

# 도시 대기중에서 $NH_4NO_{3(s)}-HNO_{3(g)}-NH_{3(g)}$ 의 평형에 관한 연구

## A Study on Equilibrium of $NH_4NO_{3(s)}-HNO_{3(g)}-NH_{3(g)}$ in Urban Atmosphere

천만영 · 강병욱 · 김희강

건국대학교 환경공학과  
(원고접수 : 1992. 7. 21)

Man Young Chun, Byung Wook Kang, Hee Kang Kim

(Received 21 July 1992)

### Abstract

Theoretical predictions of the atmospheric equilibrium involving  $HNO_3, NH_3$  and  $NH_4NO_3$  were compared with atmospheric measurements of particulate nitrate( $NO_3^-$ ),  $HNO_3$  and  $NH_3$  concentration by triple filter pack sampler and Andersen air sampler in Seoul from 8th to 11th Oct 1991.

The measured  $HNO_3-NH_3$  concentration product K was higher than equilibrium constant  $K_c$  calculated from thermodynamic data of  $NH_4NO_{3(s)}-HNO_{3(g)}-NH_{3(g)}$ . The cause of K is greater than  $K_c$  was the result of air pollution, particularly anthropogenic  $NH_3$ .

### 1. 서 론

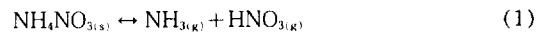
석유·석탄 및 천연가스와 같은 화석연료 연소 시 생성되는  $NO_x$ 는 대기중에서 일사량, 기온 및 습도 등의 여러 기상인자의 영향과  $O_3, H_2O_2$  등의 대기오염물질 및 해양입자, 토양입자 등과 복잡한 물리·화학적 반응을 거쳐 nitrate로 변환되는데 이 nitrate는 성상에 따라 가스상 nitrate( $HNO_3$ )와 입자상 nitrate( $NO_3^-$ )로 구분된다(B. R. Appel et al., 1978; J. B. Milford et al., 1987; T. Okita et al., 1976; C. W. Spicer et al., 1982; C. C. Wang et al., 1975; 角脇 脩, 1980).

가스상 nitrate( $HNO_3$ )는 광화학 활성이 커서 온도가 높고 습도가 낮은 여름과 주간에 주로 생성되고 일사량이 적어 기온이 낮고 습도가 높은 겨울과 야간에는  $NO_2$ 의 액적반응에 의하여 입자상 nitrate( $NO_3^-$ )의 생성이 우세하다. 또  $HNO_3$ 가 해양입자 및 알칼리 토양입자와 반응하여 입자상 nitrate를 생성하기도 한다(천 만영외, 1992; J. G.

Calvert et al., 1983; A. E. Orel et al., 1977; C. W. Spicer et al., 1982).

$HNO_3$ 는 대기중의  $NH_3$ 와 기상균일반응을 하여 미세입자(입경  $2.1\mu m$  이하)인 Ammonium nitrate ( $NH_4NO_3$ )를 생성하며,  $HNO_3$ 가 해양입자, 토양입자 및 꽃가루 등과의 반응에 의하여 생성되는 입자상 nitrate는 주로 초대입자(입경  $2.1\mu m$  이상) 영역에 존재한다(B. R. Appel et al., 1978; S. Kadowaki, 1976; J. B. Milford et al., 1987).

$NH_4NO_3$ 는 휘발성이 커서 기온이 높은 여름 및 주간에는 식(1)과 같이  $HNO_3$ 와  $NH_3$ 로 해리되며, 기온이 낮아지면 (1)의 역반응이 일어나 다시  $NH_4NO_3$ 가 생성된다. 이리하여 aerosol중의  $NH_4NO_3$ 와 대기중의  $NH_3$  및  $HNO_3$  세 성분간에는 온도에 의존하는 평형이 유지된다(A. W. Stelson et al., 1979, 1982).



그러나 인공과 산업시설이 밀집되어 있는 오염

된 도시 대기에서는 오염으로 인하여 HN<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>와 NH<sub>3</sub> 및 HNO<sub>3</sub>간에는 식(1)과 같은 평형관계가 성립되지 않을 것으로 예상된다.

이 연구는 순수한 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>와 평형상태에 있는 HNO<sub>3</sub>와 NH<sub>3</sub>의 열역학 자료에서 계산한 평형상수 K<sub>c</sub>(=[HNO<sub>3</sub>][NH<sub>3</sub>]/ppb<sup>2</sup>)값과 오염된 도시대기중의 NH<sub>3</sub>와 HNO<sub>3</sub> 농도의 적 K(=[HNO<sub>3</sub>][NH<sub>3</sub>]/ppb<sup>2</sup>)값을 구하여 비교 검토하였다.

2. 이론적 고찰

170℃ 이하에서 고체 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>는 식(1)과 같이 HNO<sub>3</sub> 및 NH<sub>3</sub>와 평형을 이루고 있다. 반응(1)의 평형상수 K<sub>p</sub>는 K<sub>p</sub> = P<sub>HNO3</sub>P<sub>NH3</sub>로 HNO<sub>3</sub>와 NH<sub>3</sub> 분압의 적으로 표현되며 K<sub>p</sub>는 표준 Gibbs의 자유에너지 변화량 G<sub>T</sub><sup>o</sup>와 관련이 있다.

$$\Delta G_{T^o} = -RT \ln K_p \tag{2}$$

NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>, HNO<sub>3</sub> 및 NH<sub>3</sub>에 대한 열역학적 자료는 제한되어 있기 때문에 식의 유도는 Van't Hoff 식을 적분하여 온도의 함수인 평형상수를 외삽법으로 구할수 있다.

$$\ln K_p' = \alpha - \frac{\Delta H_0}{RT} + \int_{298}^T \frac{1}{RT^2} \int_{298}^{T'} (C_{PHNO3} + C_{PNH3} - C_{PNH4NO3}) dT' dT \tag{3}$$

여기서 α=적분상수, ΔH<sub>0</sub>=298K에서 enthalpy 변화량, 그리고 C<sub>PHNO3</sub>, C<sub>PNH3</sub> 및 C<sub>PNH4NO3</sub>는 각각 HNO<sub>3</sub>, NH<sub>3</sub> 및 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>의 열용량이다.

열용량 C<sub>p</sub>는 온도의 변화에 관계없이 일정하다고 가정하여 표 1의 열역학 자료를 식(2) 및 (3)에 대입하고 K<sub>p</sub>=K<sub>c</sub>(RT)<sup>3</sup>를 이용하여 정리하면 식(4)를 얻는다(A. W. Stelson et al., 1982).

Table 1. Thermodynamic data of ammonium nitrate system at 298K.

Species	$\frac{\Delta G}{R} (K^{-1})$	$\frac{\Delta H}{R} (K^{-1})$	$\frac{C_p}{R}$	Ref
NH <sub>3(g)</sub>	-1,977	-5,526	4.285	Parker et al., (1976) JANAF(1971)
HNO <sub>3(l)</sub>	-8,903	-16,155	6.416	JANAF(1971)
NH <sub>4</sub> NO <sub>3(s)</sub>	-22,220	-44,080	16.800	Parker et al., (1976) Wagman et al., (1968)

$$\ln K_c = 84.6 - \frac{24,220}{T} - 6.1 \ln \left( \frac{T}{298} \right) \tag{4}$$

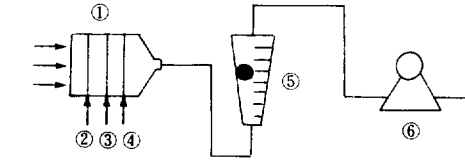
여기서 K<sub>c</sub>는 평형상수로 K<sub>c</sub>=[HNO<sub>3</sub>][NH<sub>3</sub>]/(ppb<sup>2</sup>)이다.

식(4)를 사용하여 임의의 온도 T에서 HN<sub>4</sub>NO<sub>3(s)</sub>와 평형상태에 있는 NH<sub>3(g)</sub>와 HNO<sub>3(l)</sub>의 농도적 K<sub>c</sub>를 구할 수 있다.

3. 실험 및 분석

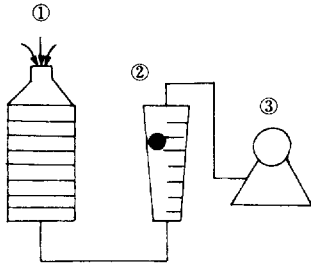
대기중의 입자상 nitrate(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>), 가스상 nitrate (HNO<sub>3</sub>) 및 NH<sub>3</sub>를 분리포집하기 위하여 그림 1과 같이 3단 포집기(Norwegian사제, 47mmφ)를 사용하였다. 3단 포집기에 사용된 여지로는 입자상 물질을 포집하기 위하여 Teflon 필터(Gelman사제, Poresize 1μm)(Joh. W. et al., 1978)를, HNO<sub>3</sub>를 포집하기 위하여 Nylon 필터(Gelman사제, Poresize 0.45μm)(J. Tesch et al., 1979)를, 그리고 NH<sub>3</sub> 포집용으로는 Glass fiber 필터(Whatman사제)를 증류수에 넣고 40분간 초음파 세척기에서 수세한 후 1% Oxalic acid와 20% glycerine 혼합액에 침적시킨 후 105℃에서 건조시킨 것을 사용하였으며, 이 세가지 필터를 순서대로 3단 포집기에 장착하여 사용하였다(L. M. Hildemann et al., 1984; J. E. Sickles et al., 1989). 포집유량은 25L/min으로 하였으며 각 성분의 경시변화를 알기 위하여 주간에는 2시간, 야간에는 3-6시간 간격으로 시료를 포집하였다. 포집이 끝난후 필터는 즉시 비이커에 넣고 증류수 20ml를 가하여 초음파 세척기에서 40분간 추출하여 Whatman 41번 필터로 여과한 후 여액을 분석액으로 사용하였다. 또 입자상물질을 분급포집하기 위하여 그림 2와 같은 9단 Andersen Air Sampler(Kanomax사제, AN-2200)를 사용하였다. Andersen Air Sampler의 0-7단까지는 Polyethylene(P. E) sheet를, Back-up 필터로는 Silica fiber 필터(TOYO QR100,11cmφ)를 사용하였다. 포집 유량은 28.3L/min(1ft<sup>3</sup>/min)으로 하였으며, P. E sheet 및 Back-up 필터는 시료 포집전과 포집후 데시케이터에 24시간 넣어 항량으로 만든 후 Chemical Balance(Sar-torious사제, 2434)로 무게를 칭량하였다. 무게 칭량후 즉시 P. E sheet 및 Back-up 필터를 4-6등분한 후 비이커에 넣고 증류수 25ml를 가하여 초음파 세척기에서 40분간 추출한 후 Whatman 42번 여지로 여과하여 여액을 분석액으로 사용하였다.

NH<sub>4</sub><sup>+</sup>은 Indophenol법으로, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>는 Ion-chromatography(Dionex사제, Model-2010i)로 분석하였으



- ① Trifle filter pack
- ② Teflon filter
- ③ Nylon filter
- ④ Glass fiber filter
- ⑤ Flowmeter
- ⑥ Vaccum pump

Fig. 1. Triple filter Pack Sampler.



- ① Andersen Air Sampler
- ② Flowmeter
- ③ Vaccum pump

Fig. 2. Andersen Air Sampler.

며 또 기온은 기상청 자료를 이용하였다. 그림 3에 실험 및 분석 계통도를 나타내었다.

3단 포집기에 의한 시료 포집은 1991년 10월 8일 06시부터 11일 06시까지 72시간 연속 포집하였으며 Andersen Air Sampler에 의한 시료 포집은 91년 9월 30부터 10월 24일까지 5-7일간 총 3회 포집하였다. 포집장소는 서울시 성동구 모진동 소재 건국대학교 공과대학 옥상(지상 약 15m)에서 행하였다.

#### 4. 결과 및 고찰

실험 기간중 기온 및 3단포집기로 포집한 HNO<sub>3</sub>, NH<sub>3</sub>, 입자상 nitrate(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) 농도의 경시 변화는 표 2와 같고 각 성분간의 상관계수는 표 3과 같다. 또 Andersen Air Sampler로 분급포집한 TSP 및 입자상 nitrate 농도를 표 4에 보였다.

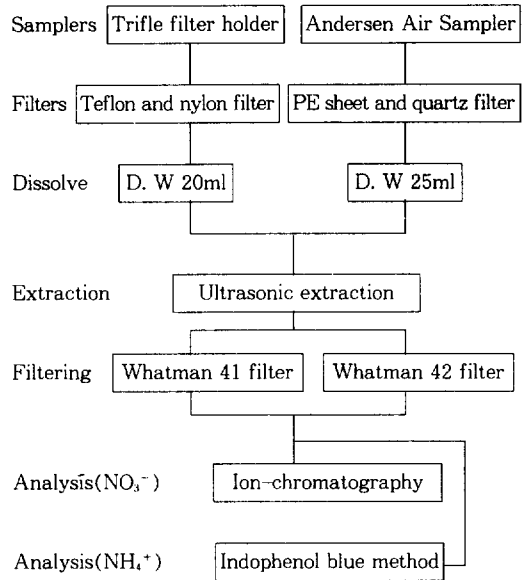


Fig. 3. Analytical process of samples.

식(5)는 표 2의 기온 T와 대기중의 NH<sub>3</sub>와 HNO<sub>3</sub> 농도의 적  $K(=[NH_3][HNO_3]ppb^2)$  값과의 관계를 최소자승법으로 구한 회귀방정식이며 그림 4는 기온 T와 K 및 K<sub>c</sub>와의 관계를 나타낸 것이다. 그림 4에서 보듯이 K가 K<sub>c</sub>보다 더 커서 대기중의 NH<sub>3</sub>와 HNO<sub>3</sub>의 농도가 열역학적 자료에서 이론적으로 계산한 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>와 평형상태에 있는 NH<sub>3</sub>와 HNO<sub>3</sub>의 농도보다 더 높았다.

표 2에서 기온과 입자상 nitrate 및 HNO<sub>3</sub>간의 상관계수는 각각 r=-0.633 및 0.605였으며, 입자상 nitrate와 HNO<sub>3</sub>간에는 r=-0.623으로 기온이 높은 주간에 HNO<sub>3</sub> 농도가 높고 입자상 nitrate 농도는 낮았으며, 기온이 낮은 야간 및 이른 아침에는 역으로 입자상 nitrate 농도는 높고 HNO<sub>3</sub> 농도는 낮았다.

미세입자 영역(입경 2.1μm 이하)에 존재하는 nitrate는 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 형태로 존재한다(J. B. Milford et al., 1987). 표 4에서 Andersen Air Sampler로 분급 포집한 미세입자상 nitrate의 총 nitrate에 대한 분율은 64.5-87.2%로 입자상 nitrate의 대부분은 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 형태로 존재하였다. 그러므로 기온이 높으면 입자상 nitrate(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)중의 HN<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>가 해리하여 HN<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 농도가 낮아지고 HNO<sub>3</sub> 농도는 높아지며, 역으로 기온이 낮아지면 HN<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 농도는 높아지고 HNO<sub>3</sub> 농도는 낮아져 HN<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>와 HNO<sub>3</sub> 농도간에는 기온에 의존하는 평형관계가

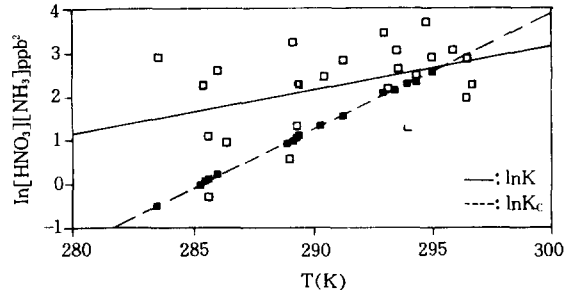
**Table 2.** Hourly variations of Temperature, HNO<sub>3</sub>, NH<sub>3</sub>, particulate nitrate(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) concentration in ambient air.

No	Sampling Period	Temp (°C)	HNO <sub>3</sub> (ppb)	NH <sub>3</sub> (ppb)	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (μg/m <sup>3</sup> )
1	'91.10.8,06-09	10.6	2.95	6.20	5.43
2	09-11	16.2	3.99	6.49	4.01
3	11-13	20.0	3.81	8.42	3.91
4	13-15	21.7	4.56	9.06	5.14
5	15-17	22.0	3.30	5.32	5.47
6	17-20	19.0	0.93	3.81	5.39
7	20-24	16.0	0.70	2.59	6.47
8	10.9,00-06	13.4	1.24	2.15	6.38
9	06-09	12.4	3.19	3.05	7.03
10	09-11	17.4	3.27	3.59	4.02
11	11-13	21.3	3.92	3.15	4.18
12	13-15	23.4	4.37	1.70	4.59
13	15-17	23.7	2.93	3.46	3.82
14	17-20	20.2	1.97	4.50	6.52
15	20-24	16.3	1.48	2.59	6.68
16	10.10,00-06	12.6	0.86	0.92	7.09
17	06-09	13.0	2.39	5.65	6.15
18	09-11	18.3	3.16	5.29	4.64
19	11-13	20.6	3.29	4.26	4.38
20	13-15	22.8	4.79	4.36	3.67
21	15-17	23.4	3.73	4.69	3.84
22	17-20	20.5	2.57	8.10	5.12
23	20-24	16.4	2.14	4.50	5.45
24	10.11,00-06	12.7	1.21	2.48	5.20

**Table 3.** Correlation coefficients.

Temp	1			
HNO <sub>3</sub>	0.605	1		
NH <sub>3</sub>	0.231	0.477	1	
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	-0.633	-0.623	-0.347	1
	Temp	HNO <sub>3</sub>	NH <sub>3</sub>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>

$$K = 32.63 - \frac{8842.15}{T} \quad (5)$$



**Fig. 4.** Logarithm of the NH<sub>3</sub>-HNO<sub>3</sub> concentration product vs the reciprocal absolute ambient temperature: (—) regression line calculated from thermodynamic data (Equation 7); (---) regression line calculated from experimental data in urban atmosphere (Equation 8).

**Table 4.** Size distribution of TSP, particulate nitrate(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) concentration and NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/NO<sub>3</sub><sup>-T</sup> ratio by Andersen Air Sampler.

(unit: μg/m<sup>3</sup>)

Stage	50% e.c.d (μm)	No 1				No 2				No 3			
		'91. 9. 30-10. 8				10. 9-10. 16				10. 17-10. 24			
		TSP	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	TSP	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	TSP	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>
No													
0	11<30	9.75	0.14			13.92	0.13			26.29	0.21		
1	7.0	7.92	0.15			10.98	0.10			22.40	0.21		
2	4.7	7.51	0.19	1.3%	12.8%	9.97	0.27	1.4%	35.5%	8.73	0.29	0.9%	20.9%
3	3.3	8.94	0.19			10.04	0.59			6.52	0.10		
4	2.1	6.64	0.19			6.19	0.24			7.47	0.22		
C.P		40.76	0.86			51.10	1.33			71.41	1.03		
5	1.1	9.38	0.75			5.18	0.17			6.31	0.36		
6	0.65	10.43	1.33	8.6%	87.2%	7.31	0.48	3.4%	64.5%	7.33	0.95	4.4%	79.1%
7	0.43	12.79	1.56			8.75	0.46			50.06	0.92		
B.U	<0.08	14.56	2.22			20.43	1.31			18.53	1.68		
F.P		47.16	5.86			41.67	2.42			41.98	3.91		
Total		87.92	6.72	9.9%	100%	92.77	3.75	4.8%	100%	113.7	4.94	5.3%	100%

B.U: Back-up Filter.  
F.P: Fine Particulate.

C.P: Coarse Particulate.  
TSP: Total Suspended Particulate.

e.c.d: effective cutoff diameter.  
NO<sub>3</sub><sup>-T</sup>: Total nitrate.

립하였다.

그러나  $\text{NH}_3$  농도와 입자상 nitrate,  $\text{HNO}_3$  농도 및 기온간의 상관계수는 각각  $r = -0.347, 0.477$  및  $0.231$ 로 서로간에 상관성이 적었다. 또 (표 2)에서 보듯이  $\text{NH}_3$ 의 농도는  $\text{HNO}_3$  농도보다 주간(09:00-17:00)에는 1.3배, 야간(20:00-06:00)에는 1.9배, 평균 1.7배 더 높았다. 그러므로  $K > K_c$ 의 원인은 대기중에 식 (1)의 평형 농도 이상의  $\text{NH}_3$ 가 인위적으로 생성 및 배출 되었기 때문으로 사료된다.

$\text{NH}_3/\text{HNO}_3$ 가 야간이 주간보다 더 큰 것은  $\text{NH}_3$  농도의 경시변화는 일정한 경향을 보이지 않은 반면  $\text{HNO}_3$  농도는 주간에 높고 야간에 낮았기 때문으로 사료된다.

## 5. 결 론

1991년 10월 8일부터 11일까지 서울시 성동구 모진동 건국대학교 공과대학 옥상에서 대기중의  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 와  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{NH}_3$  성분간의 평형에 관하여 연구한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 대기중의  $\text{NH}_3$ 와  $\text{HNO}_3$  농도적(積)인  $K$ 값은  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ ,  $\text{HNO}_3$  및  $\text{NH}_3$ 의 열역학적 자료에서 이론적으로 계산한 평형상수  $K_c (= [\text{HNO}_3][\text{NH}_3] \text{ppb}^2)$ 값보다 더 커서 오염된 도시 대기중에는  $\text{HNO}_3$ 와  $\text{NH}_3$ 농도가  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 와의 평형농도 이상의 파괴화 상태로 존재하였다.
2. 기온과 입자상 nitrate( $\text{NO}_3^-$ ) 및  $\text{HNO}_3$  농도간의 상관계수는  $r = -0.633$ 과  $0.605$ 이었으며, 입자상 nitrate( $\text{NO}_3^-$ )와  $\text{HNO}_3$ 간의 상관계수는  $r = -0.623$ 이었다. 또 입자상 nitrate( $\text{NO}_3^-$ )중  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 는 64.5-87.2%로 기온이 높으면 입자상 nitrate( $\text{NO}_3^-$ )중의  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 가 해리하여  $\text{HN}_4\text{NO}_3$  농도가 낮아지고  $\text{HNO}_3$  농도는 높아지며, 역으로 기온이 낮아지면  $\text{HN}_4\text{NO}_3$  농도는 높아지고  $\text{HNO}_3$  농도는 낮아져  $\text{HN}_4\text{NO}_3$ 와  $\text{HNO}_3$  농도간에는 기온에 의존하는 평형관계가 성립하였다.
3. 기온과 대기중의  $\text{NH}_3$  농도간의 상관계수는  $r = 0.231$ 로 매우 낮았고  $\text{NH}_3$  농도와  $\text{HNO}_3$  및 입자상 nitrate( $\text{NO}_3^-$ ) 농도간의 상관계수도  $r = 0.477$ 과  $-0.347$ 로 낮았으며, 실험기간중  $\text{NH}_3/\text{HNO}_3$ 가 평균 1.7배여서  $K > K_c$ 의 원인은 인위적으로 생성·배출된  $\text{NH}_3$  때문이었다.

## 참 고 문 헌

천 만영, 강 공언, 김 희강 (1992) 환경대기중

nitrate생성에 관한 연구, 한국대기보전학회지, 8(1), 68-73.

- 角脇 恰 (1980) 名古屋市大氣中における海鹽粒子的舉動, 日本化學會誌, 1, 141-146
- 板本和彦 (1981) 浮游粒子狀物質に関する文獻學的調査, 日本科學技術情報センター, 環境聽委託調査報告書, 94-96.
- Appel, B. R., Evaldo L. Kothny, Emanuel M. Hoffer, George M. Hidy, and Jerome Wesolowski (1978) Sulfate and Nitrate Data from the California Aerosol Characterization Experiment (ACHEX), Environ. Sci. Technol., 12(4), 418-425.
- Appel, B. R., S. M. Wall, Y. Tokiwa, and M. Haik (1980) Simultaneous Nitric Acid, Particulate Nitrate and Acidity Measurements in Ambient Air, Atmos. Environ., 14, 549-554.
- Appel, B. R., Y. Tokiwa, and M. Haik (1981) Sampling of Nitrates in Ambient Air, *ibid*, 15, 283-289.
- Calvert, J. G., W. R. Stockwell (1983) Acid generation in the troposphere by gas-phase chemistry, Environ. Sci. Technol., 17(9), 428A-443A.
- Hildemann, L. M., A. G. Russell, and G. R. Cass (1984) Ammonium and Nitric Acid Concentrations in Equilibrium With Atmospheric Aerosols: Experiment Vs Theory, Atmos. Environ., 18(9), 1737-1984.
- JANAF (1971) Thermochemical Tables, 2nd edition, NSRD-NBS 37.
- Joh. W (1978) Measurement of the Filtration Efficiencies of Selected Filter Type, Atmos. Environ., 12, 2015-2019.
- Kadowaki, S (1976) Size Distribution of Atmospheric Total Aerosols, Ammonium and Nitrate Particulates in the Nagoya Area, *ibid*, 10, 39-43.
- Milford, J. B and C. I. Davison (1987) The Sizes of Particulate Sulfate and Nitrate in the Atmosphere--A Review, JAPCA, 37(2), 125-134.
- Okita, T., S. Morimoto, M. Izawa, and S. Konno (1976) Measurement of Gaseous And Particulate Nitrate in the Atmosphere, Atmos. Environ., 10, 1085-1089.

- Orel, A. E and H. Seinfeld (1977) Nitrate Formation in Atmospheric Aerosols, *Environ. Sci. Technol.*, 11,1000-1007.
- Parker, V. B., D. D. Wagman, and D. Garvin (1976) Selected Thermochemical Data Compatible with the CODATA Recommendations, NBSIR 75-968.
- Sickles, J. E., L. L. Hodson, E. E. Rickman, Jr., M. L. Saeger, D. L. Hardison, A. R. Tumer, C. K. Sokoi, and E. D. Estes (1989) Comparison of the Annular Denuder System and the Transition Flow Reactor for Measurements of Selected Dry Deposition Species, *JAPCA*, 39(9), 1218-1224.
- Spicer, C. W., J. E. Howes, Jr., T. A. Bishop, L. H. Arnold, and R. K. Stevens (1982) Nitric Acid Measurement Methods: An Intercomparison, *Atmos. Environ.*, 16(6), 1487-1500.
- 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, *ibid*, 13, 369-371.
- Stelson, A.W and J. H. Seinfeld (1982) Relative humidity and temperature dependence of the ammonium nitrate dissociation constant, *ibid*, 16, 983-992.
- Tesch, J (1979) Selective Collection and Measurement of Particulate Nitrate and Gaseous  $\text{HNO}_3$  in Ambient Air, EPA-600/2-79-051, 67-77.
- Wagman D. D., W. H. Evans, V. B. Parker, I. Harlow, S. M. Baily, and R. H. Schumm (1968) Selected Values of Chemical Thermodynamic Properties; Tables for the First Thirtyfour Elements in the Standard Order of Arrangement, NBS Technical Note 270-273.
- Wang, C. C., L. I. Davis, Jr. C. H. Wu, S. Japar, H. Niki, B. Weinstock (1975) Hydroxyl Radical Concentration Measured in Ambient Air, *Science*, 189, 797-800.