

강수에 의한 대기 에어로졸 입자의 세정특성

Characterization of Atmospheric Aerosols Scavenged by Rain Water

박 정 호* · 최 금 찬** · Mikio Kasahara*

*경도대학 원자에너지연구소

**동아대학교 환경공학과

(1995년 12월 1일 접수, 1996년 5월 14일 채택)

Jeong-Ho Park, Kum-Chan Choi, Mikio Kasahara

*Institute of Atmoic Energy, Kyoto University, Japan

**Dept. of Environmental Engineering., Dong-A University

(Received 1 December 1995; accepted 14 May 1996)

Abstract

In order to study the scavenging mechanism as a final goal, the characteristics of chemical components in the rain water were examined as a function of the amount of rainfall. The rain drops were collected sequentially with a rainfall interval amount of each 0.1~0.5 mm from the beginning of rain. Rain water was separated into the soluble and insoluble components and the concentrations of 15 elements in both components were determined by the PIXE analysis. The elemental concentrations decreased quickly till about 0.3~0.5 mm of rainfall was obtained and then decreased gradually afterward. Fe, Ti, and Si in the aerosol particles caught in rain water were in high insoluble state. In contrast, almost whole of S and Cl were dissolved in rain water.

1. 서 론

대기중 입자상이나 가스상의 대기오염물질은 비나 눈 등에 의한 습성침착 (wet deposition) 그리고 중력침강, 확산, 관성충돌 등의 건성침착 (dry deposition) 과정에 의해 대기 중으로부터 제거되어지며, 특히 강수에 의한 습성침착은 자연의 중요한 대기정화 작용 중의 하나이다. 종래의 강수에 의한 습성침착의 연구는, 주로 이온크로마토그래프법 등을 이용한 이온성분의 농도분석을 중심으로 한 강수 중 오염물질의 농도 파악이나 pH저하 원인의 규명 등의 연구보고를 많이 볼 수 있다. 그러나, 최근 산성우 문제가 차세대의 공해문제로서 관심을 모으게 됨에 따라 습성침착은 그 실태파악 뿐만 아니라 침착 기구의 해명 등 더욱 상세한 정보가 요구되고 있다.

한편, 강수에 의한 대기입자상 물질의 세정특성에 대해, Slinn (1977)과 Wang (1978)은 이론적 세정모델에 의한 검토결과 입자상 물질의 농도, 입경별 특성 그리고 빗방울의 크기 등에 따른 영향을 크게 받는 것으로 보고 하고 있으며, Zinder (1988)는 강수시 입자상 물질의 측정을 통한 조대입자의 높은 세정효율을 보고하고 있다.

곽노혁 등 (1990)은 액적크기분포를 고려한 일차원 적운 모델에 대해 강우의 생성과정에 있어 크기분포변화를 조사하였다. 계속해서 곽노혁 등 (1991)은 일차원 적운모델을 이용한 산성강우 형성에 관한 수치적 해석을 검토하였으며, 심상규 등 (1994)은 청정지역 빗물강우의 이온성분의 농도분석을 실시하였다.

그러나, 본 연구에서는 대기 중이나 강수 중의 오염물질농도 해석을 종래의 분석상의 제한으로 인해 평균농도

로 설명되기 쉬운 정보를 ng단위의 미량성분까지 분석가능한 PIXE (Particle Induced X-ray Emission)법에 주목하고 습성침착을 보다 단시간적으로 파악하고자 한다. 또한, 입자상 물질의 세정특성을 해명하기 위한 첫단계로서 대기중 조대, 미세입자의 강수시간에 따른 포집에 의한 입경별 세정특성과 비가 내리기 시작부터의 강수량에 따른 강수 중의 농도변화에 대해 검토하였다.

2. 실험 및 분석방법

시료채취는 일본 경도대학 우지캠퍼스의 옥상 (지상 약 15 m)에서 채취하였다. 먼저, 벳물 채취는 직경 30 cm의 칼대기 (high speed funnel)를 이용하여 비가 내리기 시작부터 약 2.0 mm까지의 초기강수시에는 강수량 0.1~0.2 mm씩 채취하고, 그 이후의 강수에 대해서는 0.5 mm씩 연속 채취하였다. 채취된 벳물시료는 공극 0.2 μm , 직경 25 mm의 Nuclepore filter로서 여과하여 여과액을 수용성 (soluble) 성분, 여과필터에 남은 성분을 불용성 (insoluble) 성분으로 정의하였다. 또한 수용성성분 중의 pH, 전기전도도 (electrical conductivity, EC)를 측정하고 여과 필터의 여과전후의 중량차를 불용성성분의 농도로 하였으며, 시료의 원소분석은 1개월 이내에 실시했다.

PIXE분석용 시료의 작성은 수용성의 경우, 무공극의 Nuclepore film 위에 마이크로 피펫으로 여과액을 시료에 따라 약 3~5방울(1방울은 20 μl)를 떨어뜨린 후 적외선 램프로서 건조시켜 고체상태로 시료를 만들어 분석하였다. 또한 불용성 성분은 데시케이터에서 건조시킨 후 여과 필터의 일부분을 절취하여 PIXE 분석용 시료로 분석하였다.

한편, 대기 에어로졸 입자의 채취는 직경 47 mm, 공극 8.0 μm 과 0.4 μm 의 Nuclepore filter를 직렬로 연결한 2단 필터홀더를 이용하여 미세입자 (입경 < 1.0 μm)와 조대입자 (입경 > 1.0 μm)별로 2~4시간 간격으로 분리 포집한 후 각 시료별 원소분석을 실시했다.

2.1 PIXE법에 의한 원소분석

가속되어진 양자나 α 입자 등의 이온이 시료중의 원자에 충돌하고 특유한 에너지를 가진 특성 X선이 방출된다. 이 특성 X선의 에너지와 강도를 측정하여 시료중의 원소를 정성, 정량분석이 가능한 PIXE (particle induced X-ray emission)분석법은 Ion Beam의 에너지로서는 1~3 MeV 정도의 비교적 낮은 에너지가 효율

적이기 때문에 Beam발생장치는 보통 소형의 가속기를 이용하고 있다.

본 연구에서 사용한 PIXE는 경도대학 원자핵공학교실에 설치되어있는 Ion-Beam 분석실험장치를 사용했다. 이온은 2 MeV, H⁺빔을 사용하고, 이온빔 조사에 의해 시료에서 발생되는 특성 X선은 Si (Li)검출기로 검출하였다. 그리고 측정효율을 높히기 위해 Absorber는 39.3 μm 두께의 Mylar Film를 사용하였고 조사전 하량 (5nA~30nA)은 시료의 질량두께에 따라 조절했다. 검출된 전기신호는 증폭 후 스펙트럼 상태로 기억시키고 PIXE스펙트럼 해석프로그램을 이용하여 스펙트럼의 Peak 카운터 수 부터 농도로 환산하였으며, 그림 1과 같은 스펙트럼과 그 해석 결과를 얻을 수 있다. 횡축은 Channel 수로 표시하고 있지만 X선 에너지와는 비례관계가 있으며 1024 Ch은 14.5 keV에 상당한다. 본 연구에서는 Si, S, Cl, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, Br, Pb의 15원소를 분석대상으로 했다.

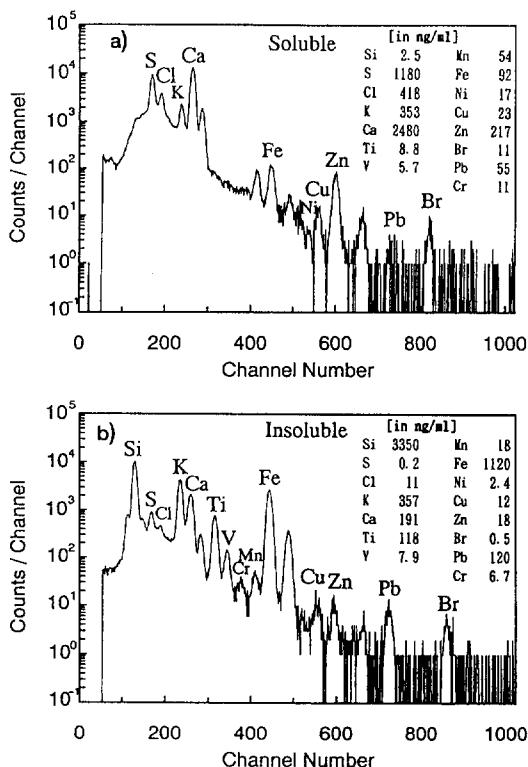


Fig. 1. Examples of PIXE spectra:
(a) Soluble (b) Insoluble

Table 1. Change of pH, E.C. and insoluble concentrations as a function of the amount of rainfall.

	Rainfall [mm]	1995/1/12			2/12			2/28			4/22			5/25			6/8		
		Min.	Max.	Ave.	Min.	Max.	Ave.	Min.	Max.	Ave.	Min.	Max.	Ave.	Min.	Max.	Ave.	Min.	Max.	Ave.
pH	0~0.5	3.9	4.0	3.9	3.7	3.8	3.8	4.0	4.2	4.1	5.2	6.3	5.9	5.5	6.9	6.5	5.0	5.4	5.1
	0.5~1.5	4.3	4.6	4.4	3.9	4.4	4.2	4.3	4.5	4.4	5.2	6.6	5.6	6.3	6.8	6.6	4.9	5.6	5.0
	1.5~	4.5	4.9	4.7	4.3	4.6	4.5	4.5	5.1	4.8	End	4.5	6.2	5.8	5.5	6.1	6.0		
EC [$\mu\text{S}/\text{cm}$]	0~0.5	86	106	96	86	109	94	33	78	55	25	41	31	36	62	51	13	30	21
	0.5~1.5	29	61	47	26	71	42	17	25	22	9	20	13	16	29	20	9	11	10
	1.5~	18	66	44	16	34	22	7	19	12	End	3	21	7	2	8	4		
Insoluble [$\mu\text{g}/\text{ml}$]	0~1.5	9.4	13.8	11.3	9.0	12.9	11.6	4.7	15.9	10.2	29.9	54.0	40.6	24.8	58.3	43.0	4.5	11.5	7.8
	0.5~1.5	3.8	10.3	5.6	3.4	16.0	7.2	2.1	4.6	3.6	15.9	31.3	18.6	14.1	33.2	21.0	1.3	2.3	1.8
	1.5~	2.5	5.1	3.6	2.4	4.8	3.5	0.6	1.8	1.1	End	1.6	10.3	3.5	0.3	2.5	1.0		

3. 결과 및 고찰

3.1 강수량에 따른 빗물성분의 농도변화

본 연구는 1995년 1월부터 6월까지 월 1회 정도 빗물 시료를 비가 내리기 시작부터 0.1~0.5 mm의 강수량 별로 연속채취한 후 시료를 여과하여 수용성, 불용성 성분별로 분석하였다.

표 1은 강수별로 연속채취한 빗물을 강수량 0~0.5 mm, 0.5~1.5 mm, 1.5 mm~ 이후의 강수별로 pH, 전기전도도, 불용성 성분농도의 특성을 표시했다.

일반적으로 전체 강수량 중 강수량 0.5 mm까지의 초기강수시에 대해서 pH는 매우 낮은 범위, 그리고 전기전도도와 불용성의 농도는 매우 높은 수치를 나타내는 경향을 보였다. Run1의 경우 0.5 mm까지의 초기강수시 pH의 범위는 3.9~4.0 그리고 전기전도도 86~106 $\mu\text{S}/\text{cm}$, 불용성의 농도 9.4~13.8 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 의 범위를 나타내어 전체 강수 중 초기강수의 오염상태가 매우 큰 것으로 생각된다. 한편, 4, 5월의 봄철에 채취된 시료 중에는 타계절보다 pH, 불용성의 농도가 높은 경우가 많았으며, 여과 필터상의 불용성 성분이 황색에 가까운 빛깔을 나타내는 등 토양입자 등에 의한 영향일 것으로 추측되어진다.

그림 2는 2월 12일 (20:40~22:40)의 결과로 비가 내리기 시작부터 강수량별로 연속채취한 빗물시료 중 pH, 전기전도도, 불용성성분의 농도 그리고 수용성성분 중 S, Cl, Ca와 불용성 중 Si, Fe, K 원소농도의 변화를 적산 강수량의 함수로 표시한 것이다. 이날 비가 내리기 시작하여 약 2시간 동안 총강수량 4.9 mm의 비가 내렸고, 평균 강수강도는 2.32 mm/hr였다.

pH의 전체범위는 4.0~5.1로 초기강수시 일시적으로 낮아진 pH는 강수량에 따라 다시 점점 높아지는 경

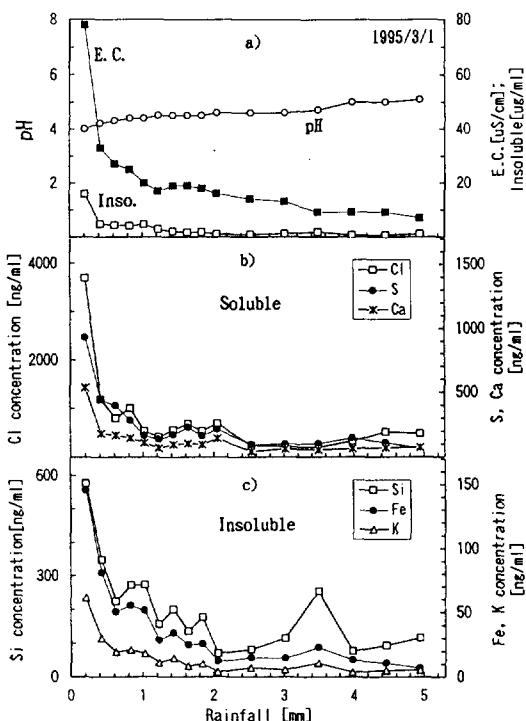


Fig. 2. Change of as a function of the amount of rainfall.

향을 나타냈다. 그리고 전기전도도의 범위는 7~78 $\mu\text{S}/\text{cm}$, 불용성의 농도범위는 0.6~15.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 강수량에 따라 점점 감소하는 경향을 나타냈다. 이러한 강수량에 따른 pH, 전기전도도 그리고 불용성의 농도변화의 특성은 다른 강수시에서도 자주 나타나는 일반적인 경향이었다. 그리고 전기전도도는 뚜렷한 계절변화는 나타나지 않았으나, 특히 초기강수의 값은 강수에 따라서

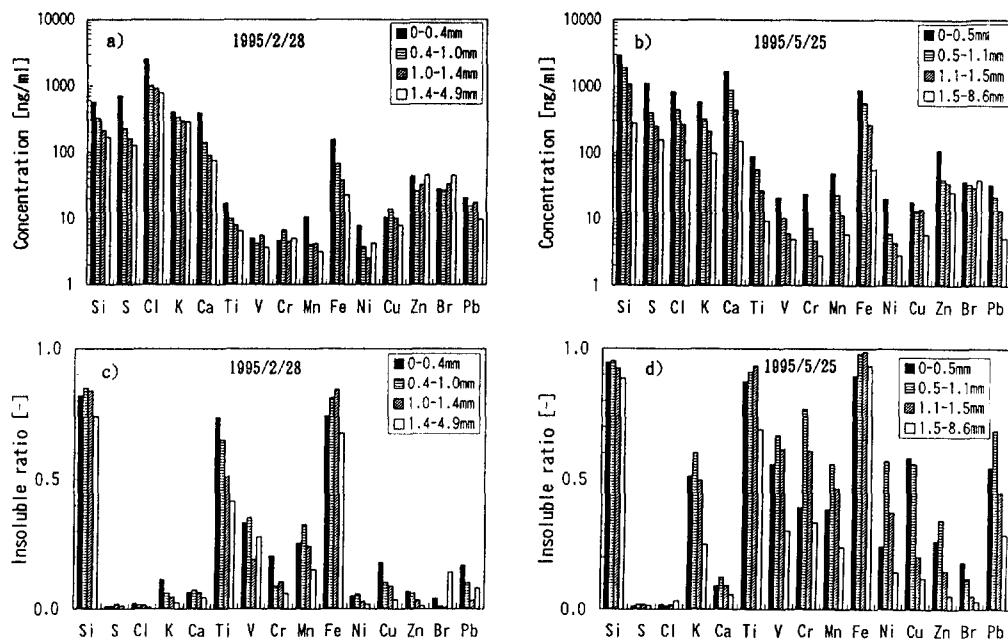


Fig. 3. Total (soluble+insoluble components) concentrations and insoluble fractions of 15 elementals in rain water averaged with each 0.5 mm rainfall from the beginning of rain.

큰 차이를 나타내는 경우가 많았다. 수용성 성분 중의 S, Cl의 농도변동은 전기전도도와 비슷하게 비가 내리기 시작부터 강수량 약 0.3~0.5 mm까지는 급속한 농도감소를 나타내고, 그 후 농도의 변화 폭이 점점 작아지는 경향을 보였다. 그리고 수용성성분 중에서는 S, Cl가 일반적으로 높은 농도로 존재하고 있었고, 특히 Ca은 계절에 따른 농도변화를 보였는데, 봄철이 태계절보다 높은 농도로 나타냈다. 불용성성분의 Si, Fe, K도 강우량 약 0.5 mm까지 급속한 농도감소의 경향을 보였으며, 불용성성분 중에서는 $Si > Fe > K \approx Ca > Ti$ 의 농도순위가 일반적이었다.

그림 3은 2월 12일, 5월 25일의 시료를 강수량 약 0.5 mm씩 평균한 15가지 원소별 전 농도(수용성+불용성성분)와 불용성의 농도비(불용성농도/전체농도)를 나타내었다.

2월 12일의 경우 분석한 15가지 원소 농도 중 Cl가 가장 높은 농도를 나타냈고, 그 다음이 S, Si, K, Ca, Fe의 순으로 농도가 높았다. 빗물 중의 Cl 농도는 이날 채취된 대기 에어로졸 입자의 원소 농도순위 $Si > S > Cl \approx K \approx Ca$ 으로 추정되는 것보다 상대적으로 높은 농도를 나타내고 있어 가스상의 Cl가 세정특성에 큰 영향을 끼친 것으로 추측된다. 한편, 5월 25일의 봄철에 채취된

빗물시료 중에서는 특히 토양기원의 Si, Ca, Fe, Ti 성분이 평상시 보다 높았고, 일반적으로 전 농도 중의 불용성의 농도비는 Si, Fe, Ti 등의 토양기원 원소가 높았고, 반대로 S, Cl, K, Ca 등은 수용성성분의 비율이 높았다. 특히 S, Cl는 거의 대부분 수용성인 것으로 나타났다. 또한 4, 5월의 봄철에 채취된 시료 중에는 S, Cl, Ca를 제외한 원소성분이 불용성의 비율이 전반적으로 높아졌으며, 특히 K는 평상시 10% 전후를 나타냈던 불용성의 비율이 봄철의 초기 강수시 50% 정도의 높은 수치를 나타내었다.

3.2 조대, 미세입자의 세정특성

그림 4는 1995년 5월 25일 빗물의 채취와 동시에 강수시간에 따른 대기입자의 농도변동을 알아보기 위해 강수전과 강수 2시간 간격으로 조대입자와 미세입자별로 측정한 농도결과를 나타냈다.

일반적인 강수시간에 따른 대기입자의 세정특성은 조대입자가 미세입자보다 농도감소가 현저하고, 특히 조대입자의 총 세정량 중 초기강수에 의한 비율이 크다는 것을 알 수 있다. 조대입자의 대부분 원소가 강수 전 농도에 비해 6시간의 강수 후의 농도감소가 크게 일어났으나, S 등 성분에 따라서는 큰 농도 변화가 없는 경우도

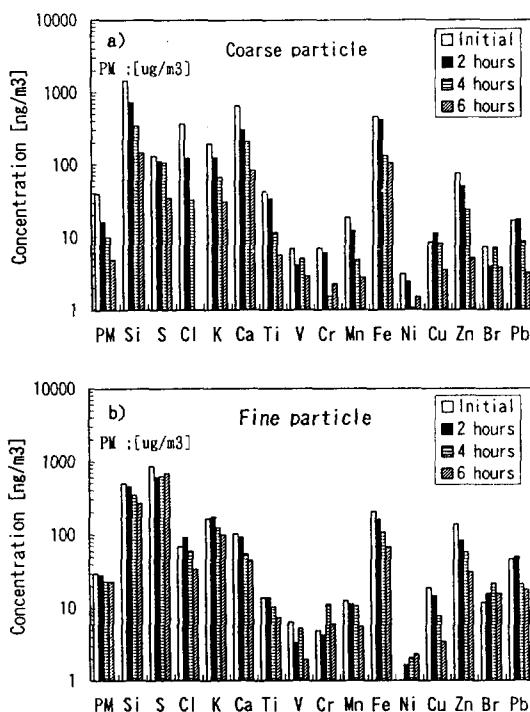


Fig. 4. Change of as a function of the time of rainfall.

있었다. 또한 Cl, Ca, Si는 강수 2시간 후의 초기강수가 강수전 농도에 비해 질량농도가 50% 이하의 큰 농도로 세정되는 것으로 나타났다.

그리고, 미세입자의 경우는 조대입자와 같이 강수에 의한 큰 농도감소는 볼 수 없었으며, 조대입자의 대부분의 원소가 초기강수부터 큰 농도감소를 나타난 반면 미세입자측의 원소는 강수시간에 따라 조금씩 농도가 감소하는 경향이 나타났다. 이러한 입경별 세정특성에 대해서 Zinder (1988)는 세정효율은 입경 4 μm 이상의 조대입자에서 거의 일어나며, 0.5~4 μm 의 입경범위에서는 거의 세정이 일어나지 않으나, 0.3 μm 이하의 입경에서는 10%의 세정효과가 일어난다고 보고하고 있다. 한편, 대기 에어로졸의 농도부터 추측되는 것보다 빗물 중에서 높은 농도로 나타난 Cl는 특히 조대입자측에서의 높은 농도와 타 원소에 비해 강수에 의한 농도감소가 현저하게 저하되는 것을 보아서 대기 중의 가스상의 농도뿐만 아니라 대기 중 조대입자에서 고농도로 존재하는 입경분포의 특성에 따른 영향도 큰 것으로 생각된다.

또한 위의 결과를 통해서, 빗물 중의 오염물질의 농도가 초기강수시 상당히 높고 강수의 경과에 따라 점점 농

도감소가 일어나는 경향이나 대기 중의 오염물질이 강수 시간에 따라 점점 감소하는 결과 등을 보아 rainout기구에 의한 특성이라고는 생각하기 어려우며, washout에 의한 세정효과가 상당히 기여가 높은 것으로 추측되어진다. 또한 대기 중 입자상오염물질이 낙하하는 빗방울에 의해 포집되는 washout 세정특성은 입자의 크기와 빗물사이의 포집메카니즘으로 고려할 수 있다.

3.3 입경별에 따른 이론적 세정특성

그림 4의 결과로부터 washout에 의한 대기 에어로졸 입자의 세정특성은 입자의 크기분포에 따른 영향을 크게 받는 것으로 생각되며, 다음과 같은 세정이론을 통해 검토해보았다.

대기 중의 에어로졸 입자가 낙하하는 빗방울에 의해 제거(washout)되는 중요한 세정과정에는 입경 2 μm 이하의 미세입자는 브라운 확산(brownian diffusion), 2~5 μm 입자는 차단(interception)효과, 그리고 5 μm 이상의 조대입자는 관성충돌(inertial impaction) 등에 의한 입경별 포집과정이 크게 작용하고 (1)식과 같은 전 포집효율로 나타낼 수 있다.

$$E_{all} = 1 - (1 - E_{diff})(1 - E_{int})(1 - E_{imp}) \quad (1)$$

빗방울에 의해 단위시간당 제거되는 입자의 세정계수(Scavenging coefficient) [S^{-1}]는 간단히 입자의 반경, 빗방울의 반경, 침강속도, 전 포집효율, 빗방울의 크기분포로 표시할 수 있다.

$$\Lambda(a) = \pi \int_0^{\infty} R^2 V_t(R) E_{all}(a, R) N(R) dR \quad (2)$$

또한 빗방울에 의한 입자의 세정속도가 입자의 농도에 비례한다고 가정하고 비례정수를 세정율로 하면, (3)식으로 나타낼 수 있다.

$$\frac{dn(a, t)}{dt} = -\Lambda(a)n(a, t) \quad (3)$$

또한 (3)의 식을 (4)의 식으로 표현하면,

$$n(a, t) = n(a, 0) \exp[-\Lambda(a)t] \quad (4)$$

시간함수에 따른 대기 입경별 빗방울에 의한 세정효율은 (5)식으로 표시된다.

$$\begin{aligned} \eta(a, t) &= \frac{n(a, 0) - n(a, t)}{n(a, 0)} \\ &= 1 - \exp[-\Lambda(a)t] \end{aligned} \quad (5)$$

위의 이론적 세정효율식을 이용하여 강수시간에 따른 입경별 세정특성을 알아보기 위해 1995년 5월 25일의 경우를 들어 실제 강수 직전까지 입경별로 채취된 대기 에어로졸 입자의 농도(총농도 $69.8[\mu\text{g}/\text{m}^3]$)를 대수정 규분포식을 이용 입경별분포로 작성 한 뒤 2, 4, 6시간 강수후의 이론적 입경별 세정특성을 그림 5에 나타냈다. 그리고 강수강도의 값은 1분간격으로 측정가능한 수액계 수식의 강수강도계(일본 大田計器, Model 37-T)를 이용하고 그 시간별 평균치를 사용하였다.

계산결과 표 2에 나타난 것처럼 강수전의 농도로부터 강수시간에 따른 입자의 질량감소는 비가 내리기 시작부터 2시간 후의 초기강수 세정효율이 29%로 가장 높고, 그후 강수시간에 따라 35%, 39%로 점점 높아지는 결과를 나타냈다.

그리고 입경별에 따라서는 미세입자측에서 보다 거의 조대입자측에서 세정효과가 일어났으며, 특히 입경 $5\mu\text{m}$ 이상의 조대입자가 강수에 의한 세정효율이 상당히 높을

것을 알 수 있었다. 세정효율에 큰 영향을 미치는 강수 강도는 강하게 내리는 비일수록 세정효율은 높아지고 초기강수 일수록 세정효율이 높아짐을 예상할 수 있는데, Garcia Nieto (1994)의 보고에 의하면 강수강도 25 mm/hr 의 강한 비가 1시간 내린 세정효율과 0.5 mm hr 의 약한 비가 12시간 내린 세정효율이 비슷하다고 보고하고 있다. 결국, 본 연구에서 검토된 이론적 입경별 세정특성으로 부터는 입경 $1\mu\text{m}$ 이하의 미세입자는 벗방울에 의한 포집효과는 거의 무시되며, 주로 입경 $1\mu\text{m}$ 이상의 조대입자의 영향을 크게 받는 것으로 나타났다. 이러한 이론적으로 계산된 강수시간에 따른 농도 변화는 그림 4에 나타난 것처럼 실제 채취된 농도와 다소 차이를 보이고 있지만 조대입자측에서의 월등한 세정효과나 강수시간에 따라 세정효과가 점점 낮아지는 경향 등은 일치하였다. 이 후 나타난 문제점에 대해 좀 더 많은 검토를 행할 예정이다.

4. 결 론

본 연구에서는 강수에 의한 대기 에어로졸 입자의 세정특성을 파악하기 위해 PIXE 분석법이 가지는 높은 감도분석에 주목하고, 강수량에 따른 벗물 중의 성분이나 강수시 대기 에어로졸 입자의 미량원소의 농도특성을 검토했다.

강수량에 따른 벗물 중의 원소농도는 수용성, 불용성 성분 모두 강수량 약 $0.3\sim0.5\text{ mm}$ 부근까지 큰 폭으로 급속히 감소하고 그 이후 농도의 변화폭이 점점 작아지는 경향을 보였다. 또한 Fe, Si, Ti 등을 불용성성분의 비가 크고, S, Cl, Ca 등을 수용성성분이었다. 강수에 의한 대기 중의 원소농도 감소는 미세입자측보다 거의 조대입자측에서 크게 나타났으며, 특히 초기강수에 의한 농도 감소가 상당히 큼을 알았다. 이러한 강수에 의한 대기 오염물질의 세정특성을 이론적 입경별 세정효율로 검증해 본 결과 입경 $5\mu\text{m}$ 이상의 조대입자측에서 거의 일어나는 것을 알 수 있으며, 강수강도가 클수록 그리고 초기강수시 세정효율이 높음을 알 수 있었다.

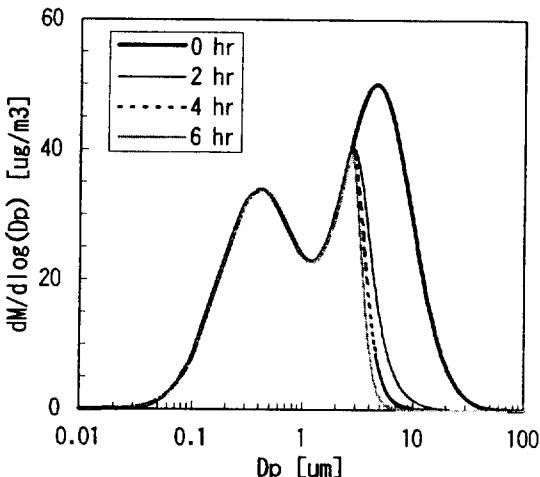


Fig. 5. Evolution of mass distribution of aerosol particles as a function of the time of rainfall.

Table 2. Scavenging efficiencies of total mass after 2, 4 and 6 hours.

	Initial	2hr	4hr	6hr
Intensity [mm/hr]	-	0.95	0.65	0.84
Total mass [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	69.8	49.6	45.4	42.6
(Coarse/Total)	(0.57)	(0.39)	(0.34)	(0.29)
η_{all}		29%	35%	39%

η_{all} : scavenging efficiencies of total mass.

참 고 문 헌

- 곽노혁, 김이호, 홍민선 (1990) 액적의 크기분포를 고려한 일차원 적운모델의 개발에 관한 연구, 한국 대기보전학회지, 6(2), 176-182.
곽노혁, 안상욱, 홍민성 (1991) 일차원 적운모델을 이용

- 한 산성강우 형성에 관한 수치적 연구, 한국대기보전학회지, 7(3), 145-149.
- 심상규, 장창희, 김용표(1994) 제주도에서의 빗물 이온 농도분석, 한국대기보전학회지, 10(2), 98-104.
- 笠原三紀夫(1993) PIXE によるエアロゾル粒子の元素分析, 日本エアロゾル學會, 8(2), 118-123
- 日本氣象學會(1987) 酸性雨, 氣象研究ノート, 158, 85-118.
- 名古屋大氣水圈科學研究所(1991) 大氣水圈の科學-黃砂, 古今書院.
- Hicks, B.B.(1984) Deposition both wet and dry, Acid precipitation series; 4, An Ann Arbor Science, 37-62.
- Nieto, G., P.J., B.A. Garcia, J.M.F. Diaz and M. A.R. Brana (1994) Parametric study of selective removal of atmospheric aerosol by below-cloud scavenging, Atmos. Environ., 28(14), 2335-2342.
- Pruppacher, H.R. and J.D. Klett (1978) *Microphysics of clouds and precipitation*, D. Reidel, Boston, pp.358-409.
- Seinfeld, J.H.(1986) *Atmospheric chemistry and physics of air pollution*, John Wiley and Sons, New York, pp.620-628.
- Slinn, W.G.S., et al.(1978) Some aspects of the transfer of atmospheric trace constituents past the air-sea interface, Atmos. Environ., 12, 2055.
- Wang, T.T., E.R. Altwicker and W.A.H. Asman (1990) Numerical simulation of wet scavenging of air pollutions-II. Modeling of rain composition at the ground, Atmos. Environ., 24(9), 2485-2498.
- Whitby, K.T.(1978) The physical characteristics of sulfur aerosols, Atmos. Environ., 12, 135-159.
- Zinder, B., T. Schumann and A. Waldvogel (1988) Aerosol and hydrometeor concentrations and their chemical composition during winter precipitation along a mountain slope-II, Atmos. Environ., 22(12), 2741-2750.