ISSN 1738-8716(Print)
ISSN 2287-8130(Online)
Particle and Aerosol Research
Part. Aerosol Res. Vol. 12, No. 2: July 2016 pp. 27-36
http://dx.doi.org/10.11629/jpaar.2016.7.1.027

수용 모델을 이용한 서울시의 PAHs 주요 배출원 추정

한 상 희[1)] · 이 지 이[2)] · 김 용 표[1), 3)*]
[1)]이화여자대학교 환경공학과, [2)]조선대학교 환경공학과,
[3)]이화여자대학교 화학신소재공학과

(2016년 4월 22일 투고, 2016년 6월 20일 수정, 2016년 6월 24일 게재확정)

Estimation of major sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Seoul by using the receptor models

Sang Hee Han[1)], Ji Yi Lee[2)] and Yong Pyo Kim[1),3)*]
[1)]*Department of Environmental Science and Engineering, Ewha Womans University*
[2)]*Department of Renewable Energy Convergence, Chosun University*
[3)]*Department of Chemical Engineering and Materials Science, Ewha Womans University*

Abstract

The PMF result was compared with the result from the Chemical Mass Balance (CMB) modelling (Lee and Kim, 2007) to estimate major source of PAHs observed at Seoul from August 2002 to December 2003. Five major sources were estimated from PMF and CMB modellings respectively. Among them three major sources (coal combustion for residential, coke oven and biomass burning) were identified at both models.

Keywords : PAHs, PMF, CMB major sources, Seoul

* Corresponding author.
Tel : +82-(0)2-3277-2832
E-mail : yong@ewha.ac.kr

1. 서 론

다환방향족탄화수소 (Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, PAHs)는 방향족 고리가 두 개 이상 결합한 화합물들의 총칭이다. PAHs는 화석연료나 유기물의 불완전연소와 같은 인위적 요인에 의해 주로 생성되며 100여 가지 이상의 성분이 알려져 있다. PAHs는 인체에 유해하며 nitro-PAHs와 같이 변형된 PAHs들은 독성이 더 크다(Marr et al., 2006). 그 가운데 PAHs 성분 가운데 정보가 많고 노출되기 쉬우며 위해성이 큰 17가지의 PAHs가 일반적으로 분석되고 있다 (ASTDR, 1989).

PAHs는 배출원에 따라 그 성분의 조성이 다른데, 그 특성을 이용하여 대기 중에 존재하는 PAHs의 농도를 측정하고 수용 모델을 이용하여 배출원을 찾는 연구가 우리나라에서도 활발히 진행되고 있다 (Lee and Kim, 2007; Heo et al., 2009; Kim et al., 2013; Jung et al., 2015).

배출원을 파악하기 위해 우리나라에서 주로 사용하는 수용모델에는 2가지가 있다. Chemical Mass Balance (CMB) 모델은 대기 중으로 배출된 성분의 화학 조성이 변화하지 않는다는 가정하에 질량 보존의 법칙을 기본으로 한 수용모델이다. 수용원에서의 농도와 발생원에 따른 배출 성분의 화학 조성 자료를 입력 자료로 하며, 각 배출원의 기여도를 출력 자료로 갖는다. 배출 성분의 화학 조성 자료는 각 지역마다 배출원의 특성을 고려하여 적합한 조성을 갖는 자료를 사용한다 (Watson et al., 1990). Positive Matrix Factorization (PMF)는 입력 자료로 수용원에서의 농도 만을 사용하며 선형 회귀를 통한 통계적인 방법으로 배출원의 조성과 배출원의 기여도를 출력 자료로 얻을 수 있다(US EPA, 2014).

서울의 경우 지역의 특성에 맞춰 개발된 배출원 조성 자료가 없어 입력 자료가 정확하지 않다는 한계점이 있다. 휘발성유기화합물(Volatile Organic Compounds, VOCs)의 경우 배출원 조성 자료를 생성하여 CMB 모델 연구를 수행한 사례가 있으나(Na and Kim, 2007), PAHs의 경우에는 국내 배출원 조성 자료가 아직 없다. 따라서 현재 우리나라에서 입자상 성분에 대해 CMB 모델을 적용할 때에는 외국의 배출원 자료를 활용하고 있다. 한 예로 Lee and Kim (2007)에서는 중국, 미국 등 다른 지역에서의 배출원 조성 자료를 여건에 맞게 수합하여 서울에서의 PAHs 배출원 조성 자료로 사용하였다.

이와 반대로 PMF 모델은 배출원 조성 자료를 입력할 필요가 없다는 점에서 국내 연구에서 많이 이용되고 있으나(Heo et al., 2009; Moon et al., 2011) 이를 통해 얻어진 배출원 조성 자료는 확률적인 모델이라는 특성에 따라 불확실성이 클 수 있다. 물질의 성질을 이용한 분석이 아닌 선형 회귀 분석을 통해 얻어지는 결과이기 때문에 반복을 통해 얻어지는 회전의 모호성과 작은 표본을 추출하여 얻어진 결과에 대입했을 때 나타날 수 있는 랜덤 에러 등의 오차가 존재한다. 따라서 PMF 분석을 통해 얻어지는 오차를 주의 깊게 살필 필요가 있다(Paatero et al., 2014).

이 연구에서는 2002-2003년의 서울시 PAHs 농도 자료에 대해 (1) 주성분 (Principal Component Factor, PCF) 분석을 통해 통계적인 방법으로 주 요인을 확인하고, (2) PMF 모델을 통해 주요 배출원과 조성을 구하여, (3) CMB 모델 연구 결과의 주요 배출원과 배출원 조성 자료를 비교하여 배출원 조성 자료의 타당성을 검토하고 (4) 서울시 대기 중 PAHs의 주요 배출원을 파악하였다.

2. 연구방법 및 내용

2.1 시료채취 및 분석 방법

이 연구에 사용한 대기 입자상 PAHs 농도자료는 이화여자대학교 아산공학관 옥상에서 측정된 자료이다. 2002년 8월부터 2003년 12월까지 비가 오지 않은 날을 기준으로 6일간격으로 24시간동안 측정하였으며, 총 68개의 시료를 얻었다. 시료의 처리는 미국 환경 보호청(US EPA, 1999)에서 제시하는 TO-13A 방법을 이용하였다. 측정 및 분석에 대해서는 Lee et al. (2006)에 자세히 제시되었다.

고유량 TSP 채취기(Tisch Environmental, TE-1000)를 이용하여 QFFs (Quartz fiber filters, Whatman, QM-A, 10.16 cm diameter) 여과지에 시료를 채취하였다. 채취된 시료는 25 mL 디클로로메탄을 용매로 이용하여 초음파 추출기에서 30분 동안 추출한 후 5분 동안 볼텍스 믹서를 사용하여 교반하였다. 추출물을 0.45 μm 시린지 필터로 여과한 후 20 °C에서

증발기(Zymark, Tubovap 500)를 이용하여 농축시켰다. 농축시킨 각각의 샘플 용액에 분석을 위한 내부 표준으로 페난트렌-D10을 첨가한 후 17 종의 PAHs 화합물을 5972 질량 선택성 검출기를 갖춘 Hewlett Packard 5890 가스 크로마토그래피를 통해 분석하였다. 추출 회수율과 각 성분에 대한 설명은 Lee and Kim (2007)에 제시되어 있다.

2.2 PMF model

US EPA PMF 5.0모델을 이용하여 발생원의 화학조성과 기여도를 추정하였다(US EPA, 2014). 수용원에서 측정한 샘플의 화학 성분 농도를 이용하여 발생원의 기여도와 발생원에서의 화학조성을 구하며 PMF 모델의 경우 입력 자료는 화학성분 농도와 불확실도이다. 아래의 식에 따라 측정한 샘플의 화학성분 농도로 이루어진 행렬(X)를 발생원의 기여도(G)와 발생원에서의 화학조성(F)를 나타내는 두 개의 행렬로 나눈다.

$$X = GF + E$$

PMF 모델을 실행하기 위해서는 농도와 불확실도의 입력 자료가 필요하다. 본 연구에서 농도 자료의 경우, 결측 자료에 있어서는 해당 성분 농도의 평균값을 사용하였고 농도가 존재하지만 검출한계보다 작은 값의 경우 검출 한계의 1/2값으로 대체하였다. 불확실도의 경우 US EPA (2014)에서 제시한 방법으로의 값을 입력하였다. 오차 비율의 경우 15%를 적용하였다. 농도 자료가 결측 자료인 경우 농도의 평균 값에 4배 한 값을, 검출한계보다 작은 경우 검출한계의 5/6값을 불확실도에 적용하였다. 최적 요인 수의 결정은 Heo et al. (2009)와 Paatero et al. (2014)에 따라 IM, IS, %dQ 값을 기준으로 결정하였다. IM은 성분별 잔차 평균의 최대값을 보이며 IS는 성분별 잔차 표준편차의 최대값을 나타낸다. %dQ는 PMF 5.0에서 제공하는 오차를 산출하는 방법 중 하나인 displacement (DISP)의 결과이다. Displacement는 통계적인 모델인 PMF의 결과가 갖는 회전의 모호성을 나타내는 오차 산정 방법이며 %dQ값이 반복을 통해 얻어지는 오차를 나타내는 값이다(Paatero et al., 2014). IM과 IS값이 안정되는 지점과 %dQ값이 작은 지점의 요인 수를 최적 요인 수로 결정했으며, 그림 1의 IM과 IS 추이와 그림 2의 %dQ를 통해 최적 요인 수는 5개로 결정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 PCF (Principal Component Factors) 분석

PAHs 농도의 주요한 요인을 파악하기 위해 SSPS 패키지를 이용하여 PCF분석을 하였다. PCF 분석의 결과 고유 값이 1이 넘고 해당 자료에 대한 설명도가 90%가 넘게 하는 요인의 개수는 2개이다. 표 1은 Kaiser 정규화가 있는 베리멕스 회전을 통해 얻은 회전된 설명 변수들을 나타낸 것이다. 4-5개의 벤젠 고리를 가지는 PAHs (BbF, BkF, BaP, BeP)는 요인 두 가지가 모두 높은 설명 변수를 가지며 저분자와 고분자의 PAHs 두 가지 요인으로 나뉜다.

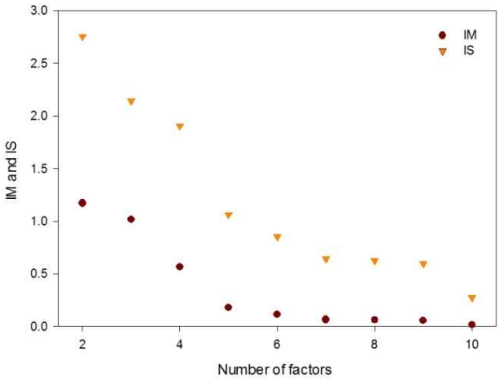


Figure 1. IM and IS values as a function of the factors chosen in PMF.

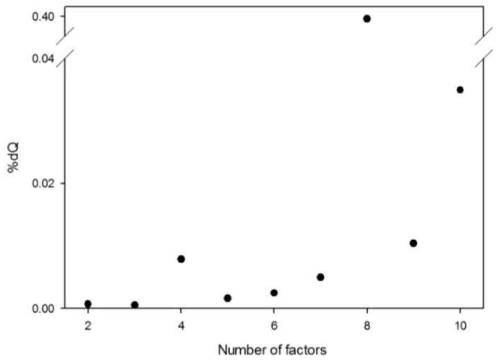


Figure 2. %dQ value from DISP error estimation.

Table 1. Factor analysis (VARIMAX) result for particulate PAH compounds.

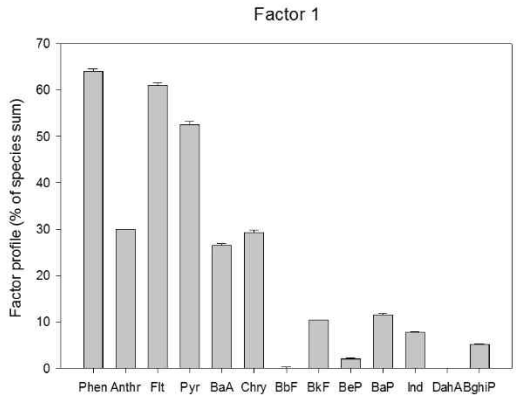
Component	Factors	
	1	2
Phen	0.88	0.336
Anthr	0.747	0.322
Flt	0.915	0.365
Pyr	0.902	0.403
BaA	0.808	0.556
Chry	0.758	0.614
BbF	0.748	0.611
BkF	0.795	0.529
BeP	0.683	0.715
BaP	0.744	0.627
Ind	0.446	0.872
DahA	0.283	0.848
BghiP	0.436	0.857
Eigen value	6.89	4.97
Variance (%)	52.998	38.231

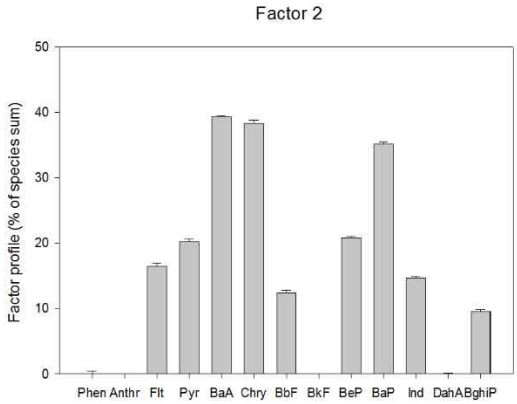
요인 1은 Phen, Anthr, Flt, Pyr, Chry의 5가지 성분과 4-5개의 벤젠 고리를 가지는 PAHs (BbF, BkF, BaP, BeP)에서 높은 설명 변수를 나타냈다. 그 중 Phen, Anthr, Flt, Pyr, BkF, Chry 의 PAHs는 석탄 연소에서 주로 발생하는 성분이기 때문에(Simcik et al., 1999; Harrison et al., 1996; Sofowote et al., 2011) 석탄의 연소를 나타내는 요인이라고 판단할 수 있다.

요인 2는 Ind, DahA, BghiP, Chry와 4-5개의 벤젠 고리를 가지는 PAHs가 높은 설명 변수를 보였다. 4-5개의 벤젠 고리를 가지는 PAHs와 Ind, DahA, BghiP의 성분의 배출 특성상 경유차 또는 휘발유차에서의 발생, 즉 이동오염원을 설명하는 요인으로 판단된다(Park et al., 2002; Lee and Kim 2007; Lee et al., 2004).

3.2 PMF 모델 결과

2 장에서 설명한 것처럼 PMF 모델의 결과 주요 발생원을 5개로 가정하였을 경우 모델 지표가 가장 좋았다. 그림 3는 각 발생원에 대한 성분의 농도를 나타낸 것으로 성분의 발생원 각각이 전체 농도에 어느 정도의 비중을 차지하는 지를 알 수 있으며 bootstrap의 표준편차를 오차로 가지는 그림으로 나타낸 것이다. 벤젠고리 4-5개의 PAHs를 공통으로 갖고 저분자 PAHs와 고분자 PAHs의 두 가지 요인을 나타냈던 PCF 분석과는 다르게 5가지의 주요발생원의 성분이 서로 상반되는 것을 볼 수 있다.





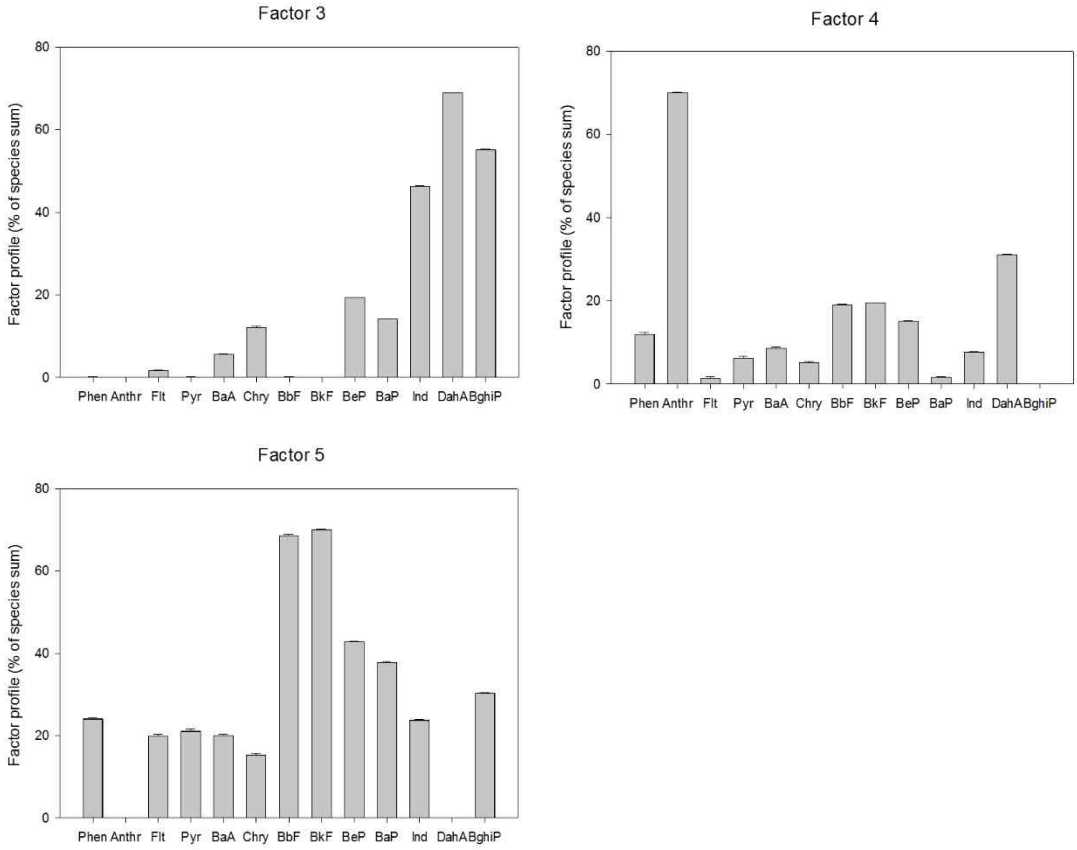


Figure 3. Factor profiles from PMF model in Seoul between 2002 and 2003.

첫 번째 발생원은 PAHs 성분들 중 저분자 PAHs가 높은 비중을 차지했으며 BghiP의 경우 0에 가까운 조성 비율을 갖는 것을 보였다. PAHs 중 첫 번째 발생원의 상대적 기여도는 25%를 나타냈다. Phen, Flt, Pyr, BaA 등의 성분이 높은 조성비를 가지는 것으로 보아 석탄 연소에 의한 배출원일 것으로 추정할 수 있다(Simcik et al., 1999; Harrison et al., 1996; Zheng et al., 2005; Okuda et al., 2010; Sofowote et al., 2011).

두 번째 발생원은 다른 성분에 비해 비교적 Flu, Pyr, Chry의 농도가 높은 것을 볼 수 있다. PAHs 중 두 번째 발생원의 상대적 기여도는 11%를 나타냈다. 이 경우 침엽수의 연소에서 발생하는 Ret, Flu, Pry, Chry이 높다는 것을 통해 두 번째 발생원이 생체 소각에 의한 발생이라고 추정할 수 있다(Rogge et al., 1998).

세 번째 발생원은 고분자 PAHs의 비중이 눈에 띄게 높은 것을 볼 수 있고 Ind, BghiP가 높은 것으로 보인다. PAHs 중 세 번째 발생원의 상대적 기여도는 가장 높은 34%를 나타냈다. Ind, BghiP는 경유차 혹은 휘발유차에 의한 배출원에서의 조성비가 높은 것으로 보아 (Duval and Friedlander, 1981; Miguel and Pereira, 1989; Khalili et al., 1995) 이동오염원에 의한 배출일 것으로 추정된다.

네 번째 발생원은 다른 발생원과 비교하여 모든 성분에 대해 기여하는 정도가 적으나 Anthr의 기여도만이 높은 것으로 보인다. PAHs 중 네 번째 발생원의 상대적 기여도는 19%를 나타냈다. Anthr의 경우 저분자 PAHs이며 반응성이 큰 성질을 가지고 있기 때문에 Anthr이 높은 비중을 차지한다는 것만으로는 특정 발생원에 의한 영향으로 판단하기 어렵다.

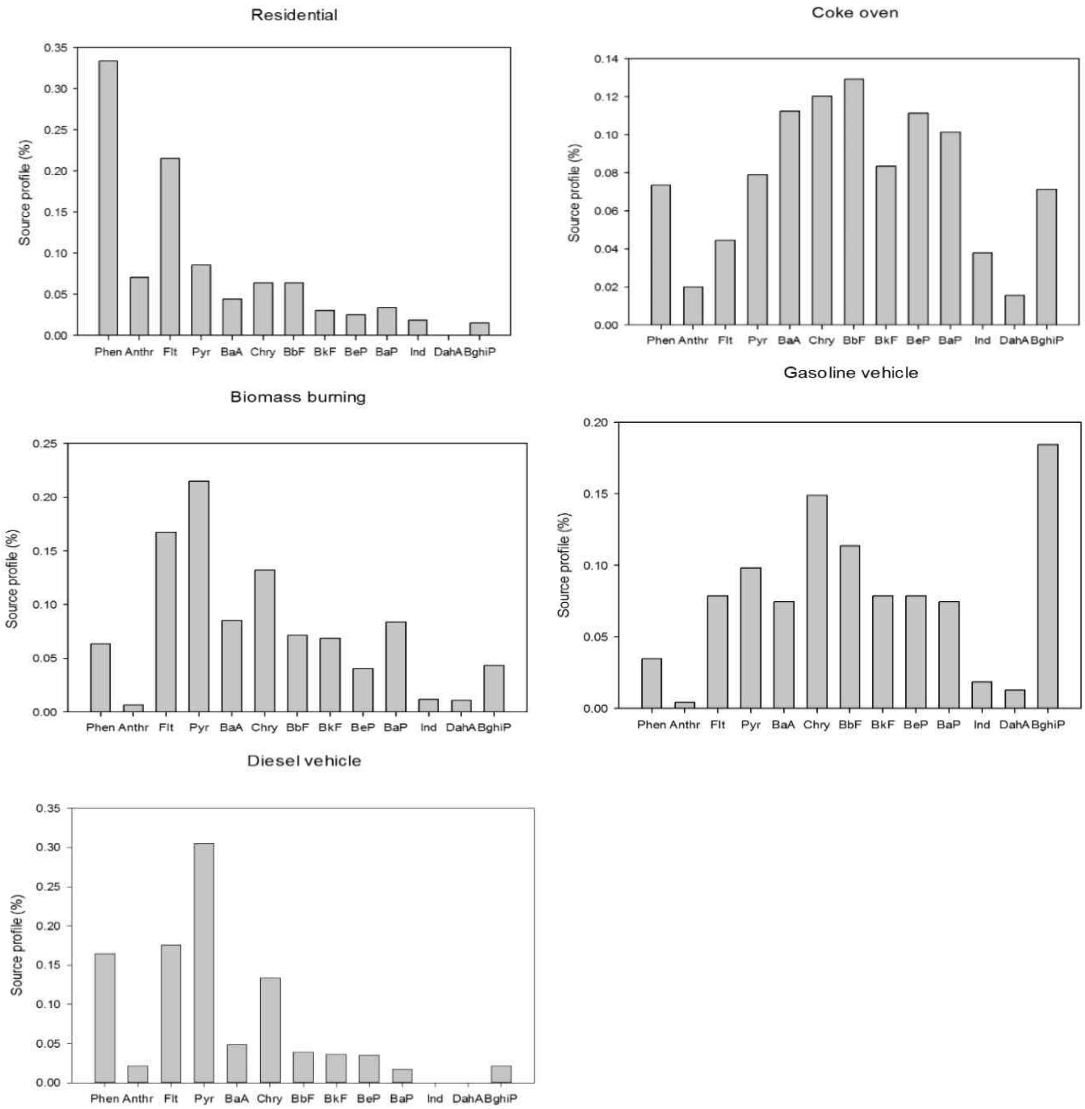


Figure 4. Source profiles of major source used in CMB model (Lee and Kim, 2007).

다섯 번째 발생원은 경유차에서 발생하는 주요 배출 조성인 BbF, BkF, BaP, BghiP 그리고 Ind 이 높은 비중을 차지하는 것으로 보아 경유차에 의한 발생으로 추정할 수 있다(Duval and Friedlander, 1981; Miguel and Pereira, 1989; Lee et al., 2004; Sofowote et al., 2008; Zhang et al., 2012). PAHs 중 다섯 번째 발생원의 상대적 기여도는 11%를 나타냈다. 또한, Bari et al. (2009)에 의하면 BaP와 BeP의 경우 경유 연소의 지표로도 볼 수 있어 다섯 번째 발생원은 경유에 의한 영향임을 알 수 있다.

3.3 CMB 결과와의 비교

Lee and Kim (2007)은 본 연구에서 사용된 자료와 같은 PAHs 농도 자료를 가지고 CMB 모델을 통해 PAHs 오염원의 기여도를 산정하였다. 따라서 Lee and Kim (2007)에서 사용된 배출원 조성 자료와

PMF 모델의 결과 얻은 배출원 조성 자료를 비교하여 각각의 발생원이 어떤 요인인지, CMB에서 사용된 배출원 조성자료와는 어느 정도 상관관계를 가지는지 알아보았다. Lee and Kim (2007)에서는 총 7가지(가정용 난방, 코크스로, 발전소에서의 화석연소, 휘발유차, 경우차, 생체 소각과 천연가스))의 배출원 조성 자료로 CMB모델을 통해 배출원의 기여도를 산정하였다. 그 결과 이동 오염원(31%), 코크스로에서의 석탄 연소(16%), 가정용 난방에 의한 석탄 연소(15%), 생체 소각(14%) 순으로 네 가지 주요한 발생원을 추정하였다. 그림 4는 Lee and Kim (2007)에서 사용한 주요 배출원의 조성자료이다.

그림 4에서 각 발생원의 조성비를 고려하였을 때 PMF 모델 결과 중 석탄 연소로 추정되는 첫 번째 발생원, 생체 소각으로 추정되는 두 번째 발생원과 경유 연소에 의한 발생으로 추정되는 다섯 번째 발생원이 각각 CMB모델의 가정용 난방으로 쓰이는 석탄 연소, 생체 소각, 코크스로에서의 석탄 연소와 비슷한 조성비를 보였다. 그러나 PMF 결과를 통해 추정한 배출원 조성과 CMB의 배출원 조성 자료 특성에 차이가 있었으며 문헌조사를 통해 추정한 배출원과는 다른 배출원과 비슷한 조성비를 가지는 배출원도 존재하였다. 다섯 번째 발생원은 문헌조사를 통해 경유 연소에 의한 발생임을 추정하였지만 CMB에서 사용된 배출원 조성 자료 중 코크스로에서의 석탄 연소에 의한 발생원 조성 자료와 비슷한 경향을 보였다. 각자의 배출원 조성 자료를 산점도로 나타내어 선형회귀식의 결정 계수(r^2)를 비교하였다. 그 결과 가정용 난방에 사용된 석탄 연소는 결정 계수가 0.6755로 비교적 높은 값이 나왔으며 생체 소각에 의한 발생원의 경우 0.4504, 코크스로에서의 석탄 연소에 의한 발생원은 0.3639으로 낮은 값을 나타냈다.

선형회귀에 의한 비교를 통해 두 모델의 결과가 전반적으로 낮은 결정계수를 보이는 것을 볼 수 있었다. 그러나, PMF 모델의 결과에서 추정한 주요 발생원의 종류가 Lee and Kim (2007)에서의 주요한 발생원과 비교적 비슷한 것을 볼 수 있었다. PMF 모델 결과를 통해 5가지 발생원 중 석탄 연소, 교통 수단, 생체 소각에 의한 발생원이 존재하는 것을 알 수 있었다. 이와 비슷하게 Lee and Kim (2007)에서는 교통 수단(31%), 코크스로에서의 석탄 연소(16%), 가정용 난방에 의한 석탄 연소(15%), 생체 소각(14%) 순으로 네 가지 주요한 발생원을 추정하였다. 이를 통해 PMF와 CMB 모델간의 배출원 조성 자료가 정확하게 일치하지는 않지만 추정한 주요 배출원은 비슷한 것을 볼 수 있다.

4. 결론

본 연구에서는 2002년 8월부터 2003년 12월까지 이화여자대학교 아산공학관 옥상에서 측정하여 분석한 13종의 PAHs 농도를 이용하여 주요 배출원을 파악하고 PMF모델의 결과와 Lee and Kim (2007)의 CMB 모델에서 사용된 배출원 조성 자료를 비교하였다.

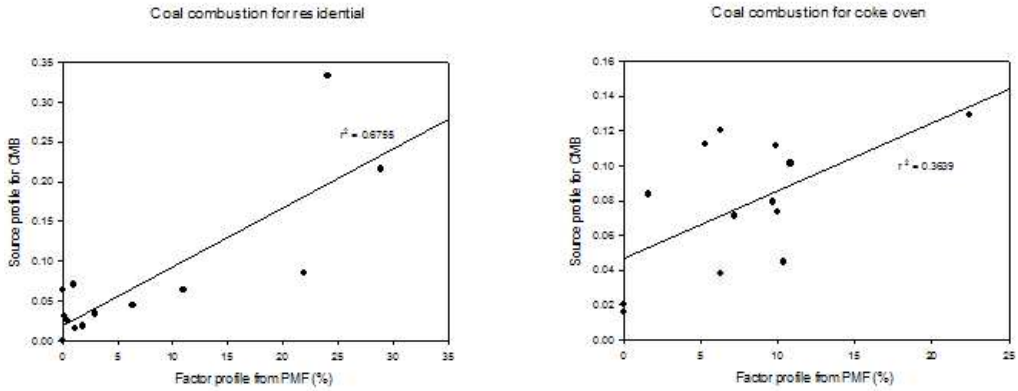


Figure 5. Scatter plot to check relativity between source profile of PMF and CMB.0

PCF 분석을 이용하여 주 요인을 분석하였으며 그 결과 4-5개 벤젠고리를 갖는 PAHs를 공통으로 갖고 저분자 PAHs와 고분자 PAHs 두가지 요인으로 분석되는 것을 확인하였다. 두 가지 요인에서 높은 설명변수를 갖는 성분의 특성을 통해 석탄 연소에 의한 발생과 이동오염원에서의 발생에 의한 요인으로 판단할 수 있다.

PMF의 모델 지표를 바탕으로 주요 발생원을 5 가지로 결정하였다. Bootstrap의 표준편차를 오차 범위로 하였으며 문헌조사를 통해 발생원의 PAHs 조성 특성을 통해 배출원을 추정하였다. PMF 결과의 타당성 검증을 위해 같은 자료를 사용한 Lee and Kim (2007)에서의 주요 배출원 조성 자료와 비교하였다. CMB모델의 결과에서 주요 배출원으로 파악된 배출원의 조성 자료와 비교했을 때 두 모델에 의해 추정된 주요 배출원은 비슷한 것을 확인할 수 있었다. 그러나 각 배출원의 화학성분 조성 자료는 단순선형회귀에 결정 계수를 통해 확인한 결과 차이를 보였으며 석탄 연소와 생체 소각과 비교적 비슷한 조성을 보였으며 특히 가정용 난방에 의한 석탄 연소에 의한 배출에서 가장 높은 결정계수(0.6755)를 보였다.

본 연구에서는 PAHs의 광화학 반응을 고려하지 않았고, CMB 입력 자료인 배출원 조성 자료가 문헌조사를 통해 수합한 값이기 때문에 정확한 배출원 간의 상관관계를 파악하기는 어려웠다. 또한 비교적 적은 양의 데이터를 가지고 PMF 모델을 통해 배출원을 추정하였기 때문에 정확한 결과를 위해서 많은 양의 데이터가 필요한 PMF 모델 결과의 경우 한계성을 가진다. 따라서 비교적 대기 중에서 안정하거나 배출원이 분명한 이온, 금속 등의 성분을 함께 고려하여 배출원 조성을 파악한다면 더 정확한 결과를 얻을 수 있을 것이다.

감사의 글

본 연구는 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 중견연구자지원사업(NRF-2014R1A2A2A05007038)와 기상청 기후변화감시예측 및 국가정책지원 강화 사업(CATER2014-3190)의 지원을 받아 수행되었습니다.

References

ATSDR (Agency for Toxic Substances and Disease Registry) (1989). Toxicological Profile for Polycyclic Aromatic Hydrocarbons. Agency for Toxic Substances and Disease Registry, Clement Associates.

Bari, M. A., Baumbach, G., Kuch, B., and Scheffknecht, G. (2009). Wood smoke as a source of particle-phase organic compounds in residential areas. Atmos. Environ. 43, 4722–4732.

Duval, M. M. and Friedlander, S. K., (1981). Source resolution of polycyclic aromatic hydrocarbons in the Los Angeles atmosphere. US EPA, Washington, DC, EPA-600/2-81-161.

Harrison, R. M., Smith, D. J. T., and Luhana, L. (1996). Source apportionment of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons collected from an urban location in Birmingham, UK. Environ. Sci. Technol., 30, 825-832.

Heo, J. B., Hopke, P. K., and Yi, S. M. (2009). Source apportionment of $PM_{2.5}$ in Seoul, Korea. Atmos. Chem. phys., 9, 4957-4971.

Jung, D. B., Cho, Y. S., Kim, I. S., Lee, J. Y., and Kim, Y. P. (2015). Impact of energy consumption in northeast Asia to the particulate PAHs levels and composition at Seoul, Aerosol Air Qual. Res., 15, 2190-2199.

Kim, I. S., Lee J. Y., and Kim, Y. P. (2013). Impact of polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH) emissions from North Korea to the air quality in the Seoul Metropolitan Area, South Korea, Atmos. Environ., 70, 159-165.

Khalili, N. R., Scheff, P. A., and Holsen, T. M. (1995). PAH source fingerprints from coke ovens, diesel and gasoline engines, highway tunnels, and wood combustion emissions, Atmos. Environ., 29, 533-542.

Lee, J. H., Gigliotti, C. L., Offenberg, J. H., Eisenreich, S. J., Turpin, B. J (2004) Sources of polycyclic aromatic hydrocarbons to the Hudson River Airshed, Atmos. Environ., 38, 5971-5981.

Lee, J. Y., Kim, Y. P., Kang, C. H., and Ghim, Y. S. (2006). Seasonal trend of particulate PAHs at Gosan, a background site in Korea between 2001 and 2002 and major factors affecting their levels. Atmospheric research, 82, 680-687.

Lee, J. Y. and Kim, Y. P. (2007). Source apportionment of the particulate PAHs at Seoul, Korea: impact of long range transport to a megacity, Atmos. Chem. Phys., 7, 3587-3596.

Marr, L. C., Dzepina, K., Jimenez, J. L., Reisen, F., Bethel, H. L., Arey, J., Gaffney, J. S., Marley, N. A., Molina, L. T., and Molina, M. J. (2006). Sources and transformations of particle-bound polycyclic aromatic hydrocarbons in Mexico City, Atmos. Chem. Phys., 6, 1733−1745.

Miguel, A. H., and Pereira, P. A. (1989). Benzo(k)fluoranthene, benzo(ghi)perylene, and indeno(1, 2, 3-cd)pyrene: new tracers of automotive emissions in receptor modeling. Aerosol Science and Technology, 10 (2), 292-295.

Moon, K. J., Park, S. M., Park, J. S. Song, I. H., Jang, S. K., Kim, J. C. and Lee, S. J. (2011). Chemical Characteristics and Source Apportionment of PM2.5 in Seoul metropolitan area in 2010. J. KOSAE, 27 (6), 711-722.

Na, K. and Kim, Y. P. (2007). Chemical mass balance receptor model applied to ambient C 2−C 9 VOC concentration in Seoul, Korea: effect of chemical reaction losses. Atmos. Environ., 41 (32), 6715-6728.

Okuda. K, Okamoto. K, Tanaka. S, Shen. Z, Han. Y, and Huo. Z (2010) Measurement and source identification of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the aerosol in Xi'an, China, by using automated column chromatography and applying positive matrix factorization (PMF). *Science of the Total Environment*, 408, 1909-1904

Paatero, P., Eberly, S., Brown, S. G., and Norris, G. A. (2014). Methods for estimating uncertainty in factor analytic solutions, Atmos. Meas. Tech., 7, 781-797.

Park, S. S., Kim, Y. J., and Kang, C. H. (2002). Atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in Seoul, Korea, Atmos. Environ., 36, 2917-2924.

Rogge, W. F., Hidlemann, L. M., Mazurek, M. A., and Cass, G. R. (1998). Sources of fine organic aerosol. 9. Pine, oak, and synthetic log combustion in residential fireplaces, Environ. Sci. Technol., 32, 13−22.

Simcik, M. F., Eisenreich, S. J., and Lioy, P. J. (1999). Source apportionment and source/sink relationships of PAHs in the coastal atmosphere of Chicago and Lake Michigan, Atmos. Environ., 33, 5071−5079.

Sofowote, U. M., McCarry, B. E., and Marvin, C. H. (2008). Source apportionment of PAH in Hamilton Harbour suspended sediments: comparison of two factor analysis methods. Environ. Sci. tech., 42, 16, 6007-6014.

Sofowote, U. N., Hung, H., Rastogi, A. K., Westgate, J. N., Deluca, P. F., Su, Y., and McCarry, B. E. (2011). Assessing the long-range transport of PAH to a sub-Arctic site using positive matrix factorization and potential source contribution function, Atmos. Environ., 45, 967-976.

US EPA (U.S Environmental Protection Agency) (1999). Determination of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in ambient air using gas chromatography/mass spectrometry (GC/MS).

US EPA (U.S Environmental Protection Agency) (2014). EPA Positive Matrix Factorization (PMF) 5.0 Fundamentals and User Guide.

Watson, J. G., Robinson, N. F., Chow, J. C., Henry, R. C., Kim, B. K., Pace, T. G., Meyer, E. L., and Nguyen, Q. (1990). The USEPA/DRI chemical mass balance receptor model, CMB 7.0, Environmental software, 5 (1), 38-49.

Zhang, Y., Guo, C.S., Xu, J., Tian, Y.Z., Shi, G. L., Feng, Y.C. (2012) Potential source contributions and risk assessment of PAHs in sediments from Taihu Lake, China: comparison of three receptor models. *Water Res.* 46, 3065-3073

Zheng, M., Salmon, L. G., Schauer, J. J., Zheng, L., Kiang, C. S., Zhang, Y., and Cass, G. R. (2005) Seasonal trends in PM2.5 source contributions in Beijing, China, *Atmos. Environ.* 39, 3967-3976.