

논문

# 강원도 춘천에서 측정한 가을과 겨울철 입자상 유기탄소 및 PAHs의 농도 특성

## Characteristics of Atmospheric Particulate Organic Carbon and PAHs in Chuncheon during Cold Season

이효원, 강경구<sup>1)</sup>, 박수빈<sup>2)</sup>, 한영지<sup>3),\*</sup>, 배민석<sup>4)</sup>

강원대학교 농업생명과학대학 환경융합학부 에코환경과학전공

<sup>1)</sup>국립환경과학원 기후대기연구부 대기공학연구과,

<sup>2)</sup>연세대학교 의과대학 환경공해연구소,

<sup>3)</sup>강원대학교 농업생명과학대학 환경융합학부

<sup>4)</sup>목포대학교 공과대학 환경공학과

접수일 2022년 10월 11일

수정일 2022년 11월 3일

채택일 2022년 11월 3일

Received 11 October 2022

Revised 3 November 2022

Accepted 3 November 2022

\*Corresponding author

Tel : +82-(0)33-250-8579

E-mail : youngji@kangwon.ac.kr

Hyo-Won Lee, Kyoung-Gu Kang<sup>1)</sup>, Su-Bin Park<sup>2)</sup>, Young-Ji Han<sup>3),\*</sup>, Min-Suk Bae<sup>4)</sup>

Department of Environmental Science, School of Natural Resources and Environmental Science, Kangwon National University, Chuncheon, Gangwon-do, Republic of Korea

<sup>1)</sup>Air Pollution Engineering Division, Climate and Air Quality Research Department, National Institute of Environmental Research, Incheon, Republic of Korea

<sup>2)</sup>Institute of Environmental Research, Yonsei University, Seoul, Republic of Korea

<sup>3)</sup>Department of Environmental Science, School of Natural Resources and Environmental Science, Kangwon National University, Chuncheon, Gangwon-do, Republic of Korea

<sup>4)</sup>Department of Environmental Engineering, College of Engineering, Mokpo National University, Muan-gun, Jeollanam-do, Republic of Korea

**Abstract** This study was conducted to identify the concentration characteristics of organic carbon (OC) and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in PM<sub>2.5</sub> in Chuncheon, Korea. Average PM<sub>2.5</sub> concentration was 25.1 ± 15.1 μg m<sup>-3</sup>, and high PM<sub>2.5</sub> episodes exceeding 35 μg m<sup>-3</sup> were observed in December and January. OC/EC ratio at the study site was relatively higher than in other region, and the contribution of secondary OC (SOC) to total OC increased as OC/PM<sub>2.5</sub> fraction increased. In addition, SOC concentration increased as wind speed decreased. These results suggest that low wind speed in this city causes atmospheric stagnation and possibly promotes SOC formation. Average ΣPAHs concentration was 16.7 ng m<sup>-3</sup>, showing clear seasonal variation with much higher values in December and January than in October. Pyrene generally showed the highest contribution; however, PAHs with high molecular weight including Indeno[1,2,3-c,d]pyrene, which are predominantly emitted from mobile combustion, were enhanced during high ΣPAHs concentration episodes. Diagnostic ratios of PAHs determined that combustion of solid-fuel such as coal and biomass was important throughout the study period; however, some samples showed the significant effect of mobile source.

**Key words:** PM<sub>2.5</sub>, Organic carbon, Polycyclic aromatic hydrocarbon, Secondary organic carbon, Diagnostic ratio

### 1. 서론

PM<sub>2.5</sub>는 자연적 및 인위적 배출원에서 기원하는 1

차 입자뿐만 아니라 대기 중에서 생성되는 2차 입자를 포함하기 때문에 매우 다양한 성분으로 구성되어 있다. PM<sub>2.5</sub>의 주요 구성성분은 질산염, 황산염, 암모

늄염을 포함하는 무기이온성분과 유기탄소 (organic carbon, OC) 및 무기탄소 (elemental carbon, EC)이며, 이 외에 미량으로 금속성분 등이 존재한다. 탄소성분 중 EC는 불완전 연소에 의해 대기 중으로 직접 배출되는 1차 오염물질인 반면, OC는 인위적 또는 자연적 배출원에서 직접 배출되는 1차 유기탄소(primary organic carbon, POC)와 대기 중에서 산화반응을 거쳐 생성되는 2차 유기탄소(secondary organic carbon, SOC)로 구분된다(Sandrini *et al.*, 2014). OC는 매우 다양한 화학종으로 이루어져 있으며, 일부는 독성이 높은 것으로 알려져 있다. 다환방향족탄화수소(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)는 2개 이상의 벤젠고리를 가지며 수소와 탄소로 이루어진 유기화합물이다. PAHs는 주로 석탄, 석유와 같은 화석연료 또는 목재의 불완전 연소 등에서 배출되며 세포 변성 및 발암성이 있다고 알려진 대표적인 대기오염물질이다. 미국 환경청(United States Environmental Protection Agency, EPA)에서는 인간에게 해로운 영향을 미치는 188개 유해대기물질 중 16개의 PAHs를 포함시켰다(Shin *et al.*, 2022; Gao *et al.*, 2021). 특히 benzo[a]pyrene은 PAHs 중 가장 강한 독성을 나타내며, 국제암연구소(International Agency for Research on Cancer: IARC)에 의해 benzo[a]anthracene, chrysene, indeno[1,2,3-c,d]pyrene, benzo[b]fluoranthene 등의 PAHs는 인간과 동물에게 암을 유발하는 물질로 분류되었다. PAHs는 준휘발성 유기화합물(semi-volatile organic compounds)로 가스 또는 입자 상태로 대기 중에 존재한다. 저분자량 PAHs는 높은 증기압으로 인해 주로 가스상으로 존재하는 반면 고분자량 PAHs는 입자 상태로 존재하려는 경향이 강하다. PAH의 가스-입자 분배는 온도와 대기 중 입자상 물질의 농도에 의해 크게 영향을 받는다(Sun *et al.*, 2022; Yu *et al.*, 2021; Wang *et al.*, 2013). 배출원에 따라서도 주로 배출되는 PAH 화학종이 다른데, 일반적으로 5개 이상의 고리를 가지는 고분자량의 PAH 성분들의 농도가 높으면 자동차 배출의 영향이 크고, 석탄 등 고체연료 연소에서는 2, 3개의 벤젠고리를

가진 저분자량의 PAHs가 다량으로 배출된다고 알려져 있다(Grmasha *et al.*, 2020; Kang *et al.*, 2020; Han *et al.*, 2019; Lee *et al.*, 2010).

선행연구에 의하면, 서울의 대기 중 PAHs 농도는 2002년 26.6 ng/m<sup>3</sup>에서 2018년 5.6 ng/m<sup>3</sup>로 크게 감소하였다(Kang *et al.*, 2020). 겨울철 PAHs의 주요 배출원은 석탄, 바이오매스 연소 및 자동차 배기가스의 의한 영향으로 분석되었으며, 그 중 석탄과 바이오매스 연소는 서울 외각 지역에서의 장거리 이동에 의한 것으로 판단되었다(Kang *et al.*, 2020). 국외의 경우, 중국의 Beijing과 Shanghai 지역에서는 과거 겨울철 200 ng/m<sup>3</sup> 이상의 PAHs 농도를 보였으며, 시간이 지날수록 감소 추세를 보이고 있다(Hayakawa *et al.*, 2020). Beijing의 PAHs 겨울철 배출원은 주로 석탄 난방에 의한 영향이 컸고, Shanghai의 경우 자동차 배기가스에 의한 기여도가 높은 것으로 분석되었다(Hayakawa *et al.*, 2020).

강원도 춘천은 다른 지역에 비해 중대규모 오염원이 적으며, 청정 도시로 알려져 있어 미세먼지에 대한 연구가 부족한 실정이다. CAPSS 자료에 따르면, 2019년 기준 춘천시의 PM<sub>2.5</sub> 배출량은 약 230톤(비산먼지, 생물성 연소 포함)으로 우리나라 주요 도시나 강원도 타 지역에 비해 매우 낮았다. 그럼에도 불구하고 춘천시의 대기 중 PM<sub>2.5</sub> 농도는 가을과 겨울철에 지속적으로 높은 측정값을 보이고 있다(Cha *et al.*, 2020; Byun *et al.*, 2018). 우리나라에서 운영하는 유해대기물질측정망에서 상시 측정되는 9종류 중 다환방향족 탄화수소인 benzo[a]pyrene은 WHO가 지정한 1군 발암물질로서, 국내에서 보고되는 농도가 해외 기준을 초과하는 비율이 매우 높게 나타났다. 국내에는 해당 오염물질의 배출허용기준이나 대기환경기준이 없으며 영국의 경우 대기환경기준 연평균 농도가 0.25 ng/m<sup>3</sup>, WHO 기준 0.12 ng/m<sup>3</sup>였다. 2016년의 benzo[a]pyrene 농도는 과거에 비해 감소하였으나, 해외 기준을 초과하는 지점이 많았다. 대기환경연보에 의하면, 춘천 석사동 측정소는 우리나라의 32개 소 유해대기측정소 중 가장 높은 연평균 농도를 나타

였으며, 특히 2016년에 측정된 최고농도값은 4.01 ng m<sup>3</sup>으로 다른 유해대기측정소보다 약 4배 높은 농도값을 나타냈다.

본 연구에서는 춘천에서 나타나는 가을 및 겨울철 고농도 PM<sub>2.5</sub>의 원인을 파악하기 위해 유기탄소 및 PAHs의 특성을 알아보고자 하였다. 춘천의 PAHs 농도 수준과 주요 배출원은 우리나라 및 동아시아의 타 지역에서 수행한 연구 결과와 비교하여, 춘천의 특성을 제시하고자 하였다. 연구기간은 PM<sub>2.5</sub>와 PAHs 고농도가 빈번하게 나타나는 가을과 겨울로 특정하였다. 대도시 및 산업도시와는 다른 소도시 및 거주도시에서의 PAHs 특성 파악 결과는 향후 PAHs 농도 관리 대책을 수립하는 데 기여할 것으로 판단된다.

## 2. 실험 방법

### 2.1 시료채취

PM<sub>2.5</sub>의 시료는 강원도 춘천시에 위치한 강원대학교 자연과학대학 2호관 옥상에서 16.7 L/min 유량의 채취기(FH-95, Andersen) 3대 이용하여 채취하였다(PM<sub>2.5</sub> 질량농도 측정용, OC 및 EC 분석용, PAHs 분석용). 2018년 10월 2일부터 2019년 1월 3일까지는 71시간 동안 채취하였고, 2019년 1월 5일부터 1월 30일까지는 24시간으로 채취하였다. PM<sub>2.5</sub> 질량농도의 경우 37 mm Teflon 필터를 사용하였고, OC, EC 및 PAHs 채취를 위해서는 47 mm 석영필터(Whatman, 2.2 μm)를 사용하였다. 사용 전 석영필터는 furnace를 이용하여 500°C에서 24시간 동안 전처리하여 잔존할 수 있는 유기물을 제거하였다. 전처리한 필터는 알루미늄 호일로 감싸 햇빛을 차단한 상태에서 시료 채취 전까지 -20°C 냉동고에서 보관하였다. 시료 채취 전과 후, 필터는 정전기 제거기(2U500)를 사용하여 정전기를 제거한 후 검출한계가 10<sup>-5</sup>인 화학저울(CP255D Sartorius)로 무게를 정량하였다. PM<sub>2.5</sub>를 채취한 필터는 패트리디쉬에 넣어 데시케이터에서 12시간 이상 보관 후 중량을 재어, 채취 전후 질량 차

이를 이용하여 PM<sub>2.5</sub>의 농도를 계산하였다. 무게를 잴 필터는 추출 전까지 냉동보관 하였다.

### 2.2 시료추출

냉동보관 되어있던 석영필터는 실험용 가위를 이용해 6등분하여 갈색 엠베에 넣고 5 mL의 아세토나이트릴(acetonitrile: ACN)를 넣은 후, 초음파추출기(PowerSonic, 520, 화신테크)를 사용하여 30분간 추출을 2회 반복하였다. 추출된 용액은 0.2 μm pore size를 가진, PTFE syringe filter와 Teflon syringe를 사용하여 여과한 후, 질소농축기(Turbo storm, SINCO)를 사용하여 1 mL가 되도록 농축하였다. 농축된 시료는 2 mL 바이얼에 옮겨 담고 ACN 0.5 mL를 사용하여 린스한 후, mini-Vap 6-port(SUPELCO) 질소 농축기를 사용하여 최종 0.5 mL까지 농축하였다.

### 2.3 시료분석

본 연구에서는 Anthracene (Ant), Fluorene (Flu), Phenanthrene (Phe), Fluoranthene (Flt), Pyrene (Pyr), Benzo[a]anthracene (BaA), Chrysene (Chr), Benzo[b]fluoranthene (BbF), Benzo[k]fluoranthene (BkF), Benzo[a]pyrene (BaP), Dibenz[a,h]anthracene (DaA), Benzo[ghi]perylene (BgP), Indeno[1,2,3-c,d]pyrene (IcP)을 포함하는 13가지 PAH 종을 분석하였다. 농축 후 정성 및 정량을 위하여 Waters 사의 HPLC-UV/FLD (Waters 996 PDA @ 254 nm/Waters 2475 FLD @ 340 nm (ex), 425 nm (em))를 사용하였다. 13가지 PAHs 중 Flu, Phe, Ant, Chr은 UV를 사용하여 분석하였으며, Flt, Pyr, BaA, BbF, BkF, BaP, DaA, IcP, BgP는 FLD를 사용하여 분석하였다(NIOSH 5506; Sen *et al.*, 2018) (표 1). HPLC column으로는 ZORBAX Eclipse PAHs (4.66 × 250 mm, 5 μm particle size, Agilent)를 사용하였다. HPLC의 이동상 용액은 ACN과 초순수를 사용하였다. 1 mL/min의 유속으로 5분 동안 ACN과 초순수 비율을 50 : 50으로 흘려준 후, 25분까지 ACN의 비율이 50%에서 100%가 되도록 gradient elution 한 후, ACN 비율이 100%인 상태

**Table 1.** QA/QC for PAHs analysis.

Compound	R <sup>2</sup>	DL (ng)	RSD (%)	Recovery (%)	Detector
Fluoranthene (Flt)	0.9966	0.09	1.9	77.9	FLD
Pyrene (Pyr)	0.9969	0.11	2.1	81.3	FLD
Benz[a]anthracene (BaA)	0.9970	0.07	1.6	76.5	FLD
Benzo[b]fluoranthene (BbF)	0.9963	0.03	2.0	76.0	FLD
Benzo[k]fluoranthene (BkF)	0.9963	0.04	1.3	76.0	FLD
Benzo[a]pyrene (BaP)	0.9960	0.12	1.7	68.1	FLD
Dibenzo[a,h]anthracene (DaA)	0.9948	0.18	1.8	83.0	FLD
Benzo[ghi]perylene (BgP)	0.9969	0.48	1.4	83.1	FLD
Indeno[1,2,3-cd]pyrene (IcP)	0.9905	0.56	4.5	92.1	FLD
Anthracene (Ant)	0.9972	0.47	1.3	87.9	UV
Chrysene (Chr)	0.9925	0.25	1.3	94.3	UV
Phenanthrene (Phe)	0.9943	0.42	0.4	74.2	UV
Fluorene (Flu)	0.9962	0.47	2.3	96.4	UV

에서 20분간 흘려주었다. 그후 5분 동안 ACN의 비율이 100%에서 50%가 되도록 gradient elution 해주고, 10분 동안 유지시켰다.

OC와 EC는 NIOSH (National institute of Occupational Safety and Health) method 5040을 기초로한 TOT (Thermal Optical Transmittance) 방법으로 분석하였다 (Oh *et al.*, 2018). 간략히, 1.5 cm<sup>2</sup> 시료면적을 탄소분석기 (Carbon Aerosol Analyzer, Sunset laboratory Inc., USA)에 주입하여, 고온 (OC; 840°C & EC; 870°C)에서 산소 유무에 따라 OC 및 EC를 각각 CO<sub>2</sub>로 산화시키고, 다시 CH<sub>4</sub>으로 최종 환원하여 불꽃이온화검출기에 의해 정성, 정량 분석하였다. 레이저 투과율을 이용하여 분석된 열광학분포를 OC 및 EC로 광분리하였다. 외부표준물질인 이당 (sucrose)에 의해 내부 표준물질 (CH<sub>4</sub>)의 정확도를 확인하였다. 그 결과, TC의 정확도는 1.0% 이내 분석되었으며, 전체 시료의 10%를 재차 분석하여 정밀도를 유지하였다.

#### 2. 4 정도관리(QA/QC)

PAH의 검정곡선은 5개의 다른 농도로 희석된 표준용액 (5~300 ppb)을 이용하여 작성하였다. 각 분석대상물질에 대한 검정곡선의 R<sup>2</sup> 값은 표 1에 제시하였다. 검출한계 (detection limit: DL)는 검정곡선 최소값 (0.1 ng)을 5번 반복 측정하여 얻은 농도의 표준편

차에 3배를 곱하여 구하였다. 각 분석대상물질의 상대표준편차 (relative standard deviation: RSD)는 동일한 시료를 연속적으로 5회 측정하여 얻은 농도의 표준편차에 평균을 나누어 계산하였다. 회수율은 공필터에 10 ng의 PAHs 표준용액을 첨가하여 시료와 동일한 방법으로 추출, 농축, 분석하여 구하였으며, 각 화합물의 회수율은 EPA의 권장 회수율인 60~120%의 범위 내로 나타났다 (표 1). 현장 공시료 (field blank)는 8번 분석하였으며 분석대상물질은 검출되지 않았다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3. 1 PM<sub>2.5</sub> 및 탄소성분 농도 변이

2018년 10월 5일부터 2019년 1월 30일까지 채취한 총 시료 개수는 39개이다. 연구기간 동안 PM<sub>2.5</sub>의 평균 농도는 25.1 µg/m<sup>3</sup>로 나타났으며, 1월에 가장 높은 평균 농도 (35.9 ± 21.8 µg/m<sup>3</sup>)를, 10월에 가장 낮은 평균 농도 (12.6 ± 5.7 µg/m<sup>3</sup>)를 나타냈다. 일평균 대기환경기준 농도인 35 µg/m<sup>3</sup>를 초과한 시료는 7개로, 모두 12월과 1월에 나타났다. 연구기간 중 가장 높은 PM<sub>2.5</sub> 농도는 97.8 µg/m<sup>3</sup>로 측정되었으며, 2019년 1월 14일에 측정되었다. 같은 날 본 연구의 측정 사이

트에서 약 1.5 km 떨어진 도시대기측정소(춘천시 중앙로)에서 보고된 PM<sub>10</sub> 농도 역시 142 µg/m<sup>3</sup>으로 매우 높은 값을 나타냈다. 연구기간 중 황사가 발생한 날은 2018년 11월 28일이었으며, PM<sub>2.5</sub>와 PM<sub>10</sub>의 농도는 각각 24.3 µg/m<sup>3</sup> 및 76.7 µg/m<sup>3</sup>로 PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> 비율이 약 31.6%에 불과하였다.

측정기간 동안 OC와 EC의 농도는 각각 6.3±2.9 µg/m<sup>3</sup> 및 1.0±0.4 µg/m<sup>3</sup>로 측정되었으며, OC/EC 비율의 평균은 6.6±2.8 (average of ratios)로 나타났다. OC와 EC 모두 1월에 가장 높은 농도를 보였고 10월에 가장 낮은 농도를 보였지만, PM<sub>2.5</sub>만큼 두드러진 월별 변이는 나타내지 않았다(표 2). PM<sub>2.5</sub> 중 OC가 차지하는 비율은 26.5%로 나타났으며, 9%~59%까지 넓은 범위를 보였다.

본 연구에서 측정된 PM<sub>2.5</sub>에 대한 OC의 기여율과 OC/EC 비율은 전반적으로 우리나라 타 지역이나 국외 지역보다 높게 나타났다. 서울, 인천, 중국, 이란 등의 타 지역의 결과와 비교하였을 때, 본 연구에서 측정된 OC/PM<sub>2.5</sub>는 상대적으로 높게 관측되었다(표 3). 본 연구 기간이 가을과 겨울철에 국한되어 직접적

**Table 2.** Summarized results for PM<sub>2.5</sub> and its carbonaceous compounds (Units of PM<sub>2.5</sub>, OC, and EC are µg/m<sup>3</sup> while concentration of ΣPAHs is in ng/m<sup>3</sup>).

Month	PM <sub>2.5</sub>	OC	EC	OC/EC	ΣPAHs
Oct.	12.6	4.3	0.67	6.4	4.12
Nov.	22.9	6.3	0.77	8.2	11.8
Dec.	25.9	6.8	0.90	7.6	25.8
Jan.	35.9	7.2	1.3	5.4	20.9
Average	24.3	6.2	0.9	6.9	15.7

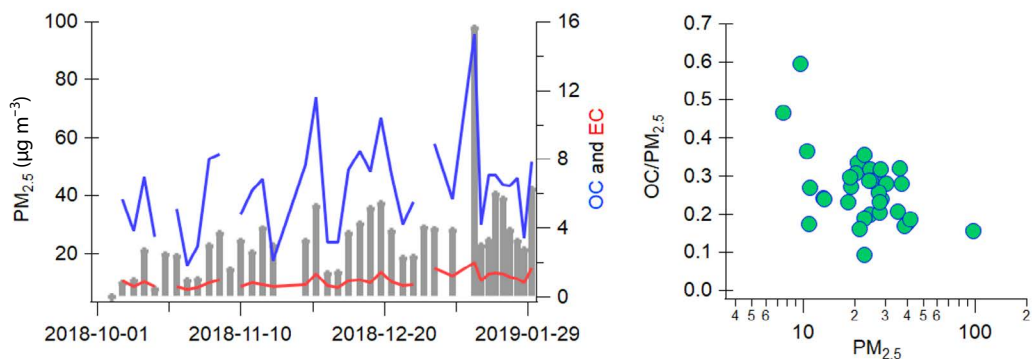
**Table 3.** Comparisons of concentrations of PM<sub>2.5</sub>, OC, and EC with those reported in other studies.

Location	Sampling period	PM <sub>2.5</sub> (µg/m <sup>3</sup> )	OC (µg/m <sup>3</sup> )	EC (µg/m <sup>3</sup> )	OC/PM <sub>2.5</sub> (%)	EC/PM <sub>2.5</sub> (%)	OC/EC	ΣPAHs (ng/m <sup>3</sup> )	Ref.
Chuncheon	2018.10~2019.01	25.1	6.3	1.0	25.3	3.8	6.6	16.7	This study
Seoul	2018.01~2018.12	23	4	0.7	17.4	3.0	5.7	5.6	Kang <i>et al.</i> , 2020
Incheon	2009.06~2010.05	41.9	7.9	1.7	18.8	4.1	4.5	9.7	Choi <i>et al.</i> , 2012
China	2017.11~2018.02	53.6	12	6.3	22.4	11.8	1.9	11.0	Wei <i>et al.</i> , 2019
Iran	2014.02~2015.02	38.4	7.8	3.6	20.3	9.4	2.2	10.1	Arhami <i>et al.</i> , 2018

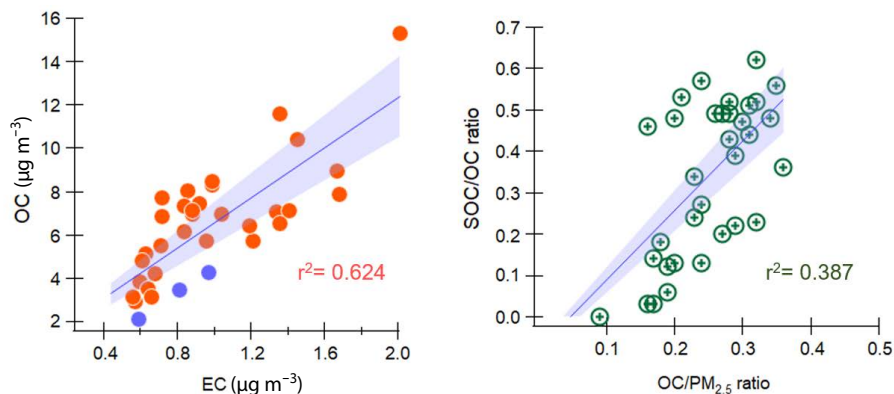
인 비교를 하기는 어려우나, 일반적으로 여름철 2차 OC의 생성으로 PM<sub>2.5</sub>에 대한 OC의 기여율이 높아진다는 것을 고려하면(Cho *et al.*, 2016) 춘천의 OC 농도 및 PM<sub>2.5</sub>에 대한 기여율은 상당히 높은 것으로 판단된다. 반면 EC의 농도는 낮은 편으로 나타났고(표 3), 따라서 OC/EC의 비율은 춘천에서 상당히 높게 관측되었다. 차량 연소 배출의 경우 OC/EC의 비율이 1.0~4.2 정도로 낮고 석탄연소 배출의 경우 2.5~10.5이며 생체소각의 경우 약 7.7이라는 것을 고려하면(Choi *et al.*, 2022; Haque *et al.*, 2019; Cheng *et al.*, 2010; Sandradewi *et al.*, 2008; Schauer *et al.*, 2002, 2001), 춘천은 자동차의 기여율이 낮거나 가을 및 겨울철임에도 불구하고 2차 OC가 중요하다는 것을 시사한다.

반면 PM<sub>2.5</sub>의 고농도가 빈번하게 나타난 1월에 OC/PM<sub>2.5</sub>의 비율은 가장 낮았으며(21.5%). PM<sub>2.5</sub>의 농도가 가장 낮은 10월에 가장 높은 OC/PM<sub>2.5</sub> 비율(35.3%)을 나타냈다. PM<sub>2.5</sub>의 농도와 OC/PM<sub>2.5</sub>의 비율 사이에 유의한 음의 상관성( $r=0.50$ ,  $p\text{-value} < 0.01$ )이 존재하였으며(그림 1), 이는 가을과 겨울철 춘천에서 고농도 PM<sub>2.5</sub>가 발생했을 때 OC의 기여도는 감소했다는 것을 의미한다. 종합하면, 우리나라 타 지역 및 국외와 비교했을 때 춘천의 PM<sub>2.5</sub> 농도에 대해 OC가 일관되게 중요한 영향을 미치지만, 특별히 고농도의 PM<sub>2.5</sub>가 나타났을 때는 PM<sub>2.5</sub>에 대한 OC의 기여율이 감소한다는 것을 의미한다.

전체 연구기간 중 OC와 EC의 상관관계는 높게 나타났다( $r^2=0.624$ ) (그림 2의 왼쪽). 가장 낮은 OC/EC 비율을 보인 4개의 시료에 대한 평균 OC/EC 비



**Fig. 1.** PM<sub>2.5</sub>, OC, and EC concentrations during the study period (left) and the correlation between PM<sub>2.5</sub> and the percentage of OC to PM<sub>2.5</sub> (right). In right panel, PM<sub>2.5</sub> is expressed in logarithmic scale because one sample (obtained in January 14, 2019) was particularly high (97.8 μg/m<sup>3</sup>).



**Fig. 2.** Correlation between EC and OC concentrations (left) and the relationship between SOC/OC ratio and OC/PM<sub>2.5</sub> ratio (right). In left figure, the blue points represent the samples used to estimate the (OC/EC)<sub>pri</sub> ratio. Please note that two PM<sub>2.5</sub> samples less than 8 μg/m<sup>3</sup> were excluded in this data analysis.

을 1차 배출원에서 배출된 (OC/EC)<sub>pri</sub>로 가정한 후, Turpin and Huntzicker (1995)가 처음 제시한 아래의 식(1), (2)로 1차 OC (POC)와 2차 OC (SOC)를 계산하였다.

$$POC = a + EC \times \left( \frac{OC}{EC} \right)_{pri} \quad (1)$$

$$SOC = OC_{tot} - POC \quad (2)$$

여기서, POC, SOC 그리고 OC<sub>tot</sub>은 각각 1차 OC, 2차 OC, 그리고 측정된 OC의 농도를 나타내며, (OC/EC)<sub>pri</sub>는 연소배출원에서 배출된 OC/EC 비율을 나타

낸다. 식(1)의 *a*는 비연소 배출원에서 배출된 OC를 의미하는데, 본 연구 기간이 가을과 겨울철이기 때문에 비연소 배출원, 즉 자연 배출원에서 배출된 OC는 무시하였다(Kim *et al.*, 2015; Castro *et al.*, 1999; Turpin and Huntzicker *et al.*, 1995). 본 연구에서 (OC/EC)<sub>pri</sub>는 타 연구보다 다소 높은 4.1로 계산되었는데(Yoo *et al.*, 2022; Wu and Yu *et al.*, 2016; Lin *et al.*, 2009), 타 도시에 비해 춘천의 차량 연소에 의한 기여율이 낮기 때문으로 판단된다(Choi *et al.*, 2022; Park *et al.*, 2016). 추정된 POC와 SOC의 농도는 각각  $4.0 \pm 1.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  및  $2.4 \pm 1.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 나타나, POC가 전체

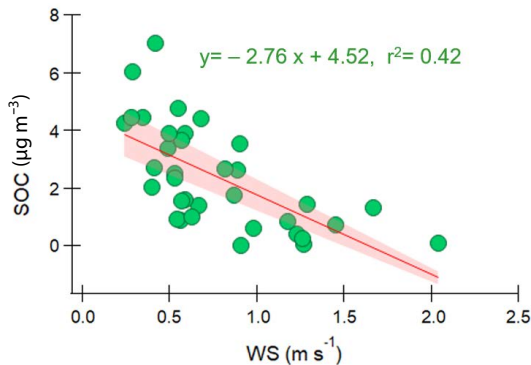


Fig. 3. Negative correlation of WS on SOC concentration.

OC의 약 63%를 차지하였다. 고농도  $PM_{2.5}$ 가 측정된 7개의 시료 중 4개 시료의 POC/OC 비율은 47%~57%로 나타난 반면, 2019년 1월에 관측된 나머지 3개의 고농도  $PM_{2.5}$  이벤트에 대한 POC/OC 비율은 82%~88%로 나타나 뚜렷한 차이를 보였다. 또한  $PM_{2.5}$ 에 대한 OC의 기여율이 높을 때는 POC가 아닌 SOC의 기여도가 큰 것으로 나타났다(그림 2의 오른쪽). 즉, OC의 농도가  $PM_{2.5}$ 의 농도에 큰 영향을 미치는 경우에는 POC가 아닌 SOC가 주요 원인인 것으로 파악된다.

또한 본 연구에서 SOC 농도는 풍속(WS)과 뚜렷한 음의 상관성( $r=0.65$ ,  $p\text{-value} < 0.001$ )을 나타냈다(그림 3). 풍속은  $PM_{2.5}$ , OC, EC 및 POC와는 모두 유의한 상관성이 나타나지 않았으며 유일하게 SOC와 뚜렷한 음의 상관성이 나타났다. 이 결과는 풍속이 낮을 때 SOC 생성이 활발해진다는 것을 의미하며, 선행연구에서도 살펴볼 수 있다(Liu *et al.*, 2020). 춘천은 분지 지형으로 형성되어 있어 연중 풍속이 낮은 도시이며, 본 연구기간 동안의 평균 풍속은 0.8 m/s에 불과하였다. 같은 기간(2018년 10월 5일~2019년 1월 30일)의 서울과 인천의 평균 풍속은 각각 1.6 m/s, 3.0 m/s로 나타났다(기상청 자료). 즉, 타 지역에 비해 춘천의 낮은 풍속은 SOC의 생성을 촉진시키며 이로 인해 춘천의 높은 OC/ $PM_{2.5}$ (표 2)가 관측되는 것으로 판단된다. 반면, 본 연구에서 SOC의 농도는 습도와는 관련이 없는 것으로 관측되었다.

### 3.2 PAHs의 농도 특성

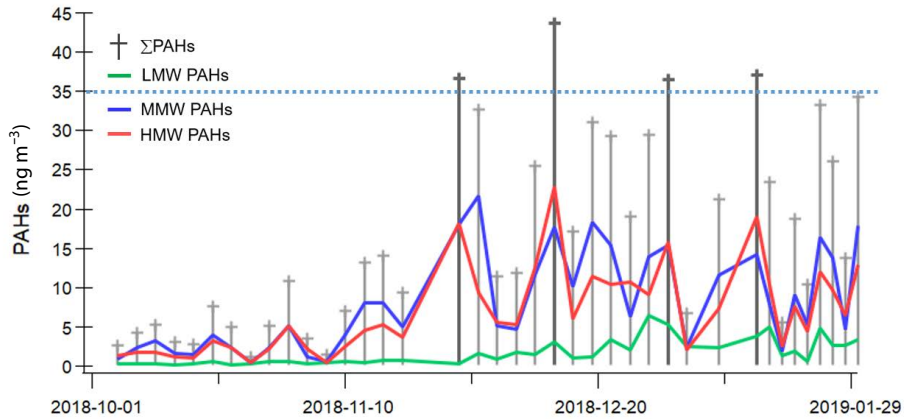
연구기간 동안의  $\Sigma$ PAHs 농도 평균은  $16.7 \pm 12.5$  ng/ $m^3$ 로 관측되었다. 월별  $\Sigma$ PAHs의 농도 변이는  $PM_{2.5}$ 나 OC의 월별 변이에 비해 크게 나타났다. 10월의 평균  $\Sigma$ PAHs의 농도는 4.1 ng/ $m^3$ 에 불과하였으나 12월과 1월에는 각각 25.8 ng/ $m^3$  및 20.9 ng/ $m^3$ 으로 크게 증가하였다(표 2). 춘천의 PAHs 농도는 타 지역과 비교하여 비교적 높은 것으로 나타났으나(표 3), PAHs 농도의 계절변이가 크다는 점을 고려하면 춘천에서 유의하게 높은 농도가 측정되었다고는 할 수 없다.

벤젠고리가 3개 이하인 종을 저분자량(low molecular weight: LMW), 4개인 종은 중분자량(middle molecular weight: MMW), 그리고 5~6개인 종은 고분자량(high molecular weight: HMW) PAHs라고 정하였을 때, 전체 연구기간 동안 MMW PAHs가 가장 높은 농도를 나타냈으며  $\Sigma$ PAHs의 약 48.2%를 차지하였다(그림 4). 특히 Pyr의 농도는 전체 연구기간 동안  $5.0 \pm 4.1$  ng/ $m^3$ 으로 가장 높게 나타났다. HMW PAHs는 약 41.6%를 차지하였고(그림 4) HMW PAHs 중에서는 IcP가 가장 높은 농도( $3.3 \pm 3.8$  ng/ $m^3$ )를 보였다. LMW PAHs는  $\Sigma$ PAHs의 10.1%에 불과하였는데, 이는 LMW PAHs의 상대적으로 높은 증기압으로 인해 가스-입자 분배계수(partition coefficient,  $K_p$ )가 낮아서(Lee and Lane *et al.*, 2010) MMW PAHs나 HMW PAHs에 비해 입자로 존재하는 비율이 낮은 것으로 판단된다(Jung *et al.*, 2011).  $K_p$ 는 식(3)과 같이 정의되며(Yamasaki *et al.*, 1982), 온도와 관계는 식(4)로 표시할 수 있다(Pankow *et al.*, 1991).

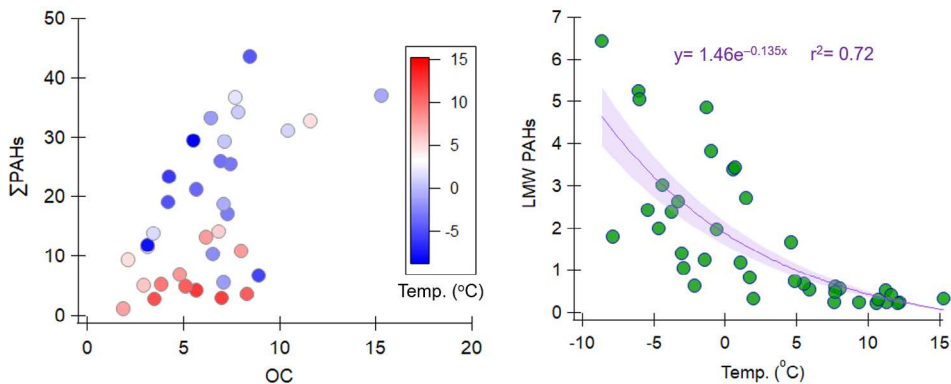
$$K_p = \frac{C_p/TSP}{C_g} \quad (3)$$

$$\log_{10} K_{p,T} = \frac{A}{T} + B \quad (4)$$

여기서,  $C_p$ 와  $C_g$ 는 각각 입자상과 가스상으로 존재하는 PAH의 농도를 일컬으며, TSP (total suspended particle)는 대기 중 총 부유분진의 농도이다.  $K_p$ 의 단



**Fig. 4.** Concentration variations of LMW, MMW, and HMW PAHs with  $\Sigma$ PAHs. Blue dotted line indicates  $\Sigma$ PAHs concentration of  $35 \text{ ng m}^{-3}$ , and four bold  $\Sigma$ PAHs lines represent high  $\Sigma$ PAHs episode.



**Fig. 5.** Correlation between OC and  $\Sigma$ PAHs with temperature change (left) and the effect of temperature on LMW PAHs concentration (right). The unit of PAHs is  $\text{ng m}^{-3}$ .

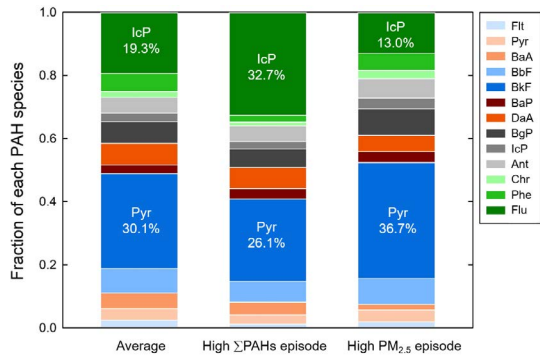
위는  $\text{m}^3/\mu\text{g}$ 이다. 식 (4)에서 A는 엔탈피(enthalpy) 변화의 함수이며, B는 상수이다. 전체 연구기간 동안 OC에 대한  $\Sigma$ PAHs의 분율은 약 0.27%로 나타났으며 OC와  $\Sigma$ PAHs 간에는 유의한 상관성이 나타났다 ( $r=0.56$ ,  $p\text{-value}<0.001$ ). 그러나, 온도에 따라 OC에 대한  $\Sigma$ PAHs의 분율은 뚜렷하게 다르게 나타났는데, 온도가 상대적으로 높을 때의  $\Sigma$ PAHs는 OC에 미미한 영향을 미쳤으나 온도가 낮아짐에 따라 OC에 대한  $\Sigma$ PAHs의 분율은 증가하였다(그림 5의 왼쪽). 이러한 결과는 PAHs가 준휘발성(semi-volatile)으로  $K_p$ 의 영향을 받고  $K_p$ 는 온도에 반비례하기 때문에, 온

도가 낮은 12월과 1월에 높은  $\Sigma$ PAHs/OC의 비율이 관측된 것으로 판단된다. 본 연구에서 온도는  $\Sigma$ PAHs/OC 비율에 유의한 음의 영향을 미쳤으며 두 변수 사이의 결정계수( $r^2$ )은 0.45로 나타났다. 특히 LMW PAHs의 농도는 온도에 크게 의존하는 것으로 나타났는데(그림 5의 오른쪽), 이는 다른 계절에 비해 낮은 온도에서 LMW PAHs가 입자상으로 분배되기 쉽기 때문으로 판단된다(Shen *et al.*, 2019). 온도와 LMW PAHs의 관계를 추정한 함수는 지수함수로 나타났다는데 ( $y = 1.46e^{-0.135x}$ ,  $r^2 = 0.72$ ), 이는  $K_p$ 와 온도의 관계(식 4)에 기인한 것으로 판단된다.



앞에서 언급하였듯이, 전체기간 동안 MMW PAHs가  $\Sigma$ PAHs 중 가장 큰 기여율을 나타내었으나 고농도  $\Sigma$ PAHs 에피소드는 다소 다른 양상을 보였다.  $\Sigma$ PAHs 농도가  $35 \text{ ng/m}^3$ 를 초과하는 4개 시료의 경우 HMW PAHs가 일관되게 가장 높게 나타났다(그림 4). 각 PAH 종의 평균적 분율과 고농도  $\Sigma$ PAHs 에피소드( $\Sigma$ PAHs  $> 35 \text{ ng/m}^3$ ) 및 고농도  $\text{PM}_{2.5}$  에피소드( $\text{PM}_{2.5} > 35 \text{ }\mu\text{g/m}^3$ )에서 관측된 각 PAHs의 분율은 뚜렷한 차이가 있었다. 고농도  $\Sigma$ PAHs 에피소드 기간 동안에는 전체 연구기간에 비해 IcP의 분율이 19.3%에서 32.7%로 크게 증가하였다(그림 6). 반면, 고농도  $\text{PM}_{2.5}$  에피소드 기간동안에는 Pyr의 분율이 30.1%에서 36.7%로 크게 증가한 반면 IcP의 비율은 19.3%에서 13.0%로 감소하였다(그림 6). 선행연구에 의하면 Pyr은 목재 연소나 석탄 연소를 통해 많이 발생되며, IcP는 주로 차량 배기가스를 통해 배출된다고 알려져 있다(Han *et al.*, 2016). 따라서 고농도  $\text{PM}_{2.5}$  에피소드 기간에는 고체 연료 연소가 중요한 반면, 고농도  $\Sigma$ PAHs 에피소드 기간에는 오히려 자동차의 영향이 중요한 것으로 보인다. 진단 비율을 통한 배출원 분석은 다음 장에서 더 자세히 논의된다. 또한 발암성 PAHs(carcinogenic PAHs: CPAHs)는 BaP, BaA, BbF, BkF, Chr, DaA, IcP를 포함하는데(USEPA, 1993) 월별 CPAHs의 농도는 12월에 가장 높고 10월에 가장 낮았다. CPAHs/ $\Sigma$ PAHs의 비율은 전체 기간 동안 약 45.4%를 차지하였으나, 고농도  $\Sigma$ PAHs 에피소드 기간에는 57.0%로 크게 늘어나 CPAHs의 배출이 증가한 것으로 판단된다.

다른 지역의 PAHs 측정결과와 비교하면, 중국 상하이에서 측정된 입자상 PAHs는 MMW PAHs가 가장 높은 비율을 차지한 것으로 나타났다(Wei *et al.*, 2019). 이란에서 수행한 연구에서는 겨울철 PAHs의 농도는  $20.09 \text{ ng/m}^3$ 였으며 HMW PAHs의 농도가 높았는데, 이는 겨울철 저온에서 가솔린 차량으로부터 benzo[ghi]perylene, indeno[1,2,3-c,d]pyrene, coreonene과 같은 HMW PAHs가 많이 배출되기 때문이라고 밝혔다(Arhami *et al.*, 2018). 우리나라 인천에서는

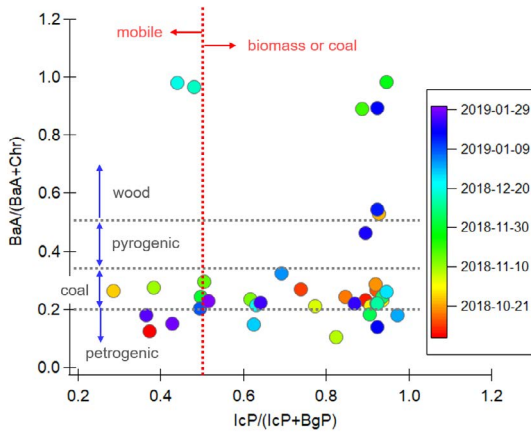


**Fig. 6.** Fraction of each PAH species to  $\Sigma$ PAHs during entire sampling period, high  $\Sigma$ PAHs episodes, and high  $\text{PM}_{2.5}$  episodes.

겨울철 Fluoranthene과 Benzo[b]fluoranthene이 가장 높은 농도를 보였으며, 이는 겨울철 화석연료나 가정 난방의 사용으로 인한 배출원 증가가 원인이라고 제시하였다(Choi *et al.*, 2012). 서울의 경우 마찬가지로 겨울철 PAHs의 농도가  $16.1 \text{ ng/m}^3$ 로 가장 높았는데, 여름에 비해 겨울에 LMW PAHs의 비율이 증가한 반면, MMW PAHs 및 HMW PAHs는 반대의 경향을 나타냈다(Kang *et al.*, 2020). 이는, 앞에서 언급한 바와 같이 LMW PAHs는 주로 석탄 및 바이오매스 연소에 의해 배출되며, HMW PAHs는 차량에 의해 배출된다는 선행 연구를 고려하였을 때, 서울의 여름은 차량 배출의 영향이 크다는 것을 의미한다(Kang *et al.*, 2020)(표 3).

### 3.3 진단비를 활용한 배출원 추정

PAHs의 구성 프로파일은 특정 배출원의 특성이기 때문에, 진단비(diagnostic ratio: DRs)의 사용은 PAHs의 잠재적 배출원을 찾는 방법 중 하나로 많이 사용되어왔다(Liu *et al.*, 2017; Khan *et al.*, 2015; Yunker *et al.*, 2002). 기존 연구에서 배출원을 특정하는 DR의 값이 다소 상이하게 사용되기도 하였지만, 일반적으로  $\text{BaA}/(\text{BaA} + \text{Chr})$ 의 비율이 0.2 미만이면 석유 자체에서의 배출(petrogenic), 0.2~0.35 사이의 범위에서는 석탄연소, 0.35 이상에서는 석유 연료의



**Fig. 7.** Graphic illustration of PAHs diagnostic ratios to identify the major sources of PAHs.

불완전연소 (pyrogenic), 그리고 0.5 이상에서는 목재 연소를 나타낸다 (Daso *et al.*, 2016; Orecchio *et al.*, 2010; Agarwal *et al.*, 2009; Yunker *et al.*, 2002). 또한  $IcP/(IcP + BgP)$ 의 비율 역시 선행 연구에서 많이 사용하였는데, 이 비율이 0.5 이하이면 자동차 연료 연소를 나타내고 0.5 이상이면 바이오매스 또는 석탄연소를 가리킨다 (Daso *et al.*, 2016; Yunker *et al.*, 2002). 일부 선행연구에서는  $BaP/(BaP + Chr)$  및  $Ant/(Ant + Phe)$ 의 비율도 사용하였지만, Ant과 Phe의 경우 가스상으로도 다량 존재할 수 있기 때문에 기상조건의 영향을 크게 받고 BaP 역시 불안정하여 분해될 수 있다는 점을 고려하면 (Huang *et al.*, 2006), 배출원 판단에 적절한 지표가 아닌 것으로 판단되어 본 연구에서는 사용하지 않았다.

본 연구에서는 대부분의  $BaA/(BaA + Chr)$ 의 비율이 0.2~0.35에 위치해 있어 석탄 연소가 가장 중요하다는 것을 의미한다 (그림 7). 석탄연소의 중요성은 계절에 따라 크게 변화하지 않은 것으로 나타났지만, 11월~1월에 채취된 일부 시료의 경우 목재소각의 영향이 보였다.  $IcP/(IcP + BgP)$ 의 비율은 대부분 0.5 이상으로 나타나, 역시 자동차 연소보다는 고체 연료 연소가 중요하다는 것을 시사한다 (그림 7). 그러나 역시 일부 시료의 경우 자동차의 영향이 보이기 때문

에, 자동차가 PAHs에 미치는 영향을 완전히 배제할 수는 없다.

#### 4. 결 론

본 연구는 2018년 10월 5일부터 2019년 1월 30일 까지 강원도 춘천시에서 유기탄소 및 PAHs의 농도 특성을 파악하기 위해 수행되었다. 연구기간 동안  $PM_{2.5}$  평균 농도는  $25.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 나타났으며, 일평균 대기환경기준 농도인  $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 를 초과하는 시료는 7 개로 모두 12월과 1월에 나타났다.  $PM_{2.5}$ 에 대한 OC의 비율은 타 지역에 비해 높은 편으로 나타났으며, 반면에 EC의 농도는 낮아 높은 OC/EC 비율의 특징을 보였다. 또한  $PM_{2.5}$ 에서 OC가 차지하는 비율이 높을수록 SOC의 기여도가 큰 것으로 나타났으며, SOC는 풍속과 유의한 음의 상관성을 나타냈다. 이러한 결과는 춘천의 낮은 풍속이 SOC의 생성을 촉진시키는 한편 대기를 정체시키고, 이는 다른 지역에 비해 높은 OC/ $PM_{2.5}$  비율을 야기했다고 판단된다. 반면, 1월 고농도  $PM_{2.5}$  에피소드 동안 OC 중 POC의 기여도는 80% 이상으로 높게 나타나, 고농도 에피소드에 대해서는 POC가 중요한 원인임을 알 수 있다.

연구기간 동안 PAHs의 평균 농도는  $16.7 \text{ng}/\text{m}^3$ 였으며, 10월에 비해 12월 및 1월에 농도가 급격히 증가하였다. 특히 LMW PAHs는 온도에 크게 의존하는 것으로 나타났는데, 이는 다른 계절에 비해 낮은 온도에서 LMW PAH가 입자상으로 분배되기 쉽기 때문으로 판단된다. 온도는 지수함수의 형태로 LMW PAHs의 농도에 영향을 미쳤다. 전체 연구기간 동안 MMW PAHs가 가장 높은 농도를 보였으며 이 중 Pyr이 가장 높게 나타났다. 그러나 고농도  $\Sigma$ PAHs 에피소드 기간에는 IcP를 비롯한 HMW PAHs가 가장 높게 나타나 자동차의 영향이 중요해짐을 알 수 있었다. PAHs의 진단비로 배출원을 추론한 결과, 전반적으로 자동차보다는 석탄 또는 생체소각의 영향이 더 크게 나타났으나 일부 시료의 경우 자동차의 영향 역

시 보였다. 이러한 결과를 종합해보면, 춘천의 PAHs 농도는 주로 고체연료의 연소에 의존하지만 고농도 시료를 포함한 일부 시료의 경우에는 자동차의 영향도 배제할 수 없다고 판단된다.

## 감사의 글

이 연구는 환경부의 환경보건센터와 한국연구재단 (Grant No. 2020R1A2C2013445 및 2021M3G1A1081 539), 그리고 환경부의 “미세먼지관리 전문인력 양성 사업”의 지원을 받아 수행되었습니다.

## References

- Agarwal, T., Khillare, P.S., Shridhar, V., Ray, S. (2009) Pattern, sources and toxic potential of PAHs in the agricultural soils of Delhi, India, *Journal of hazardous materials*, 163(2-3), 1033-1039.
- Arhami, M., Shahne, M.Z., Hosseini, V., Haghghat, N.R., Lai, A.M., Schauer, J.J. (2018) Seasonal trends in the composition and sources of PM<sub>2.5</sub> and carbonaceous aerosol in Tehran, Iran, *Environmental Pollution*, 239, 69-81.
- Byun, J.Y., Cho, S.H., Kim, H.W., Han, Y.J. (2018) Long-term Characteristics of PM<sub>2.5</sub> and Its Metallic Components in Chuncheon, Korea, *Journal of Korea Society for Atmospheric Environment*, 34(3), 406-417.
- Castro, L.M., Pio, C.A., Harrison, R.M., Smith, D.J.T. (1999) Carbonaceous aerosol in urban and rural European atmospheres: estimation of secondary organic carbon concentrations, *Atmospheric Environment*, 33(17), 2771-2781.
- Cha, S.H., Han, Y.J., Bae, G.M. (2020) Spatio-temporal Distribution of PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> in Gangwon Province of South Korea Using Air Pollution Monitoring Network Data, *Journal of Korea Society for Atmospheric Environment*, 36(4), 492-506.
- Cheng, Y., Lee, S.C., Ho, K.F., Chow, J.C., Watson, J.G., Louie, P.K. K., Cao, J.J., Hai, X. (2010) Chemically-specified on-road PM<sub>2.5</sub> motor vehicle emission factors in Hong Kong, *Science of the Total Environment*, 408(7), 1621-1627.
- Cho, S.H., Kim, P.R., Han, Y.J., Kim, H.W., Yi, S.M. (2016) Characteristics of ionic and carbonaceous compounds in PM<sub>2.5</sub> and high concentration events in Chuncheon, Korea, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 32(4), 435-447.
- Choi, J.K., Heo, J.B., Ban, S.J., Yi, S.M., Zoh, K.D. (2012) Chemical characteristics of PM<sub>2.5</sub> aerosol in Incheon, Korea, *Atmospheric Environment*, 60, 583-592.
- Choi, S.Y., Lee, H.J., Park, S.W., Han, Y.J. (2022) Enhanced PM<sub>2.5</sub> episodes in a small residential city of South Korea: Effects of biomass burning and secondary formations, *Atmospheric Pollution Research*, 101562.
- Daso, A.P., Akortia, E., Okonkwo, J.O. (2016) Concentration profiles, source apportionment and risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in dumpsite soils from Agbogboshie e-waste dismantling site, Accra, Ghana, *Environmental Science and Pollution Research*, 23(11), 10883-10894.
- Gao, B., Guo, H., Wang, X.M., Zhao, X.Y., Ling, Z.H., Zhang, Z., Liu, T.Y. (2012) Polycyclic aromatic hydrocarbons in PM<sub>2.5</sub> in Guangzhou, southern China: Spatiotemporal patterns and emission sources, *Journal of Hazardous Materials*, 239-240, 78-87.
- Grmasha, R.A., Al-sareji, O.J., Salman, J.M., Hashim, K.S. (2020) Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in urban street dust within three land-uses of Babylon governorate, Iraq: Distribution, sources, and health risk assessment, *Journal of King Saud University-Engineering Sciences*.
- Han, J., Liang, Y., Zhao, B., Wang, Y., Xing, F., Qin, L. (2019) Polycyclic aromatic hydrocarbon (PAHs) geographical distribution in China and their source, risk assessment analysis, *Environmental Pollution*, 251, 312-327.
- Han, S.H., Lee, J.Y., Kim, Y.P. (2016) Estimation of major sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Seoul by using the receptor models, *Particle and Aerosol Research*, 12(2), 27-36.
- Haque, M., Kawamura, K., Deshmukh, D.K., Fang, C., Song, W., Mengying, B., Zhang, Y.L. (2019) Characterization of organic aerosols from a Chinese megacity during winter: predominance of fossil fuel combustion, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(7), 5147-5164.
- Hayakawa, K., Tang, N., Nagato, E., Toriba, A., Lin, J.M., Zhao, L., Zhou, Z.J., Qing, W., Yang, X.Y., Mishukov, V., Neroda, A., Chung, H.Y. (2020) Long-term trends in urban atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons: China, Russia, and Korea from 1999 to 2014, *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 17(2),

- 431.
- Huang, X.F., He, L.Y., Hu, M., Zhang, Y.H. (2006) Annual variation of particulate organic compounds in PM<sub>2.5</sub> in the urban atmosphere of Beijing, *Atmospheric Environment*, 40(14), 2449-2458.
- Jung, J.H., Phee, Y.G., Cho, S.W., Ok, G., Shon, B.H., Lee, K., Lim, H.S. (2011) Concentration levels and distribution characteristics of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) at ambient air in industrial complex area, *Clean Technology*, 17(4), 379-388.
- Kang, M., Kim, K., Choi, N., Kim, Y.P., Lee, J.Y. (2020) Recent occurrence of PAHs and n-Alkanes in PM<sub>2.5</sub> in Seoul, Korea and characteristics of their sources and toxicity, *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 17(4), 1397.
- Khan, M.F., Latif, M.T., Lim, C.H., Amil, N.Z., Jaafar, S.A., Dominick, D.N., Nadzir, M.S.M., Sahani, M.R., Tahir, N.M. (2015) Seasonal effect and source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in PM<sub>2.5</sub>, *Atmospheric Environment*, 106, 178-190.
- Kim, H., Jung, J., Lee, J., Lee, S. (2015) Seasonal characteristics of organic carbon and elemental carbon in PM<sub>2.5</sub> in Daejeon, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 31(1), 28-40.
- Lee, B.K., Vu, V.T. (2010) Sources, Distribution and Toxicity of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Particulate Matter, *Air Pollution*, ISBN: 978-953-307-143-5.
- Lee, J., Lane, D.A. (2010) Formation of oxidized products from the reaction of gaseous phenanthrene with the OH radical in a reaction chamber, *Atmospheric Environment*, 44(20), 2469-2477.
- Liu, B., Xue, Z., Zhu, X., Jia, C. (2017) Long-term trends (1990-2014), health risks, and sources of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the US, *Environmental Pollution*, 220, 1171-1179.
- Liu, Y., Zhao, Q., Hao, X., Zhao, J., Zhang, Y., Yang, X., Fu, Q., Xu, X., Wang, X.F., Huo, J., Chen, J. (2020) Increasing surface ozone and enhanced secondary organic carbon formation at a city junction site: An epitome of the Yangtze River Delta, China (2014-2017), *Environmental Pollution*, 265, 114847.
- Oh, S.H., Park, D.J., Cho, J.H., Han, Y.J., Bae, M.S. (2018) Inter-comparison of Carbonaceous Analytical Results using NIOSH5040, IMPROVE\_A, EUSAAR2 Protocols, *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, 34(3), 447-456.
- Orecchio, S. (2010) Analytical method, pattern and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the stone of the Temples of Agrigento (Italy), *Journal of Hazardous Materials*, 176(1-3), 339-347.
- Pankow, J.F., Bidleman, T.F. (1991) Effects of temperature, TSP and per cent non-exchangeable material in determining the gas-particle partitioning of organic compounds, *Atmospheric Environment, Part A. General Topics*, 25(10), 2241-2249.
- Park, J.M., Han, Y.J., Cho, S.H., Kim, H.W. (2018) Characteristics of carbonaceous PM<sub>2.5</sub> in a small residential city in Korea, *Atmosphere*, 9(12), 490.
- Sandradewi, J., Prévôt, A.S.H., Weingartner, E., Schmidhauser, R., Gysel, M., Baltensperger, U. (2008) A study of wood burning and traffic aerosols in an Alpine valley using a multi-wavelength Aethalometer, *Atmospheric Environment*, 42(1), 101-112.
- Sandrini, S.V., Fuzzi, S.R., Piazzalunga, A.A., Prati, P.L., Bonasoni, P.L., Cavalli, F.Z., Bove, M.C., Calvello, M.S., Cappelletti, D.V., Colombi, C.T., Contini, D., Gennaro, G.G., Gilio, A.D., Fermo, P., Ferrero, L.C., Gianelle, V., Giugliano, M.C., Ielpo, P.N., Lonati, G.N., Marinoni, A.L., Massabo, D., Molteni, U., Moroni, B.R., Pavese, G.L., Perrino, C.Z., Perrone, M.G., Perrone, M.R., Putaud, J.P., Sargolini, T.N., Vecchi, Roberta., Gilardoni, S.F. (2014) Spatial and seasonal variability of carbonaceous aerosol across Italy, *Atmospheric Environment*, 99, 587-598.
- Schauer, J.J., Kleeman, M.J., Cass, G.R., Simoneit, B.R. (2001) Measurement of emissions from air pollution sources. 3. C1-C29 organic compounds from fireplace combustion of wood, *Environmental Science & Technology*, 35, 1716-1728.
- Schauer, J.J., Kleeman, M.J., Cass, G.R., Simoneit, B.R. (2002) Measurement of emissions from air pollution sources. 5. C1-C32 organic compounds from gasoline-powered motor vehicles, *Environmental Science & Technology*, 36, 1169-1180.
- Shen, R., Liu, Z., Chen, X., Wang, Y., Wang, L., Liu, Y., Li, X. (2019) Atmospheric levels, variations, sources and health risk of PM<sub>2.5</sub>-bound polycyclic aromatic hydrocarbons during winter over the North China Plain, *Science of the Total Environment*, 655, 581-590.
- Shin, S.M., Lee, J.Y., Shin, H.J., Kim, Y.P. (2022) Seasonal variation and source apportionment of Oxygenated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (OPAHs) and Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in PM<sub>2.5</sub> in Seoul, Korea, *Atmospheric Environment*, 272, 118937.
- Sun, J., Shen, Z., Zhang, T., Kong, S., Zhang, H., Zhang, Q., Niu, X., Huang, S.S., Xu, H.M., Ho, K.F., Cao, J. (2022) A comprehensive evaluation of PM<sub>2.5</sub>-bound PAHs and their derivative in winter from six megacities in China: Insight the source-dependent health risk

- and secondary reactions. *Environment International*, 165, 107344.
- Turpin, B.J., Huntzicker, J.J. (1995) Identification of secondary organic aerosol episodes and quantitation of primary and secondary organic aerosol concentrations during SCAQS, *Atmospheric Environment*, 29(23), 3527-3544.
- US Environmental Protection Agency (USEPA) (1993) Provisional Guidance for Quantitative Risk Assessment of PAHs, 600, R-93, 089.
- Wang, Z., Na, G., Ma, X., Fang, X., Ge, L., Gao, H., Yao, Z. (2013) Occurrence and gas/particle partitioning of PAHs in the atmosphere from the North Pacific to the Arctic Ocean, *Atmospheric Environment*, 77, 640-646.
- Wei, X.Y., Liu, M., Yang, J., Du, W.N., Sun, X., Huang, Y.P., Zhang, X., Khalil, S.K., Luo, D.M., Zhou, Y.D. (2019) Characterization of PM<sub>2.5</sub>-bound PAHs and carbonaceous aerosols during three-month severe haze episode in Shanghai, China: Chemical composition, source apportionment and long-range transportation, *Atmospheric Environment*, 203, 1-9.
- Wu, C., Yu, J.Z. (2016) Determination of primary combustion source organic carbon-to-elemental carbon (OC/EC) ratio using ambient OC and EC measurements: secondary OC-EC correlation minimization method, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(8), 5453-5465.
- Yamasaki, H., Kuwata, K., Miyamoto, H. (1982) Effects of ambient temperature on aspects of airborne polycyclic aromatic hydrocarbons, *Environmental Science & Technology*, 16(4), 189-194.
- Yoo, H.Y., Kim, K.A., Kim, Y.P., Jung, C.H., Shin, H.J., Moon, K.J., Park, S.M., Lee, J.Y. (2022) Validation of SOC Estimation Using OC and EC Concentration in PM<sub>2.5</sub> Measured at Seoul, *Aerosol and Air Quality Research*, 20, 210388.
- Yu, H., Guo, T., Wu, Z., Lin, T., Hu, L., Guo, Z. (2021) Distribution and gas-particle partitioning of polycyclic aromatic hydrocarbons over the East China Sea and Yellow Sea in spring: Role of atmospheric transport transition, *Science of The Total Environment*, 762, 143071.
- Yunker, M.B., Macdonald, R.W., Vingarzan, R., Mitchell, R.H., Goyette, D., Sylvestre, S. (2002) PAHs in the Fraser River basin: a critical appraisal of PAH ratios as indicators of PAH source and composition, *Organic Geochemistry*, 33(4), 489-515.
- Zhang, Y., Zheng, H., Zhang, L., Zhang, Z., Xing, X., Qi, S. (2019) Fine particle-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) at an urban site of Wuhan, central China: Characteristics, potential sources and cancer risks apportionment, *Environmental Pollution*, 246, 319-327.

## Authors Information

- 이효원 (강원대학교 농업생명과학대학 환경융합학부 에코환경 과학전공 학석사연계과정) (hyowonii0405@gmail.com)
- 강경구 (국립환경과학원 기후대기연구부 대기공학연구과 전문연구원) (kkq0223@korea.kr)
- 박수빈 (연세대학교 의과대학 환경공해연구소 전문연구원) (tns2986@yuhs.ac)
- 한영지 (강원대학교 농업생명과학대학 환경융합학부 교수) (youngji@kangwon.ac.kr)
- 배민석 (목포대학교 공과대학 환경공학과 교수) (minsbae@hotmail.com)