이는 2,3,4,7,8-PeCDF의 독성등가환산계수(I-TEF)가 0.5로 TEQ (Σ I-TEF)의 17%의 비율로 높은 값을 가진 결과

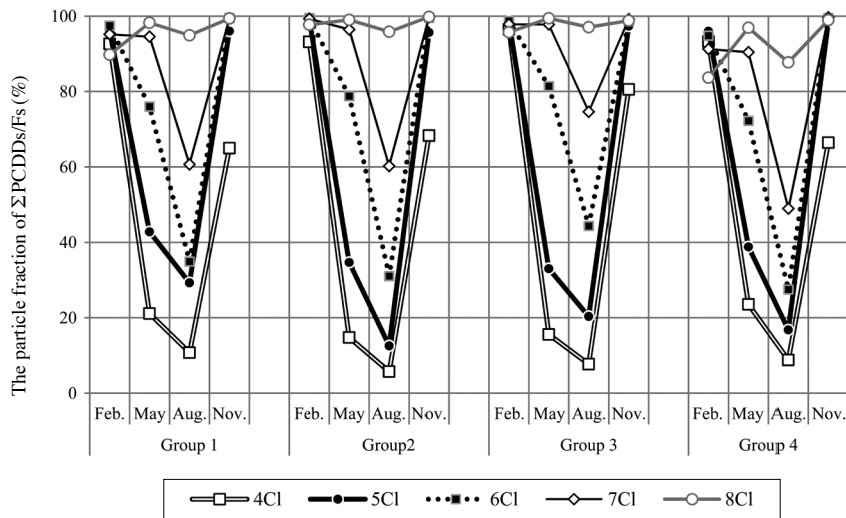


Fig. 6. The fraction of particle phase for PCDD/Fs in seasonality (4Cl: Σ 2,3,7,8-substituted Cl_4DD/Fs , 5Cl: Σ 2,3,7,8-substituted Cl_5DD/Fs , 6Cl: Σ 2,3,7,8-substituted Cl_6DDs/Fs , 7Cl: Σ 2,3,7,8-substituted Cl_7DD/Fs , 8Cl: Σ OCDD/F).

로 인해 주요 이성질체로 인식되며, 이전 연구에서도 2,3,4,7,8-PCDF는 소각시설/시멘트 킬른과 같은 규제 대상인 1차 발생원 및 자동차-가정 난방과 같은 다이옥신 규제대상이 아닌 2차 발생원의 주요 이성질체 (Xu *et al.*, 2009; Alcock *et al.*, 2001)이며, 높은 기여도를 가진 이성질체로 평가되고 있다 (Lohmann and Jones, 1998).

3.4 가스/입자 분배

3.4.1 다이옥신 가스/입자 분배 특성

대기 중 다이옥신의 입자상과 가스상의 농도 평균 분포 비율은 83 : 17로 존재하며, 8월(입자 : 가스 = 56 : 44)을 제외하면 대기 중의 농도는 대부분 입자상으로 존재한다. 특히 온도가 낮은 겨울철에는 입자상 농도의 분포비가 95% 이상 수준이며, 기온이 낮을수록 다이옥신의 낮은 증기압의 영향으로 인해 입자상의 농도 분포가 증가하는 것을 알 수 있다.

그림 6은 지역 그룹별 4염소화물(2,3,7,8-TCDD와 2,3,7,8-TCDF 농도의 합 : 같은 염소수가 치환된 다이옥신과 퓨란 농도의 합)부터 8-염소화물까지의 입자상 농도 분포를 나타내었다. 4CDD/F는 입자상 농도 분포 비율이 5.7~96.5%로 계절별 기온에 따라 변동이 가장

심하며, 고염소화물로 갈수록 입자상 농도는 온도에 대한 변동이 낮아지며, 8염소화물의 경우 입자상 분포 비율이 83.7~99.7%로 나타났다. 이는 염소수가 증가할수록 다이옥신의 옥탄올-공기 분배계수 (K_{OA} : Octanol-air partitioning coefficient)가 증가함에 따라, 고염소화물이 입자상에 더욱 흡착/흡수가 잘 되는 것을 알 수 있다.

3.4.2 가스/입자 분배 모델

SVOCs (Semi-volatile organic compounds)의 가스-입자 분배특성은 입자 크기 및 유기탄소의 함량 등과 같은 입자 물리 화학적 특성의 영향을 받는다. 본 연구에서는 가스-입자 분배 특성을 살피기 위해서 통상적으로 Yamasaki 등이 제시한 입자-가스분배계수 식(1)을 사용하였다 (Yamasaki *et al.*, 1982).

$$K_p = (F/TSP)/A \tag{1}$$

여기서, K_p ($m^{-3} \mu g$)는 분배계수, F ($pg\ m^{-3}$)는 대기 중 입자상의 농도, TSP ($\mu g\ m^{-3}$)는 대기 중 총 부유입자 농도, A ($pg\ m^{-3}$)는 가스상의 농도를 나타낸다.

식(1)에서 Langmuir 흡착개념을 활용하여, 다음 식(2)로 나타나며,

$$\log A(TSP)/F = m/T + b \tag{2}$$

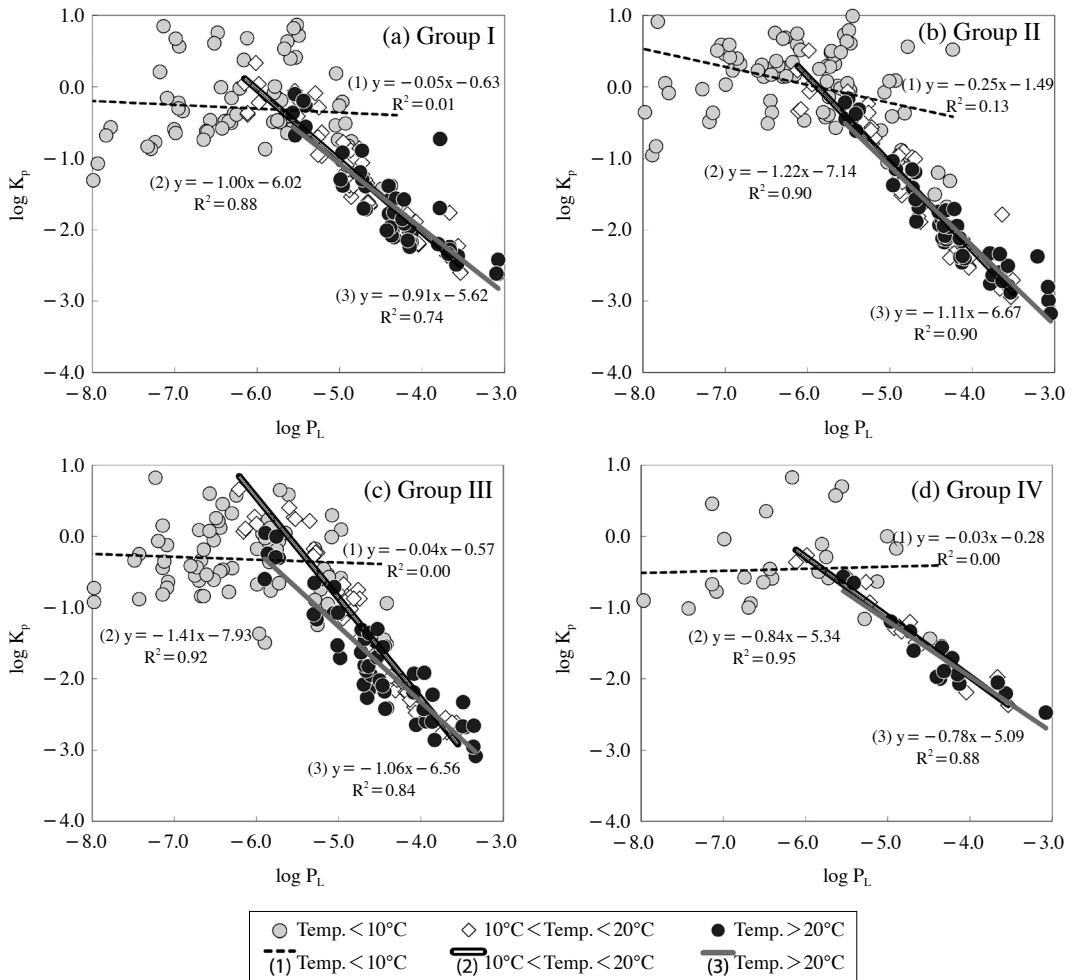


Fig. 7. Slope (m), intercept (b), correlation coefficient (R^2) and plot of $\log K_p$ vs. $\log P_L^\circ$ for PCDD/Fs : (a) Group I, (b) Group II, (c) Group III and (d) Group IV.

$\log K_p$ 는 과냉각액체 증기압($\log P_L$: Subcooled liquid vapor pressures)과의 선형관계를 가지고 있어 다음과 같은 (3) 식으로 표현된다.

$$\log K_p = m \log P_L + b \quad (3)$$

(3) 식의 기울기 (slope) m 과 y -절편 (intercept) b 값은 동일시점에서 채취한 시료의 지역별 입자-가스 분배의 특성을 알아내는 유용한 정보를 제공하며, 가스상과 입자상의 사이의 조건이 평형상태일 때는, 기울기 m 의 값이 -1 에 가까워진다고 보고하고 있다 (Pankow, 1994). 그러나 Goss and Schwarzenbach (1998) 및 Sim-

cik *et al.* (1998)에 따르면, 평형조건일 때 이 기울기 값이 항상 -1 로 표시되지 않는다. 아직까지 정립된 값에 의해 해석하기가 힘들지만, 가스-입자 분배가 평형을 이루지 못했을 때 지역적 원인을 파악하는 데 유용한 지표이다. 절편 b 값은 에어로졸의 물리 화학적 특성에 의존적이며, 흡착 조건 시 절편값은 입자 표면의 흡착 지점의 수와 입자표면의 상호작용과 관련되어 있다. 흡수 조건 시에는 흡수하는 화학물질의 흡수 재질의 능력과 관련되어 있으며, 예로 표면의 유기오염물질의 분율과 그 유기물질의 화학물질의 흡수하는 활성 계수 (Activity coefficient)에 따라 이 절편 값은 달라진다

Table 3. The detailed fitted parameters in log K_p vs. log P_L plots for PCDD/Fs at 10 sites.

Sampling site	Slope (m)	Intercept (b)	R ²	Level of significance	Sampling site	Slope (m)	Intercept (b)	R ²	Level of significance
SW (all temp.)	-0.58	-3.99	0.56	<0.001	GY (all temp.)	-0.60	-4.12	0.54	<0.001
Temp. <10°C	-0.06	-0.66	0.01	0.69	Temp. <10°C	-0.11	-0.96	0.02	0.45
10°C < temp. <20°C	-0.91	-5.66	0.86	<0.001	10°C < temp. <20°C	-0.96	-5.99	0.95	<0.001
Temp. >20°C	-1.05	-6.09	0.91	<0.001	Temp. >20°C	-0.68	-4.65	0.52	<0.001
GR (all temp.)	-0.62	-4.22	0.54	<0.001	AS (all temp.)	-0.91	-5.57	0.66	<0.001
Temp. <10°C	0.04	-0.10	0.00	0.81	Temp. <10°C	-0.23	-1.22	0.09	0.11
10°C < temp. <20°C	-1.11	-6.36	0.93	<0.001	10°C < temp. <20°C	-1.40	-7.94	0.96	<0.001
Temp. >20°C	-1.00	-6.13	0.87	<0.001	Temp. >20°C	-1.09	-6.72	0.93	<0.001
SH (all temp.)	-0.82	-5.25	0.64	<0.001	BC (all temp.)	-0.83	-5.13	0.77	<0.001
Temp. <10°C	-0.13	-0.88	0.04	0.34	Temp. <10°C	-0.39	-2.26	0.32	0.001
10°C < temp. <20°C	-1.23	-7.36	0.93	<0.001	10°C < temp. <20°C	-1.02	-6.15	0.87	<0.001
Temp. >20°C	-1.29	-7.47	0.95	<0.001	Temp. >20°C	-1.00	-6.04	0.92	<0.001
YJ (all temp.)	-0.71	-4.74	0.55	<0.001	DDC (all temp.)	-0.61	-4.26	0.45	<0.001
Temp. <10°C	0.06	0.10	0.02	0.51	Temp. <10°C	-0.01	-0.39	0.00	0.97
10°C < temp. <20°C	-1.31	-7.46	0.91	<0.001	10°C < temp. <20°C	-1.33	-7.58	0.93	<0.001
Temp. >20°C	-1.12	-7.10	0.89	<0.001	Temp. >20°C	-1.00	-6.37	0.95	<0.001
PC (all temp.)	-0.60	-4.11	0.57	<0.001	YP (all temp.)	-0.46	-3.46	0.44	<0.001
Temp. <10°C	-0.22	-1.84	0.15	0.07	Temp. <10°C	0.03	-0.28	0.00	0.82
10°C < temp. <20°C	-1.59	-8.74	0.95	<0.001	10°C < temp. <20°C	-0.84	-5.34	0.94	<0.001
Temp. >20°C	-1.05	-6.17	0.98	<0.001	Temp. >20°C	-0.78	-5.09	0.88	<0.001

(Lohmann *et al.*, 2000; Pankow, 1994).

본 연구에서는 다이옥신의 과냉각액체증기압 (log P_L) 값은 선행 연구된 GC-retention time index를 기초로 하여 샘플링 시의 대기 온도를 보정하여 사용하였다 (Eitzer and Hites, 1988). 표 3과 그림 7은 지역별 입자가스분배계수 (log K_p)와 과냉각액체증기압 (log P_L)의 기울기, 절편, 결정계수와 통계적 유의수준을 나타내었다. 온도가 낮은 2월 (<10°C)에 대기 중 다이옥신 농도는 대부분 입자상으로 존재하며, 가스상 농도가 일부 이성질체에서 검출되지 않은 공통적인 특성을 보였으며, 낮은 기울기 함께 유의수준과 상관성이 결여되었다(표 3). 5월(10°C 이상 20°C 이하), 8월(20°C 이상) 샘플링에서는 기울기가 이론적 가스-입자 분배 평형상태인 -1에 가까운 특성을 나타냈으며, 선행 연구 (Kadowaki and Naitoh, 2005)와 같이 온도가 낮은 겨울철은 낮은 상관성 그리고 온도가 상온 조건일 때는, 높은 상관성 함께 가스-입자 평형 조건에 가까운 비슷한 결과를 보였다.

그룹별 특성을 살펴보면, 도심-주거 지역(Group I)과 교외지역(Group IV)은 공업지역(Group II) 및 도농 복

합지역(Group III)에 비해 낮은 기울기를 보였으며 이는 주거-교외 지역으로 오염된 공기의 유입보다 배출원의 영향이 적고 깨끗한 공기의 유입으로 인한 원인으로 파악된다. 반면, 주거-교외 지역에 비해 Group II 및 Group III 지역의 급한 기울기는 소각시설 등과 같은 1차 배출원 및 2차 배출원의 영향으로 인해 다이옥신이 발생하며, 이때 발생한 다이옥신은 대기 중의 입자에 흡착됨에 따라 기울기가 가파른 것으로 판단된다. 선행 연구에서도 배출원의 영향으로 인해, 공업지역이 도심지역보다 더 급한 기울기를 보였다(Heo *et al.*, 2014; Heo *et al.*, 2010).

4. 결 론

국내 일반 대기 중 다이옥신의 연구는 대부분 산업단지, 소각장 및 그 주변 환경에 대한 연구를 주로 이뤄졌다. 본 연구에서는 경기도 10개 도시의 지역적 특성을 파악하는 데 주안점을 두었으며, 특히, 경기 북부 지역에 대한 오염특성 파악 및 지역적 특성에 대해서

기술하였다. 또한, 다이옥신 거동 특성을 해석하기 위해 가스-입자 분배를 평가하였다.

경기도 내 10개 지역의 다이옥신 평균 농도는 0.176 pg-TEQ m⁻³로 나타났으며, 지역별 평균 농도는 주거 지역(Group I: SW, GY, GR) 0.061 pg-TEQ m⁻³, 공업지역(Group II: AS, SH, BC) 0.179 pg-TEQ m⁻³, 도농 복합지역(Group III: YJ, DDC, PC) 0.334 pg-TEQ m⁻³, 교외지역(Group IV: YP) 0.034 pg-TEQ m⁻³로 각각 조사되었다. Group III이 가장 높은 농도로 조사되었으며 특히, 도농복합 지역이 일반공업 지역보다 높은 농도의 특성을 보이고 있다. 이는 대기 배출시설에 대한 관리 및 비산먼지와 생물성 연소로 인해 높은 농도를 보이는 것으로 판단되며, 특히, 미세먼지의 관리는 다이옥신 및 기타 대기오염물질 환경관리 측면에서 매우 중요한 부분이다. 경기 북부지역의 대기 환경관리효율 향상 위해서 산재한 중소규모 시설에 대한 집산화 유도, 생물성 연소 금지 유도 및 대기배출시설의 배출 허용 기준 이내 유도 등이 필요할 것으로 전망된다.

입자-가스 분포 특성 중 다이옥신 농도 대부분은 입자상(평균 83%)으로 분포하고 있으며, 계절별 기온에 따라 입자-가스 분포는 변동을 나타내며, 겨울철에는 입자상, 여름철에는 가스상 분포가 높은 특성을 보여 주고 있다. 다이옥신의 치환된 염소수가 증가할수록 입자결합비율이 높아지는 특성을 알 수 있었다.

가스/입자 분배 특성을 평가하기 위해서 가스-입자 분배계수(Log K_p)와 과냉각액체 증기압(log P_L)과의 관련성을 살펴본 결과 공통으로, 2월의 경우 신뢰성이 결여된 낮은 기온기를 나타내었으며, 다른 계절에 비해 기온기와 절편값이 상당히 다른 값을 보인다. 기온이 10°C 이상일 때는 대부분 지역에서 높은 상관성을 보이며 가스-입자 평형에도 가깝게 나타났다. 전반적으로 배출원의 직접적인 영향 있는 공업지역 및 도농 복합 지역에서는 입자-가스 분배평형을 나타낸 기온기(m) 값이 다른 지역에 비해 높은 특성을 보였다. 따라서 대기 중 다이옥신의 가스-입자 분배는 기온뿐만 아니라 배출원의 영향을 받는 것을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 국립환경과학원의 시도보건환경연구원

국고보조사업의 일환으로 부분적으로 지원받아 수행한 연구임(706-1900-1942-304-210).

References

- Abad, E., K. Martinez, L. Gustems, R. Gómez, X. Guinart, I. Hernández, and J. Rivera (2007) Ten years measuring PCDDs/PCDFs in ambient air in Catalonia (Spain), *Chemosphere*, 67(9), 1709-1714.
- Alcock, R.E., A.J. Sweetman, and K.C. Jones (2001) A congener-specific PCDD/F emissions inventory for the UK: do current estimates account for the measured atmospheric burden?, *Chemosphere*, 43(2), 183-194.
- Caserini, S., S. Cernuschi, M. Giugliano, M. Grosso, G. Lonati, and P. Mattaini (2004) Air and soil dioxin levels at three sites in Italy in proximity to MSW incineration plants, *Chemosphere*, 54(9), 1279-1288.
- Choi, K.-I., S.-H. Lee, and D.-H. Lee (2008) Emissions of PCDDs/DFs and dioxin-like PCBs from small waste incinerators in Korea, *Atmos. Environ.*, 42(5), 940-948.
- Correa, O., H. Rifai, L. Raun, M. Suarez, and L. Koenig (2004) Concentrations and vapor-particle partitioning of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans in ambient air of Houston, TX, *Atmos. Environ.*, 38(39), 6687-6699.
- Coutinho, M., M. Pereira, and C. Borrego (2007) Monitoring of ambient air PCDD/F levels in Portugal, *Chemosphere*, 67(9), 1715-1721.
- Eitzer, B.D. and R.A. Hites (1988) Vapor pressures of chlorinated dioxins and dibenzofurans, *Environ. Sci. Technol.*, 22(11), 1362-1364.
- Goss, K.-U. and R.P. Schwarzenbach (1998) Gas/solid and gas/liquid partitioning of organic compounds: critical evaluation of the interpretation of equilibrium constants, *Environ. Sci. Technol.*, 32(14), 2025-2032.
- Heo, J.-W., D.-G. Kim, I.-S. Song, and G.-W. Lee (2010) Concentration and gas-particle partition of PCDDs/Fs and dl-PCBs in the ambient air of Ansan area, *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, 26(5), 517-532. (in Korean with English abstract)
- Heo, J., D. Kim, and G. Lee (2014) Congener Profiles and Source-Wise Phase Partitioning Analysis of PCDDs/

- Fs and PCBs in Gyeonggi-Do Ambient Air, South Korea, *Int. J. Environ. Res. Publ. Health*, 11(11), 11065-11080.
- Heo, J. and G. Lee (2014) Field-measured uptake rates of PCDDs/Fs and dl-PCBs using PUF-disk passive air samplers in Gyeonggi-do, South Korea, *Sci. Total Environ.*, 491/492, 42-50.
- Jung, N.-E., S.-H. Heo, M.-R. Jo, H.-C. Kim, S.-K. Jang, J.-H. Hong, J.-I. Dong, and S.-B. Lee (2014) The Characterization of Incomplete Combustion Products in Open Burning, *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, 30(1), 48-58. (in Korean with English abstract)
- Kadowaki, S. and H. Naitoh (2005) Gas-particle partitioning of PCDD/Fs in Nagoya urban air, Japan, *Chemosphere*, 59(10), 1439-1453.
- Kaupp, H. and M.S. McLachlan (1998) Atmospheric particle size distributions of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans (PCDD/Fs) and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and their implications for wet and dry deposition, *Atmos. Environ.*, 33(1), 85-95.
- Kim, D.-Y. and M.-A. Choi (2011) Air Pollutants mission estimation by biomass burning in Seoul metropolitan area, *Conference Proceedings of Korean Soc. Atmos. Environ.*, 118-118.
- Kim, D.-Y. and M.-A. Choi (2012) PM₁₀ Management in Suburbs of Gyeonggi-Do, *Gyeonggi Research Institute*, 1-117.
- Kim, K.-S. (2005) Gas-Particle Partitioning of PCBs in Ambient Air, Yokohama Japan, *J. Korean Soc. Atmos. Environ.*, 21(3), 285-293. (in Korean with English abstract)
- Kurokawa, Y., M. Takahiko, N. Matayoshi, T. Satoshi, and F. Kazumi (1998) Distribution of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans in various sizes of airborne particles, *Chemosphere*, 37(9), 2161-2171.
- Lee, S.-J., S.-D. Choi, G.-Z. Jin, J.-E. Oh, Y.-S. Chang, and S.K. Shin (2007) Assessment of PCDD/F risk after implementation of emission reduction at a MSWI, *Chemosphere*, 68(5), 856-863.
- Li, X., Y. Li, Q. Zhang, P. Wang, H. Yang, G. Jiang, and F. Wei (2011) Evaluation of atmospheric sources of PCDD/Fs, PCBs and PBDEs around a steel industrial complex in northeast China using passive air samplers, *Chemosphere*, 84(7), 957-963.
- Li, Y., G.B. Jiang, Y.W. Wang, P. Wang, and Q. Zhang (2008) Concentrations, profiles and gas-particle partitioning of PCDD/Fs, PCBs and PBDEs in the ambient air of an E-waste dismantling area, southeast China, *Chinese Science Bulletin*, 53(4), 521-528.
- Lohmann, R. and K.C. Jones (1998) Dioxins and furans in air and deposition: a review of levels, behaviour and processes, *Sci. Total Environ.*, 219(1), 53-81.
- Lohmann, R., N.J. Green, and K.C. Jones (1999) Detailed studies of the factors controlling atmospheric PCDD/F concentrations, *Environ. Sci. Technol.*, 33(24), 4440-4447.
- Lohmann, R., T. Harner, G.O. Thomas, and K.C. Jones (2000) A comparative study of the gas-particle partitioning of PCDD/Fs, PCBs, and PAHs, *Environ. Sci. Technol.*, 34(23), 4943-4951.
- Mandalakis, M., M. Tsapakis, A. Tsoga, and E.G. Stephanou (2002) Gas-particle concentrations and distribution of aliphatic hydrocarbons, PAHs, PCBs and PCDD/Fs in the atmosphere of Athens (Greece), *Atmos. Environ.*, 36(25), 4023-4035.
- Mari, M., M. Schuhmacher, J. Feliubadaló, and J.L. Domingo (2008) Air concentrations of PCDD/Fs, PCBs and PCNs using active and passive air samplers, *Chemosphere*, 70(9), 1637-1643.
- Min, Y., M. Lee, D. Kim, and J. Heo (2013) Annual and seasonal variations in atmospheric PCDDs/PCDFs and dioxin-like PCBs levels in satellite cities of Seoul, Korea during 2003-2009, *Atmos. Environ.*, 77, 222-230.
- NIER (2010) Surveying results of persistent organic pollutants in POPs monitoring sites.
- Oh, J.-E., J.-S. Choi, and Y.-S. Chang (2001) Gas/particle partitioning of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans in atmosphere; evaluation of predicting models, *Atmos. Environ.*, 35(24), 4125-4134.
- Oh, J.-E., S.-D. Choi, S.-J. Lee, and Y.-S. Chang (2006) Influence of a municipal solid waste incinerator on ambient air and soil PCDD/Fs levels, *Chemosphere*, 64(4), 579-587.
- Pankow, J.F. (1994) An absorption model of gas/particle partitioning of organic compounds in the atmosphere, *Atmos. Environ.*, 28(2), 185-188.
- Raun, L.H., O. Correa, H. Rifai, M. Suarez, and L. Koenig (2005) Statistical investigation of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans in the ambient air of Houston, Texas, *Chemosphere*, 60(7), 973-989.
- Shin, S.K., G.Z. Jin, W.I. Kim, B.H. Kim, S.M. Hwang, J.P.

- Hong, and J.S. Park (2011) Nationwide monitoring of atmospheric PCDD/Fs and dioxin-like PCBs in South Korea, *Chemosphere*, 83(10), 1339-1344.
- Simcik, M.F., T.P. Franz, H. Zhang, and S.J. Eisenreich (1998) Gas-particle partitioning of PCBs and PAHs in the Chicago urban and adjacent coastal atmosphere: States of equilibrium, *Environ. Sci. Technol.*, 32 (2), 251-257.
- UNEP (1999) Dioxin and furan inventories: National and regional emissions of PCDD/PCDF.
- Wang, J.B., G.-P. Chang-Chien, W.-Y. Lin, J.-H. Yeh, and C.-H. Hung (2009) A seasonality study of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans in ambient air in Kaohsiung (Taiwan) clustered with metallurgical industries, *Journal of Hazardous Materials*, 162(1), 103-110.
- Xu, M.-x., J.-h. Yan, S.-y. Lu, X.-d. Li, T. Chen, M.-j. Ni, H.-f. Dai, F. Wang, and K.-f. Cen (2009) Concentrations, profiles, and sources of atmospheric PCDD/Fs near a municipal solid waste incinerator in Eastern China, *Environ. Sci. Technol.*, 43(4), 1023-1029.
- Yamasaki, H., K. Kuwata, and H. Miyamoto (1982) Effects of ambient temperature on aspects of airborne polycyclic aromatic hydrocarbons, *Environ. Sci. Technol.*, 16(4), 189-194.