

대기 수송중 암모니아의 암모늄염으로의 전환속도

金熙江*† · 橋本芳一 · 李龍根**

日本 慶應義塾大學 理工學部 應用化學科

**延世大學校 理科學 化學科

(1981. 11. 13 接受)

Conversion Rate of Gaseous Ammonia to Particulate Ammonium During Atmospheric Transport

Hui-Kang Kim*†, Y. Hashimoto and Yong-Kuen Lee**

Department of Applied Chemistry, Keio University,
Hiyoshi Yokohama 223, Japan

**Department of Chemistry, Yonsei University, Seoul 120, Korea

(Received Nov. 13, 1981)

요 약. 요소공장의 굴뚝에서 방출되는 가스상 암모니아와 입자상 암모늄을 측정하여 대기중에서 암모니아가 암모늄으로 전환되는 속도를 추정하였다. 암모니아가 암모늄으로 전환되는 것은 대기중에서의 수송시간에 따라 2 단계로 나누어진다. 수송 초기 15분동안의 전환속도는 $3.2\% \text{min}^{-1}$ 이고 그 후는 $0.26\% \text{min}^{-1}$ 이었다. 수송 초기단계에서 전환속도가 빠른 것은 굴뚝에서 방출된 유출가스의 온도강하에 의하여 생성된 물방울에 암모니아가 용해하고, 또 이 알칼리성 물방울에서 요소가 분해반응을 일으킴으로써 암모늄의 농도가 급격히 증가하였기 때문인 것으로 추정되었다. 암모니아 가스의 반감기는 수송 초기단계에서 약 16분이고, 그 후는 192분이었다. 측정기간에 있어서 입자상 암모늄염과 대기온도, 상대습도, 이산화황, 질소산화물 및 부유분진 농도와는 상관관계가 관찰되지 않았다.

ABSTRACT. The concentrations of gaseous ammonia and particulate ammonium emitted from a urea plant were measured, and the conversion rate of ammonia to ammonium was estimated. The conversion of ammonia to ammonium has two stages with transport time in the atmosphere. In the initial 15 min the conversion rate was $3.2\% \text{min}^{-1}$, and thereafter $0.26\% \text{min}^{-1}$. The high conversion rate of ammonia to ammonium at the initial period of its transport might be due to the dissolution of ammonia into water droplets formed by the decrease in temperature of the stack effluent. The concentration of ammonium is further increased by the decomposition of urea in alkaline droplet formed. Half-lives of ammonia gas at initial and latter stage were 16 min and 192 min respectively. No correlation of particulate ammonium concentration to temperature, relative humidity, and concentrations of sulfur dioxide, nitrogen oxides and airborne particulate matter were found in this field measurement.

* 建國大學校 工科學 環境工學科

1. 서 론

대기중의 암모니아 가스는 주로 토양중의 유기화합물이 박테리아의 작용에 의하여 분해되어 생성된 것이며 그 농도는 매우 낮은 것(5~10 ppb)으로 알려져 있다. 1^{-3} 가스상 암모니아는 대기중에서 수분의 존재하에 이산화황 및 이산화질소와 같은 산성가스와 반응하거나 황산 및 질산의 mist와 중화반응을 하며 또는 물방울속에 녹아서 암모늄염으로 전환된다.^{4,7} 대기중의 암모니아 가스의 채취식 분석법은 산성용액에 공기를 1~2l/min의 유량으로 통과시켜 암모니아를 포집하였다. 그러나 이 방법은 공업지대에서도 수시간의 포집시간을 필요로 하며 따라서 대기중의 암모니아 농도의 경시변화를 관측할 수 없을 뿐 아니라 암모니아와 다른 산성의 가스상 오염물과도 비교하기 어렵다.

최근, 저자들은 붕산과 글리세린의 혼합액으로 처리한 필터와 Polycarbonate 필터를 사용하여 대기중의 가스상 암모니아와 입자상 암모늄염을 동시에 짧은 시간에 포집할 수 있는 방법을 개발하였다.⁸

대기중에서 황산염의 생성기구를 구명하기 위하여 발전소의 굴뚝에서 방출되는 배출가스중의 이산화황과 황산염을 측정할 연구는 많이 발표되어 있다.⁹⁻¹¹ 그러나 가스상 암모니아는 대기중에서 이산화황 및 이산화질소등의 산성가스를 중화하는 중요한 역할을 함에도 불구하고 그 분석방법이 적합하지 못하기 때문에 대기중에서의 암모늄으로의 전환에 관한 연구는 아직 이루어지지 않고 있다.

본 연구에서는 일본의 동북부에 있는 Niigata 시의 교외에 위치한 한 요소공장을 암모니아의 발생원으로 선택하여 대기중에서 암모니아가 암모늄염으로 전환되는 기구를 조사하였다. 또한 기상 상태와 이산화황, 이산화질소 및 부유분진의 농도도 동시에 측정하여 암모니아의 전환속도에 대한 영향을 검토하였다.

2. 실 험

2.1 장치 및 시약

필터홀더(filter holder) : Nuclepore 제(유효여

과지름 43 mm)

유량측정 기구 : Kusano Co., flow meter FT-1/8-4-150 및 FT-3/8-4-150 형

분광광도계 : Tokyo Photoelectric Co., ANA-72형

3% 붕산-25% 글리세린 혼합액, 페놀-니트로프루시드나트륨용액, 하이포아염소산나트륨용액 등의 모든 시약들은 전보⁸에 준하여 조제하였다.

2.2 측정지점의 개요

암모니아 가스의 발생원인 요소공장은 Niigata 시 동쪽의 교외에 위치하고 있으며 발생원의 서측에 Agano 강이 흐르고 있다. 이 공장은 570 ton/day의 암모니아 및 600 ton/day의 요소를 생산하고 있다. 발생원과 측정지점 사이에는 농경지와 삼림지가 산재해 있으며 하수처리장, 목장 및 발전소와 같은 암모니아의 대량 발생원은 없다. 발생원 및 측정지점의 배치도를 Fig. 1에 나타내었다. 측정지점은 발생원에서 방출되는 암모니아 및 암모늄염의 농도가 수송시간에 따라 다를 것으로 예상되는 4개의 지점을 선택하되, 발생원으로부터의 풍향을 고려하여 A-B 방향(A: SSW 1 km, B: SSW 4 km)과 C-D 방향(C: ESE 1.5 km, D: SE 5 km)의 두 방향으로 구분하여 선정하였다. 측정기간중 A-B 방향에의 풍향빈도는 약 40%였다. A 측정지점에서 측

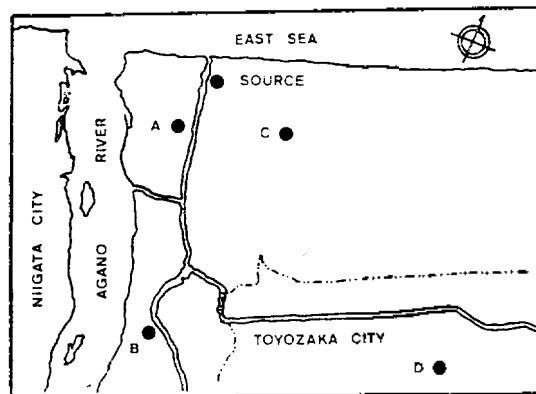


Fig. 1. Map of sampling stations.

Sampling point	Distances from the source
A	1.0 km
B	4.0
C	1.5
D	5.0

Table 1. Meteorological data.

Run no.	Date, 1980	Time hr	Wind direction	Wind velocity m/s	Temp. °C	Relative humidity %	[SO ₂] ppb	[NO _x] ppb	[SP]* μg/m ³	Weather condition
1	4/15	10~13	N-NNE	2.7	7.1	64.0	4.0	7.0	16.5	Cloudy
2		13~17	N-NNW	3.2**	6.6	59.3	3.3	6.3	14.0	Cloudy
3		17~10	NNE	1.7**	4.9	75.0	5.1	22.5	29.7	Clear
4	4/16	10~13	N-NNE	3.2	8.2	51.8	6.3	7.3	17.3	Clear
5		13~17	N-NNE	4.8	7.8	56.0	4.0	5.0	15.3	Clear
6	4/17	17~10	NNE	4.0	6.5	77.0	4.4	13.4	25.5	Cloudy
7		10~13	NNE	1.6	6.2	90.5	4.8	38.0	46.3	Rainy
8		13~17	NW-NNE	1.4**	8.6	68.8	6.0	18.8	19.3	Cloudy
9		17~10	NW-NNE	2.1**	6.4	77.3	5.0	17.3	22.6	Clear to rainy
Average				2.7	6.9	68.9	4.8	15.1	22.9	
S.D. (σ)				±1.2	±1.1	±12.3	±1.0	±10.6	±9.8	

*Suspended particulate matter. ** In the C-D line, wind velocity is 3.2 ± 0.1 for run 2, 2 ± 0.3 for run 3, 1.3 ± 0.2 for run 8 and 2.2 ± 0.6 for run 9.

정한 평균풍속, 온도 및 상대습도는 각각 2.5 m/s, 6.9°C 및 69%였다. 참고로 Table 1에 측정기간중의 기상자료를 기재하였다.

2.3 측정 및 분석

1980년 4월 15일부터 17일까지 1일 3회씩 3일만에 걸쳐 선정된 4개 측정지점에서 동시에 측정하였다. 대기는 2단의 필터홀더를 사용하여 10 l/min의 유량으로 포집하였다. 1단계에 polycarbonate 필터 (Nuclepore, 0.6 μm pore)를 장착하여 입자상 암모늄염을, 그리고 2단계에 3% 붕산-25% 글리세린의 혼합액으로 처리한 유리섬유 필터 (Toyo GB-100R)을 장착하여 가스상 암모니아를 포집하였다.⁸ 필터중에 함유되어 있는 암모늄이온을 제거하기 위하여 유리섬유 필터는 사용전에 증류수로 충분히 씻고 전기로에서 120°C로 가열하여 건조하였다.¹² 포집한 암모니아 및 암모늄염은 증류수 10 l/min로 포집필터로부터 추출하여 흡인 여과한 후, 인도페놀법에 의한 흡광광도법¹²으로 분석하고 암모니아의 전환속도는 암모니아와 암모늄염 농도의 측정값으로부터 계산하였다. 또한 이산화황은 용액전도도식 자동측정장치 (Tokyo Kogyo, GRH-73), 질소산화물 (NO+NO₂)는 Saltzmann 식 자

동측정장치 (Yanagimoto KK, TGA-202), 그리고 부유분진 (Suspended Particulate)은 광산란식 자동측정장치 (Sibata Chemicals, AP-632)를 각각 사용하여 1시간 간격으로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 암모니아 및 암모늄의 농도

Table 2에 조사기간중에 각 측정점에서 측정된 암모니아 및 암모늄염의 농도를 나타내었다. 측정지점 A 및 B에서의 암모니아의 평균농도 및 표준편차(σ_x)는 5.98 ± 1.97 및 $2.22 \pm 0.39 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이며 전 암모니아 (NH₃), (NH₃+NH₄⁺)의 농도는 각각 8.09 ± 2.04 및 $4.42 \pm 0.48 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 이었다. 암모니아 농도는 A-B 방향으로의 수송과정중에 암모늄염으로의 전환 및 지면에서의 침강등에 의하여 감소되었음을 보여주고 있다. 한편, 측정지점 A 및 B에서의 암모늄염 농도의 경우는 각각 2.23 ± 0.22 및 $2.33 \pm 0.26 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 거의 같은 값을 나타내었다. 이는 수송 과정중에 암모늄의 생성에 의한 농도증가와 확산 및 침강에 의한 농도 감소가 균형을 이루었기 때문으로 추측된다. 그리고 측정기간중에 발생원으로부터 C-D 방향으로 풍향을 나타낸 것

Table 2. Concentrations of ammonia and ammonium. ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

Run no.	Time hr	(NH ₃)	(NH ₄ ⁺)	(NH ₃) [*]	$\frac{(\text{NH}_4^+)^*}{(\text{NH}_3)_t}$	Trans time min	(NH ₃)	(NH ₄ ⁺)	(NH ₃) [*]	$\frac{(\text{NH}_4^+)^*}{(\text{NH}_3)_t}$	Trans time min
						A					
1	10~13	3.35	3.48	6.64	0.50	6.2±0.7	1.37	1.92	3.18	0.57	24.6± 2.9
2	13~17	3.12	1.66	4.69	0.33	5.2±0.9	1.60	1.78	3.28	0.51	23.0± 3.4
3	17~10	1.93	2.33	4.13	0.53	9.8±2.5	1.43	2.17	3.48	0.59	39.2± 9.8
4	10~13	7.68	1.95	9.52	0.19	5.2±1.4	2.32	1.93	4.14	0.44	20.8± 5.5
5	13~17	1.25	1.38	2.55	0.51	3.5±0.3	1.40	1.88	3.18	0.56	13.6± 1.3
6	17~10	20.66	2.78	23.29	0.11	4.3±0.7	2.25	4.27	6.28	0.64	16.7± 2.9
7	10~13	5.77	2.67	8.29	0.30	10.8±0.5	2.24	3.40	5.45	0.59	41.7± 1.9
8	13~17	3.61	2.01	5.51	0.34	11.9±2.5	2.85	1.76	4.51	0.37	47.6± 9.8
9	17~10	6.44	1.81	8.15	0.21	7.9±2.6	1.29	2.05	3.23	0.60	31.7±10.6
Average		5.98	2.23	8.09	0.34	7.04	2.22	2.33	4.42	0.51	28.17
Stand. errors**		1.97	0.22	2.04	0.05	0.18	0.39	0.26	0.48	0.04	2.22
S.D. (σ)		5.90	0.65	6.12	0.15	3.13	1.24	0.83	1.51	0.12	12.53
						C					
1	10~13	2.73	1.39	4.04	0.32		—	—	—	—	—
2	13~17	1.10	1.01	2.05	0.46	7.9±0.4	0.86	2.06	2.81	0.69	26.1±1.1
3	17~10	0.76	1.19	2.18	0.65	12.7±1.8	1.02	1.49	2.43	0.58	42.1±5.9
4	10~13	1.33	1.33	2.59	0.49		0.79	1.88	2.75	0.65	
5	13~17	0.81	0.86	1.62	0.50		0.70	1.61	2.25	0.68	
6	17~10	1.80	0.24	2.03	0.11		1.77	1.95	3.61	0.51	
7	10~13	0.93	1.85	2.68	0.65		1.69	1.88	3.47	0.51	
8	13~17	5.13	2.48	7.47	0.31	20.3±3.4	3.31	2.55	5.72	0.42	67.7±11.5
9	17~10	1.15	1.18	2.26	0.49	12.2±3.6	0.57	1.08	1.59	0.64	40.6±12.0
Average		1.75	1.28	2.99	0.44	13.24	1.35	1.88	3.13	0.59	44.10
Stand. errors**		0.47	0.21	0.60	0.06	1.82	0.28	0.15	0.39	0.03	6.07
S.D. (σ)		1.41	0.63	1.81	0.17	5.19	0.84	0.45	1.18	0.09	17.33
						D					

* $(\text{NH}_3)_t$: total ammonium as NH_3 , (NH_4^+) counted as (NH_3) . ** $\sigma_x = 1/\sqrt{n} \cdot \sigma$

은 측정번호 2, 3, 8 및 9였으며 이 방향에서의 암모니아의 전환속도의 계산에는 이들 4개의 측정값만을 사용하기로 하였다. 측정지점 C 및 D에서의 암모니아의 평균 농도는 각각 2.04±

1.04 및 1.44±0.63 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 이며, 암모니아 농도는 수송기간중에 감소를 나타내었다. 또한 C 및 D에서의 암모늄농도는 각각 1.47±0.34 및 1.80±0.32 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로써 A-B 방향에서와 동일하

계 양측정지점에서는 거의 같은 농도를 보여 주었다.

측정기간인 4월 중순은 평균기온이 6.9 ± 1.1 °C로서 한냉한 기온이었기 때문에 농번기 이전이므로 농지에는 비료가 시비되지 않았으며 따라서 토양으로부터 암모니아가 방출되어 환경대기에 기여한 양은 거의 없을 것으로 추정되었다. 또한 토양에서 방출된 암모니아는 풀잎 등에 흡착되므로써 지상 높이에 따라 농도가 급속히 감소된다. Denmead¹³⁻¹⁴는 토양에서 방출되는 암모니아 농도에 따라 다르나, 지상높이 20~70 cm 이상에서는 토양에서 방출되는 암모니아의 영향이 그다지 크지 않다고 보고하였다. 이번 실험에서는 지상 2~10 m 높이에서 측정되었으므로 토양에서 방출된 암모니아에 의한 영향은 매우 적은 것으로 추측된다.

3.2 수송과정중의 암모니아의 전환

Fig. 2는 전암모니아 $(\text{NH}_3)_t$ ($(\text{NH}_3) + (\text{NH}_4^+)$)에 대한 암모늄 (NH_4^+) 의 농도비를 대기에서의 수송시간의 함수로서 나타낸 것이다. 여기에서 수송시간은 발생원에서 방출되는 유독가스가 측정지점에 도달하는 시간이며, 이것은 측정지점 A에서 측정된 풍속에 의하여 계산되었다. Fig. 2는 수송과정중에 암모니아가 점차 암모늄으로 전환되고 있음을 보여주고 있다. 그러나 암모니아의 전환은 수송시간에 따라 두 단계로 나뉘어짐을 알 수 있다. 즉, 암모니아의 전환은 발생

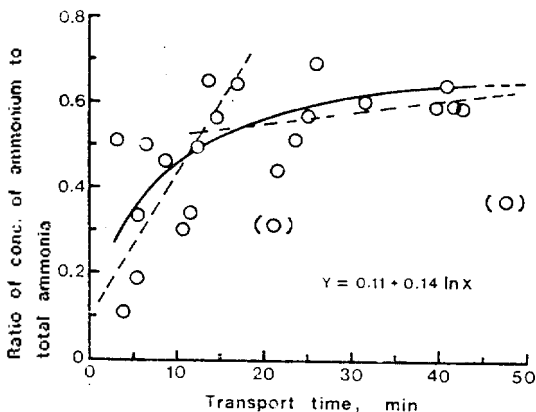


Fig. 2. Relation between the ratio of concentration of ammonium to total ammonia and transport time.

원의 굴뚝으로부터 방출된 초기에 급속히 진행되며, 그 이후는 수송시간이 경과함에 따라 느려진다. 한편, 발생원의 굴뚝은 요소의 제조 공정중의 가스를 방출하기 때문에 굴뚝에서 방출되는 순간의 유출가스중의 전암모니아는 대부분이 암모니아 가스일 것으로 추정된다.

암모니아가 암모늄으로 전환할 때의 반응차수는 다음의 반응속도식(1)을 이용하여 Fig. 2의 실험값으로부터 추정되었다.

$$\frac{dx}{dt} = k(a-x)^n \quad (1)$$

여기서 dx/dt 는 반응속도, x 는 전암모니아 대 입자상 암모늄의 농도비 $((\text{NH}_4^+)/(\text{NH}_3)_t)$, a 는 전암모니아 대 가스상 암모니아의 농도비 $(\text{NH}_3)/(\text{NH}_3)_t$, k 는 속도상수 그리고 n 는 반응차수이다.

Fig. 2의 각 실험값에 최소 2승법을 적용하여 회귀곡선으로 나타낸 것이 Fig. 2중의 실선이다. 이 회귀곡선의 각 실험값을 식(1)에 대입하여 계산된 반응차수는 $n=3.8$ 이며, 이는 본 연구에서의 암모니아의 전환이 1차 또는 2차 반응과 같이 단순한 반응이 아님을 의미한다. 여기에서 Fig. 2의 각 도시점의 실험값을 써서 수송시간에 따라 산출한 반응속도상수는 수송시간 약 15분을 경계로하여 2가지의 값을 나타냄을 알았다. (수송시간 4분과 5분사이의 하나의 값은 제외). Fig. 3은 이 결과를 나타낸 것이다.

Fig. 3의 두개의 상이한 속도상수는 수송시간 15분전과 그 후의 전환속도가 다르며, 따라서 Fig. 2의 회귀곡선은 두부분으로 나뉘어질 수 있음을 암시해 준다. 여기에서 Fig. 2의 각 도시점의 실험값을 수송시간의 초기단계 "i"와 그 후의 "j"로 나누어 전암모니아 대 입자상 암모늄의 시간변화를 2개의 직선으로 나타낸 것이 Fig. 2의 파선이다. 이들 "i" 및 "j" 구간에서 암모니아가 암모늄으로 전환되는 속도를 각각의 직선에서 구한 결과, "i" 구간에서는 $3.2\% \text{min}^{-1}$, 또한 "j" 구간에서는 $0.26\% \text{min}^{-1}$ 이 되었다. 또한 이들의 2개의 값에서 산출한 가스상 암모니아의 반감기는 "i"구간에서 약 16 min, 그 후가 192 min이었다.

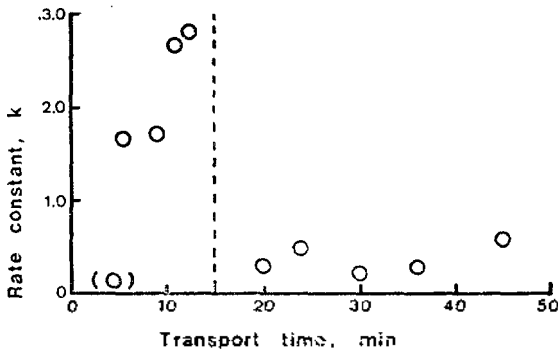
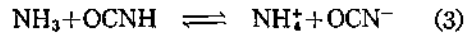
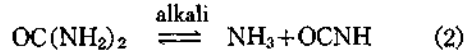


Fig. 3. Variation of rate constant with transport time.

이와 같이 암모니아가 암모늄염으로 전환되는 속도가 수송과정의 초기단계에서 빠른 것은 다음의 2가지 요인에 의한 것으로 생각된다. 첫째, 발생원의 굴뚝에서 방출되는 유출가스에는 암모니아 가스와 수증기가 포함되어 있으며, 이 유출가스의 온도는 약 20°C이다. 따라서 이 유출가스가 굴뚝에서 방출되어 약 7°C의 대기와 접촉되는 동시에 급속히 냉각되므로 수증기는 물방울을 형성하며, 이때 유출가스중의 암모니아 가스가 녹아서 암모늄염으로 전환된다. 따라서 수송과정의 초기단계에서 암모니아의 상당량이 암모늄염으로 전환되며 환경대기중에서의 암모니아의 전환속도보다 크게된다. 이것은 발전소의 굴뚝에서 방출된 가열된 유출가스의 단열팽창에 의하여 생성된 물방울에 유출가스중의 이산화황이 확산되어 용해되므로써 대부분의 이산화황이 수송과정의 초기단계에서 산화된다는 Freiberg의 보고¹⁵와 같은 이론으로 설명될 수 있다. 두 번째로, 유출가스중의 암모니아와 수증기 이외의 공존물질이 수송과정의 초기단계에서 암모니아의 전환속도에 미친 영향을 생각할 수 있다. 즉, 굴뚝에서 방출되는 유출가스중에 요소가 함유되어 있을 경우, 위에서 언급한 바와 같이 암모니아가 녹아서 생긴 알칼리성 물방울에 요소가 용해하면 다음과 같은 반응이 일어날 것으로 예상된다. 요소는 알칼리성 용액중에서 식(2) 및 식(3)과 같이 분해반응을 일으켜 암모늄을 생성한다.



요소의 분해반응에 의하여 생성된 암모늄이 전환속도에 미치는 영향의 크기는 OCN^- 농도의 측정으로 알 수 있으나, 본 연구에서는 요소공장의 암모니아 생산량은 570 ton/day, 요소의 생산량은 600 ton/day이며, 굴뚝에서 방출되는 암모니아량은 약 100 kg/day, 요소의 방출량은 약 120 kg/day이다. 암모니아와 요소의 방출량은 비슷하나 이들 두 화합물의 대기중에서의 거동(확산, 침강, 분해 또는 전환)이 같다고 할 수 없기 때문에 측정점 A, B (C, D)에서의 암모니아와 요소의 농도가 굴뚝에서의 암모니아와 요소의 방출량에 비해한다고는 단정적으로 이야기할 수 없을 것으로 생각된다. 따라서, A 및 B 측정점(이동 시간으로 보았을 때)에서의 요소에 의한 암모늄염 농도의 증가에의 영향을 구체적으로 숫자로써, 추정하는 것은 위험한 일이라고 생각되었으므로 측정하지 않았다. 대기중에서 암모니아가 암모늄으로 전환되는 것은 수분(moisture)의 존재하에서 암모니아와 산성가스와의 반응, 암모니아와 산성 mist와의 중화반응, 물방울에서 암모니아의 용해, 그리고 부유분진 표면의 수막(water film)에서의 암모니아와 산성가스와의 반응등에 의한 것으로 생각된다. 여기에서 암모늄 농도와 이러한 파라미터와의 사이의 상관관계를 조사하였지만, 이들 사이에는 상관관계가 관찰되지 않았다. 암모늄 농도와 상대습도와의 사이의 상관계수는 0.33으로써 이들 사이의 상관관계를 인정하기에는 너무 낮은 값을 나타내었다. 또한 대기중에서 이산화황이 황산염으로 전환될때와 같이 암모니아가 암모늄으로 전환되는 것도 상대습도보다 절대습도가 더 중요한 파라미터로 될 것으로 생각했으나, 암모늄 농도와 절대습도와의 사이에서도 상관관계는 관찰되지 않았다. 이것은 대기중에서 암모니아로부터 전환된 암모늄 농도는 95% 이상의 상대습도와 상관관계를 나타낸다는 Healy의 실험결과¹⁶와 일치한다. 그리고 암모늄 농도와 대기온도, 이산화황, 질소산화물 및 부유분진 농도와의 사이에서도 상관관계는 보이지 않았다.

4. 결 론

(1) 요소공장에서 방출되는 가스상 암모니아 가 입자상 암모늄으로 전환되는 속도는 약 15분까지의 초기수송단계에서 $3.2\% \text{min}^{-1}$ 이고 그 후에는 $0.26\% \text{min}^{-1}$ 이었다. 초기수송단계에서 전환속도가 빠른 것은 요소공장의 굴뚝에서 방출되는 가열된 유출가스가 방출과 동시에 차가운 대기와 접촉하여 급히 냉각되므로써 생성된 물방울에 암모니아가 용해하고, 또한 암모니아가 용해된 알칼리성 물방울중에서 요소가 분해반응을 일으킴으로써 암모늄의 생성이 급격히 증가된 때문인 것으로 추정되었다.

(2) 암모니아 가스의 반감기는 초기 수송단계에서 약 16분, 그 후에는 192분이었다.

(3) 암모늄 농도와 대기온도, 상대습도, 이산화황, 질소산화물 및 부유분진 농도와와의 사이에서는 상관관계가 관찰되지 않았다.

인 용 문 헌

1. C. E. Junge, "Air Chemistry and Radioactivity," P. 88, Academic Press, New York, 1963.
2. E. Robinson, R. C. Robbins, *J. Air Pollu.*

- Assoc.*, **20**, 303 (1970).
3. G. A. Dawson, *J. Geophys. Res.*, **82**, 3125 (1977).
4. R. C. Robbins, R. D. Cadle, *J. Phys. Chem.*, **62**, 469 (1958).
5. C. Junge, G. Schleich, *Atmos. Environ.*, **5**, 165 (1971).
6. E. M. Hartly Jr., M. J. Matteson, *Ind. Eng. Chem, Fundam.*, **14**, 67 (1975).
7. C. E. Junge, T. G. Ryan, *Q. J. Roy. Met. Soc.*, **84**, 46 (1958).
8. K. H. Kim, Y. Hashimoto and Y. K. Lee, *J. Kor. Chem. Soc.*, **26**, 36 (1982).
9. J. Forrest, S. E. Schwartz, L. Newman, *Atmos. Environ.*, **13**, 157 (1979).
10. M. A. Lulis, H. A. Wiebe, *ibid.*, **10**, 793 (1976).
11. L. Newman, J. Forrest, B. Manowitz, *ibid.*, **9**, 959 (1975).
12. H. K. Kim, M. Fujimura, Y. Hashimoto, *J. Japan Soc. Air Pollut.*, **14**, 430 (1979).
13. O. T. Denmead, *Soil Biol. Biochem.*, **8**, 161 (1976).
14. O. T. Denmead, J. R. Simpson, J. R. Freney, *Science* **185**, 609 (1974).
15. J. Freiberg, *Atmos. Environ.*, **12**, 339 (1978).
16. T. V. Healy, *ibid.*, **8**, 81 (1974).