

도시대기 중에 부유하는 미세입자중 음이온의 농도분포 특성

Characteristics of Anion Concentration Distributions in Airborne Fine Particles in Urban Atmosphere

천 만 영¹⁾ · 조 기 철 · 여 현 구

¹⁾안성산업대학교 환경공학과

건국대학교 환경공학과

(1996년 5월 13일 접수, 1996년 10월 14일 채택)

Man Young Chun¹⁾, Ki Chul Cho, Hyun Gu Yae

¹⁾Department of Environmental Engineering, Ansung National University

Department of Environmental Engineering, Kon-Kuk University

(Received 13 May 1996; accepted 14 October 1996)

Abstract

Anion concentrations and distributions of airborne fine particles less than $2\mu\text{m}$ in urban atmosphere were determined from Feb. 5 to 16, 1996. The sampling was carried out using 8 stages Hering's low pressure impactor (LPI, aerodynamic cutoff diameters are 0.05, 0.075, 0.11, 0.26, 0.50, 1.0, 2.0, and $4.0\mu\text{m}$) on the top of a five-story building located at Kon-Kuk university in Seoul.

Average concentrations of Cl^- , NO_3^- and SO_4^{2-} were 9.4, 8.4, and $14.5\mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively. The distributions of these anion concentrations were bimodal types which showed two peaks in the range of $0.075\sim 0.12\mu\text{m}$ and $0.5\sim 1\mu\text{m}$ in aerodynamic diameter. These results were 2.5~4.7 times higher than anion concentrations collected by Andersen low volume air sampler.

Key words : fine particle, anion concentration, Hering's low pressure impactor, bimodal type

1. 서 론

도시대기 중에 부유하고 있는 입자상 물질은 보통 입경 $2\mu\text{m}$ 이하인 미세입자 (fine particle)와 $2\mu\text{m}$ 이상인 조대입자 (coarse particle)로 분류된다. 조대입자는 주로 해염, 꽃가루, 화산재 및 토양먼지와 같이 자연발생원에서 생성되므로 인체에 큰 영향을 미치지 않는다. 그러나 미세입자는 주로 인위적으로 생성·배출된 가스상 물질이 대기 중에서 복잡한 물리·화학적 반응을 거쳐 생성된 2차 입자 (secondary particulate)로 폐포

침착율이 높고 가시도를 감소시키며 황산염 (sulfate), 질산염 (nitrate) 및 염화물 (chloride) 같은 산성물질과 다환방향족탄화수소 (PAHs) 같은 독성이 강한 유기물질을 다량 함유하고 있어서 인체와 환경에 큰 피해를 주므로 많은 연구의 대상이 되고 있다 (최금찬 등, 1994; 김필수 등, 1986; 김희강 등, 1986; Kadowaki, 1976; Fennelly, 1975).

현재까지 입자상 물질의 분급포집을 위하여 대부분의 연구자들은 Andersen low volume air sampler를 사용하였는데 Andersen air sampler는 입경 $0.4\mu\text{m}$ 이하의 미세입자는 back up filter에 포집되므로 미세

입자의 입경별 분급포집이 불가능하다.

이 연구는 Andersen air sampler의 이러한 단점을 보완하여 미세입자도 분급포집할 수 있도록 개발된 Hering의 low pressure impactor (LPI) (Hering and Friedlander, 1979; Hering *et al.*, 1978)를 사용하여 입경 2 μm 이하의 미세입자를 8단으로 분급포집하고 여기에 포함된 산성이온인 SO_4^{2-} , NO_3^- 및 Cl^- 의 농도와 농도분포 특성을 파악하는데 있다.

2. 실험방법

시료포집은 LPI를 사용하여 1996년 2월 5일부터 16일까지 서울시 광진구 모진동 건국대학교 공과대학 옥상(지상 약 15 m)에서 1회 약 48시간씩 총 5회 포집하였다. 시료는 포집 즉시 20 ml 비이커에 포집면이 아래로 향하도록 넣고 초순수 1.5 ml를 가하여 초음파 추출기에서 30분간 추출후 이온크로마토그래피(Dionex사, model-100)로 Cl^- , NO_3^- 와 SO_4^{2-} 를 분석하였다. SO_2 및 NO_2 자료는 시료포집 장소에서 가까운 성수동 자동 측정망 자료를 이용하였으며, 기상 자료는 기상청에서 측정된 서울시 기상자료를 이용하였다.

LPI는 직경 25 mm 유리 포집판 위에 바세린을 약 3 μm 두께로 얇게 바른 후 포집유량 1 l/min으로 시료를 포집하는데, 바세린을 포집판에 바르면 입자가 포집판에 관성충돌을 할 때 되튀는 것(rebounding)을 방지해 준다. 또 관성충돌을 이용한 포집기(impactor)로 입자상 시료를 포집할 경우 포집판에 포집된 반휘발성 물질은 계속 유입되는 포집공기에 노출되어 휘발되거나 공기 중의 가스상 물질이 이미 포집된 입자상 물질에 흡착되어 오차가 생기는데 포집판에 바세린을 바르면 입자가 바세린에 충돌하여 박히게 되므로 포집공기에 노출되는 면적이 적어져 이러한 오차를 줄일 수 있다(Venkaraman and Friedlander, 1994; Venkaraman *et al.*, 1994; Hering and Friedlander, 1979; Hering *et al.*, 1978).

입경 0.1 μm 이하의 미세입자는 거의 기체분자처럼 브라운 운동을 하므로 대기압 상태에서는 입자와 기체분자 상호 간에 충돌과 간섭이 심하여 분급포집이 어렵다(Reist, 1992; Hinds, 1982). 그리하여 LPI는 표 1에서 보듯이 입경이 작아질 수록 낮은 압력에서 입자가 포집되도록 설계하였다. 또 impactor는 관성력을 이용하여 입자를 포집하는데 입자의 속도가 동일할 경우에는 입경이 작을 수록 관성력이 작아지므로 미세입자도 포집이 가능할 정도의 관성력을 얻기 위해서는 입자의 속도

를 크게 해주어야만 한다(Venkaraman and Friedlander, 1994; Venkaraman *et al.*, 1994; Hering and Friedlander, 1979; Hering *et al.*, 1978).

표 1은 LPI의 각 포집단별 압력, 절단입경 및 포집공기의 유속을 나타낸 것이다. 이 논문에 사용된 자료는 LPI의 8단중 인위적으로 생성된 2차 입자상 물질로 알려진 입경 2 μm 이하의 미세입자가 포집되는 3단 이하의 자료만을 사용하였다.

Table 1. Particle size separation by Hering's low pressure impactor (LPI).

Stage No.	Absolute Pressure* (mmHg)	$D_{p50}(\mu\text{m})$ $\rho=1(\mu\text{g}/\text{cm}^3)$	$V_j(\text{m}/\text{s})$
1	744	4,000	3.5
2	743	2,000	11
3	740	1,000	22
4	705	0,500	54
Critical Orifice	150	-	-
5	140	0,260	93
6	106	0,120	150
7	50	0,075	300
8	8	0,050	300

* Ambient pressure=745 mmHg

** D_{p50} =50% cutoff diameter using vaseline coated substrates

V_j =air velocity at jet exit

3. 결과 및 고찰

입경 2 μm 이하의 미세입자 중에 포함되어 있는 Cl^- , NO_3^- 및 SO_4^{2-} 농도를 표 2와 그림 1에 나타내었다. 표 2에서 LPI로 5회 분급포집한 2 μm 이하의 공기동력학적 직경을 가진 미세입자중 Cl^- , NO_3^- 및 SO_4^{2-} 농도의 평균값은 각각 9.4, 8.4 및 14.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 입경 0.075~0.12 μm 와 0.5~1 μm 에서 극대치를 보이는 쌍극분포(bimodal) 형태를 보였으며, 최대값은 0.5~1 μm 에서 나타났다. Andersen air sampler를 사용하여 분급포집할 경우 입경 0.43 μm 이하의 입자는 back up filter에 포집되므로 2 μm 이하 미세입자의 농도분포는 이산분포가 아니라 일산분포로 나타나기 때문에 미세입자의 성장과 거동을 연구하는 것은 불가능하다(최금찬 등, 1994; 김희강 등, 1986; Kadowaki, 1976).

가스상 물질이 응축이나 기상균일반응에 의하여 입자상 물질로 변환되는 전이입경은 약 0.01 μm 정도인데 입경 0.01~0.1 μm 의 입자는 단위체적의 공기에 포함

Table 2. Concentrations of Cl⁻, NO₃⁻, and SO₄²⁻ in fine particles with aerodynamic diameter less than 2 μm.

Cl⁻

Size Range	1	2	3	4	5	Mean	S.D
1.000~2.000	0.34	0.27	1.07	2.61	1.49	1.15	0.96
0.500~1.000	4.49	0.46	2.69	5.17	3.78	3.32	1.84
0.260~0.500	0.27	0.09	0.81	3.68	1.77	1.32	1.47
0.075~0.260	0.56	1.32	0.90	3.68	3.19	1.93	1.09
0.120~0.075	1.09	0.23	1.80	0.30	2.82	1.25	1.01
0.075~0.050	0.18	0.19	1.55	0.39	0.00	0.46	0.62
Total	6.93	2.56	8.83	15.83	13.04	9.44	5.19

NO₃⁻

Size Range	1	2	3	4	5	Mean	S.D
1.000~2.000	0.23	0.55	1.41	6.32	0.33	1.77	2.59
0.500~1.000	2.45	1.54	3.15	11.57	0.98	3.94	4.35
0.260~0.500	0.39	0.87	0.42	0.90	0.22	0.56	0.31
0.075~0.260	0.75	1.29	0.82	0.95	0.37	0.83	0.33
0.120~0.075	0.58	0.85	1.34	0.47	0.32	0.71	4.00
0.075~0.050	0.71	0.42	0.93	0.41	0.41	0.58	0.24
Total	5.10	5.51	8.06	20.62	2.62	8.38	7.11

SO₄²⁻

Size Range	1	2	3	4	5	Mean	S.D
1.000~2.000	0.51	1.22	2.12	8.32	0.77	2.59	3.26
0.500~1.000	3.25	3.72	4.56	13.99	1.78	5.46	4.87
0.260~0.500	0.58	1.65	1.07	6.63	0.30	2.05	2.61
0.075~0.260	0.94	2.29	1.49	6.09	0.49	2.26	2.24
0.120~0.075	1.04	0.98	2.55	0.97	0.63	1.23	0.75
0.075~0.050	0.96	0.56	2.08	0.58	0.14	0.86	0.74
Total	7.28	10.42	13.89	36.57	4.12	14.45	12.88

된 입자수는 많지만 [김필수 등 (1986)이 서울에서 electrical aerosol analyzer로 측정된 입경 0.01~0.1 μm 범위의 입자수는 약 80,000개/cm³] 브라운 운동으로 주위의 기체분자와 끊임없는 충돌과 반응을 하여 큰 입자로 쉽게 성장되므로 대기 중에서 체류시간이 수 초 내지 수분 정도 밖에는 되지 않으며, 직경이 적어 농도가 낮은 것으로 생각된다(입자의 질량은 d_p^3 에 비례). 그러나 입경이 0.1~1.0 μm 범위인 입자는 공기 단위 체적당 입자수는 0.1 μm 이하의 것보다 적지만 [김필수 등 (1986)이 서울에서 측정된 입자수는 약 7,000개/cm³] 입경이 크므로 운동이 둔화되어 충돌과 반응이 적어 전성 및 습윤침착으로 대기 중에서 제거될 때까지 수일 내지 수주간씩 대기중에 부유하므로 대기중에서의 농도가 높다. 그럼 1의 쌍극분포에서 입경 0.5~1 μm

범위에서 농도가 최대가 되는 것은 위에서 언급한 바와 같이 입경 0.5~1 μm 범위에 있는 입자가 0.075~0.12 μm 범위에 있는 입자보다 대기 중에서 더 오랫동안 체류할 뿐 아니라 입자수는 적지만 입경이 커서 전체적인 질량은 더 크기 때문으로 생각된다.

SO₄²⁻ 농도가 NO₃⁻ 농도보다 더 높은 것은, 연구 기간중 SO₄²⁻의 선구물질인 SO₂의 평균농도(20.5 ppb)가 NO₃⁻의 선구물질인 NO₂의 평균농도(43.2 ppb) 보다 낮았으나 SO₂에서 SO₄²⁻로의 변환율이 NO₂에서 NO₃⁻로의 변환율보다 더 크기 때문으로 사료된다(Middleton and Kiang, 1979).

4번째 시료의 음이온 성분의 농도가 다른 시료의 농도 보다 높았는데 그 이유로는 첫째, 4번째 시료를 제외한 다른 시료를 포함할 때는 적은 양이지만 강수가 있었으

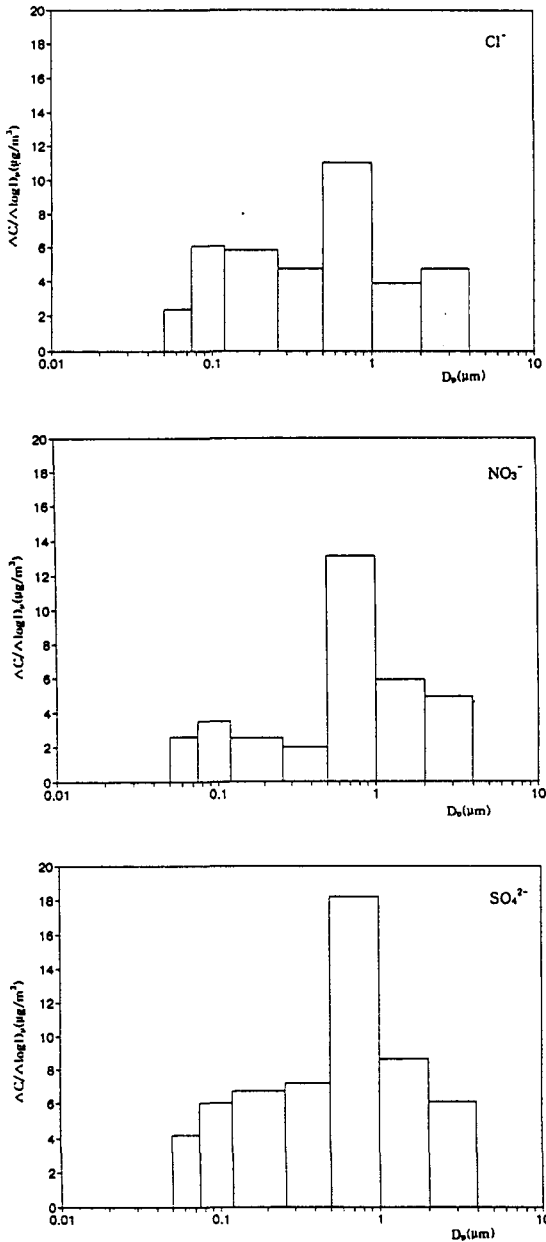


Fig. 1. Distributions of Cl^- , NO_3^- , and SO_4^{2-} concentration in fine particles with aerodynamic diameter less than $2 \mu\text{m}$.

므로 그 영향이 있었으리라 생각이 된다. 두번째는 다른 시료포집시의 주풍은 북서풍이었으나 4번째 시료포집시의 주풍은 남서풍으로, 외부에서 장거리 이동에 의하여 오염물질이 유입되었을 가능성이 있다. 선구물질인 NO_2 와

SO_2 의 농도가 다른 시료포집시와 비슷한 상황에서 강수의 영향을 고려한다 하더라도 외부로부터 오염물질의 유입이 없이는 이렇게 농도가 높게 나타날 가능성은 희박하기 때문이다.

Cl^- 의 자연발생원은 해염입자이나 해염입자는 보통 입경이 $2 \mu\text{m}$ 이상의 조대입자이므로 도시대기 중에 부유하는 미세입자에 포함되어 있는 Cl^- 은 주로 염소함유 폐플라스틱의 소각으로 발생한 가스상물질이 입자상물질로 전환된 것으로 생각된다(田中 茂 등, 1987; Stelson *et al.*, 1979).

Cl^- 와 NO_3^- 의 농도분포는 입경 $0.075 \sim 0.12 \mu\text{m}$ 와 $0.5 \sim 1 \mu\text{m}$ 에서 극대치를 나타내는 이산분포 형태를 보였으나 SO_4^{2-} 는 $0.5 \sim 1 \mu\text{m}$ 에서 극대치를 보이는 일산분포 형태를 보였다. 이것은 4번째 포집한 시료는 일산분포를 보였으나 나머지 시료에서는 Cl^- 와 NO_3^- 처럼 이산분포 형태를 보였는데 4번째 시료의 농도가 매우 높아 그 영향으로 5회 평균농도의 형태도 일산분포로 나타난 것으로 생각된다.

표 2에서 음이온 농도는 $\text{SO}_4^{2-} > \text{Cl}^- > \text{NO}_3^-$ 순으로 Andersen air sampler를 사용한 이전 연구 결과와 같았으나 절대농도는 이전 연구보다 몇 배의 높은 농도를 보여 주고 있다(최금찬 등, 1994; 김희강 등, 1986). 이 원인을 규명하기 위하여 LPI와 Andersen air sampler를 사용하여 동일한 장소에서 동일한 시간(48시간) 동안 시료를 포집한 후 같은 조건에서 분석한 3회 평균 음이온 농도는 표 3과 같다. 포집시 LPI는 위에서 실험한 방법과 동일하게 포집하였고, Andersen air sampler는 국내에서 입자상 물질 분급 포집시에 일반적으로 사용하는 방법인 직경 110mm 폴리에틸렌 판을 포집판 위에 놓고 바세린은 바르지 않는 상태에서 포집유량 28.3 (l/min)으로 포집하였으며 back up filter로는 석영섬유여지를 사용하였다.

표 3-1에서 보듯이 LPI로 포집한 Cl^- , NO_3^- 및 SO_4^{2-} 의 평균농도가 Andersen air sampler로 포집한 음이온의 농도보다 각각 4.7, 2.5 및 2.7배 더 높았다. Andersen air sampler의 포집효율이 낮은 이유를 알아보기 위하여 입경별로 LPI의 결과와 비교하여 본 것은 표 3-2 및 표 3-3과 같다.

표 3-2에서 LPI의 입경 $2 \sim 0.5 \mu\text{m}$ 입자에 포함된 음이온 농도와 Andersen air sampler의 $2.1 \sim 0.43 \mu\text{m}$ 의 입자에 포함된 음이온 농도비인 (LPI/Andersen air sampler)의 값은 Cl^- , NO_3^- 및 SO_4^{2-} 평균이 각각 3.2, 1.8 및 1.9였다. LPI에서의 농도가 Andersen air sampler에서 보다 더 높은 이유는 첫째 LPI

Table 3. Concentration ratio of Cl⁻, NO₃⁻, and SO₄²⁻ in fine particles with aerodynamic diameter less than 2μm collected by LPI and Andersen air sampler.

LPI/Andersen air sampler		
Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
4.7	2.5	2.7

3-1. LPI < 2μm, Andersen air sampler < 2.1μm.

LPI/Andersen air sampler		
Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
3.2	1.8	1.9

3-2. LPI: 2~0.5 μm, Andersen air sampler: 2.1~0.43 μm.

LPI/Andersen air sampler		
Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
13.5	6.5	3.6

3-3. LPI < 0.5 μm, Andersen air sampler < 0.43 μm.

포집판에는 바세린을 발랐지만 Andersen air sampler 포집판에는 바세린을 바르지 않았기 때문에 포집판에 입자가 관성충돌할 때 되튀현상(rebounding)이 일어나 입자포집효율이 낮기 때문으로 생각된다. 둘째 Andersen air sampler로 시료를 포집할 경우 포집판에 포집된 휘발성물질은 계속 유입되는 포집공기에 노출되어 휘발되지만 LPI는 입자가 바세린에 충돌하여 바세린 속에 박히게 되므로 포집공기에 노출되는 부분이 적어 휘발에 의한 손실을 줄일 수 있기 때문으로 생각된다(Venkaraman and Friedlander, 1994; Venkaraman *et al.*, 1994; Hering and Friedlander, 1979; Hering *et al.*, 1978). 미세입자 중에 존재하는 Cl⁻는 대부분 NH₄Cl의 형태로, SO₄²⁻는 (NH₄)₂SO₄ 및 (NH₄)₃H(SO₄)₂ 형태로 존재하는데 NH₄Cl은 휘발성이 큰데 반하여 (NH₄)₂SO₄와 (NH₄)₃H(SO₄)₂는 거의 휘발이 되지 않으므로(LPI/Andersen air sampler) 비가 Cl⁻은 3.2로 크고 SO₄²⁻는 1.9로 비교적 작은 것으로 사료된다. NO₃⁻는 미세입자에서는 대부분이 휘발성이 큰 NH₄NO₃로 존재하므로 Andersen air sampler 포집판에서는 포집용 공기에 의하여 휘발이 된다. 동시에 포집판에 포집된 H₂SO₄와 NH₄NO₃가 식 (1)과 같이 반응하여 (NH₄)₂SO₄와 HNO₃를 생성하므로 NO₃⁻ 농도는 감소되고 SO₄²⁻ 농도는 증가한다. 반면 LPI 포집판에서는 휘발에 의한 NO₃⁻ 손실량은 거의 없으나 반응 (1)에 의하여 NO₃⁻ 농도는 감소되고 SO₄²⁻ 농도는 증가하므로(LPI/Andersen air sampler) 비가 1.8로

낮은 것으로 사료된다(천만영 등, 1995; Lee, 1992; Harrison *et al.*, 1990; Ruprecht and Sigg, 1990; Allen *et al.*, 1989; Stelson and Seinfeld, 1982).

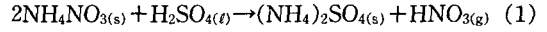


표 3-3은 LPI는 0.5 μm 이하, Andersen air sampler는 0.43 μm 이하(back up filter에 포집된 것)의 입자에 포함된 음이온의 농도비를 나타낸 것으로(LPI/Andersen air sampler) 값은 각각 13.5, 6.5 및 3.6으로 LPI에 의하여 포집된 음이온 농도가 훨씬 더 높았으며, 입경 2~0.5 μm와 2.1~0.43 μm의 3.2, 1.8 및 1.9 보다도 더 큰 값을 보였다. 이것은 첫째 Andersen air sampler의 포집판에 포집된 입자는 유입되는 포집용 공기의 일부분에만 노출되지만 back up filter에서는 포집용 공기가 필터를 완전히 통과하여 지나가므로 필터에 포집된 입자가 포집용 공기에 더 많이 노출되기 때문에 NH₄Cl과 NH₄NO₃ 등 휘발성 물질의 손실이 훨씬 더 크기 때문으로 생각된다(LPI/Andersen air sampler). 값중 NO₃⁻가 6.5로 SO₄²⁻의 3.6 보다 더 큰 것은 back up filter에서는 반응 (1)에 의한 NO₃⁻의 손실량보다 휘발에 의한 손실량이 더 크기 때문에 휘발이 거의 되지 않는 SO₄²⁻ 보다 값이 더 큰 것으로 사료된다. 둘째 Andersen air sampler의 back up filter로 사용된 석영섬유여지는 많은 미세입자를 포집하지 못하고 통과시키기 때문으로 생각된다.

상단의 포집판에서 되튀에 의하여 back up filter로 전이된 입자때문에 back up filter에서의 음이온 농도는 전이된 양만큼 증가할 것이지만 back up filter에서 포집용 공기에 의하여 휘발된 음이온 농도와 여지를 통과한 미세입자중 음이온 농도를 합한 것보다는 그 양이 훨씬 적기 때문에(LPI/Andersen air sampler) 값이 큰 것으로 사료된다(Lee, 1992; Hinds, 1982; Hering *et al.*, 1978).

위의 결과에서 알 수 있듯이 Andersen air sampler를 사용하여 미세입자를 분급포집할 경우 포집판에 바세린을 바르지 않으면 입자의 되튀현상이 심하고, 또 back up filter에서 휘발성 물질의 휘발로 부의 오차가 발생하며 back up filter로 석영섬유여지를 사용할 경우 0.43 μm 이하의 미세입자의 상당량은 포집되지 않고 통과되므로 포집된 시료의 농도가 실제 대기 중의 농도보다 훨씬 낮게 평가되어 도시대기오염의 심각성을 왜곡할 가능성이 있음을 알 수 있었다. 그러므로 Andersen

air sampler로 입자상물질을 분급포집할 경우에는 입자의 되튀현상을 줄이기 위하여 포집판에 바세린을 바르고 back up filter는 섬유여지가 아닌 공극이 작은 멤브레인 필터를 사용하는 등 가능한 시료의 손실 없이 미세입자를 포집하는 방법을 강구해야 할 것으로 생각된다.

4. 결 론

1996년 2월 5일부터 16일까지 서울시 성동구 모진동 건국대학교 공과대학 옥상에서 LPI를 사용하여 입경 2 μm 이하의 미세입자를 분급포집하고 여기에 포함된 Cl⁻, NO₃⁻ 및 SO₄²⁻ 등 음이온 농도를 분석한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) Cl⁻, NO₃⁻ 및 SO₄²⁻ 등 음이온의 평균농도는 각각 9.4, 8.4 및 14.5 μg/m³이었다.
- 2) 입경 0.075~0.12 μm와 0.5~1 μm에서 극대치를 보이는 쌍극분포 형태를 보였으며, 0.5~1 μm에서 최대값을 보였다.
- 3) LPI와 Andersen air sampler의 포집율을 비교·분석한 결과 LPI로 포집한 Cl⁻, NO₃⁻ 및 SO₄²⁻의 음이온의 평균농도가 Andersen air sampler로 포집한 음이온 농도보다 각각 4.7, 2.5 및 2.7배 더 높았다.

이것으로 포집판에 바세린을 바르지 않은 Andersen air sampler는 포집판에 입자가 충돌시 되튀현상이 심하며, back up filter로 사용된 석영섬유여지는 많은 미세입자를 포집하지 못하고 통과시킬 뿐만 아니라 휘발성 물질의 휘발로 큰 오차가 발생됨을 알 수 있었다.

참 고 문 헌

김필수, 김윤장, 이양호, 조숙현, 안승태(1986) 도시대기 aerosol의 입자직경 0.01~1.0 μm범위의 농도변화 특성, 한국대기보전학회지, 2(2), 41-50.

김희강, 신상은, 김승학(1986) 도시대기중 황산염과 질산염의 입도분포에 관한 연구, Ibid, 2(1), 33-39.

천만영, 김희강(1995) 생성메카니즘에 따른 부유분진중 입자상 nitrate의 농도, Ibid, 11(1), 37-44.

최금찬, 박정호, 임경택(1994) 대기 에어로졸중 음이온 성분에 대한 입경분포의 변화 특성, Ibid, 10(2), 124-129.

田中 茂, 駒崎雄一, 山縣勝弘, 橋本芳一(1987) 大氣中鹽化アンモニウムおよび"硝酸アンモニウムの舉動とその解離平衡, 日本化學會誌, 2338-2343.

Allen, A.G., R.M. Harrison, and J.W. Erisman (1989) Field measurements of the dissociation of ammonium nitrate and ammonium chloride aerosols, Atmos. Environ., 23(7), 1591-1599.

Fennelly, P.F.(1975) Primary and secondary particulate as particulate, JAPCA, 25, 697-704.

Harrison, R.M., W.T. Sturges, A.M.N. Kitto, and Y. Li(1990) Kinetics of evaporation of ammonium chloride and ammonium nitrate aerosols, Atmos. Environ., 24A(7), 1883-1888.

Hering, S.V., R.C. Flagan, and S.K. Friedlander (1978) Design and evaluation of low-pressure impactor I, Environ. Sci. Technol., 12(6), 667-673.

Hering, S.V. and S.K. Friedlander(1979) Design and evaluation of low-pressure impactor II, Ibid, 13(2), 184-188.

Hinds, W.C.(1982) *Aerosol Technology*, John Wiley & Sons, 133-152pp.

Junge, C.E.(1963) *Air Chemistry and Radioactivity*, Academic press, 111-202pp.

Kadowaki, S.(1976) Size distribution of atmospheric total aerosols, sulfate, ammonium and nitrate particle in the Nagoya area, Atmos. Environ., 10, 39-43.

Lee, H.S.(1992) *Measurement and Evaluation of Acid air Pollutants in Chicago using an Annular Penuder System*, Ph.D dissertation of the univ. of Illinois at Chicago.

Middleton, P. and C.S. Kiang(1979) Relative important of nitrate and sulfate aerosol production mechanisms in urban atmospheres, in *Nitrogenous Air Pollutants, Chemical and Biological Implications*, Ann Arbor Science, 269-288pp.

Reist, P.C.(1992) *Aerosol Science and Technology*, Mcgraw Hill, 129-158pp.

Ruprecht, H. and L. Sigg(1990) Interactions of aerosols (ammonium sulfate, ammonium nitrate and ammonium chloride) and of

- gases (HCl, HNO₃) with fogwater, *Ibid*, 24(3), 573-584.
- Stelson, A. W., S.K. Friedlander, and J.H. Seinfeld (1979) A note on the equilibrium relationship between ammonia and nitric acid and particulate ammonium nitrate, *Atmos. Environ.*, 13, 369-371.
- Venkaraman, C.J., M. Lyons, and S.K. Friedlander (1994) Size distributions of polycyclic aromatic hydrocarbons and elemental carbon: 1. Sampling, measurement methods, and source characterization, *Environ. Sci. Technol.*, 28, 555-562.
- Venkaraman, C. and S.K. Friedlander (1994) Size distributions of polycyclic aromatic hydrocarbons and elemental carbon: 2. Ambient measurements and effects of atmospheric processes, *Ibid*, 28, 563-572.