

Egyetemi doktori (PhD) értekezés tézisei  
Abstract of PhD Thesis

**Kül- és beltéri aeroszol jellemzése nukleáris  
mikroanalitikai módszerekkel**

**Characterization of outdoor and indoor aerosols by  
nuclear microanalytical methods**

**Szoboszlai Zoltán**

Témavezetők/Supervisors:

Dr. Kertész Zsófia

Dr. Kiss Árpád Zoltán



Debreceni Egyetem  
Fizikai tudományok Doktori Iskolája

University of Debrecen  
PhD School in Physics  
Debrecen, 2013

**Készült**

a Debreceni Egyetem Fizikai Tudományok Doktori Iskolájának  
Fizikai módszerek interdiszciplináris alkalmazásokban programja  
keretében az MTA Atommagkutató Intézetben.

**Prepared at**

the University of Debrecen  
PhD School in Physics  
and  
the Institute for Nuclear Research, Hungarian Academy of Sciences

## **Bevezetés**

Az aeroszol kifejezés levegőben szuszpendált, szilárd vagy folyékony részecskék együttes halmazát jelenti. A légköri aeroszol hatással van a Föld éghajlatára, az emberi egészségre, az ökológiai rendszerekre és a kulturális örökségre is. Az aeroszolra irányuló kutatásokban kiemelt figyelmet fordítanak az antropogén eredetű hatásokra, ugyanis az emberi tevékenység jelentős mértékben befolyásolja a légköri aeroszol részecskék mennyiségét és összetételét. Egészségünk és környezetünk védelme érdekében kulcsfontosságú, hogy ismerjük az aeroszol tulajdonságait és emissziós forrásait és amennyire csak lehet, csökkentsük a káros hatású aeroszol kibocsátását. Mivel az emberek többsége idejének jelentős részét épületekben tölti, szükséges, hogy ne csak a kültéri, hanem a beltéri aeroszolt is vizsgáljuk.

## **Célkitűzések**

Doktori értekezésemben az MTA Atommagkutató Intézetének Ionnyaláb-fizikai osztályán 2007 és 2012 között kül- és beltéri aeroszokok kutatása terén elért eredményeimet mutattam be. Kutatásom célja hosszú távú transzportból, oktatási intézményekből és munkahelyi környezetből származó aeroszol jellemzése és forrásainak meghatározása volt.

A saharai aeroszolra irányuló vizsgálataim célja az volt, hogy a Magyarországon észlelt saharai aeroszol részecskéket szétválasszam a hasonló összetételű, de helyi forrásból származó részecskéktől, valamint az, hogy következtetni tudjak a részecskék emissziós forrására és a hosszú távú transzport során bekövetkező esetleges módosulásukra.

A közoktatási intézményekre, valamint munkahelyi környezetre irányuló kutatásom során célul tűztem ki, hogy meghatározzam a beltéri aeroszol elemösszetételét, méreteloszlását, szezonális változását, kültéri aeroszollal való kapcsolatát, forrásait és tüdőbeni kiülepedésének valószínűségeit.

## Vizsgálati módszerek

A szaharai epizód során gyűjtött minták a Debrecentől 50 km-re lévő, Hortobágy-Nagyiván melletti meteorológiai állomásról származnak. A beltéri aeroszol vizsgálatához használt mintákat Debrecen három közoktatási intézményében (óvoda, általános iskola, középiskola), valamint egy elektronikai áramkörök gyártásával foglalkozó cég munkahelyén gyűjtöttük. Az aeroszolminták gyűjtését kétfokozatú mintavevőkkel és 10 fokozatú kaszkád impaktorral végeztük. Az aeroszol tömegkoncentrációját mérlegeléssel határoztuk meg. Az aeroszolminták elemi összetételének meghatározását proton indukált röntgen emisszióval (PIXE) végeztük. A PIXE módszert széles körben alkalmazzák légköri aeroszol elemösszetételének meghatározására, mivel nem szükséges mintaelőkészítés, az analízáláshoz kis anyagmennyiségű minta elegendő, nyomelemek is meghatározhatók széles rendszám tartományban, és kiegészítő ionnyaláb analitikai technikák egyidejű alkalmazásával a minta sok más jellemzője is meghatározható. Egyes aeroszolmintákon egyediszemcse-analízist és morfológiai vizsgálatokat is végeztünk protonmikroszondával és pásztázó elektronmikroszkóppal. A (makro-, és mikro-) PIXE mérésekre az MTA Atommagkutató Intézetének Ionnyaláb-alkalmazások Laboratóriumában, az elektronmikroszkópos vizsgálatokra pedig a Debreceni Egyetem Szilárdtestfizikai Tanszékének laboratóriumában került sor.

Az aeroszol részecskék emberi légzőrendszerben való kiülepedésének valószínűségét az IDEAL Sztochasztikus Tüdőmodellel számoltam.

## Új tudományos eredmények

A doktori dolgozatomban bemutatott eredményeimet az alábbi tézispontokban foglaltam össze:

### **Fejlesztések az MTA ATOMKI pásztázó-ionmikroszondáján [1]**

1. Az ATOMKI pásztázó-ionmikroszondáján végrehajtott fejlesztésnek köszönhetően lehetővé vált, hogy rutinszerűen meghatározzuk egyedi aeroszol részecskék elemi összetételét a teljes rendszám tartományra, nyomelem szinten is. Az új rendszer egyik első alkalmazása során megállapítottuk, hogy könnyűelemes mikroanalízisre a durva méretfrakciójú részecskék esetében a vékony polimer fóliák, a szubmikronos részecskék esetében az alumínium fólia a legalkalmasabb mintahordozó.

### **Szaharai eredetű aeroszol részecskék vizsgálata [2]**

2. (a) A Hortobágy-Nagyiván háttérterületen szaharai epizód során gyűjtött mintákon egyediszemcse-analízissel valamint a Ti/Ca, Ti/Fe, és Al/Ca elemarányok segítségével szaharai eredetű részecskéket mutattunk ki.
- (b) Hierarchikus klaszteranalízissel kimutattuk, hogy mind a szaharai forrásból, mind a helyi forrásból származó, Al-ot és Si-ot tartalmazó részecskék három fő részecske-csoportba tartoztak: kvarc, alumínium-szilikátok, illetve egyéb Al-Si összetételű részecskék. Fő összetételük alapján nem lehetett szétválasztani a helyi forrásból és a Szaharából származó részecsketípusokat. Azonban számos olyan részecske csoportot azonosítottunk, amely csak a szaharai epizód mintáira volt jellemző. Az egyik ilyen részecsketípusnak magas volt a Ti- és Fe-tartalma, egy másikban pedig a NaCl volt jelen számottevő mennyiségben. Kimutattuk, hogy a szaharai eredetű részecskék többsége nyomokban Mg-ot tartalmazott, ami azt igazolta,

hogy a Mg is jó nyomjelzője a szaharai eredetű porszennyezésnek.

### **Beltéri aeroszol vizsgálata debreceni oktatási intézményekben [3]**

- 3.(a) Megállapítottuk, hogy a durva módusú aeroszol tömegkoncentrációja és elemi összetevőinek koncentrációja az oktatási intézményekben nagyobb volt, mint kültéren. A különbségek a fűtési időszakban voltak nagyobbak. A beltéri  $PM_{2,5}$  aeroszolkoncentráció vagy azonos, vagy kisebb értékeket vett fel, mint a kültéri. A durva méretfrakciójú aeroszol esetében az aeroszolszennyezettség azokban a helyiségekben volt a nagyobb, ahol többen tartózkodtak és/vagy nagyobb volt a fizikai aktivitás.
- (b) Az elemek dúsulási tényezőinek beltér/kültér aránya alapján megállapítottam, hogy a különböző tanterekben gyűjtött aeroszol nagy része a külső környezetből származott. Ennek domináns részét földkéreg eredetű elemek alkották (Si, Ca, Al, Fe). Emellett a tantermi aeroszol tartalmazott külső antropogén forrásból származó elemeket (S, K, Cu, Zn, Pb) is. Azonosítottam jelentős beltéri aeroszol forrásokat is, amelyek a következők voltak: a takarításhoz használt tisztító-/fertőtlenítőszer, kréta, a tornateremben használt magnézia por illetve a kémialaboratóriumban végzett kísérletek.
- (c) A földkéreg eredetű elemek méreteloszlása mindhárom intézmény esetében a nagy- (8-16  $\mu\text{m}$ ) és a közepes méretű részecskék (1-4  $\mu\text{m}$ ) tartományában mutatta a legnagyobb koncentrációnövekedést a kültérihez képest, ami a beltéri mozgások okozta reszuszpenzióknak volt köszönhető. A méreteloszlás adatok alapján kimutattuk, hogy a tisztítószerekből származó Cl a 8-16  $\mu\text{m}$ -es aerodinamikai átmérőjű részecskék tartományában volt jelen a legnagyobb koncentrációban. A kültéri S méreteloszlásának cseppmódusú maximuma (0,25-1  $\mu\text{m}$ ), a tanterekben eltolódott az akkumulációs mérettartomány (0,25-0,5  $\mu\text{m}$ ) felé.

(d) Sztochasztikus tüdőmodell számítások segítségével megállapítottam, hogy az oktatási intézményekben tartózkodó személyek által belélegzett aeroszoltömeg meghatározó többsége az extrathorátikus (vagyis az orr-garat) régióban ülepedik ki. A pedagógusokat és a tanulókat érő dózisok tekintetében jelentős különbségek voltak. A pedagógusok légzőrendszerét érő teljes aeroszol dózis az óvodában 3-szor a két iskolában kb. 2-szer volt nagyobb, mint a gyerekek esetében. Ez az eltérés részben anatómiai különbségekből, részben a végzett tevékenységekből adódik.

#### **Beltéri aeroszol vizsgálata munkahelyi környezetben [4]**

4. Kimutattam, hogy nyomtatott áramkörök hullámforrasztásával foglalkozó munkahelyen az áramköri panelek forrasztási folyamatai aeroszol-emisszióval járnak. Az aeroszol részecskékre jellemző elemarányok, méreteloszlás és elemek közötti korrelációk alapján a következő beltéri forrásokat tudtam megnevezni: forrasztás, fluxálás, maratás és tisztítás. A munkakörülmények változása az aeroszolszennyezettség változásával járt: a három műszakról két műszakra való áttérés a gyártási folyamatok által emittált aeroszol mennyiségét, míg az ólmos forrasztók ólommentesekre cserélése az ólom koncentrációját csökkentette.

## **Introduction**

The term “aerosol” is defined as a suspension of solid and liquid particles in the air but also used referring to the particles themselves. The atmospheric aerosols impact on global climate, human health, ecological systems and cultural heritage. Scientists are devoting particular attention to anthropogenic factors, since the amount and composition of the aerosol particles are influenced by human activity. In order to protect our health and environment, it is critically important to know the properties and emission sources of the aerosols and to reduce the emission of harmful aerosols as far as possible. Since most people spend a large part of their time indoors, it is necessary to investigate not only the outdoor aerosols but also the indoor ones.

## **Objectives**

In my PhD thesis I have presented the investigations which I carried out in the research area of indoor and outdoor aerosols in the Section of Ion Beam Physics of ATOMKI between 2007 and 2012. The aim of my investigation was the characterisation and source identification of aerosols originated from long range transport, educational institutions and workplace environment.

With the investigation of Saharan aerosol, my aim was to separate particles of Saharan origin (observed in Hungary) from those originated from local sources, and to deduce the emission sources and the evolution of particles during the long range transport.

With my work focused on educational institutions and workplace environment, my aim was to determine the elemental composition, mass size distribution, seasonal changes, sources and lung deposition probabilities of indoor aerosols and their relation to outdoor aerosols.

## **Applied methods**

Aerosol samples from the Saharan dust episode were collected at the meteorological station near to Hortobágy-Nagyiván, 50 km away from Debrecen. Samples for the investigation of indoor aerosols were collected at three educational institutions (kindergarten, primary school and secondary school) in Debrecen and at a work environment where manufacturing of printed circuit board took place. The aerosol samples were collected by two-stage samplers and by 10-stage cascade impactor. The mass concentration of aerosol samples was measured by gravimetry. The elemental composition of aerosol samples was determined by proton induced X-ray emission (PIXE). The PIXE method is widely used for elemental analysis of atmospheric aerosols since sample preparation is not needed and only a small amount of sample is required, trace elements can be determined in a wide range of atomic numbers, and some other properties of the sample can also be assessed by complementary IBA technics. In some cases, single particle analysis and morphological analysis were carried out using a proton microprobe and a scanning electron microscope (SEM). The (macro- and micro-) PIXE measurements were carried out in the IBA laboratory of the ATOMKI and the SEM analysis was performed at the Department of Solid State Physics, University of Debrecen.

The deposition efficiencies of aerosol particles within the human respiratory system were calculated by the IDEAL stochastic lung deposition model.

## **New scientific results**

I have summarized the results of my PhD dissertation in the following thesis points:

### **Developments at the scanning ion microprobe of ATOMKI [1]**

1. A measurement and data evaluation setup was developed at the scanning ion microprobe of ATOMKI which enable us to routinely identify the elemental composition of individual aerosol particles for the whole range of the atomic numbers, even at the trace element level. We found that thin polymer films were suitable substrate materials for the complex microanalysis of coarse mode ( $> 2\mu\text{m}$ ) particles; however, in the case of submicron particles, when the particle size is comparable to the thickness of the film, parallel use of an Al and a polymer or kapton film is recommended.

### **Investigation of aerosol particles originating from Sahara [2]**

- 2.(a) Through the (Ti/Ca, Ti/Fe, Al/Ca) elemental ratios, we have shown that the samples collected at a rural site (Hortobágy-Nagyiván) during a Saharan dust episode contained particles of Saharan origin.
- (b) Performing hierarchical cluster analysis, both the particles of Saharan origin and the particles of local origin could be classified into three main classes: quartz, aluminium silicates, and other particles containing Al and Si. It was not possible to separate the local and the Saharan particles based on the main components. However, particle classes characteristic to Saharan samples were found. One of them is characterised by high Fe and Ti content while the other by high NaCl-content. We have shown that most of the particles from the Saharan episode contained Mg in trace element level, which confirmed that Mg can be used as a tracer of Saharan dust.

### **Investigation of indoor aerosols collected at educational institutions in Debrecen [3]**

3. (a) We found that the mass concentration and the concentration of elemental components of coarse aerosol were higher inside the classrooms than outdoor. These differences were bigger in the heating season than in the non-heating season in all three educational institutions. The indoor mass concentrations of the fine mode aerosol were less than or equal to the outdoor values. The mass and elemental concentrations of coarse aerosols were higher in those rooms where intense physical activity took place or many people stayed.
- (b) Based on the indoor/outdoor ratio of the enrichment factor, we concluded that most part of the aerosol inside the buildings originated from outdoors. Among the measured elements, the crust related elements (Si, Ca, Al, Fe) were the most abundant inside the buildings. In addition, anthropogenic elements of outdoor origin (S, K, Cu, Zn, Pb) were also shown in the aerosol samples of the classrooms. The following indoor aerosol sources were identified: detergents, chalk, magnesia powder in the gymnasium, classroom experiments in the chemistry laboratory.
- (c) Comparing the indoor and outdoor mass size distribution of natural elements, remarkable increase could be noted in the middle (1-4  $\mu\text{m}$ ) and bigger (8-16  $\mu\text{m}$ ) particle size ranges inside all three buildings. The main reason of this was the resuspension. On the basis of the mass size distribution data, we found that the concentration of Cl (from detergents) was the highest at the 8-16  $\mu\text{m}$  size fractions. In the mass size distribution of sulphur, there was a maximum at the droplet mode (0.25-1  $\mu\text{m}$ ) in the outdoor samples but this maximum shifted to the accumulation mode (0.25-0.5  $\mu\text{m}$ ) inside the classrooms.

- (d) Using a stochastic lung deposition model, we established that the most part of the inhaled aerosol mass was deposited in the extrathoracic region of the persons staying in the educational institutions. The calculated daily aerosol doses were significantly different for the teachers and children. The respiratory system of the teachers was found to be exposed to two (in schools) or three (in kindergarten) times higher aerosol dose than that of the children. These ratios were resulted partly by the anatomical differences and partly by the differences in activity.

#### **Investigation of indoor aerosols collected at work environment [4]**

4. I have showed that the wave soldering of the printed circuit boards was associated with aerosol emission in a work environment where manufacturing of PCB took place. Based on the elemental ratios of particles, as well as the correlations and mass size distribution data, the following indoor sources were identified: soldering, fluxing, etching, and cleaning. Changes in working conditions caused changes in aerosol pollution: the changeover from three shifts to two decreased the aerosol emission during manufacturing, while the changeover from leaded to unleaded wave solder resulted in smaller lead concentrations.

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

1. Kertész Zs., Szikszai Z., **Szoboszlai Z.**, Simon A., Huszánk R., Uzonyi I.: *Study of individual atmospheric aerosol particles at the Debrecen ion microprobe*, Nucl. Inst. and Meth. B, 267 (2009) 2236-2240. (impakt faktor: 1.156; független hivatkozás: 5).
2. **Szoboszlai Z.**, Kertész Zs., Szikszai Z., Borbély-Kiss I., Koltay E.: *Ion beam microanalysis of individual aerosol particles originating from Saharan dust episodes observed in Debrecen, Hungary*, Nucl. Inst. and Meth. B. 267 (2009) 2241-2244. (impakt faktor: 1.156; független hivatkozás: 8)
3. **Szoboszlai Z.**, Furu E., Angyal A., Szikszai Z., Kertész Zs.: *Investigation of indoor aerosols collected at various educational institutions in Debrecen, Hungary*. X-Ray Spectrometry. 40 (2011) 176-180. (impakt faktor: 1.445, független hivatkozás: 1).
4. **Szoboszlai Z.**, Kertész Zs., Szikszai Z., Angyal A., Furu E., Török Zs., Daróczy L., Kiss Á.Z. *Identification and chemical characterization of particulate matter from wave soldering processes at a printed circuit board manufacturing company*, Journal of Hazardous Materials, 203–204 (2012) 308-316, (impakt faktor: (3.925, független hivatkozás: 2).

**Konferencia szereplések  
Conference talks related to the dissertation**

Hazai konferencián/national conferences: 5

Nemzetközi konferencián/international conferences:5

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

5. **Szoboszlai Z.**, Kertész Zs., Dobos E., Borbély-Kiss I.: *Debreceni városi aeroszol méreteloszlása és tüdőbeni kiüledésének valószínűsége.* 4. Kárpát-medencei Környezettudományi Konferencia. Debrecen, 2008. március 28-29. Szerk.: Orosz Z., Szabó V., Molnár G. etc. Debrecen, 2 (2008) 342-348.

6. Kertész Zs., Dobos E., **Szoboszlai Z.**, Borbély-Kiss I.: *Városi aeroszol forrásainak vizsgálata a debreceni aeroszol koncentrációjában és elemösszetételében bekövetkező gyors időbeli változások alapján.* 4. Kárpát-medencei Környezettudományi Konferencia. Debrecen, 2008. március 28-29. Szerk.: Orosz Z., Szabó V., Molnár G. etc. Debrecen. 2 (2008) 335-341.

7. Kertész Zs., **Szoboszlai Z.**, Dobos E., Borbély-Kiss I.: *Characterization of urban aerosol sources in Debrecen, Hungary.* Acta Geologica Debrecina Landscape and Environment 2. (2009) 109-119.

8. Kertész Zs., **Szoboszlai Z.**, Dobos E., Angyal A., Borbély-Kiss I.: *Study of urban aerosol sources in Debrecen, East-Hungary.* 7th International Conference on Air Quality Science and Application. Istanbul, Turkey, Proceedings .Eds: Vazhappilly, X., Khaiwal, R., Chemel, Ch. et al. (2009)681-684.

9. Kertész Zs., **Szoboszlai Z.**, Angyal A., Dobos E., Borbély Kiss I., *Identification and characterization of fine and coarse particulate matter sources in a middle-European urban environment.* Nucl. Inst. and Meth. B. 268 (2010) 1924-1928.

10. Angyal A., Kertész Zs., Szikszai Z., **Szoboszlai Z.**, *Study of Cl-containing urban aerosol particles by ion beam analytical methods* Nucl. Inst. and Meth. B. 268 (2010) 2211-2215.

11. Angyal A., Kertész Zs., Szikszai Z., **Szoboszlai Z.**, Furu E., Csedreki L., *Városi aeroszol emissziós epizódjainak vizsgálata ionnyaláb analitikai módszerrel.* VI. Kárpát-medencei környezettudományi konferencia. Nyíregyháza, Proceedings. Szerk.: Szabó B., Tóth Cs. (2010) 1:277-282
12. Csedreki L., Szabó Sz, Uzonyi I., Kertész Zs., **Szoboszlai Z.**, Angyal A, Furu E, Kiss Á. Z.: *Felső-tiszai ártér környezeti nevezőfém-szennyeződésinek vizsgálata röntgenfluoreszcens analízissel.* 6. Kárpát-medencei Környezettudományi Konferencia. Nyíregyháza, Proceedings. Szerk.: Szabó B., Tóth Cs. (2010) 289-294.
13. Furu E., Kertész Zs., Borbélyné Kiss I., Dobos E., Szikszai Z., Angyal A., **Szoboszlai Z.**, *Változások és tendenciák a debreceni aeroszol (szálló por) koncentrációjában és összetételében.* 6. Kárpát-medencei környezettudományi konferencia. Nyíregyháza, Proceedings. Szerk.: Szabó B., Tóth Cs. (2010) 1:283-288.
14. Angyal A., Kertész Zs., Szikszai Z., **Szoboszlai Z.**, Furu E.: *Városi aeroszol forrásai.* 7. Kárpát-medencei Környezettudományi Konferencia. Kolozsvár, Románia, Szerk.: Mócsy I.A. (2011)90-94.
15. Furu E., **Szoboszlai Z.** , Angyal A., Török Zs., Kertész Zs.: *Beltéri aeroszol vizsgálat debreceni oktatási intézményekben.* 7. Kárpát-medencei Környezettudományi Konferencia. Kolozsvár, Románia, Szerk.: Mócsy I.A. (2011)99-103.
16. Török Zs., Kertész Zs., Szikszai Z., **Szoboszlai Z.**, Angyal A., Furu E.: *Európa "aeroszol ujjlenyomata" Debrecen város légkörében.* 7. Kárpát-medencei Környezettudományi Konferencia. Kolozsvár, Románia, Szerk.: Mócsy I.A. (2011)95-98.
17. A. Angyal, Zs. Kertész, Z. Szikszai, **Z. Szoboszlai**, E. Furu, L. Csedreki, L. Daróczi: *Study of emission episodes of urban aerosols*

*by ion beam analytical techniques*, Nucl. Inst. and Meth. B. 268 (2010) 2211-2215.

18. Szikszai Z., Kertész Zs., Bodnár E., Borbíró I., Angyal A., Csedreki L., Furu E., **Szoboszlai Z.**, Kiss Á. Z., Hunyadi J.: *Nuclear microprobe investigation of the penetration of ultrafine zinc oxide into human skin affected by atopic dermatitis*. Nucl. Inst. and Meth. B. 269 (2011) 20:2278-2280.

19. **Z. Szoboszlai**, Gy. Nagy, Zs. Kertész, A. Angyal, E. Furu, Zs. Török, K. Ratter, P. Sinkovicz, Á.Z. Kiss. *Characterization of atmospheric aerosols in different indoor environments*, Acta Physica Debrecina 45 (2011) 207-217.

**A publikációk jegyzéke megtekinthető a következő helyeken:**

<http://www.atomki.hu/p2/authors/aut16500.htm#Table>

<http://www.atomki.hu/p2/authorso/aut16500.htm#Table>