

Egyetemi doktori (PhD) értekezés tézisei
Abstract of PhD Thesis

**IZOTÓPANALITIKAI MÓDSZEREK FEJLESZTÉSE ÉS
ALKALMAZÁSA A LÉGKÖRI FOSSZILIS SZÉNSZENNYEZÉS
VIZSGÁLATÁRA**

**DEVELOPMENT OF ISOTOPE ANALYTICAL METHODS AND
THEIR APPLICATION FOR INVESTIGATION OF ATMOSPHERIC
FOSSIL DERIVED CARBON**

Major István

Témavezető/Supervisor:
Dr. Molnár Mihály



Debreceni Egyetem
Fizikai Tudományok Doktori Iskolája

University of Debrecen
PhD School in Physics

Debrecen, 2017.

Készült

a Debreceni Egyetem Fizikai Tudományok Doktori Iskolája
Fizikai módszerek interdiszciplináris kutatásokban programja keretében
a Magyar Tudományos Akadémia Atommagkutató Intézetben

Prepared in

Physical Methods in the Interdisciplinary Research programme
of the PhD School in Physics of the University of Debrecen, at the
Institute for Nuclear Research, Hungarian Academy of Sciences

Bevezetés

A klímakutatások eredményei alapján a légkörben előforduló széntartalmú anyagok jelentős hatással vannak az éghajlat lokális-globális léptékű változására. A légköri szén-dioxid koncentrációjának növekedése egyre nagyobb tudományos, gazdasági és társadalmi figyelmet kap a globális éghajlatváltozásban betöltött szerepe miatt. A nagyvárosokban kialakuló súlyos „szmoghelyzetek” miatt a légköri aeroszol analitikai vizsgálata is egyre fontosabb. A széntartalmú aeroszol részecskék olyan meghatározó szereplői a légkörnek, amelyek befolyásolják az éghajlat alakulását, a levegő minőségét, valamint káros hatást fejthetnek ki az emberek egészségére. A légköri CO₂ és finom frakciójú széntartalmú aeroszol fajlagos radiokarbon (¹⁴C) koncentrációjának vizsgálata nagyban segíti a lokális és regionális források felderítését, valamint a transzportfolyamatok megértését. A fosszilis és nem fosszilis (modern) eredetű források hozzájárulásainak megválaszolásában a ¹⁴C-es vizsgálatok meghatározó szerepet játszhatnak, ugyanis segítségével a két forrástípus egyértelműen megkülönböztethető. A nyomjelzésen alapuló, számítógépes modellezési vizsgálatokkal kombinált mérési módszerek a jövőben nagy segítséget nyújthatnak a klímaváltozás, valamint a súlyos levegőminőség-romlás pontos okainak kvantitatív jellegű és tudományos igényű felderítésében.

Célkitűzések

Doktori munkámat a Magyar Tudományos Akadémia Atommagkutató Intézet (ATOMKI) Hertelendi Ede Környezetanalitikai Laboratóriumában (HEKAL) végeztem, ahol a légköri CO₂ és széntartalmú aeroszol fosszilis és modern frakcióinak folyamatos és kvantitatív vizsgálatait indítottuk el. Dolgozatom elsődleges célja olyan előkészítő rendszerek és módszerek fejlesztése volt, amelyekkel a gyűjtött légköri CO₂ és aeroszol minták a szénizotópos vizsgálatokhoz alkalmas formába hozhatók. A kidolgozott módszerek felhasználásával további céloom volt, hogy a többéves koncentráció és ¹⁴C-es adatok ismeretében megbecsüljem egy városi környezetben (Debrecen), valamint egy háttérterület két magassági szintjén (Hegyhátsál, 10 m és 115 m) gyűjtött CO₂, valamint a debreceni PM_{2,5} frakciójú széntartalmú aeroszol fosszilis és modern eredetű hozzájárulásait, illetve azok rövid távú szezonálisát és hosszú távú trendjét.

Vizsgálati módszerek

A fosszilis eredetű többlet CO₂ kvantitatív meghatározásához, az alkalmazott modell alapján a cél-, és a referenciaterületen is szükséges mérni a levegő CO₂ koncentrációját és annak fajlagos ¹⁴C koncentrációját. E célból egy nagypontosságú légköri CO₂ mérőállomást építettünk fel és üzemeltünk be a vizsgálni kívánt városi környezetben. A háttér légköri CO₂ megfigyelő állomásra pedig folyamatos működésű ¹⁴C-es mintavevőt telepítettünk, mellyel többéves mintavételi programot hajtottam végre. A gyűjtött légköri mintákból nagy tisztaságú CO₂ gázt nyertünk ki, aminek fajlagos ¹⁴C koncentrációját gázproporcionális számlálás (GPC) technikával határoztuk meg. A mért légköri CO₂, valamint a hozzá tartozó fajlagos ¹⁴C koncentráció adatok felhasználásával a célterületre vonatkozó fosszilis többlet CO₂ koncentráció kiszámítható volt.

A légköri PM_{2,5} frakciójú aeroszol szénizotóp vizsgálataihoz a szisztematikus és folyamatos mintagyűjtést 2010-ben, a légköri CO₂ mintavétellel szinkronizáltan indítottuk el. Az előre kifűtött kvarcszűrőkre gyűjtött aeroszol szén tömegkoncentrációjának meghatározására egy automatizált EA-IRMS alapú módszert honosítottam meg, amit összehasonlítottam a ¹⁴C méréseknél alkalmazott zártcsöves mintaégetési módszerrel. Ez utóbbi előkészítést követően az aeroszoliminták fajlagos ¹⁴C koncentrációját az EnvironMICADAS típusú gyorsító tömegspektrométerrel mértem meg. A ¹⁴C eredmények alapján az alkalmazott modell szerint kvantitatív becslést végeztem a szén fosszilis és modern eredetű frakciójának arányára és tömegkoncentrációjára az aeroszolban.

Új tudományos eredmények

1. Nagy pontosságú légköri CO₂ mérő és ¹⁴C mintavételi állomások létesítése és fenntartása (P1.):

1/a. A Hegyhátsálon működő magastornyos légköri CO₂ háttérállomáson **folyamatos és szisztematikus CO₂ mintavételi programot indítottam el** és tartottam fenn ¹⁴C-es mérésekhez, két különböző magassági szintről (10 m és 115 m). Ez a rendszer 2008 óta folyamatosan havi felbontású háttérterületi ¹⁴C adatokat biztosít a Kárpát-medence és Közép-Európa fosszilis többlet CO₂ terhelés számításához. A mintavételezés és mérés analitikai jellemzőit (bizonytalanság és reprodukálhatóság) meghatároztam.

1/b. Debrecenben, városi környezetben 2008-tól **folyamatos és szisztematikus légköri CO₂ koncentrációmérés és mintavételi programot valósítottam meg** a fosszilis szén vizsgálatokhoz, egy újonnan kifejlesztett, nagy pontosságú légköri mérőállomás segítségével. Az unikális állomás átfogó tesztjeit elvégeztem, a CO₂ koncentrációmérések bizonytalanságát meghatároztam.

2. A többéves CO₂ koncentráció, fajlagos ¹⁴C koncentráció, illetve a fosszilis többlet meghatározása a háttér és a városi levegőben (P2.):

2/a. Többéves, folyamatos CO₂ adatsor mérésével megállapítottam, hogy a városban (debreceni) és a háttérterületen (hegyhátsági) mért **CO₂ koncentráció rövid idejű változása és hosszú távú trendje hasonlóan alakul**. A 2009-es és 2014-es évek között a debreceni levegő éves CO₂ koncentrációja átlagosan +2,6 ppm/éves növekedéssel 406 ppm-ről 419 ppm-re növekedett. A háttérterületen a 10 és 115 m-es szinteken rendre 5 és 13 ppm-mel alacsonyabb éves átlagok figyelhetők meg.

2/b. Mérésekkel megállapítottam, hogy a hegyhátsági háttérterület **levegőjében a ¹⁴C fajlagos koncentrációja ($\Delta^{14}\text{C}$) a vizsgált 6 évben** átlagosan 4-5 ‰/évvel csökkent, a fosszilis kibocsátások hatásaként. A vizsgált debreceni levegő fajlagos ¹⁴C koncentrációja a 2009-es 29 ‰-ről 3 ‰-re csökkent, aminek sebessége hasonló volt a háttérterületen tapasztaltnak. Eredményeim alapján, a háttérterületen mért havi $\Delta^{14}\text{C}$ értékek átlagosan 10-12 ‰-kel magasabbak voltak a városi levegőhöz képest, télen nagyobb, nyáron kisebb különbségek mellett.

2/c. Kimutattam, hogy a hazai háttérállomás 115 m-es szintjén nyáron alig észlelhető a **fosszilis többlet CO₂ szennyezés** a Jungfrau-joch (Svájci Alpok, 3450 m a.s.l.) magashegységi szabad troposzférikus állomáshoz viszonyítva. Jungfrau-joch-hoz képest a 10 m-es szinten a téli fűtési időszakokban átlagosan 5 ppm, nyáron mindössze 2 ppm körüli fosszilis többlet CO₂ koncentráció adódott a teljes 6 éves időszak alatt. A vizsgált városi (Debrecen) eredmények ennek kétszeresét adták, azaz télen átlagosan 11 ppm fosszilis többlet CO₂-t, míg nyáron átlagosan 4 ppm-et. A CO₂ koncentráció különbségek átlagait tekintve megállapítottam, hogy télen a Debreceni CO₂ többlet szinte teljes egészében fosszilis eredetűnek adódik a hegyhátsági 10

m-es szinthez képest (7 ppm-nyi fosszilis az átlagosan 8 ppm-nyi különbségből).

3. A légköri aeroszol minták előkészítésének és mérésének fejlesztése szénizotópos vizsgálatokhoz (P3.):

A PM_{2,5} frakciójú aeroszol zártcsöves, MnO₂-os égetési eljárásának átfogó tesztelésén túl, adaptáltam egy automatizált összes széntartalom mérési módszert (EA-IRMS technika), ami egyben a minták megbízható, on-line szén stabilizotóp-arány mérését is lehetővé teszi. Az EA-IRMS módszert a hagyományos zártcsöves előkészítési módszerrel összemértem, bizonyítottam annak megbízhatóságát és megállapítottam a bizonytalanságot az összes széntartalom és a szén stabilizotóp-arány mérések esetében.

4. A debreceni PM_{2,5} frakciójú aeroszol modern és fosszilis széntartalmának meghatározása többéves folyamatos adatsorral (P4.):

4/a. Többéves, folyamatos méréssel megállapítottam, hogy a debreceni PM_{2,5} frakciójú aeroszol téli/fűtési időszakokra vonatkozó **tömegkoncentrációja** két-háromszorosa volt a nyári átlagos értékeknek a vizsgált 2011 és 2014 közötti években. Ezen belül a **széntartalmú frakció** rendre 27 és 21 %-os részesedéssel szerepel a téli és nyári időszakokban. Az összes szén koncentrációja a fűtési és fűtésnélküli időszakokban rendre 8,5 és 2,8 µg/m³ átlagokat adnak, tehát a téli koncentrációk átlagosan egy háromszoros faktorial magasabbak a nyári értékeknél.

4/b. Eredményeim alapján a debreceni **városi aeroszolban a modern eredetű szén részesedése** átlagosan a téli hónapokban volt a magasabb (78±2 %) minden egyes évben, így **a relatív fosszilis szén hozzájárulás** ezekben a hónapokban kevesebb volt (22±2 %). Kimutattam, hogy a modern szén részesedése a nyári hónapokra lecsökkent (67±2 %), amihez így megnövekedett relatív fosszilis arány társult (33±2 %). A fenti jelenséget a téli fatüzeléssel levegőbe jutó, nagy mennyiségű modern szén hatásával magyarázom, amire számos nemzetközi példa is utal. Megállapítottam, hogy **a modern eredetű frakció téli átlagos tömegkoncentrációja** akár három-öttszöröse, míg **a fosszilis szén téli tömegkoncentrációja** csupán két-háromszorosa a nyárra jellemző átlagértékeknek.

Introduction

Based on the results of climate investigations, the various types of carbonaceous materials present in the atmosphere have a significant influence on the local-global changes of climate. The rising concentration of atmospheric CO₂ is getting larger scientific, social and economic attention due to its role in global climate change. Investigations of atmospheric aerosol are becoming increasingly significant due to the serious haze events forming around large cities. Carbonaceous aerosol particles are dominant constituents of the atmosphere which also influence climate change and the quality of the air, moreover, have an adverse effect on the human health. The radiocarbon-based (¹⁴C) investigation of atmospheric CO₂ gas and fine-fraction carbonaceous aerosol can help in identifying local and regional contributors and, moreover, support understanding the transport processes. In research on the magnitude of fossil and non-fossil (modern) contributions, radiocarbon measurements have played a significant role, since these two types of sources can obviously be differentiated through its application. Tracing methods combined with large-scale model experiments may offer tremendous support to the scientific reconstruction of the exact reasons of the climate change and decline of air quality.

Objectives

I conducted my PhD studies at the Hertelendi Laboratory of Environmental Studies (HEKAL), Institute for Nuclear Research (ATOMKI), Hungarian Academy of Sciences, where we initiated the quantitative investigations of the fossil and modern fractions of atmospheric CO₂ gas and PM_{2.5} carbonaceous aerosol. The primary aim of my thesis was the development of sample preparation systems and methods by which the collected atmospheric CO₂ and carbonaceous aerosol samples can be converted to a form suitable for carbon isotopic measurements. Using these methods, my other objective was to estimate the contribution of fossil and modern fractions being present in the CO₂ gas collected in the urban environment of Debrecen and at two levels at a background site (115 m and 10 m, Hegyhátsál) and to evaluate their short-term seasonality and long-term trends. I had the same purposes for the study of atmospheric carbonaceous aerosol samples collected in Debrecen.

Materials and methods

For calculation of concentration of fossil derived CO₂ surplus, according to the applied model, the concentration of atmospheric CO₂ and its specific ¹⁴C content have to be measured at both the investigated and the reference sites. With this purpose, a high precision atmospheric CO₂ measuring system was designed and established in Debrecen for long-term observation. Additionally, two ¹⁴C samplers were installed at the Hegyhátsál background atmospheric CO₂ monitoring station where I performed a long-term sampling program. From the collected atmospheric samples, high purity CO₂ gas was extracted, where the specific ¹⁴C content was measured by conventional gas proportion counting (GPC) technique. Using the absolute atmospheric CO₂ concentration and its specific ¹⁴C content, the relative fossil CO₂ surplus concentrations from both Debrecen and Hegyhátsál could be calculated based on a simplified model.

For the carbon isotopic investigations of atmospheric PM_{2.5} aerosol, continuous sample collection synchronized with the CO₂ sampling started in 2010. For determination of mass concentration of carbonaceous aerosol present on the filters, I adapted an EA-IRMS-based method and I compared it to a sealed-tube MnO₂ sample combustion method which has been applied for the ¹⁴C measurements. Following the sample treatment, the CO₂ gas obtained from the aerosol sample was converted to solid graphite form and I measured its specific ¹⁴C activity using the EnvironMICADAS accelerator mass spectrometer (AMS). Based on the ¹⁴C results, according to the applied model, I estimated quantitatively the ratio and mass concentration of the fossil and modern fractions of carbon being present in the aerosols.

New scientific results

1. Establishment and maintenance of high precision atmospheric CO₂ measuring and ¹⁴C-sampling stations (P1.):

1/a. At two elevations (10 m and 115 m) of the high tower atmospheric background site of Hegyhátsál, I initiated and maintained a continuous and systematical CO₂ sampling program for ¹⁴C investigations. This system has been providing continuous high resolution background ¹⁴C data for the calculation of fossil CO₂ surplus for the Carpathian Basin and Central Europe

since 2008. I determined the analytical characteristics (reproducibility and accuracy) of the sampling and measurement processes.

1/b. Since 2008, I completed a continuous and systematic CO₂ measuring and sampling program for the fossil carbon investigations in the urban environment of Debrecen, by means of a newly-designed high-precision atmospheric CO₂ station. I performed comprehensive tests of the station and determined the accuracy of the CO₂ concentration measurements.

2. Determination of inter-annual CO₂ concentration, specific ¹⁴C content and fossil CO₂ surplus in the background and urban air (P2.):

2/a. Based on the six-year-long, continuous CO₂ dataset, I established that the short-term variation and long-term trend of the CO₂ concentration measured at the urban and the background site are very similar. The annual mean concentration of CO₂ increased from 406 ppm to 419 ppm with an average growth of 2.6 ppm per year between 2009 and 2014. At the 10 and 115 m elevation of the background site, lower concentrations of 5 and 13 ppm were observed, respectively.

2/b. By means of measurements I determined that the specific ¹⁴C content in the air of the background site Hegyhátsál continuously decreased in the investigated six years by the annual mean value of 4-5 ‰, due to fossil emissions. The specific ¹⁴C concentration ($\Delta^{14}\text{C}$) in the air of Debrecen decreased from 29 ‰ to 3 ‰ between 2009 and 2014. The rate of decrease was similar to the one measured at Hegyhátsál. Based on my results, the monthly $\Delta^{14}\text{C}$ values measured for the background site were on average 10-12 ‰ higher relative to the parallel investigated urban air, presenting higher differences in the winter and lower differences in the summer periods.

2/c. I found that any fossil CO₂ surplus could hardly be observed at the 115 m elevation of Hegyhátsál relative to the free tropospheric mountain reference site of Jungfrauoch (3450 m a.s.l., The Swiss Alps). At the 10 m elevation relative to Jungfrauoch, an average fossil CO₂ surplus of 5 and 2 ppm could be observed in the winter and summer periods for the six-year-long period, respectively. The fossil surplus results measured in the urban air were 2 times higher namely 11 ppm in winter compared to 4 ppm in summer. Considering the means of the absolute CO₂ differences in Hungary, I determined that the

CO₂ excess concentration observed in Debrecen relative to the 10 m elevation of Hegyhátsál has almost an entirely fossil origin (7 ppm fossil in the 8 ppm excess) during winter times.

3. Development of preparation and measuring of atmospheric aerosol samples for carbon isotopic analyses (P3.):

In addition to the comprehensive testing of the sealed tube MnO₂ combustion method of the fine aerosol, I adapted an automated measurement method (EA-IRMS technique) suitable for the total carbon determination of aerosols. This enables reliable and online stable isotopic ratio measurements of the samples. I compared the new EA-IRMS method with the sealed tube combustion method; I proved its reliability and determined the accuracy of the total carbon and carbon stable isotopic ratio measurements.

4. Determination of the modern and fossil carbon content in the PM_{2.5} aerosol of Debrecen, based on an inter-annual dataset (P4.):

4/a. By means of an inter-annual dataset I determined that the mass concentration of PM_{2.5} in winter was two or three times as high as in the summer times between the investigated years of 2011 and 2014. The carbonaceous fraction made up 27 and 21 % of the aerosol in winter and summer, respectively. The mass concentrations of total carbon were 8.5 and 2.8 µg m⁻³ in the heating and heating-free periods, respectively; therefore the values of winters are on average 3 times higher than the summer values.

4/b. Based on my results, the mass concentration of modern fraction in urban aerosol of Debrecen was on average higher in the heating periods (mean of 78±2 %), hence the relative fossil contribution was lower (22±2 %) in these months. In each year, the modern carbon fraction decreased by the summer period (67±2 %) accompanying higher relative fossil fractions (33±2 %). I explain this phenomenon by the effect of huge amount of modern carbon is released into the air by winter wood burning; this effect is supported by international research. I determined that the mass concentration of the modern carbon in the heating periods can be three or five times higher than in summer. In contrast, the wintertime mass concentration of the fossil fraction is just two or three times higher than the summertime average.

Publikációs jegyzék

Az értekezés témakörében megjelent tudományos közlemények Scientific papers related to the dissertation

Referált folyóiratban megjelent publikációk Publications in referred journals

- P1. M. Molnár, L. Haszpra, É. Svingor, **I. Major**, I. Švetlík. *Atmospheric fossil fuel CO₂ measurement using a field unit in a Central European city during the winter of 2008/09*. Radiocarbon 52 (2010) 2-3: 835-875. **IF: 2,703**²⁰¹⁰
- P2. M. Molnár, **I. Major**, L. Haszpra, I. Švetlík, É. Svingor, M. Veres. *Fossil fuel CO₂ estimation by atmospheric ¹⁴C measurements and CO₂ mixing ratios in the city of Debrecen, Hungary*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 286 (2010) 2: 471-476. **IF: 0,777**²⁰¹⁰
- P3. **I. Major**, B. Gyökös, M. Túri, I. Futó, Á. Filep, A. Hoffer, E. Furu, A. J. T. Jull, M. Molnár. *Evaluation of an automated EA-IRMS method for total carbon analysis of atmospheric aerosol at HEKAL*. Journal of Atmospheric Chemistry. (2017). DOI 10.1007/s10874-017-9363-y (online elérhető) **IF: 1,550**²⁰¹⁶
- P4. **I. Major**, E. Furu, L. Haszpra, Zs Kertész, M. Molnár. *One-year-long continuous and synchronous data set of fossil carbon in atmospheric PM_{2.5} and carbon dioxide in Debrecen, Hungary*. Radiocarbon 57 (2015) 5: 991-1002. **IF: 4,565**²⁰¹⁵

Egyéb publikációk Other publications

1. Molnár M., **Major I.**, Haszpra L. *Módszerfejlesztés a légköri széndioxid emberi eredetű hányadának meghatározására*. V. Kárpát-medencei Környezettudományi Konferencia, 2009. március 29-31, Kolozsvár. Szerk.: Mócsy Ildikó, Szacsvai Kinga, Urák István, Zsigmond Andrea Rebeka. Ábel Kiadó (2009) 439-444.

2. Molnár M., Haszpra L., **Major I.**, Svingor É., Veres M. *Development of a mobile and high-precision atmospheric CO₂ monitoring station.* European Geosciences Union (EGU) General Assembly 2009. Vienna, Austria, 19-24 April 2009. Proceedings. Geophysical Research Abstracts CD-ROM 11 (2009) 10271-10271.
3. **I. Major**, E. Furu, R. Janovics, I. Hajdas, Zs. Kertész, M. Molnár. *Method development for the ¹⁴C measurement of atmospheric aerosol.* Acta Physica Debrecina 46 (2012) 83-95.
4. **Major I.**, Bán S., Balogh Cs., Molnár M. *Magas aeroszol koncentrációjú időszakokban gyűjtött minták C-14 vizsgálata.* 11. Magyar Aeroszol Konferencia. Debrecen, 2013. október 28-30. Előadások. Eds: Kertész Zs., Szikszai Z., Angyal A., Furu E., Szoboszlai Z., Török Z. Debrecen, MTA Atommagkutató Intézete 0 (2013) 64-65.
5. **Major I.**, Vodila G., Furu E., Kertész Zs., Haszpra L., Hajdas I., Molnár M. *Development of radiocarbon-based methods to investigate atmospheric fossil carbon pollution.* European Geosciences Union (EGU) General Assembly 2013. Vienna, Austria, 7-12 April, 2013. Proceedings. Geophysical Research Abstracts CD-ROM 15 (2013) 7648 (1).
6. **Major I.**, Gyökös B., Furu E., Futó I., Horváth A., Kertész Zs., Molnár M. *Szezonális légköri aeroszol szénizotóp összetétel változások Debrecenben.* 10. Kárpát-medencei Környezettudományi Konferencia. Kolozsvár, Románia, 2014. március 27-29. Szerk.: Mócsy Ildikó, Szacsvai Kinga, Urák István, Zsigmond Andrea Rebeka. Ábel Kiadó (2014) 439-444.
7. **Major I.**, Gyökös B., Filep Á., Futó I., Hitzemberger R., Molnár M. *Elemanalizátorral csatolt tömegspektrométeres minta előkészítési és mérési módszer fejlesztése légköri aeroszol teljes széntartalmának meghatározására.* 12. Magyar Aeroszol Konferencia. Szeged, 2015. március 18-20. Szerk.: Filep Á. etc. Szeged, MTA-SZTE Fotoakusztikus Kutatócsoport 0 (2015) 22-23.
8. **Major I.**, Gyökös B., Turi M., Futó I., Filep Á., Hoffer A., Molnár M.: *Testing of an automated online EA-IRMS method for fast and simultaneous carbon content and stable isotope measurement of aerosol samples.* European Geosciences Union (EGU) General Assembly 2016.

Vienna, Austria, 17-22 April, 2016. Proceedings. Geophysical Research Abstracts 18 (2016) 3843.

Egyéb, a dolgozat témaköréhez szorosan nem kapcsolódó publikációk **Other publications**

Referált folyóiratban megjelent publikációk *Publications in referred journals*

1. Z. Szikszai, Zs. Kertész, E. Bodnár, **I. Major**, I. Borbíró, Á. Z. Kis, J. Hunyadi. *Nuclear microprobe investigation of the penetration of ultrafine zinc oxide into intact and tape-stripped human skin*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 268 (2010) 2160-2163. **IF: 1,042**²⁰¹⁰
2. M. Molnár, R. Janovics, **I. Major**, J. Orsovski, R. Gönczi, M. Veres, A. G. Leonard, S. M. Castle, T. E. Lange, L. Wacker, I. Hajdas, A. J. T. Jull. *Status report of the new AMS C-14 preparation lab of the Hertelendi Laboratory of Environmental Studies, Debrecen. Hungary*. Radiocarbon 55 (2013) 2-3: 665-676. **IF: 1,037**²⁰¹³
3. L. Rinyu, M. Molnár, **I. Major**, T. Nagy, Á. Kimák, M. Veres, L. Wacker, H. A. Synal. *Optimization of sealed tube graphitization method for environmental C-14 studies using MICADAS*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 294 (2013) 1: 270-275. **IF: 1,186**²⁰¹³
4. I. Salma, Z. Németh, T. Weidinger, W. Maenhaut, M. Claeys, M. Molnár, **I. Major**, T. Ajtai, N. Utry, Z. Bozóki. *Source apportionment of carbonaceous chemical species to fossil fuel combustion, biomass burning and biogenic emissions by a coupled radiocarbon-levoglucosan marker method*. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions. doi:10.5194/acp-2017-406, (2017). Folyóirathoz benyújtva

Egyéb publikációk *Other publications*

1. R. Janovics, M. Molnár, I. Svetlik, **I. Major**, L. Wacker. *Advanced in radiocarbon measurement of water samples*. Acta Physica Debrecina 45 (2011) 58-68.

2. M. Molnár, L. Rinyu, R. Janovics, I. **Major**, M. Veres. *Az új debreceni C-14 AMS laboratórium bemutatása*. Archeometriai Műhely 9 (2012) 147-160.
3. **I. Major**, M. Molnár, A. J. T. Jull, M. Veres: *Pre-treatment of archaeological bone samples for ¹⁴C measurement in the Hertelendi Laboratory*. Acta Physica Debrecina 47 (2013) 95-107.
4. Molnár M., Koltai G., **Major I.**, Orsovski G., Siklósy Z., Leél-Őssy Sz., Török Zs., Kertész Zs., Svetlik I. *A Baradla-barlangban a cseppkövekre kirakódott korom vizsgálatának tanulságai*. 11. Magyar Aeroszol Konferencia. Debrecen, 2013. október 28-30. Előadások. Eds: Kertész Zs., Szikszai Z., Angyal A., Furu E., Szoboszlai Z., Török Z. Debrecen, MTA Atommagkutató Intézete 0 (2013) 66-67.
5. M. Molnár, **I. Major**, A. J. T. Jull. „*Clock in the rock*”- *in-situ C-14 rock surface exposure dating applications*. 10. Kárpát-medencei Környezettudományi Konferencia. Kolozsvár, Románia, 2014. március 27-29. Szerk.: Mócsy Ildikó, Szacsvai Kinga, Urák István, Zsigmond Andrea Rebeka. Ábel Kiadó (2014) 439-444.
6. Kiss V., Fábíán Sz., Hajdu T., Köhler K., Kulcsár G., **Major I.**, Szabó G. *Contributions to the relative and absolute chronology of the Early and Middle Bronze Age in Western Hungary based on radiocarbon dating of human bones*. International Colloquium from Targu Mures on Bronze Age Chronology in the Carpathian Basin. Targu Mures, Romania, 2-4 Oct., 2014. Proceedings. Eds: Németh R.E et al. Targu Mures, MEGA (Bibliotheca Musei Marisiensis. Seria Archaeologica VIII) 0 (2015) 23-36.
7. **Major I.**, Furu E., Somodi G., Kertész Zs., Molnár M. *Debreceni aeroszolminták 3 évet átfogó szerves és elemi széntartalom meghatározása thermo-optikai módszerrel*. 13. Magyar Aeroszol Konferencia. Pécs, 2017. április 19-20. Szerk.: Schmeller G. Pécs 0 (2017) 59-60.

Teljes listák:

<http://w3.atomki.hu/p2/authors/aut18680.htm>

<http://w3.atomki.hu/p2/authorso/aut18680.htm#Table>



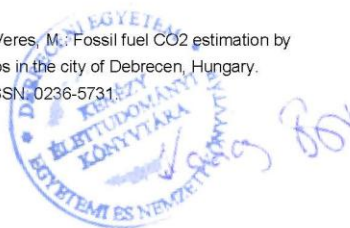
Nyilvántartási szám: DEENK/187/2017.PL
Tárgy: PhD Publikációs Lista

Jelölt: Major István
Neptun kód: GOMJC7
Doktori Iskola: Fizikai Tudományok Doktori Iskola
MTMT azonosító: 10018375

A PhD értekezés alapjául szolgáló közlemények

Idegen nyelvű tudományos közlemények külföldi folyóiratban (4)

1. **Major, I.**, Gyökös, B., Túri, M., Futó, I., Filep, Á., Hoffer, A., Furu, E., Jull, A. J. T., Molnár, M.:
Evaluation of an automated EA-IRMS method for total carbon analysis of atmospheric aerosol at HEKAL.
J. Atmos. Chem. [Epub], 1-12, 2017. ISSN: 0167-7764.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1007/s10874-017-9363-y>
IF: 1.681 (2016)
2. **Major, I.**, Furu, E., Haszpra, L., Kertész, Z., Molnár, M.: One-year-long continuous and synchronous data set of fossil carbon in atmospheric PM2.5 and carbon dioxide in Debrecen, Hungary.
Radiocarbon. 57 (5), 991-1002, 2015. ISSN: 0033-8222.
DOI: http://dx.doi.org/10.2458/azu_rc.57.18191
IF: 4.565
3. Molnár, M., Haszpra, L., Svingor, É., **Major, I.**, Svétlik, I.: Atmospheric fossil fuel CO₂ measurement using a field unit in a Central European city during the winter of 2008/09.
Radiocarbon. 52 (2-3), 835-845, 2010. ISSN: 0033-8222.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1017/S0033822200045859>
IF: 2.703
4. Molnár, M., **Major, I.**, Haszpra, L., Svétlik, I., Svingor, É., Veres, M.: Fossil fuel CO₂ estimation by atmospheric ¹⁴C measurement and CO₂ mixing ratios in the city of Debrecen, Hungary.
J. Radioanal. Nucl. Chem. 286 (2), 471-476, 2010. ISSN: 0236-5731.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1007/s10967-010-0791-2>
IF: 0.777





További közlemények

Idegen nyelvű, külföldi könyvrészletek (1)

5. Kiss, V., Fábrián, S., Hajdu, T., Köhler, K., Kulcsár, G., **Major, I.**, Szabó, G.: Contributions to the relative and absolute chronology of the Early and Middle Bronze Age in Western Hungary based on radiocarbon dating of human bones.
In: Bronze Age Chronology in the Carpathian Basin : proceedings of the International Colloquium from Târgu Mureş : 2-4 October 2014. Ed.: by Rita E. Németh, Rezi Botond, Mega, Cluj-Napoca, 23-36, 2015, (Bibliotheca Mvsei Marisiensis. Seria Archaeologica ; 8.) ISBN: 9786065436848

Magyar nyelvű közlemények hazai folyóiratban (1)

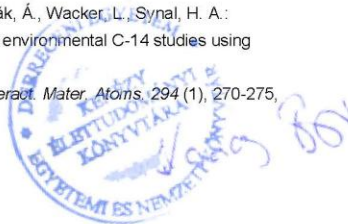
6. Molnár, M., Rinyu, L., Janovics, R., **Major, I.**, Veres, M.: Az új debreceni C-14 laboratórium bemutatása.
Archeom. Műh. 9, 147-160, 2013. ISSN: 1786-271X.

Idegen nyelvű közlemények hazai folyóiratban (3)

7. **Major, I.**, Molnár, M., Timothy Jull, A. J., Veres, M.: Pre-treatment of archaeological bone samples for ¹⁴C measurement in the Hertelendi Laboratory.
Acta Phys. Debr. 47 (1), 95-107, 2013. ISSN: 1789-6088.
8. **Major, I.**, Furu, E., Janovics, R., Hajdas, I., Kertész, Z., Molnár, M.: Method development for the ¹⁴C measurement of atmospheric aerosols.
Acta Phys. Debr. 46, 83-95, 2012. ISSN: 1789-6088.
9. Janovics, R., Molnár, M., Svétlik, I., **Major, I.**, Wacker, L.: Advances in radiocarbon measurement of water samples.
Acta Phys. Debr. 45 (58), 58-68, 2011. ISSN: 1789-6088.

Idegen nyelvű közlemények külföldi folyóiratban (3)

10. Rinyu, L., Molnár, M., **Major, I.**, Nagy, T., Veres, M., Kimák, Á., Wacker, L., Sýnal, H. A.: Optimization of sealed tube graphitization method for environmental C-14 studies using MICADAS.
Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B-Beam Interact. Mater. Atoms. 294 (1), 270-275, 2013. ISSN: 0168-583X.
IF: 1.186





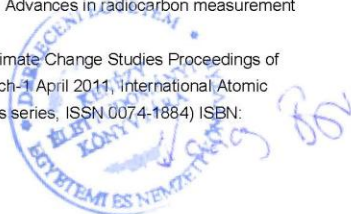
11. Molnár, M., Janovics, R., **Major, I.**, Orsovskí, J., Gönczi, R., Veres, M., Leonard, A. G., Castle, S. M., Lange, T. E., Wacker, L., Hajdas, I., Jull, A. J. T.: Status report of the new AMS C-14 sample preparation lab. of the Hertelendi Laboratory of Environmental Studies, Debrecen, Hungary.
Radiocarbon. 55 (2-3), 665-676, 2013. ISSN: 0033-8222.
IF: 1.037
12. Szikszai, Z., Kertész, Z., Bodnár, E., **Major, I.**, Borbíró, I., Kiss, Á. Z., Hunyadi, J.: Nuclear microprobe investigation of the penetration of ultrafine zinc oxide into intact and tape-stripped human skin.
Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B-Beam Interact. Mater. Atoms. 268 (11-12), 2160-2163, 2010. ISSN: 0168-583X.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2010.02.040>
IF: 1.042

Magyar nyelvű konferencia közlemények (2)

13. **Major, I.**, Gyökös, B., Furu, E., Futó, I., Horváth, A., Kertész, Z., Molnár, M.: Szezonális légköri aeroszol szénizotóp összetétel változások Debrecenben.
In: X. Kárpát-medencei környezettudományi konferencia. Szerk.: Zsigmond Andrea, Szigyártó Lídia, Ábel K., Kolozsvár, 266-270, 2014
14. Molnár, M., **Major, I.**, Haszpra, L.: Módszerfejlesztés a légköri szén-dioxid emberi eredetű hányadának meghatározására.
In: V. Kárpát-medencei Környezettudományi Konferencia : 2009. március 26-29., Kolozsvár.
Szerk.: Mócsy Ildikó, [et al], Ábel, Kolozsvár, 439-444, 2009, (ISSN 1842-9815)

Idégen nyelvű konferencia közlemények (2)

15. Molnár, M., **Major, I.**, Timothy Jull, A. J.: Clock in the rock" - In-situ C-14 rock surface exposure dating applications.
In: X. Kárpát-medencei környezettudományi konferencia. Szerk.: Zsigmond Andrea, Szigyártó Lídia, Ábel K., Kolozsvár, 91-95, 2014
16. Janovics, R., Molnár, M., Svétlik, I., **Major, I.**, Wacker, L.: Advances in radiocarbon measurement of water samples.
In: Isotopes in Hydrology, Marine Ecosystems and Climate Change Studies Proceedings of the International Symposium held in Monaco, 27 March-1 April 2011, International Atomic Energy Agency, Vienna, 369-376, 2013, (Proceedings series, ISSN 0074-1884) ISBN: 9789201356109





Magyar nyelvű absztrakt kiadványok (3)

17. **Major, I.**, Furu, E., Somodi, G., Kertész, Z., Molnár, M.: Debreceni aeroszolminták 3 évet átfogó szerves és elemi széntartalom meghatározása thermo-optikai módszerrel.
In: A XIII. Magyar Aeroszol Konferencia előadás-kivonatai. Szerk.: Schmeller Gabriella, Pécsi Tudományegyetem, Pécs, 59-60, 2017. ISBN: 9789634291275
18. **Major, I.**, Gyökös, B., Filep, Á., Futó, I., Hitzemberger, R., Molnár, M.: Elemanalízátorral csatolt tömegspektrométeres minta előkészítési és mérési módszer fejlesztése légköri aeroszol teljes széntartalmának meghatározására.
In: A XII. Magyar Aeroszol Konferencia előadás-kivonatai. Szerk.: Filep Ágnes, Mucsiné Égerházi Lilla, Szegedi Tudományegyetem, Szeged, 22-23, 2015. ISBN: 9789633063644
19. **Major, I.**, Bán, S., Balogh, C., Molnár, M.: Magas aeroszol koncentrációjú időszakokban gyűjtött minták C-14 vizsgálata.
In: XI. Magyar Aeroszol Konferencia : programok és előadáskivonatok: Debrecen 2013. október 28-30, MTA Atommagkutató Intézet, Debrecen, 64-65, 2013. ISBN: 9789638321503

Idegen nyelvű absztrakt kiadványok (3)

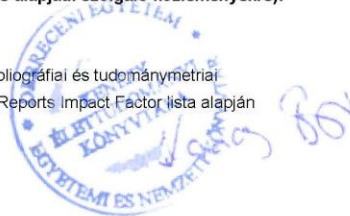
20. **Major, I.**, Gyökös, B., Tűri, M., Futó, I., Filep, Á., Hoffer, A., Molnár, M.: Testing of an automated online EA-IRMS method for fast and simultaneous carbon content and stable isotope measurement of aerosol samples.
Geophys. Res. Abstr. 18 (1), 3843, 2016. EISSN: 1607-7962.
21. **Major, I.**, Vodila, G., Furu, E., Kertész, Z., Haszpra, L., Hajdas, I., Molnár, M.: Development of radiocarbon-based methods to investigate atmospheric fossil carbon pollution.
Geophysical Research Abstracts. 15 (1), 7648, 2013. ISSN: 1029-7006.
22. Molnár, M., Haszpra, L., **Major, I.**, Svingor, É., Veres, M.: Development of a mobile and high-precision atmospheric CO₂ monitoring station.
Geophysical Research Abstracts. 11 (1), 10271-10271, 2009. ISSN: 1029-7006.

A közlő folyóiratok összesített impact faktora: 12,991

A közlő folyóiratok összesített impact faktora (az értekezés alapjául szolgáló közleményekre): 9,726

A DEENK a Jelölt által az iDEa Tudóstérbe feltöltött adatok bibliográfiai és tudományometriai ellenőrzését a tudományos adatbázisok és a Journal Citation Reports Impact Factor lista alapján elvégezte.

Debrecen, 2017.06.19.





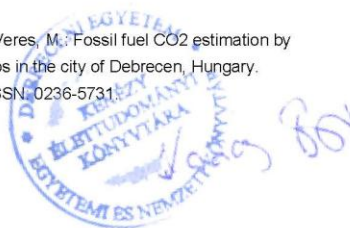
Registry number: DEENK/187/2017.PL
Subject: PhD Publikációs Lista

Candidate: István Major
Neptun ID: GOMJC7
Doctoral School: Doctoral School of Physics
MTMT ID: 10018375

List of publications related to the dissertation

Foreign language scientific articles in international journals (4)

1. **Major, I.**, Gyökös, B., Túri, M., Futó, I., Filep, Á., Hoffer, A., Furu, E., Jull, A. J. T., Molnár, M.: Evaluation of an automated EA-IRMS method for total carbon analysis of atmospheric aerosol at HEKAL.
J. Atmos. Chem. [Epub], 1-12, 2017. ISSN: 0167-7764.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1007/s10874-017-9363-y>
IF: 1.681 (2016)
2. **Major, I.**, Furu, E., Haszpra, L., Kertész, Z., Molnár, M.: One-year-long continuous and synchronous data set of fossil carbon in atmospheric PM2.5 and carbon dioxide in Debrecen, Hungary.
Radiocarbon. 57 (5), 991-1002, 2015. ISSN: 0033-8222.
DOI: http://dx.doi.org/10.2458/azu_rc.57.18191
IF: 4.565
3. Molnár, M., Haszpra, L., Svingor, É., **Major, I.**, Svétlik, I.: Atmospheric fossil fuel CO₂ measurement using a field unit in a Central European city during the winter of 2008/09.
Radiocarbon. 52 (2-3), 835-845, 2010. ISSN: 0033-8222.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1017/S0033822200045859>
IF: 2.703
4. Molnár, M., **Major, I.**, Haszpra, L., Svétlik, I., Svingor, É., Veres, M.: Fossil fuel CO₂ estimation by atmospheric ¹⁴C measurement and CO₂ mixing ratios in the city of Debrecen, Hungary.
J. Radioanal. Nucl. Chem. 286 (2), 471-476, 2010. ISSN: 0236-5731.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1007/s10967-010-0791-2>
IF: 0.777





List of other publications

Foreign language international book chapters (1)

5. Kiss, V., Fábrián, S., Hajdu, T., Köhler, K., Kulcsár, G., **Major, I.**, Szabó, G.: Contributions to the relative and absolute chronology of the Early and Middle Bronze Age in Western Hungary based on radiocarbon dating of human bones.
In: Bronze Age Chronology in the Carpathian Basin : proceedings of the International Colloquium from Târgu Mureş : 2-4 October 2014. Ed.: by Rita E. Németh, Rezi Botond, Mega, Cluj-Napoca, 23-36, 2015, (Bibliotheca Mvsei Marisiensis. Seria Archaeologica ; 8.) ISBN: 9786065436848

Hungarian scientific articles in Hungarian journals (1)

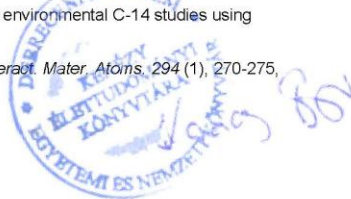
6. Molnár, M., Rinyu, L., Janovics, R., **Major, I.**, Veres, M.: Az új debreceni C-14 laboratórium bemutatása.
Archeom. Műh. 9, 147-160, 2013. ISSN: 1786-271X.

Foreign language scientific articles in Hungarian journals (3)

7. **Major, I.**, Molnár, M., Timothy Jull, A. J., Veres, M.: Pre-treatment of archaeological bone samples for 14C measurement in the Hertelendi Laboratory.
Acta Phys. Debr. 47 (1), 95-107, 2013. ISSN: 1789-6088.
8. **Major, I.**, Furu, E., Janovics, R., Hajdas, I., Kertész, Z., Molnár, M.: Method development for the 14 C measurement of atmospheric aerosols.
Acta Phys. Debr. 46, 83-95, 2012. ISSN: 1789-6088.
9. Janovics, R., Molnár, M., Světlík, I., **Major, I.**, Wacker, L.: Advances in radiocarbon measurement of water samples.
Acta Phys. Debr. 45 (58), 58-68, 2011. ISSN: 1789-6088.

Foreign language scientific articles in international journals (3)

10. Rinyu, L., Molnár, M., **Major, I.**, Nagy, T., Veres, M., Kimák, Á., Wacker, L., Snyal, H. A.: Optimization of sealed tube graphitization method for environmental C-14 studies using MICADAS.
Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B-Beam Interact. Mater. Atoms. 294 (1), 270-275, 2013. ISSN: 0168-583X.
IF: 1.186





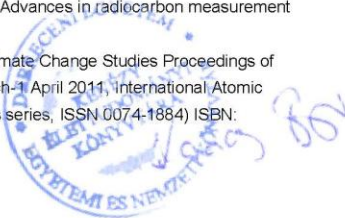
11. Molnár, M., Janovics, R., **Major, I.**, Orsovski, J., Gönczi, R., Veres, M., Leonard, A. G., Castle, S. M., Lange, T. E., Wacker, L., Hajdas, I., Jull, A. J. T.: Status report of the new AMS C-14 sample preparation lab. of the Hertelendi Laboratory of Environmental Studies, Debrecen, Hungary.
Radiocarbon. 55 (2-3), 665-676, 2013. ISSN: 0033-8222.
IF: 1.037
12. Szikszai, Z., Kertész, Z., Bodnár, E., **Major, I.**, Borbíró, I., Kiss, Á. Z., Hunyadi, J.: Nuclear microprobe investigation of the penetration of ultrafine zinc oxide into intact and tape-stripped human skin.
Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B-Beam Interact. Mater. Atoms. 268 (11-12), 2160-2163, 2010. ISSN: 0168-583X.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2010.02.040>
IF: 1.042

Hungarian conference proceedings (2)

13. **Major, I.**, Gyökös, B., Furu, E., Futó, I., Horváth, A., Kertész, Z., Molnár, M.: Szezonális légköri aeroszol szénizotóp összetétel változások Debrecenben.
In: X. Kárpát-medencei környezettudományi konferencia. Szerk.: Zsigmond Andrea, Szigyártó Lídia, Ábel K., Kolozsvár, 266-270, 2014
14. Molnár, M., **Major, I.**, Haszpra, L.: Módszerfejlesztés a légköri szén-dioxid emberi eredetű hányadának meghatározására.
In: V. Kárpát-medencei Környezettudományi Konferencia : 2009. március 26-29., Kolozsvár.
Szerk.: Mócsy Ildikó, [et al], Ábel, Kolozsvár, 439-444, 2009, (ISSN 1842-9815)

Foreign language conference proceedings (2)

15. Molnár, M., **Major, I.**, Timothy Jull, A. J.: Clock in the rock" - In-situ C-14 rock surface exposure dating applications.
In: X. Kárpát-medencei környezettudományi konferencia. Szerk.: Zsigmond Andrea, Szigyártó Lídia, Ábel K., Kolozsvár, 91-95, 2014
16. Janovics, R., Molnár, M., Svétlik, I., **Major, I.**, Wacker, L.: Advances in radiocarbon measurement of water samples.
In: Isotopes in Hydrology, Marine Ecosystems and Climate Change Studies Proceedings of the International Symposium held in Monaco, 27 March-1 April 2011, International Atomic Energy Agency, Vienna, 369-376, 2013, (Proceedings series, ISSN 0074-1884) ISBN: 9789201356109





Hungarian abstracts (3)

17. **Major, I.**, Furu, E., Somodi, G., Kertész, Z., Molnár, M.: Debreceni aeroszolminták 3 évet átfogó szerves és elemi szénttartalom meghatározása thermo-optikai módszerrel.
In: A XIII. Magyar Aeroszol Konferencia előadás-kivonatai. Szerk.: Schmeller Gabriella, Pécsi Tudományegyetem, Pécs, 59-60, 2017. ISBN: 9789634291275
18. **Major, I.**, Gyökös, B., Filep, Á., Futó, I., Hitzberger, R., Molnár, M.: Elemanalízátorral csatolt tömegspektrométeres minta előkészítési és mérési módszer fejlesztése légkori aeroszol teljes szénttartalmának meghatározására.
In: A XII. Magyar Aeroszol Konferencia előadás-kivonatai. Szerk.: Filep Ágnes, Mucsiné Égerházi Lilla, Szegedi Tudományegyetem, Szeged, 22-23, 2015. ISBN: 9789633063644
19. **Major, I.**, Bán, S., Balogh, C., Molnár, M.: Magas aeroszol koncentrációjú időszakokban gyűjtött minták C-14 vizsgálata.
In: XI. Magyar Aeroszol Konferencia : programok és előadáskivonatok: Debrecen 2013. október 28-30, MTA Atommagkutató Intézet, Debrecen, 64-65, 2013. ISBN: 9789638321503

Foreign language abstracts (3)

20. **Major, I.**, Gyökös, B., Türi, M., Futó, I., Filep, Á., Hoffer, A., Molnár, M.: Testing of an automated online EA-IRMS method for fast and simultaneous carbon content and stable isotope measurement of aerosol samples.
Geophys. Res. Abstr. 18 (1), 3843, 2016. EISSN: 1607-7962.
21. **Major, I.**, Vodila, G., Furu, E., Kertész, Z., Haszpra, L., Hajdas, I., Molnár, M.: Development of radiocarbon-based methods to investigate atmospheric fossil carbon pollution.
Geophysical Research Abstracts. 15 (1), 7648, 2013. ISSN: 1029-7006.
22. Molnár, M., Haszpra, L., **Major, I.**, Svíngor, É., Veres, M.: Development of a mobile and high-precision atmospheric CO₂ monitoring station.
Geophysical Research Abstracts. 11 (1), 10271-10271, 2009. ISSN: 1029-7006.

Total IF of journals (all publications): 12,991

Total IF of journals (publications related to the dissertation): 9,726

The Candidate's publication data submitted to the iDEa Tudóster have been validated by DEENK on the basis of Web of Science, Scopus and Journal Citation Report (Impact Factor) databases.

19 June, 2017