

## 서울시 PM<sub>2.5</sub> 공간 샘플링을 위한 Deployable Particulate Impact Sampler의 성능 검증 연구

### Reliability and Accuracy of the Deployable Particulate Impact Sampler for Application to Spatial PM<sub>2.5</sub> Sampling in Seoul, Korea

오규림 · 허종배<sup>1)</sup> · 이승묵 · 김선영<sup>1)\*</sup>

서울대학교 보건대학원 환경보건학과, <sup>1)</sup>서울대학교 보건환경연구소  
(2017년 2월 17일 접수, 2017년 4월 3일 수정, 2017년 6월 6일 채택)

Gyu-Lim Oh, Jong-Bae Heo<sup>1)</sup>, Seung-Muk Yi and Sun-Young Kim<sup>1)\*</sup>

*Department of Environmental Health Sciences, Graduate School of Public Health,  
Seoul National University*

<sup>1)</sup>*Institute of Health and Environment, Seoul National University*

(Received 17 February 2017, revised 3 April 2017, accepted 6 June 2017)

#### Abstract

Previous studies of health effects of PM<sub>2.5</sub> performed spatial monitoring campaigns to assess spatial variability of PM<sub>2.5</sub> across people's residences. Highly reliable portable and cost-effective samplers will be useful for such campaigns. This study aimed to investigate applicability of the Deployable Particulate Impact Sampler (DPIS), one of the compact impact samplers, to spatial monitoring campaigns of PM<sub>2.5</sub> in Seoul, Korea. The investigation focused on the consistency of PM<sub>2.5</sub> concentrations measured by DPISs compared to those by the Low-volume Cyclone sampler (LCS). LCS has operated at a fixed site in the Seoul National University Yeongjeon campus, Seoul, Korea since 2003 and provided qualified PM<sub>2.5</sub> data. PM<sub>2.5</sub> sampling of DPISs was carried out at the same site from November 17, 2015 through February 3, 2016. PM<sub>2.5</sub> concentrations were quantified by the gravimetric method. Using a duplicated DPIS, we confirmed the reliability of DPIS by computing relative precision and mean square error-based R squared value (R<sup>2</sup>). Relative precision was one minus the difference of measurements between two samplers relative to the sum. For accuracy, we compared PM<sub>2.5</sub> concentrations from four DPISs (DPIS\_Tg, DPIS\_To, DPIS\_Qg, and DPIS\_Qo) to those of LCS. Four samplers included two types of collection filters (Teflon, T; quartz, Q) and impaction discs (glass fiber filter, g; pre-oiled porous plastic disc, o). We assessed accuracy using accuracy value which is one minus the difference between DPIS and LCS PM<sub>2.5</sub> relative to LCS PM<sub>2.5</sub> in addition to R<sup>2</sup>. DPIS showed high reliability (average precision = 97.28%, R<sup>2</sup> = 0.98). Accuracy was generally high for all DPISs (average accuracy = 83.78~88.88%, R<sup>2</sup> = 0.89~0.93) except for DPIS\_Qg (77.35~78.35%, 0.82~0.84).

\*Corresponding author.  
Tel : +82-(0)2-880-2759, E-mail : puha0@snu.ac.kr

Our results of high accuracy of DPIS compared to LCS suggested that DPIS will help the assessment of people's individual exposure to PM<sub>2.5</sub> in extensive spatial monitoring campaigns.

**Key words** : Fine particulate matter, Gravimetric method, Low-cost sampler, Accuracy, Reliability

## 1. 서 론

공기역학적 직경이 2.5 μm 이하인 미세먼지(particulate matter, PM)를 일컫는 PM<sub>2.5</sub>는 많은 역학연구에서 호흡기계 및 심혈관계 질환, 폐암, 조기 사망 등의 발생 위험을 높이는 것으로 알려져 있다(Atkinson *et al.*, 2014; WHO, 2013; Pope *et al.*, 2011; Turner *et al.*, 2011; Franklin *et al.*, 2007; Pope and Dockery, 2006). 이러한 PM<sub>2.5</sub>의 건강영향에 대한 직접적인 인과관계를 증명하기 위해서는 개개인을 대상으로 한 코호트(cohort) 연구가 필수적이다. 1990년대 후반부터 북미를 중심으로 PM<sub>2.5</sub>의 건강영향 규명을 위한 코호트 연구결과들이 발표되었고, 이후 유럽과 아시아 국가들에서 연구결과들을 발표하고 있다(Kim *et al.*, 2016a; Jung *et al.*, 2015; Beelen *et al.*, 2014; Ueda *et al.*, 2012; Laden *et al.*, 2006; Okamura *et al.*, 2003; Pope *et al.*, 2002). 이들 코호트 연구에서는 몇 년에서 몇 십년 이상 장기간 동안의 PM<sub>2.5</sub> 노출과 사망이나 심혈관계 질환 등 만성질환과의 연관성을 보고하였다. 즉, 오랜 기간 동안 높은 농도의 장소에서 거주하고 생활한 개인들에게서 사망이나 만성질환이 발생할 위험이 상대적으로 높았다. 개개인 간 장기간 PM<sub>2.5</sub> 노출의 차이는 시간적인 변이보다는 공간적인 변이 파악이 중요하고 공간적인 변이는 근거리의 위치한 오염원의 영향이 크기 때문에, 개개인의 거주지나 직장으로부터 소규모 공간에서의 노출 차이 파악이 중요하다. 북미와 유럽의 대규모 코호트 연구에서는 정부에서 운영하는 대기 오염 측정망이 공간적으로 코호트 참여자들이 거주하는 주소지들 간 노출 차이를 반영하기 어려운 제한점을 극복하고자 독립적인 공간 샘플링을 시행하였다(Eeftens *et al.*, 2012; Cohen *et al.*, 2009).

PM<sub>2.5</sub>의 건강영향에 대한 코호트 연구에서, PM<sub>2.5</sub> 자료는 주로 국가에서 운영하는 대기오염측정망 자료를 이용하였다. 그러나, 제한된 수의 대기오염측정망 측정소에서 측정되는 PM<sub>2.5</sub> 자료는 개인 노출의 공간적 변

이를 파악하기에 어려움이 있을 수 있다(Hoek *et al.*, 2008; Jerrett *et al.*, 2005; Kunzli and Tager, 1997). 서울 특별시의 경우 2016년 기준 설치된 도시대기측정소는 25개소로, 각 구마다 단 하나씩 설치되어 있어 각 구 내에서 거주하는 사람들의 노출수준의 차이를 대표하기 어렵다. 또한 PM<sub>2.5</sub>의 화학적인 구성성분들 - 수용성 이온성분(황산염, 질산염, 암모늄염 등), 탄소성분, 미량 금속성분 등 - 은 발생원에 따라 그 비율이 다르고, 이는 PM<sub>2.5</sub> 총 질량의 변화에도 영향을 미치며 지역간의 공간적 이질성을 유발한다(Bell *et al.*, 2007). 서울과 같은 대도시에서는 PM<sub>2.5</sub> 발생원이 복잡적으로 존재할 가능성이 크기 때문에(Heo *et al.*, 2009), 공간 내 변이는 더욱 다양하게 나타날 수 있다. 따라서 제한된 수의 측정소 자료를 사용할 경우, 개인들의 PM<sub>2.5</sub> 노출에 대한 공간적인 변이의 파악이 부정확할 수 있다. 이는 이후 코호트를 이용한 PM<sub>2.5</sub>에 대한 건강영향 분석에서도 부정확한 결과를 초래할 수 있다(Szpiro *et al.*, 2011; Szpiro *et al.*, 2010; Pinto *et al.*, 2004).

개인 수준의 공간적인 PM<sub>2.5</sub> 노출 수준을 잘 대변하기 위해서는 공간적으로 측정 자료를 늘려 지역적 해상도를 높이는 것이 필요하다. 하지만 이를 위해 측정소를 추가해서 설치 운영하는 것은 비용과 인력 등에서 물리적 한계가 있다. 따라서 설치가 용이하고 가격이 합리적이면서 비교적 정확한 PM<sub>2.5</sub> 측정값을 제공하는 소형의 샘플러(portable sampler)를 이용할 수 있다. PM<sub>2.5</sub> 질량 농도를 측정하는 방법으로는 센서를 이용하는 방법과 필터를 기반으로 한 방법이 있다. 후자의 경우 필터의 중량을 측정하여 PM<sub>2.5</sub>의 질량농도를 산출하는 방법으로, 전자보다 안정된 결과값을 얻을 수 있다고 알려져 있다(U.S. EPA, 2006). 중량법 측정에는 거대입자를 제거하는 원리에 따라 임팩터(impactor) 방식과 사이클론(cyclone) 방식으로 나뉜다. 별도의 장치가 필요한 사이클론 방식과는 달리 임팩터 방식의 샘플러는 내부 충돌판으로 거대입자를 제거하기 때문에 별도의 장치가 필요하지 않다. 중량법을 이용해

서 PM<sub>2.5</sub> 농도를 측정하는 관성 임팩터(inertial impactor)는 작고 가벼우며 작동 원리가 간단한 샘플러로, 설치 용이하여 동시다발적 공간적인 샘플링에 적합하다고 할 수 있다. 이러한 관성 임팩터 중 하나인 Deployable Particulate Impact Sampler (DPIS) (SKC inc., USA, U.S. Patent No. 7,334,453)는 다른 소형 샘플러와의 비교를 통해 그 성능이 검증된 샘플러이다 (Patterson *et al.*, 2010). 하지만 소형 샘플러들은 그 성능에 대한 근거 자료가 부족하므로 (Baldauf *et al.*, 2001), 보편적으로 사용되어 많은 연구 결과를 보유한 샘플러와 등가 비교를 통하여 성능 검증을 하는 것이 일반적이다 (Chen *et al.*, 2011; Gupta and Dubey, 2011; Case *et al.*, 2008). 증량법으로 PM<sub>2.5</sub>를 측정하는 소형 샘플러에 대하여 검증용 샘플러와의 비교 측정을 통해 등가 비교를 한 연구는 국내에서 아직 거의 수행되지 않은 실정이다.

본 연구에서는 서울특별시에서 코호트 연구를 위한 PM<sub>2.5</sub>의 공간적인 샘플링에 DPIS를 도입하기에 앞서, DPIS와 검증용 샘플러와의 비교 측정을 통해 PM<sub>2.5</sub> 농도의 등가성을 평가하였다. 검증용 샘플러로는 기존 연구에서 많이 사용된 바 있는 Low-volume Cyclone Sampler (LCS) (URG corp., USA)가 사용되었다 (Lee *et al.*, 2015; Joly *et al.*, 2010; Park *et al.*, 2007; Jetter *et al.*, 2002). 비교 측정은 DPIS에 다양한 필터를 장착하여 진행하였으며, 측정 결과를 통해 DPIS의 재현성 및 정확성을 판단하여 대규모 샘플링 적용가능성을 평가하고자 하였다.

## 2. 방 법

### 2.1 DPIS와 LCS의 특성 비교

본 연구에서 사용한 DPIS는 임팩터 방식의 7×5×10 cm 규격에 0.23 kg의 무게를 가진, 휴대성이 높은 소형의 샘플러이다. 분리한계 직경을 PM<sub>2.5</sub>로 유지하기 위한 DPIS의 채취 유량은 10 L/min이다. LCS는 채취 필터를 고정시키는 필터팩 (URG-2000-30FG, URG)과 사이클론 (URG-2000-30EH, URG)으로 구성된 샘플러이며, 채취 유량은 16.7 L/min이다.

LCS는 2003년부터 서울시 종로구 연건동 서울대학교 연건캠퍼스에 설치되어 현재까지 지속적으로 PM<sub>2.5</sub>

를 채취하고 있으며, 해당 시료는 서울지역의 PM<sub>2.5</sub> 및 구성성분을 탐색하고 오염원을 파악하는 다수의 연구에 이용되었다 (Heo *et al.*, 2014; Heo *et al.*, 2009; Kim *et al.*, 2007). LCS와 은평구 불광동에 위치한 대기오염 집중측정소 (LCS 측정위치로부터 북서쪽으로 약 6.8 km 떨어진 곳에 위치)의 2015년 측정자료 (n=196) 간의 상관계수는 0.76으로, 거리와 입지조건을 고려할 때 비교적 높게 나타나 LCS의 정확성을 간접적으로 입증하였다.

거대입자를 제거하는 방식에 있어 사이클론을 이용하는 LCS와 달리, DPIS는 관성 충돌을 통해 거대입자를 제거하므로 충돌판이 별도로 필요하다. 충돌판은 유량 흐름상 채취 필터 전에 위치하여 채취하고자 하는 PM<sub>2.5</sub>보다 큰 거대입자들을 제거한다. 따라서 충돌판에 따라 질량농도 측정치의 신뢰도가 좌우될 수 있으므로, 어떠한 충돌판이 적합한지에 대한 검증을 같이 시행하였다. 본 연구에서는 DPIS의 충돌판으로 유리섬유 필터 (glass fiber filter) 와 기름칠한 다공성 패드 (oiled porous pad)가 사용되었다.

시료 채취 필터 선택은 질량 농도뿐만 아니라, 구성성분의 분석 가능 여부에 따라 결정될 수 있다. 테플론 필터는 Polytetrafluoroethylene (PTFE) 재질의 필터로, 주변 오염물질의 흡착도가 낮고 상대 습도에 민감하지 않아 안정적인 PM<sub>2.5</sub> 중량을 측정할 수 있다. 한편, 유기 및 무기 탄소 (Organic and elemental carbon: OC/EC) 분석을 하기 위해서는 고온에서 견딜 수 있는 석영 필터를 사용한다 (Perrino *et al.*, 2013; Brown *et al.*, 2006). LCS는 PM<sub>2.5</sub>의 질량농도를 측정하는 용도로 테플론 필터를 사용하고 있어, DPIS에도 동일하게 적용하였고, 석영 필터를 추가 적용하여 비교 검증을 통해 추후 OC/EC 분석 가능성을 알아보았다.

### 2.2 샘플링 설계

샘플링은 2015년 11월 17일부터 2016년 2월 3일까지 서울 도심지역의 한 측정소 (서울시 종로구 연건동 소재, 서울대학교 연건캠퍼스 구 보건대학원 옥상, 3.75°N, 127.00°E, 지상 17 m)에서 진행하였다. 24시간 동안 3일 간격으로 총 25차례에 걸쳐 PM<sub>2.5</sub> 채취가 이루어졌다. DPIS의 재현성 및 정확성을 판단하기 위하여 서로 다른 필터를 장착한 총 4대의 DPIS와 LCS는 같은 장소에서 측정되었다. DPIS와 LCS는 채취 유량

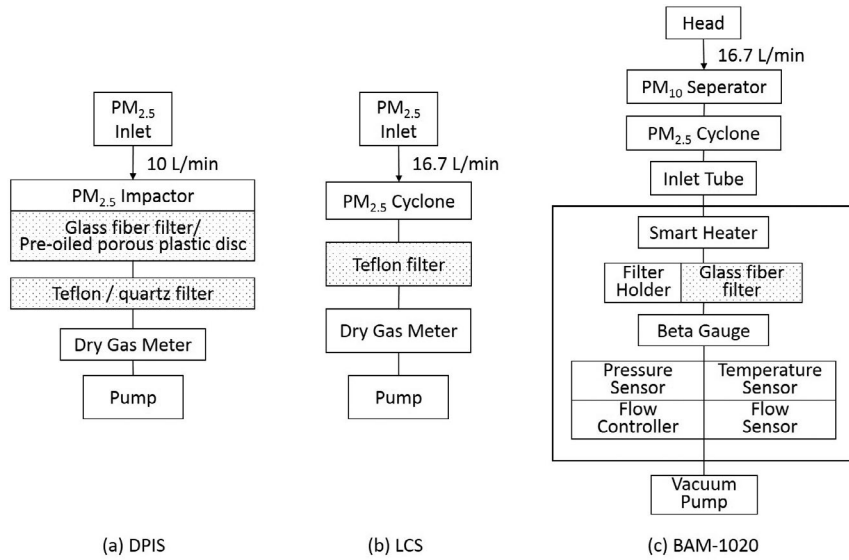


Fig. 1. The schematic of three samplers: (a) Deployable Particulate Impact Sampler (DPIS) with different filters (Teflon and quartz) and impactor pads (glass fiber filter and pre-oiled porous plastic disc); (b) Low-volume Cyclone Sampler (LCS); (c) BAM-1020 in the government air quality monitoring network.

이 다르고 분립장치 또한 서로 다르므로 이에 대한 구성을 그림 1(a), (b)에 간단한 도식으로 표현하였다. 그림 1(a)에서 보듯이 DPIS에 장착되는 채취 필터 종류 (Teflon (T), quartz (Q))와 충돌판 종류 (glass fiber filter (g), oiled porous pad (o))에 따라 DPIS는 다음과 같이 네 가지로 구분한다. 먼저 DPIS\_Tg는 테플론 필터를 채취 필터로 사용하고 충돌판을 유리 섬유 필터로 사용한 경우, DPIS\_To는 DPIS\_Tg와 채취 필터는 테플론 필터로 같지만 충돌판을 기름칠한 패드를 사용한 경우이다. 이와 마찬가지로 채취 필터를 석영 필터로 사용하고 충돌판을 각각 유리섬유 필터와 기름칠한 패드를 이용한 경우가 DPIS\_Qg와 DPIS\_Qo이다. 별도의 충돌판이 필요 없는 LCS는 테플론 필터를 이용하여 PM<sub>2.5</sub>를 채취하였다.

2.3 DPIS 재현성 탐색

DPIS의 재현성을 판단하기 위해 동일한 장소에서 동일한 석영필터와 유리섬유 충돌판 필터를 장착한 두 대의 DPIS를 비교 측정하였다. 여기서 DPIS는 DPIS\_Qg와 동일한 조건의 샘플러를 DPIS\_Qgd로 명명하였고, 2달 동안 두 기기 측정값의 비교를 통해 재현성을 탐색하였다. 2016년 1월 10일부터 DPIS\_Qgd는

DPIS\_Qo로 대체하여 정확성을 탐색할 수 있도록 변경하였다. 재현성은 두 샘플러의 차이를 두 샘플러의 합으로 나누어 상대정밀도(%)로 나타낼 수 있으며, 이에 대한 식은 다음과 같다(Chen *et al.*, 2011).

$$\text{상대정밀도} = \left[ 1 - \frac{|\text{DPIS}_{Qg} - \text{DPIS}_{Qgd}|}{\text{DPIS}_{Qg} + \text{DPIS}_{Qgd}} \right] \times 100 \quad (1)$$

식 (1)에 따라, 상대정밀도가 높을수록 재현성이 높음을 의미한다. 또한 두 측정기의 측정값의 산포도를 그려, 시각적으로 상관성을 확인하였다. 이후, 회귀선을 적합하고 평균제곱오차(mean square error, MSE) 기반 결정계수(R<sup>2</sup>)를 계산하여 두 측정기 간 측정값의 일치 정도를 확인하였다. 상관계수를 이용한 R<sup>2</sup>은 회귀선을 중심으로 두 측정값을 비교하는 반면, 평균제곱오차에 기반한 R<sup>2</sup>은 일치선을 기준으로 두 측정값을 비교한다(Kim *et al.*, 2016b; Keller *et al.*, 2015). 본 연구에서는 두 측정값의 일치 정도 파악이 목적이므로 평균제곱오차를 기반으로 한 R<sup>2</sup>을 이용하였다.

2.4 DPIS 정확성 탐색

DPIS에 4개의 서로 다른 재질의 필터를 교차 장착하고, 측정값을 LCS의 측정값과 비교하여 DPIS의 정

**Table 1. Summary statistics of 24-hour PM<sub>2.5</sub> concentrations collected by LCS and four DPIS with different filters and impactor pads at one monitoring site in the Seoul National University Yeongeon campus, Seoul, by total and two sampling periods from 2015. 11. 17 through 2016. 2. 3.**

Period	Sampler	N	Minimum (µg/m <sup>3</sup> )	Median (µg/m <sup>3</sup> )	Maximum (µg/m <sup>3</sup> )	Average ± SD (µg/m <sup>3</sup> )
2015. 11. 17~ 2016. 2. 3 (Total)	LCS	25	4.16	36.22	67.88	34.64 ± 16.58
	DPIS_Tg	25	5.29	37.17	60.15	35.63 ± 14.40
	DPIS_To	24	0.69	33.41	58.52	33.04 ± 14.92
	DPIS_Qg	25	9.18	38.17	62.75	39.00 ± 15.29
2015. 11. 17~ 2016. 1. 7 (Period 1)	DPIS_Qg	16	9.18	43.85	61.01	40.54 ± 16.61
	DPIS_Qgd	15	9.87	47.54	59.98	40.34 ± 17.06
2016. 1. 10~ 2016. 2. 3 (Period 2)	LCS	9	14.20	24.58	67.88	31.99 ± 15.98
	DPIS_Tg	9	20.86	28.20	59.66	33.83 ± 12.43
	DPIS_To	9	11.91	26.98	58.52	29.94 ± 13.72
	DPIS_Qg	9	20.89	34.30	62.75	36.26 ± 13.06
	DPIS_Qo	9	11.04	26.65	65.29	30.32 ± 16.58

DPIS = Deployable Particulate Impact Sampler, LCS = Low-volume Cyclone Sampler

확성을 판단하였다. 정확도는 DPIS가 LCS에 일치하는 정도(%)로 나타낼 수 있으며, 이를 나타내는 식은 다음과 같다(Chen *et al.*, 2011).

$$\text{정확도} = \left[ 1 - \frac{(|T - a|)}{T} \right] \times 100 \quad (2)$$

식(2)에서 T는 참값, a는 측정값으로, 이 연구에서는 LCS 측정값을 T로 간주하고 a에 각각의 DPIS 측정값을 대입하여 정확도(%)를 구하였다. 이후 선형 회귀 및 평균제곱오차를 기반으로 한 R<sup>2</sup>을 구하여 DPIS가 LCS에 얼마나 잘 대응하는 지를 나타내었다. 또한 DPIS 측정값과 LCS 측정값의 시계열 그래프를 통해 시간적 경향이 유사한 지 판단하였다.

### 2.5 PM<sub>2.5</sub> 측정 및 정도관리·평가

PM<sub>2.5</sub>의 중량은 밸런스(검출 한계 0.01 mg, Sartorius inc., Japan)를 이용하여 측정하였으며 채취 전과 후의 필터의 무게 차이로 중량 농도 값을 산출하였다. 채취된 필터는 데시케이터에서 24시간 항량 건조한 후 측정하였다. 필터의 무게는 반복 측정하여 3회 연속 측정값의 최대값과 최소값의 차이가 0.02 mg 이하이면 3회값의 평균값을 최종 필터의 무게값으로 사용하였다.

필터의 중량 측정 시에는 항상 정전기 제거장치를 통해 정전기를 제거한 후 측정하였다. 또한 데시케이터 및 밸런스의 조건 변화에 따라 발생할 수 있는 오차를 줄이기 위하여 비교 필터를 시료 필터와 같이 보관

하고, 중량 측정 시 항상 비교 필터를 먼저 측정한 후 시료 필터를 측정하였다. 이 비교 필터의 중량 측정 값 차이를 시료 필터의 채취 전 후 무게 차이에서 빼주어 최종 결과값을 보정하였다. 이 때의 비교필터는 채취 필터와 동일한 재질의 필터(Teflon, quartz)를 각각 적용하였다.

전체 샘플링 기간 동안 채취 유량은 해당 유량의 ± 5%의 오차 내에서 보정되었으며, 이를 넘으면 결측 처리하였다. 유량은 적산유량계를 사용하여 얻어졌다. 오차를 줄이기 위하여 샘플링 전 마다 유량을 확인하고 조정하였다.

### 3. 결 과

각 샘플의 개수 및 최대·최소, 평균, 그리고 표준편차를 각각 전체 샘플링 기간 및 일부 기간으로 나누어 표 1에 나타내었다. DPIS\_To와 DPIS\_Qgd는 기기작동 오류 및 정도관리·평가 결과로 인해 각각 하나의 결측치가 발생하였다. DPIS\_To의 최소값인 0.69 µg/m<sup>3</sup>은 중량측정법의 검출한계인 2 µg/m<sup>3</sup> 이하이지만(U.S. EPA, 2006), 보다 다양한 값으로 비교 및 검증을 하기 위하여 해당 값은 결측 처리하지 않고 남겨두었다. DPIS 자체 재현성탐색을 위해 설치한 DPIS\_Qg와 DPIS\_Qgd는 매우 유사한 평균과 표준편차를 보였다.

정확성 탐색을 위한 LCS와의 비교샘플링에서는, 전체 샘플링 기간 동안 DPIS\_Qg를 제외한 나머지 세 샘플러(DPIS\_Tg, DPIS\_To, DPIS\_Qo)의 평균과 표준편차가 LCS와 비교적 유사했다. DPIS\_Qo가 추가된 2부 기간에서는 DPIS\_Qo가 DPIS\_Tg나 DPIS\_To보다 LCS와 유사한 평균 및 표준편차를 나타내었다. 전체적으로, DPIS의 충돌판으로 유리섬유 필터를 사용하였을 때의 농도가 기름칠한 패드를 사용하였을 때에 비하여 높게 나타나는 경향을 보였다. 특히 채취 필터로 석영 필터를 사용하였을 때, 충돌판을 필터로 사용하게 되면 LCS에 비하여 과잉 채취되는 경향이 두드러졌다.

3.1 DPIS 재현성

상대정밀도 평균은 97.28%로 나타나 높은 재현성을

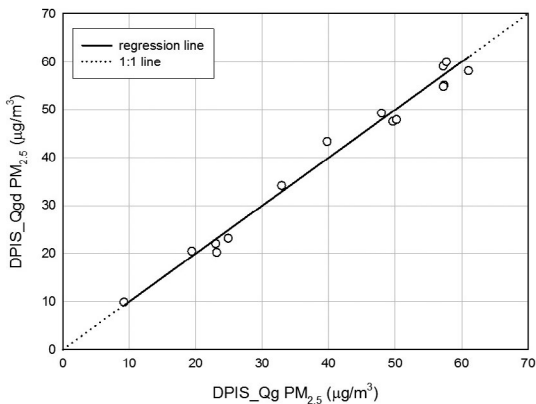


Fig. 2. Scatter plot of fourteen 24-hour PM<sub>2.5</sub> concentrations collected by two duplicated DPISs with quartz filters and glass fiber impactor pads (DPIS\_Qg and DPIS\_Qgd) for 2015. 11. 17 ~ 2016. 1. 7.

보였다. 또한 선형 회귀 결과, 두 대의 DPIS 측정값은 1:1라인에 매우 잘 부합하며, 회귀선 기울기 0.999와 더불어 R<sup>2</sup>=0.98로 높은 일치성을 나타내었다(그림 2).

3.2 DPIS 정확성

DPIS의 정확성은 장착된 필터의 종류별로 다양하게 나타났다(표 2). 전체 샘플링 기간에서는 정확도(%)의 평균은 77.35~87.42%, MSE 기반 R<sup>2</sup>은 0.84~0.93이었고, DPIS\_Qo가 추가된 기간(Period 2)에서의 정확도의 평균은 78.35~88.88%, MSE R<sup>2</sup>은 0.82~0.91이었다. 전반적으로 DPIS는 DPIS\_Qg(77.35%, 0.84)를 제외하고 비교적 높은 정확도를 보였다. 각 DPIS의 회귀선이 LCS와 1:1로 대응하는 정도 또한 DPIS\_Qg를

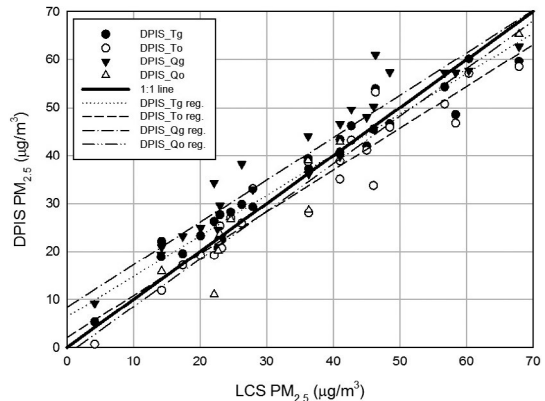


Fig. 3. Scatter plot of 24-hour PM<sub>2.5</sub> concentrations collected by DPIS with different filters and impactor pads (DPIS\_Tg, DPIS\_To, DPIS\_Qg, and DPIS\_Qo) compared to LCS for 2015. 11. 17 ~ 2016. 2. 3 (dotted lines for regression lines).

Table 2. Accuracy, regression slope and intercept, and MSE-based R<sup>2</sup> of DPIS with different filters and impactor pads compared to LCS by two sampling periods.

Period	Type	Average accuracy (%)	Slope	Intercept	MSE-based R <sup>2</sup>	RMSE	
2015. 11. 17~	DPIS_Tg (N=25)	87.42	0.85	6.34	0.93	4.20	
	2016. 2. 3	DPIS_To (N=24)	86.35	0.87	2.07	0.89	5.31
	(Total)	DPIS_Qg (N=25)	77.35	0.88	8.39	0.84	6.40
2016. 1. 10~	DPIS_Tg (N=9)	83.78	0.76	9.50	0.90	4.72	
	2016. 2. 3	DPIS_To (N=9)	88.88	0.83	3.36	0.91	4.62
	(Period 2)	DPIS_Qg (N=9)	78.35	0.78	11.19	0.82	4.86
		DPIS_Qo (N=9)	86.53	0.99	-1.42	0.91	6.40

MSE-based R<sup>2</sup> = Mean Square Error based R<sup>2</sup>, RMSE = Root Mean Square Error, DPIS = Deployable Particulate Impact Sampler, LCS = Low-volume Cyclone Sampler

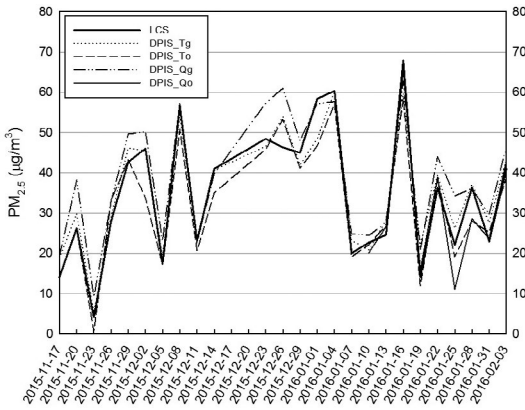


Fig. 4. Time series plot of 24-hour PM<sub>2.5</sub> concentrations collected by LCS and DPIS with different filters and impactor pads for 2015. 11. 17 ~ 2016. 2. 3 (DPIS\_Qo for 2016. 1. 10 ~ 2016. 2. 3).

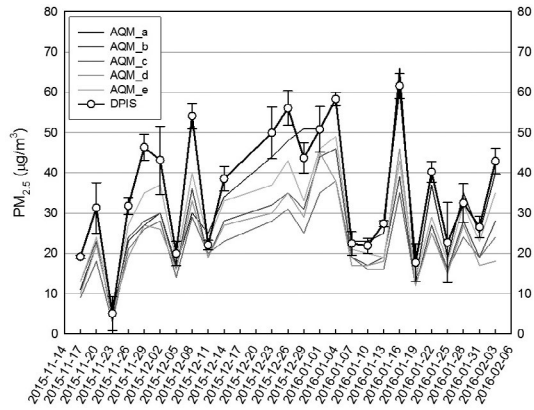


Fig. 5. Time series plot of 24-hour PM<sub>2.5</sub> concentrations collected by DPIS averaged four different DPISs (DPIS\_Tg, DPIS\_To, DPIS\_Qg, and DPIS\_Qo) with their error bar and five regulatory air quality monitoring sites (AQM) 'a' to 'e' indicating the closest to farthest monitor within 5 km from our sampling site in the Seoul National University Yeongseon campus, Seoul.

제외하고 비교적 높았다(그림 3). 특히 DPIS\_Qo는 상대적으로 회귀선의 기울기가 0.99, 그리고 절편이 -1.4로 LCS와 가장 유사하게 나타났다(0.99, 1.42). Period 2의 DPIS\_To는 회귀선의 기울기가 0.83, 그리고 절편이 3.4로 LCS에 비하여 다소 과소평가되었으나, 정확성이 88.88%로 가장 높고, LCS와의 평균 제곱근 오차(Root Mean Square Error, RMSE)가 4.62로 가장 작아 LCS와 가장 유사한 측정값을 나타내었다. DPIS의 충돌판으로 필터를 사용하였을 때, 채취 필터로 석영 필터를 사용하게 되면 채취 필터로 테플론 필터를 사용하였을 때에 비하여 정확도가 매우 낮아지는 경향을 보였다(DPIS\_Tg: 87.42%; DPIS\_Qg: 77.35%). 반면 DPIS의 충돌판을 기름칠 된 패드를 사용하게 되면, 채취 필터의 종류에 상관없이 높은 정확도를 나타내었다(DPIS\_To: 88.88%; DPIS\_Qo: 86.53%). 즉, 채취 필터로 테플론 필터를 사용하였을 때는 충돌판의 종류에 상관없이 비교적 높은 정확도를 보인 반면, 석영 필터를 채취 필터로 사용하게 되면 충돌판의 기름칠 여부가 정확성에 큰 영향을 미쳤다. 따라서 다양한 채취필터를 사용할 수 있는 샘플링 상황에서 정확도 높은 농도를 얻기 위해서는 기름칠한 패드를 사용하는 것이 적합하다고 판단할 수 있다.

측정 기간 중의 각 DPIS와 LCS의 질량 농도 변화를 그림 4와 같이 시계열 그래프로 나타낸 결과, 시간에 따른 농도의 높고 낮음이 비교적 유사하게 나타났다.

#### 4. 고 찰

PM<sub>2.5</sub> 농도는 주위 오염원에 영향을 받아 인접한 지역 간에도 차이가 나타날 수 있다. 특히 PM<sub>2.5</sub>의 개인 노출에 대한 건강영향을 분석하는 코호트 연구에서는 개개인의 장기간 PM<sub>2.5</sub> 노출 차이를 반영하는 PM<sub>2.5</sub>의 공간적 농도값의 차이를 잘 파악하는 것이 중요하지만, 현존하는 정부 대기오염측정망 자료로는 한계가 있는 실정이다. 이러한 한계를 저비용 고효율로 해결하기 위해서는 소형 샘플러의 동시다발적 공간 샘플링을 통해 공간적 해상도를 높이는 방법이 있다. 그러나 우리나라에서는 아직까지 필터 채취를 기반으로 하는 소형 샘플러로 대기 중 PM<sub>2.5</sub>를 채취한 연구 자료가 많지 않으며, 특히 이를 이용한 대규모 샘플링은 시행된 적이 없다. 본 연구에서는 DPIS를 이용하여 동시다발적 공간 샘플링을 위해 DPIS의 재현성 및 정확성을 탐색하였다. 그 결과, DPIS 재현성은 상대 정밀도 97.28%로 높았고, 정확성 또한 채취 필터 종류에 따라 DPIS\_Qg를 제외하고 84~89%로 전반적으로 높게 나타났다. 네 가지 필터 중에서는 기름칠한 플라스틱 패드와 함께 테플론이나 석영 채취 필터를 이용한 경우(DPIS\_To와 DPIS\_Qo)가 가장 높은 정확성(정확도:

88.88%, 86.53%; MSE  $R^2$ : 0.91)을 보였다.

본 연구결과는 우리나라에서 동시다발적 공간 샘플링을 위한 실용적인 정보를 제공한다. 검증용 샘플러인 LCS와의 비교에서 확인된 높은 정확성은 이후 샘플링에서 DPIS를 사용할 수 있는 가능성을 제시했다. 코호트 연구를 이용한  $PM_{2.5}$ 의 건강영향 평가를 위하여 공간적인  $PM_{2.5}$  샘플링은 필수적이지만, 우리나라에서는 아직 실시된 적이 없었다. 본 연구결과에서는 특히 석영 채취 필터의 정확성이 높게 나타나, 공간적인 차이가 큰  $PM_{2.5}$ 의 주요 구성성분인 탄소의 분석 가능성을 보였다. 탄소는 가솔린이나 디젤 차량 등의 연소 과정에서 다량 배출되는 물질로 알려져 있으며(U.S. EPA, 2005), 많은 대기오염 역학연구에서 건강에 악영향을 미치는 것으로 나타나 있다(Atkinson *et al.*, 2015; Lippmann, 2014). 석영 필터를 장착한 DPIS를 이용하면  $PM_{2.5}$ 와 탄소 성분의 공간적인 분포 파악과 건강영향 평가에 기여할 것으로 기대된다.

본 연구결과에서는 채취 필터와 충돌판 종류에 따라 정확성에 차이를 나타냈다. 특히 유리섬유 필터를 충돌판으로 사용한 DPIS\_Tg와 DPIS\_Qg는 LCS에 비하여 상대적으로 농도가 과다측정되어 각각의 평균 정확도는 각각 87%와 77%로 특히 DPIS\_Qg에서 상대적으로 낮게 나타났고, 기름칠한 패드를 충돌판으로 사용한 DPIS\_To와 DPIS\_Qo의 평균 정확도는 각각 89%, 87%로 나타나 전반적으로 DPIS\_Tg와 DPIS\_Qg에 비해 각각 2%, 10% 가량 정확도가 증가하였다. 기름칠을 하지 않은 충돌판을 사용하였을 때 정확도가 낮게 나타난 이유로는 샘플링 기간의 낮은 상대습도로 인한 입자 튕김(particle bounce) 현상을 들 수 있다. 수분이 포함된 입자는 필터에 잘 달라붙어 튕기지 않으나(Rao and Whitby, 1977), 습도가 70% 이하로 내려갈수록 튕김 현상은 증가하게 된다(Stein *et al.*, 1994).

실제 샘플링 기간 중  $PM_{2.5}$ 를 채취한 날의 평균 습도는 58.80(표준편차=13.57)%로 기간 내 꾸준히 감소하는 경향을 보였다. 따라서 이러한 입자 튕김 현상이 기름칠하지 않은 충돌판을 사용하였을 때 두드러지게 나타나 정확도가 낮아졌을 것이다. 특히 DPIS\_Qg에서 과다 측정의 정도가 큰 이유는 채취 필터로 사용한 석영 필터의 친수성 재질로 인해(Zdziennicka *et al.*, 2009), 충돌판에서 튕겨진 거대 입자에 함유된 수분의 영향을 받은 것으로 설명할 수 있다. 석영 필터는 이렇

게 수분에 취약한 특성과 더불어 테플론 필터에 비하여 취급 시 손상이 쉬워 질량농도 측정에 보편적으로 쓰이지 않는다. 그럼에도 불구하고 하나의 샘플러를 최대한 활용하여 질량농도 측정 및 OC/EC 분석을 모두 가능하게 하기 위해서는 석영 필터를 사용하는 것이 비용 효율적이다. 기존 연구에서는 시료 채취 후 충분히 건조하고 칭량 시 주의한 결과 석영 필터가 신뢰 가능한 중량측정 값을 제공하였다(Charrier and Weitz, 1998).

본 연구에서는 동시다발적 공간 샘플링에서 안정된  $PM_{2.5}$ 을 획득하고 동시에 구성성분을 측정하고자  $PM_{2.5}$  측정법으로 중량측정법을 이용하였다. 우리나라 환경부에서 운영하는 도시대기측정소에서는  $PM_{2.5}$  측정에 있어, 베타선 방식( $\beta$ -ray Attenuation Method, BAM)을 이용한 자동측정장치(BAM-1020)를 사용하고 있다(그림 1(c)). 본 연구에서는 DPIS와 정부 대기오염측정망의 BAM과의 상관성을 탐색하고자, 근접한 대기오염측정망 측정소에서 측정된  $PM_{2.5}$  자료를 이용하였다. 대기오염측정망 측정소는 본 연구의 샘플링 장소로부터 반경 5 km 이내에 위치한 5곳(종로구, 중구, 성북구, 동대문구, 용산구 측정소)을 선정하였다. 정부 측정소 자료의 24시간 평균과 네 가지 DPIS들의 24시간 측정값의 평균을 시간별로 나타낸 결과, 값의 높고 낮은 경향은 비교적 유사하게 나타났다(그림 5). 그러나 측정 기간 중의 대부분 날에서 DPIS의 측정값이 정부 측정값에 비해 높았다. 이러한 차이는 서로 다른 측정방식에서 기인한 것으로 보이며, 추후 장기 측정을 통해 차이의 원인규명 및 보정계수 개발이 필요하다.

본 연구는 2015년 11월부터 2016년 2월까지 겨울에만 진행되었고, 한 장소에서만 샘플링을 하였다는 한계가 있다. 하지만 우리나라에서는  $PM_{2.5}$ 의 계절적 경향에서 겨울에 높은 농도를 보이기 때문에, 본 연구에서 한 계절에 제한된 샘플링에도 불구하고 비교적 넓은 범위의 질량농도 값을 얻을 수 있었다. 또한, 우리나라에서 10년 이상 장기간 샘플링에 이용된 검증된 샘플러와의 비교를 위해, 제한된 측정 장소를 이용하였다. 추후 연구에서는 샘플링 기간을 연장하여 샘플 수를 늘려 비교하는 것이 필요하며, 다른 종류의 샘플러와의 비교 또한 필요하다.

본 연구에서는 정밀도 측정을 위해 동일한 샘플러 2



대(duplicate)를 이용하였다. 미국 환경청(U.S. EPA)에서는 국가기준측정법과 동등한 방법(Federal Equivalent Method)임을 입증을 위한 조건으로, 동일한 유형의 샘플러 3대(triplicate)로 동시 측정하여 정밀도를 구할 것을 제시하고 있다(U.S. EPA, 2002). 그러나 본 연구에서는 정밀도 측정의 최소 조건을 만족하기 위해 duplicate를 사용하였으며, 본 연구와 같이 정밀도를 측정한 다수의 연구결과가 존재한다(Chen *et al.*, 2011; Hyslop and White, 2009; Smargiassi *et al.*, 2005; Yanosky and MacIntosh, 2001; Babich *et al.*, 2000).

## 5. 결 론

본 연구에서는 PM<sub>2.5</sub>의 대규모 공간적인 샘플링을 위해 사용할 소형 샘플러로서 DPIS의 재현성 및 정확성을 판단하였다. 정확성은 검증된 샘플러인 LCS와의 비교 측정을 통해서 탐색했다. 본 연구결과는 다양한 채취 필터와 충돌판에 따른 비교 결과를 제시함으로써, 샘플링에서 실질적으로 사용할 이상적인 조합을 제안하였다. 본 연구는 대규모 공간 샘플링에 대한 DPIS의 적용 가능성을 제시함으로써, 추후 미세먼지로 인한 사람들의 건강영향 연구에 기여할 것으로 기대된다.

## 감사의 글

본 연구는 2013년 교육부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업(과제번호: 2013R1A6A3A04059017)의 일환으로 수행되었습니다.

## References

- Atkinson, R.W., S. Kang, H.R. Anderson, I.C. Mills, and H.A. Walton (2014) Epidemiological time series studies of PM<sub>2.5</sub> and daily mortality and hospital admissions: a systematic review and meta-analysis, *Thorax*, doi:10.1136/thoraxjnl-2013-204492.
- Atkinson, R.W., I.C. Mills, H.A. Walton, and H.R. Anderson (2015) Fine particle components and health-a systematic review and meta-analysis of epidemiological time series studies of daily mortality and hospital admissions, *Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology*, 25(2), 208-214.
- Babich, P., M. Davey, G. Allen, and P. Koutrakis (2000) Method comparisons for particulate nitrate, elemental carbon, and PM<sub>2.5</sub> mass in seven US cities, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 50(7), 1095-1105.
- Baldauf, R.W., D.D. Lane, G.A. Marotz, and R.W. Wiener (2001) Performance evaluation of the portable Mini-VOL particulate matter sampler, *Atmospheric Environment*, 35(35), 6087-6091.
- Beelen, R., O. Raaschou-Nielsen, M. Stafoggia, Z.J. Andersen, G. Weinmayr, B. Hoffmann, K. Wolf, E. Samoli, P. Fischer, M. Nieuwenhuijsen, P. Vineis, W.W. Xun, K. Katsouyanni, K. Dimakopoulou, A. Oudin, B. Forsberg, L. Modig, A.S. Havulinna, T. Lanki, A. Turunen, B. Oftedal, W. Nystad, P. Nafstad, U. De Faire, N.L. Pedersen, C.G. Ostenson, L. Fratiglioni, J. Penell, M. Korek, G. Pershagen, K.T. Eriksen, K. Overvad, T. Ellermann, M. Eeftens, P.H. Peeters, K. Meliefste, M. Wang, B. Bueno-de-Mesquita, D. Sugiri, U. Kramer, J. Heinrich, K. de Hoogh, T. Key, A. Peters, R. Hampel, H. Concin, G. Nagel, A. Ineichen, E. Schaffner, N. Probst-Hensch, N. Künzli, C. Schindler, T. Schikowski, M. Adam, H. Phuleria, A. Vilier, F. Clavel-Chapelon, C. Declercq, S. Grioni, V. Krogh, M.Y. Tsai, F. Ricceri, C. Sacerdote, C. Galassi, E. Migliore, A. Ranzi, G. Cesaroni, C. Badaloni, F. Forastiere, I. Tamayo, P. Amiano, M. Dorronsoro, M. Katsoulis, A. Trichopoulou, B. Brunekreef, and G. Hoek (2014) Effects of long-term exposure to air pollution on natural-cause mortality: an analysis of 22 European cohorts within the multicentre ESCAPE project, *Lancet*, 383(9919), 785-795.
- Bell, M.L., F. Dominici, K. Ebisu, S.L. Zeger, and J.M. Samet (2007) Spatial and temporal variation in PM<sub>2.5</sub> chemical composition in the United States for health effects studies, *Environmental Health Perspectives*, 989-995.
- Brown, A.S., R.E. Yardley, P.G. Quincey, and D.M. Butterfield (2006) Studies of the effect of humidity and other factors on some different filter materials used for gravimetric measurements of ambient particulate matter, *Atmospheric Environment*, 40(25), 4670-4678.

- Case, M.W., R. Williams, K. Yeatts, F.L. Chen, J. Scott, E. Svendsen, and R.B. Devlin (2008) Evaluation of a direct personal coarse particulate matter monitor, *Atmospheric Environment*, 42(19), 4446-4452.
- Chartier, K.L. and M.A. Weitz (1998). A comparison of filter types in the collection and gravimetric determination of airborne particulate matter less than 2.5 microns ( $PM_{2.5}$ ). *Journal of the Air and Waste Management Association*, 48(12), 1199-1203.
- Chen, F.L., R. Vanderpool, R. Williams, F. Dimmick, B.D. Grover, R. Long, and R. Murdoch (2011) Field evaluation of portable and central site PM samplers emphasizing additive and differential mass concentration estimates, *Atmospheric Environment*, 45(26), 4522-4527.
- Cohen, M.A., S.D. Adar, R.W. Allen, E. Avol, C.L. Curl, T. Gould, D. Hardie, A. Ho, P. Kinney, T.V. Larson, P. Sampson, L. Sheppard, K.D. Stukovsky, S.S. Swan, L.-J.S. Liu, and J.D. Kaufman (2009) Approach to estimating participant pollutant exposures in the Multi-Ethnic Study of Atherosclerosis and air pollution (MESA air), *Environmental Science and Technology*, 43(13), 4687-4693.
- Eeftens, M., R. Beelen, K. de Hoogh, T. Bellander, G. Cesaroni, M. Cirach, C. Declercq, E. Dons, A. de Nazelle, K. Dimakopoulou, K. Eriksen, G. Falq, P. Fischer, C. Galassi, R. Grazuleviciene, J. Heinrich, B. Hoffmann, M. Jerrett, D. Keidel, M. Korek, T. Lanki, S. Lindley, C. Madsen, A. Mölter, G. Nádor, M. Nieuwenhuijsen, M. Nonnemacher, X. Pedeli, O. Raaschou-Nielsen, E. Patelarou, U. Quass, A. Ranzi, C. Schindler, M. Stempfelet, E. Stephanou, D. Sugiri, M.Y. Tsai, T. Yli-Tuomi, M.J. Varró, D. Vienneau, S.V. Klot, K. Wolf, B. Brunekreef, and G. Hoek (2012) Development of land use regression models for  $PM_{2.5}$ ,  $PM_{2.5}$  absorbance,  $PM_{10}$  and PM coarse in 20 European study areas; results of the ESCAPE project, *Environmental Science and Technology*, 46(20), 11195-11205.
- Franklin, M., A. Zeka, and J. Schwartz (2007) Association between  $PM_{2.5}$  and all-cause and specific-cause mortality in 27 US communities, *Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology*, 17(3), 279-287.
- Gupta, T. and S. Dubey (2011) Field performance evaluation of a newly developed  $PM_{2.5}$  sampler at IIT Kanpur, *Science of the Total Environment*, 409(18), 3500-3507.
- Heo, J., J.J. Schauer, O. Yi, D. Paek, H. Kim, and S.M. Yi (2014) Fine particle air pollution and mortality: importance of specific sources and chemical species, *Epidemiology*, 25(3), 379-388.
- Heo, J.B., P.K. Hopke, and S.M. Yi (2009) Source apportionment of  $PM_{2.5}$  in Seoul, Korea, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(14), 4957-4971.
- Hoek, G., R. Beelen, K. De Hoogh, D. Vienneau, J. Gulliver, P. Fischer, and D. Briggs (2008) A review of land-use regression models to assess spatial variation of outdoor air pollution, *Atmospheric Environment*, 42(33), 7561-7578.
- Hyslop, N.P. and W.H. White (2009) Estimating precision using duplicate measurements, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 59(9), 1032-1039.
- Jetter, J.J., Z. Guo, J.A. McBrián, and M.R. Flynn (2002) Characterization of emissions from burning incense, *Science of the Total Environment*, 295(1), 51-67.
- Jerrett, M., R.T. Burnett, R. Ma, C.A. Pope III, D. Krewski, K.B. Newbold, G. Thurston, Y. Shi, N. Finkelstein, E.E. Calle, and M.J. Thun (2005) Spatial analysis of air pollution and mortality in Los Angeles, *Epidemiology*, 16(6), 727-736.
- Joly, A., A. Smargiassi, T. Kosatsky, M. Fournier, E. Dabek-Zlotorzynska, V. Celó, D. Mathieu, R. Servranckx, R. D'amours, A. Malo, and J. Brook (2010) Characterisation of particulate exposure during fireworks displays, *Atmospheric Environment*, 44(34), 4325-4329.
- Jung, C.R., Y.T. Lin, and B.F. Hwang (2015) Ozone, particulate matter, and newly diagnosed Alzheimer's disease: A population-based cohort study in Taiwan, *Journal of Alzheimer's Disease*, 44(2), 573-584.
- Keller, J.P., C. Olives, S.-Y. Kim, L. Sheppard, P.D. Sampson, A.A. Szpiro, A.P. Oron, J. Lindström, S. Vedal, and J.D. Kaufman (2015) A unified spatiotemporal modeling approach for predicting concentrations of multiple air pollutants in the multi-ethnic study of atherosclerosis and air pollution, *Environmental Health Perspectives (Online)*, 123(4), 301, doi:10.1289/ehp.1408145.
- Kim, H.S., J.B. Huh, P.K. Hopke, T.M. Holsen, and S.M. Yi (2007) Characteristics of the major chemical constituents of  $PM_{2.5}$  and smog events in Seoul, Korea in 2003 and 2004, *Atmospheric Environment*, 41(32), 6762-6770.
- Kim, K.N., Y.H. Lim, H.J. Bae, M. Kim, K. Jung, and Y.C. Hong (2016a) Long-term fine particulate matter

- exposure and major depressive disorder in a community-based urban cohort, *Environmental Health Perspectives*, 124(10), 1547-1553.
- Kim, S.Y., L. Sheppard, S. Bergen, A.A. Szpiro, P.D. Sampson, J.D. Kaufman, and S. Vedal (2016b) Prediction of fine particulate matter chemical components with a spatio-temporal model for the Multi-Ethnic Study of Atherosclerosis cohort, *Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology*, 26(5), 520-528.
- Kunzli, N. and I.B. Tager (1997) The semi-individual study in air pollution epidemiology: a valid design as compared to ecologic studies, *Environmental Health Perspectives*, 105(10), 1078-1083.
- Laden, F., J. Schwartz, F.E. Speizer, and D.W. Dockery (2006) Reduction in fine particulate air pollution and mortality: extended follow-up of the Harvard Six Cities study, *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine*, 173(6), 667-672.
- Lee, K., Y.J. Kim, C.H. Kang, J.S. Kim, L.S. Chang, and K. Park (2015) Chemical characteristics of long-range-transported fine particulate matter at Gosan, Jeju Island, in the spring and fall of 2008, 2009, 2011, and 2012, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 65(4), 445-454.
- Lippmann, M. (2014) Toxicological and epidemiological studies of cardiovascular effects of ambient air fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) and its chemical components: coherence and public health implications, *Critical Reviews in Toxicology*, 44(4), 299-347.
- Okamura, T., T. Kadowaki, T. Hayakawa, Y. Kita, A. Okayama, and H. Ueshima (2003) What cause of mortality can we predict by cholesterol screening in the Japanese general population?, *Journal of Internal Medicine*, 253(2), 169-180.
- Park, S.S., Y.J. Kim, and C.H. Kang (2007) Polycyclic aromatic hydrocarbons in bulk PM<sub>2.5</sub> and size-segregated aerosol particle samples measured in an urban environment, *Environmental Monitoring and Assessment*, 128(1), 231-240.
- Patterson, S.L., J.A. Rusiecki, S.L. Barnes, J.M. Heller, J.B. Sutphin, and T.A. Kluchinsky Jr. (2010) Effectiveness, suitability, and performance testing of the SKC® Deployable Particulate Sampler (DPS) as compared to the currently deployed Airmetrics (TM) MiniVol (TM) Portable Air Sampler, *Journal of Environmental Health*, 73(3), 16-22.
- Perrino, C., S. Canepari, and M. Catrambone (2013) Comparing the performance of Teflon and quartz membrane filters collecting atmospheric PM: influence of atmospheric water, *Aerosol and Air Quality Research*, 13, 137-147.
- Pinto, J.P., A.S. Lefohn, and D.S. Shadwick (2004) Spatial variability of PM<sub>2.5</sub> in urban areas in the United States, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 54(4), 440-449.
- Pope III, C.A., R.T. Burnett, M.J. Thun, E.E. Calle, D. Krewski, K. Ito, and G.D. Thurston (2002) Lung cancer, cardiopulmonary mortality, and long-term exposure to fine particulate air pollution, *Jama*, 287(9), 1132-1141.
- Pope III, C.A. and D.W. Dockery (2006) Health effects of fine particulate air pollution: lines that connect, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 56(6), 709-742.
- Pope III, C.A., R.T. Burnett, M.C. Turner, A. Cohen, D. Krewski, M. Jerrett, S.M. Gapstur, and M.J. Thun (2011) Lung cancer and cardiovascular disease mortality associated with ambient air pollution and cigarette smoke: shape of the exposure-response relationships, *Environmental Health Perspectives*, 119(11), 1616-1621.
- Rao, A.K. and K.T. Whitby (1977) Nonideal collection characteristics of single stage and cascade impactors, *American Industrial Hygiene Association Journal*, 38(4), 174-179.
- Smargiassi, A., M. Baldwin, C. Pilger, R. Dugandzic, and M. Brauer (2005) Small-scale spatial variability of particle concentrations and traffic levels in Montreal: a pilot study, *Science of the Total Environment*, 338(3), 243-251.
- Son, J., M. Bell, and J.T. Lee (2011) Survival analysis to estimate the association between long-term exposure to different sizes of airborne particulate matter and risk of infant mortality using a birth cohort in Seoul, Korea, *Epidemiology*, 22(1), S166-S167.
- Stein, S.W., B.J. Turpin, X. Cai, P.F. Huang, and P.H. McMurry (1994) Measurements of relative humidity-dependent bounce and density for atmospheric particles using the DMA-impactor technique, *Atmospheric Environment*, 28(10), 1739-1746.
- Szpiro, A.A., P.D. Sampson, L. Sheppard, T. Lumley, S.D. Adar, and J.D. Kaufman (2010) Predicting intra-urban variation in air pollution concentrations with complex spatio-temporal dependencies, *Environmetrics*, 21(6), 606-631.
- Szpiro, A.A., C.J. Paciorek, and L. Sheppard (2011) Does more

- accurate exposure prediction necessarily improve health effect estimates?, *Epidemiology*, 22(5), 680-685.
- Turner, M.C., D. Krewski, C.A. Pope III, Y. Chen, S.M. Gapsur, and M.J. Thun (2011) Long-term ambient fine particulate matter air pollution and lung cancer in a large cohort of never-smokers, *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine*, 184(12), 1374-1381.
- Ueda, K., S.-Y. Nagasawa, H. Nitta, K. Miura, and H. Ueshima (2012) Exposure to particulate matter and long-term risk of cardiovascular mortality in Japan: NIPPON DATA80, *Journal of Atherosclerosis and Thrombosis*, 19(3), 246-254.
- U.S. EPA (2002) Ambient Air Monitoring Reference and Equivalent Methods, 40 CFR Part 53.
- U.S. EPA (2005) Emission Facts: Average Carbon Dioxide Emissions Resulting from Gasoline and Diesel Fuel, EPA420-F-05-001.
- U.S. EPA (2006) Reference Method for the Determination of Fine Particulate Matter as PM<sub>2.5</sub> in the Atmosphere, 40 CFR Part 50, Appendix L.
- WHO (2013) Outdoor air pollution a leading environmental cause of cancer deaths, [http://www.iarc.fr/en/media-centre/iarcnews/pdf/pr221\\_E.pdf](http://www.iarc.fr/en/media-centre/iarcnews/pdf/pr221_E.pdf) (accessed on Jan. 13, 2017).
- Yanosky, J.D. and D.L. MacIntosh (2001) A comparison of four gravimetric fine particle sampling methods, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 51(6), 878-884.
- Zdziennicka, A., K. Szymczyk, and B. Jańczuk (2009) Correlation between surface free energy of quartz and its wettability by aqueous solutions of nonionic, anionic and cationic surfactants, *Journal of Colloid and Interface Science*, 340(2), 243-248.