

——— Tudományos Diákköri Dolgozat ——

BARANYAI ANNA

**Az aeroszol forrástípusok és a
részecskeszám-méreteloszlás közötti
kapcsolat azonosítása**

Dr. Salma Imre
egyetemi tanár

Analitikai Kémia Tanszék



——— Eötvös Loránd Tudományegyetem ——

—— Természettudományi Kar ——

— Budapest, 2016 —

Tartalomjegyzék

1. Bevezetés és célkitűzések.....	3
2. Az ultrafinom aeroszol	4
2.1. A légköri nukleáció	5
2.2. Részecskeszám méreteloszlás.....	9
2.3. Egészségügyi és éghajlati jelentőség.....	12
3. Mérési és kiértékelési módszerek.....	14
3.1. A mérés helyszíne és időszaka	14
3.2. Differenciális mobilitás részecskeszeparátor.....	16
3.3. Adatfeldolgozás	19
4. Eredmények és megvitatásuk	21
4.1. A teljes időszakra és az évszakokra vonatkozó átlagos és medián méreteloszlások.....	21
4.2. A K-közép klaszterekhez tartozó medián méreteloszlások	24
4.3. A K-közép klaszterekhez tartozó egyéb levegőkémiai változók.....	27
5. Összefoglalás.....	30
6. Felhasznált irodalom	32
7. Köszönetnyilvánítás	37

1. Bevezetés és célkitűzések

A légköri aeroszol részecskéket durva ($d > 2,5 \mu\text{m}$), finom ($d < 2,5 \mu\text{m}$), és ultrafinom (UF, $d < 100 \text{ nm}$) mérettartományokra célszerű osztani eltérő forrásuk és tulajdonságaik alapján. A durva és finom részecskék keletkezési mechanizmusairól, viselkedéséről, illetve egészségügyi és környezeti szerepéről jól megalapozott ismeretekkel rendelkezünk (Fuzzi et al., 2006; Pöschl, 2005). Az ultrafinom részecskék tanulmányozása azonban csak az elmúlt évtizedben kezdődött jelentősebb mértékben, mivel a vizsgálatokat korábban mérés-technikai és módszertani korlátok akadályozták.

Annak ellenére, hogy egyre több érv (Merikanto et al., 2009; Oberdörster et al.; 2005; Künzi et al.; 2015) támasztja alá, hogy az UF aeroszol fontos hatással bír az éghajlati rendszer alakulására, illetve az emberi egészségre városokban. A lehetséges szerep megismerése érdekében fontos az UF részecskék forrásainak azonosítása és ezek tulajdonságainak megismerése. Ez a feladat elvégezhető például hosszú adatsorok (légköri koncentrációk, méreteloszlások) multistatisztikus analízisével. A lehetőségek között szerepel a pozitív mátrix faktorizáció, melyet már sikeresen alkalmaztak UF részecskék forrásainak azonosítására (Zhou et al., 2005; Friend et al., 2012). Egy másik lehetőség, melyet kutatásunkhoz mi is választottunk, a K-közép analízis (Beddows et al., 2009; Dall'Osto et al.; 2011). A K-közép analízis egy nem hierarchikus csoportosítási eljárás, amellyel nagy adattömbök elemei homogén csoportokba, klaszterekbe sorolhatók hasonlóságértékek alapján. A módszer előnyei a hatékonyság, robusztusság, valamint a könnyű automatizálhatóság.

A finom és durva részecskékkel szemben, melyek tartózkodási ideje elérheti a 10 napot is, az UF aeroszol tartózkodási ideje viszonylag kicsi, 1 óra körüli. Ráadásul az UF részecskék a teljes részecskeszám koncentráció meghatározó arányát alkotják a légkörben (Hinds, 1999.; Salma et al.; 2010). Ez lehetővé teszi, hogy a forrástípusok és a méreteloszlás közti kapcsolat dinamikus sajátosságának az előnyeit is alkalmazzuk a kiértékelés során. Emiatt kutatásommal egyedi, 8 perces időfelbontású részecskeszám méreteloszlások elemzését végeztem, mellyel Budapesten mért, egy éves időtartamra vonatkozó adatok K-közép analízisébe kapcsolódtam be. Személyes feladatomban a K-közép analízissel elkülönített klaszterekhez tartozó átlagos méreteloszlások elkészítése, értékelése, valamint interpretálása volt, amelyek segítik a klaszterek azonosítását és a forrástípusok meghatározását. Munkámmal a Budapest Aeroszol Kutató és Oktató Platform tevékenységéhez csatlakoztam.

2. Az ultrafinom aeroszol

Aeroszoknak nevezzük a levegőben szuszpendált folyadék, illetve szilárd részecskék kolloid diszperz rendszerét. A részecskék ekvivalens átmérője (lásd a 2.2 fejezetet) néhány nanométertől 100 μm -ig terjedhet. Ultrafinom aeroszol részecskéknek a 100 nm-nél kisebb átmérőjű részecskéket nevezzük. A részecskék származhatnak természetes és antropogén forrásokból. A légkörbe juthatnak közvetlen emisszióval, továbbá fizikai és kémiai folyamatok révén a levegőben is keletkezhetnek. Közvetlen emisszió esetén elsődleges részecskékről, míg az utóbbi folyamatoknál másodlagos részecskékről beszélünk. Természetes elsődleges forrás lehet a talajerózió, kőzetmállás. Természetes eredetű másodlagos aeroszol például a növényzet által kibocsátott illékony szerves vegyületekből (Volatile Organic Compounds, VOC) képződő szerves aeroszol. A legjelentősebb antropogén források a fosszilis tüzelőanyagok égetése (közlekedés, erőművek, háztartási tüzelés), és egyéb ipari tevékenységek. Ezen folyamatokból leginkább a másodlagos aeroszol képződéséhez szükséges prekursorok szabadulnak fel. Ezek az elővegyületek lehetnek: SO_2 , H_2O , NH_3 , aminok, VOC és NO/NO_2 . Az UF aeroszol főbb forrása lehet a légköri nukleáció, a nanotechnológia, illetve magashőmérsékletű folyamatok, úgymint a közúti közlekedés, fűtés, égetés (Holmes, 2007; Braakhuis et al., 2014). A gépjárművek általában 20–100 nm átmérőjű (Ristovski et al., 1998; Shi és Harrison, 1999; Wählin et al., 2001) részecskéket emittálnak közvetlenül, míg fűtés, tüzelés során leginkább 35–100 nm átmérőjű részecskék kerülnek a levegőbe (Qian et al., 2007). Az UF részecskék tartalmazhatnak kormot, ammónium-szulfátot, és nagymértékben oxidált anyagot (Highly Oxidized Matter, HOM) (Tröstl et al., 2016). Az UF részecskék relatívan a legnagyobb koncentrációban vannak jelen a levegőben a részecskék számát tekintve. Budapesten az átlagos koncentrációjuk eléri a 10^4 cm^{-3} -t, és az összes aeroszol részecske 70–90%-át teszik ki (Kulmala et al., 2004; Aalto et al., 2005; Putaud et al., 2010; Backman et al., 2012; Salma et al., 2015). Az aeroszoknak fontos éghajlati szerepe és egészségügyi hatásai vannak (Ramanathan et al., 2001; IPCC, 2007), melyeket részletesebben a 2.3. fejezetben ismertetek.

2.1. A légekri nukleáció

A nukleáció egy elsőrendű fázisátmenet, melyben légnemű légekri összetevőkből, (mint például a felsorolt prekursorokból) oxidáció hatására kondenzációra képes gőzök keletkeznek. Ezt követően további molekulákkal való kölcsönhatással folyékony vagy szilárd fázisú, új aeroszol részecskéket eredményeznek. A folyamat lejátszódásának előfeltétele a túltelítettség. A telítettség mértékét (S) sík folyadékfelszínre az adott gáz parciális nyomásának és az egyensúlyi gőznyomásának arányával fejezzük ki (Hinds, 1999). $S=1$ esetén beszélhetünk telített levegőről, ha $S<1$, alultelítettség, ha $S>1$, túltelítettség áll fenn. Mivel az aeroszol cseppek felülete görbült, nagyobb parciális nyomás szükséges a tömegegyensúly fenntartásához az adott hőmérsékleten. A szükséges telítettség mértéke adott átmérőjű részecskére (S_R) kifejezhető a Kelvin-egyenlettel (Hinds, 1999):

$$S_R = \exp\left(\frac{4\gamma M}{\rho_p RT d_p}\right), \quad (1)$$

ahol γ a felületi feszültség a folyadékcsepp és a levegő határrege között, M a moláris tömeg, ρ a részecske sűrűsége, R az egyetemes gázállandó, T a hőmérséklet, d_p a részecske átmérője. Túltelítettség esetén egyre nagyobb klaszterek képződnek ütközések révén. A nagyobb klaszterek elérhetik a kritikus méretet, amelynél stabillá válik a képződmény, és új, diszpergált fázis keletkezik. A molekulák cseppeké vagy szilárd részecskékké válnak. A kezdő lépés, vagyis a klaszterek létrejötte általában lassú folyamat, melyet aztán gyors növekedés követ (Walter, 2011).

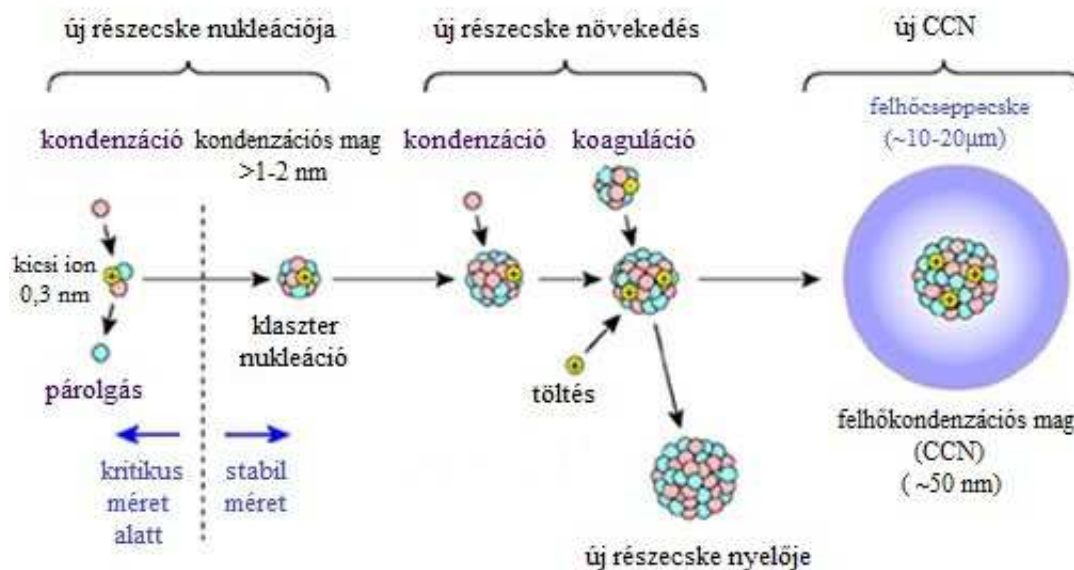
Többféle nukleációs elméletet ismerünk. Megkülönböztetünk homogén és heterogén nukleációt, valamint ezen belül homo- illetve heteromolekuláris nukleációt. Homogén nukleációhoz rendkívül nagy túltelítettség szükséges. A klaszter növekedése csak a szabadentalpia csökkenése esetén valósul meg ($\Delta G < 0$). A heteromolekuláris nukleációk közül a $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$ bináris, vagy a $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O-NH}_3$ terner nukleációnak van légekri relevanciája. Az egyik legfontosabb a vízgőz heterogén nukleációja, mely azon alapul, hogy már kezdetben van egy kondenzációs mag a légekriben, melyre további vízmolekulák kondenzálódhatnak. A Föld természetes légekri általában elegendő mennyiségű kondenzációs magot tartalmaz. Ezekben a göcokban oldhatatlan és vízdoldható anyagok egyaránt megtalálhatók. Az oldhatatlan magra túltelítettség esetén kondenzálódnak rá a vízmolekulák. A nedves felszínen egy rétegnyi gázzészecske abszorbeálódhat, majd a növekedés így tovább

folytatódik. Az oldható magon lejátszódó folyamat ennél komplexebb, viszont alacsonyabb telítettségénél is lejátszódik.

Az újrézecske-képződés folyamatában a nukleáció mellett a részecskék számát csökkentő folyamat is fellép. Ez a kondenzációs nyelő (Condensation Sink, CS) versengő hatása. Ez a meglévő aeroszol részecskék azon fontos tulajdonságát fejezi ki, hogy a kondenzálódni képes gőzöket milyen mértékben képesek eltávolítani a légkörből (Backman et al., 2012). Ennél fogva befolyásolja a részecskénövekedést, és erősen függ a légköri aeroszol részecskék méreteloszlásától (Salma et al., 2011). A kondenzációs nyelő definíciója szerint függ még a molekulák tulajdonságaitól, a diffúziós koefficienstől, illetve a közepes szabad úthossztól (Kuuluvainen et al., 2010).

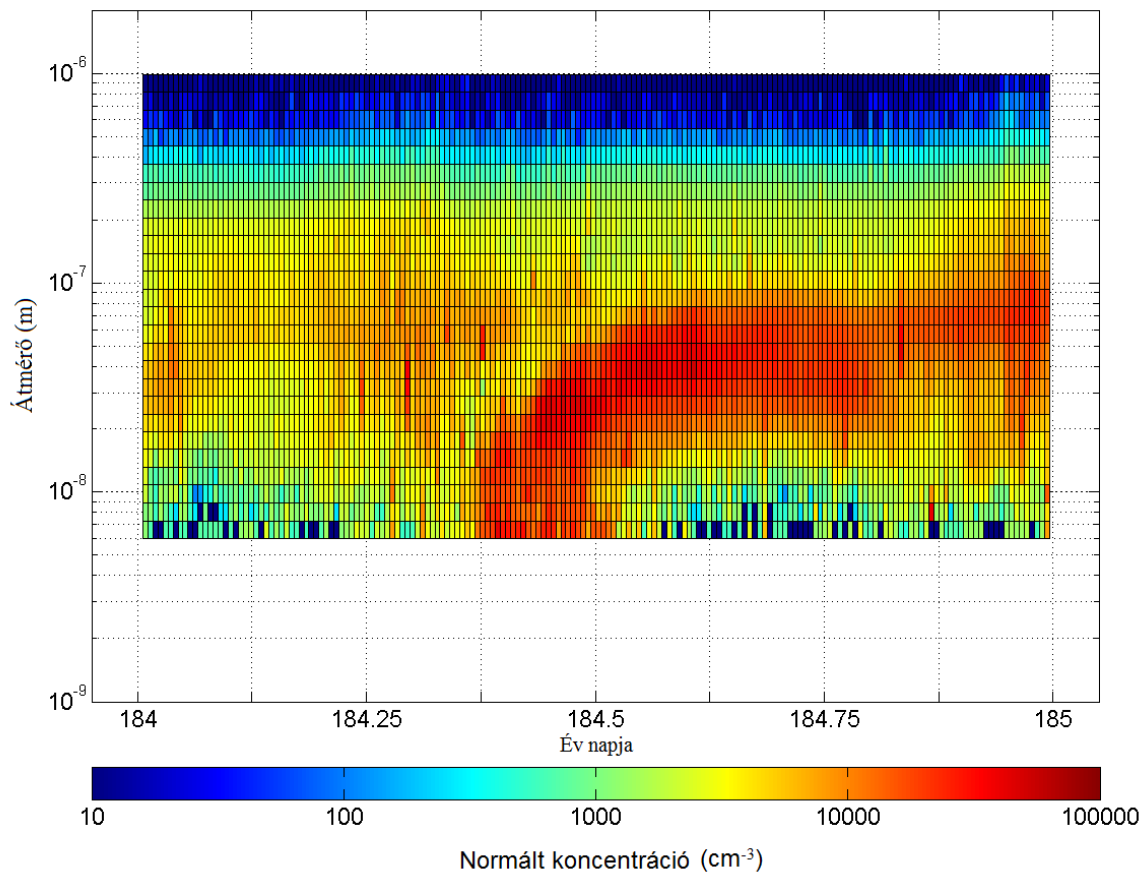
A klasszikus nukleációs elméletekben, a nukleáció egyik fő komponense a kénsav. A CERN-ben üzemeltetett CLOUD (Cosmic Leaving Outdoor Droplets) kísérlet kimutatta, hogy a $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O-NH}_3$ terner elegy mellett az aminok, illetve legújabb elképzelések alapján VOC-ok oxidációs termékei, a HOM-ok fontos szerepet játszanak a folyamatban (Tröstl et al., 2016). A fák által emittált biogén eredetű gázoknak hasonlóan jelentős hatása van a felhőkondenzációs magvak képződésére. Ezek a biogén molekulák például az α -pinénből származnak, a levegőben oxidálódnak, és igen gyorsan új részecskéket képeznek a kénsav molekulákkal (Riccobono et al., 2014).

Az 1. ábrán bemutatott légköri nukleáció részletes mechanizmusa az alábbi: A levegőben gőzök és prekursorok egyvelege található. Eleinte molekulák és kis klaszterek vannak jelen. Nincs közvetlen kapcsolat az újrézecske-képződéssel, és nagyon lassú a növekedés. Ekkor gázfázisú reakciók a jellemzők. Először oxidáció játszódik le, majd a molekulák ütközésével molekulaklaszterek jönnek létre, melyek aztán növekedni kezdenek. Az oxidálószer lehet például hidroxil-gyök ($\cdot\text{OH}$) vagy erdős környezetben Criegee-biradikális ($\text{R}_1(\text{R}_2)\text{C}\cdot\text{OO}\cdot$). (Mauldin et al., 2012; Boy et al., 2013; Tröstl et al., 2016;)



1. ábra: A légköri nukleáció és a keletkezett aeroszol részecskék növekedésének folyamata (Pedersen, 2012.)

A növekedés kb. 1,1–1,3 nm-es átmérő eléréséig tart. Ekkor érik el a klaszterek a kritikus méretet. Megjelennek a stabilizáló szerves vegyületek a klaszterekben, a kulcsfolyamat a klaszterstabilizáció. A növekedés lassú, kevesebb, mint 1 nm óránként. Addig tart, míg el nem érik az 1,5–1,9 nm átmérőt, ugyanis ez a stabil klaszterek átlagos mérete. Végül a növekvő klaszterekben a szerves vegyületek kezdenek dominálni, felgyorsul a növekedés 2 nm/h sebességre. A klaszterek aktiválódnak. A nukleációt részecskenyelődés követi, főként kondenzációval és koagulációval. A méreteloszlás felületábrákon ez a folyamat hozza létre a banángörbét, melyre például az 2. ábrán látható kontúrgörbén mutatok be. A további növekedés végül felhőkondenzációs magokat (Cloud Condensation Nuclei, CCN) eredményez. Mivel az aminok és szerves molekulák képesek stabilizálni a klasztereket, viszonylag alacsony kénsav koncentráció esetén is létrejönnek felhőkondenzációs magok (Kulmala et al., 2013; Riccobono et al., 2014).



2. ábra: Az újreszecske-képződés és növekedés (banángörbe) a 2015. július 3-án mért kontúrgörbén

A mérési adatokat hasznos kontúrgörbén ábrázolni, mely háromdimenziósan mutatja a méreteloszlás időbeni változását. Az abszcisszán az idő, az ordinátán a részecskék átmérője található. A színek a részecskék normalizált koncentrációját jelenti. Az ábrán látható elnyúlt piros alakzatot nevezzük banángörbének. A koncentráció értékek hirtelen növekedése jelzi a nukleációs folyamatok elindulását. Kezdetén ezen a napon 9 óra körül történt, és körülbelül délig tartott. A részecskénövekedés pedig még másnap hajnalban is megfigyelhető volt.

2.2. Részecskeszám méreteloszlás

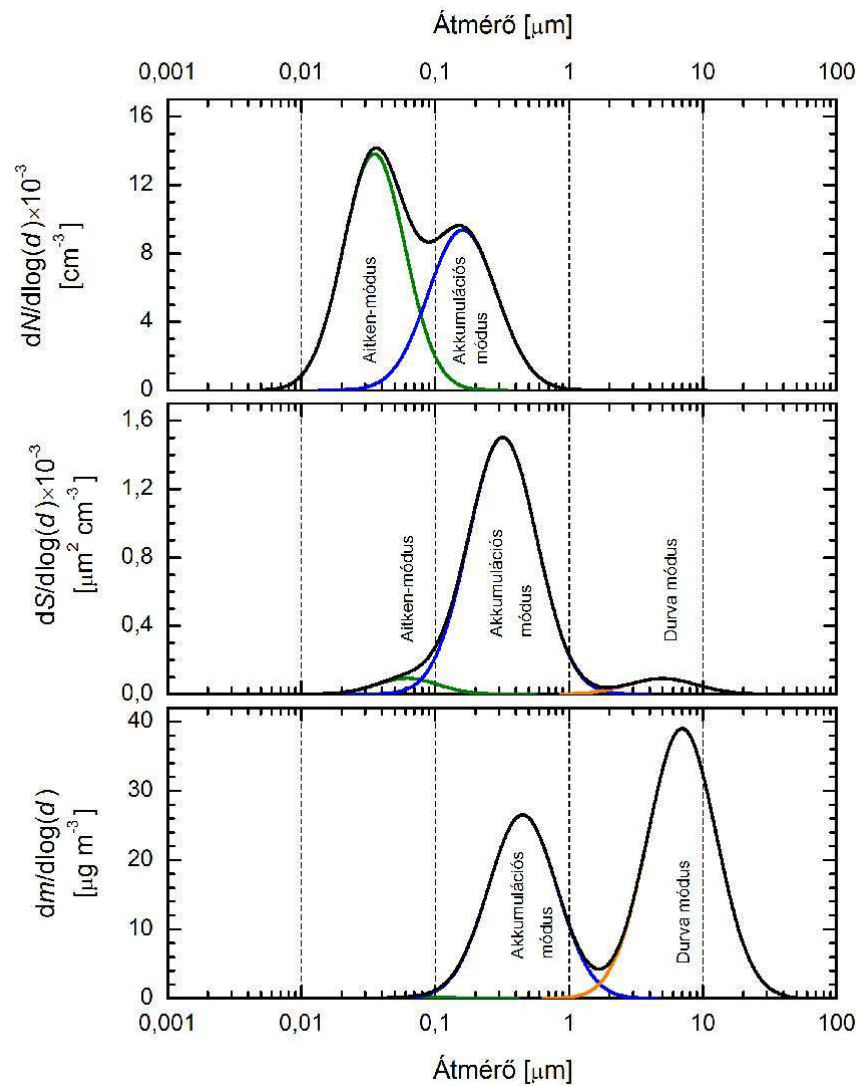
Az aeroszol részecskék egyik legalapvetőbb tulajdonsága a méretük. A méretet általánosan az ekvivalens átmérővel jellemezhetjük. Az ekvivalens átmérő annak a gömbnek az átmérője, amely ugyanazokkal a specifikus tulajdonságokkal (például aerodinamikai viselkedés, elektromos mozgékonyág) rendelkezik, mint a vizsgált (akár szabálytalan) részecske. Az egyik legismertebb ekvivalens átmérő az aerodinamikai átmérő, amelyet a durva és finom részecskék esetén széleskörűen használunk. Az UF részecskék mozgását azonban a diffúzió, illetve elektromos erőterben a mozgékonyág (a részecskék elmozdulása egységnyi erőter hatására egységnyi idő alatt) jobban jellemzi. Ez az oka annak, hogy az UF részecskék ekvivalens átmérőjét az elektromos mozgékonyági átmérővel célszerű kifejezni. Az elektromos mobilitási átmérő annak a gömb alakú részecskének az átmérőjével egyezik meg, amely ugyanolyan sebességre tesz szert elektromos térben, mint a vizsgált részecske. Az elektromos mobilitási átmérő definíció szerint (Hinds, 1999):

$$Z = \frac{v_{TE}}{E} = \frac{neC_c}{3\pi\eta d}, \quad (2)$$

ahol v_{TE} a végső elektrosztatikus sebesség, E az elektromos térerősség, n a részecske elemi töltéseinek száma, e az elemi elektromos töltés, C_c a részecskemérettől függő csúszási korrekciós tényező, az ún. Cunningham-hibakorrekció, η a levegő dinamikus viszkozitása, d pedig a mobilitási átmérő.

A légköri aeroszol részecskék többféle méretűek lehetnek keletkezési, légköri átalakulási és transzport folyamataik miatt. Célszerű tehát a méret helyett méreteloszlásról beszélni. A méreteloszlás az aeroszol részecskék valamely tulajdonságának változása az átmérő függvényében. A tulajdonság leggyakrabban a részecskék száma, felülete, térfogata vagy a tömege. A méreteloszlásban klasszikus esetben három csúcs jelenik meg: az Aitken-módus (0,01–0,1 μm), az akkumulációs módus (0,1–1 μm) és végül a durva módus (> 1 μm) csúcsa (Raes et al., 2000).

A 3. ábrán a részecskék számának, felületének és tömegének klasszikus eloszlását mutatom be:



3. ábra: A légköri aeroszol részecskék klasszikus részecskeszám (felső panel), felület (középső panel) és tömeg (alsó panel) méreteloszlása Budapesten (Salma, 2012)

A három említett módus mellett időszakosan megjelenhet a nukleációs módus is a legkisebb mért átmérőknél. A frissen nukleálódott részecskék jelentős növekedése következtében a módus medián átmérője fokozatosan eltolódik az Aitken-módus felé, amint ezt a 2. ábra jól szemlélteti. A módusok lognormális eloszlással írhatók le (Hinds, 1999):

$$\frac{1}{N} \frac{dN}{dd_p} = \frac{dN}{d \log d_p} = \frac{1}{\sqrt{2\pi} d_p \ln \sigma_g} \exp\left(-\frac{(\ln d_p - \ln \text{NMD})^2}{2(\ln \sigma_g)^2}\right). \quad (3)$$

ahol N a részecskeszám, d_p a részecskék átmérője, σ_g a geometriai szórás, NMD (Number Median Diameter) pedig a módus medián átmérője. Az UF aeroszol esetében a részecskeszám méreteloszlás játssza a legfontosabb szerepet, mivel ezek a részecskék találhatók a legnagyobb számban a levegőben (Backman et al., 2012). A teljes részecskeszámot a görbék alatti területek jelentik az adott integrálási tartományban, melyek aránya a közeli forrástól, a levegőkémiai környezettől, mikrometeorológiai állapottól, napszaktól illetve egyéb faktoroktól is függ (Walter, 2011).

2.3. Egészségügyi és éghajlati jelentőség

Légzés során az aeroszol részecskék orron, illetve szájon át bekerülhetnek a szervezetbe. A hatásuk elsősorban a légzőrendszert érinti. A hatás a légzőrendszer morfológiai adatai, az egészségi és fiziológiai állapot, illetve a részecskék méretének és kémiai összetételének függvényében különböző mértékű lehet (Balásházy, 2010). Több ismert betegség köthető a légszennyezettséghez, mint például különböző krónikus és akut légzőszervi megbetegedések, tüdőrák (Lelieveld et al., 2015). Az UF aeroszol többletkockázatot jelent a finom, vagy a durva részecskékkel összehasonlítva. Ennek oka a részecskék nagy száma, kis mérete és nagy összfelülete. A részecskék belégzése az egyik vezető oka a korai elhalálozásoknak, különösen azoknál, akik légzőszervi betegségben (asztma, bronchitis) szenvednek (Schwartz és Neas, 2000). Még az alacsonyabb szintű szennyezés is veszélyt jelenthet az érzékeny lakossági csoportokra. A részecskék súlyosbítják a meglévő tüneteket, ugyanis csökkentik a tüdő ellenálló képességét az újabb egészségügyi kockázatokkal szemben (Künzi et al., 2015).

A szervezetünk igyekszik a leülepedett részecskéket eltávolítani a légzőrendszerből. Az aeroszol részecskéket kémiai tisztító folyamattal, az UF részecskék esetében leggyakrabban fagocitózissal (bekebelezéssel) távolítja el. Ebben is szerepe van a részecskék méretének. Minél kisebbek, annál kevésbé hatékony a fagocitózis, így feldúsulhatnak, károsíthatják a tüdőt. (Braakhuis et al., 2014; Oberdörster et al., 2005).

A legkisebb ultrafinom részecskék az ún. nanorészecskék ($d < 10$ nm), melyek képesek átjutni a sejtfalon, így bejuthatnak a véráramba, és elérhetnek más érzékeny szerveket, mint például a csontvelőt, a szívet, a központi idegrendszert, és ott feldúsulhatnak (Braakhuis et al., 2014). A részecskék méretének csökkenésével a fajlagos felületük és vele együtt a biológiai aktivitásuk nő. Ez a hatás lehet pozitív (antioxidáns hatás, terápiás gyógyszert szállító kapacitás), de lehet negatív is (toxicitás, oxidatív stressz), ami korcsoportonként, illetve egészségi állapot függvényében változhat. Hatással vannak a vérkeringésre is, beleértve az alvadékonyságot (Oberdörster et al., 2005). A nagyvárosokban az erősen szennyezett levegő és a kedvezőtlen meteorológiai körülmények hatására szélsőséges légszennyezettség, szmog is kialakulhat, ami szintén jelentős többlethalállal jár.

Az aeroszol részecskék a méretüktől függően képesek befolyásolni az éghajlatot. Alkalmasak a Napból érkező sugárzás visszaszórására (szulfát részecskék), illetve elnyelésére (korom részecskék) is. Ezen kívül fontos szerepet játszanak a felhőképződésben, a felhők mikrofizikai tulajdonságainak kialakulásában, melyektől azok mennyisége és átlagos élettartama is függ. Mindezáltal a Föld energiamérlegére is hatással vannak (Aerosol Measurement, John, 43. o., Kerminen et al., 2012, Carslaw et al., 2013; Riccobono et al., 2016). Közvetlen emisszióból származó, illetve nukleációs növekedéssel kialakult, 100–200 nm-es részecskék alkotják a felhőkondenzációs magvakat (Merikanto et al., 2009). Ezekre a nukleációs magvakra kondenzálódik a vízgőz, ha a feláramló levegő a lehűlése miatt túltelítetté válik. A légköri vízgőz össz mennyisége globálisan kissé változik, viszont az aeroszolok megnövekedett antropogén kibocsátása miatt a CCN-ek száma megnő. Ez nagyobb számú, de kisebb méretű felhőcseppek létrejöttét okozza. Az ilyen sok, kisebb cseppből álló felhők összességében több napfényt vernek vissza a világűrbe, vagyis növelik a planetáris albedót, aminek következménye a felszín hőmérsékletének hűlése. Az ilyen típusú felhők élettartama ráadásul nagyobb, „meleg” csapadékot hozó arányuk pedig kisebb, ami szintén a felszín hűlését okozza. Mindez kihat a hőmérséklet függőleges eloszlására is, ami a víz globális körforgását is befolyásolja. Az emisszió mértékében bekövetkező változások nemlineáris összefüggést mutatnak az aeroszol részecskék koncentrációjával, ezért a légkörben lejátszódó folyamataik mélyebb megértése fontos az éghajlatot befolyásoló szerepük miatt (Merikanto et al., 2009; Borsós és Salma, 2011).

3. Mérési és kiértékelési módszerek

Az ultrafinom aeroszol részecskék méreteloszlásának meghatározásához differenciális mobilitás részecskeszeparátort (Differential Mobility Particle Sizer, DMPS) alkalmaztunk. Ezen kívül a vizsgált időszakhoz tartozó meteorológiai, és légszennyező gázok koncentráció adatai is a rendelkezésünkre álltak.

3.1. A mérés helyszíne és időszaka

A Budapest Aeroszol Kutató és Oktató Platform (Budapest platform for Aerosol Research and Training, BpART) egy 2013-tól működő, a levegőszennyező gázok koncentrációit kutató állomás. A platformon folyó kutatómunka aeroszol minták gyűjtését és hosszú távú, on-line méréseket is magában foglal. A platform az Eötvös Loránd Tudományegyetem Lágymányosi Campusában, az északi épület második emeleti erkélyén található $2,0 \times 2,8 \times 2,1$ m-es szigetelt fémkonténer, amely a 4. ábrán látható. A konténernek vízszintes, valamint különböző átmérőjű függőleges, vízhatlan bemenetei vannak. A mintagyűjtő bemenet és az érzékelők 80–150 cm magasságban a tető szintje felett találhatók, melyek az 5. ábrán láthatók. A konténerben légkondicionáló, elektromos fűtő berendezés és egy hőhatároló függöny is található az ajtónál, így a beltéri hőmérséklet ± 3 °C-os különbségen belül tartható éves skálán. Egy – levegőkémiát, levegőfizikát, meteorológiát, valamint áramlásdinamikát is ötvöző – tanulmány kimutatta, hogy a helyszínen jól keveredett, átlagos belvárosi levegőből történik a mintavétel (Salma et al., 2016).



4. ábra: Budapest Aeroszol Kutató és Oktató Platform látképe

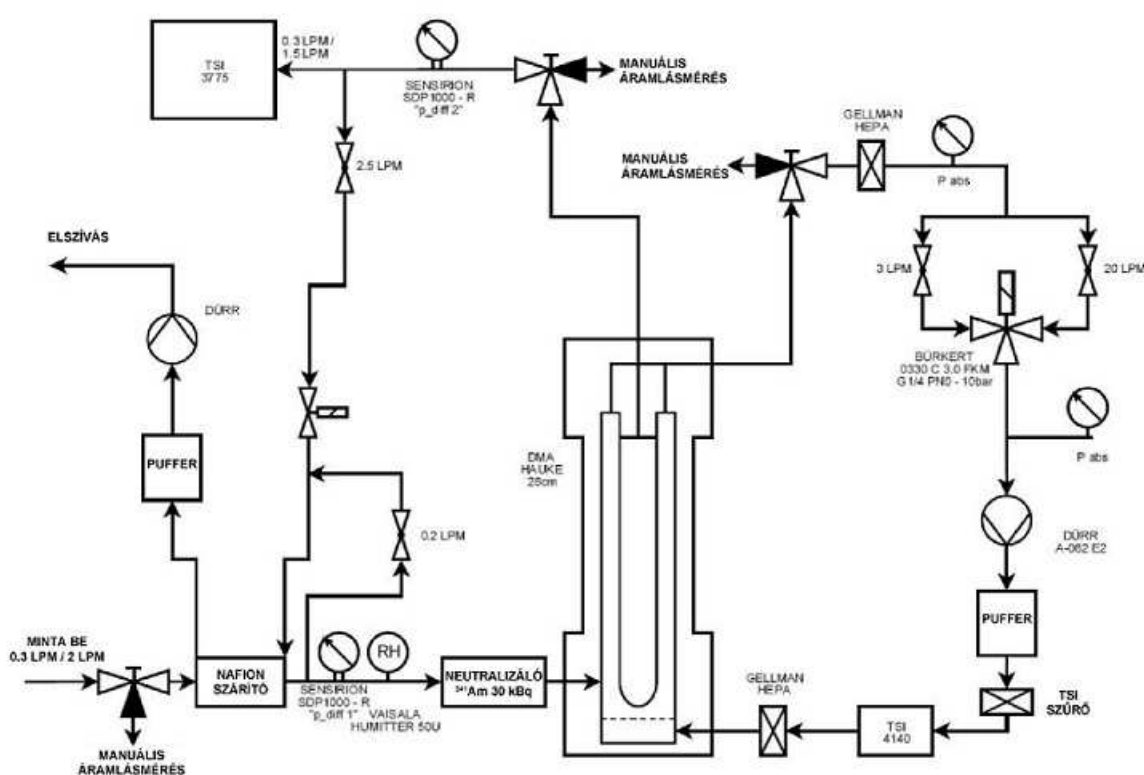


5. ábra: Mintavevők és érzékelők a BpART tetején

Az érdeklődéssel kísért időszakban (2014. 11. 13. 00:00 –2015. 11. 12. 00:00) 8 perces felbontású részecskeszám méreteloszlások, légszennyező gázok koncentráció adatai, valamint meteorológiai adatok álltak rendelkezésemre. Az utóbbit az Országos Meteorológiai Szolgálat és az ELTE Meteorológiai tanszéke által közösen üzemeltetett, reguláris mérőállomásról kaptuk, míg a légszennyező gázok koncentrációját a Országos Légszennyezettségi Mérés-hálózatról (OLM) töltöttük le. Az OLM a Kosztolányi Dezső téren található, 1,6 km távolságban a BpART helyszínétől. Az adatok időfelbontása 1 óra (Salma et al., 2016a). A tanulmányozott egy éves intervallumban a napi medián részecskeszám koncentrációk a $(1,91-22) \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ tartományba estek. A koncentrációk éves mediánja $9,3 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ volt. Ebből az UF részecskék aránya és szórása átlagosan $75 \pm 11\%$ volt (Salma et al., 2016a). A mérésünk alapján a 6 – 100 nm átmérőtartományba eső részecskék napi koncentrációja: $(398-77) \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ volt, $6,9 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ mediánnal. A levegőkörnyezet megfelel más közép-európai városokban tipikusan tapasztalt viszonyoknak, és hosszabb különleges helyzet nem érezte hatását. További jellemzőket a 2. táblázat tartalmaz.

3.2. Differenciális mobilitás részecskeszeparátor

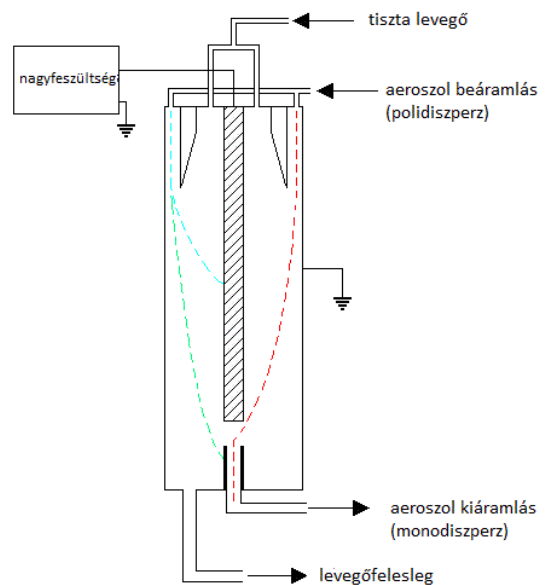
A méréseket DMPS mérőrendszerrel végezzük, amely elektromos mozgékonyan alapuló részecskeszeparátor. Felépítését a 6. ábrán mutatom be. Három fő részből áll, melyek a levegő útjának sorrendjében: neutralizáló, mobilitás analízátor (Differential Mobility Analyzer, DMA), végül a kondenzációs részecskeszámláló (Condensation Particle Counter, CPC). A működése azon alapul, hogy a benne létrehozott elektrosztatikus térben a részecskék méretüktől függően eltérő sebességgel mozognak, és ez alapján elválaszthatóvá válnak.



6. ábra: A differenciális mobilitás részecskeszeparátor felépítése és áramlási elrendezése (Vakkari, 2008)

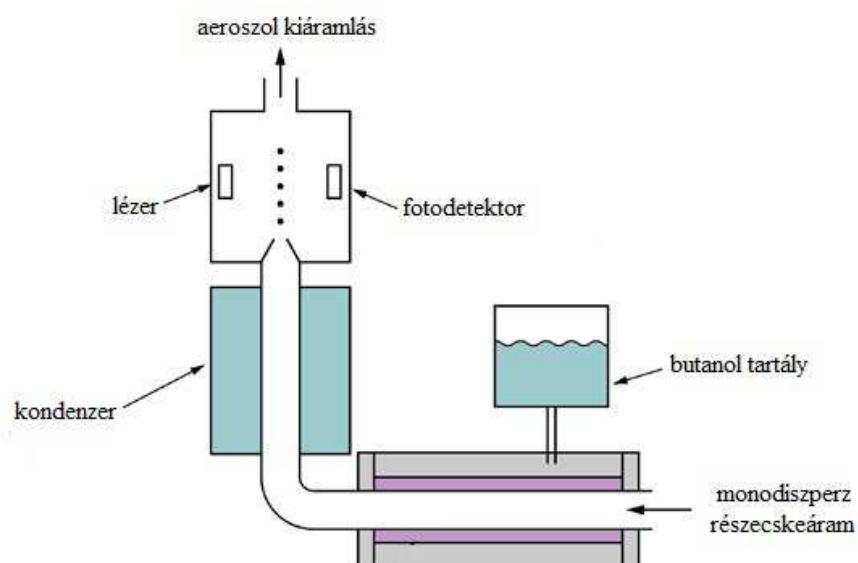
Üzemeltetés során a műszerbe beáramló levegő először egy Nafion szárítón halad keresztül, ahol a relatív nedvesség tipikusan 30% alá csökken. Ezáltal a kapott eredmények összehasonlíthatóvá válnak más, eltérő környezetekből származó adatokkal. Ezután következik a neutralizáló, aminek a feladata a részecskék egyensúlyi töltéseloszlásának biztosítása. Esetünkben ^{63}Ni β sugárforrás ionizálja a levegő molekuláit, melyek az aeroszol részecskékkel ütközve egyensúlyi töltéseloszlást hoznak létre.

Ezt követően a részecskék a második főegységbe, a DMA-ba jutnak, melynek elvi működése a 7. ábrán látható. Feladata a részecskék elektromos mozgékonyaságuk alapján való elkülönítése. Az analizátor palástja és belső elektródja közé feszültséget kapcsolunk, mely körül nagytisztaságú levegő lamináris áramlását valósítjuk meg. A végénél egy kilépőrés található, melyen csak azok a részecskék jutnak át a detektor felé, melyek az alkalmazott nagyfeszültség, és áramlási viszonyok által meghatározott elektromos mobilitással rendelkeznek.



7. ábra: A mobilitás analizátor elvi működése (Forrás: CAC)

A többi részecske a mozgékonyaságuktól függően vagy az elektródnak ütköznek, vagy a résen túlhaladva kijutnak a műszerből. A nagyfeszültséget lépcsőzetesen növeljük 8V és 8 kV között, 30 lépésben. Ekképpen különböző átmérőjű (lásd 1. egyenlet) részecskéket szeparálhatunk, melyek eloszlása már monodiszperznek tekinthető. Ezt követően a részecskeáram a kondenzációs részecskeszámlálóba jut, melynek elvi működését a 8. ábrán tüntettem fel. A lézervény szórás detektálása alapján meghatározzuk a részecskeszám koncentrációt.



8. ábra: A kondenzációs részecskeszámláló elvi működése (Forrás: CAS)

Mivel ilyenkor a részecskék túl kicsik (átmérőjük lényegesen kisebb a fény hullámhosszánál), hogy optikailag detektálhatók legyenek, segédgőzt kondenzáltatunk rájuk a mérés előtt, hogy növeljük a méretüket. Ez a műszerünkben úgy valósul meg, hogy a részecskék egy 39 °C hőmérsékletű, butanolgőzzel telített téren áthaladva, egy 14 °C-ra hűtött kondenzerbe jutnak, ahol a butanol a túltelítettsége miatt a részecskék felületére kondenzálódik. Ezáltal a részecskék átmérője összemérhetővé válik a fény hullámhosszával, és ilyenformán már detektálhatóvá válnak. Az aeroszol áramot egy lézernyalábbal világítjuk meg merőlegesen, és a szóródás jelenségét fotodetektorral észleljük. A szóródás gyakorisága arányos a részecskeszámával. A rendszert számítógép vezérli, mellyel 6-tól 1000 nm-ig terjedő átmérőtartományban mérünk meghatározott mobilitási átmérőhöz tartozó részecskeszámot. A DMPS végezetül invertált adatokat szolgáltat, amellyel figyelembe vesszük a méretszeparáció ideálistól való eltérését. Egy teljes méreteloszlás felvétele körülbelül 8 percig tart, ez naponta hozzávetőlegesen 180 spektrumot jelent.



9. ábra: A részecskeszeparátor látképe a BpART platformon

3.3. Adatfeldolgozás

Az egy év terjedelmű adathalmazt K-közép analízissel vizsgálta a BpART kutatócsoport egyik tagja, Dr. Németh Zoltán. Ennek a csoportosító eljárásnak az a célja, hogy a végeredmény a lehető legnagyobb csoportok közti távolság legyen, a lehető legkisebb csoporton belüli varianciával (Beddows et al., 2009; Dall'Osto et al., 2011). Ez általában jól elkülöníthető csoportokat, vagyis klasztereket eredményez, melyek tagjai a lehető legjobban hasonlítanak egymásra. A K-közép analízis algoritmus először megadott mennyiségű centroid generálását végzi el véletlenszerűen. A centroidok lesznek az egyes klaszterek középpontjai. Az algoritmus futása során kiszámolja minden egyes mérési adat euklideszi távolságát az adott középponttól. A centroidválasztást és a távolságszámolást mindaddig újra elvégzi, amíg a klaszterek már nem változnak. Minél bonyolultabb léghőkémiailag a környezet, annál több klaszterre van szükség a megfelelő jellemzésre. Ugyanakkor, ha túl sok a klaszter, azok elkezdenek egyre jobban hasonlítani egymásra, így nem tudunk köztük valós, fizikai különbséget tenni. Az analízis jóságát sziluettértékkal, vagy a Dunn-indexszel jellemezhetjük. Az adathalmaz analízise során a klaszterek számának növelésével a Dunn-index is monoton nőtt, ezért ebből nem kapható információ arra vonatkozóan, mekkora klaszterszám ítéhető helyesnek. Többféle, 3–10-ig terjedő klaszterszámmal is végeztek elővizsgálatokat, végül levegőkémiai megfontolásokkal együtt a 8 klaszter mutatkozott a legrealisztikusabbnak.

Saját munkámmal ezen a ponton kapcsolódtam be az adatok analízisébe. A vizsgált éves időszakban a 365 napból 357 napra vonatkozóan állt rendelkezésemre mért méreteloszlás, ami 98%-os lefedettséget jelent. A mért adatsor 8 perces időfelbontású, egyedi méreteloszlásokat tartalmaz. Az adatbázis körülbelül 63000 adatsorból áll, amely összesen több mint 1,7 millió mért adatot foglal magába. A rendszer a 6–1000 nm átmérőtartományban, 30 csatornában szolgáltat koncentráció-adatokat.

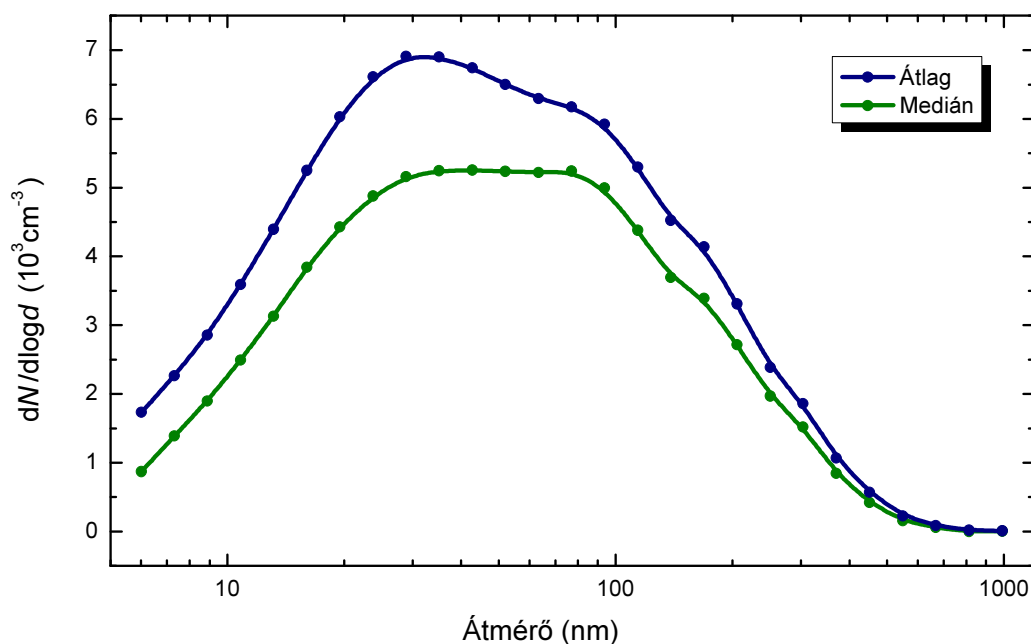
Munkám során a teljes időszak áttekintése érdekében átlagos- és medián méreteloszlást készítettem az abszolút $dN/d\log(d)$ értékekből, valamint a részecskeszámmal normált $1/N \times dN/d\log(d)$ értékekből is. Ezen kívül elkészítettem az egyes klaszterekhez tartozó átlagos- és medián méreteloszlásokat is. Szintén készítettem medián méreteloszlásokat a különböző évszakokra (nyár, tél, átmeneti időszak) vonatkozóan. Mindezt grafikusán is megjelenítettem az értelmezés elősegítése céljából. Az átláthatóság érdekében egy-egy ábrán belül ábrázoltam a teljes időszak átlagos- és medián eloszlásait, a klaszterek méreteloszlásait

az abszolút és a normált értékekre, illetve az évszakos eloszlásokat. Kiértékelés során összehasonlítottam egymással a medián eloszlások alakját, valamint területét, összevetve az 1. táblázat adataival (lásd 4.2. fejezet). Végül megvizsgáltam, hogy a kapott következtetéseket alátámasztják-e a 2. táblázatban kapott eredmények (lásd a 4.3. fejezetben), hogy megállapíthassuk, megfelelően jellemzik-e az adott környezetet.

4. Eredmények és megvitatásuk

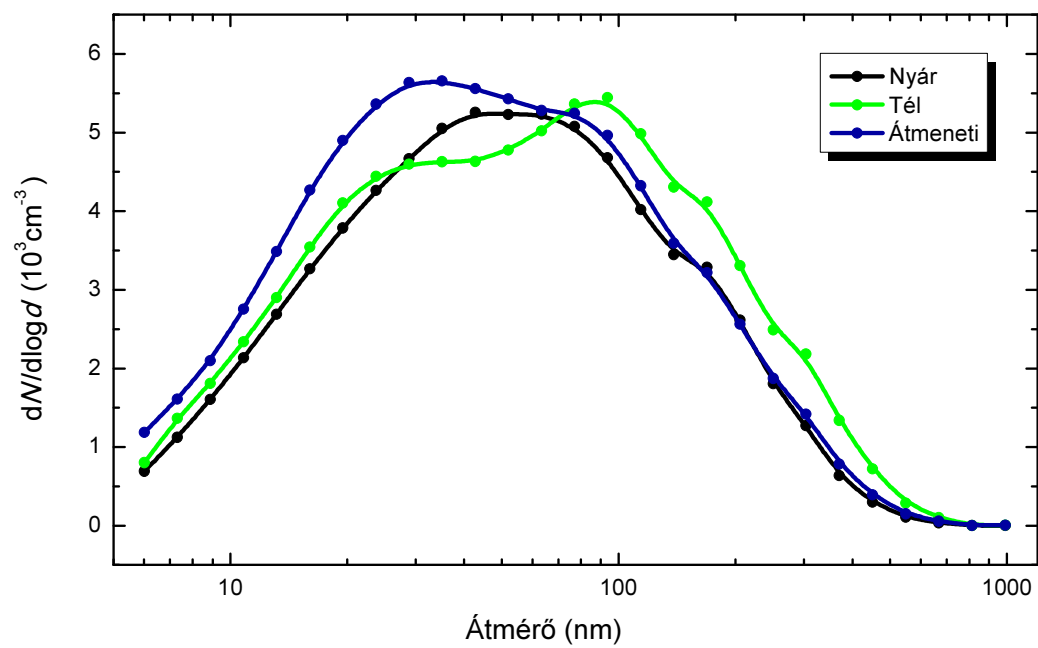
4.1. A teljes időszakra és az évszakokra vonatkozó átlagos és medián méreteloszlások

A teljes, éves időszakra meghatározott medián (mértni középérték) és átlag (számtani középérték) méreteloszlást a 10. ábrán tüntettem fel. Mindkét görbe két módust mutat. A módusok erősen átfednek az átlagolásból adódó kiszélesedés következtében. A kisebbik medián átmérőjű csúcs az Aitken-módus csúcsa, míg a nagyobbik átmérőjű az akkumulációs módusé. Rendre 20–50 nm, illetve 70–150 nm tartományba eső maximummal rendelkeznek. Az Aitken-módus a közvetlen emisszióval kapcsolatos, míg az akkumulációs módus az öregedett részecskékre utal. A nukleációs módus nem jelenik meg az átlagos eloszlásokban, ami a nukleáció korlátozott előfordulási gyakoriságával és időtartamával, valamint a módus tolódásával (mozgó jellegével) kapcsolatos. Az átlagos méreteloszlás érzékenyebbnek tűnik az adatsor fluktuációjára, és a lehetséges zajra az egyes csatornáknban, mivel a néhány kiugró részecskeszám érték miatt a középértékek kissé felfelé tolnak. Másrészt, a légköri koncentrációk tipikusan logaritmikus eloszlást követnek, amelyet a medián érték jobban jellemez, mint a középérték. Ezen megfontolások miatt a későbbiekben a medián méreteloszlások elemzését választottuk.



10. ábra: A részecskeszám medián és átlagos méreteloszlása a teljes vizsgált időszakban

A részecskeszám medián méreteloszlásának változékonyságát a nyári, téli és átmeneti (tavaszi, őszi) évszakokra a 11. ábrán mutatom be. A görbék területe alapján megállapítható, hogy a teljes részecskeszám koncentrációnak nincs jelentős évszakai változása. Ez egyrészt eltérést jelent a részecskék tömegkoncentrációjának változásával összehasonlítva (különösen a PM_{10} méretfrakcióban), másrészt megerősíti egy korábbi évben kapott, hasonló következtetést (Salma et al.; 2010). Ha szennyezettebb a belvárosi levegő Budapesten, akkor ez általában gátolja a légköri nukleáció bekövetkezését, míg a tisztább kezdeti levegőkörnyezet kedvez a nukleáció megtörténtének. A nukleációs folyamatok azonban jelentősen, akár 2–3-szorosára is növelheti a meglévő részecskék számának koncentrációját. Ez a két, egymást váltó, alternáló jelenség több-kevésé állandó koncentrációsinten tartja a város levegőjét éves időskálán. Az egyes görbék alakját megvizsgálva azonban különbségek fedezhetők fel. Nyáron a két módus nagyobb mértékben fedi át egymást. Az átmeneti évszakokban az Aitken-módus járuléka nagyobb, mint az akkumulációs módusé, míg télen fordított a helyzet. A módusok relatív járulékanak különbségei a forrástípusok intenzitásának, illetve a légköri átalakulási és transzportfolyamatok évszakai változásával magyarázható. Télen, a belső terek fűtése miatt a városközeli háttérben a részecskék koncentrációja általánosan nagyobb, ami az akkumulációs módus (öregedett részecskék) nagyobb relatív jelentőségét eredményezi. Az átmeneti időszakban és nyáron a gépjárművek közvetlen kibocsátása arányaiban markánsabb, ami az Aitken-módus relatív növekedéséhez vezet. Az átmeneti időszakban az előbbi jelenséget erősíti meg az a tény is, hogy a légköri nukleáció gyakoriságának tavasszal abszolút maximuma, ősszel lokális maximuma, míg télen abszolút minimuma mutatkozik (Salma et al., 2016b). A fenti érvekhez érdemes még tudatosítani, hogy az UF részecskék (amelyek a részecskék 70–90%-át alkotják a városokban) troposferikus tartózkodási ideje legfeljebb 1 óra, tehát megjelenésük és tartózkodásuk közvetlenül kapcsolható forrásaik intenzitásának változásával. (Salma et al.; 2010) Ez markáns elérés a finom és durva részecskékkel összehasonlítva, amelyek tartózkodási ideje elérheti a 7–10 napot is (Hinds, 1999).



11. ábra: A részecskeszám medián méreteloszlása a különböző évszakokban

4.2. A K-közép klaszterekhez tartozó medián méreteloszlások

A medián méreteloszlásokat alkotó egyedi eloszlások számát az 1. táblázatban összegeztem. A legtöbb egyedi méreteloszlást az 1-es (36%) és a 4-es számú klaszter (29%) foglalja magába, a legkevesebbet pedig a 3., (1,5%) 5. (0,5%) és 6. számú klaszter (2,8%) tartalmazza.

1. táblázat: Adott K-közép klaszterhez tartozó egyedi méreteloszlások száma és relatív gyakorisága

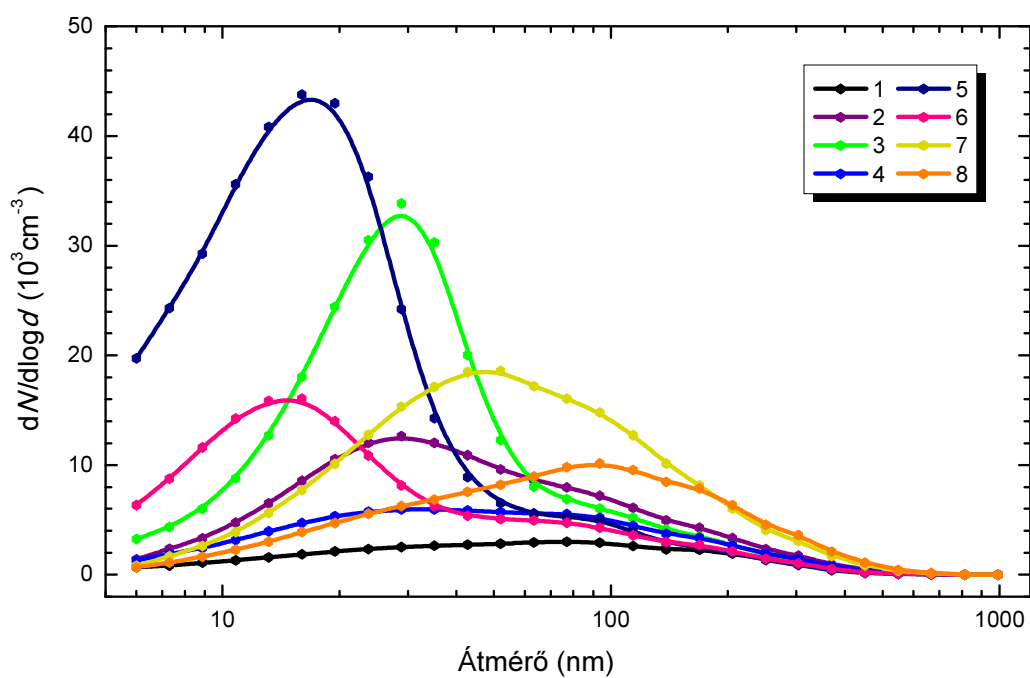
Klaszter sorszáma	Eloszlások száma	Arány (%)
1	22868	36
2	7438	12
3	933	1,5
4	18513	29
5	339	0,5
6	1768	2,8
7	2716	4,3
8	8440	13

Az 1-8 K-közép klaszterhez tartozó medián méreteloszlásokat a 12. és 13. ábrán tüntettem fel. A 12. ábra az eloszlások relatív jelentőségét mutatja, míg az egyes eloszlások alakja a 13. ábrán ítéhető meg jobban. Mindkét információ nélkülözhetetlen a méreteloszlás és a forrás kapcsolatának felderítése szempontjából. Az egyes klaszterek méreteloszlásában az első és az utolsó két csatorna tekintetében van csak különbség a középérték és medián eloszlások között. Ez általában kis csatornatartalmakra „rárakódó” zaj miatt alakul ki, így a medián méreteloszlások használata valóban előnyösebb (lásd a 4.1. fejezetet). A 12. ábra alapján a nagyobb területű méreteloszlások a 3., 5. és a 7. számú klaszterhez tartoznak. A medián eloszlások medián átmérője rendre: 114 nm, 77 nm, 210 nm körüli. Ugyanakkor az 1. táblázat alapján a legkevesebb eloszlást a 3., 5., és 6. klaszter tartalmazza. Ez azt jelzi, hogy viszonylag ritkán előforduló és rövid ideig tartó, jelentős, vagy nagy intenzitású forrásról van szó. A 13. ábra alapján szintén ezek az összetartozó méreteloszlások. Meredeken nőnek, a medián átmérőjük a kisebb átmérőknél található, majd meredeken csökkennek. Mindez azt

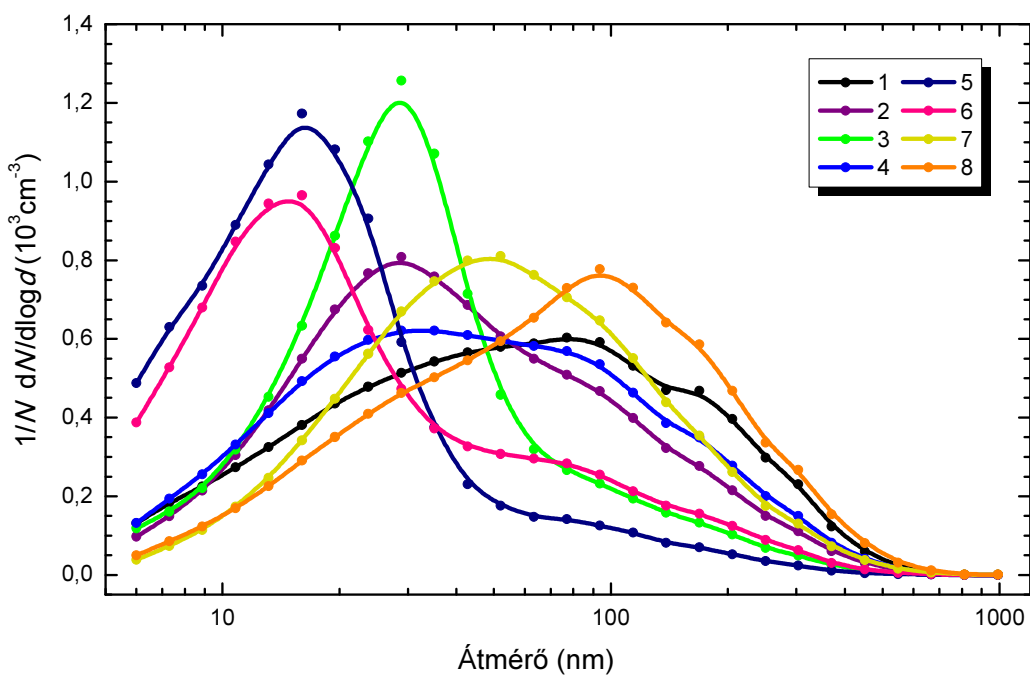
sejteti, hogy ezek a klaszterek az újrészecske-képződéssel (New Particle Formation, NPF) kapcsolatosak.

A legkisebb területtel rendelkező eloszlások az 1. és a 4. klaszterhez tartoznak. Az 1. klaszter medián átmérője 16 nm, míg a negyediké 170 nm körüli. Az 1. táblázatból látjuk, hogy a legtöbb eloszlást az 1. és 4. klaszter tartalmazza. Ezeket tehát gyakori és/vagy hosszú ideig előforduló, de aránylag kisebb intenzitású források eredményezik. A 13. ábrán látszik, hogy alakjuk a többi klaszterrel ellentétben hasonló. Az eloszlásfüggvényük kevésbé meredek fel- és lefutású, elnyúlt platóval.

A közepesen jelentős területű méreteloszlások a 2. 7. és 8. számú klaszterhez tartoznak. Ezeknek még jól kivehető maximumértékük van. Medián átmérőjük nagyobb átmérőknél jelentkezik, mint a 3., 5., és 6. számú klaszteré.



12. ábra: A nyolc különböző K-közép klaszterhez tartozó medián méreteloszlások



13. ábra: A nyolc K-közép klaszterhez tartozó, teljes részecskeszámra normált medián méreteloszlások

4.3. A K-közép klaszterekhez tartozó egyéb levegőkémiai változók

Az 8 különböző K-közép klaszterhez tartozó levegőkémiai adatok medián értékét a 2. táblázatban összegeztem.

2. táblázat: A vizsgált időszakra jellemző részecskeszám koncentráció (N_{6-1000}), UF részecske arány, illetve a kulcsfontosságú légszennyezők medián koncentrációi az egyes klaszterekben, illetve a teljes éves időszakban a belvárosra, és összehasonlításképp a városi háttérre vonatkozóan.

Klaszter sorszáma	$N_{6-1000} \times 10^{-3}$ cm^{-3}	UF/N	[SO ₂] ($\mu\text{g m}^{-3}$)	[O ₃] ($\mu\text{g m}^{-3}$)	[NO _x] ($\mu\text{g m}^{-3}$)	[CO] ($\mu\text{g m}^{-3}$)	[PM ₁₀] ($\mu\text{g m}^{-3}$)
1	5,1	0,71	4,2	32	62	520	37
2	15,7	0,83	5,6	20	146	721	44
3	28	0,91	5,6	33	144	627	42
4	9,7	0,79	4,8	26	102	607	42
5	41	0,96	6,4	43	85	536	46
6	17,7	0,90	5,2	37	102	567	43
7	24	0,78	7,6	14	206	962	57
8	13,6	0,65	7,6	12	146	894	61
Belváros	9,3	0,765	4,6	20	88	577	39
Városközeli háttér	3,4	0,67	6,1	50	17,9	378	23

Az 1. táblázat, valamint a 13. ábra alapján levont következtetésekből láthattuk, hogy a 3., 5. és 6. számú klaszterek az újrézecske-képződéssel lehetnek kapcsolatban. A 2. táblázat alapján a harmadik klaszter rendelkezik a második legnagyobb részecskeszám-koncentrációval. Az UF részecskék aránya itt a második legmagasabb, valamint a NO_x szennyezők koncentrációja is kiemelkedő. Az 5. számú klaszterben található a legtöbb részecske egységnyi térfogatban. Szintén erre jellemző a legmagasabb UF részecske arány, valamint itt a legmagasabb ózon koncentráció. A hatodik klaszterben egyaránt sok UF részecske található. Itt a második legmagasabb az ózonkoncentráció. Az ötödik és hatodik klaszter adataiból látszik, hogy az újrézecske-képződés az ózon-koncentráció növekedésének kedvez. Ez alapján elmondhatjuk, hogy a 2. táblázat megerősíti a 3., 5. és 6. számú klaszter újrézecske-képződéssel való kapcsolatát. A harmadik klaszter az újrézecske-képződés során a részecskék növekedését jellemzi. Az ötödik klaszter extrém erős újrézecske növekedésnek felel meg, a részecskék nagyon nagy koncentrációban indulnak növekedésnek. A hatodik klaszter az újrézecske-képződés indulása. A 12. ábrán azonban a 3. és 5. klaszter mellett harmadik legjelentősebb klaszterként nem a 6., hanem a 7. számú klasztert látjuk. Ennek oka a nagyobb részecskeszám-koncentráció. Itt található a legnagyobb koncentrációban a kulcsfontosságú légszennyezők közül a CO , NO_x , SO_2 , tehát a hetedik klaszter általános szennyezett környezetet jellemez, nagy részecskeszámmal.

Mint azt a 12. ábrán láthattuk, a legkisebb területtel rendelkező eloszlások az 1. és a 4. klaszterhez tartoznak. A 2. táblázatból látható, hogy az 1. és 4. klaszter tartalmazza a legkevesebb részecskét a 6–1000 nm mérettartományban, ahogy az UF részecskék aránya is alacsony. Ezekre a klaszterekre jellemzőek a legkisebb PM_{10} , CO , NO_x , valamint SO_2 koncentrációk. Mindebből arra következtethetünk, hogy viszonylag tiszta levegőkörnyezetet jellemeznek. Ez alapján az 1. számú klasztert tiszta klaszternek soroltuk be. A negyedik a regionális levegőkörnyezetet jellemző klaszter, mivel regionális aeroszol markánsabb jelenlétére utal, számottevő emisszió nélkül.

A 2. számú klaszter eloszlásfüggvénye a 13. ábrán markáns Aitken-módust jelöl. A közepes részecskeszám-koncentrációjával és a viszonylag nagy UF részecske arányával ez az emissziós klaszter.

A 8. számú klaszter a 13. ábra alapján akkumulációs módusnak tűnik, ezt a 2. táblázat szintén megerősíti, mivel ebben található a legkisebb UF részecske arány, és a legnagyobb PM_{10} koncentráció.

3. táblázat: Az egyes klaszterek és a kapott eredmények alapján történt besorolásuk

Klaszter sorszáma	Besorolás
1	Tiszta
2	Emisszió (Aitken-módus)
3	NPF növekedés
4	Regionális
5	Extrém NPF növekedés
6	NPF start
7	Szennyezett
8	„Öregedett” (Akkumulációs módus)

5. Összefoglalás

Az elmúlt évtizedben egyre nagyobb tudományos figyelmet kap az ultrafinom (UF) aeroszol részecskék ($d < 100$ nm) tanulmányozása. Ennek fő oka, hogy kockázatot jelentenek az emberi egészségre, valamint az éghajlati rendszer alakulásában is szerepet játszanak. Jelentőségük pontosabb megismerése érdekében fontos az UF részecskék forrásainak azonosítása, és ezek relatív járulékának, valamint tulajdonságainak meghatározása.

Ilyen kutatómunkát a Budapest Aeroszol Oktató- és Kutató Platformon végeznek évek óta. A részecskék méreteloszlását elektromos mozgékonyan alapuló részecskeszeparátorral határozzák meg a 6–1000 nm átmérőtartományban, folytonosan, 8 perces időfelbontással. Az egy év terjedelmű adatbázisokat K-közép analízissel osztályokba (ún. klaszterekbe) soroltuk aeroszol és más levegőkémiai megfontolások alapján. Személyes feladatom a 2014. 11. 13-tól 2015. 11. 12-ig terjedő időintervallumban meghatározott, 8 klaszterhez tartozó forrástípus azonosítása volt. A céljaim elérése érdekében mintegy 63000 méreteloszlás feldolgozásával elkészítettem az egyes klaszterszámokhoz tartozó átlagos- és medián méreteloszlásokat az abszolút $dN/d\log(d)$ értékekből, valamint a részecskeszámmal normált $1/N \times dN/d\log(d)$ értékekből is. Mindezt grafikusán is megjelenítettem az értelmezés elősegítése érdekében. Az érdeklődéssel kísért időszakban az egyes klasztereket a kulcsfontosságú légszennyezők (SO_2 , NO_x , CO , O_3 , PM_{10}) medián koncentrációjával is jellemeztem. Összevettem a medián eloszlások területét, alakját, és a hozzájuk tartozó egyedi eloszlások számát, annak érdekében, hogy azonosítsam a klaszterek lehetséges forrását.

A medián eloszlások területe alapján megállapítottam, hogy a teljes részecskeszám koncentrációnak nincs jelentős évszakos változása. Ez megerősít egy korábbi következtetést, miszerint a szennyezettebb belvárosi levegő általában gátolja a légköri nukleáció bekövetkeztét, míg a tisztább kezdeti levegőkörnyezet kedvez a nukleáció megtörténtének (új részecskék keletkezésének), ami viszont jelentősen megnöveli a részecskék számát. Mindez eltérő viselkedés a részecskék tömegkoncentrációjától. A három legjelentősebb klaszter az új részecske-képződéssel kapcsolatos. Ezekre a klaszterekre jellemző a legnagyobb részecskeszám-koncentráció, azon belül is a legnagyobb UF járulék. Ezek a klaszterek tartalmazták a legkevesebb egyedi eloszlást (1,5%, 0,5%, 2,8%), tehát viszonylag ritka jelenségről van szó. A két legkisebb területű méreteloszlások a tiszta és regionális levegőkörnyezetet jellemző körülményekkel voltak kapcsolatosak. Ezek tartalmazták a legkevesebb részecskét, azon belül is a legkisebb UF/N arányt. Mivel ezek voltak a legtöbb

egyedi eloszlást tartalmazó klaszterek (36%, 29%), a vizsgált egy éves időszaknak több, mint a felében viszonylag tiszta levegő volt jelen Budapesten.

Az egész éves medián méreteloszlásban az Aitken- és akkumulációs módusok átfedik egymást. A klaszterekre készített medián méreteloszlásban már egyedül jelennek meg, így mindkettőt (rendre az emissziós forrásból származó, illetve az öregedett aeroszolt) leíró klasztert sikerült külön-külön azonosítani.

Az utolsó klaszter a nagy részecskeszámmal, és nagy légszennyező koncentrációkkal rendelkező, szennyezett levegőkörnyezetet leíró klaszter. Feltevésünk szerint egy kívülről érkezett fel nem hígult levegőtömeg az okozója megjelenésének.

További terveink közé tartozik a klaszter és meteorológiai változók kapcsolatának vizsgálata.

6. Felhasznált irodalom

- Backman, J., Rizzo, L. V., Hakala, J., Nieminen, T., Manninen, H. E., Morais, F., Aalto, P. P., Siivola, E., Carbone, S., Hillamo, R., Artaxo, P., Virkkula, A., Petäjä, T., Kulmala, M.: On the diurnal cycle of urban aerosols, black carbon and the occurrence of new particle formation events in springtime São Paulo, Brazil. *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 11733–11751, 2012.
- Balásházy, I.: Aeroszolok légúti kiülepedésének és a kis dózisok biofizikai hatásainak vizsgálata. MTA doktori értekezés, Budapest, 2010.
- Beddows, D. C. S., Dall'Osto, M., Harrison, R. M.: Cluster Analysis of Rural, Urban and Curbside Atmospheric Particle Size Data. *Environ. Sci. Technol.*, 43, 4694–4700, 2009.
- Birmili, W., McMurry, P.H.: Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations. *J. Aerosol Sci.* 35, 143–176, 2004.
- Borsós, T., Salma, I.: A Várhegy-alagút közepén. *Természet Világa* 142/6, 257–260, 2011.
- Braakhuis, H. M., Gosens, I., Krystek, P., Boere, J. AF., Cassee, F. R., 2,4, Fokkens, P. HB., Post, J. A., Loveren, v. H., Park, M. VDZ.: Particle size dependent deposition and pulmonary inflammation after short-term inhalation of silver nanoparticles. *Particle and Fibre Toxicology*, 11:49, 2014.
- CAC: Centre of Atmospheric Chemistry, York University, utolsó letöltés: 2016. 10. 20.
- Carlaw, K. S., Lee, L. A., Reddington, C. L., Pringle, K. J., Rap, A., Forster, P. M., Mann, G. W., Spracklen, D. V., Woodhouse, M. T., Regayre, L. A., Pierce, J. R: Large contribution of natural aerosols to uncertainty in indirect forcing. *Nature*, 503, 67–71, 2013.
- CAS: Centre of Atmospheric Science, Manchester, utolsó letöltés: 2016. 10. 20.
- Dall'Osto, M., Monahan, C., Greaney, R., Beddows, D. C. S., Harrison, R. M., Ceburnis, D., O'Dowd, C. D.: A statistical analysis of North East Atlantic (submicron) aerosol size distributions. *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 12567-12578, 2011.

- Friend, A. J., Ayoko, G. A., Jayaratne, E. R., Jamriska, M., Hopke, P. K., Morawska, L.: Source apportionment of ultrafine and fine particle concentrations in Brisbane, Australia. *Environ Sci Pollut Res.*, 19:2942–2950, 2012.
- Fuzzi, S., Andreae, M. O., Huebert, B. J., Kulmala, M., Bond, T. C., Boy, M., Doherty, S. J., Guenther, A., Kanakidou, M., Kawamura, K., Kerminen, V.-M., Lohmann, U., Russell, L. M., Pöschl, U.: Critical assessment of the current state of scientific knowledge, terminology, and research needs concerning the role of organic aerosols in the atmosphere, climate, and global change. *Atmos. Chem. Phys.* 6, 2017–2038, 2006.
- Hinds, W. C.: *Aerosol Technology: Properties, Behavior, and Measurement of Airborne Particles*. John Wiley & Sons Inc., New York, 1999.
- Holmes, N. S.: A review of particle formation events and growth in the atmosphere in the various environments and discussion of mechanistic implications. *Atmos. Environ.* 41, 2183–2201, 2007.
- IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change), The Physical Science Basis. Working Group I Contribution to the Fourth Assessment Report. Cambridge University Press, New York, 2007.
- Kerminen, V.-M., Paramonov, M., Anttila, T., Riipinen, I., Fountoukis, C., Korhonen, H., Asmi, E., Laakso, L., Lihavainen, H., Swietlicki, E., Svenningsson, B., Asmi, A., Pandis, S. N., Kulmala, M., Petäjä, T.: Cloud condensation nuclei production associated with atmospheric nucleation: a synthesis based on existing literature and new results. *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 12037–12059, 2012.
- Kulmala, M., Dal Maso, M., Mäkelä, J.M., Pirjola, L., Väkevä, M., Aalto, P., Mikkulainen, P., Hämeri, K., O’Dowd, C.D.: On the formation, growth and composition of nucleation mode particles. *Tellus* 53B, 479–490, 2001.
- Kulmala, M., Vehkamäki, H., Petäjä, T., Dal Maso, M., Lauri, A., Kerminen, V.-M., Kuuluvainen, H., Kannosto, J., Virtanen, A., Mäkelä, J., M., Kulmala, M., Aalto, P., Keskinen, J.: Technical Note: Measuring condensation sink and ion sink of atmospheric aerosols with the electrical low pressure impactor (ELPI). *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 1361–1368, 2010.

- Kulmala, M., Kontkanen, J., Junninen, H., Lehtipalo, K., Manninen, H. E. Nieminen, T., Petäjä, T., Sipilä, M., Schobesberger, S., Rantala, P., Franchin, A., Jokinen, T., Järvinen, E., Äijälä, M., Kangasluoma, J., Hakala, J., Aalto, P. P., Paasonen, P., Mikkilä, J., Vanhanen, J., Aalto, J., Hakola, H., Makkonen, U., Ruuskanen, T., Mauldin III, R. L., Duplissy, J., Vehkamäki, H., Bäck, J., Kortelainen, A., Riipinen, I., Kurtén, T., Johnston, M. V., Smith, J. N., Ehn, M., Mentel, T. F., Lehtinen, K. E. J., Laaksonen, A., Kerminen, V.-M., and Worsnop, D. R.: Direct observations of atmospheric aerosol nucleation, *Science*, 339, 943–946, 2013.
- Künzi, L., Krapf, M., Daher, N., Dommen, J., Jeannet, N., Schneider, S., Platt, S., Slowik, J. G., Baumlin, N., Salathe M., Prévôt, A. S. H., Kalberer, M., Strähle, C., Dübgen, L., Sioutas, C., Baltensperger, U., Geiser, M.: Toxicity of aged gasoline exhaust particles to normal and diseased airway epithelia. *Nature. Scientific Reports*. 5:11801, 2015.
- Lelieveld, J., Evans, J. S., Fnais, M., Giannadaki, D., Pozzer, A.: The contribution of outdoor air pollution sources to premature mortality on a global scale. *Nature. Letter*. doi:10.1038/nature15371, 2015.
- Mauldin, R. L., Berndt, T., Sipilä, M., Paasonen, P., Petäjä, T., Kim, S., Kurtén, T., Stratmann, F., Kerminen, V.-M., Kulmala, M.: A new atmospherically relevant oxidant of sulphur dioxide. *Nature*, 488(7410), 2012.
- Merikanto, J., Spracklen, D. V., Mann, G. W., Pickering, S. J., Carslaw, K. S.: Impact of nucleation on global CCN. *Atmos. Chem. Phys.* 9, 8601–8616, 2009.
- Oberdörster, G., Oberdörster, E., Oberdörster, J.: Nanotoxicology: an emerging discipline evolving from studies of ultrafine particles. *Environ. Health Perspect* 113, 823-839, 2005.
- Pakkanen, T.A., Kerminen, V. M., Korhonen, C.H., Hillamo, R.E., Aarnio, P., Koskentalo, T., Maenhaut, W., 2001. Urban and rural ultrafine (PM 0.1) particles in the Helsinki area. *Atmos. Environ.* 35, 4593–4607.
- Pöschl, U.: Atmospheric Aerosols: Composition, Transformation, Climate and Health Effects *Angew. Chem. Int. Ed.*, 44, 7520 – 7540, 2005.
- Qian, S., Sakurai, H., McMurry, P.H.: Characteristics of regional nucleation events in urban East St. Louis. *Atmos. Environ.* 41, 4119–4127, 2007.

- Raes, F., Van Dingenen, R., Vignati, E., Wilson, J., Putaud, J.P., Seinfeld, J.H., Adams, P.: Formation and cycling of aerosol in the global troposphere. *Atmos. Environment*. 34, 4215-4240, 2000.
- Ramanathan, V., Crutzen, P. J., Kiehl, J. T., Rosenfeld, D.: Aerosols, climate, and the hydrological cycle. *Science* 294, 2119-2124, 2001.
- Riccobono, F., Schobesberger, S., Scott, C., Dommen, J., Ortega, I., Rondo, L., Almeida, J., Amorim, A., Bianchi, F., Breitenlechner, M., David, A., Downard, A., Dunne, E., Duplissy, J., Ehrhart, S., Flagan, R., Franchin, A., Hansel, A., Junninen, H., Kajos, M., Keskinen, H., Kupc, A., Kurten, A., Kvashin, A., Laaksonen, A., Lehtipalo, K., Makhmutov, V., Mathot, S., Nieminen, T., Onnela, A., Petäjä, T., Praplan, A., Santos, F., Schallhart, S., Seinfeld, J., Sipila, M., Spracklen, D., Stozhkov, Y., Stratmann, F., Tome, A., Tsagkogeorgas, G., Vaattovaara, P., Viisanen, Y., Vrtala, A., Wagner, P., Weingartner, E., Wex, H., Wimmer, D., Carslaw, K., Curtius, J., Donahue, N., Kirkby, J., Kulmala, M., Worsnop, D., and Baltensperger, U.: Oxidation products of biogenic emissions contribute to nucleation of atmospheric particles, *Science*, 344, 717–721, 2014.
- Ristovski, Z., Morawska, L., Bofinger, N.D., Hitchins, J., Submicrometer and supermicrometer particulate emission from spark ignition vehicles. *Environ. Sci., Technol.* 32, 38–45. 1998.
- Salma, I., Borsós, T., Weidinger, T., Aalto, P., Hussein, T., Dal Maso, M., Kulmala, M.: Production, growth and properties of ultrafine atmospheric aerosol particles in an urban environment. *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 1339–1353, 2011
- Salma Imre: *Környezetkémia*. Typotex Kiadó, Budapest, 2012.
- Salma, I., Fűri, P., Németh, Z., Balásházy, I., Hofmann, W., Farkas, Á.: Lung burden and deposition distribution of inhaled atmospheric urban ultrafine particles as the first step in their health risk assessment. *Atmos. Env.* 104, 39–49, 2015.
- Salma, I., Németh, Z., Weidinger, T., Kovács, B., Kristóf, G.: Measurement, growth types and shrinkage of newly formed aerosol particles at an urban research platform. *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 7837–7851, 2016.

- Schwartz, J., Neas, L. M.: Fine particles are more strongly associated than coarse particles with acute respiratory health effects in schoolchildren. *Epidemiology*, Vol. 11, No. 1, pp. 6-10, 2000.
- Shi, J.P., Harrison, R.M.: Investigation of ultrafine particle formation during diesel exhaust dilution. *Environ. Sci. Technol.* 33, 3730–3736, 1999.
- Tröstl, J., Chuang, W. K., Gordon, H., Heinritzi, M., Yan, C., Molteni, U., Ahlm, L., Frege, C., Bianchi, F., Wagner, R., Simon, M., Lehtipalo, K., Williamson, C., Craven, J. S., Duplissy, J., Adamov, A., Almeida, J., Bernhammer, A.K., Breitenlechner, M., Brilke, S., Dias, A., Ehrhart, S., Flagan, R. C., Franchin, A., Fuchs, C., Guida, R., Gysel, M., Hansel, A., Hoyle C. R., Jokinen, T., Junninen, H., Kangasluoma, J., Keskinen, H., Kim, J., Krapf, M., Kürten, A., Laaksonen, A., Lawler, M., Leiminger, M., Mathot, S., Möhler, O., Nieminen, T., Onnela, A., Petäjä, T., Piel, F. M., Miettinen, P., Rissanen, M. P., Rondo, L., Sarnela, N., Schobesberger, S., Sengupta, K., Sipilä, M., Smith, J. N., Steiner, G., Tomè, A., Virtanen, A., Wagner, A. C., Weingartner, E., Wimmer, D., Winkler, P. M., Ye, P., Carslaw, K. S., Curtius, J., Dommen, J., Kirkby, J., Kulmala, M., Riipinen, I., Worsnop, D. R., Donahue, N. M., Baltensperger, U.: The role of low-volatility organic compounds in initial particle growth in the atmosphere. *Nature Letter*, doi:10.1038/nature18271, 2016.
- Vakkari, V.: Flow-switching differential mobility particle sizer. *Flow-switching DMPS manual*, 1–42. 2008.
- Wählin, P., Palmgren, F., Van Dingenen, R.: Experimental studies of ultrafine particles in streets and the relationship to traffic. *Atmos. Environ.* 35, 63–69, 2001.
- Walter, J.: Size distribution characteristic of aerosols in Aerosol Measurement. Szerk: Kulkarni, P., Baron, P. A., Willeke, K. John Wiley and Sons, New York, 2011.
- Zhou, L., Hopke, P. K., Stanier, C. O., Pandis, S. N., Ondov, J. M., Pancras J. P.: Investigation of the relationship between chemical composition and size distribution of airborne particles by partial least squares and positive matrix factorization. *Journal of Geophysical Research*, Vol. 110, D07S18, 2005.

7. Köszönetnyilvánítás

Köszönetemet szeretném kifejezni témavezetőmnek, Dr. Salma Imre egyetemi tanárnak fáradhatatlan szakmai segítségéért, útmutatásáért és támogatásáért.

Köszönöm Dr. Németh Zoltán tudományos munkatársnak az adatok rendelkezésemre bocsátását, és hogy azok feldolgozásának módját megismertette velem.

Köszönet illeti Dr. Bartholy Judit egyetemi tanárt, és Dr. Weidinger Tamás egyetemi docent (ELTE Meteorológiai Tanszék) a meteorológiai adatok rendelkezésemre bocsátásáért.

Végül köszönöm Családomnak és Kedvesemnek rendíthetetlen támogatásukat.