

다단입자채집기와 입자계수기 자료를 이용한 서울 에어러솔 밀도 계산

Aerosol Density Determined Using Micro-orifice Uniform Deposit Impactor and Aerosol Dust Monitors Data at Seoul

김 정 은* · 이 해 영

국립기상연구소 황사연구과

(2010년 2월 8일 접수, 2010년 3월 17일 수정, 2010년 4월 30일 채택)

Jeong Eun Kim* and Haeyoung Lee

Asian Dust Research Laboratory, National Institute of Meteorological Research

(Received 8 February 2010, revised 17 March 2010, accepted 30 April 2010)

Abstract

In order to calculate the aerosol bulk densities of $PM_{1.0}$ and PM_{10} , aerosol mass and number concentrations were measured for the period of December 2008 ~ April 2009. $PM_{1.0}$ and PM_{10} mass concentrations were measured using a cascade impactor (Micro-Orifice Uniform Deposit Impactor, MOUDI) while their volume concentrations were calculated based on number concentrations from an environmental dust monitor (EDM). Normal aerosol size distribution fitting functions were retrieved for number size distribution since aerosols $< 2.5 \mu m$ were measured from the EDM. Strong correlation was found between PM_{10} mass and volume concentrations obtained with a R^2 of 0.95. The calculated average bulk densities of $PM_{1.0}$ and PM_{10} were $1.97 \pm 0.33 \text{ g/cm}^3$ and $2.15 \pm 0.18 \text{ g/cm}^3$, respectively.

Key words : Aerosol density, Cascade impactor, MOUDI, Dust monitor, Asian dust

1. 서 론

입자의 밀도는 입자의 직경과 함께 침강, 확산 등을 결정하는 중요한 요소로서 에어러솔 수송 모델의 입력자료로 사용된다. 모델에서 에어러솔 밀도를 정확하게 사용하기 위해서는 에어러솔의 종류별, 시공간적 분포를 정확하게 모의하여야 하나, 이는 현실적

으로 어려우므로 정확한 밀도 사용이 어렵다. 부정확한 밀도가 사용될 경우 입자의 예측 질량농도가 과대 또는 과소평가될 수 있다. 고체 에어러솔의 경우 복잡한 형상으로 존재하는 것이 보통이며, 비구형 입자에 대해 에어러솔 이론을 적용시킬 경우에는 Stokes 직경, 공기역학적 직경 등의 상당 직경 (equivalent diameter)을 이용하게 되는데 (Hinds, 1999), 이 때 입자의 밀도가 필요하다.

대기 중에 존재하는 에어러솔은 단일성분이 아닌 다양한 성분의 복합체이므로 입자의 실제 거동을 파

*Corresponding author.
Tel : +82-(0)2-6712-0408 E-mail : jekim@kma.go.kr

악하기 위해서는 평균 겉보기밀도(용적밀도, 총괄밀도, bulk density, apparent density)를 사용할 필요가 있다. 에어러솔의 평균 겉보기밀도를 추정하는 방법은 몇 가지가 제시되고 있다. Hänel (1968)은 굴절률의 실수부분(real part)을 알고 있는 액체에 입자를 분산시키는 액침법(immersion technique)으로 입자의 밀도를 계산하였다. 하지만 이 방법은 오차가 13~35%로 매우 크기 때문에 그 이후에는 부피와 질량을 각각 측정해 밀도를 계산하는 방법이 사용되었다(Thudium, 1976). 이 방법에 따라 계산된 건조 공기(dry air) 입자(0.1~10 μm)의 밀도는 1.8~3.0 g/cm³이며, 유기물이나 황화암모늄, 질산암모늄 등의 밀도는 낮고, 규산염(silicate) 등의 광물질의 밀도는 높은 것으로 보고되었다(Hänel and Thudium, 1977). 또한 아마존 지역에서 발생한 산불에서 배출된 연기(smoke) 입자의 밀도는 1.35 g/cm³(Reid and Hobbs, 1998), 도시 대기 중 50~202 nm 범위의 입자에 대한 밀도는 1.20~1.55 g/cm³로 평가되었다(Geller *et al.*, 2006). 미국 텍사스의 Big Bend 국립공원에서 측정된 PM_{2.5}의 평균 밀도는 1.56±0.12 g/cm³였으며, 이 지역은 주로 멕시코 및 텍사스 동부 지역과 치우아후안 사막에 인접해 있으며 시정(visibility)이 가장 좋지 않은 지역 중 하나이다(Hand and Kreidenweis, 2002).

각 에어러솔 종류별 밀도가 산정되면 모델이 에어러솔 농도를 정확하게 예측할 수 있으나, 이는 현실적으로 어려우므로 크기별 밀도가 산정된다면 에어러솔 예측 모델의 정확도를 높이는 데 기여할 수 있을 것이다. 따라서 본 연구에서는 서울황사감시센터(종로구 송월동)에서 운영 중인 다단입자채집기와 입자계수기를 이용하여 각 장비로 측정된 PM_{1.0} 및 PM₁₀의 질량농도와 부피농도를 비교하고, 이로부터 PM_{1.0}과 PM₁₀의 평균 겉보기 밀도를 추정해보고자 한다.

2. 실험방법

본 연구에서 대기입자 측정은 서울시 종로구 송월동에 위치한 서울황사감시센터에서 수행되었으며, 측정지점 주변은 주거지역과 8차선 도로가 위치하고 있다. 직경별 질량농도와 수농도는 각각 다단입자채

집기(Micro-Orifice Uniform Deposit Impactor, MOUDI 110, MSP Corp., 이하 MOUDI)와 입자계수기(Environmental Dust Monitor #365, GRIMM Aerosol Technik, 이하 EDM)로 측정하였다. MOUDI는 절단직경 10, 5.6, 3.2, 1.8, 1.0, 0.56, 0.32, 0.18, 0.10 and 0.056 μm의 10단으로 구성되어 있다. EDM은 장비에 유입된 에어러솔에 의해 산란된 레이저 빛을 감지하여 크기를 0.25 μm와 32 μm 사이의 31 구간으로 구분하여 수농도를 측정하도록 되어 있다. 본 연구에서는 MOUDI와 EDM의 직경이 일치하는 1.0 μm와 10 μm의 크기에서 PM_{1.0}과 PM₁₀의 밀도를 평가하였다.

EDM은 상시 관측하며 5분 간격의 자료가 생산되고 있다. MOUDI는 2008년 12월부터 2009년 4월까지 24시간씩 총 32회 포집했고, 입자 밀도는 MOUDI 측정 자료가 있는 경우에만 계산하였다. 건조 공기를 포집하기 위해서는 유입된 공기의 수분을 제거하거나 입자를 성장시킨 물입자를 제거하는 것이 필요하다. MOUDI는 중량법에 의해 질량농도를 측정하는 장비로써 포집 전후 건조기에서 24시간 항량하여 습도를 40% 내외로 조절하였다. EDM은 공기 흡입구의 nafion tube를 통해 수분을 선택적으로 제거할 수 있다.

MOUDI와 EDM으로부터 PM_{1.0} 및 PM₁₀의 질량농도(C_m) 또는 부피농도(C_v)는 1.0 μm 또는 10 μm 이하 단의 질량농도 또는 수농도를 합한 값으로 다음과 같이 계산된다.

$$C_m (\mu\text{g}/\text{m}^3) = \sum_i M_i \tag{1}$$

$$C_v (\mu\text{m}^3/\text{m}^3) = \sum_i V_i \tag{2}$$

$$V_i (\mu\text{m}^3/\text{m}^3) = N_i \times \frac{\pi}{6} D_i^3 \tag{2-1}$$

여기서, M_i, V_i, N_i는 각 단의 질량농도, 부피농도, 수농도이고, D_i는 각 단의 기하평균직경이다. 입자의 부피농도를 계산하기 위해 모든 입자는 구형이라고 가정하여 식 2-1을 이용하였다.

입자의 밀도(ρ)는 MOUDI로 측정된 질량농도와 EDM으로 측정된 부피농도로부터 다음과 같이 계산할 수 있다.

$$\rho (\text{g}/\text{cm}^3) = \frac{C_m (\mu\text{g}/\text{m}^3)}{C_v (\mu\text{m}^3/\text{m}^3)} \times 10^{-6} \tag{3}$$

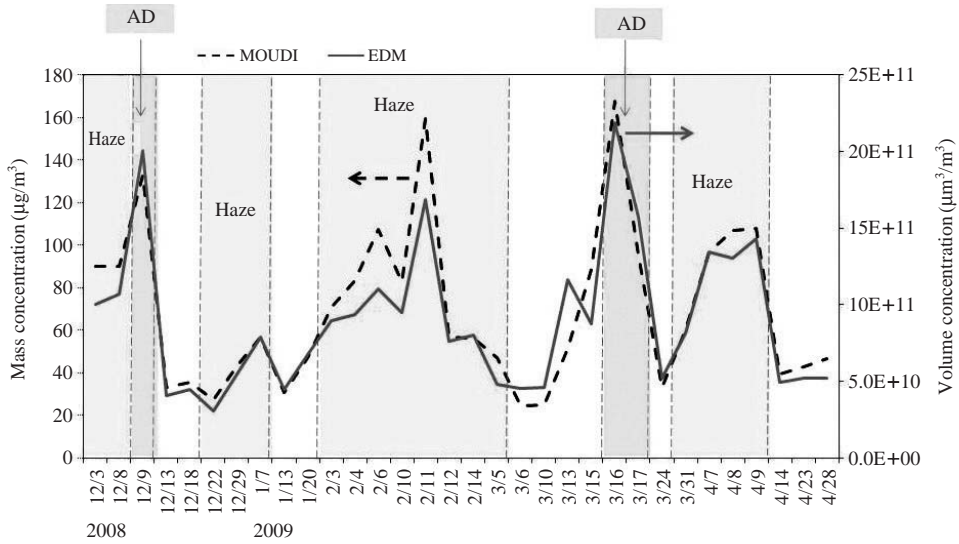


Fig. 1. Comparison of PM₁₀ mass concentration and volume concentration measured from MOUDI and EDM, respectively. AD denotes Asian dust.

3. 결과 및 고찰

3.1 측정 장비 간 질량 및 부피농도 상호 비교

그림 1은 관측기간 동안 MOUDI로 측정된 PM₁₀ 질량농도와 EDM으로 관측한 PM₁₀ 부피농도 사이의 일평균 시간별 추이를 보여준다. 총 32회의 MOUDI 측정 사례 중 황사 2회(2008/12/09, 2009/03/16~17), 연무가 17회 관측되었다. 황사 및 연무가 발생했을 때의 질량농도 평균은 각각 $131.8 \pm 36.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 와 $79.0 \pm 31.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 로 조사되었다. 그림 1에 의하면 PM₁₀ 질량농도와 부피농도는 매우 비슷한 시간별 추이를 보이고 있으며, 두 농도 사이의 상관계수는 0.95로 매우 높게 조사되었다(그림 2).

MOUDI는 샘플링 전후 24시간 동안 건조기에서 항량 후 마이크로 밸런스로 질량을 측정하며 샘플링은 24시간 동안 수행한다. 이러한 처리 과정에서 발생한 오차가 큰 사례들을 제거하기 위해 같은 장소에서 자동관측 중인 베타선 측정법 PM₁₀(Thermo Scientific, Continuous Particulate Monitor, FH62 C14) 이하 β-ray PM₁₀) 자료와 비교하였다. 5분마다 생산되는 β-ray PM₁₀ 자료는 MOUDI 관측 시간 동안의 자

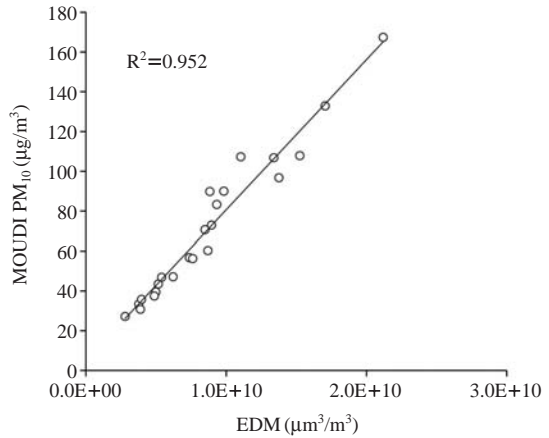


Fig. 2. Correlation between EDM PM₁₀ volume concentration and MOUDI PM₁₀ mass concentration.

료를 평균하여 사용하였으며, 다음과 같은 기준에 의해 두 측정방법의 질량농도 비교자료를 선별하였다.

$$m - \sigma < \beta\text{-gauge}_{\text{PM}_{10}} / \text{MOUDI}_{\text{PM}_{10}} < m + \sigma \quad (4)$$

여기서, m 과 σ 는 각각 두 질량농도 비 ($\beta\text{-gauge}_{\text{PM}_{10}} / \text{MOUDI}_{\text{PM}_{10}}$)의 평균과 표준편차이다. 식(4)의 판별기준에 의해 총 32회 중 9회의 MOUDI 자료가 질량농

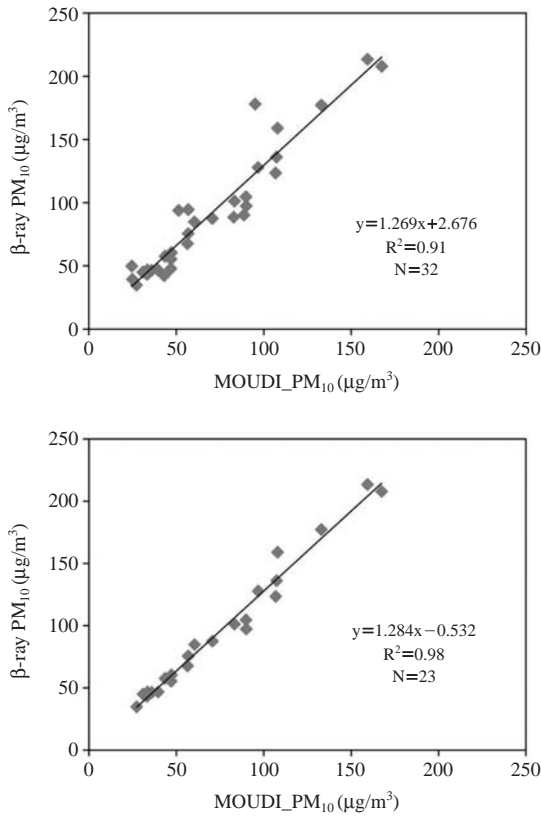


Fig. 3. Scatter-plots between MOUDI and β -ray PM_{10} mass concentrations before (top) and after (bottom) data selection guideline applied.

도 비교에서 제외되어 23회의 신뢰도 높은 자료가 선별되었다. 그림 3은 자료선별 전과 후의 MOUDI와 β -ray PM_{10} 질량농도 비교를 보여준다. 그림 3에 의하면 두 측정방법의 PM_{10} 질량농도는 판별기준에 의한 자료 선별 후에 두 장비간 질량농도 사이의 결정계수가 0.98로 비교 정확도가 더 우수한 것으로 나타났다.

3.2 입자의 밀도평가

그림 4는 2009년 3월 16일 황사와 3월 31일 연무 사례의 입자크기별 질량 농도 분포이다. 황사 시에는 조대입자 영역이, 연무 시에는 미세입자 영역이 우세하였다. 연구 기간 동안 관측된 입자 크기별 농도는 대부분의 경우에 이산형 분포를 보였다. 이는 미세입자 영역과 조대입자 영역을 구성하는 입자가 다를

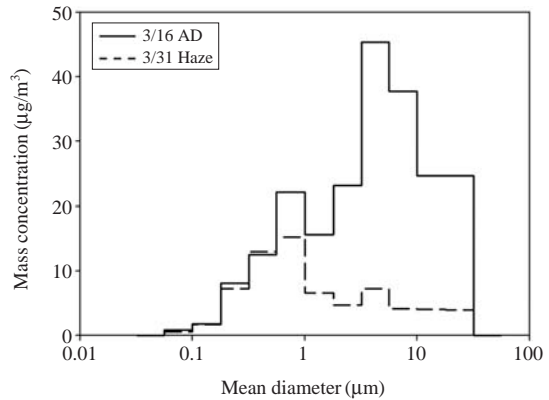


Fig. 4. Aerosol mass concentration size distribution measured by MOUDI on 16 March, 2009 (Asian dust) and 31 March (haze).

수 있으며, $PM_{1.0}$ 과 PM_{10} 의 밀도값이 차이가 날 수 있을 가능성을 제시한다.

EDM은 크기가 $0.25 \mu m$ 이상인 입자만 측정하기 때문에 PM_{10} 또는 $PM_{1.0}$ 의 부피농도를 알기 위해서는 $0.25 \mu m$ 이하 영역의 부피농도를 구해 보정해야 한다. 입자의 크기 분포는 다음과 같이 정규분포함수를 따른다고 가정하였다(Deshler *et al.*, 1993).

$$N(D) = A \exp \left[\left(-\frac{\ln^2(D/D_m)}{2\ln^2\sigma} \right) \right] \tag{5}$$

여기서 D 는 입자 직경, D_m 은 중앙직경 (median), σ 는 표준편차, A 는 상수이다. $0.25 \mu m$ 이상 채널의 관측값을 가지고 시행착오법 (trial-and-error method)을 이용하여 D_m, A, σ 등을 구해 적합한 함수 (fitting function)을 결정하고 이것으로부터 $0.25 \mu m$ 이하 영역의 에어러솔 수농도 및 부피농도를 계산하여 $PM_{1.0}$ 및 PM_{10} 의 부피농도를 보정하였다.

그림 5는 2008년 12월 3일 사례에 대해 결정된 함수와 변수의 예이다. EDM으로 측정된 $0.25 \mu m$ 이상 영역의 관측값과 식(5)의 함수의 차가 최소가 되는 변수들을 찾은 결과 A 는 115,000, 입자 분포의 중앙직경은 $0.24 \mu m$, 표준편차는 1.38인 함수를 얻었다. 이 변수들은 사례별로 달라진다.

이와 같은 방식으로 보정된 입자의 부피농도와 MOUDI로 측정된 질량농도를 이용하여 식(3)에 의하여 $PM_{1.0}$ 과 PM_{10} 의 밀도를 계산하였다. 계산된 밀

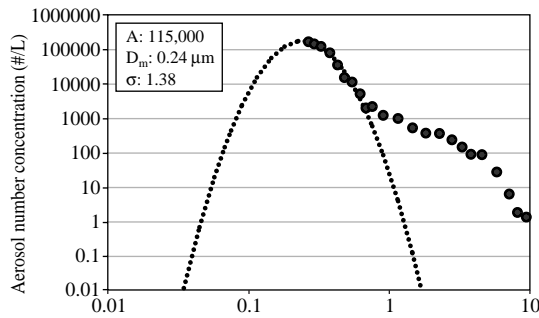


Fig. 5. Fitting function of lognormal size distribution (dotted line) to retrieve number concentration below $0.25\ \mu\text{m}$ and number size distribution by EDM (circles).

도를 그림 6에 나타냈다. $\text{PM}_{1.0}$ 과 PM_{10} 의 평균 밀도는 각각 $1.97 \pm 0.33\ \text{g/cm}^3$ 와 $2.15 \pm 0.18\ \text{g/cm}^3$ 로 PM_{10} 의 밀도가 더 크며, 대응표본 t-검정을 통해 두 밀도의 차이는 유의함이 밝혀졌다. $\text{PM}_{1.0}$ 은 PM_{10} 보다 분포 편차가 큰데, 이는 $\text{PM}_{1.0}$ 질량농도 오차와 정규분포함수 가정에 따른 수농도 추정에 의한 것으로 생각된다. MOUDI로 입자를 채집하는 과정에서 미세입자 노즐 벽에 입자가 부착되어 노즐 직경을 감소시키며 입자 채취 성능을 변화시킬 수 있다고 알려져 있다(Ji *et al.*, 2003). 조대입자의 노즐은 크게 영향을 받지 않으나 미세 입자 영역의 노즐은 채집 입자 직경과 채취 효율이 변화되어 $\text{PM}_{1.0}$ 의 질량농도에 오차를 유발했을 가능성이 있다. 또한 입자 성분 중 암모늄이나 질산염 등 휘발성이 있는 성분들이 24시간 채집 과정에서 손실되어 오차를 유발했을 수도 있다. 이들 성분은 주로 미세입자 영역에 존재하므로 $\text{PM}_{1.0}$ 의 질량농도에 영향을 주었을 것으로 생각된다. 수농도/부피농도 계산 과정에서도 $0.25\ \mu\text{m}$ 이하 채널의 수농도를 추정하기 위해 가정한 정규분포함수의 부정확성이 PM_{10} 보다 $\text{PM}_{1.0}$ 에 더 민감하게 작용했을 가능성도 있다.

그림 7은 23회 MOUDI 측정 자료 중 황사(2회) 및 연무(16회)가 발생한 경우와, 그 외 일반적인 대기 조건에 대하여 평가한 입자들의 밀도를 비교한 것이다. 황사 사례의 $\text{PM}_{1.0}$ 과 PM_{10} 의 밀도는 각각 $1.79\ \text{g/cm}^3$, $2.05\ \text{g/cm}^3$ 로써 황사가 발생한 경우에도 PM_{10} 의 밀도가 $\text{PM}_{1.0}$ 보다 크게 평가되었다. 연무 사례의 경우에도 $\text{PM}_{1.0}$ 과 PM_{10} 밀도가 각각 $1.92\ \text{g/cm}^3$ 와

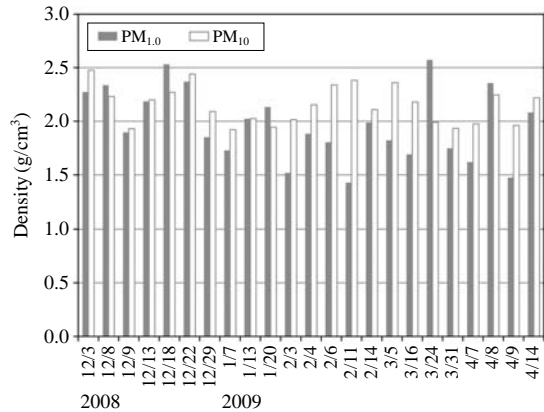


Fig. 6. Estimated densities from measured $\text{PM}_{1.0}/\text{PM}_{10}$ mass concentration and volume concentration.

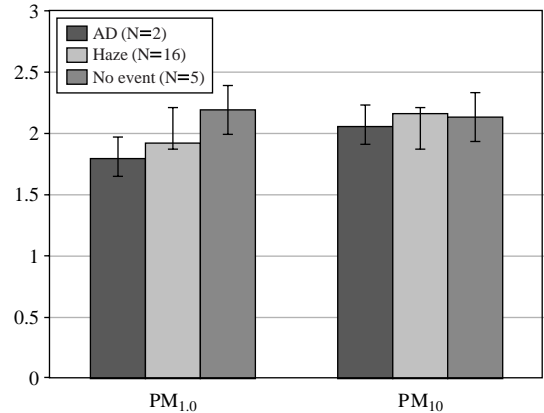


Fig. 7. Comparison of densities for $\text{PM}_{1.0}$ and PM_{10} for the cases when Asian dust, haze, and others were observed. N indicates the number of observation for each case.

$2.16\ \text{g/cm}^3$ 으로 PM_{10} 의 밀도가 크게 평가되었다. 그러나 황사나 연무가 발생하지 않은 일반 대기 조건에서의 $\text{PM}_{1.0}$ 과 PM_{10} 의 밀도는 각각 $2.19\ \text{g/cm}^3$ 와 $2.13\ \text{g/cm}^3$ 으로 큰 차이가 없었다. 사례별로 입자의 밀도 차이를 규정하기에는 시료수가 많지 않아 향후 더 많은 관측자료가 필요하다. 특히, 본 연구에서 관측된 2차례 황사의 경우 미세입자의 농도도 함께 높아 황사의 밀도 특성을 규명하기에는 충분하지 않았던 것으로 생각된다. Kim *et al.* (2008)은 SMPS/APS와 QCM으로부터 시간 해상도가 높은 밀도 자

Table 1. Comparison of measured densities from previous studies.

	Density (g/cm ³)	Component/type	Size
Hanel and Thudium (1977)	1.8 ~ 3.0	Dry atmospheric aerosol	
Reid and Hobbs (1998)	1.35	Biomass burning aerosol (Amazon)	
McMurry <i>et al.</i> (2002)	1.5 ~ 1.7	Urban aerosol	0.1 ~ 0.3 μm
Geller <i>et al.</i> (2006)	1.2 ~ 1.5	Urban aerosol (SOA)	50 ~ 202 nm
Turpin and Lim (2001)	1.2	OC	
Hand and Kreidenweis (2002)	1.85 ± 0.14 (calculated) 1.56 ± 0.12 (retrieved)	Dry desert aerosol	< 2.5 μm
Kim <i>et al.</i> (2008)	1.92 (winter) 1.64 (spring) 1.57 (fall)	Urban aerosol	< 10 μm
Heo <i>et al.</i> (1986)	2.2 ~ 1.3 ~ 2.2	Metals from soil dust Metals from combustion	
Pitz <i>et al.</i> (2003)	1.6 (1.0 ~ 2.5)	Urban aerosol	10 nm ~ 2.03 μm
Karg (2000)	1.62 ± 0.29	Urban aerosol (summer)	
This study	2.15 ± 0.18 1.97 ± 0.33	Urban aerosol	< 10 μm < 10 μm

료를 확보하여 서울 지역에서 계절별로 PM₁₀의 밀도 차이를 보였는데 (겨울철 1.92 g/cm³, 봄 1.64 g/cm³, 가을 1.57 g/cm³) 본 연구의 PM₁₀ 밀도보다는 작은 값이다. 이 차이는 각각 원리가 다른 장비로 질량 농도나 부피농도를 측정할 때서 기인한 것으로 보인다. 표 1은 다양한 에어러솔 입자에 대해 평가한 밀도 값들의 비교를 나타낸다. 밀도는 대기를 구성하는 입자의 성분과 크기에 따라 다름을 확인할 수 있다. Hänel and Thudium (1977)과 Pitz *et al.* (2003)에 의하여 측정된 대기입자의 밀도범위는 본 연구에서 산출된 밀도분포와 매우 유사하였다.

전체 부피농도를 보정하였다. 이와 같은 방식으로 보정된 입자의 질량농도와 부피농도를 이용해 PM_{1.0}과 PM₁₀의 밀도를 계산한 결과, 그 값은 각각 1.97 ± 0.33 g/cm³과 2.15 ± 0.18로 조사되었다. PM₁₀의 밀도가 PM_{1.0}보다 컸으나 황사나 연무 등 특별한 사례별로는 그 값의 차이가 뚜렷하지 않았다. 그러나 입자 크기별 (PM_{1.0}과 PM₁₀) 밀도 차이는 0.18 g/cm³ 정도의 유의한 차이를 보였으므로, 이용되는 밀도는 입자 크기에 따른 차이를 고려할 필요가 있다. 입자 직경별로 다른 밀도를 에어러솔 예측모델에 적용하면, 에어로졸의 발생 및 수송에 있어 예측정확도가 보다 향상될 수 있을 것으로 예상된다.

4. 결 론

본 연구에서는 서울시 종로구 서울황사감시센터에서 측정된 PM_{1.0}과 PM₁₀의 질량농도와 부피농도로부터 건조공기의 평균 겉보기 밀도를 계산하였다. MOUDI로 관측한 질량농도와 EDM으로 관측한 부피농도의 상관계수는 0.95로 매우 높게 조사되었다. 보다 신뢰도 높은 자료를 선별하기 위해 같은 장소에 설치된 자동측정장비 β-ray PM₁₀ 질량농도와 비교하여 판별기준을 정하고 그 기준에 따라 총 23개 사례를 선별하였다. 또한 EDM이 측정하지 못하는 0.25 μm 이하 영역의 부피 농도를 입자 정규분포함수를 가정하여 관측값과의 비교를 통해 함수를 결정하고

감사의 글

이 연구는 기상청 국립기상연구소 주요과제 “황사감시 예측기술 지원 및 활용연구”의 지원으로 수행되었습니다. 관측과 논문 작성에 조언을 주신 국립기상연구소 황사연구과 직원들께 감사를 포함합니다.

참 고 문 헌

Deshler, T., B.J. Johnson, and W.R. Rozier (1993) Balloonborne measurements of Pinatubo aerosol during 1991

- and 1992 at 41°N: Vertical profiles, size distribution, and volatility, *Geophys. Res. Lett.*, 20(14), 1435-1438.
- Geller, M., S. Biswas, and C. Sioutas (2006) Determination of particle effective density in urban environments with a differential mobility analyzer and aerosol particle mass analyzer, *Aerosol Sci. Tech.*, 40(9), 709-723.
- Hand, J.L. and S.M. Kreidenweis (2002) A new method for retrieving particle refractive index and effective density from aerosol size distribution data, *Aerosol Sci. Tech.*, 36(10), 1012-1026.
- Hänel, G. (1968) The real part of the mean complex refractive index and the mean density of samples of atmospheric aerosol particles, *Tellus*, 20, 371-379.
- Hänel, G. and J. Thudium (1977) Mean bulk densities of samples of dry atmospheric aerosol particles: A summary of measured data, *Pageoph*, 115, 799-803.
- Heo, M.-Y., H.-C. Kim, and D.-H. Sohn (1986) Density distribution of metallic compounds in particulate matters, *J. KAPRA*, 2(2), 9-18. (in Korean with English abstract)
- Hinds, W.C. (1999) *Aerosol Technology: Properties, behavior, and measurement of airborne particles*, 2nd Ed., Wiley-Interscience, John Wiley & Sons, Inc., New York, 53pp.
- Ji, J.-H., G.-N. Bae, and J. Hwang (2003) Effect of particle clogging in orifices on the particle collection efficiency of a micro-orifice impactor, *Transactions of the Korea Society of Mechanical Engineering B*, 27(2), 197-205. (in Korean with English abstract)
- Karg, E. (2000) The density of ambient particles from combined DMA and APS data, *J. Aerosol Sci.*, 31(1), 759-760.
- Kim, S.-D., C.-H. Kim, and U.-H. Hwang (2008) A study on the particles density estimation in Seoul metropolitan, *J. Env. Hlth. Sci.*, 34(2), 131-136. (in Korean with English abstract)
- McMurry, P.H., X. Wang, K. Park, and K. Ehara (2002) The relationship between mass and mobility for atmospheric particles: A new technique for measuring particle density, *Aerosol Sci. Tech.*, 36, 227-238.
- Pitz, M., J. Cyrys, E. Karg, A. Wiedensohler, H.-E. Wichmann, and J. Heinrich (2003) Variability of apparent particle density of an urban aerosol, *Environ. Sci. Technol.*, 37(19), 4336-4342.
- Reid, J.S. and P.V. Hobbs (1998) Physical and optical properties of smoke from individual biomass fires in Brazil, *J. Geophys. Res.*, 103, 32013-32031.
- Thudium, J. (1976) A gas pycnometer (microliter) for determining the mean density of atmospheric aerosol particles, *J. Aerosol Sci.*, 7(2), 167-173.
- Turpin, B.J. and H.-J. Lim (2001) Species contributions to PM_{2.5} mass concentrations: revisiting common assumptions for estimating organic mass, *Aerosol Sci. Tech.*, 35(1), 602-610.