

Válasz Dr. Salma Imre professzor, egyetemi tanár, az MTA Doktora bírálatára

Megköszönöm a Professzor Úr részletes és építő bírálatát, dolgozatom pozitív véleményezését, és a kritikai megjegyzéseket, javaslatokat!

A szerkesztési, illetve formai hibákra vonatkozó felvetéseit, illetve javításait köszönettel elfogadom!

A dolgozat szakmai tartalmával kapcsolatos megjegyzéseire, és kérdéseire a következőket válaszolom:

Válaszok/magyarázatok az általános értékelő résznél felvetett problémákra:

- (1) Köszönettel elfogadom a BC-elemzőre (aethalométer) vonatkozó megjegyzéseket! Valóban, ahogy az Oponens is jegyzi, részletesebb kiértékelést lehetett volna végezni a nyers BC adatokkal.

A kezdetben gyártott és forgalomba került, klasszikus aethalométerek (AE-10, AE-11) megvilágító fényforrásként izzólámpát és szélessávú detektorrendszert alkalmaztak, amelyekkel a spektrális érzékenység nem megfelelően pontosan definiált, illetve a mintagyűjtéshez használt kvarcszalag fényszórása erősen befolyásolta a mérési pontosságot. Így akár 10-40%-kal alulbecsült értéket kaptak a nagy korom koncentrációjú levegőből mintavételezett aeroszolra, pl. városi közlekedésből származó dízel-koromra (Weingartner és mtsai, *Aerosol Science*, 2003, 34, 1445-1463). Ez egyrészt annak tulajdonítható, hogy a kvarcszalagon képződő, kisátmérőjű mérési ponton az aeroszol réteg vastagsága a mintavétel során változott a részecske deponáció mértékével, ami az aeroszol réteg elnyelési és szórási tulajdonságait megváltoztatta. Ezen hiba kiküszöbölésére számos metodikabeli változtatást végeztek az aethalométeres technológián. Ilyen például az abszorpciós koeficiens és az aeroszol szórás tekintetbe vételével alkalmazott matematikai korrekció alkalmazása a „nyers” BC mérési adatokra (Weingartner és mtsai, 2003; Virkula és mtsai, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 2007, 57, 10, 1214-1222), az UV-VIS-NIR tartományban hét hullámhosszon megvalósított mérési elrendezés, illetve egy további, referencia mérőpozícióra való aeroszol deponáció és mérés. Két utóbbi mérési metodika gyártói fejlesztés, az újabb kiadású aethalométerekbe (pl. AE-33) már beépítésre került. Jelen az AE-42-es aethalométerrel nyert mérési adataimra nem alkalmaztam külön matematikai korrekciót, mivel döntően kis BC koncentrációkat, a 200-1500 ng/m³ tartományban határoztam meg az Északi-tenger felett. A mintavételezések során az aeroszorból kellően vékony rétegek deponálódtak a poliészter erősítésű kvarcszalagon. Utóbbi az elemzőberendezés közel 70%-os optikai sűrűségénél, illetve telítődésnél automatikusan továbbította. A fenti beállításoknak megfelelően az AE-42-es műszer megfelelően pontos BC értékeket szolgáltatott. Ezt indirekt módon alátámasztják a hajók kipufogógáz emissziójára (tengeri dízelolaj égetésre) alkalmazható diagnosztikai (V/Ni és V/BC) arányok: a hajózási útvonalak mentén jellemzően 1,2-3,0, illetve 2,0-9,4 tartományba eső értéküket figyeltem meg. Az adatok jó egyezést mutatnak a Viana és mtsai

(Environmental Science and Technology, 2009, 43, 7472-7477) által egy földközi-tengeri kikötőre közölt értékekkel, rendre 2-4,1, illetve <8.

- (2) Megköszönöm a beltéri levegő cseréjével kapcsolatos, turbulens diffúziós anyagtranszportra vonatkozó kommenteket!

Egyetértek az Opponens azon megállapításával, hogy a turbulens diffúzió nagyságrendileg nagyobb lehet a molekuláris, dolgozatban egyébként koncentráció diffúzióként említett jelenségnél. Az írásműben említem a turbulens diffúziót, igaz nem a nyomjelző gáznak a beltéri levegőbeli elkeveredése kapcsán, mert megítélésem szerint, nem a legjellemzőbb alkalmazási formája, bár a keveredéshez hozzájárulhat bizonyos körülmények között (pl. beltéri fűtési rendszer üzemeltetésekor). A turbulens diffúziós matematikai közelítésnek sokkal inkább fontos szerepe van az alsó légköri (troposzférikus) szennyező keveredési folyamatok leírásában, mivel itt a szokványos anyagtranszport-egyenletekkel kevésbé pontosan tudjuk leírni a fellépő turbulens áramlást, illetve vonatkozó légszennyező-keveredést. Ezért a korszerű, troposzférikus légkeveredést leíró modellek (pl. BeLEUROS) tartalmaznak egy ilyen programmodult, ahogy azt jegyzem a dolgozat vonatkozó, 3.6. alfejezetében. Zárt, jól szigetelt beltérekben, így például a téglalapépítésű, vakolt falazatú, külső/belső hőhatásnak kevésbé kitett épületekben (mint például a Rocca Pietore-i templom), kikapcsolt fűtőrendszer és a kültéri levegő kismértékű mozgása mellett a turbulens diffúziós áramlás fellépése kevésbé várható, illetve jóval kisebb mértékű. Hozzáteszem, a dolgozat 4.1.1.2. alfejezetében írom „a fűtési rendszer kikapcsolt állapotában abból nem lép fel szívó áramlás, amely a nyomjelző gáz beáramlását segítené, azaz a gáztranszport koncentráció diffúzióval és természetes konvekcióval megy végbe”.

Említést érdemel, hogy az új típusú elektromos betáplálású (pad+szőnyeg) fűtési rendszer esetében a lamináris és a turbulens áramlásra átmeneti határa közötti áramlási profilok figyelhetők meg (Reynolds-szám: ≈ 3500), amely szükségszerűvé teszi a turbulens diffúziós közelítést. Míg a régi típusú, levegő-befúvásos fűtési rendszerénél nagyobb Reynolds-számok (>4000) figyelhetők meg a beltéri légáramlásokra végzett számítások szerint.

Szeretném megjegyezni még, hogy az épületek beltéreiben kialakuló mikroklimának nem csak „évszakos menete várható”, de napi ciklus szerint is változik a beltéri levegő hőmérséklete. Nappal az ablakokon átszűrődő napsugárzás melegítő hatást fejt ki a beltéri levegőre és a falakra, amely befolyásolja a levegő páratartalmát, fokozatosan megnövelve azt a nappali órákban, illetve csökkenést okozva az éjszaka folyamán. Ennek oka döntően a falazat vízpára tároló, „higroszkópiai puffer” képessége. Ennek megfelelően, a beltéri vízpára koncentráció napi ciklusát figyeltem meg a vizsgált Rocca Pietore-i épületben, amit említek a dolgozat 4.1.1.2. alfejezetében. Ehhez kapcsolódik a 22. ábra, amelyen az első 24-órás görbék reprezentálják a természetes napi ciklust, azaz a fűtés üzemeltetése nélküli esetet.

- (3) Valóban, ahogy az Opponens is jegyzi, az épületbe látogató emberek által termelt hő is hozzájárulhat a beltéri levegő felmelegedéséhez, ami 100 W/fő nagyságú nyugalmi tevékenységnél. Megjegyzem, hozzájárulása a beltéri levegő felmelegítéséhez akkor lehet lényeges, a fűtési rendszer működtetése mellett, ha megfelelően nagy számú látogató van jelen. Ilyen eseményekre jó példa az ünnepnapok, amikor a templomépület megtelik emberekkel. Általános esetben feltételezhető, hogy kisszámú, 20-30 látogató esetén azok hozzájárulása elhanyagolható az alkalmazott fűtési rendszerek hőteljesítményéhez képest (tanulmányozott

templomépületeknél: 40-120 kW). Másik megfontolás szerint, a téli időszakban az emberek többrétegű ruházatot viselnek, amely a leadott hőt igyekszik a testkörnyéken megtartani, tehát feltételezhető, hogy ez esetben a környezetfűtő hatásuk még kisebb. A látogatók által leadott hő jelentősége leginkább olyan esetekre érvényes, amikor a fűtési rendszer üzemén kívül van, és a beltéri hőmérséklet komfortos, pl. kedvező klimatikus viszonyok miatt. Ilyen a látogatók általi hőjárulék tapasztalható pl. spanyol templomokban (Varas-Muriel és mtsai, Building and Environment, 2014, 82, 97-100). Természetesen léteznek olyan nagyforgalmú épületek, ahol már alkalmazzák a nagyszámú látogató által leadott hő egy részének csapdázását (hőcserélőkkel), és fűtőhatásának kiaknázását. Ilyen rendszerekre jó példák egyes nagyforgalmú európai pályaudvarok, illetve metróállomások, ahol a tárolt hőt környező épületek fűtéséhez kiegészítő jelleggel alkalmazzák.

- (4) Köszönettel elfogadom a 11. sz. egyenlettel kapcsolatos felvetéseket! Előnyösebb lett volna a „V” és „V pont” szimbólumok helyett más jelzetet alkalmazni, de itt követtem a szakirodalmi ajánlást (Schellen, PhD Dolgozat, 2002), illetve az egyszerűbb matematikai formulát.
- (5) Légköri koncentrációk megadása a medián adatokkal megjegyzést is köszönettel elfogadom!
Ahogy azt az Opponens is írja, a légköri PM tömeg- és összetevő-koncentrációk általában log-normál eloszlásúak. Ezért munkám során az egyes légköri változók adatsoraira vonatkozó medián adatokat is kiszámítottam, de a legtöbb esetben előbbit nem specifikáltam, mivel az nem különbözött lényegesen a megfelelő átlagértéktől. Összességében, vizsgáltam a különböző mért és számított paraméter sorozatok eloszlását, minimum, maximum, átlag, szórás, medián, illetve kvartilis értékeit, hogy teljesebb statisztikai képet kapjak az egyes adatsorokról, illetve változásuk nagyságáról. Ezen értékek összevetésével, továbbá statisztikai próbákkal is összehasonlítást tettem az egyes légköri szennyezők paramétersorának nagysága között, ha ez indokolt volt.
- (6) Köszönettel elfogadom a tanzániai aeroszol tanulmányra vonatkozó megjegyzést! Itt valóban érdekesebb lett volna részletesebb kiértékelést végezni. Azonban dolgozatomban írásakor nagyobb részt követtem a közleményeimben már előzetesen megjelentetett tudományos tartalmat. Megjegyzem, a közelmúltban készítettem egy újabb, Dar es Salaam-i aeroszol témájú tanulmányt, amelyben már egy részletesebb – a hajóemisszió vizsgálatánál alkalmazott – kiértékelési sémát követtem.

Válaszaim az Opponens kérdéseire:

- (1) A Rocca Pietore-i templomépület belterére vonatkozó áramlástanai modellhez, a beltéri hőmérséklet- és áramlási sebességtér kimérését, illetve CFD-szimulációját két másik, a kapcsolódó EC-pályázatban résztvevő kutatócsoport végezte. Ezen vizsgálatok célja az volt, hogy hagyományos és az új-fejlesztésű fűtési rendszer használata során kialakuló, igen eltérő beltéri mikroklímáról képet alkothassunk. Hozzáteszem, ezek a modellek számos egyszerűsítést tartalmaztak a beltéri hőmérséklet és légáramlási viszonyok tekintetében, mégis eléggé jól közelítették a meghatározó hőmérséklet- és sebesség-gradienseket. A CFD szimuláció eredményeit az egyik pályázati résztvevő (Dionne Limpens-Neilen) PhD dolgozatában közli a

kétféle épületfűtési rendszerre, amelyekből jól érzékelhetők a hőeloszlási- és légáramlásbeli különbségek.

A beltéri levegő keringéséről és az esetleges hőforrásokról és hőhidakról további kiegészítő adattal szolgálna a termikus képalkotó eszközök használata. Ilyenre példa a weerti katedrális belterére vonatkozó tanulmány (Henk L. Schellen, PhD dolgozat, 2002). A nyomjelző részecskövetéses sebességmérés („particle tracking velocimetry”), illetve nyomjelző részecskés képalkotó sebességmérés („particle image velocimetry”) módszerek a CFD szimulációval nyert áramlástani kép további finomítását tennék lehetővé. Utóbbi modell közelítés manapság egy igen dinamikus fejlődő területe a beltéri környezetről szóló tanulmányoknak.

Egyetértek a Bíráló azon megjegyzésével is, hogy a NH_3 problémát okoz számos kulturális létesítményben. Ilyen például a nagyterjedésű és több részén nyitott Alhambra palota, Granadában. Vonatkozó tanulmányaim során NH_3 méréseket azonban nem végeztem, mivel az ilyen típusú légszennyezés a Rocca Pietore-i templomépület belterében kevésbé érvényesül. Feltételezhető, mivel a mezőgazdasági aktivitás jellemző a környező területekre, hogy külső NH_3 források kismértékben befolyásolhatják a beltéri levegő minőségét, ha az időjárási viszonyok (szélirány) ezt lehetővé teszik. További megfontolás tárgya lehetne a biomassza égetése, amely ugyancsak forrása lehet a légköri NH_3 -nak. Azonban ezek felderítése már egy másik kutatás, amely további mintagyűjtési kampányokat, mérést, kiértékelést igényelne.

- (2) A háromlépcsős szűrőfokozattal végzett levegő-mintavételezési kísérletekhez kiegészítő, illetve ellenőrző, Berner-, illetve May-impaktoros mintagyűjtést is végeztünk. A mintákat ionkromatográfiás (IC) és elektronmikropróbas (TW-EPMA) módszerekkel elemeztük, abból a célból, hogy az egyes szűrőfokozatok mintázási határfokát meghatározzuk, illetve ellenőrizzük.

További fontos referenciát jelentettek az északi-tengeri modellekből számított szakirodalmi adatok (pl. de Leeuwe és mtsai, Atmospheric Environment, 2003, 37, S145-S165), amelyekkel az oxidált- és a redukált aeroszol nitrogén mennyiségére vonatkozóan tudtam következtetést levonni, illetve összehasonlítást tenni.

- (3) Az Opponens által kérdezett szövegrész a beltéri levegőre számított tartózkodási időket jelenít meg nyomgázokra, illetve pontosítva, becslést ad a nano- illetve a finomaeroszolra vonatkozóan. Nanoaeroszlok (<10 nm aerodinamikai átmérő) esetében a gyorsabb Brown-féle diffúzió, valamint a falazat és diszpergáló közeg hőmérséklete közötti különbségből adódóan nagyobb termoforetikus hatás miatt fennállhat a falhatásnak nevezett jelenség. Ennek megfelelően, a nanoaeroszlok nagyobb mértékű deponációt mutathatnak a beltéri falazaton a finomaeroszolhoz képest. A vonatkozó tanulmányban nem vizsgáltam részletesen a fenti hatásokat, mivel más típusú kísérleteket végeztünk a pályázati terv szerint. Ennek megfelelően, döntően tömbi aeroszolt és a finomaeroszalnál durvább (általában >0,25 μm) részecskéket gyűjtöttünk és elemeztük, pl. IC és EPMA módszerrel, illetve az egyedi részecskék szintjén próbáltuk meghatározni az aeroszol összetételt, és ebből következtetést levonni a megelőző konzerválás szempontjából előnytelen beltéri aeroszol formákra.
- (4) A vizsgált aeroszol-tartományok kiválasztásában a legtöbb tanulmánynál az éppen rendelkezésre álló, illetve alkalmazható mintavevő készlet sokszor határt szabott. Igyekeztünk a mintavevőket a célszerűség szempontjai szerint kiválasztani, úgy, hogy egymást kiegészítő elemanalitikai

vizsgálatokat tudunk végezni az aeroszol összetételre. Az így, komplementer módon nyert információk fontosak az emissziós források azonosításához és járulékok becsléséhez. Így pl. a beltéri levegőben jelenlevő aeroszol részecskék tömbi összetételének meghatározásához TSP mintákat gyűjtöttünk a Berner-impaktoros mintagyűjtés mellett. Hasonlóan, a tanzániai troposzféra tanulmányhoz a TSP-t mintavételeztünk és analizáltunk. Itt fontos cél volt az aeroszolbeli savasság meghatározása, mivel a téma kapcsolódott egy atmoszférikus korrózióval foglalkozó tanulmányhoz. Az északi-tengeri troposzférikus nitrogénvegyületek kiülepedését vizsgáló pályázatnál lényeges volt az aeroszol többfokozatú méret szerinti elválasztása, ugyanakkor egyszerű és gyors mintavételi módszer alkalmazása, mivel nagyszámú mintát kellett gyűjteni és feldolgozni. Például a Berner-impaktoros mintavétel komplexitása, valamint az aeroszol-gyűjtő felületek lényegesen kisebb mérete miatt nehezebb az alkalmazhatóságuk az adott aeroszol elemzési feladathoz. A tengerjáró hajók emissziójával foglalkozó pályázatnál hasonló megfontolást követve, törekedtünk a finom, közepes, és durva aeroszol-frakciók tömegjárulékanak, illetve kémiai összetételének meghatározására.

A légköri aeroszol eltérő méretfrakciójának vizsgálatával képet kaphatunk az azt alkotó aeroszol részecskék összetételéről, képződésének módjáról, fizikai-kémiai viselkedéséről (pl. kémiai reakcióikról, deponálódásuk mértékéről), a várható egészségi hatásokról, emissziós forrásaikról, légkörbeli szállítódásukról, nyelőkéről, a felhőképződésben, illetve a klímaváltozásban játszott szerepükről.

- (5) Az ultrafinom és finom aeroszokok (10-300 nm-es tartományban) légköri részecske koncentrációjának és átlagos mobilitási átmérőjének monitorelvű meghatározásához egy Philips gyártmányú, Aerasense típusú monitort alkalmaztam, kizárólag a hajóemisszióval foglalkozó tanulmány kb. öt kampányhetében. Az eszköz működési elvét tekintve az aeroszol részecskék elektromos diffúziós feltöltésének („diffusion charging”) jelenségén alapul, hasonlóan az ipari elektrosztatikus pernyeleválasztókhoz. Működése során a készülék a környező levegőt kis áramlási sebességgel (0,3-0,4 dm³/min), rövid időtartamok alatt (3 s, vagy 16 s) mintavételezi és az össz-töltésszámot határozza meg adott légtérfogatban. A mintavételezett aeroszol részecskék a készülékbe kerülve, először átáramolnak a „diffúziós feltöltő” egységen, amelyet tű- és hengeralakú elektródapár alkot. Előbbi – viszonylag nagy feszültségre kapcsolt elektróda – körül egy csendes, ún. koronakisülés jön létre, amely lokálisan ionizált levegőt hoz létre, míg az utóbbi, jóval kevésbé előfeszített elektróda árnyékoló funkciót tölt be, úgy, hogy a kisülésről elkeveredő, felesleges elektromos töltést leárnyékolja. Továbbá, az aeroszol részecskéket a henger körüli, külső pályákra kényszeríti, ahol azok az elektromos tér hatására töltést vesznek fel. Ennek nagyságát úgy állítják be, hogy az átlagos részecske töltés arányos legyen annak átlagos átmérőjével. A már elektromosan feltöltött aeroszol részecskék továbbhaladva csapdázódnak az eszköz elektrosztatikus leválasztó (vagy „precipitációs” – EP) egységén, amelyet egy periodikus négyzög-impulzussal vezérelt elektródapár alkot, úgy, hogy a töltött aeroszol részecskéket átengedi, illetve egy részüket az impulzushossznak megfelelő időtartamra csapdázza. Az EP egységről a részecskék a detektorrészbe kerülnek, ahol egy aeroszol szűrőn csapdázódnak. Detektorként egy Faraday-kalitikával kombinált, érzékeny áramerősség-mérő szolgál, amellyel meghatározható a csapdázott, töltött részecskék mennyiségével arányos áramerősség, az azzal arányos részecske koncentráció, így az átlagos mobilitási átmérő megadható. Megjegyzem, az EP

be- és kikapcsolt állapotának megfelelő áramerősségbeli különbség arányos az átlagos aeroszol részecske koncentrációval. Tehát a dolgozatban az elektromos mobilitási átmérő kifejezés használata lett volna a pontosabb.

- (6) A flandriai PM_{2,5} tanulmányban alkalmazott ACPM-5400 típusú, a szerves „elemi” szén aeroszol (EC) és szerves szén aeroszol (OC) monitorozására alkalmas műszert használtam fel a széntartalmú aeroszolak troposzférikus koncentrációjának nyomonkövetéséhez. A műszer, mérési elvét tekintve aeroszol impaktoros gyűjtésen, majd a szénaeroszolak (OC és EC) eltérő hőmérsékleteken történő hőbontásán és oxidációján alapul. Az OC és EC (TC) mennyiségét a szénvegyületekből oxidáció után, kvantitatívan keletkező CO₂ abszorpció elvű mérésével határozza meg.

Az ACPM-es méréseknél előforduló, OC értékeket terhelő, pozitív mintavételi hiba nagysága függ az aeroszol gyűjtő impaktorának tányérhőmérsékletétől és a mintavételi időtől (Matsumoto és mtsai, Atmospheric Environment, 2003, 37, 4713-4717). Az aeroszol gyűjtés alatt alkalmazott kis előhevítési hőmérsékleteknél (<50 °C) a gázfázisú szerves vegyületek (VOC) egy része kondenzálhat a gyűjtőtányéron, ami járuléka pozitív irányú hibát okoz az OC meghatározásakor. További probléma a kis utánhevítési tányérhőmérséklet (pl. <200 °C) alkalmazása, amely nagymértékű, akár 30%-os pozitív hibát eredményezhet, az adszorbeált gázfázisú szénvegyületek (VOC) által, különösen kis légköri OC koncentrációk meghatározásakor. Ez esetben is pozitív irányú mérési eltérés várható a meghatározni kívánt OC (és TC) értékre. Kísérleteim során az optimális előhevítési és utánhevítési tányérhőmérsékletek alkalmazása (rendre 50 °C és 340 °C) a viszonylag nagy OC koncentrációk meghatározásához, valamint a kellően hosszúvá választott mintavételi idő (minimálisan 2 óra) megfelelő közelítésnek bizonyult, hogy a fenti mérési problémákat kiküszöbölje. Megjegyzem még, hogy a mintavételezett aeroszol szűrőkön optikai reflektanciás korom (BC) meghatározásokat is végeztünk. Az így nyert koncentrációtrendek jól közelítik az EC, illetve OC időbeli változását a vizsgált flandriai mintavételi állomásokon.

Negatív irányú mérési hibát okozhat például az ACPM berendezés impaktorának viszonylag nagy alsó vágási átmérője, amely 50%-os a 0,14 µm-es áramlási átmérőjű aeroszokra (ten Brink és mtsai, Atmospheric Environment, 2005, 39, 6255-6259). Ezzel a konstrukciós problémával a készülék csak kis hatékonysággal képes csapdázni az ultrafinom aeroszolt, amely pontos EC- és OC-tartalmának ismerete lényeges az emissziós források azonosítása, aeroszol járulékok meghatározása céljából. Például a fosszilis források, illetve biomassza égetés által emittált EC egy része ezen mérettartományba esik, míg az OC gyakoribb a 0,14 µm-nél durvább aeroszol mérettartományban (pl. Höller és mtsai, Atmospheric Environment, 2002, 36, 1267-1275). Városi aeroszoknál megfigyelhető, hogy már kismértékben távolodva az emissziós forrástól, a kibocsátott részecskék méretbeli eloszlása módosul, eltolódik a nagyobb méretek (pl. finomaeroszol felső tartománya) felé. Az említett méréses technikai hátrányok miatt az alapkiépítésű ACPM-mel az emissziós forrás közelében nyert EC adatok, így az OC/EC arányok is inkább a légköri értékek becslésének tekinthetők.

A forrásmegoszlás meghatározására a légköri aeroszolos szakirodalomban különböző receptor modellezési eljárásokat alkalmaznak. Ilyenekre példa az aeroszol tömeggyensúly számítások, diagnosztikai arányok alkalmazása, a pozitív mátrix faktorozás és a főkomponens elemzés. A

felsorolt módszerek kombinációja alkalmas például a fosszilis és a biomassza égetésből származó aeroszol járulékának meghatározására. Megjegyzem még, hogy modellezett, visszafelé számított légtömeg-pályagörbék, vagy a mintavétellel egyidejűleg regisztrált szélirányok szerinti felbontás alkalmazása mellett osztályozva a mintavételezett aeroszol alkotókat is lehetséges a forrásmegoszlás meghatározása.

Végezetül még egyszer megköszönöm Salma professzor úr építő bírálatát, dolgozatom pozitív véleményezését!

Budapest, 2018. október 30.



Dr. Bencs László