

평택지역 대기 중 먼지 입경별 잔류성유기오염물질 분포특성 연구

김동기[†] · 우정식 · 김용준 · 정해은 · 박주은 · 조덕희 · 문희천 · 오조교
경기도보건환경연구원 환경연구기획팀

Distribution of Persistent Organic Pollutants (POPs) in Different Sizes of Particles in the Ambient Air of the Pyeongteak Area

Dong-Gi Kim[†], Jung-Sik Woo, Yong-Jun Kim, Hye-Eun Jung, Ju-Eun Park, Duck-Hee Cho, Hee-Chun Moon, and Jo-Gyo Oh

Environment Research Planning Team, Gyeonggi-do Institute of Health and Environment

ABSTRACT

Objectives: The concentration distributions of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans (PCDD/Fs), dioxin-like polychlorinated biphenyls (dl-PCBs), and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in fine particles were investigated to provide basic data on POP behavior and composition analysis.

Methods: The concentrations of PCDD/Fs, dl-PCBs, and PAHs by particle size were evaluated for TSP, PM₁₀, and PM_{2.5}. Also, fine dust component analysis and factor analysis were performed to identify the source of PCDD/Fs.

Results: The particle size distribution was found to account for 24.3% of >10 μm, 14.5% of 2.5-10 μm, and 61.2% of <2.5 μm. The average contributions of coarse particles (>2.5 μm) and fine particles (<2.5 μm) were PCDD/Fs 67%, dl-PCBs 66%, benzo (a) pyrene 83% and PAHs 84%, and the contributions of fine particles (<2.5 μm) were higher than coarse particles (>2.5 μm). However, the contributions of coarse particles increased in April to September with higher temperatures, while those of fine particles increased in February to March with lower temperatures.

Conclusions: Low chlorinated (4Cl-5Cl) PCDD/Fs were more adsorbed compared to coarse particles due to the influence of pollutant migration from particulate to gas phase according to temperature rise, whereas high chlorinated (6Cl-8Cl) PCDD/Fs were more adsorbed compared to fine particles. PCDD/Fs sources were assessed to be major sources of emissions, such as incineration facilities and/or open burning.

Key words: PCDD/Fs, dl-PCBs, PAHs, particle size, fine particle

I. 서론

다이옥신(Polychlorinated dibenzo-p-dioxin and dibenzofurans; PCDD/Fs)과 폴리염화비페닐(Polychlorinated diphenyls; PCBs), 다환방향족탄화수소(polycyclic aromatic hydrocarbons; PAHs) 등은 대표적인 잔류성유기오염물질(Persistent organic pollutants; POPs)

로서 지구환경 중 난 분해성, 생물 농축성, 장거리 이동성 및 높은 독성 등의 특성이 있다.¹⁾

PCDD/Fs 및 PCBs는 폐기물소각시설, 시멘트 등 소성로, 제철·제강·압연시설, 비철금속 제조시설, 화학, 발전 및 난방시설 등으로부터 대기로 배출된다.²⁾ 또한 PCBs 209종의 이성체 중에서 12종의 PCBs는 다이옥신과 유사한 독성을 가지고 있어 dioxin-like

[†]Corresponding author: Gyeonggi-do Institute of Health and Environment, 95, Pajangcheon-ro, Jangan-gu, Suwon-si 16444, Gyeonggi-do, Tel: +82-31-250-2642, Fax: +82-31-250-2649, E-mail: kimdg@gg.go.kr

Received: 2 March 2020, Revised: 27 March 2020, Accepted: 27 March 2020

polychlorinated biphenyl (dl-PCBs)라고 한다.

대기 중 POPs는 가스상과 입자에 흡착된 입자상으로 존재하며 물리 화학적 특성, 기온 및 지역 발생원의 영향 등으로 가스-입자분배를 보이며, 이와 관련하여 PCDD/Fs 및 PCBs는 여름에 가스상 농도가 증가하고 겨울에 입자상 농도가 증가하는 등 기온에 따른 계절적 가스-입자 농도구배를 나타낸다.³⁾ 따라서 이들 오염물질의 대기 중 거동을 평가하기 위해서는 가스상뿐만 아니라 먼지 입자의 분포에 대한 이해가 필요하다.

최근 미세먼지(Particulate matters < 10 μm , PM_{10}) 상황은 대표적인 환경문제로 부각 되었으며, 세계보건기구 산하인 국제암연구소(International Agency for Research on Cancer; IARC)에서는 미세먼지를 사람에게서 암 발생이 확인된 1군 발암물질(Group 1)로 규정했다.

파쇄, 연마 등과 같은 물리적 과정이나 비산 배출을 통해 발생하는 입경이 큰 입자들이 발생원 주변에 침적되는 것과는 반대로, 소각-연소 등 화학적 과정이나 대기 중 응축 과정을 통해 생성되는 2차 생성 입자는 대부분 미세입자들로 쉽게 침적되지 않고 장거리 이동으로 시정악화 등 환경에 미치는 영향이 매우 크며, 또한 호흡을 통해 폐까지 침투할 수 있어 인체에 미치는 영향이 훨씬 크다고 알려져 있다.⁴⁾ 특히 미세먼지의 주요 구성성분인 이온, 탄소 및 금속속분 중에는 중금속뿐만 아니라 PCDD/Fs, PCBs, PAHs 등 다양한 유해화학물질을 포함하기 때문에 물질 자체로서 보다는 유해성은 증가한다.

국내의 대표적인 환경문제로 주목받는 미세먼지 농도 및 배출량 분석에 관한 연구^{5,6)} 및 지역적 특성 파악을 위한 미세먼지의 성분분석 연구⁷⁻¹¹⁾ 등이 다양하게 수행되고 있으며, 미세먼지 문제로 인한 건강 유해성 연구^{12,13)} 등에 관한 관심이 증가하고 있으나, 미세먼지 중 POPs 등과 같은 유해 대기오염물질의 농도분포나 특성 등에 관한 연구는 미흡한 실정이다.

평택지역은 도시개발사업, 신흥공업지역 및 충남 서부권의 대기오염물질 배출시설, 석탄화력발전소 등의 영향으로 전국에서도 미세먼지 농도가 높은 지역이다. 2019년 평택시 4개 지역의 대기 자동측정망 운영결과에서도 $\text{PM}_{2.5}$ 의 24시간 환경기준(35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) 초과일수가 평균 90일이었으며, 연간 평균치가 29

$\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 환경기준(15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)을 초과하였고, PM_{10} 의 연평균 농도 역시 53 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 환경기준을 초과하여 경기도의 연평균 농도가 $\text{PM}_{2.5}$ 26 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 및 PM_{10} 46 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 인 것과 비교해 평택지역의 대기 중 먼지 오염도는 전반적으로 높은 것으로 파악된다.¹⁴⁾

따라서 본 연구에서는 미세먼지 성분분석 등 정보 제공을 위해 경기도가 운영하는 평택 대기 성분측정소에서 TSP, PM_{10} 및 $\text{PM}_{2.5}$ 의 농도를 평가하고 먼지 입경별 PCDD/Fs, PCBs 및 PAHs의 분포와 거동특성을 파악하여 미세먼지 및 POPs 관리대책 수립의 기초자료를 제공하는 데 그 목적이 있다.

II. 연구방법

1. 시료 채취

시료 채취는 평택시 안중읍 행정복지센터 4층 옥상에 있는 경기도 남부 대기 성분측정소에서 2019년 2월부터 11월까지 매월 둘째 주 월요일, 수요일, 금요일에 각각 시료를 채취하였으며, 시료 채취 기간의 기상자료 및 미세먼지 성분분석 정보는 성분측정소 자료를 이용하였다(Table 1).

먼지 시료는 고용량 대기 시료 채취기(HV-1000F, SIBATA, Japan)를 이용하여 분당 1.0 Sm^3 의 유량으로 24시간 동안 포집하였다. 먼지 입경별 다이옥신의 분포특성을 파악하기 위해 총 부유분진(Total suspended particles; TSP)과 미세먼지(PM_{10}), 초미세먼지(Particulate matter < 2.5 μm ; $\text{PM}_{2.5}$)로 각각 구분하여 동시에 시료를 채취하였다. 본 실험에서 사용한 여지(quartz fiber filter)는 사용하기 전에 전기회화로(Thermolyene, USA)를 이용하여 600°C에서 약 5시간 이상 가열하여 불순물을 제거한 후 데시케이터에 보관하여 사용하였다. 먼지 무게 측정용 시료 채취 전에 공여지의 무게를 측정 기록하고 시료 채취가 끝나면 여지를 알루미늄 포일로 포장하여 실험실로 이동하고 데시케이터에 24시간 보관 후 무게를 측정하여 전후 무게 차로부터 먼지 무게를 계산하였다.

2. 실험방법

먼지가 포집된 여지는 가압용매추출장치(ASE 300, DIONEX, USA)를 사용하여 오븐 온도 150°C에서 압력 1500 psi 조건으로 추출 용매인 톨루엔으로 2

Table 1. Conditions for sampling particulates

Sampling site	Sampling date	Sample volume (m ³)	Mean temp. (°C)	Rainfall (mm)
400, Anhyeon-ro, Anjung-eup, Pyeongtaek-si, Gyeonggi-do (N 36°59'09", E 126°55'51")	02-13, 02-15, 02-17, 2019	1,440	-1.0	0.0
	03-11, 03-13, 03-15, 2019	1,440	4.9	1.2
	04-08, 04-10, 04-12, 2019	1,440	9.5	0.0
	05-13, 05-15, 05-17, 2019	1,440	20.1	0.0
	06-10, 06-12, 06-14, 2019	1,440	20.8	6.5
	07-15, 07-17, 07-19, 2019	1,440	26.1	18.5
	08-12, 08-14, 08-16, 2019	1,440	28.5	20.0
	09-17, 09-19, 09-21, 2019	1,440	21.1	0.0
	10-14, 10-16, 10-18, 2019	1,440	14.9	0.0
	11-11, 11-13, 11-15, 2019	1,440	8.5	10.2

Table 2. Toxicity equivalency factors (TEFs) for PCDD/Fs, dl-PCBs, and PAHs

PCDD/Fs		dl-PCBs		PAHs	
Compounds	WHO TEFs	Compounds	WHO TEFs	Compounds	EPA TEFs
2,3,7,8-T ₄ CDD	1	PCB-81	0.0001	Fluorene	0.001
1,2,3,7,8-P ₅ CDD	1	PCB-77	0.0003	Phenanthrene	0.001
1,2,3,4,7,8-H ₆ CDD	0.1	PCB-123	0.1	Anthracene	0.01
1,2,3,6,7,8-H ₆ CDD	0.1	PCB-118	0.03	Fluoranthene	0.001
1,2,3,7,8,9-H ₆ CDD	0.1	PCB-114	0.00003	Pyrene	0.001
1,2,3,4,6,7,8-H ₇ CDD	0.01	PCB-105	0.00003	Benz(a)anthracene	0.1
O ₈ CDD	0.0003	PCB-126	0.00003	Chrysene	0.001
2,3,7,8-T ₄ CDF	0.1	PCB-167	0.00003	Benzo(b)fluoranthene	0.1
1,2,3,7,8-P ₅ CDF	0.03	PCB-156	0.00003	Benzo(k)fluoranthene	0.01
2,3,4,7,8-P ₅ CDF	0.3	PCB-157	0.00003	Benzo(a)pyrene	1
1,2,3,4,7,8-H ₆ CDF	0.1	PCB-169	0.00003	Indeno(1,2,3-cd)pyrene	0.1
1,2,3,6,7,8-H ₆ CDF	0.1	PCB-189	0.00003	Dibenz(a,h)anthracene	1
1,2,3,7,8,9-H ₆ CDF	0.1			Benzo(ghi)perylene	0.01
2,3,4,6,7,8-H ₆ CDF	0.1				
1,2,3,4,6,7,8-H ₇ CDF	0.01				
1,2,3,4,7,8,9-H ₇ CDF	0.01				
O ₈ CDF	0.0003				

회 반복 추출하였고, 진공농축기로 농축하여 최종 추출용량을 20 mL로 표정하여 전처리용 시료로 하였다. PCDD/Fs와 dl-PCBs 및 PAHs 각각의 전처리는 최종 추출용량에서 기기 정량한계 이상의 농도가 되도록 각각 분취하여 수행하였다.

본 연구의 PCDD/Fs와 dl-PCBs의 전처리 및 분석 방법은 잔류성유기오염물질 공정시험기준(환경부)의 환경 대기 중 다이옥신 및 퓨란류 시험방법(ES

10308.1)과 환경대기 중 코플라나폴리클로리네이트 드바이페닐 시험방법(ES 10309.1)을 근거하여 실시하였으며, 미국환경보호청(EPA)의 EPA Method TO-9A와 EPA Method 1668B를 참고하였다. PAHs의 전처리 및 분석방법으로는 대기오염공정시험기준의 환경대기 중 다환방향족탄화수소류 기체크로마토그래프/질량분석법(ES 01552.1)과 EPA Method 429를 참고하였다.

PCDD/Fs와 dl-PCBs 정량분석은 고분해능 가스 크로마토그래피/질량분석기(HRGC/HRMS, Trace GC Ultra/DFS, Thermo Scientific, Germany)를 이용하였다. PCDD/Fs와 dl-PCBs의 이성체 분리를 위하여 DB-5MS (60 m×0.2 mm×0.25 μm, J&W Scientific, USA) 컬럼을 사용하여 PCDD/Fs는 2,3,7,8-치환이성체 17종을 정량하였으며, dl-PCBs는 PCBs 209종 이성체 중 세계보건기구에서 독성이 있는 것으로 분류한 co-planer PCBs 12종을 각각 분리 정량하였다. PAHs는 GC/MS/MS (TSQ Quantum XLS, Thermo, USA)과 DB5-MS (30 m×0.25 mm ID×0.2 μm) 컬럼을 사용하여 13종을 분리 정량하였다.

독성등가 환산농도(Toxic equivalent quantity, TEQ)로 표현하기 위해 다이옥신은 국제독성등가계수 PCDD/Fs와 dl-PCBs는 WHO-TEF (2005)를 각각 사용하였고 PAHs는 EPA-TEF 값을 적용하였다(Table 2).

3. 통계분석 자료 및 방법

대기 중 PM_{2.5}의 금속성분, 이온성분, 탄소성분 등 미세먼지 성분분석 자료와 PCDD/Fs 측정 자료의 통계분석을 통해 PCDD/Fs의 지역 발생원을 파악하고자 통계처리 프로그램 SPSS Statistics (ver. 17.0)를 활용하여 요인분석을 수행하였다.

통계분석에 사용한 성분분석 자료는 이온성분(unit: μg/m³)은 F⁻, Cl⁻, NO₂⁻, Br⁻, NO₃⁻, PO₄³⁻, SO₄²⁻, Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺ 등 12항목, 금속성분(unit: μg/m³)은 Mg, Al, K, Ca, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Sr, Cd, Ba, Tl, Pb 등 19항목, 탄소성분(unit: μg/m³)은 OC, EC 2항목 및 PCDD/Fs (unit: pg/m³)로 총 34항목을 대상으로 하였다. 또한, 값이 큰 변수가 작은 변수의 변동을 덮어버리는 결과 왜곡을 방지하기 위하여 각 성분자료는 농도를 조사 기간 총 농도로 나누어 데이터 표준화를 실시하였다.

요인분석방법은 주성분분석법(principal component analysis)으로 고유값(eigenvalue) 기준 1 이상으로 요인의 수를 추출하였으며, 추출된 주성분의 해석을 용이하게 하기 위해서 쿼티맥스(quartimax) 회전한 성분 값으로 요인분석을 하였다. 분석자료는 2019년 2월부터 11월까지 월 3회 분석자료로 개체 수가 30이며 성분분석항목 34개의 등비변수와 명목변수로 시료 채취 시기 등 총 35개 변수로 전체 자료의 행렬은 30×35이다.

4. 정도관리

본 연구에서 PM₁₀, PM_{2.5} 측정농도와 대기성분측정소에서 생산되는 중량농도(a)를 비교 평가한 결과 PM₁₀=1.2a-6.8 (R²=0.62, p<0.001) 및 PM_{2.5}=1.2a+9.9 (R²=0.54, p<0.001)로 각각 유의하게 나타났다.

방법검출한계 및 정량한계, 정밀도 및 정확도는 잔류성유기오염물질 공정시험기준(ES 10001)의 정도보증/정도관리에 따라 수행하였으며, 정제용 내부표준물질의 회수율은 50~120% 범위로 내부 정도관리 기준을 만족했다.

III. 결과 및 고찰

대기 중 먼지는 TSP, PM₁₀ 및 PM_{2.5}로 각각 포집하여 먼지농도와 PCDD/Fs, dl-PCBs 및 PAHs를 정량하고, 먼지농도는 입경을 3단으로 구분하여 1단 >10 μm (TSP-PM₁₀), 2단 10~2.5 μm (PM₁₀-PM_{2.5}), 3단 <2.5 μm (PM_{2.5})로 평가하였으며, 입경 별로 PCDD/Fs, dl-PCBs 및 PAHs의 분포특성과 거동을 평가하였다.

1. 먼지 입경분포

먼지 입경별 평균 농도는 TSP 69.0 μg/m³, PM₁₀ 52.2 μg/m³, PM_{2.5} 42.4 μg/m³로 각각 조사되었다(Table 3). 총 먼지농도에서 PM₁₀은 76%를 차지하였고 PM_{2.5}가 61%를 차지하는 것으로 조사되었다. 이 결과는 정 등¹⁵⁾이 보고한 부산지역의 먼지농도 분포 비율(PM₁₀: 75.5%, PM_{2.5}: 55.7%)과 유사하게 나타났으나, Zhang 등¹⁶⁾이 보고한 베이징 교외지역의 먼지농도 분포 비율 PM₁₀ 89% 및 PM_{2.5} 76%와 차이가 있다.

총 부유먼지에 대한 입경별 평균 농도는 >10 μm 이 16.8 μg/m³으로 24.3%를 차지하고 2.5~10 μm이 10.0 μg/m³으로 14.5%, <2.5 μm이 42.2 μg/m³으로 61.2%를 차지하는 것으로 조사되었다. Oh 등¹⁷⁾은 먼지 입경을 7단계(<0.41, 0.41~0.73, 0.73~1.4, 1.4~2.1, 2.1~4.2, 4.2~10.2, >10.2 μm)로 나누어 측정한 결과 <1.4 μm의 입경에서 총 입자의 50% 이상을 차지하는 것으로 보고하였다. 본 연구방법과의 차이로 직접적인 비교는 어렵지만, 선행 연구결과로 볼 때 대기 중 먼지 입경 분포는 미세입자의 분포가 높은 것으로 파악되었다. 조대입자(>2.5 μm)들이 건설현장,

Table 3. Particulate matter concentrations in different size fractions (N=3 for every month) (unit: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

PM fraction	Size range (μm)	Feb.	Mar.	Apr.	May	Jun.	Jul.	Aug.	Sep.	Oct.	Nov.
TSP-PM ₁₀	>10	17.5	23.8	7.2	34.6	13.4	13.9	4.9	17.6	18.5	16.7
PM ₁₀ -PM _{2.5}	2.5~10	3.1	6.8	5.9	23	7.2	8.5	7.4	10.2	19.7	8.7
PM _{2.5}	<2.5	42.7	53.9	43.8	83.4	26.0	66.4	18.8	32.8	28.5	25.2
Total	-	63.2	84.5	56.8	141.1	46.6	88.8	31.1	60.6	66.7	50.6

도로 재비산 등 기계적인 공정을 통해 발생 되고,¹⁸⁾ 미세입자(<2.5 μm)들은 연소공정, 가스-입자 변화(2차 미세먼지) 등에 의해 생성되며,¹⁹⁾ 대기 중 더 오래 부유하는 것과 관련 지역 간 먼지 발생원의 차이일 것으로 판단된다.

한편 월별 총 먼지농도는 5월에 가장 높은 141.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 를 보였고 8월에 가장 낮은 31.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 를 나타냈다. 특히 7월을 제외하고 비가 내린 6, 8, 11월의 먼지농도는 다른 기간보다 상대적으로 낮게 나타나 대기 중 오염물질 제거 작용인 강우에 의한 습식침적의 영향인 것으로 판단되었다. 본 조사에서 6월과 8~11월의 시료채취 기간 먼지농도 측정결과는 PM_{2.5}의 24시간 환경기준인 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 를 만족한 것으로 나타났다.

2. 먼지 입경별 PCDD/Fs, dl-PCBs 및 PAHs 농도분포

먼지 입경에 따른 PCDD/Fs, dl-PCBs 및 PAHs의 농도(Table 4)와 입경별 농도 기여율(Fig. 1)을 각각 나타냈다. PCDD/Fs의 총 농도는 670.5 fg/m^3 (34.4 $\text{fg-TEQ}/\text{m}^3$)으로 나타났으며, 입경별 농도는 >10 μm 에서 92.9 fg/m^3 (7.1 $\text{fg-TEQ}/\text{m}^3$), 2.5~10 μm 에서 126.9 fg/m^3 (5.2 $\text{fg-TEQ}/\text{m}^3$), 입경 <2.5 μm 에서 450.7 fg/m^3 (22.1 $\text{fg-TEQ}/\text{m}^3$)으로 각각 나타났다. 총 dl-PCBs는 151.2 fg/m^3 (2.0 $\text{fg-TEQ}/\text{m}^3$)으로 입경 >10 μm 에서 33.2 fg/m^3 (0.5 $\text{fg-TEQ}/\text{m}^3$), 입경 2.5~10 μm 에서 17.9 fg/m^3 (0.1 $\text{fg-TEQ}/\text{m}^3$), 입경 <2.5 μm 에서 100.2 fg/m^3 (1.4 $\text{fg-TEQ}/\text{m}^3$)으로 각각 나타났다. PAHs의 총 농도는 2,950.2 pg/m^3 (265.9 $\text{pg-TEQ}/\text{m}^3$)로 입경별 농도는 >10 μm 에서 223.5 pg/m^3 (21.7 $\text{pg-TEQ}/\text{m}^3$), 2.5~10 μm 에서 240.3 pg/m^3 (16.4 $\text{pg-TEQ}/\text{m}^3$), 입경 <2.5 μm 에서 2,486.5 pg/m^3 (227.8 $\text{pg-TEQ}/\text{m}^3$)으로 각각 나타났다.

입자에 결합된 PCDD/Fs, PCBs, PAHs 등은 1~2

μm 보다 작은 입자에 주요하게 결합 되는 것으로 알려져 있다.^{20,21)} 이와 관련된 선행연구들에 따르면 Kaupp 등²²⁾은 입경 <1.35 μm 에서 PCDD/Fs 농도의 90%가 검출되는 것으로 보고했으며, Oh 등¹⁷⁾은 도심 및 준 도심지역에서 다양한 먼지 입경분석 결과 시료채취 지역에 상관없이 <2.1 μm 입경에서 PCDD/Fs가 90% 이상 존재하는 것을 확인했다. 또한, 큰 입자의 경우 토양에서 유래한 것으로, 미세입자의 경우 소각장과 같은 연소시설 등 인위적인 오염원에 의한 것으로 보고하였다. Zhang 등¹⁶⁾의 연구에서도 총 다이옥신 농도의 80% 이상이 입경 <2.5 μm 내에 존재하고 입자상에 존재하는 PCDD/Fs 농도 분율도 입자 크기가 감소하는 것에 따라서 증가하는 것을 보고했다. 한편 PCBs도 입경 <0.95 μm 입자에 72%가 결합해 있는 것을 보고했으며,²⁰⁾ PAHs의 조사를 통해 입경 <1.7 μm 입자에서 대부분이 존재하는 것을 확인하였고 다이옥신과 마찬가지로 큰 입자보다는 미세입자에서의 기여율이 더 크다고 보고하였다.²³⁾ 본 연구에서 먼지 입경별(>10 μm :10~2.5 μm :<2.5 μm) 농도 기여도는 PCDD/Fs (14%:19%:67%), dl-PCBs (22%:12%:66%), 및 PAHs (8%:8%:84%)로 입경 <2.5 μm 입자에 오염물질이 더 흡착된 것으로 나타났다.

한편 Degrendele 등²⁴⁾은 도심과 전원 지역에서 다양한 입자 발생원의 영향으로 입경별 PCDD/Fs, dl-PCBs의 농도 기여도가 일관성 없이 계절적으로 변동하는 것을 확인하였다. 본 연구에서 계절적인 변동과 관련하여 입경 2.5 μm 를 기준으로 조대입자(>2.5 μm)와 미세입자(<2.5 μm)의 월별 기여도를 평가한 결과 PCDD/Fs, dl-PCBs, benzo(a)pyrene 및 PAHs는 농도가 낮은 4~9월에 조대입자의 기여도가 증가하는 경향을 나타냈고, 이와 반대로 오염물질의 농도가 높은 2~3월에 미세입자 기여도가 증가하는 경향을 확인했다. 이런 경향은 PCDD/Fs (1.1E-

Table 4. Concentration of PCDD/Fs, dl-PCBs and PAHs in different size fractions of PM

Compounds	Total	Size range		
		>10 (N=30)	2.5~10 (N=30)	<2.5 (N=30)
2,3,7,8-T ₄ CDD	0.3 (0.0~2.0)	0.1 (0.0~0.2)	0.2 (0.0~1.6)	0.0 (0.0~0.3)
1,2,3,7,8-P ₅ CDD	2.7 (0.0~10.1)	0.8 (0.0~2.7)	0.7 (0.0~8.6)	1.2 (0.0~8.6)
1,2,3,4,7,8-H ₆ CDD	5.1 (0.5~13.8)	1.6 (0.5~1.5)	0.9 (0.0~6.9)	2.7 (0.0~5.5)
1,2,3,6,7,8-H ₆ CDD	9.2 (0.0~24.7)	2.4 (0.0~7.5)	2.2 (0.0~17.3)	4.7 (0.0~17.0)
1,2,3,7,8,9-H ₆ CDD	13.7 (0.0~86.0)	2.3 (0.0~1.2)	5.6 (0.0~52.5)	5.9 (0.0~32.3)
1,2,3,4,6,7,8-H ₇ CDD	72.5 (12.3~201.3)	7.0 (5.2~8.1)	18.8 (3.5~126.4)	46.6 (3.6~83.0)
O ₈ CDD	158.4 (25.7~527.5)	20.3 (11.0~46.1)	43.0 (4.8~343.8)	95.1 (9.9~418.9)
2,3,7,8-T ₄ CDF	6.0 (0.0~28.4)	1.9 (0.0~8.3)	0.3 (0.0~2.7)	3.8 (0.0~22.3)
1,2,3,7,8-P ₅ CDF	16.7 (2.0~74.3)	3.7 (1.1~19.2)	2.5 (0.2~7.6)	10.6 (0.0~47.5)
2,3,4,7,8-P ₅ CDF	29.2 (2.5~134.7)	6.8 (1.7~41.0)	3.5 (0.0~10.7)	18.9 (0.0~93.7)
1,2,3,4,7,8-H ₆ CDF	31.8 (2.0~104.3)	5.2 (2.0~18.0)	5.1 (0.0~19.6)	21.6 (1.9~71.8)
1,2,3,6,7,8-H ₆ CDF	34.5 (2.7~102.5)	6.7 (0.7~13.4)	4.9 (0.1~20.1)	22.9 (1.0~81.9)
1,2,3,7,8,9-H ₆ CDF	11.7 (0.0~36.3)	3.0 (0.0~9.6)	1.3 (0.0~7.9)	7.3 (0.0~18.7)
2,3,4,6,7,8-H ₆ CDF	44.1 (5.0~130.7)	5.4 (0.6~23.7)	6.4 (0.0~36.6)	32.3 (2.4~95.2)
1,2,3,4,6,7,8-H ₇ CDF	127.5 (24.6~308.6)	12.9 (3.9~50.3)	17.6 (10.5~110.8)	97.0 (18.0~231.1)
1,2,3,4,7,8,9-H ₇ CDF	18.0 (1.3~41.2)	1.1 (0.0~41.2)	2.2 (2.0~8.3)	14.6 (0.8~42.6)
O ₈ CDF	89.0 (23.5~192.5)	12.0 (2.5~28.7)	12.0 (1.5~32.6)	65.1 (16.4~131.2)
ΣPCDD/Fs (fg-TEQ/m ³)	670.5 (104.7~1,457.2)	92.9 (28.9~125.3)	126.9 (12.7~797.9)	450.7 (54.0~1,029.0)
PCB-81	22.1 (8.2~53.9)	4.0 (0.0~11.1)	4.9 (0.0~31.8)	13.3 (4.9~40.3)
PCB-77	2.6 (0.0~8.5)	0.2 (0.0~1.2)	1.9 (0.0~18.6)	0.5 (0.0~3.2)
PCB-123	2.4 (0.0~3.9)	0.4 (0.0~1.0)	1.6 (0.0~12.6)	0.5 (0.0~2.5)
PCB-118	57.3 (24.0~127.9)	14.8 (0.0~41.5)	4.7 (0.0~11.3)	37.7 (17.5~96.7)
PCB-114	4.7 (0.0~8.4)	0.4 (0.0~1.5)	3.6 (0.0~33.7)	0.7 (0.0~3.8)
PCB-105	24.8 (10.0~67.3)	5.2 (0.0~11.1)	3.2 (0.0~12.3)	16.4 (3.5~48.8)
PCB-126	14.2 (0.0~62.9)	5.3 (0.0~34.0)	0.7 (0.0~3.6)	8.2 (0.0~49.5)
PCB-167	5.0 (0.0~19.4)	1.9 (0.0~8.8)	0.5 (0.0~3.8)	2.6 (0.0~15.6)
PCB-156	12.3 (2.0~53.5)	3.6 (0.0~22.8)	1.3 (0.0~6.9)	7.7 (1.2~35.4)
PCB-157	5.6 (0.6~24.0)	2.2 (0.0~15.1)	0.3 (0.0~1.5)	3.0 (0.0~16.2)
PCB-169	6.2 (0.2~21.4)	1.5 (0.0~10.8)	0.9 (0.0~3.2)	3.7 (0.0~16.2)
PCB-189	10.2 (0.2~32.9)	3.4 (0.0~18.4)	1.0 (0.0~4.7)	5.8 (0.0~24.8)
Σdl-PCBs (fg-TEQ/m ³)	151.2 (52.5~483.9)	33.2 (4.5~89.1)	17.9 (0.0~60.8)	100.2 (27.5~334.0)
Fluorene	199.0 (13.2~272.5)	52.8 (8.5~110.5)	22.9 (0.0~104.5)	123.3 (65.7~180.3)
Phenanthrene	264.4 (50.3~753.8)	24.1 (0.0~117.6)	34.4 (0.0~196.6)	205.8 (32.7~753.8)
Anthracene	9.9 (0.0~35.4)	1.5 (0.0~5.2)	1.7 (0.0~5.0)	6.6 (0.0~29.5)
Fluoranthene	382.5 (44.6~1,554.5)	24.0 (0.0~105.8)	35.0 (0.0~81.6)	323.5 (24.0~1,464.0)
Pyrene	254.9 (40.6~900.6)	13.4 (0.0~56.2)	22.2 (0.0~56.6)	219.3 (844.0)
Benz(a)anthracene	111.5 (10.8~415.4)	5.0 (0.0~19.1)	7.4 (0.0~16.6)	99.1 (7.6~379.7)
Chrysene	342.9 (40.2~1,305.6)	29.4 (1.1~59.3)	38.1 (0.0~197.6)	275.4 (21.7~1,054.5)
Benzo(b)fluoranthene	547.7 (83.2~1,356.3)	39.1 (0.0~118.7)	38.9 (0.0~166.5)	469.7 (50.3~1,219.6)
Benzo(k)fluoranthene	160.6 (17.2~436.9)	8.9 (0.0~31.4)	22.4 (0.0~93.4)	129.3 (9.9~324.1)
Benzo(a)pyrene	125.8 (8.9~385.1)	13.5 (0.0~48.2)	8.0 (0.0~18.0)	104.4 (5.1~330.)
Indeno(1,2,3-cd)pyrene	291.9 (44.1~609.8)	28.4 (0.0~78.6)	11.5 (0.0~37.8)	252.0 (29.0~536.7)
Dibenz(a,h)anthracene	45.0 (9.9~98.0)	4.0 (0.0~19.1)	4.5 (0.0~14.8)	36.4 (4.5~89.8)
Benzo(ghi)perylene	295.7 (36.8~662.6)	27.5 (0.0~80.6)	26.7 (0.0~166.6)	241.5 (25.3~558.8)
Σ13PAHs (pg EPA-TEQ/m ³)	2,950.2 (692.1~8,648.5)	223.5 (0.0~511.8)	240.3 (0.0~709.2)	2,486.5 (374.5~7,684.9)
	265.9 (47.1~731.1)	21.7 (0.0~60.6)	16.4 (0.0~45.3)	227.8 (18.9~646.7)

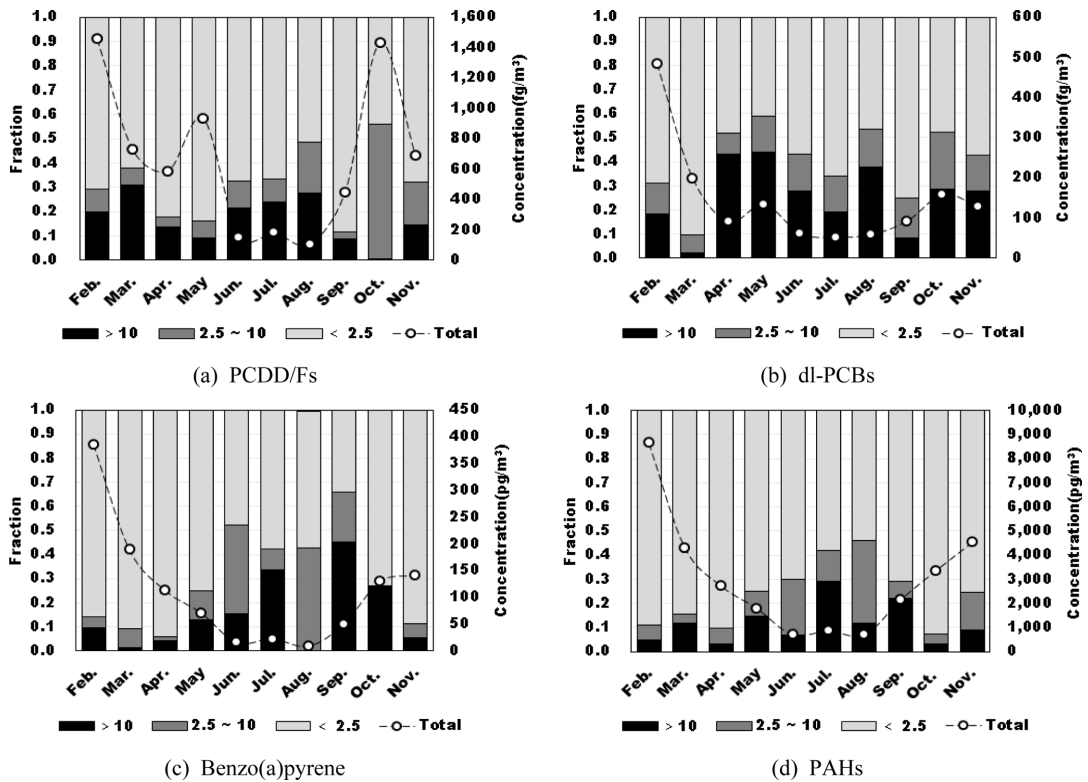


Fig. 1. Fractional PM contributions to concentration of (a) PCDD/Fs; (b) dl-PCBs; (c) Benzo(a)pyrene; (d) PAHs

4~5.1E-10 Pa, 25°C)²⁵⁾ 보다는 상대적으로 증기압이 낮은 dl-PCBs (1.1~1.4E-6 Pa, 25°C)²⁶⁾와 PAHs (0.9~2E-10 Pa, 25°C)²⁷⁾에서 뚜렷하게 나타났다. 다른 한편으로 먼지 입경 농도에 대한 오염물질 농도 (fg-compounds/ μ g-particle)(Fig. 2) 평가는 오염물질이 입자로의 침적 흐름을 조사하는 데 유용할 수 있다. 조대입자와 미세입자에 대한 PCDD/Fs, dl-PCBs, benzo(a)pyrene 및 PAHs는 5~8월 전체적으로 낮은 분포를 보였다. 이런 결과는 액체증기압에 기초한 입자-가스 분배 영향으로 해석될 수 있으며, 일반적으로 PCDD/Fs, dl-PCBs 동족체들의 대기 중 입자-가스 분포는 계절적 특성을 나타낸다. 기온이 높은 여름철에는 저 염소화 PCDD/Fs의 가스상 분포가 증가하고 입자상 농도는 감소하며, 고 염소화 PCDD/Fs는 입자상에 분포하는 특성을 나타낸다. 그러나 기온이 낮은 겨울철에는 대부분 입자상으로 존재한다.²⁸⁾ 대기 온도가 상승하면 입자에 흡착되어 있던 오염물질이 가스상으로 휘발되고 이때 먼지 중 오염물질

농도는 감소하며, 더운 7~8월에는 조대입자보다 미세입자에서 감소가 더 일어난 것으로 판단된다.

본 연구에서 PCDD/Fs, dl-PCBs 및 PAHs의 농도는 2월에 높고 6~8월 낮게 나타났으며 미세입자(<2.5 μ m)에 상대적으로 많이 분포하는 것으로 파악되었다. 대기 중 오염물질이 미세입자에 더 많이 축적되는 것은 이들 물질의 물리적 화학적 특성과 미세입자의 높은 표면적 때문으로 판단 된다.

3. 입경별 PCDD/Fs 동족체 분포

대기 중 먼지 입경별 오염물질의 분포특성을 파악하는 것은 오염물질의 환경 중 거동과 인체 노출을 이해하는 데 중요하게 인식된다. PCDD/Fs의 동족체에 대한 먼지 입경별 상대 기여율을 조사한 결과를 Fig. 3에 나타냈다.

TCDD(4Cl), PeCDD(5Cl) 및 HxCDD(6Cl) 동족체의 농도는 입경 >2.5 μ m에서 90%, 56% 및 53%가 각각 분포하는 것으로 나타났고, HpCDD(7Cl) 및

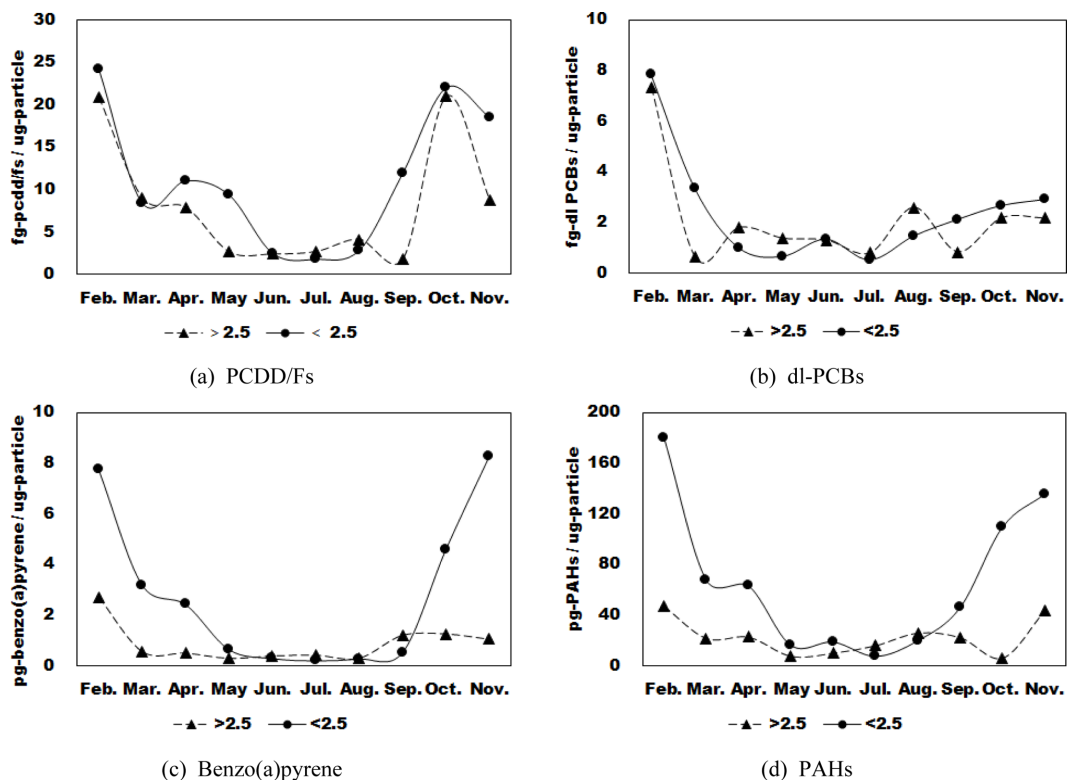


Fig. 2. Concentration of target compounds in PM size fractions (>2.5, <2.5) (a) PCDD/Fs; (b) dl-PCBs; (c) Benzo(a)pyrene; (d) PAHs

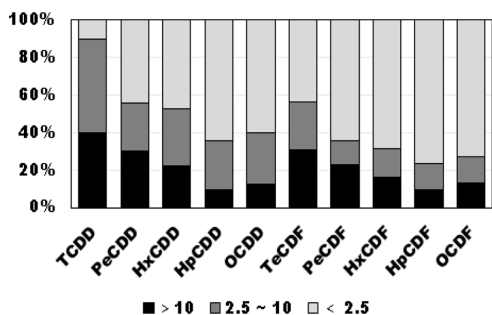


Fig. 3. Fractional PM contributions to concentration of PCDD/Fs homolog

OCDD(8Cl)는 입경 <2.5 μm에서 64% 및 60%로 각각 분포했다. TCDF(4Cl)는 입경 >2.5 μm에서 56%가 분포했고, PeCDF(5Cl), HxCDF(6Cl), HpCDF(7Cl) 및 OCDD(8Cl)은 입경 <2.5 μm에서 64, 68, 77 및 73%가 각각 분포했다. PCDD/Fs 동족체별 농도분포는 분자량이 작은 저염화(4Cl~5Cl) PCDD/Fs의 경

우 고 염화(6Cl~8Cl) PCDD/Fs에 비하여 상대적으로 큰 입경(>2.5 μm)에 더 많이 흡착되어 존재하는 것으로 나타났으며, 반대로 고 염화 PCDD/Fs는 작은 입경(<2.5 μm)에 더 흡착되는 것으로 나타났다. Kaupp 등²²⁾은 전역 지역에서 입경 분율에 대한 PCDD/Fs의 동족체 간 분포패턴이 전체적으로 유사한 것을 확인하였으나, Oh 등¹⁷⁾은 입경 2.1 μm 보다 큰 입자에서 저 염소화 PCDD/Fs가 우세하고, 2.1 μm 이하 입경에서 고 염소화 PCDD/Fs가 우세한 것을 보고 했다. Kaupp와 McLachlan²⁹⁾는 저 염소화 PCDD/Fs의 조대입자로 편향적 분포특성을 보고했다. Kurogawa 등³⁰⁾은 염소수가 적은 PCDD/Fs의 농도는 먼지 입자의 크기가 커질수록 증가한다고 하였으며 이는 입자에 흡착된 PCDD/Fs의 가스화의 영향 때문으로 설명하였다. 이는 PCDD/Fs가 주요 발생원인 소각로로부터 배출될 때 먼지 미세한 입자에 흡착되고, 그 후 PCDD/F는 응결 또는 휘발 및 흡수로 조대입자에 흡착되며, 저 염소화 PCDD/Fs는

Table 5. Summary results of factor analysis for PM_{2.5}

	PC 1	PC 2	PC 3	PC 4	PC 5	PC 6	PC 7
Cl ⁻	.969	-.111	-.008	.020	.009	.150	-.023
Mg	.961	.077	-.013	.044	.146	-.126	-.082
Br ⁻	.927	.165	.082	.005	-.011	-.061	-.068
F ⁻	.922	-.252	.192	-.023	-.001	.073	.040
K ⁺	.917	.173	.208	-.038	.018	.239	-.028
K	.832	.413	.227	-.038	.024	.218	.001
Mg ²⁺	.800	-.301	-.068	.087	.388	.046	.026
Cr	.795	.078	-.467	-.044	-.150	-.005	.082
Sr	.770	.281	.185	-.062	.010	-.367	-.025
Ca ²⁺	.676	.082	-.081	.346	-.076	.001	.557
Pb	.622	.604	.233	-.091	-.281	.243	-.085
Ba	.566	-.203	.409	.329	.281	.065	.241
Co	.465	.430	-.339	-.118	.204	-.197	.364
NH ₄ ⁺	-.002	.940	-.108	.030	.208	.118	-.011
SO ₄ ²⁻	-.166	.908	-.157	-.091	.178	.055	.137
Mn	.053	.905	.199	.019	-.042	.082	.198
NO ₃ ⁻	.002	.887	-.016	.185	.243	.122	-.181
Se	-.068	.843	-.023	.028	-.077	.068	.293
Ca	.199	.809	.260	.211	-.047	-.200	.049
V	-.205	.799	-.022	.110	-.114	-.104	-.238
Fe	.464	.784	.067	.107	-.163	-.126	.044
Cu	.164	.735	.118	-.093	-.412	-.152	-.083
Cd	.107	.686	.316	.136	-.441	.143	-.258
Tl	.255	.600	.007	-.159	.487	-.109	.205
Ni	.483	.592	-.327	-.072	.003	-.089	-.310
PO ₄ ³⁻	.411	.546	-.369	-.250	-.121	-.111	.399
OC	.526	.151	.796	-.082	-.102	-.053	-.012
EC	.567	-.091	.759	-.089	-.154	-.082	.114
Zn	.004	.261	.726	.200	.053	.416	.078
PCDD/Fs	.389	.162	.631	.116	.100	-.041	-.257
NO ₂ ⁻	-.154	.231	.049	.914	-.005	-.082	-.085
Al	.301	.205	.116	.859	.138	.056	.116
Na ⁺	.415	.032	.040	.196	.801	.048	-.130
As	.446	.270	.229	-.084	.023	.764	-.040
Eigenvalue	10.4	10.2	3.5	2.2	1.9	1.4	1.3
Variance (%)	30.5	30	10.3	6.4	5.5	4.1	3.8

고 염소화 PCDD/Fs 보다 미세입자로부터 더 빠르게 휘발되어 조대입자에 흡착이 일어나 더 휘발성이 강한 PCDD/F의 재분배가 발생하며, 또한 PCDD/F와 다른 크기의 입자 사이의 화학적 친화력의 차이

도 선행연구에서 보고된 입경별 동족체 분포패턴을 만드는 것으로 파악된다.³¹⁾

선행연구 결과들을 관련지어 고찰할 때 PCDD/Fs의 염소 수(1Cl~8Cl)에 따른 동족체별 액체증기압의

차이로 입경별 PCDD/Fs 동족체의 농도구배가 일어나는 것으로 판단되며, 이때 먼지 입경별 동족체의 분포는 분자량이 작은 저염화 PCDD/Fs는 상대적으로 큰 입경(>2.5 μm)에 더 많이 흡착되어 존재하고 반대로 고 염화 PCDD/Fs는 상대적으로 작은 입경(<2.5 μm)에 더 흡착되는 것으로 나타났다.

4. PCDD/Fs의 발생원 평가

PCDD/Fs와 미세먼지에 존재하는 다양한 오염물질 사이의 유사성을 파악하여 어떤 발생원의 영향을 받는지를 개략적으로 추정하기 위하여 요인분석을 수행하였다. 같은 요인에 의해 구분된 자료 군과 개별 항목의 결정계수를 검토하였으며 각 요인에 대한 주성분을 확인하였다.

Heo 등⁷⁾은 평택지역의 미세먼지 오염원으로 첫 번째는 SO₄²⁻, NH₄⁺ 등이 높게 기여 하는 2차 황산염 (Secondary sulfate) 오염원, 두 번째로는 NO₃⁻, NH₄⁺ 등이 주로 기여 하는 2차 질산염 (Secondary nitrate) 오염원, 세 번째는 OC (organic carbon), EC (elemental carbon), K⁺ 등이 주로 기여하는 생물상 연소(Biomass burning) 오염원으로 제시하였다. 이와 관련하여 특히 OC와 K⁺는 노천소각과 관련된 주요 추적자(marker species)로 평가된다.^{32,33)} 그리고 네 번째로는 Mg, Al, Ca, Fe, Ca²⁺ 등 토양 기원물질이 주로 기여 하는 토양 및 도로 비산과 관련된 오염원 등을 제시하였다.

본 연구의 요인분석 결과 고유값 1 이상인 요인이 7개로 전체 분산의 88.1%를 설명하였다(Table 5). 이 중 기여율(cumulative %)이 높은 3개의 요인이 총 분석자료의 70.8%를 설명하였다. PC-1은 토양 기원 성분요인으로 30.5%의 설명력을 보였으며, PC-2는 미세먼지 등 2차 생성물질들이 하나의 요인으로 30.0%의 설명력을 나타냈다. 특히 PM_{2.5}는 SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺ 등과 같은 성분으로 2차 생성과 높은 상관성이 있는 것을 확인했으며, PC-3는 생물상 연소 및 소각 등 연소요인으로 10.3%의 설명력을 나타냈다. PCDD/Fs는 소각 및 연소 등 탄소 구성 성분인 OC, EC와 같은 요인으로 그룹되었다. 따라서 본 조사지역은 도시 개발 및 건설, 도로 재 비산, 2차 생성 미세먼지, 노천소각이나 연소공정 등이 미세먼지의 주요 발생원으로 인식되며, PCDD/Fs의 경우 노천소각을 포함하는 생물상 연소 및 산업시설의 연소

공정인 것으로 판단되었다.

IV. 결 론

미세먼지는 입자의 크기가 매우 작아 물질 자체만으로도 호흡기와 심혈관계에 심각한 질환을 유발하여 급성 및 만성 조기 사망률을 증가시키는 것으로 알려져 있다. 또한, 미세먼지는 발생기원에 따라 다양한 유해성분 물질들이 흡착되어 화학적 조성에 따라 건강 영향은 증가된다.

본 연구결과 대기 중 입자상에 존재하는 PCDD/Fs, dl-PCBs 및 benzo(a)pyrene 등 PAHs의 농도는 미세입자(<2.5 μm)에서 높은 기여도를 나타냈으며, 이들 물질의 가스화 영향으로 대기 온도가 상승하면 미세입자에 흡착되었던 화합물질 중에서 증기압이 낮은 물질의 가스상 휘발로 미세입자의 기여도가 감소하며 먼지 중 화합물질의 농도가 감소하였다. 특히 PCDD/Fs는 염소 수(4Cl~8Cl)에 따른 액체증기압의 차이는 먼지 입경별 동족체의 분포특성을 나타냈다. 특히, 분자량이 작은 저 염화물(4Cl~5Cl)은 큰 입경(>2.5 μm)에 흡착되고, 고 염화물(6Cl~7Cl)은 작은 입경(<2.5 μm)에 더 흡착되는 것으로 나타났으며, 조사지역에서 소각 및 연소공정으로부터 PCDD/Fs 배출은 미세입자의 기여도를 증가시킬 수 있다.

따라서 잔류성과 독성을 지니는 PCDD/Fs, dl-PCBs 및 PAHs 등은 미세입자에 흡착 분율이 높아 발생원에 대한 관리가 필요하다. 최근 국내의 영향으로 미세먼지 환경기준 초과일수 및 나쁨일수가 증가하는 상황으로 건강 위해성 저감을 위해서는 미세먼지 성분분석 및 기여율 평가를 통해 발생원을 파악하여 맞춤형 관리가 필요하며, 미세먼지 진단 평가의 정확도를 향상시켜 지역별 미세먼지 예보로 노출을 최소화하는 방안이 필요하다.

오염물질의 대기 환경 중 거동을 평가하기 위해서는 다단계의 입경 분립장치를 이용하여 다양한 먼지 입경에 대한 분석이 필요하다. 본 연구에서는 대기 입자 중 극미량으로 존재하는 PCDD/Fs, dl-PCBs, PAHs의 검출을 위하여 TSP, PM₁₀, PM_{2.5} 입경 만을 대상으로 고용량 대기 시료 채취기를 각각 구분하여 먼지를 포집 평가함으로써 제한적 접근으로 다양한 먼지 입경에 대한 평가에 한계가 있다.

감사의 글

이 연구는 국립환경과학원의 시도보건환경연구원 국고보조사업의 지원을 받아 수행되었습니다(NIER-2019-01-03-001).

References

1. Abad E, Marínez K, Gustems L, Gómez R, Guinart X, Hernández I, et al. Ten years measuring PCDDs/PCDFs in ambient air in Catalonia (Spain). *Chemosphere*. 2007; 67(9): 1709-1714.
2. U.S. EPA. An inventory of sources and environmental releases of dioxin-like compounds in the U.S. for the year 1987, 1995, and 2000, EPA/600/P-03/002f, Final Report.
3. Kim DG, Choi KI, Lee DH. Gas-particle partitioning and behavior of dioxin-like PCBs in the urban atmosphere of Gyeonggi-do, South Korea. *Atmospheric Research*. 2011; 101(1-2): 386-395.
4. Kang CH, Hu CG. Continuous measurements of size separated atmospheric aerosol number concentration in background area. *Journal of Environmental Science International*. 2012; 21(4): 535-543.
5. Bigi AB, Ghermandi G. Particle number size distribution and weight concentration of background urban aerosol in a Po valley site. *Water Air Soil Pollution*. 2011; 220: 265-278.
6. Sharma DK, Rai J, Israil M, Singh P. Summer variations of atmospheric aerosol number concentration over roorkee, india. *J. of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*. 2003; 65: 1007-1019.
7. Heo JW, Kim CH, Min YK, Kim HJ, Sung YG, Kim JS, et al. Source apportionment of PM₁₀ at Pyeongtaek area using positive matrix factorization (PMF) model. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*. 2018; 34(6): 849-864.
8. Kim JS, Hong SM, Kim MS, Kim YY, Shin ES. Distribution characteristics of PM₁₀ and heavy metals in ambient air of Gyeonggi-do area using statistical analysis. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*. 2014; 30(3): 281-290.
9. Lee TJ, Huh JB, Yi SM, Kim SD, Kim DS. Estimation of PM₁₀ source contributions on three cities in the Metropolitan area by using PMF model. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*. 2009; 25(4): 275-288.
10. Lee HW, Lee TJ, Yang SS, Kim DS. Identification of atmospheric PM₁₀ Sources and estimating their contributions to the Yongin-Suwon bordering area by using PMF. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*. 2008; 24(4): 439-454.
11. Hwang I, Kim D. Source identification of ambient PM-10 using the PMF model. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*. 2003; 19(6): 701-717.
12. Bae HJ. Effects of short-term exposure to PM10 and PM2.5 on mortality in Seoul. *J Environ Health Sci*. 2014; 40(5): 346-354.
13. Lee WJ, Hwang MK, Kim YK. Health vulnerability assessment for PM10 in Busan. *J Environ Health Sci*. 2014; 40(5): 355-366
14. <https://air.gg.go.kr/default/esData.do?mCode=A010010000> [accessed 10 March 2020].
15. Jeong TU, Jeong SR, Song BJ, Kwon DM. Particle-bound polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans in the ambient air of Busan. *The Annual Report of Busan Metropolitan city Health & Environment*. 2012; 22(1): 266-273.
16. Zhang X, Zhu QQ, Dong SJ, Zhang HX, Wang XK, Wang M, et al. Particle size distributions of PCDD/Fs and PBDD/Fs in ambient air in a suburban area in Beijing, China. *Aerosol and Air Quality Research*. 2015; 15: 1933-1943.
17. Oh JE, Chang YS, Kim EJ, Lee DW. Distribution of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans (PCDFs) in different sizes of airborne particles. *Atmospheric Environment*. 2002; 36: 5109-5117.
18. Allen JO, Dookeran KM, Smith KA, Sarofim AF, Taghizadeh K, Lafleur AL. Measurement of polycyclic aromatic hydrocarbons associated with size-segregated atmospheric aerosols in Massachusetts. *Environ. Sci. Technol*. 1996; 30(3): 1023-1031.
19. Vecchi R, Marazzan G, Valli G, Ceriani M, Antoniazzi C. The role of atmospheric dispersion in the seasonal variation of PM1 and PM2.5 concentration and composition in the urban area of Milan (Italy). *Atmospheric Environment*. 2004; 38(27): 4437-4446.
20. Chrysikou LP, Samara CA. Seasonal variation of the size distribution of urban particulate matter and associated organic pollutants in the ambient air. *Atmospheric Environment*. 2009; 43(30): 4557-4569.
21. Čupr P, Flegrova Z, Francu J, Landlova L, Klanova J. Mineralogical, chemical and toxicological characterization of urban air particles. *Environ. Int*. 2013; 54(0): 26-34.
22. Kaupp H, Towara J, McLachlan MS. Distribution of

- polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans in atmospheric particulate matter with respect to particle size. *Atmospheric Environment*. 1994; 28(4): 585-593.
23. Poster DL, Hoff RM, Baker JE. Measurement of the particle-size distributions of semivolatile organic contaminants in the atmosphere. *Environmental Science and Technology*. 1995; 29: 1990-1997.
 24. Degrendele C, Okonski K, Melymuk L, Landlova L, Kukucka P, Cupr P, et al. Size specific distribution of the atmospheric particulate PCDD/Fs, dl-PCBs and PAHs on a seasonal scale: Implications for cancer risks from inhalation. *Atmospheric Environment*. 2014; 98: 410-416.
 25. McKay G. Dioxin characterisation, formation and minimisation during municipal solid waste (MSW) incineration: review. *Chemical Engineering Journal*. 2002; 86: 343-368.
 26. <http://publications.iarc.fr/publications/media/download/3227/d2da0170d5e3b5ecd5e8831a6477c8d04e70e82c.pdf> [accessed 20 December 2019].
 27. https://ec.europa.eu/environment/archives/air/pdf/annex_pah.pdf [accessed 20 December 2019].
 28. Heo JW, Kim DG, Song IK, Lee GW. Concentration and gas-particle partition of PCDD/Fs and dl-PCBs in the ambient air of Ansan area. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*. 2010; 26(5): 517-532.
 29. Kaupp H, McLachlan MS. Atmospheric particle size distributions of PCDD/Fs and PAHs and their implications for wet and dry deposition. *Atmospheric Environment*. 1998; 33: 85-95.
 30. Kurogawa Y, Takahiko M, Matayoshi N, Satoshi T, Kazumi F. Distribution of PCDD/Fs in various sizes of airborne particles. *Chemosphere*. 1998; 37: 2161-2171.
 31. Chao MR, Hu CW, Ma HW, Chang-Chien GP, Lee WJ, Chang LW, Wu KY. Size distribution of particle-bound polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans in the ambient air of a municipal-incinerator. *Atmospheric Environment*. 2003; 37: 4945-4954.
 32. Kang CM, Lee HS, Kang BW, Lee SK, Sunwoo Y. Chemical characteristics of acidic gas pollutants and PM_{2.5} species during hazy episodes in Seoul, South Korea. *Atmospheric Environment*. 2004; 38(28): 749-4760.
 33. Park SS, Kim YJ. Source contributions to fine particulate matter in an urban atmosphere. *Chemosphere*. 2005; 59(2): 217-226.

<저자정보>

김동기(환경연구원), 우정식(환경연구원),
 김용준(환경연구사), 정해은(환경연구사),
 박주은(공무직), 조덕희(환경연구사),
 문희천(환경연구원), 오조교(환경연구원)