

Beltéri és kültéri légköri aeroszolok összetételének és forrásának vizsgálata

Tézisek

a Magyar Tudományos Akadémia doktora
cím elnyerésére benyújtott pályázathoz

Bencs László

MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont

Szilárdtestfizikai és Optikai Intézet

Alkalmazott és Nemlineáris Optikai Osztály



Budapest

2017

Bevezetés és célkitűzések

A dolgozat címében szereplő aeroszol kifejezés alatt olyan, diszpergáló gázfázisú közegben (pl. atmoszférikus aeroszol esetében levegőben) eloszlott, lebegő részecskék összességét értjük, amelyek lehetnek szilárd és/vagy cseppfolyós halmazállapotúak. A légköri aeroszol részecskék egy része szabad szemmel is megfigyelhető (pl. köd, füst, szmog). Keletkezésük körülményei és összetételük évezredek óta megmozgatják a természettudományok iránt érdeklődő ember fantáziáját. Az aeroszol kutatás kezdetei a 19. század második felére tehetők. Akkoriban Aitken – a világon elsőként – kísérletet tett arra, hogy pontosan megszámlálja a légkörben szuszpendált „por” részecskéket, egy általa kifejlesztett aeroszol számlálókamrában (Aitken, 1888). Azóta az aeroszolok kutatása – beleértve azok összetételének, keletkezésének, forrásainak és nyelőinek megismerését – külön tudományággá fejlődött. Ez főképpen a földi éghajlat alakításában játszott meghatározó szerepüknek (pl. felhőképződési folyamatok és globális klímaváltozás – IPCC, 2013), továbbá az emberi egészségre gyakorolt hatásuknak (pl. 1952-es londoni szmog) köszönhető. Ahogy az már több mint két évtizede ismert, a légköri durva és finom aeroszolok belélegzéskor a légzőszervekben deponálódnak, ahol negatív egészségi hatást fejthetnek ki az emberi szervezetre (Dockery *et al.*, 1989).

Jelen dolgozatbeli kutatómunkám során természetes és antropogén kibocsátásból származó *troposzférikus* aeroszolok összetételének vizsgálatával és forásaik felderítésével foglalkoztam, mind kültéri (szárazföldi és tengeri), mind beltéri (templom) környezetben. A kapcsolódó vizsgálatok döntő részét az Antwerpeni Egyetem Kémiai Tanszékén végeztem, integrálódva az ott folyó kutatásokba, melyek nagyobb hányada Flandriára, valamint az Északi-tengerre akkoriban időszerű pályázatok keretében zajlottak. Ezen – inkább gyakorlatias jellegű – kutatások nagyobb része *hangsúlyozottan* olyan környezetkémiai problémákra és kihívásokra összpontosított, amelyek az antropogén emisszió által befolyásolt környezetünkben gyakran előfordulnak, azzal távolinak tűnő céllal, hogy az emberi beavatkozás miatt a biológiai/környezeti rendszerekben bekövetkező változásokat nyomon kövesse, valamint megpróbáljon válaszokat adni a döntéshozóknak a környezetvédelmi szabályozások felállításának szükségességéről és mértékéről. Dolgozatomban öt fő fejezeten keresztül tárgyalom a beltéri és a kültéri aeroszolokkal kapcsolatos kutatásaim legfontosabb eredményeit.

Aeroszol és gázfázisú légköri komponensek, mint például savképző vegyületek (Brimblecombe, 1990), ózon (Grosjean *et al.*, 1989) és formaldehid (Raychaudhuri és Brimblecombe, 2000) száraz ülepedése potenciális kopási és sérülési kockázati veszélyt jelent a képzőművészeti alkotásokra. Ezek nagyobb része érzékeny a beltéri levegő és a mikroklima gyors megváltozására, például a hőmérséklet és a páratartalom fluktuációjára (Camuffo, 1998). Gázfázisú légszennyezők mellett számos beltéri aeroszol-komponens is negatív hatást fejt ki a képzőművészeti alkotások, például festmények állagára (Camuffo *et al.*, 1999a). Mint az a szakirodalomból ismert, a deponálódott szerves anyagok a festmények elszennyeződését okozzák: a kénben gazdag aeroszolok a festékek elszíneződését váltják ki, a nagy kalciumtartalmú anyagok olyan felületű közeget alkotnak, amely adszorbeálja a levegőben szuszpendált

korom (black carbon – BC) részecskéket, ezáltal a világos felületek szürkülését, illetve feketedését okozzák, míg a nagy vastartalmú aeroszolok katalizátor szerepet töltenek be számos oxidációs folyamatban.

A fentiekben vázolt konzerválási, állagmegőrzési probléma még inkább nyilvánvaló hegyvidéki templomokban, ahol a kiállított műalkotások gyakran vannak kitéve a hirtelen változó mikroklimának (Camuffo *et al.*, 1999b). Ez részben az ilyen régiókban uralkodó hosszú, hideg évszaknak köszönhető, amikor páralecsapódás és/vagy fagyás fordulhat elő a vakolat mögötti falazatban, kombinálódva a falfelületen kialakult harmatponttal (Bordass és Bemrose, 1996; Camuffo, 1998), részben pedig az ilyen régiókban elterjedt, olajtűzelésű, forró levegő befújáson alapuló fűtési rendszerek használatának, amelyek a templomi látogatók komfortját szolgálják (Camuffo *et al.*, 1999b). Jó példa a vázolt szélsőséges klíma körülményekre és a beltéri levegővel foglalkozó tanulmányaim egyik tárgya egy kis hegyi templom, amely Rocca Pietore faluban található az olasz Alpokban 1143 m átlagos tengerszint feletti magasságban.

A 2002-2005 közötti időszakban aktív Friendly Heating („Barátságos Fűtés”) multidiszciplináris európai kutatási pályázat keretében a következő beltéri levegőminőséggel kapcsolatos kérdésekre kerestem választ: (i) Milyenek a Rocca Pietore-i templomépület légszennyező szállítási, légszellőzési és légszivárgási jellemzői? (ii) Milyen az épületbe újonnan telepített, alacsony hőmérsékletű, elektromos betáplálású padokból és szőnyegekkel álló fűtésnél és a hagyományos, olajtűzelésű kazánnal kombinált, forró levegő befújáson alapuló fűtési rendszerrel a gáznemű légszennyező anyagok (pl. CO₂, CO, NO₂) és az aeroszolok koncentrációjának és eloszlásának változása a beltéri levegőben? (iii) Melyek az újonnan fejlesztett fűtési rendszer előnyei a hagyományos, forró levegő befújásos fűtési rendszerhez képest az aeroszolok újraszuszpendálása szempontjából?

Hasonló kérdéseket megfogalmazva tanulmányoztam 2004-2005 között két dél-lengyelországi templom (a krakkói Szent Katalin és a salowai Szent Mihály Arkangyal) fűtési rendszereinek a beltéri légszennyezésre kifejtett hatását. Ezen épületek fűtési rendszereiként ideiglenes, elektromos betáplálású infravörös (IR) sugárzó fűtőtesteket használnak a padokban ülő templomlátogatók komfortérzetének növelésére. Az ilyen típusú fűtőberendezéseket a padlósínt felett, a padok mellett és felett rúdtartókon helyezik el és csak a hideg évszakban alkalmazzák, általában úgy, hogy a templomi szertartások ideje alatt üzemeljenek. A két épület eltérő felépítése (tégla, illetve faszerkezet) eltérő légkeringési jellemzőket és beltéri mikroklima feltételeket teremt. Ez természetesen befolyásolja a beltéri légszennyezők koncentrációját, dúsulását és ülepedését, amelyet részletesen tárgyalok a dolgozatban.

A fenti, légköri aeroszolakra vonatkozó megfontolásokat tekintetbe véve, valamint a 2000-es évek elején Flandriában felmerült igény miatt, kutatásaim során – így dolgozatom egy részében is – foglalkoztam a PM_{2,5} napi, szezonális és hely szerinti változásával. Vizsgáltam az elemi szén (EC), szerves szén (OC), vízdoldható (ionos) és elemi/nehézfém aeroszol-komponensek összetétel/koncentráció változását, abból a célból, hogy – legalább is részben – azonosítsam az aeroszolok összetételét és fő emissziós forrásait Észak-Belgium (Flandria) hat eltérő antropogén terhelésű pontján. Ezzel párhuzamosan meghatároztam légköri gázszenyezők (pl. aeroszol prekursorok) napi és szezonális koncentrációját. A nyert adatokból következtetéseket

vontam le a gáz- és aeroszol-fázisú légszennyezők kapcsolatára, például gáz-aeroszol konverziós és tengeri só veszteség faktorok kiszámításával. További kutatási feladatként eltérő elvű $PM_{2.5}$ monitorozási/elemezési technikákat alkalmaztam és összehasonlítottam a pontosságukat. A légszennyezők emissziós forrásainak azonosítására korrelációs elemzést, illetve főkomponens-analízist (principal component analysis – PCA) alkalmaztam. Itt jegyzem meg, hogy a flandriai $PM_{2.5}$ tanulmány nem csak a légköri aeroszolok kutatása céljából indult, hanem azért is, hogy csökkentse a környezetvédelmi monitorozási, illetve mintavételezési/elemezési módszerekben fennálló bizonytalanságot, ezáltal segítséget adjon a döntéshozóknak a finom aeroszorra vonatkozó környezetvédelmi szabályozások előkészítésében.

Az afrikai országok gyorsan fejlődő nagyvárosai az elmúlt évtizedek során egyre növekvő, antropogén kibocsátásból származó aeroszol terhelésnek voltak kitéve, mégpedig döntően az ipari források, a biomassza égetés, a közlekedés és a széntüzelésű erőművek egyre emelkedő emissziója miatt (Jonsson *et al.*, 2004). Míg Európában és Ázsiában számos tanulmány foglalkozik a légköri aeroszol vízdoldható komponenseivel (pl. Satsangi *et al.*, 2002; Wang *et al.*, 2002; Viana *et al.*, 2007), addig a szubszaharai Afrika vonatkozásában csak néhány cikk jelent meg a szakirodalomban (pl. Baumbach *et al.*, 1995; Jonsson *et al.*, 2004; Favez *et al.*, 2008; Mkoma *et al.*, 2009). A legtöbb afrikai, aeroszol témájú közlemény a PM tömegkoncentráció és/vagy a PM elemtartalom meghatározási módszereit alkalmazza, illetve tanulmányozza (pl. Gatebe *et al.*, 2001).

Az értekezésben ismertetésre kerülő tanzániai légköri tanulmányban troposzférikus gázfázisú szennyezők (NO_2 , SO_2 és O_3) koncentrációját és a teljes szuszpendált szemcsés anyag (TSP) elemi és ionos összetételét határoztam meg Dar es Salaam egy-egy tengerparti és félvárosias jellegű pontján, valamint a várostól távoli, vidéki jellegű területen gyűjtött mintákból. Megvizsgáltam a légszennyezők napi, szezonális és hely szerinti változását, valamint a vízdoldható PM-komponensek korrelációját gázfázisú szennyezőkkel. Tárgyalom továbbá a másodlagos SO_4^{2-} és NO_3^- aeroszolok keletkezését gáz-aeroszol konverziós faktorok segítségével, a tengeri só részecskék átalakulását („kopását”) a szárazföld felett és az aeroszol savasságot. A légszennyezők fő emissziós forrásainak azonosítására itt is korrelációs elemzést és PCA-t alkalmaztam.

Az elmúlt évtizedekben – az Északi-tengert környező országok egyre növekvő antropogén aktivitásának köszönhetően – lényegesen megnövekedett a szárazföld felőli nitrogéntartalmú tápanyagbevitel a tengerparti vizekbe (Spokes és Jickells, 2005). A vizek biológiailag hozzáférhető nitrogénvegyületek általi túltelítése különösen gyakori a szezonális szennyezési időszakok folyamán (pl. tavasszal, illetve nyár végén). Ez elősegíti az algavirágzás (pl. *fitoplankton*) intenzívebbé válását, ezáltal annak káros kiterjedését, amely további, látványos eutrofizációs jelenségeket (pl. part menti vizek felszínének kiterjedt habképződése) is okozhat. Ezen negatív folyamatok közvetlenül befolyásolják a tengeri ökoszisztémát, ezért a halászatot és a turizmust is (Lancelot *et al.*, 1994; Regnier és Steefel, 1999).

Dolgozatom egyik fő fejezetét képező, légköri nitrogénvegyületek (gáz-, aeroszol- és csapadékforma) tengerparti monitorozásával foglalkozó tanulmányban a következő kérdésekre kerestem választ: (i) Mekkora mértékű a légköri fő nitrogénvegyületek száraz és nedves ülepedés (N-fluxus) általi hozzájárulása az epizódikus eutrofizációs

folyamatokhoz egy Északi-tenger melletti, parti mintavételi ponton, De Haan közelében? (ii) Hogyan változik naponta és szezonálisan a légköri N-vegyületek koncentrációja és ülepedésük mértéke (N-fluxus)? (iii) Mekkora a mintavételi helyre érkező fő légtömegek hozzájárulása a normál és epizódikus (eutrofizációs) N-ülepedéshez? (iv) Mekkora a gázfázisú alkil-nitrát (AN) vegyületek napi koncentrációja a tengerparti légkörben, és milyen a szezonális és légtömeg szerinti változásuk? (v) Milyen becslés adható átlagos szezonális és éves ülepedésükre vonatkozóan? (vi) Melyek az alkil-nitrátok lehetséges emissziós forrásai?

Az óceánjáró hajók kipufogógáz emissziójából (dízeloilaj égetés) származó légszennyezés napjaink egyik igen lényeges környezeti problémája. Ez részben a hajóforgalom gyors növekedésének tulajdonítható, és annak, hogy a forgalom tekintélyes része ($\approx 40\%$) a part menti vizeken (azaz kevesebb, mint 400 km-re a parttól) zajlik (Corbett *et al.*, 1999). A szakirodalomban számos cikk részletesen foglalkozik a hajóemisszióból származó légszennyezőkkel, úgy, mint kritérium légszennyezők (pl. gázok), teljes- és méret szerint szétválasztott aeroszolok kémiai összetételével, savas és nagy reakciókészségű légköri gázalkotókkal (pl. PAN), továbbá illékony szerves vegyületekkel (VOC). Másrészről viszont a hajók kipufogógáz emissziójával kapcsolatos szuszpendált korom (BC aeroszol), vízdíszítő szervesetlen aeroszol-összetevők és a nanoaeroszol meghatározás/eloszlás vizsgálat gyakorlatilag nem, vagy igen kevésbé feltérképezett tudományterület. Összefoglalva a fentieket, a hajóemisszióból származó légszennyezők terület-specifikus koncentrációjának ismerete fontos a globális klímaváltozásban játszott szerepük és az emberi egészségre kifejtett hatásuk meghatározása szempontjából is.

Dolgozatom utolsó részében az Északi-tenger déli medencéjének (belga kontinentális talapzat, La Manche csatorna, nemzetközi hajózási útvonal) hajóemissziójával kapcsolatos kutatásaim legfontosabb eredményeit foglalom röviden össze. Ennek kapcsán főképpen a következő kérdésekre kerestem választ: (i) Milyen mértékű a légköri gázszenyezők és az aeroszolok eloszlása a különböző sűrűségű hajóforgalommal rendelkező tengeri területek (pl. fő hajózási útvonalak, partközeli és parttól távoli zátonyok, kikötő közeli vizek, part menti tengerrészek) felett? (ii) Milyen a szervesetlen komponensek megoszlása a finom, közepes és durva aeroszolokban az eltérő hajóforgalmú tengerrészek (ld. fent) felett? (iii) Milyen nanoaeroszol kibocsátással jellemezhetők a tengerjáró hajók?

Kísérleti eszközök és módszerek

A légkör egy komplex, többfázisú rendszer, ahol a nagy számban jelenlevő gáz- és aeroszol-komponens mintavétele és elemzése általában igen eltérő feltételeket igényel. Ennek megfelelően, kísérleteimhez kalibrált automata, félautomata és kézi, laboratóriumi mintavételi- és mérőkészülékeket alkalmaztam a lentiek szerint.

A vízben jól oldódó gázfázisú légköri komponensek (pl. HNO_2 , HNO_3 , HCl , H_2SO_4 , NH_3) mintavételezéséhez denudert (pl. Rupprecht&Patashnik (R&P) ChemComb és URG típusok), míg a többi vizsgált gázhoz automata monitorokat (Thermo Fisher Scientific TEI 43C és TEI 42C, Airpointer (NO , NO_2 , NO_x , O_3 , és SO_2)), Radiello® passzív mintavevő-csőveket (NO_2 , SO_2 , O_3), nagy térfogatárámú (HiVol) mintavevőket (alkil-

nitrátok, többgyűrűs aromás szénhidrogének (PAH)) használtam. A beltéri levegőben végzett gázelemzésekhez egy hatcsatornás mintaelosztóval felszerelt, automata Brüel&Kjær 1302 típusú gázmonitort (monitorozott komponensek: SF_6 , H_2O , CO , CO_2 , CH_2O) is alkalmaztam, amellyel a tanulmányozott épületek különböző pontjairól közel szimultán módon nyerhetők koncentrációadatok.

A méret szerint szétválasztott aeroszolk mintavételezéséhez automata-mintaváltós (Partisol) és kézi Dekati-, Berner-, és Harvard-típusú impaktorokat, Millipore típusú egylépcsős és háromlépcsős (NILU) membránfilteres szűrőegységeket alkalmaztam. Ezekbe különböző gyűjtőfelületeket (Teflon membránfilter, kvarcszálás szűrő, ezüst fólia, szilícium lapka, stb.) helyeztem a PM csapdázására, az elemzési módszer követelményeinek megfelelően. A csapadékmintákat Eigenbrodt ARS 721/S automata esővízgyűjtő berendezés segítségével szedtem.

Az aeroszol tömegkoncentráció meghatározásához automatikus, monitor elvű méréseket (pl. R&P Dust Monitor (Dustscan), alapkiépítésű (standard) kúpos elemű oszcilláló mikromérleg (TEOM), TEOM-FDMS (dinamikus filteres mérőrendszerrel kiegészített berendezés)), illetve félautomata mintavételt (Partisol, Eberline) laboratóriumi tömegmérési módszerekkel kombinálva alkalmaztam. Az aeroszolk gyűjtéséhez alkalmazott membránszűrőket gravimetriásan elemeztem mintavétel előtt és után, az EN12341 protokoll előírásait követve.

A vízdíható, ionos aeroszol alkotók meghatározásához Dionex-120 típusú, kation- és anioncserélő oszloppal ellátott ionkromatográfot, míg az aeroszolk fém/elemi (tömbi) összetételének meghatározásához röntgenfluoreszcens spektrométereket (Spectrace 5000, Epsilon-5) és elektron-mikroszkondás elemzőt (EPMA, JEOL 733) alkalmaztam. A célzott légköri szerves gázfázisú és aeroszol-komponensek (alkil-nitrátok, PAH-ok) elválasztását és kvantitatív meghatározását gázkromatográffal kapcsolt ioncsapdás tömegspektrométeren (Varian Saturn-2000) végeztük.

A flandriai $\text{PM}_{2.5}$ tanulmányban a levegőben szuszpendált elemi szén (EC) és szerves szén (OC) részecskék koncentrációját R&P ACPM-5400 típusú környezeti szénrészecske monitor segítségével regisztráltam. Az északi-tengeri mintavételi kampány során a korom (BC aeroszol) monitorozásához AE-42 típusú aethalométert (Magee Scientific) használtam, amely percenként adott egy koncentráció értéket. A nanoaeroszolk részecskeszámának meghatározására Philips Aerasense (Eindhoven, Hollandia) ultrafinom részecske monitort alkalmaztam, amely a 10-300 nm mérettartományban 16 s gyakorisággal mintavételezte a levegőt, majd kiszámította az átlagos részecskeátmérőt.

A beltéri levegő elemzését aeroszolkra és gázszennyezőkre három, különböző klímán elhelyezkedő, eltérő felépítésű (fa, kő/tégla szerkezetű), ventilációjú és működési elvű fűtési rendszerekkel ((i) olajtűzelésű, forró levegő befűtéses, (ii) elektromos fűtésű padok+szőnyegek, (iii) elektromos betáplálású IR-sugárzás) ellátott templomban végeztem 2002 és 2005 között. A ventilációs és levegőminőségi kísérleteket a fűtési rendszerek bekapcsolt és kikapcsolt állapota mellett is elvégeztem. Ezzel egyidejűleg, az épületek környező kültéri levegőjét is mintavételeztem a beltéri eredményekkel való összehasonlítás céljából. Az épületek szellőzési/légcsere sebességét – eltérő fűtési körülmények között – a nyomjelző gázként alkalmazott kén-hexafluorid (SF_6) koncentráció-idő görbéinek exponenciális lecsengésű szakaszaiból számítottam.

A flandriai $PM_{2.5}$ tanulmányban hat eltérő antropogén terhelésű mintavételi helyen végeztem légköri mintavételt/monitorozást, mindegyiknél két különböző évszakra időzített, legalább hathetes kampányban. A tanzániai légköri vizsgálatokhoz egy-egy tengerparti, félvárosias és vidéki jellegű helyen gyűjtöttünk aeroszol- és gázmintákat. A két előbbi mintavételi pont Dar es Salaam belül helyezkedik el, és az Indiai-óceán partjától rendre 0,1 km-re, illetve 15 km-re található, míg a vidéki jellegű mintavételi terület a várostól jóval távolabbi, kb. 40 km-re fekszik az óceántól.

A légszennyezésből származó nitrogén fluxus/ülepedés vizsgálatához négy mintavételi kampányon keresztül, 2004-2006 között gyűjtöttem gáz-, aeroszol-, és csapadékmintákat az Északi-tenger partján (VLIZ kutatóállomáson, De Haan), olyan hosszan, hogy a szezonális trendek, illetve a szennyezési epizódok követhetők legyenek. A légszennyezők származási helyének megállapításához izobár, egyenymvonalú és együttes (kötegelt) légcella-pályagörbéket számítottam a mintavételi ponttól visszafelé, mindegyik mintavételi napra. A pályagörbéket a NOAA HYSPLIT programjával számítottam a GDAS (Global Data Assimilation System) és az FNL (GDAS Final) meteorológiai adatbázisokat alkalmazva. A flandriai légköri $PM_{2.5}$ és PM_{10} koncentrációk modell értékeit a BeEUROS program segítségével számítottuk, együttműködésben a Flamand Technológiai Kutatóintézzettel (VITO).

Az északi-tengeri aeroszol tanulmányhoz összesen hat, tíznapos tengeri mintavételi kampányt szerveztem a R/V Belgica kutatóhajó fedélzetén, 2010-2011-ben és ezzel párhuzamosan a tengerparti (háttérként alkalmazott) mérőállomáson, De Haan-ban. A mintavételezett területek az Északi-tenger déli medencéjének fő hajózási útvonalain, illetve azok mellett helyezkedtek el. A meteorológiai adatokat (pl. környező léghőmérséklet, légnyomás, relatív páratartalom (RH), relatív és valódi szélirány, szélsébség), és a kutatóhajó haladási irányát, föld feletti sebességét, geokoordinátáit az ODAS rendszer 10 s-onként regisztrálta az expedíciók teljes időtartama alatt.

A nitrogén oxidációs arány (*NOR*) és a kén oxidációs arány (*SOR*) olyan gáz-aeroszol konverziós faktorok, amelyek kifejezik, hogy a NO_2 és a SO_2 prekursor gázok mekkora hányada alakult át nitráttá, illetve szulfáttá a légkörben. Egy mintavételi terület forrás/nyelő jelleg szerinti besorolásához a téli évszakra rendre 0,05-0,35 és 0,15-0,49, míg a nyári évszakra rendre 0,09-0,48 és 0,3-0,63 *SOR* tartományokat specifikált a szakirodalom (Shaw és Rodhe, 1982). Munkám során ezt az osztályozást alkalmaztam, illetve szükség szerint újradefiniáltam a fenti tartományokat $PM_{2.5}$ -re a hat flandriai mintavételi pont besorolásához. A *SOR* adatok segítségével meghatároztam a flandriai és a tanzániai mintavételi helyek forrás, nyelő, vagy kombinált jellegét a kén-dioxid szennyezés szempontjából. A tengeri és tengerparti légköri aeroszolak domináns elemei a tengeri só főkomponensei (pl. Na^+ és Cl^-), amelyek megjelenése a légköri aeroszolakban a tengervíz porlás és az óceán felől érkező légtömegekkel való szállítás eredménye. Ennek során a tengeri só aeroszolak reagálnak savas légköri gázokkal (pl. H_2SO_4 , HNO_3), ami alatt kloridot veszítenek. A veszteség becslésére tengeri aeroszol konverziós faktorokat számítottam, úgy, mint tengeri só eredetű aeroszol klorid koncentráció, klorid maradék arány és klorid veszteség.

A gázfázisú és az aeroszolbeli nitrogén ülepedés (N-fluxus) kiszámításához az egyes nitrogénvegyületek/aeroszol-frakciók kísérleti úton meghatározott, levegő-víz határfelületre vonatkozó száraz ülepedési sebesség (v_d) adatait alkalmaztam, mivel a

N-ülededés parti eutrofizációs folyamatokkal való kapcsolatáról ez nyújt pontos információt. A számított légcella-pályagörbék nyomvonalai által érintett területek alapján a N-fluxus adatokat besoroltam a mintavételi helyre jellemző, három fő légtömeg kategória szerint: (i) Atlanti-óceán/La Manche csatorna/Nagy-Britannia, (ii) Északi-tenger, és (iii) kontinens felőli.

A légköri mintavételezésből nyert független változópárok összefüggéseinek feltárásához számos statisztikai módszert alkalmaztam, mint például: (i) kétváltozós lineáris korrelációs analízist a Pearson-féle kétlépcsős valószínűségi szintű korrelációs együttható kiszámításával, (ii) hierarchikus és nem hierarchikus klaszterelemzést az egyes vegyületcsoportok összetételének becslésére, és (iii) főkomponens-analízist a légszennyezők emissziós forrásainak azonosítására, az ún. receptor modellezésre. A statisztikai számítások nagyobb részét az IBM® SPSS® 14-20 verziójú szoftverek felhasználásával végeztem.

A BC- és aeroszol tömegeloszlás-térképeket a monitorozásból nyert koncentráció adatok kampányokon keresztüli átlagolásával és $0,01^{\circ} \times 0,01^{\circ}$ léptékű térképhálók felhasználásával készítettem. A vízdoldható komponensek kristályvíz-tartalmát Kreidenweis és mtsai (2008) szerint számítottam ki, míg a PM ásványi elemtartalmát az egyes talajkomponensek aeroszolbeli koncentrációjából. Mindegyik mért aeroszol-komponens (pl. BC, vízdoldható és ásványi alkotók) koncentráció adatait osztályoztam annak megfelelően, hogy milyen típusú területről származott (pl. hajózási út, sűrűn navigált, horgonyzási zóna, zátony (távoli, partközeli), és tengerparti háttér).

Új tudományos eredmények (tézisek)

1. Tanulmányoztam városi és hegyi, kő-, és faépítésű templomok hagyományos (olajtűzelésű, forró levegő befújáson alapuló, illetve elektromos betáplálású, IR-sugárzós) és új fejlesztésű (kis hőmérsékletű, elektromos ellenállás elven fűtött padokból és szőnyegekből kiépített) fűtési rendszereinek hatását légköri gázszenyezők és aeroszokok beltéri eloszlására, emissziójára és kiülepedésére, a kiállított értékes művészeti alkotások állagára gyakorolt hatásuk miatt, azok megóvása, azaz ún. „megelőző konzerválás” céljából [A1, A4-A6, A17, B1, C1].
 - 1.1. Kén-hexafluorid (SF_6) nyomjelző gáz és egy többcsatornás, fotoakusztikus gázmonitor alkalmazásával meghatároztam a légcserese sebességet az épületek beltéri pontjain, eltérő fűtési feltételek mellett [A5, A6]. Megállapítottam, hogy a légcserese sebessége a faépítésű templomban körülbelül egy nagyságrenddel nagyobb ($2,7 \text{ h}^{-1}$), mint a vakolt falú kőtemplomoknál ($0,13\text{-}0,25 \text{ h}^{-1}$). A különbséget az előbbi épületek viszonylag nyitott szerkezetével magyaráztam. Bizonyítottam, hogy a faépítésű templom légcserese sebességét az IR-sugárzós fűtés nem befolyásolja lényegesen ($2,9 \text{ h}^{-1}$) [A5, A6].
 - 1.2. A hagyományos, forró levegő befújásos fűtési rendszer alkalmazásánál kimutattam, hogy a nagy hőmérséklet- és sebesség-gradiensek a gázszenyezők (pl. CO_2 , NO_2) és az aeroszokok egyenetlen eloszlását/

szuszpendálódását okozzák a beltéri levegőben [A1, A5, B1, C1]. Megállapítottam, hogy az ilyen típusú fűtési rendszerek elősegítik a beltéri nedvesség gyors elpárolgását, majd újbóli kiválását a fűtés kikapcsolása után az épület hidegebb, kevésbé fűtött részein és a berendezési tárgyakon [A1, A5, B1, C1]. A fűtési rendszer működése közben azon keresztül jelentős a kültéri levegő beáramlása, de kisebb mértékű bekeveredést figyeltem meg inaktív állapotában is [A1, A5].

- 1.3. Kimutattam, hogy az alpesi dízelolaj tüzelésen alapuló forró levegő befűjásos fűtési rendszer forrása bizonyos gázfázisú (pl. NO_2) és aeroszol légszennyezőknek (pl. K, Zn, Al, S), amelyek megnövekedett koncentrációját tapasztaltam a beltéri levegőben a fűtés működése alatt és után [A1, A4]. Megállapítottam, hogy a finom aeroszobeli Ca részecskék gyakoribb beltéri előfordulása a vakolt falak kopásának tulajdonítható [A1, A4]. Bizonyítottam, hogy az elektromos IR-sugárzókon alapuló fűtési rendszer csak a finom méretfrakciójú szerves és ammónium-szulfát aeroszokok újrászuszpendálását segíti elő, míg nem szuszpendálja újra a nehezebb talajpor részecskéket [A4, A5].
- 1.4. Megállapítottam, hogy a kis hőmérsékletű, elektromosan fűthető hőszugárzóelemekből (padok és szőnyegek) kiépített, szimmetrikus fűtési rendszer alkalmazása jóval előnyösebb, mint a konvencionális, forró levegő befűjásos alapuló fűtés, melynek hátrányos tulajdonságait (pl. megnövekedett beltéri vízpára és CO_2 koncentráció, PM szuszpendálása) kiküszöböli, vagy legalábbis csökkenti. Az új rendszerű fűtés a PM kisebb fokú beltéri szállítását eredményezi (mivel csak a finomrészecskéket szuszpendálja újra), így kisebb a valószínűsége az aeroszokok kiülepedésének és kémiai reakcióknak a műalkotások felületén. Megállapítottam, hogy a fűtési rendszer a hőt és a nedvességet lokalizáltan, a fűtött padok és szőnyegek környezetében tartja, így a beltéri nedvesség műtárgyak/épületelemek általi abszorbeálódásának a mértéke lecsökken [A4, A5, B1].
- 1.5. Kimutattam, hogy mindhárom fűtési rendszer újrászuszpendálja az aeroszol részecskéket a beltéri levegőben a következő csökkenő erősségi sorrend szerint: (i) forró levegő befűjásos, (ii) elektromosan fűtött padok+szőnyegek, (iii) elektromos betáplálású IR-sugárzók [A4].
2. Tanulmányoztam légköri finom és durva aeroszokok összetételét Észak-Belgiumban (Flandria) 2001-2003 között. Ezzel kapcsolatosan meghatároztam *troposférikus* gázszennyezők, $\text{PM}_{2.5}$ és PM_{10} koncentrációját, utóbbiak összetételét hat eltérő antropogén terhelésű helyen két-két kampányban gyűjtött mintákból, közvetlen folyamatos és közvetett, mintavétellel kombinált laboratóriumi analitikai módszerekkel, majd összehasonlítottam azokat atmosféra-modellből számított eredményekkel [A2, A3, A7, A8, A12].

- 2.1. Megállapítottam, hogy a $\text{PM}_{2.5}$ tömegkoncentrációra a különböző elvű elemzési módszerekkel nyert adatok hasonló időbeli eloszlást mutatnak

- [A12]. Kimutattam, hogy az optikai PM-monitor (Dustscan) általában szignifikánsan nagyobb $PM_{2.5}$ értékeket adott, mint a gravimetriás módszerek, ezért csak a koncentráció-trend követésére alkalmas. Bizonyítottam, hogy a normál/standard TEOM módszerrel nyert $PM_{2.5}$ eredmények viszonylag nagy, széles tartományban (50-60%) fluktuáló, negatív mérési hibával terheltek. Ez a hiba az illékony aeroszol-komponensekre (pl. ammónium-aeroszolkok) – a TEOM környezetinél lényegesen nagyobb minta-előkezelési hőmérsékletén – fellépő párolgási veszteségnek felel meg. Megmutattam, hogy a veszteséget kompenzáló TEOM-FDMS módszerrel nyert eredmények jól egyeznek a gravimetriás $PM_{2.5}$ adatokkal [A12]. Megállapítottam, hogy a hat vizsgált terület közül háromnál a $PM_{2.5}$ évszak/kampány szerinti átlaga átlépi az EU által megadott határértéket (belvárosi: $29 \mu g/m^3$ és $45 \mu g/m^3$, ipari/városi: $26 \mu g/m^3$, vidéki/mezőgazdasági: $28 \mu g/m^3$). Azonban a hely szerinti kampányok alapján extrapolált, éves $PM_{2.5}$ csak a belvárosi ponton határérték feletti ($29 \mu g/m^3$) [A12].
- 2.2. Kimutattam, hogy az elemi (fémes) alkotók a $PM_{2.5}$ átlagosan 2-6%-át teszik ki szezonálisan/terület szerint [A12]. Azonban ez a járulék széles tartományban (0,1-24%) váltakozik napi szinten, és főleg az ipar, kisebb mértékben a közlekedés emissziójából származik. Bizonyítottam, hogy a vízdíjható szervesetlen aeroszolkok átlagosan 40%-át teszik ki a $PM_{2.5}$ -nek, de napi járulékkuk elérheti akár a 80-98%-ot, amit főleg a SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ és Na^+ komponensek alkotnak [A8].
 - 2.3. Megmutattam, hogy az elemi szén (EC) és a szerves szén (OC) járuléka a $PM_{2.5}$ -hez széles tartományban ingadozik (3-77%), míg az egyes hely és szezon szerinti átlagok 12-32% közé esnek [A12]. A legtöbb mintavételi helyen viszonylag nagy OC/EC arányt (3,7-9,0) diagnosztizáltam, a sűrű gépjárműforgalmú belvárosi pont (OC/EC=1,9) kivételével. Kiugróan nagy, 8,4 és 9,0 OC/EC arányokat tapasztaltam a külvárosi helyeknél. Ebből intenzív másodlagos szerves aeroszol (SOA) képződésre, illetve helyi emissziós forrásoknak (pl. fatüzelésnek) a megnövekedett légköri OC szinthez való jelentős hozzájárulására következtettem [A2, A12].
 - 2.4. Megállapítottam, hogy a V, Cr, Mn, Ni, Cu, Zn, Rb és Pb $PM_{2.5}$ alkotók Al, vagy Si referencia elemekkel számított dúsulási tényezője (EF) tíz feletti, ami jelzi, hogy előbbieket főleg antropogén forrásokból származnak. Az Al, Ca, Si és Ti EF értékei, helytől függően, általában 2-3-nál kisebbek, ezért ezek a komponensek földkéreg/talaj eredetűek [A12]. A Fe, K és Sr EF adatai 2-12 között váltakoznak szezonális és hely szerint, amely jelzi kevert (antropogén, illetve földkéreg/talaj) eredetüket.
 - 2.5. A számított nitrogén és kén oxidációs arányokból kis/közepes mértékű másodlagos szulfát és a nitrát aeroszol képződésre következtettem öt flandriai városi/kisvárosi állomáson, míg a vidéki/mezőgazdasági helyet viszonylag aktív másodlagos szulfát aeroszol képződés jellemezte [A8]. A SOR értékek szerint besorolva, öt mintavételi hely inkább forrás, vagy kombinált (forrás/nyelő), míg a vidéki/mezőgazdasági hely – évszak

- szerint – kombinált, vagy nyelő jellegű a SO_2 szennyezés szempontjából. Megállapítottam, hogy a városi és az ipari helyekre jellemző az aeroszol savasság, míg a külvárosi és a vidéki/mezőgazdasági területeken inkább a bázikus aeroszokok hatása domináns [A8].
- 2.6. Kiszámítottam, hogy tengeri só eredetű aeroszol klorid koncentrációja (Cl_{sea}) $0,7\text{--}2,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, míg az aeroszol klorid veszteség (Cl_{loss}) $0,5\text{--}2,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ között váltakozik átlagosan, terület és évszak szerint. Utóbbi megfelel 69-96% tengeri só aeroszol klorid veszteségnek a $\text{PM}_{2,5}$ -ben (kampány átlagok: 79% és 93%) [A8]. Ennek alapján megállapítottam, hogy a tiszta tengeri só aeroszol szállítás Flandria felé nem számottevő, annak átalakulása a flandriai légkörben fokozottabb mértékben fordul elő, összevetésben más európai tengerparti területekkel.
- 2.7. Kimutattam, hogy a tenger felett képződő szuszpendált részecskék kismértékben járulnak hozzá a $\text{PM}_{2,5}$ összetételéhez, jórészt átalakult, „kopott” tengeri só aeroszol formájában: átlagosan 4,2-11,8% járulékkal [A8]. Bizonyítottam, hogy a tengeri só aeroszol szállítás Flandriában télen tetőzik. Vízoldható $\text{PM}_{2,5}$ alkotók klaszterelemzésével különböző aeroszol-típusokat azonosítottam: NH_4NO_3 , KNO_3 (antropogén), Na_2SO_4 (tengeri) és MgCl_2 , CaCl_2 , MgF_2 , CaF_2 (keverék).
- 2.8. Kimutattam, hogy a vízoldható $\text{PM}_{2,5}$ -et alkotó szervesetlen vegyületek – a tengeri aeroszol mellett – döntően a közlekedés, a szén/fatüzelés, valamint az állattartás kibocsátásából [A8], míg az elemi/fém PM-alkotók és a többgyűrűs aromás szénhidrogének a dízel/nehézelölaj égetés, a fémipar és a közlekedés emissziójából származnak [A2, A12].
- 2.9. Összevettem számos monitorozott aeroszol (PM_{10} és $\text{PM}_{2,5}$ tömeg, és másodlagos szervesetlen aeroszokok (secondary inorganic aerosols – SIA: NO_3^- , SO_4^{2-} , NH_4^+) átlagos napi koncentrációját a BeEUROS atmosféra-modellel számított, elméleti koncentrációikkal [A7]. Megfelelő egyezést találtam a PM tömeg és a SIA modell és kísérleti adatainak trendje és abszolút értékei (napi átlagok) között. Megállapítottam, hogy a teljes belgiumi légkörre modellel számított $\text{PM}_{2,5}$ és PM_{10} eloszlásadatok alátámasztják a kísérleti eredményeket, illetve a regionális sajátosságok alapján várható eloszlásokat [A7].
3. Tanulmányoztam 2005-2006 között *troposzférikus* gázszennyezők és aeroszokok (TSP) koncentrációját, a TSP elemi és vízoldható szervesetlen (ionos) összetételét, napi és szezonális (esős és száraz évszak alatti) változásukat a tanzániai Dar es Salaamban és környékén, három különböző antropogén terhelésű helyen (tengerparti, félvárosias, vidéki) gyűjtött mintákból, közvetlen és közvetett elvű mintavételi technikák és laboratóriumi analitikai módszerek alkalmazásával [A13].
- 3.1. Megállapítottam, hogy a vízoldható szervesetlen TSP domináns részét (átlagosan 84%-át) a Na^+ , NH_4^+ , SO_4^{2-} , NO_3^- és Cl^- alkotják [A13]. Kimutattam, hogy a detektált vízoldható és elemi (Al, Si, S, Cl, K, Ca, Fe és Zn) aeroszol-komponensek jelentős szezonális és hely szerinti

- fluktuációt mutatnak: koncentrációjuk a tengerparti mintavételi helytől (városi közlekedés/kikötői hajóforgalom, illetve ipari emisszió által érintett terület) a kontinens belseje felé távolodva csökkent. Meghatároztam szervesetlen, ionos aeroszol-komponensek Na^+ -ra vonatkozó koncentrációarányát, majd összevettem azt a megfelelő tengervízbeli ionarányokkal, amiből arra következtettem, hogy nagyobb részük – a Na^+ és a Mg^{2+} kivételével – szárazföldi eredetű [A13].
- 3.2. A kén és nitrogén oxidációs arányokból nagymértékű másodlagos szulfát és nitrát aeroszol képződésre következtettem. A *SOR* adatok alapján megállapítottam, hogy a tanulmányozott területek a kén-dioxid szennyezés szempontjából általában nyelőként viselkednek a száraz évszakban, míg az esős évszak alatt a kombinált (forrás/nyelő) jelleg dominált. Kivételt képezett a félvárosias mintavételi pont, amely kombinált jelleget mutatott a száraz évszakban is [A13].
 - 3.3. Viszonylag jelentős klorid veszteséget (20-40%) diagnosztizáltam a tengeri só eredetű aeroszolokban a száraz évszak alatt. A száraz és az esős évszakra számított átlagos neutralizációs arányokból (rendre 0,25 és 0,41) erősen savas karakterű aeroszolként jelenlétére következtettem. Kimutattam, hogy az esős évszakban a *NR* átlagos napi értéke lényegesen, 20-60%-kal nagyobb, mint a száraz évszakban. Ezt a savas aeroszol-összetevők (nitrát és szulfát) légkörből való csapadék általi részleges kimosódásával hoztam kapcsolatba [A13].
 - 3.4. Megállapítottam, hogy a tengeri só eredetű klorid aeroszol koncentrációja (Cl_{sea}) 2-3-szor nagyobb a száraz évszakban (átlag: $3,25 \mu\text{g}/\text{m}^3$), mint a csapadékos szezon alatt (átlag: $1,08 \mu\text{g}/\text{m}^3$), amely jelzi az időjárási frontok (megváltozott irányú légtömegek) hatását a helyi aeroszol összetételén. Kimutattam, hogy a száraz évszakban a tengeri só aeroszol szállítás intenzívebb, amit jelez annak átlagosan nagyobb koncentrációja ($4,2\text{-}5,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$), összevetésben az esős szezon alatt tapasztalt értékekkel ($2,6\text{-}2,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$) [A13].
 - 3.5. Kimutattam a helyi tüzelés, gépjárműforgalom, biomassza égetés, tengeri só aeroszol és városi por újraszuszpendálás, mint fő emissziós források jelenlétét a félvárosias és a tengerparti mintavételi helyeken. A vidéki területen a nagy távolságról érkező aeroszolként hatását igazoltam, a tengeri só permet, a talajpor szuszpendálódás és a másodlagos aeroszol források mellett [A13].
4. Megvizsgáltam 2004 és 2006 között az Északi-tenger partján, De Haan-nál – légköri szerves (oldott szerves nitrogén (DON), gázfázisú alkil-nitrát) és szervesetlen vegyületek száraz és nedves ülepedéséből származó – átlagos napi, szezonális és fő légtömegek szerinti nitrogén fluxusokat, gáz, méret szerint szétválasztott (finom, közepes, durva) aeroszolként és esővíz minták napi gyűjtésével, majd kémiai elemzésükkel [A9-A11, A14].

- 4.1. Kivételesen megnövekedett átlagos aeroszol-N ülepedést tapasztaltam nyár végén az Atlanti-óceán/La Manche csatorna/Nagy-Britannia és az Északi-tenger felőli légtömegekből, rendre 3,6 és 2,9 mg N/m²/nap-ot, amely megfelelt egy tipikus tengerparti nitrogén túltelítési/szennyezési epizódnak, azaz eutrofizációnak [A10]. Kimutattam, hogy a normál szezonális (nem epizódikus) időszakokban az átlagos aeroszol-N ülepedés lényegesen kisebb mértékű: 0,9-1,4 mg N/m²/nap.
- 4.2. Megállapítottam, hogy a vizsgált N-vegyületek közül az ammónia a gázfázisú N-fluxus 90%-át, míg a HNO₂ és HNO₃ együtt annak közel 10%-át teszi ki [A10]. Az epizódikus késő nyári kampányban az utóbbi gázok kiugróan nagy, 4,8 és 2,7 mg N/m²/nap fluxusát figyeltem meg, rendre az atlanti/csatorna/brit és az északi-tengeri légtömegekből.
- 4.3. Kimutattam, hogy a nyár végi (eutrofizációs) időszakban az NH₄⁺ ülepedéséből származó N domináns a három PM frakcióban és két fő (atlanti és északi-tengeri) légtömegben [A9, A10]. Kivételt képeztek a durva aeroszokok a kevert északi-tengeri/kontinentális légtömegekben ötszörös NO₃⁻-ból származó N-ülepedéssel. A tél végi/tavaszi időszak alatt az NH₄⁺ és a NO₃⁻ N-ülepedése hasonló a durva és a közepes PM frakcióban, míg a kontinentális aeroszokokból kétszeres N-fluxus figyelhető meg [A9, A10]. A nyárközépi időszakban az NH₄⁺ leginkább a közepes és finom PM frakciókban dominált, míg a NO₃⁻ a durva frakcióban, míg a fő légtömegek hasonló aeroszol N-járulékot adtak.
- 4.4. Megállapítottam, hogy a nyár végi, epizódikus légszennyezési időszak alatt az Atlanti-óceán/La Manche csatorna/Nagy-Britannia felől érkező légtömegekből származott a teljes N-fluxus nagyobb része (66%), míg a kontinens/Északi-tenger és az Északi-tenger felőli légtömegek jóval kisebb járulékot adtak (rendre 22% és 15%). A tél végi/tavaszi időszak alatt a kontinentális légtömegekből származó N dominált (40%), míg az Atlanti-óceán/La Manche csatorna/Nagy-Britannia és az Északi-tenger felől érkező légtömegek közel egyforma járulékot adtak [A10].
- 4.5. Megállapítottam, hogy az átlagos száraz és nedves N-ülepedés a normál szezonális időszakokban rendre 2,8 és 3,4 mg N/m²/nap, míg a nyár végi eutrofizációs időszakban közel kétszeres nagyságú, rendre 5,4 és 5,6 mg N/m²/nap [A10]. A javarészt száraz, nyári időszakban a kontinens felőli levegőből kivált esővízben jelentős mennyiségű DON-t mutattam ki, amely a nedves N-fluxus 45%-át, a teljes N-ülepedés 15%-át tette ki.
- 4.6. Az epizódikus késő nyári kampányra számított átlagos teljes (nedves+száraz) N-ülepedésből (0,79 mmol N/m²/nap), ún. Redfield sztöchiometriát feltételezve, meghatároztam a primer *fitoplankton* produktivitást, amelyre megállapítottam, hogy 5,2 mmol C/m²/nap biológiailag hozzáférhető szén fixálásával egyenértékű. Bizonyítottam, hogy az epizódikus szennyezésként jellemezhető, késő nyári kampány során tapasztalt N-ülepedés 15%-os tengervíz felszíni produktivitásnak felel meg. Ez egyező mértékű az 1999-ben tapasztalttal, ami jelzi, hogy az Északi-tenger légköri N-felvételének szabályozása még kihívás [A10].

- 4.7. Meghatároztam az éves száraz és nedves N-fluxust a normál légszennyezés (nem epizódikus) időszakokra (rendre 941 és 1464 kg N/km²/év), amely megfelel 2,4 t N/km²/év teljes N-ülededésnek a vizsgált tengerparti területre (De Haan). A számításokhoz tekintetbe véve az epizódikus légszennyezésként jellemezhető nyár végi kampány N-fluxusát, megállapítottam, hogy az átlagos éves száraz és nedves N-ülededés, rendre 1015 és 1526 kg N/km²/év, amely a teljes nitrogén fluxus közel 5%-os növekedésének felel meg [A10].
- 4.8. Megállapítottam, hogy detektált alkil-nitrát vegyületek (ΣAN) teljes napi koncentrációja 0,03 és 85 pptv között váltakozik, amit döntően a nitrobután és nitro-pentán izomerek járuléka alkot [A14]. Kimutattam, hogy a rövidebb szénláncú AN-ok (<C₆) nagyobb mértékben az óceán felőli (atlanti/csatorna/brit) légtömegekben fordulnak elő, míg a hosszabb szénláncú AN-ok a szárazföldi légtömegekben. Megállapítottam, hogy a gázfázisú AN-fluxus téli/nyári évszak szerinti trendet követ, amit helyi, szezonális emissziós források megfordíthatnak. Az átlagos ΣAN ülededés nagyobbak bizonyult nyáron (43 ng N/m²/nap), mint télen (3,8 ng N/m²/nap). Kimutattam a közlekedés, helyi tüzelés, biomassza égetés és fotokémiai AN-források jelenlétét, amellet, hogy a tengeri emisszió hatása is megfigyelhető volt [A14].
5. Meghatároztam 2010-2011 között számos légköri gázszenyező koncentrációját, méret szerint szétválasztott aeroszolok összetételét és terület szerinti eloszlásukat az Északi-tenger déli medencéjében, a belga kontinentális talapzat és a La Manche csatorna egyes részei felett, a hajózási útvonalak mentén, azok környezetében, tengeri és parti háttér mintavételi helyeken [A15, A16, A18, A19].
 - 5.1. Az expedíciók során nyert légszenyező koncentrációk, meteorológiai paraméterek és geo-koordináták felhasználásával összeállítottam a tengeri területek légszenyező-eloszlási térképét finom (PM₁), közepes (PM_{2.5-1}), durva (PM_{10-2.5}) aeroszol tömegre, és PM₁₀-beli korom (BC) aeroszorra, amelyek alapján megállapítottam, hogy ezen komponensek nem egyenletes módon oszlanak el a vizsgált vízterületek felett. Megnövekedett koncentrációjukat mutattam ki a nyílt tengeri horgonyzási zónáknál, a nagy kikötőkhöz közeli tengerrészekben (pl. Zeebrugge) és a fő kereskedelmi hajózási útvonalak mentén [A15].
 - 5.2. Megállapítottam, hogy a vizsgált gázszenyezők közül az O₃ a maximum (15-20 ppb), míg a NO₂ a minimum (1,8 ppb) értékét a legsűrűbben hajózott/navigált vízterületeknél érte el, amely megfelelt az NO₂ gyors lebomlásának/átalakulásának és az O₃ gyors képződésének. A HNO₂ és a HNO₃ megnövekedett koncentrációját (0,43 és 0,75 µg/m³) mutattam ki az utóbbi területek felett, amely alátámasztja a fenti modellt.
 - 5.3. Kis NO háttér-koncentrációt mutattam ki a zátonyoknál és a part menti vizek felett (0,18 ppb), de ötször nagyobb értékét tapasztaltam a sűrűn navigált területeken (1 ppb) [A15]. Az NH₃, HNO₂, HNO₃, HCl, SO₂ és NO₂

koncentrációja a csúcsértékét általában a partközeli Flamand Zátonyoknál (Flemish Banks), illetve a hajók nyílttengeri horgonyzási zónájában érte el, amelyből egyrészt a kontinens felőli antropogén behatásra, illetve a veszteglő hajók domináns emissziójára következtettem.

- 5.4. Megmutattam, hogy a sűrű hajóforgalmú vízterületek feletti PM_{10} -ben az ammónium-szulfát és az ammónium-nitrát dúsulása jellemző [A15]. Utóbbi komponens a közepes és a durva frakciókban is lényeges, de csökkenő koncentrációban jelenik meg. A hajózási útvonalak mentén az NH_4^+ megnövekedett koncentrációját igazoltam, amely fokozatosan csökkenő járulékú a PM_{10} , $PM_{2.5-10}$ és $PM_{10-2.5}$ frakciókban. Lényegesen kisebb NH_4^+ koncentrációt mutattam ki a Flamand Zátonyoknál és a part menti vizeken, ahol a hajóforgalom sűrűsége kicsi [A15].
- 5.5. Bizonyítottam, hogy a tiszta tengeri só aeroszol jelentős a $PM_{2.5-10}$ és a $PM_{10-2.5}$ frakciókban. Nagyobb PM_{10} -beli járulékát mutattam ki a zátonyoknál (part menti: 17%, távoli: 24%) és a hajózási útvonalak mentén (18%), míg kisebb járulékát a sűrűn navigált tengeri területeken és a horgonyzási zónában (8-8%), valamint a parti állomáson (12%). A PM_{10} kristályvíz-tartalma általában 10-13% között váltakozott a távoli zátonyok kivételével, ahol közel feleakkora járulékát (6%) figyeltem meg. Utóbbit a SIA távoli zátonyok feletti kis koncentrációjával magyaráztam.
- 5.6. Kimutattam, hogy az óceánjáró hajók és a kis vízkiszorítású tengeri hajók (pl. halászhajók) által kibocsátott kipufogógázokban jelenlevő nanorészecskék átlagos átmérője lényegesen eltérő, rendre 28 nm és 42 nm körüli. Megállapítottam, hogy a nanoaeroszolkok átlagos részecskeátmérője függ az időjárási körülményektől: ködös időjárási helyzeteknél nagyobb átlagos értékek (46-51 nm) jellemzők [A15].

Dolgozat témaköréhez kapcsolódó saját közlemények

A. Referált nemzetközi szakfolyóirat cikkek

A1. Z. Spolnik, L. Bencs, A. Worobiec, V. Kontozova, R. Van Grieken, *Application of EDXRF and thin window EPMA for the investigation of the influence of hot air heating on the generation and deposition of particulate matter*, **Microchimica Acta**, 2005, 149 (1-2) 79-85.

A2. K. Ravindra, L. Bencs, E. Wauters, J. de Hoog, F. Deutsch, E. Roekens, N. Bleux, P. Berghmans, R. Van Grieken, *Seasonal and site-specific variation in vapour and aerosol phase PAHs over Flanders (Belgium) and their relation with anthropogenic activities*, **Atmospheric Environment**, 2006, 40 (4) 771-785.

A3. K. Ravindra, A.F.L. Godoi, L. Bencs, R. Van Grieken, *Low-pressure gas chromatography - ion trap mass spectrometry for the fast determination of polycyclic aromatic hydrocarbons in air samples*, **Journal of Chromatography A**, 2006, 1114 (2) 278-281.

- A4. Z. Spolnik, A. Worobiec, L. Samek, L. Bencs, K. Belikov, R. Van Grieken, *Influence of different types of heating systems on particulate air pollutant deposition: the case of churches situated in a cold climate*, **Journal of Cultural Heritage**, 2007, 8 (1) 7-12.
- A5. L. Bencs, Z. Spolnik, D. Limpens-Neilen, H.L. Schellen, B.A.H.G. Jütte, R. Van Grieken, *Comparison of hot-air and low-radiant pew heating systems on the distribution and transport of gaseous air pollutants in the mountain church of Rocca Pietore from artwork conservation points of view*, **Journal of Cultural Heritage**, 2007, 8 (3) 264-271.
- A6. L. Samek, A. De Maeyer-Worobiec, Z. Spolnik, L. Bencs, V. Kontozova, Ł. Bratasz, R. Kozłowski, R. Van Grieken, *The impact of electric overhead radiant heating on the indoor environment of historic churches*, **Journal of Cultural Heritage**, 2007, 8 (4) 361-369.
- A7. F. Deutsch, J. Vankerkom, L. Janssen, S. Janssen, L. Bencs, R. Van Grieken, F. Fierens, G. Dumont, C. Mensink, *Modelling concentrations of airborne primary and secondary PM₁₀ and PM_{2.5} with the BelEUROS-model in Belgium*, **Ecological Modelling**, 2008, 217 (3-4) 230-239.
- A8. L. Bencs, K. Ravindra, J. de Hoog, E.O. Rasoazany, F. Deutsch, N. Bleux, P. Berghmans, E. Roekens, A. Krata, R. Van Grieken, *Mass and ionic composition of atmospheric fine particles over Belgium and their relation with gaseous air pollutants*, **Journal of Environmental Monitoring**, 2008, 10 (10) 1148-1157.
- A9. B. Horemans, A. Krata, A.J. Buczyńska, A.C. Dirtu, K. Van Meel, R. Van Grieken, L. Bencs, *Major ionic species in size-segregated aerosols and associated gaseous pollutants at a coastal site on the Belgian North Sea*, **Journal of Environmental Monitoring**, 2009, 11 (3) 670-677.
- A10. L. Bencs, A. Krata, B. Horemans, A.J. Buczyńska, A.C. Dirtu, A.F.L. Godoi, R.H.M. Godoi, S. Potgieter-Vermaak, R. Van Grieken, *Atmospheric nitrogen fluxes at the Belgian coast: 2004-2006*, **Atmospheric Environment**, 2009, 43 (24) 3786-3798.
- A11. K. Van Meel, B. Horemans, A. Krata, L. Bencs, A.J. Buczyńska, A.C. Dirtu, A. Worobiec, R. Van Grieken, *Elemental concentrations in aerosols at the Belgian coast versus seasons and air mass trajectories*, **Environmental Chemistry Letters**, 2010, 8 (2) 157-163.
- A12. L. Bencs, K. Ravindra, J. de Hoog, Z. Spolnik, N. Bleux, P. Berghmans, F. Deutsch, E. Roekens, R. Van Grieken, *Appraisal of measurement methods, chemical composition and sources of fine atmospheric particles over six different areas of Northern Belgium*, **Environmental Pollution**, 2010, 158 (11) 3421-3430.

A13. A.G. Mmari, S.S. Potgieter-Vermaak, L. Bencs, R.I. McCrindle, R. Van Grieken, *Elemental and ionic components of atmospheric aerosols and associated gaseous pollutants in and near Dar es Salaam, Tanzania*, **Atmospheric Environment**, 2013, 77, 51-61.

A14. A.C. Dirtu, A.J. Buczyńska, R. Favoreto, A.F.L. Godoi, L. Bencs, S.S. Potgieter-Vermaak, R.H.M. Godoi, R. Van Grieken, L. Van Vaecck, *Methods, fluxes and sources of gas phase alkyl nitrates in the coastal air*, **Environmental Monitoring and Assessment**, 2014, 186 (10) 6445-6457.

A15. L. Bencs, B. Horemans, A.J. Buczyńska, R. Van Grieken, *Uneven distribution of inorganic pollutants in marine air originating from ocean-going ships*, **Environmental Pollution**, 2017, 222, 226-233.

A16. L. Bencs, B. Horemans, A.J. Buczyńska, R. Van Grieken, P. Viaene, N. Veldeman, F. Deutsch, B. Degraeuwe, M. Van Poppel, *Seasonality of atmospheric pollution at the coast and open waters of the Belgian North Sea*, **Atmospheric Environment**, 2017, előkészületben.

A17. L. Bencs, Z. Spolnik, A. De Maeyer-Worobiec, L. Samek, Ł. Bratasz, R. Kozłowski, H.L. Schellen, B.A.H.G. Jütte, R. Van Grieken, *A study on effects of heating on distribution and transport of gaseous air pollutants in urban and mountain churches in Poland*, **Journal of Cultural Heritage**, 2017, előkészületben.

A18. L. Bencs, *A simple method for increasing the temporal resolution of passive diffusive sampling for gaseous air pollutants in remote environments*, **Atmospheric Environment**, 2017, előkészületben.

A19. A.J. Buczyńska, B. Horemans, R. Van Grieken, L. Bencs, *Distribution of PAHs originating from ship emissions over the Belgian North Sea*, **Atmospheric Research**, 2017, előkészületben.

B. Könyv

B1. D. Camuffo, E. Pagan, H. Schellen, D. Limpens-Neilen, R. Kozłowski, L. Bratasz, S. Rissanen, R. Van Grieken, Z. Spolnik, L. Bencs, J. Zajackowska-Kłoda, P. Kłoda, M. Kozarzewski, G. Santi, K. Chmielewski, T. Jütte, A. Haugen, T. Olstad, D. Mohanu, B. Skingley, C. Sáiz-Jiménez, C.J. Bergsten, A. della Valle, Don S. Russo, C. Bon Valsassina, G. Accardo, C. Cacace, E. Giani, A. Giovagnoli, M.P. Nugari, A.M. Pandolci, R. Rinaldi, C. Acidini, C. Danti, A. Aldrovandi, R. Boddi, V. Fassina, L. Dal Prà, F. Raffaelli, R. Bertoncello, P. Romagnoni, M. Camuffo, A. Troi, *Church Heating and the Preservation of the Cultural Heritage – Guide to the Analysis of the Pros and Cons of Various Heating Systems*. (angol és olasz nyelvű; szerkesztő: D. Camuffo), Mondadori Electa S.p.A., Milano, Italy, 2006, (240 oldal).

C. Könyvfejezet

C1. V. Kontozova, Z. Spolnik, A. Worobiec, R. Godoi, R. Van Grieken, F. Deutsch, L. Bencs, *Assessment of air pollutant levels in some European museums and churches*, In: Cultural Heritage Conservation and Environmental Impact Assessment by Non-Destructive Testing and Micro-Analysis. (Szerkesztők: R. Van Grieken és K. Janssens) Taylor and Francis Group, London, 2005. pp. 245-263.

Egyéb, légköri aeroszol témájú referált folyóiratcikkek és könyvfejezetek

D1. L. Bencs, K. Ravindra, R. Van Grieken, *Methods for the determination of platinum group elements originating from the abrasion of automotive catalytic converters*, **Spectrochimica Acta Part B**, 2003, 58 (10) 1723-1755.

D2. K. Ravindra, L. Bencs, R. Van Grieken, *Platinum group elements in the environment and their health risk*, **The Science of the Total Environment**, 2004, 318 (1-3) 1-43.

D3. V. Kontozova-Deutsch, A. Krata, F. Deutsch, L. Bencs, R. Van Grieken, *Efficient separation of acetate and formate by ion chromatography: Application to air samples in a Cultural Heritage environment*, **Talanta**, 2008, 75 (2) 418-423.

D4. M. Stranger, A. Krata, V. Kontozova-Deutsch, L. Bencs, F. Deutsch, A. Worobiec, I. Naveau, E. Roekens, R. Van Grieken, *Monitoring of NO₂ in the ambient air with passive samplers before and after a road reconstruction event*, **Microchemical Journal**, 2008, 90 (2) 93-98.

D5. A. Worobiec, L. Samek, P. Karaszkiwicz, V. Kontozova-Deutsch, E.A. Stefaniak, K. Van Meel, A. Krata, L. Bencs, R. Van Grieken, *A seasonal study of atmospheric conditions influenced by the intensive tourist flow in the Royal Museum of Wavel castle in Cracow, Poland*, **Microchemical Journal**, 2008, 90 (2) 99-106.

D6. A.J. Buczynska, A. Krata, M. Stranger, A.F.L. Godoi, V. Kontozova-Deutsch, L. Bencs, I. Naveau, E. Roekens, R. Van Grieken, *Atmospheric BTEX-concentrations in an area with intensive street traffic*, **Atmospheric Environment**, 2009, 43 (2) 311-318.

D7. A. Krata, V. Kontozova-Deutsch, L. Bencs, F. Deutsch, R. Van Grieken, *Single-run ion chromatographic separation of inorganic and low-molecular-mass organic anions under isocratic elution: Application to environmental samples*, **Talanta**, 2009, 79 (1) 16-21.

D8. D. Alejo, M.C. Morales, V. Nuñez, L. Bencs, R. Van Grieken, P. Van Espen, *Monitoring of tropospheric ozone in the ambient air with passive samplers*, **Microchemical Journal**, 2011, 99 (2) 383-387.

- D9. B. Horemans, C. Cardell, L. Bencs, V. Kontozova-Deutsch, K. De Wael, R. Van Grieken, *Evaluation of airborne particles at the Alhambra monument in Granada, Spain*, **Microchemical Journal**, 2011, 99 (2) 429-438.
- D10. V. Kontozova-Deutsch, F. Deutsch, L. Bencs, A. Krata, R. Van Grieken, K. De Wael, *Optimization of the ion chromatographic quantification of airborne fluorid, acetate and formate in the Metropolitan Museum of Art, New York*, **Talanta**, 2011, 86 (1) 372-376.
- D11. D. Alejo, M.C. Morales, J.B. de la Torre, R. Grau, L. Bencs, R. Van Grieken, P. Van Espen, D. Sosa, V. Nuñez, *Seasonal trends of atmospheric nitrogen dioxide and sulphur dioxide over North Santa Clara, Cuba*, **Environmental Monitoring and Assessment**, 2013, 185 (7) 6023-6033.
- D12. B. Alföldy, J. Balzani Lööv, F. Lagler, J. Mellqvist, N. Berg, J. Beecken, H. Weststrate, J. Duyzer, L. Bencs, B. Horemans, F. Cavalli, J.-Ph. Putaud, G. Janssens-Maenhout, A. Pintér Csordás, R. Van Grieken, A. Borowiak, J. Hjorth, *Measurements of air pollution emission factors for marine transportation in SECA*, **Atmospheric Measurement Techniques**, 2013, 6 (7) 1777-1791.
- D13. W. Anaf, L. Bencs, R. Van Grieken, K. De Wael, K. Janssens, *Indoor particulate matter in four Belgian heritage sites: Case studies on the deposition of dark-colored and hygroscopic particles*, **Science of the Total Environment**, 2015, 506-507 (2) 361-368.
- D14. R.H.M. Godoi, C. Sayama, S.J. Gonçalves Jr., G. Polezer, J.M. Reis Neto, B. Alföldy, R. Van Grieken, C.A. Riedi, C.I. Yamamoto, A.F.L. Godoi, L. Bencs, *Health implications of aerosols from asbestos-bearing road pavements traditionally used in Southern Brazil*, **Environmental Science and Pollution Research**, 2016, 23 (24), 25180-25190.
- D15. L. Bencs, K. Ravindra, R. Van Grieken, *Spatial and temporal variation of anthropogenic palladium in the environment*, In: *Palladium Emissions in the Environment: Analytical Methods, Environmental Assessment and Health Effects* (Szerkesztők: Fathi Zereini, Friedrich Alt) Springer, Berlin, Heidelberg, 2006, Ch. 3.11, pp. 433-454.
- D16. L. Bencs, K. Ravindra, R. Van Grieken, *Determination of ultra-trace levels of palladium in environmental samples by graphite furnace atomic spectrometry techniques*, In: *Palladium Emissions in the Environment: Analytical Methods, Environmental Assessment and Health Effects* (Szerkesztők: Fathi Zereini, Friedrich Alt) Springer, Berlin, Heidelberg, 2006, Ch. 2.9, pp. 173-189.
- D17. L. Bencs, K. Ravindra, R. Van Grieken, *Platinum: Environmental Pollution and Health Effects*, In: *Encyclopedia of Environmental Health*, (Szerkesztő: J.O. Nriagu), Elsevier B.V., Amsterdam, 2011, pp. 580-595.

Idézett irodalom

- Aitken, J., (1888). On the number of dust particles in the atmosphere. *Transactions of the Royal Society of Edinburgh*, 35(1) 1-19.
- Baumbach, G., Vogt, U., Hein, K.R.G, Oluwole, A.F., Ogunsola, O.J., Olaniyi, H.B., Akeredolu, F.A., (1995). Air pollution in large tropical city with high traffic density – results of measurements in Lagos, Nigeria. *Science of the Total Environment*, 169, 25-31.
- Bordass, W., Bemrose, C., *Heating Your Church*. Church House Publishing, London, 1996.
- Brimblecombe, P., (1990). The composition of museum atmospheres. *Atmospheric Environment*, 24B, 1-8.
- Camuffo, D., *Microclimate for Cultural Heritage*, Elsevier, Amsterdam, 1998.
- Camuffo, D., Brimblecombe, P., Van Grieken, R., Busse, H.J., Sturaro, G., Valentino, A., Bernardi, A., Blades, N., Shooter, D., De Bock, L., Gysels, K., Wieser, M., Kim, O., (1999a). Indoor air quality at the Correr Museum, Venice, Italy. *Science of the Total Environment*, 236, 135-152.
- Camuffo, D., Sturaro, G., Valentino, A., Camuffo, M., (1999b). The conservation of artworks and hot air heating systems in churches: Are they compatible? The case of Rocca Pietore, Italian Alps. *Studies in Conservation*, 44, 209-216.
- Corbett, J.J., Fischbeck, P.S., Pandis, S.N., (1999). Nitrogen and sulfur inventories for oceangoing ships. *Journal of Geophysical Research*, 104 (D3), 3457-3470.
- Dockery, D.W., Speizer, F.E., Stram, D.O., Ware, J.H., Spengler, J.D., Ferris, B.G., Jr., (1989). Effects of inhalable particles on respiratory health of children. *American Review of Respiratory Disease*, 139 (3) 587-594.
- Favez, O., Cachier, H., Sciare, J., Alfaro, S.C., El-Araby, T.M., Harhash, M.A., Abdelwahab, M.M., (2008). Seasonality of major aerosol species and their transformation in Cairo megacity. *Atmospheric Environment*, 42, 1503-1506.
- Gatebe, C.K., Tyson, P.D., Annegarn, H.J., Helas, G., Kinyua, A.M., Piketh, S.J., (2001). Characterization and transport of aerosols over equatorial eastern Africa. *Global Biogeochemical Cycles*, 15, 663-672.
- Grosjean, D., Whitmore, P.M., Cass, G.R., Druzik, J.R., (1989). Ozone fading of triphenylmethane colorants – reaction-products and mechanisms. *Environmental Science and Technology*, 23, 1164-1167.
- Intergovernmental Panel on Climate Change - IPCC, (2013). Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Working Group I Contribution to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, New York.
- Jonsson, P., Bennet, C., Eliasson, I., Lindgren, E.S., (2004). Suspended particulate matter and its relations to the urban climate in Dar es Salaam, Tanzania. *Atmospheric Environment*, 38, 4175-4181.
- Kreidenweis, S.M., Petters, M.D., DeMott, P.J., (2008). Single-parameter estimates of aerosol water content. *Environmental Research Letters*, 3, 035002 (7 p).
- Lancelot, C., Wassmann P., Barth H., (1994). Ecology of Phaeocystis-dominated ecosystems. *Journal of Marine Systems*, 5, 1-4.
- Mkoma, S.L., Maenhaut, W., Chi, X., Raes, N., (2009). Characterisation of PM₁₀ atmospheric aerosols for the wet season 2005 at two sites in East Africa. *Atmospheric Environment*, 43, 631-639.
- Raychaudhuri, M.R., Brimblecombe, P., (2000). Formaldehyde oxidation and lead corrosion. *Studies in Conservation*, 45, 226-232.
- Regnier, P., Steefel, C.I., (1999). A high resolution estimate of the inorganic nitrogen flux from the Scheldt estuary to the coastal North Sea during a nitrogen-limited algal bloom, spring 1995. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 63, 1359-1374.
- Satsangi, G.S., Lakhani, A., Khare, P., Singh, S.P., Kumari, K.M., Srivastava, S.S., (2002). Measurements of major ion concentration in settled coarse particles and aerosols at a semiarid rural site in India. *Environment International*, 28, 1-7.
- Shaw, R.W., Rodhe, H., (1982). Non-photochemical oxidation of SO₂ in regionally polluted air during winter. *Atmospheric Environment*, 16, 2879-2888.
- Spokes, L.J., Jickells, T.D., (2005). Is the atmosphere really an important source of reactive nitrogen to coastal waters? *Continental Shelf Research*, 25, 2022-2035.
- Viana, M., Maenhaut, W., Chi, X., Querol, X., Alstuey, A., (2007). Comparative chemical mass closure of fine and coarse aerosols at two sites in south and west Europe: Implications for EU air pollution policies. *Atmospheric Environment*, 41, 315-326.
- Wang, G., Huang, L., Gao, S., Gao, S., Wang, L., (2002). Characterization of water-soluble species of PM₁₀ and PM_{2.5} aerosols in urban area in Nanjing, China. *Atmospheric Environment*, 36, 1299-1307.