



1949

**Aeroszol-szennyezés jellemzése Magyarország
nagyvárosaiban**

Egyetemi doktori (PhD) értekezés

Papp Enikő Ivett

Témavezető: Dr. Kertész Zsófia

DEBRECENI EGYETEM

Természettudományi és Informatikai Doktori Tanács

Juhász-Nagy Pál Doktori Iskola

Debrecen, 2024.

Készült
a Debreceni Egyetem
Juhász-Nagy Pál Doktori Iskolájának
Alkalmazott ökológia programja keretében
az Atommagkutató Intézetben.

A disszertáció alapját képező kutatást az Európai Unió és Magyarország támogatta az Európai Regionális Fejlesztési Alap társfinanszírozásában a GINOP-2.3.2-15-2016-00009 azonosítószámú 'IKER' pályázatának keretén belül.

Ezen értekezést a Debreceni Egyetem Természettudományi és Informatikai Doktori Tanács Juhász-Nagy Pál Doktori Iskola Alkalmazott Ökológia programja keretében készítettem a Debreceni Egyetem természettudományi doktori (PhD) fokozatának elnyerése céljából.

Nyilatkozom arról, hogy a tézisekben leírt eredmények nem képezik más PhD disszertáció részét.

Debrecen, 20.....

.....
a jelölt aláírása

Tanúsítom, hogy Papp Enikő Ivett doktorjelölt 2015-2018. között a fent megnevezett Doktori Iskola Alkalmazott Ökológia programjának keretében irányításommal végezte munkáját. Az értekezésben foglalt eredményekhez a jelölt önálló alkotó tevékenységével meghatározóan hozzájárult. Nyilatkozom továbbá arról, hogy a tézisekben leírt eredmények nem képezik más PhD disszertáció részét.

Az értekezés elfogadását javasolom.

Debrecen, 20.....

.....
a témavezető aláírása

AEROSZOL-SZENNYEZÉS JELLEMZÉSE MAGYARORSZÁG NAGYVÁROSAIBAN

Értekezés a doktori (Ph.D.) fokozat megszerzése érdekében
a Környezettudomány tudományágban

Írta: **Papp Enikő Ivett** okleveles környezetkutató

Készült a Debreceni Egyetem Juhász-Nagy Pál doktori iskolája
(Alkalmazott Ökológia programja) keretében

Témavezető: Dr. Kertész Zsófia

A doktori szigorlati bizottság:

elnök: Dr. Magura Tibor
tagok: Dr. Horváth Roland
Dr. Imre Kornélia

A doktori szigorlat időpontja: 2022. október 6.

Az értekezés bírálói:

Dr.
Dr.

A bírálóbizottság:

elnök: Dr.
tagok: Dr.
Dr.
Dr.
Dr.

Az értekezés védésének időpontja: 20... ..

Tartalomjegyzék

Rövidítések jegyzéke.

Bevezetés	1
1. Irodalmi áttekintés	3
1.1. A légköri aeroszol.....	3
1.2. A légköri aeroszol éghajlati hatásai	5
1.3. Egészségre gyakorolt hatások	8
1.4. Környezeti hatások.....	10
1.5. Városi levegőszennyezettség Európában	11
1.6. A légköri aeroszol forrásmegoszlása a városokban	14
1.7. A légköri aeroszol vizsgálatára alkalmazott mintavételi és analitikai eljárások	16
2. Anyag és módszer	19
2.1. Kutatásom során alkalmazott mintavételi módszerek.....	19
2.2. Tömegkoncentráció meghatározás	21
2.3. Koromtartalom meghatározás	22
2.4. PIXE analitikai technika.....	22
2.4.1. A PIXE módszer általános leírása	23
2.4.2. A PIXE módszer alkalmazása az Atommagkutató Intézetben	26
2.4.3. Koncentráció meghatározás.....	28
2.5. Egyedi részecskék vizsgálata pásztázó elektronmikroszkóppal	30
3. Alkalmazott légköri modellek és statisztikai módszerek	31
3.1. A HYSPLIT modell.....	31
3.1.1. A HYSPLIT modell bemenő adatai	32
3.2. Statisztikai módszerek backward trajektória elemzéshez (Trajectory Statistical Methods-TSM)	32
3.3. NCEP-GEFS modell.....	34
3.4. Spearman korreláció	35
4. Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön	37
4.1. Tömegközlekedés a városokban.....	39

4.2. Mintavétel tömegközlekedési eszközökön	41
4.3. Községi közlekedési eszközök aeroszol-szennyezettsége a 2012–2014-es mintavételi időszakban	44
4.3.1. Tömegkoncentráció a vizsgált járműveken utasterében	44
4.3.2. Az aeroszol-szennyezés forrásai a járművek utasterében	47
4.3.3. Az elemkoncentrációk beltér/kültér arányának alakulása	53
4.3.4. Az aeroszol utastéri forrásai a járműveken	54
4.3.5. Aeroszol méreteloszlások a különböző járműveken	55
4.3.6. Egyedi aeroszol-részecske analízis pásztázó elektronmikroszkóppal ..	58
4.4. A debreceni régi és új típusú villamosok utasterének aeroszol-szennyezettsége 2017–2018 között	61
4.4.1. Tömegkoncentráció a debreceni villamosokon	61
4.4.2. Elemkoncentrációk	64
4.4.3. Az aeroszol utastéri forrásai a villamosokon	68
5. Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése	70
5.1. Városi aeroszol mintavétele és analízise	71
5.2. Aeroszol tömegkoncentráció az öt nagyvárosban	73
5.3. Elemkoncentrációk az öt városban	75
5.4. Elemkoncentrációk időbeli alakulása a városokban	81
5.5. Az egyes aeroszol komponensek földrajzi forrásterület meghatározása	89
Összefoglalás	92
Summary	95
Köszönetnyilvánítás	99
Publikációk	100
Irodalomjegyzék	105
Függelék	112

Rövidítések jegyzéke

D_{ae} : aerodynamic equivalent diameter (ekvivalens aerodinamikai átmérő)
PM: Particulate Matter (aeroszol-részecskék)
IPCC: The Intergovernmental Panel on Climate Change (Éghajlatváltozási Kormányközi Testület)
BC: Black Carbon (korom)
PAH: Polycyclic Aromatic Hydrocarbon (Policiklikus Aromás Szénhidrogén).
IARC: International Agency for Research on Cancer (Nemzetközi Rákkutatási Ügynökség).
WHO: World Health Organization (Egészségügyi Világszervezet)
EEA: European Environmental Agency (Európai Környezetvédelmi Ügynökség)
TC: Total Carbon (teljes szén)
OC: Organic Carbon (szerves szén)
IC: Ion Chromatography (ionkromatográfia)
ICP-MS: Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (induktív csatolású plazma tömegspektrometria)
ICP-AES: Inductively Coupled Plasma Optical Emission Spectroscopy (Induktív Csatolású plazma atomemissziós spektrometria)
GC: Gas Chromatography (gázkromatográfia)
LC: Liquid Chromatography (folyadékkromatográfia)
PIXE: Particle Induced X-ray Emission (részecske-indukált röntgenemisszió)
XRF: X-ray Fluorescence (röntgenfluoreszcencia)
SEM: Scanning Electron Microscope (pásztázó elektronmikroszkóp)
SDD: Silicon Drift Detector (Szilícium drifltelt félvezető detektor)
BSE: Backscattered Electron (visszaszórt elektron)
SE: Secunder Electron (szekunder elektron)
EDS: Energy-dispersive X-ray Spectrometry (energia-diszperzív röntgenspektrometria)
NOAA ARL: National Oceanic and Atmospheric Administration Air Resources Laboratory (Amerikai Óceán- és Légkörkutató Intézet Légköri Kutatólaboratóriuma)
NCEP-GEFS: National Centers for Environmental Prediction-Global Ensemble Forecast System (Nemzeti Környezeti Előrejelzési Központok-Globális Együttes Előrejelző Rendszer)

Bevezetés

A Föld légköre nemcsak gázmolekulákat tartalmaz, hanem benne finoman eloszlott (diszpergált) szilárd és cseppfolyós aeroszol-részecskék együttes rendszerét. Az elmúlt 20–25 évben jelentősen megnőtt a tudományos érdeklődés a légköri aeroszol iránt. Ez elsősorban annak köszönhető, hogy felismerték az antropogén eredetű aeroszol-részecskék globális éghajlatváltozásban játszott szerepének jelentőségét, valamint a környezetünkre és különösképpen az emberi egészségre gyakorolt negatív hatásait. A forgalmas és sűrűbben lakott nagyvárosokban élők még inkább ki vannak téve a káros hatásoknak, így az ilyen területek vizsgálata kiemelt jelentőséggel bír.

Doktori munkám során bekapcsolódtam az Atommagkutató Intézetben zajló légköri aeroszol kutatásokba. Értekezésem célja a különböző tömegközlekedési eszközök utasterében tapasztalható aeroszol szennyezés jellemzése, illetve Magyarország öt nagyvárosában az egyes aeroszol komponensek földrajzi forrásterületeinek megállapítása. PhD munkám során meghatároztam a különböző típusú járműveken utazás közben észlelhető aeroszol tömegkoncentrációt, elemi összetételt, méreteloszlást és a lehetséges utastéri szennyező forrásokat. Mivel a tömegközlekedési eszközök légterében tapasztalható aeroszol-koncentráció függ a városi levegő minőségétől és összetételétől, fontos ismerni a településeket jellemző aeroszol szennyezőforrásokat is. A városokban tapasztalható légszennyezők azonban nemcsak lokálisak lehetnek, hanem az országhatárokon túlról is érkehetnek nagytávolságú transzport folyamatok során. Munkám további részében jellemeztem öt magyarországi nagyvárosban a légköri aeroszol szennyezést és megállapítottam a szennyező források földrajzi eredetét különböző légköri modellek alkalmazásával.

Értekezésem első felében irodalmi áttekintést adok a légköri aeroszoloról, illetve bemutatom az alkalmazott mintavételi és analitikai módszereket és légköri modelleket. Dolgozatom másik felében előbb ismertetem eredményeimet a különböző közösségi közlekedési eszközökön mérhető aeroszol szennyezettséggel kapcsolatban, majd

Bevezetés

bemutatom hogyan alakult a „szálló por” szennyezés Magyarország öt nagyvárosában 2015-ben.

1. Irodalmi áttekintés

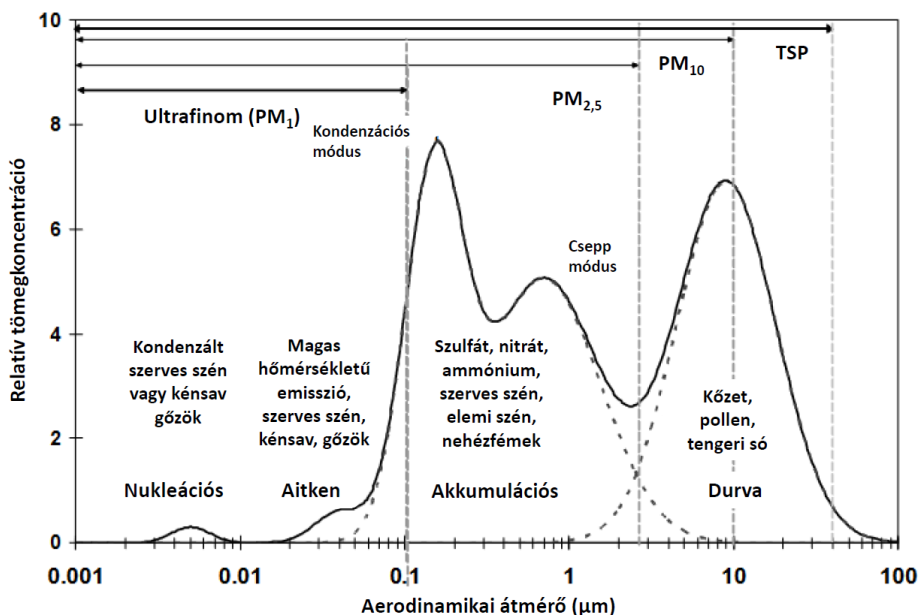
1.1. A légköri aeroszol

Aeroszolnak nevezzük valamely gáznemű közegben finom eloszlású szilárd és/vagy cseppfolyós részecskék kolloid diszperz rendszerét [Hinds, 1982]. Amennyiben ez a gázközeg a levegő, légköri aeroszról beszélünk. Az aeroszol-részecskék légköri folyamatokban betöltött szerepét az alábbi tulajdonságai befolyásolják: eredetük, keletkezésük, méretük, morfológiájuk, kémiai összetételük, koncentrációjuk és méreteloszlásuk. Mindezek közül az egyik legfontosabb tulajdonság a méret, mivel ez nemcsak a részecskék keletkezési mechanizmusára és fő forrásuk jellegére utal, hanem jelentős befolyása van az éghajlati és egészségi hatások szempontjából is. A részecskék mérete széles határok között változhat, néhány nanométertől egészen száz mikrométeres nagyságig terjed.

Az aeroszol-részecskék viselkedését leíró elméletek gömb alakú részecskéket képesek kezelni [Baron, 2011]. Ennek következtében bevezették az ekvivalens aerodinamikai átmérő (D_{ac}) fogalmát, mely annak az egységnyi sűrűségű, gömb alakú részecskének az átmérője, mely aerodinamikai viselkedése megegyezik a kérdéses részecskéével. Ennek értéke az átmérő és a relatív sűrűség négyzetgyökének hányadosával adható meg [Hinds, 1982]. A szakirodalomban a részecskék aerodinamikai átmérője alapján különböző méretfrakciókat lehet megkülönböztetni. A PM_x az x -nél kisebb aerodinamikai átmérőjű aeroszol-részecskéket jelenti. Ez alapján beszélhetünk a finom frakcióról ($PM_{2,5}$), ahová a $2,5 \mu m$ és az annál kisebb aerodinamikai átmérőjű részecskék, míg a $2,5 \mu m$ és a $10 \mu m$ közötti aerodinamikai átmérőjű részecskék a durva frakcióba (PM_{durva}) tartoznak. A $10 \mu m$ -nél kisebb aerodinamikai átmérőjű részecskék tartoznak a PM_{10} -be. A hétköznapi életben és a törvényi szabályozásban szálló porként szoktak hivatkozni az aeroszol-részecskékre, mely kifejezés alatt a $PM_{2,5}$ és a PM_{10} méretfrakciójú részecskéket értik.

Az aeroszol-részecskék számának és tömegének átlagos méret szerinti eloszlása alapján, a részecskék számának méret szerinti eloszlását

lognormális eloszlással lehet leírni, ahol három egymástól elkülöníthető maximum található. Az egyes maximumok egy-egy logaritmus-normál eloszláshoz tartoznak. E szerint megkülönböztetjük a nukleációs módust (0,005-0,1 μm), az akkumulációs módust (0,1-2 μm) – mely tovább osztható kondenzációs- és cseppmódusra – és a durva módust (2 μm felett) [Baron, 2011]. Kialakulásuk a különböző részecske keletkezési mechanizmushoz köthető. Az 1. ábrán a részecskék tömeg szerinti méreteloszlása látható tipikus összetételük feltüntetésével.



1. ábra. Az aeroszol-részecskék tömeg szerinti méreteloszlása és főbb összetevői [Watson, 2010].

Az aeroszol-részecskék keletkezése alapján két fő folyamatot különböztetünk meg. Az elsődleges részecskék közvetlenül jutnak a légkörbe főként mechanikai folyamatok hatására (pl. mállás¹), míg a másodlagos részecskék a levegőben lévő gáz halmazállapotú

¹ A mállásnak két formája van, az egyik a kémiai (oldódás), a másik a fizikai (aprózódás).

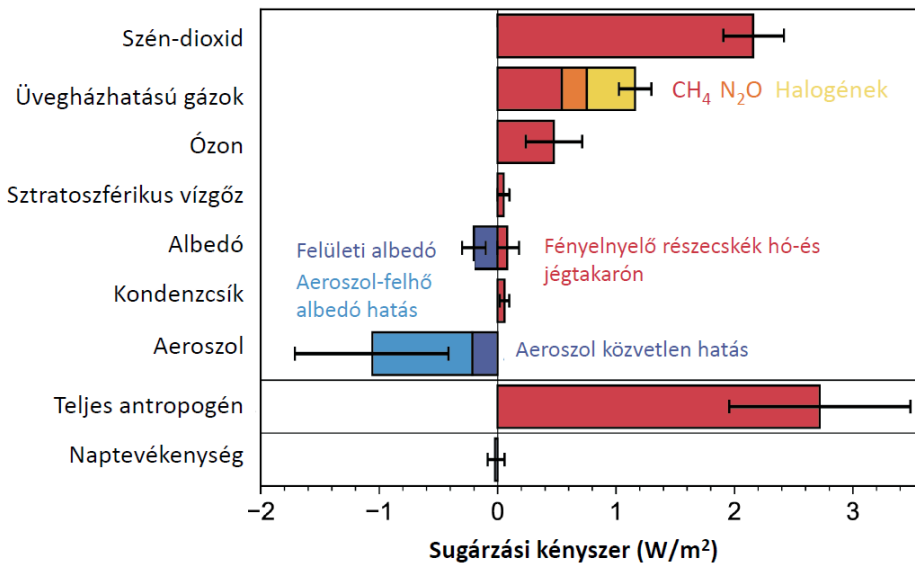
prekursorokból keletkeznek átalakulási folyamatok során nukleációval² vagy kondenzációval [Baron, 2011]. Természetes eredetű elsődleges aeroszol közé tartozik az üledékes eredetű agyag és homok, karbonátok, vulkáni hamu (döntően szilikátok és oxidok), a tengeri területeken kősó krisztallitok, valamint a biológiai eredetű részecskék (pl. pollenek, spórák, baktériumok). A másodlagos természetes aeroszol-részecskék a növényzet által kibocsátott illékony szerves gázokból [Claeys, 2004], az óceáni térségben pedig bizonyos algafajok által kibocsátott dimetil-szulfid (DMS) oxidációjából keletkező szulfát aeroszol [Andreae, 1997]. Az antropogén eredetű források közül a legjelentősebbek az égetéshez kapcsolódó tevékenységek, úgymint a fosszilis tüzelőanyagok (hőerőművek, háztartási tüzelés) és üzemanyagok, a biomassza és a hulladék égetése [Mitra, 2002]. Ezen folyamatok során leginkább szervesetlen gázok (CO₂, SO₂, NO_x) és illékony szerves vegyületek szabadulnak fel, melyek a másodlagos aeroszol képződésben játszanak szerepet. A tökéletlen égési folyamatok eredményeképp pedig jelentős mennyiségű koromrészecske jut a levegőbe [Finnlayson-Pitts, 2001]. A légköri aeroszol jelentős befolyást gyakorol a globális éghajlatra, az élő szervezetek egészségére, illetve a környezetünkre. A következőkben részletesen bemutatom ezeket a hatásokat

1.2. A légköri aeroszol éghajlati hatásai

Az emberiség már régen megfigyelte, hogy az olyan különleges események, mint a porviharok vagy vulkánkitörések hatására csökken a felszínre érkező napsugárzás intenzitása. A légköri aeroszol éghajlatra gyakorolt hatásainak vizsgálata azonban az 1960-as évektől kezdődően gyorsult fel és a kutatási eredmények alátámasztották az aeroszol klímaváltozásban betöltött szerepét. Az ipari forradalom kezdete óta jelentősen nőtt az üvegházhatású gázok (pl. CO₂, CH₄, halogénezett szénhidrogének) és az aeroszol globális légköri koncentrációja [IPCC,

² Nukleáció: A légköri nukleáció olyan elsődrendű fázisátalakulást jelent, amely során légnemű anyagokból (pl. SO₂, illékony szerves vegyületek) fotokémiai oxidáció során kisebb gőznyomású, kondenzációra képes gőzök keletkeznek (pl. H₂SO₄). Ezek a gőzök a légkörben jelenlévő más anyagokkal (pl. H₂O, NH₃) új, szilárd vagy folyékony aeroszol-részecskéket eredményeznek [Kulmala, 2007].

2007]. Miután mindkettő befolyásolja a Föld sugárzási mérlegét, ezek együttes hatását szükséges figyelembe venni a globális klímaváltozás mértékének meghatározásához. A Föld energiamérlegére gyakorolt hatások összehasonlítására vezették be a sugárzási kényszer fogalmát [Ackermann, 2012], melyet az ENSZ Éghajlatváltozási Kormánytestülete (IPCC) is alkalmaz jelentéseiben [IPCC, 2001]. A sugárzási kényszer azt fejezi ki, hogy egy adott légköri alkotó az ipari forradalom előttihez képest megnövekedett mennyisége hogyan módosítja a Föld energiamérlegét egységnyi területű légoszlopra vonatkoztatva. Mértékegysége W/m^2 . A sugárzási kényszer pozitív előjele a felszín melegítését jelzi, míg a negatív előjel annak hűlését. A légkör többi alkotóeleméhez képest az aeroszol okozta sugárzási kényszert jelentős bizonytalanság övezi a nagymértékű fizikai, kémiai, térbeli és időbeli változékonyságának köszönhetően. Azt is figyelembe kell venni az üvegházhatású gázok és az aeroszol összehasonlításánál, hogy míg az előbbiek több tíz, illetve százéves légköri tartózkodási idővel jellemezhetők [Warneck, 1999], ehhez képest az aeroszol esetében ez viszonylag rövid időszakot, 1-2 hetet jelent. Habár az aeroszol-részecskék a légkör igen kis tömegszázalékú komponensei, a Föld energiamérlegére mégis jelentős befolyást gyakorolnak (lásd 2. ábra). A szakirodalom direkt- és indirekt hatásokat különböztet meg, amelyek hűtő- vagy fűtő hatásúak lehetnek [Carslaw, 2008]. A részecskék többsége leginkább szulfátokból, nitrátokból és szerves vegyületekből épül fel, melyek szórják a Napból érkező sugárzást. Ennek következményeképp csökken a felszínre jutó energia, ezáltal csökken a felszíni hőmérséklet. A koromrészecskék a napsugárzás jelentős részét abszorbeálják és az üvegházhatású gázokhoz hasonlóan a felszín felmelegedését segítik elő. A Föld hóval és jéggel borított felszíneire leülepedve csökkentik a Föld sugárzás-visszaverő képességét (lásd 2. ábra „Fényelnyelő részecskék hó- és jégtakarón”).



2. ábra. A sugárzási kényszer változása 1750 és 2019 közötti időszakban. Az ábrán láthatók a természetes és antropogén forrásból származó gázok és aeroszol-részecskék által okozott sugárzási kényszer. Az egybefüggő sávok a legjobb becsléseket, míg a nagy valószínűségű (5–95%) tartományokat pedig a hibasávok jelzik [IPCC, 2021].

Az aeroszol közvetett éghajlati hatása sem elhanyagolható, ugyanis befolyásolja a felhők mikrofizikai tulajdonságait, azok albedóját, átlagos élettartamát és mennyiségét [Lohman, 2005]. A légkörben az aeroszol-részecskék kondenzációs magvakként szolgálnak, ezáltal hozzájárulnak a felhőképződéshez. Abban az esetben, amikor nő a részecskék száma (azonos mennyiségű vízgőz esetén), több kisméretű cseppből álló felhő alakul ki. Az ilyen felhőkre az jellemző, hogy nagyobb mértékben verik vissza a napsugarakat, ebből következően növelik a planetáris albedót és a felszín hűlését eredményezik. A szakirodalom ezt nevezi első közvetett hatásnak [Twomey, 1974]. A kisebb méretű felhőcseppek csökkentik a csapadék képződésének valószínűségét, így meghosszabbítják a felhők élettartamát, ami szintén az albedó növekedését és a felszín hűtését eredményezi, ezt második közvetett hatásnak nevezzük [Albrecht, 1986]. A harmadik közvetett hatás során a napsugárzást elnyelő aeroszol összetevők, főképp a koromrészecskék a légköri hőmérsékletgradiens csökkenését idézik elő. Mindez azt jelenti, hogy a hűtő- és fűtő hatás a légkörben megváltoztathatja a hőmérséklet vertikális eloszlását, ami

befolyásolja a víz globális körforgását és további légköri komponensek függőleges keveredését. A koromrészecskék jelentős hatást gyakorolnak a hóval- és jéggel borított felszíneken. Ezt alátámasztja például a Tibeti-fennsík gleccsereinek vizsgálata, ahol azt tapasztalták, hogy az elmúlt 40 évben a gleccserek térfogatvesztesége körülbelül 450 km^3 volt, amelyből $20\text{-}80 \text{ km}^3$ a korom és más fényelnyelő szennyeződések hatására vezethető vissza [Zhang, 2018].

1.3. Egészségre gyakorolt hatások

Az utóbbi évtizedekben a légköri aeroszol egészségre gyakorolt kedvezőtlen hatásai fokozottan a figyelem középpontjába kerültek. A légszennyezés az európaiak számára komoly egészségügyi problémát jelent. A városi lakosság 91%-a még mindig az Egészségügyi Világszervezet (WHO) 2021. évi levegőminőségi irányelvei feletti légszennyezőanyag-koncentrációnak van kitéve [WHO, 2021a]. Ezen kívül vannak európai határértékek és magyar törvényi szabályozás is, melyeket az 1.5. fejezetben tárgyalok. Éves szinten több mint 300.000 idő előtti haláleset csak a finom részecskék ($\text{PM}_{2,5}$) krónikus expozíciójának³ tulajdonítható Európában [EEA, 2021a]. Mindemellett, vizsgálatokat végeztek világszerte 600 városban, melyből 100 európai. Megállapították, hogy a rövidtávú aeroszol expozíció is összefüggésbe hozható a napi halálozás növekedésével [Liu, 2019].

Az aeroszol-részecskék egészségkárosító hatása a kémiai összetétel mellett jelentősen függ a méreteloszlástól is [Pöschl, 2005]. Epidemiológiai vizsgálatok során megállapították, hogy egészségkárosító szempontból a $10 \text{ }\mu\text{m}$ -nél kisebb aerodinamikai átmérőjű részecskék jelentik a legnagyobb veszélyt, ugyanis légzés útján a tüdő mélyebb részeibe is bekerülhetnek [Salma, 2002a]. Bár a $2,5 \text{ }\mu\text{m}$ -nél nagyobb átmérőjű részecskék általában már a felső légutakban (pl. orr, szájüreg) kiülepednek, stockholmi kutatók erős korrelációt találtak a durva frakciós aeroszol 24 órás átlagos tömegkoncentrációja és a 24 órás halálozási adatok között. Azt tapasztalták, hogy a tömegkoncentráció $10 \text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$ -es

³ Expozíció: A veszélyes anyagok hatásának való kitettséget jelenti, mely megadható úgy, mint belélegzett (inhalált) mennyiség, vagy a levegőben lévő koncentráció [Körinfó].

emelkedése 1,7 %-os növekedést okoz a mortalitásban [Meister, 2011]. A 2,5 µm-nél kisebb átmérőjű részecskék bejuthatnak tüdő mélyebb részeibe, a hörgőkbe és a légútyagokba is [Magyar, 1998]. Ezekben a régiókban a kisméretű részecskék megnövekedett koncentrációja és/vagy a felületükről leváló összetevők a véráramba kerülve más szervekhez is (egészen az agyig) eljuthatnak, ezáltal növelve a szív- és érrendszeri megbetegedések, például a szívroham és a stroke kialakulását [WHO, 2006, 2013]. Az egészségi kockázatot tovább növeli, hogy az antropogén eredetű összetevők legnagyobb tömege a finom frakciójú aeroszolban mutatható ki. Ezek közül számos egészségre ártalmas, toxikus komponens (pl. nehézfémek, PAH vegyületek, korom) tartalmaz [Davidson, 2005], melyek elősegítik a gyulladásos folyamatok bekövetkeztét, ami a sejtek (sejtfehérjék, DNS) károsodásához vezethet. A kisméretű részecskék egészségügyi jelentőségét fokozza az a tanulmány, mely során bebizonyították, hogy az ultrafinom⁴ koromrészecskékből álló aggregátumok tüdőre kifejtett hatása is jelentősen nagyobb, mint az azonos kémiai összetételű nagyobb méretű részecskéké [Li, 1996]. Mindez alapján nem meglepő, hogy a Nemzetközi Rákkutatási Ügynökség (IARC) 2013 óta a lakosságra nézve rákkeltőnek is minősíti az aeroszol-részecskéket [Loomis, 2013]. Számos tanulmány megerősítette, a PM_{2,5} szennyezés és a tüdőrák közötti korrelációt [Cesaroni, 2012; Hvidtfeldt, 2021]. A levegőszennyezés az összes európai rákos megbetegedés 0,5–1%-ával [Couespel, 2020] és a tüdőrák több mint 7%-ával [Kulhánová, 2018] hozható összefüggésbe.

Az utóbbi három évtizedben számos kutatást végeztek különböző közlekedési eszközökön az aeroszol expozíció becslésére. Martins és munkatársai egy lisszaboni tanulmányban vizsgálták különféle közlekedési módok (kerékpár, autó, helyi busz, metró) igénybevétele közben, a légszennyező anyagok belélegzett dózisát⁵. Mindezt a napi ingázással töltött idő és a megfelelő belélegzési arányok

⁴ Ultrafinom: Azon aeroszol-részecskék tartoznak az az ultrafinom (Ultrafine Particles-UFP) mérettartományba, amelyek aerodinamikai átmérője 100 nm vagy annál kisebb. Elsősorban ammónium-szulfátból és -nitrátból, valamint szerves vegyületekből állnak. Városokban az említett összetevőkhöz főleg korom és más szerves vegyületek kerülhetnek [Salma, 2012].

⁵ Dózis: a nem radioaktív anyagok dózisa az az anyagmennyiség, melynek egy ember vagy egy élőlény bizonyos időn keresztül ki van téve. Mértékegysége vegyi anyag (mg) / testtömeg (kg) / idő [Körinfó].

figyelembevételével számolták ki. Ez alapján kimutatták, hogy a metrón utazók átlagosan 3,5–36,3-szor több vasat lélegezhetnek be a napi utazás során más közlekedési módokhoz képest. A helyi buszokon ugyanakkor az átmeneti fémek, különösen a Cu, Zn és Ni belélegzett dózisa 2,4–37,6-szor volt nagyobb más közlekedési eszközökhöz képest [Martins, 2021]. Ennek jelentőségét növeli, hogy számos epidemiológiai tanulmányban az olyan fémeket, mint a Fe, Cu, Ni, Cr, Zn, Pb, S és Sb veszélyesnek vagy potenciálisan veszélyesnek ismerték el az emberi egészségre [Brook, 2010; Karlsson, 2005; Kelly, 2012].

1.4. Környezeti hatások

Az aeroszol éghajlatra és az emberi egészségre gyakorolt jelentős befolyása mellett meg kell említeni az épített környezetet és az ökológiai rendszereket érintő károkat is. A szennyezett levegőjú nagyvárosokban az épületek és a tárgyi emlékek fokozott állagromlásnak vannak kitéve. Az aeroszol egyes összetevői reakcióba lépnek az épületek és a kültéri objektumok (pl. kerítések, szobrok) anyagával, így előidézve azok elszíneződését, mállását. A tengerpartok környékén az aeroszol fő alkotói közé tartoznak a szervetlen sók (szulfátok, nitrátok és főként kloridok), melyek a téglából, vakolatból, mészkőből és homokkőből készült épületeknél kémiai reakciók során elősegítik a sókristályosodás kialakulását, mely az épületek, építőanyagok belsejében is képesek lerakódni [Morillas, 2020]. A jelentős gépjárműforgalommal érintett városokban a dízelüzemű járművekből levegőbe kerülő koromrészecskék pedig az épületek elszennyeződését, feketedését okozzák [Artesani, 2020]. A problémát fokozza az intenzív közúti forgalom, ugyanis a gépjárművek okozta turbulencia ismét felveri az úttestre egyszer már kiülepedett, antropogén összetevőkkel dúsult port, amely folytonos szennyezést idéz elő a levegőben. Ez a folyamat a reszuszpenzió vagy felporzás.

Az épített környezet mellett az aeroszol ülepedése során jelentős befolyást gyakorol az ökoszisztémára. A részecskék által kifejtett hatás lehet lokális, regionális, mindemellett nagy távolságra is képesek eljutni, ebből következőleg az ökológiai rendszerekre kifejtett hatás több száz, ezer kilométerre is megjelenhet az eredeti forráshoz képest. Erre példa a Földközi-tenger nyugati medencéjének vizsgálata, mely során kimutatták,

hogy a szilícium és vas főként szaharai porból, míg a kiülepedett foszfor leginkább az antropogén biomassza-égetésből, a nitrogén pedig nagy valószínűséggel tengeri forrásokból származhat [Desboeufs, 2018]. Az aeroszolban lévő nyomelemek ülepedése pozitív és negatív befolyást is gyakorolhat egy adott ökológiai közösség számára. Például a szaharai porból származó aeroszol-részecskék hosszú távon táplálékforrásként szolgálnak a fitoplanktonok számára, ezáltal hozzájárulnak az óceánok nettó biológiai produktivitásához. Ugyanakkor a kiülepedő vas korlátozza a fitoplanktonok növekedését [Mahonwald, 2018].

Mindemellett súlyos talajszennyezés érintheti az intenzív ipari tevékenységet végző területek környékét, a finom frakciós aeroszolban található nehézfémek bejutása révén. A talajban a legtöbb fém stabil formában található, ebből következően a mikrobiológiai, kémiai folyamatokban csak kis mértékben vesznek részt. Az aeroszol eredetű elemek akkumulálódhatnak, kémiai folyamatokat gátolhatnak, ilyen például a cink, amely hátráltatja a szerves vegyületek bomlását [Wuana, 2011].

1.5. Városi levegőszennyezettség Európában

A légkör jelenlegi összetétele nagymértékben különbözik az ipari forradalom előtti időkben létező természetes légkör összetételétől. Légszennyezőnek nevezünk minden olyan emberi-, biológiai- vagy geológiai eredetű nyomanyagot, amely nem a természetes légkör alkotója, vagy a természetes légkör összetételéhez képest a szokásostól eltérően nagyobb koncentrációban van jelen. Mindez károsan befolyásolja az emberek szellemi és testi egészségét, illetve biológiai környezetét és tevékenységét. A légszennyezettség kialakulásához hozzájárulnak egyrészt a helyhez kötött úgynevezett pontforrások (pl. hőerőművek, ipari létesítmények), másrészt a mozgó- vagy vonalforrások, melyek közé a különféle közlekedési eszközöket (pl. személygépkocsik, vasúti járművek, repülőgépek) soroljuk. A meteorológiai paraméterek és a városok feletti légrétegek inhomogenitása szintén befolyásoló tényező a levegőminőség alakulásában. Napjainkban kiemelten fontos foglalkozni a levegőszennyezettséggel, ugyanis az emberi egészségre nézve az egyik legjelentősebb környezeti kockázatnak számít. Felmérések alapján, az

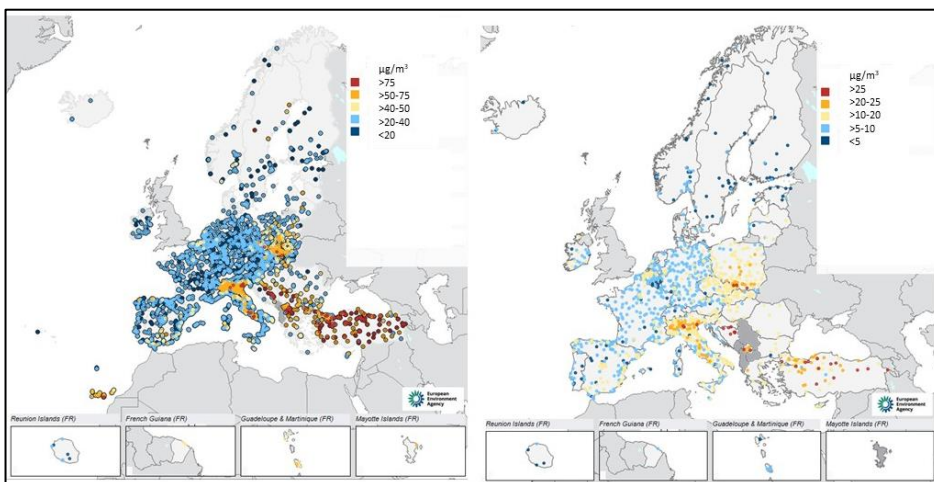
európai lakosság az éghajlatváltozás után a második legnagyobb környezeti problémának tartja [EEA, 2017].

Az emberi egészség, az élővilág és az épített környezet védelme érdekében törekedni kell a megfelelő minőségű levegő biztosítására. Ehhez szabályozásra, levegőminőségi határértékek meghatározására van szükség. A 306/2010. Kormányrendelet kimondja, hogy a levegőterheltségi szint, a levegőben valamely légszennyező anyag koncentrációja vagy a légszennyező anyag adott időtartam alatt felületekre történt kiülepedése. A legjelentősebb légszennyezők közé sorolhatók: PM, nitrogén-oxidok, ózon, ammónia, metán, kén-dioxid, korom (BC), nem illékony szerves vegyületek (NMVOC⁶) és a nehézfémek. Ezen anyagok emissziója káros lehet az emberi szervezetre, így az egészség védelme érdekében határértékek kerültek bevezetésre. A dolgozatomban kizárólag a légköri aeroszol vizsgálatával foglalkozom, így a továbbiakban az erre vonatkozó szabályozásokat részletezem. 2005-től kezdődően lett hatályos az Európai Unió levegőminőségi irányelve PM₁₀-re vonatkozóan. Az egészségügyi éves átlagos határérték évente 40 µg/m³, a 24 órás átlagos határérték pedig 50 µg/m³. Ez utóbbi érték egy évben maximum 35-ször léphető túl. A PM_{2,5}-re vonatkozóan 2020-ig éves átlagos célértékként éves átlagban 20 µg/m³-t tűztek ki, míg a hosszú távú csökkentési tervek között 10 µg/m³ éves átlagos célérték szerepel [4/2011. (I. 14.) VM rendelet; Directive 2008/50/EC]. A WHO ajánlott értékei azonban ennél szigorúbbak, PM₁₀ tömegkoncentráció esetében a 24 órás átlagos érték 45 µg/m³, az éves átlagos érték 15 µg/m³, míg PM_{2,5} esetében a 24 órás átlagos érték 15 µg/m³ és 5 µg/m³ az éves átlagos érték. [WHO, 2021a].

A 3. ábrán a PM₁₀ és PM_{2,5}-re vonatkozó éves határérték túllépések láthatóak 2020-ban, az Európai Környezetvédelmi Ügynökség (EEA) adatai alapján [EEA, 2022]. A 2005-től alkalmazott PM₁₀-re vonatkozó 24 órás határérték túllépései – a piros és narancssárga ponttal jelölt mérőállomásokon – gyakoriak voltak elsősorban Észak-Olaszországban a kelet-európai országokban, a balkáni országokban és Törökországban. A PM_{2,5} esetében Olaszországban, Lengyelországban, a Balkán régió országaiban és Törökországban a PM_{2,5} éves átlagos tömegkoncentráció

⁶ NMVOC: Non Methane Volatile Organic Compounds (illékony-nem metán-szerves vegyületek).

meghaladta az előírányzott $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ -es határértéket (lásd piros és narancssárga pontok).



3. ábra. PM_{10} (bal) 24 órás átlagos és $\text{PM}_{2.5}$ (jobb) éves átlagos határérték túllépései Európában 2021-ben [EEA, 2022].

A WHO iránymutatásai alapján az elmúlt évtizedekben különböző uniós irányelvek próbálták csökkenteni a PM_{10} 24 órás átlagos-, a PM_{10} - és $\text{PM}_{2.5}$ éves átlagos koncentrációját, így az emberi egészségre - és a környezetre gyakorolt hatását [EU, 1996; EU 2008; EU 2016]. Ennek következtében a PM koncentrációk az elmúlt 20 évben a legtöbb európai helyszínen csökkentek [Tørseth, 2012; EEA, 2019]. Mindennek ellenére a légszennyezés továbbra is jelentős hatást gyakorol az emberi egészségre, különösen mivel Európa lakosságának jelentős része városi területeken él, ahol rendszeresen előfordul a levegőminőségi előírások túllépése [EEA, 2020]. Az európai lakosságra vonatkozó $\text{PM}_{2.5}$ expozíció csökkenésének üteme meglehetősen lassú volt ($-0,5 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{év}$) az elmúlt évtizedben [EEA, 2019]. Ezért további koncentráció csökkentésre van szükség. Emellett az Európában detektált aeroszol kémiai összetételének jobb megértése is lényeges a források azonosításához [Zhang, 2011], a toxicitás értékeléséhez [Kelly, 2012], az éghajlatra gyakorolt hatásainak becsléséhez [Boucher, 2013], valamint a levegőminőségi modellek javításához [Kukkonen, 2012].

A légköri aeroszolt igen változatos kémiai összetétel jellemzi Európa különböző területein [EEA, 2020]. Közép-, Észak- és Dél-Európát vizsgálva Putaud és munkatársai a következőket állapították meg [Putaud, 2010]:

- A PM₁₀ méretfrakció Közép-Európában nagyobb széntartalommal jellemezhető, Észak-Európában a nitráttartalom jelentős, Dél-Európában pedig a kőzetalkotók hozzájárulása számottevő.
- A városi aeroszol PM₁₀ frakcióját Közép-Európában kisebb tengeri só és nagyobb korom, illetve összes szén (TC) tartalommal jellemzi. Mivel a tengeri só hozzájárulás a tengertől való távolság függvénye, nem meglepő a kisebb hányada a PM₁₀ tömegben.
- A vidéki területektől közeledve a városi mérőpontokhoz a SO₄²⁻ és a NO₃⁻ hozzájárulása fokozatosan csökken. Ezzel szemben növekedést mutat az összes szén és a korom koncentrációja.
- A szerves anyag hozzájárulása a durva és a finom frakcióhoz hasonlóan alakul a különböző mintavételi területeken.

1.6. A légköri aeroszol forrásmegoszlása a városokban

A városi levegőminőség hatékony ellenőrzése és szabályozása érdekében rendkívül fontos, hogy ismerjük és azonosítani tudjuk a légköri aeroszol lehetséges forrásait, melyeket a következőkben mutatok be.

Geokémiai szempontból a PM₁₀ frakciót alkotó szemcsék jelentős mértékben a földkérgét alkotó elemekből (Si, Al, Ca, Fe, K elemek oxidjai és szilikátjai) állnak. A durva módusú talajeredetű aeroszol kémiai összetétele nagymértékben függ az alapkőzettől és a finom frakcióban jelentősen módosíthatják az olyan antropogén tevékenységek, mint a közlekedés [Yatkin, 2008]. A durva frakció a földkéreg eredetű elemek mellett 4–15% közötti szerves szén (OC) és 1% alatti elemi szén (EC) tartalommal jellemezhető [Watson, 2001], mely hozzájárulásának mértéke függ a meteorológiai körülményektől.

A városi aeroszol jelentős forrása a közlekedésből származó kibocsátás. Ebből a forrásból származó aeroszol-részecskék kémiai összetételét alapvetően meghatározzák a gépjárművek által kibocsátott

égéstermékek, illetve az egyes mintavételi helyszínekre jellemző kiülepedett por összetétele [Chow, 2004]. Jelentős forrásai lehetnek a városi légköri aeroszolnak az utakra kiülepedett por-részecskék, ugyanis a közlekedés és a szél által könnyen felverődnek. A $PM_{2,5}$ és PM_{10} frakciókban egyaránt jelentős forrásként azonosították az útfelületekről felverhető aeroszol-részecskéket, az építési munkálatokat, valamint a kopár felszínek porzását [Chow, 2002]. Mindemellett, télen az utak szórása is jelentős forrása a reszuszpendált aeroszolnak a városi környezetben [Patra, 2008]. A közlekedési eredetű aeroszol fő alkotói az elemi szén és a szerves szén. Előbbi mennyiségi hozzájárulása 18% körüli, míg az OC ozzjárulása 36–75% között változik [He, 2006]. Az égéstermék emisszióból származó részecskék általában 3–5% közötti szulfát és 0,01–0,05% körüli bróm tartalommal jellemezhetők [Watson, 2001]. Fontos kiemelni, hogy a mesterséges eredetű nyomjelző elemek (Cr, Zn, Mn, K, V, Cd, Ni és Pb) [Yatkin, 2008, Salma, 2005] közel kétszer nagyobb mennyiségben található meg a finom frakcióban, mint a durvában [Chow, 2004]. A közlekedési eszközök fékpofáinak kopásából származik a Cu, a Ba és az Sb [Schauer, 2006], míg a gumiabroncsok kopásából a Zn, a korom és a szerves szén, a kenőolajok égésére pedig a Zn és Ca elemek utalnak [Viana, 2008]. Továbbá fontos megjegyezni, hogy a V és Ni nyomjelzői a gázolaj égetésének, mely elemek leginkább a PM_{durva} frakcióban jelentkeznek [Viana, 2008].

Jelentős forrásként azonosítható a biomassza égetés, melyből leginkább széntartalmú részecskék származnak ($56 \pm 15\%$ OC) [Watson, 2001], további alkotói pedig SO_4^{2-} , Cl^- , S, K^+ . Ez utóbbi elemet a biomassza égetés nyomjelzőjeként is alkalmazzák. A K tömegaránya a finom frakcióban nyílt tüzek esetén 0,02 és 13% között változhat [Chow, 2004], melyet az eltüzelt fa tulajdonságai és az égés körülményei befolyásolnak [Watson, 2001]. A biomassza égetés továbbá jól jellemezhető vízdoldható szerves vegyületekkel, melyek közül fontos kiemelni a levoglukozánt, amely a biomassza égetés általánosan elterjedt nyomjelző vegyülete [Simoneit, 2002].

A városi aeroszol további fontos forrásai közé tartoznak a különböző ásványokat alkalmazó iparágak. Ide tartozik a bányászat, például a mészkő- és dolomitbányák, valamint a homok-és kavics bányák,

melyekből nagy mennyiségű SiO_2 kerül a levegőbe. Lényeges források még az aszfaltkeverő üzemek és a cementgyárak. Utóbbiból Ca- és Ca-Mg karbonátok kerülnek a levegőbe. Mindemellett, az építkezések és az útépitések által levegőbe juttatott agyag, talaj és homok is számottevő forrás a városokban. Továbbá számos ipari emisszióhoz köthető lokális forrást azonosítottak, melyeket az 1. táblázat foglal össze.

1. táblázat. Különböző helyhez kötött források [Calvo, 2013].

Ipari tevékenység	Nyomjelző komponensek
Cementgyártás	Ca
Vas-és fémipar	Mn, Cr, Fe, Zn, W, Rb
Acélipar	Cr, Ni, Mo
Kerámiaipar	Ce, Zr, Pb
Szénégetés	Al, Sc, Se, Co, As, Ti, Th, S, Pb, Sb
Olajégetés	V, Ni, Mn, Fe, Cr, As, S, SO_4^{2-}

Mindezek alapján látható, hogy a légköri aeroszol igen változatos forrásokkal jellemezhető, melyek azonosítása kiemelten fontos a hatékony levegőminőségi szabályozás, valamint a betegségek és halálozások számának csökkentése érdekében.

1.7. A légköri aeroszol vizsgálatára alkalmazott mintavételi és analitikai eljárások

A 2000-es évek közepéig a légköri aeroszol kutatások elsősorban a PM_{10} és $\text{PM}_{2,5}$ méretfrakciókra fókuszáltak, azonban a figyelem egyre inkább az ultrafinom részecskék vizsgálatára irányul. Mindez annak köszönhető, hogy az aeroszol-részecskék méretük csökkenésével egyre károsabb hatást gyakorolnak az egészségre. A legtöbb hagyományos mintavételi eljárás és kémiai elemzés „offline” módon történik. Ennek során az aeroszol-részecskéket leginkább szűrőkre gyűjtik (pl. membrán- vagy szálás szűrők), vagy különféle hordozólemezekre vagy folyadékban (pl. nedvesített falú ciklon) [Pöschl, 2005]. A leggyakoribb mintavételi eljárások közé tartozik a nagy térfogatáramú ($30 \text{ m}^3/\text{h}$), a kis térfogatáramú ($1 \text{ m}^3/\text{h}$) mintavevők 24–72 órás alkalmazása. Emellett a személyi

mintavevők (pl. kétfokozatú mintavevők vagy személyi impaktorok) rövidtávú, néhány órát lefedő alkalmazása is egyre elterjedtebb. Az „offline” technikák hátránya, hogy nehezen teszik lehetővé a tér- és időbeli felbontást. A 2000-es évektől kezdődően azonban jelentős előrelépés történt az aeroszol-tömegspektrométerek fejlesztésében, így lehetőség nyílt valós idejű méret szerint szeparált részecskék mérésére. Ilyen eszközök például az optikai elven működő hordozható részecskeszámlálók (pl. NanoScan, Optical Particle Sizer), melyekkel a nano- és mikrométerű részecskék tömegkoncentrációját és méreteloszlását lehet meghatározni. Lehetőség van továbbá a koromtartalom több hullámhosszú meghatározására hordozható Aethalometer segítségével. Az itt felsorolt eszközök előnye, hogy valós idejű expozíciót tudnak meghatározni, melyre különböző ipari helyszíneken, tömegközlekedési eszközökön és munkahelyeken egyre nagyobb igény mutatkozik.

Az aeroszol-részecskék kémiai összetételének meghatározására számos analitikai technika áll rendelkezésre. A vízoldható szerves ionok koncentrációját ionkromatográfias (IC) módszerrel, a különböző elemek koncentrációját pedig induktív csatolású plazma tömeg-spektrometria (ICP-MS), induktív csatolású plazma atomemissziós spektrometria (ICP-AES) alkalmazásával határozhatjuk meg. A légköri aeroszol fontos komponense a szén, melynek koncentrációját termikus és termo-optikai módszereket alkalmazva meghatározható a teljes-, az elemi- és a szerves széntartalom. Az aeroszol minták jelentős mennyiségben tartalmaznak szerves vegyületeket, melyek meghatározása gázkromatográfias (GC) vagy folyadékkromatográfias (LC) módszerrel történik. Ezen analitikai vizsgálatok esetén azonban a mintánk további elemzésre nem alkalmas. Ezzel szemben léteznek „roncsolásmentes” módszerek is, melyek során egy adott minta vizsgálata többször megismételhető. Ilyen eljárás például a részecske-indukált röntgenemisszió (PIXE) és a röntgenfluoreszcencia (XRF), melyek alkalmazásával meghatározhatók a fő- és nyomelemek. Emellett az aeroszol-részecskék morfológiája és fő elemösszetétele egyedileg meghatározható pásztázó elektronmikroszkópos vizsgálattal (SEM). A

Irodalmi áttekintés

minta korom tartalmának meghatározására pedig fényabszorpció elvén alapuló eszközöket alkalmaznak (pl. reflektométer, MABI⁷).

⁷ MABI: Multi-wavelength absorption Black carbon Instrument (több hullámhosszon koromtartalom mérő eszköz).

2. Anyag és módszer

2.1. Kutatásom során alkalmazott mintavételi módszerek

Manapság számos mintavételi technika áll rendelkezésre az aeroszol-részecskék gyűjtésére. Az eszköz és módszer választás azonban mindig attól függ, hogy mi a munka célja és ehhez milyen analitikai vizsgálatokat szeretnénk végezni az adott mintán.

A doktori munkám során hordozható kétfokozatú személyi mintavevőt, négyfokozatú személyi kaszkád impaktort, illetve állandó helyszínen elhelyezett kétfokozatú mintavevőket alkalmaztam. A továbbiakban bővebben taglalom az eszközök jellemzőit.

Kétfokozatú mintavevő

A kétfokozatú mintavevők alkalmazásának előnye, hogy a finom ($PM_{2,5}$) és a durva frakciós (PM_{durva}) aeroszol-részecskéket el lehet különíteni, melyek a környezeti monitoring és az egészség szempontjából kiemelt jelentőséggel bírnak. A kétfokozatú mintavétel során szűrővel ellátott mintavevő fejen pontosan mért térfogatú levegő átszivattyúzása történik, ezáltal szűrő típustól függően felületi, illetve mélységi részecskegyűjtés is megvalósítható. A doktori munkámban Gent-típusú [Hopke, 1997], előimpaktorral ellátott kétfokozatú mintavevőt alkalmaztunk Debrecenben, Budapesten, Nyíregyházán, Miskolcon és Pécsen. A mintavevőhöz tartozó NILU⁸-típusú SFU⁹ mintavevő fejet a Norvég Levegőkutatási Intézet fejlesztette ki. A tömegközlekedési eszközökön hordozható membránszivattyúhoz [Buck Elite-5] csatlakoztatott Nuclepore (NP) kétfokozatú mintavevőt alkalmaztunk [Whatman, 2013]. Mindkét típusú mintavevő fejben egymás után 8,0 és 0,4 μm -es pórusátmérőjű Nuclepore polikarbonát szűrő volt elhelyezve. A finom frakciós részecskéket a 0,4 μm -es, míg a durva frakciós részecskéket a 8 μm -es pórusátmérőjű szűrő gyűjti össze. A polikarbonát filterekre jellemző, hogy nincs zavaró háttérük PIXE mérés közben, rendkívül vékonyak, egyenletes pórusátmérőjük és felületükön gyűjtik össze a részecskéket. Ebből

⁸ NILU: Norwegian Institute for Air Research (Norvég Levegőkutatási Intézet).

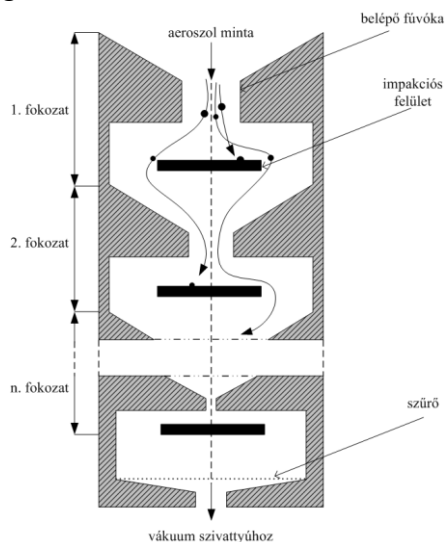
⁹ SFU: Stacked Filter Unit (Egymásra épített szűrőegység).

következően alkalmasak PIXE elemanalitikai vizsgálatra, valamint pásztázó elektronmikroszkóppal történő morfológiai elemzésre. A két mintavételi fej mérete eltérő, emiatt az SFU fejben 47 mm-es, míg a Nuclepore fejben 25 mm-es szűrőket használtunk. A 47 mm-es 8 μm pórusátmérővel rendelkező polikarbonát szűrők, 16 l/min térfogatáram mellett 50%-os hatásfokkal szűrik ki a $\sim 2,2$ μm -es átmérőjű részecskéket, míg a $<2,2$ μm -es átmérőjű részecskéket közel 100%-os hatásfokkal gyűjtik be a 0,4 μm -es pórusátmérőjű szűrők [Hopke, 1997]. A Gent-típusú mintavevőhöz tartozó előimpaktor a 10 μm átmérőjű részecskéket 50%-os hatásfokkal szűri ki, ezáltal $\text{PM}_{2,5}$ és PM_{durva} méretfrakció szeparáltan gyűjthető. Ezt a mintavevőt állandó helyszíneken alkalmaztuk 15-18 l/min térfogatáram mellett. A tömegközlekedési eszközökön a hordozható Nuclepore személyi mintavevővel végeztük a gyűjtést, mellyel a $\text{PM}_{2,5}$ és PM_{durva} méretfrakciójú részecskék gyűjtésére volt lehetőség 3 l/min térfogatáram mellett. Ez a mintavevő fej nem rendelkezik előimpaktorról, ezáltal a 10 μm -nél nagyobb aeroszol-részecskék is bekerülhettek a durva frakcióba.

Kaszád impaktor

A méreteloszlás a légköri aeroszol egyik legfontosabb tulajdonsága, mivel ez összefüggésben van többek között a részecskék kémiai összetételével, légköri tartózkodási idejével, emissziós forrástípusával, valamint a légzőszervi depozícióval. A mintavételek a Sioutas személyi kaszád impaktorról [Sioutas] valósultak meg (4. ábra), mely aerodinamikai átmérőjük alapján négy fokozatba választja szét a részecskéket: 0,25–0,50, 0,50–1,00, 1,00–2,50 és 2,50–10,0 μm . Az impaktorban az átszivattyúzott levegő egyre kisebb átmérőjű fűvókákön halad keresztül, ezáltal nő a levegő áramlási sebessége. Az egyes fokozatokon csak azon aeroszol-részecskék képesek áthaladni, melyek átmérője kisebb a fokozat aerodinamikai paramétereit által meghatározott kritikus értéknél. Ez függ az előző fokozat befogási tulajdonságaitól és a fűvóka méretétől, továbbá a fűvóka és az impaktor felületének távolságától. Azok a részecskék, melyek nem tesznek eleget ennek a feltételnek, befogódnak a fokozathoz tartozó felületen. Azok a részecskék, melyek áthaladnak az utolsó fokozaton, a végszűrőn rakódnak le. A mintavétel

során végszűrőket nem használtam, ugyanis az impaktorba való behelyezésük nyomás csökkenést idézett elő a szivattyúban, amely gátolta a mintagyűjtést, így kihagyásuk mellett döntöttem. A kaszkádimpaktor alkalmazásával szilárd és nedves részecskék mintavételezésére is van lehetőség, továbbá a gyűjtött részecskék tömege is meghatározható minden egyes fokozaton. A mintavételek során 8,7 l/min-es térfogatáramlás-sebességet és 25 mm átmérőjű kapton fóliát alkalmaztunk, mely vékony paraffin tapadó réteg bevonattal rendelkezett.



4. ábra. A kaszkád impaktor sematikus felépítése [PIXE Int. Corp. alapján].

2.2. Tömegkoncentráció meghatározás

Az aeroszol minták tömegét gravimetrikus módszerrel határoztam meg. A polikarbonát szűrőket mintavétel előtt és után Radwag típusú analitikai mérleggel, 1 μg pontossággal megmértem. Mérlegelés előtt a szűrők temperált fülkében legalább 24 órán keresztül kondicionálva voltak 25 °C hőmérséklet és 55%-os relatív páratartalom mellett. A polikarbonát szűrők esetében elektromos semlegesítés szükséges, melyhez ionizátort alkalmaztam tömegmérés előtt. A kapton fóliák esetében az ionizátor alkalmazása mellett is olyannyira töltődtek a fóliák, hogy a tömeg csak jelentős hibával volt mérhető, így ezeket az adatokat nem tudtam figyelembe venni. A tömegkoncentrációt leggyakrabban g/m^3 , mg/m^3 vagy

$\mu\text{g}/\text{m}^3$ egységekben adjuk meg, amit a tömeg és az átszívott levegő térfogatának hányadosa alapján számítunk.

2.3. Koromtartalom meghatározás

A koromkoncentráció meghatározására optikai módszert alkalmaztam, mely azon alapul, hogy a finom méretfrakciójú aeroszol elemi szén tartalma abszorbeálja a látható fényt. Gundel és munkatársai megállapították, hogy az aeroszol minták fény abszorpciója és koromtartalma között lineáris kapcsolat van [Gundel, 1984]. A BC meghatározására egy EEL Model 43 típusú reflektométert alkalmaztam, mely előnye, hogy nem roncsolja a mintát, így további analízis végezhető a mintákon.

2.4. PIXE analitikai technika

A részecske-indukált röntgenemissziós (PIXE) módszert először a lundi Technológiai Intézetben mutatták be 1970-ben és azóta széles körben alkalmazzák elemanalitikai vizsgálatokra [Johansson, 1970]. Az analízishez szükséges töltött részecske gyorsítók már a század első felében megjelentek, azonban csak az 1960-as évek végétől elérhetők a karakterisztikus röntgendetektáláshoz alkalmas Si(Li) (lítiummal driftelt szilícium) detektorok. Megjelenésük ösztönözte a PIXE és más energiadiszerzív röntgenspektroszkópai technikák kifejlesztését. Az elemanalízishez használt más spektroszkópai módszerekhez hasonlóan a PIXE is az atom fizikáján, nem pedig kémiáján alapul. A mintában lévő atomok gerjesztése és a röntgendetektálás kombinációjával egy igen hatékony elemanalitikai technikát eredményezett.

A módszer számos előnnyel rendelkezik, melyek közül a legkiemelkedőbb, hogy nem igényel különösebb minta-előkészítést és „roncsolásmentes”, tehát a besugárzás után további vizsgálat végezhető a mintákon. További előnyei közé tartozik, hogy:

- Szimultán, több mint 20 kémiai elem egyidejű mérése 5–15 perc alatt elvégezhető,
- A módszerrel lehetőség nyílik nyomelemek nagy érzékenységgel történő meghatározásához,

- A kvantitatív analízishez nem szükségesek referenciaminták,
- Kis anyagmennyiség elegendő a méréshez, mely előnyös például rövid idejű (1–3 órás) mintavételek esetén,
- A PIXE alkalmazásával abszolút koncentrációk határozhatók meg,
- Több ionnyaláb analitikai technika (pl. RBS¹⁰, PIGE¹¹) is alkalmazható egyszerre, ezáltal a minta alacsony rendszámú elemei is meghatározhatók.

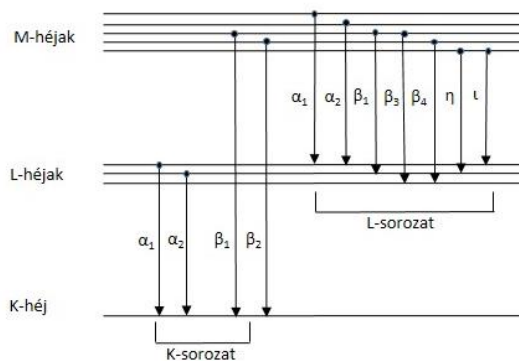
A PIXE módszer korlátozó tényezője, hogy gyorsító alapú, ezért egyrészt drága az üzemeltetése, másrészt a mérőrendszer megtervezése és felépítése több évet vehet igénybe.

2.4.1. A PIXE módszer általános leírása

Az elemezni kívánt mintát részecskegyorsítóból előállított protonnyalábbal bombázzuk. A töltött részecske ionizálja a minta valamelyik atomját, ami azt jelenti, hogy az egyik belső héjről kiüt egy elektront. Az így keletkezett vakancia az atom egy magasabb energiájú héjáról származó elektronnal töltődik be. A két állapot közötti energiakülönbség a vizsgált atomra jellemző karakterisztikus röntgensugárzás formájában emittálódik, vagy az energia átadódik egy külső héj elektronjának, így az távozik az atomból (Auger-elektron). Az ionizáció több héjon is bekövetkezhet, így egyszerre több, különböző energiájú röntgenfoton távozik akár abban az esetben is, amikor egyetlen elemből áll a minta. Attól függően, hogy melyik héjon történt az ionizáció, illetve a lyuk melyik külső héjről töltődik be, karakterisztikus röntgenvonalakat (pl. K_{α} , K_{β} , L_{α} , L_{β} ,) különböztetünk meg [Johansson, 1988], melyek rendszere az 5. ábrán látható.

¹⁰ RBS: Rutherford Backscattering Spectroscopy (Rutherford-visszaszórás spektrometria).

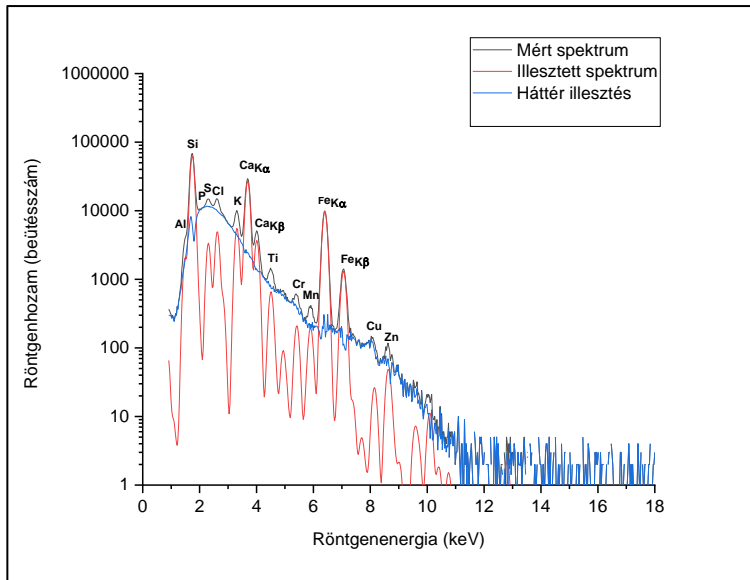
¹¹ PIGE: Particle Induced Gamma Emission (Részecske-indukált gamma emisszió).



5. ábra. Az elektronpályák és a főbb röntgenvonalak jelölésének sematikus ábrája.

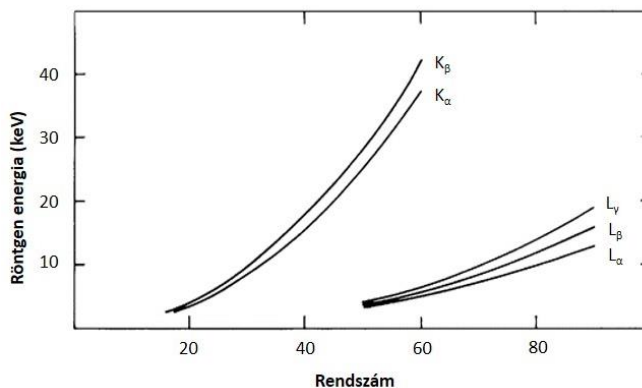
A röntgensugárzás energiája és a kibocsátó elem rendszáma közötti kapcsolat (Moseley-törvény) miatt, a karakterisztikus röntgensugárzás energiájának vizsgálatával azonosíthatók a minta alkotóelemei. Detektálásukra leggyakrabban lítium-driftelt szilícium Si(Li) detektort, illetve az utóbbi években egyre inkább elterjedt szilícium-driftelt félvezető detektort (SDD) alkalmaznak. A mintából röntgenfoton lép ki, amely a félvezető detektorban, annak anyagát alkotó szilícium atomokat ionizálja, így elektron-lyuk párokat kelt a detektor érzékeny részében. Az elektron-lyuk párok összegyűjtését a detektorra adott néhány száz voltos feszültség biztosítja. A detektor fontos jellemzője az energiafelbontása, amely a $Mn-K\alpha$ (5,9 keV) vonal energia-félértékszélességét (FWHM¹²) jelenti [Záray, 2019]. Ez általában 120–150 eV közötti, amellyel lehetőség nyílik az egymást követő elemek K vonalainak elkülönítésére. Erre példa a 6. ábra, melyen egy általam mért aeroszol minta spektruma látható. Az alkalmazott Si(Li) detektor detektálási határfoka energiafüggő. 0–3 keV közötti energiákon a hatásfok csökkenése a detektor ablakban történő abszorpciós veszteségnek köszönhető. 20 keV fölött ezt a csökkenést a nagyobb energiájú röntgensugarak detektorban történő gyenge abszorpciója idézi elő.

¹² FWHM: Full Width at Half Maximum (félértékszélesség).



6. ábra. Régi villamoson mintavételezett durva frakciós aeroszol minta PIXE spektruma [GUPIX programmal illesztve].

A 7. ábrán látható, hogy a 47-nél kisebb rendszám tartományba eső könnyű és közepesen nehéz elemek esetében a K-röntgen vonalak, míg a nehéz elemek esetében az L-vonalak használatosak elem analitikai vizsgálatoknál.



7. ábra. Karakterisztikus röntgenenergia a rendszám függvényében [Johansson, 1988].

A 6. ábráról látható, hogy a karakterisztikus röntgensúcsok egy folytonos háttéren ülnek, amely a mintában lejátszódó belső gerjesztési folyamatok eredményeként jön létre. Ezek közé tartozik a protonok által keltett

szekunder elektronok fékezési sugárzása kis röntgenenergiák esetében; a mintában lassuló protonok fékezési sugárzása nagyobb röntgenenergiáknál (10 keV fölött); illetve a magreakciókból származó gamma-sugárzás Compton szórása. A három hatás közül a protonok által keltett szekunder elektronok fékezési sugárzása járul hozzá legnagyobb mértékben a folytonos háttérhez. A PIXE módszer adott kémiai elemekre vonatkozó kimutatási határát a következő összefüggés fejezi ki: [Koltay, 1992]:

$$N_p \geq 3\sqrt{N_b}, \quad (1)$$

ahol N_p a karakterisztikus röntgensúcsban lévő beütésszám, N_b a csúcs félértékszélességéhez tartozó háttér beütésszáma. Ahhoz, hogy egy csúcsot karakterisztikus röntgensúcsként lehessen azonosítani, az szükséges, hogy a háttér fluktuációjánál háromszor nagyobb legyen. Mindez alapján, ismert mátrixban, adott protonenergiára vonatkozóan a minimálisan detektálható koncentrációt a rendszám függvényében lehet megadni.

Johansson és munkatársai egy vékony szerves mintát vizsgáltak és kimutatták, hogy a PIXE elemanalitikai technika a $20 < Z < 35$ és a $75 < Z < 85$ tartományban a legérzékenyebb [Johansson, 1988]. Megfelelő érzékenységet alacsony energiájú protonbesugárzás (2-4 MeV) során lehet elérni, mely előállításához a kisenergiájú (pl. Van de Graaff- vagy Tandetron típusú) gyorsító alkalmas. A PIXE módszer abszolút detektálási határa 10^{-9} – 10^{-12} g (a minta jellegétől, vastagságától és a nyaláb méretétől függően), a detektálás bizonytalansága pedig 5–10% közé tehető. Lehetőség van a nyalábméretet mikronos méretűre csökkenteni, ebben az esetben a mikro-PIXE elnevezést alkalmazzuk. Néhány mikrométer térbeli feloldás során az abszolút detektálási határ a 10^{-15} – 10^{-16} g-ot is elérheti.

2.4.2. A PIXE módszer alkalmazása az Atommagkutató Intézetben

A PIXE módszer alkalmazásának kezdete óta az Atommagkutató Intézetben lehetőség van különféle környezeti-, geológiai- és régészeti minták vizsgálatára. Ehhez háromféle PIXE-mérőrendszer lett kiépítve: makro-PIXE [Borbélyné-Kiss 1997], mikro-PIXE [Kertész, 2013] és levegőre kihozott nyalábos-PIXE [Török, 2015]. Ezek a mérőhelyek az ATOMKI 5 MV-os Van de Graaff típusú gyorsítójának különböző

nyalábszatórnáira lettek installálva. A legújabb kihozott nyalábos milli-PIXE-rendszer [Aljboor, 2023] már az új Tandetron gyorsítónál üzemel, azonban a dolgozatomban bemutatott eredményekhez az aeroszol minták tömbi analízisét¹³ még a régi Van de Graaf gyorsító baloldali, 45°-os nyalábszatórnájára telepített makro-PIXE mérőkamrában végeztük, így a következőkben ennek bemutatására szorítkozom.

Az aeroszol minták tömbi analíziséhez használt makro-PIXE rendszert Borbélyné Dr. Kiss Ildikó vezetésével építették ki az Atommagkutató Intézetben, az 1980-as években [Borbélyné-Kiss, 1997, 1999]. A mérőrendszer fő részei a kollimátor, valamint a mintatartóval és detektorral felszerelt analizáló kamra. Az alábbiakban ezen egységeket mutatom be. A minta besugárzásához megfelelő méretű és intenzitású proton nyaláb szükséges. Ennek biztosítása érdekében a gyorsítóból érkező nyaláb először réspáron és nikkell szórófolián halad keresztül. Ez biztosítja a nyaláb homogén intenzitáseloszlását. A kollimátor közvetlenül a PIXE kamra előtt található, melynek két szerepe van. Egyrészt részt vesz a nyalábvezetésben, másrészt a kollimátor elektródáira adott pozitív és negatív feszültségekkel kiküszöbölhető a blendék élein keletkezett szórt protonok és szekunder elektronok árammérést zavaró hatása. A kör alakú blendék 4 és 8 mm átmérőjűek voltak.

A kollimátor rendszeren való áthaladás után a nyaláb az alumíniumból készült analizáló kamrába lép be, melyben mintatartó, röntgendetektor, elektronforrás és szupresszor található. A kamrában egyszerre több minta elhelyezésére és mérésére is van lehetőség, a kamra vákuumának megbontása nélkül. A röntgen fotonok detektálása a kamrában egy Canberra típusú Super Si(Li) detektor (modell szám: SSL 30150) segítségével történik. A detektor ablaka 25 μm vastagságú berillium, aktív felülete 30 mm^2 és energia feloldása a Mn $K\alpha$ 5,895 keV-os röntgen vonalára 150 eV [Canberra, 2005]. A detektor elhelyezése a nyaláb irányához képest 135°-os szögben történt. Ez a pozíció biztosítja a szekunder elektronok háttérnövelő hatásának csökkentését. Mérés közben a mintáról szóródó protonok kedvezőtlen hatással vannak a detektorra,

¹³ A tömbi analízis tömeges analízist jelent, ahol a jelek forrása a tömbi anyag és nem a felület.

ugyanis növelik a detektor holtidejét¹⁴, valamint károsítják a detektort, így csökkentve élettartamát. A káros hatások mérséklése érdekében egy 24 μm vastag Mylar-fólia van elhelyezve a detektor előtt. A fólia miatt azonban a kis energiájú röntgenvonalak elnyelődnek, így az alumíniumnál kisebb rendszámú elemeket nem lehetséges detektálni. Ezen kamra további jellemzője, hogy a szigetelő minták (pl. aeroszol) elektromosan feltöltődhetnek, ami háttérnövekedést eredményez. Ennek megelőzésére elektronforrást alkalmazunk mérés közben.

A PIXE analitikai módszerrel végzett aeroszol méréseknél kulcsfontosságú, hogy a mintára eső protonok összes töltésmennyiségét meg tudjuk mérni. Az általunk használt mérőkamra teljes egészében el van szigetelve a nyalábsatornától, így a kamrával lehetséges a mintát érő protonáram integrált mérésére. A valódi áram méréséhez ki kell küszöbölni a szekunder elektronok okozta zavaró effektust, melyet a minta közelében elhelyezett negatív potenciálú szupresszor elektródákkal valósítottunk meg.

PIXE méréseim során 2 MeV-os protonokból álló nyalábot alkalmaztunk. A nyaláb áramerőssége $\sim 30\text{--}50$ nA volt, a mintákról felvett spektrumokat pedig 40 μC össztöltés eléréséig gyűjtöttük, ami nyalábáramtól függően 15–20 percig tartott.

2.4.3. Koncentráció meghatározás

A koncentráció meghatározás alapja a PIXE spektrumban látható K- és L-röntgensúcsok alatti nettó terület és a mintában lévő elemek mennyisége közötti összefüggés. A mennyiségi meghatározáshoz számos PIXE-spektrum kiértékelő szoftver áll rendelkezésre, például a PIXAN [Clayton, 1987], a GEOPIXE [Pallon, 2009] és a PIXEKLMTPI [Uzonyi, 2005]. Doktori munkám során a spektrumok kiértékeléséhez két szoftvert alkalmaztam. Az egyik a Dr. Szabó Gyula által 1993-ban kifejlesztett PIXEKLMTPI program (9.0 verzió) [Szabó, 1993 és 2009], a másik a GUPIX (2.2.4 verzió) [Campbell, 2011] program. A szoftverek segítségével végrehajtottam a spektrumillesztést, illetve megtörtént a K-, L-, M-

¹⁴ Holtidő: A holtidő a detektorban lejátszódó folyamatokhoz, valamint a keletkezett elektromos impulzusok feldolgozásához szükséges időt jelenti.

vonatokra az ionizációs-, az effektív röntgenkeltési hatáskeresztmetszetek és az abszolút koncentrációk kiszámítása. A programok figyelembe veszik a különböző kiértékelést zavaró hatásokat, úgymint a jelfeldolgozó rendszer holtidejét, a pile-up¹⁵ és az escape¹⁶ effektusokat. A koncentráció meghatározás szempontjából kulcsfontosságú, hogy milyen vastagságú mintával rendelkezünk. Vékony, homogén minta esetén a mátrixhatások elhanyagolhatók, így az E_b energiájú proton energiavesztése és az l elem gerjesztésekor keletkező m -vonaltú röntgensugárzás abszorpciója a minta anyagában (önabszorpció) elhanyagolható. Vékony minta (pl. aeroszol) esetén a csúcs alatti területet, vagyis az l elem m vonalának röntgenhozamát a következő kifejezés adja meg [Szabó, 1993]:

$$Y_{lm} = N_p \Omega C_l \frac{N_A}{M_l} \varepsilon E_{lm} T(E_{lm}) \frac{\sigma_{lm}(E_b)}{\cos \alpha} F dx, \quad (2)$$

ahol N_p a protonok száma, Ω a detektor térszöge, C_l és M_l az l elem koncentrációja és atomi tömege, N_A az Avogadro-szám, E_{lm} az l elem m karakterisztikus röntgenvonalának energiája, $\varepsilon(E_{lm})$ a detektor hatásfoka, $T(E_{lm})$ a minta és a detektor közötti abszorbens transzmissziója, $\sigma_{lm}(E_b)$ a röntgenkeltési hatáskeresztmetszet E_b bombázó energiánál, α a minta normálisa és a nyáláb által bezárt szög, $F dx$ a minta vastagsága g/cm^2 -ben. Bevezetve a röntgenkeltési hatáskeresztmetszet definíció szerinti jelölését:

$$W_{lm} = \varepsilon E_{lm} T(E_{lm}) \frac{\sigma_{lm}(E_b)}{\cos \alpha}, \quad (3)$$

így a (2) összefüggés a következőképpen írható le:

$$Y_{lm} = N_p \Omega C_l \frac{N_A}{M_l} W_{lm} F dx, \quad (4)$$

Ebből következően a spektrumillesztés után a mintában az l elem abszolút koncentrációja g/cm^2 -ben megadható:

$$C_l F dx = \frac{Y_l M_l}{N_p N_A \Omega W_l}, \quad (5)$$

¹⁵ Pile-up csúcs akkor alakul ki, amikor két röntgenfoton olyan rövid időn belül érkezik a detektorba, hogy az elektronika nem képes megkülönböztetni. A spektrumban megjelenő pile-up csúcs energiája megegyezik a két foton energiájának összegével.

¹⁶ Escape (szökési) hatás: A detektorban végbemenő fotoelektromos hatás következtében a kálium röntgensugárzás megszökését jelenti. A spektrumban az escape csúcsok az eredeti fotonenergiánál a szilícium kálium energiájával kisebb energián jelennek meg.

Az 5. egyenlet alapján megállapítható, hogy a PIXE technikával az elemkoncentráció meghatározáshoz – amennyiben ismert a röntgenkeltési hatáskeresztmetszet és a mérési geometria – a mintára eső protonok töltésmennyiségét és a röntgenhozamokat is kell mérni.

2.5. Egyedi részecskék vizsgálata pásztázó elektronmikroszkóppal

Egyes tömegközlekedési eszközökön gyűjtött aeroszol mintákon a PIXE mérést követően morfológiai és elemanalitikai vizsgálatokat végeztünk az Atommagkutató Intézet Örökségtudományi Laboratóriumában található Jeol JSM-IT500HR típusú pásztázó elektronmikroszkóppal. Az általam gyűjtött minták mérése során az elektronmikroszkópot visszaszórt elektron (BSE), szekunder elektron (SE), valamint röntgen (EDS) spektrum gyűjtésére alkalmas üzemmódban is használtuk. Alacsony vákuum módban 50 Pa nyomás, valamint 10 kV gyorsító feszültség mellett zajlottak a vizsgálatok.

Összehasonlítva a PIXE és a SEM/EDS módszereket, több hasonlóságot is meg lehet említeni, mivel mindkét analitikai módszer a röntgensugárzás emisszióján alapul és az anyagok összetételének elemzésére is alkalmas. A különbség az, hogy a PIXE esetében ionnyalábbal, míg a SEM analízis során elektronnyalábbal történik a minta gerjesztése. A protonok előnye az elektrongerjesztéssel szemben, hogy jóval kevesebb fékezési sugárzást váltanak ki a mintából, mint az elektronok (megközelítőleg fordítottan arányosan a részecskék tömegével). Ennek köszönhetően a háttér kisebb lesz a spektrumban, ami kisebb kimutatási határt eredményez. [Záray, 2019]. Mindkét módszer jellemzője, hogy szimultán és gyors analízist tesz lehetővé. A PIXE módszerhez hasonlóan SEM is „roncsolásmentes”, amennyiben környezeti minták vizsgálatához alkalmas készülékkel, alacsony vákuum üzemmódban (néhány 10 Pa nyomás mellett) zajlik az aeroszol minták analízise. Ebben az esetben nem szükséges vezető réteget párologtatni az aeroszol-mintára, ebből következőleg további analízis végezhető a mintán. Ebben az esetben a PIXE módszerhez hasonlóan, nincs szükség minta-előkészítésre. A PIXE analízist levegőre kihozott töltött részecske-nyalábbal is lehet végezni, ezzel szemben SEM vizsgálat csak vákuumban valósulhat meg. Ebben az esetben a mérőkamra mérete korlátozza a vizsgálandó minta nagyságát.

3. Alkalmazott légköri modellek és statisztikai módszerek

Amióta felismerték, hogy a légkörbe került szennyezőanyagok sok esetben nem a kibocsátó forrásukhoz közel, hanem attól távoli helyeken okoznak problémákat, a szennyezőanyagok nagytávolságú transzportjának vizsgálatára megkezdődött a különféle diszperziós- és kémiai transzport modellek fejlesztése. A légköri aeroszol, illetve a különböző légköri komponensek forrásterületeinek meghatározására és a lehetséges terjedési útvonalak modellezésére a legelterjedtebb szoftverek közé tartozik a FLEXPART (FLEXible PARTicle dispersion model), a NAME (Numerical Atmospheric-dispersion Modelling Environment), és a HYSPLIT (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory model).

3.1. A HYSPLIT modell

A dolgozatban alkalmazott HYSPLIT modellt széles körben használják szennyeződések terjedésének, valamint különböző kémiai komponensek légköri transzportjának és ülepedésének szimulációjára, vizsgálatára. A modellt az Amerikai Óceán- és Légkörkutató Intézet Légköri Kutatólaboratóriuma (NOAA ARL) fejlesztette ki. A jelenlegi 4-es verziót Draxler és Hess dolgozta ki 1998-ban [Draxler, 1998]. A modell előre jelzések készítésére is alkalmazható (forward mód), például erdőtüzek füstjének terjedési irányainak meghatározásával [Rolph, 2009]. Emellett korábbi események, például szél által fújt por [Gaiero, 2013] terjedésének elemzésére is használják, visszafelé számolt (backward mód) trajektóriákkal. A szoftverrel lehetséges több trajektóriából klaszterek, valamint frekvenciatérképek készítése, így hosszabb idő intervallumban jelölhetők ki a domináns forrásterületek, a terjedési irányok és azok valószínűsége [Draxler, 1998; Stein, 2015]. A modell hátrányai között említhető, hogy nem tud másodlagos kémiai reakciókat figyelembe venni, a pontosságát nagymértékben befolyásolja a meteorológiai adatok felbontása, amely az esetek többségében nem haladja meg a 0,5 °-os térbeli

felbontást (~55·55 km/rács), valamint komplex terepfelszín esetében jelentős a bizonytalansága.

A modell számítási módszere hibrid a Lagrange-féle megközelítés és az Euler-módszer között. Előbbi mozgó vonatkoztatási rendszert használ az advekciós és diffúziós számításokhoz, ugyanis a trajektóriák vagy a légtömegek elmozdulnak a kiindulási helyükről. Az utóbbi pedig egy rögzített háromdimenziós rácsot alkalmaz vonatkoztatási rendszerként a szennyezőanyag-koncentrációk kiszámításához [Stein, 2015].

3.1.1. A HYSPLIT modell bemenő adatai

Az 5.4. fejezetben bemutatott forrásterület meghatározáshoz, időben 96 órára visszamenőleg trajektóriákat futattam a HYSPLIT modellel. A modellek futtatását minden mintavételi napra (2015. január és augusztus között) és minden városra vonatkozóan végrehajtottam úgy, hogy a mintavétel kezdetétől számítva 4 és 16 órával indított futtatást vettem figyelembe. Ehhez a 0,5^o-os térbeli felbontású Global Data Assimilation System (GDAS) meteorológiai adatbázist alkalmaztam. Minden esetben három magasságból indítottam a számításokat (tengerszint felett 200 m, 500 m, 1000 m) az alapértelmezett függőleges irányú sebesség modellezésének alkalmazásával (model vertical velocity). A keveredési rétegvastagság (planetáris határreteg) a földfelszíntől számított mintegy 1000 méteres magasságig terjedő réteg, melyben az időjárási jelenségek zajlanak. Ebből következően eddig a magasságig számolt trajektóriákat alkalmaztam.

3.2. Statisztikai módszerek backward trajektória elemzéshez (Trajectory Statistical Methods-TSM)

Az időben visszafelé indított trajektóriák lehetőséget nyújtanak a receptor területek modellezésére, ugyanis alkalmazásukkal meghatározhatók a főbb emissziós források helyszínei. Mindez azonban csak statisztikailag elegendő mennyiségű trajektória esetén valósítható meg. Több hónapra és évre vonatkozó trajektória elemzés során már lehet olyan megfigyeléseket tenni, hogy mely földrajzi terület van leginkább

összefüggésben megemelkedett tömeg- vagy elemkoncentrációkkal [Fleming, 2012]. Három főbb módszertani kategóriát különböztetünk meg:

- Klaszteranalízis (Cluster Analysis - CA).
- Tartózkodási idő analízis (Residence Time Analysis - RTA), mely kategóriába tartozik a Potenciális forrás-hozzájárulás függvény (Potential Source Contribution Function - PSCF).
- Koncentrációs terület analízis (Concentration Field Methodology - CFM), mely kategóriába tartozik a Koncentrációval súlyozott trajektória (Concentration Weighted Trajectory - CWT).

A dolgozatban az utóbbi két módszert alkalmaztam a finom frakciós kén és a durva frakciós klór földrajzi eredetének azonosítására magyarországi nagyvárosokban. A PSCF és CWT módszerekhez az OPENAIR programot (2.6-6-os verzió) használtam [Carslaw, 2012 és 2019], mely egy hatékony eszköz a légszennyezési adatok és visszafelé számolt trajektóriák elemzésére.

Potenciális forrás-hozzájárulás függvény (PSCF)

Tekintettel arra, hogy a visszafelé számolt trajektóriákkal csak azt lehet meghatározni, hogy a légtömegek mely irányból érték el a receptor területet, a PSCF módszert széles körben alkalmazzák a legvalószínűbb forrásterületek azonosításához. A potenciális forrásterület $i \times j$ rácscellákra van osztva, ami $0,5^\circ \cdot 0,5^\circ$ szélességi és hosszúsági fokot jelent. A PSCF érték a kérdéses légtömeg tartózkodási idejének valószínűségét jelenti az ij cellára vonatkozóan [Li, 2012], mely a következő összefüggéssel adható meg:

$$PSCF_{ij} = \frac{m_{ij}}{n_{ij}}, \quad (6)$$

ahol i és j a rácspont koordinátái, n_{ij} a vizsgálati időszak alatt az ij -rácshálóból kiinduló pályák száma, m_{ij} azon trajektóriák száma, amelyek egy meghatározott kritériumértéknél magasabb szennyezőanyag-koncentrációval érkeztek a receptorterületre. Vizsgálataimban a $PM_{2,5}$ és PM_{durva} koncentrációk 75%-át alkalmaztam küszöbértékként.

m_{ij} az ugyanabban a cellában lévő trajektória végpontok száma, amelyek a küszöbértéknél nagyobb koncentrációjú mintákhoz köthetőek. A vizsgálataim során a küszöbérték 75% volt.

Koncentrációval súlyozott trajektória (CWT)

A CWT modell alkalmazásával különbséget lehet tenni az erős és a gyenge források között. A PSCF modell esetében a rácscellákban eltöltött idő vizsgálható, azonban a módszer nem tud különbséget tenni ugyanabban a cellában kis- és nagy koncentrációk között. Ez azt jelenti, hogy a rácscellák ugyanazzal az értékkel rendelkeznek akkor is, amikor a minta koncentrációja kis mértékben vagy jóval meghaladja a küszöbértéket [Hsu, 2003]. Ennek okán érdemes ezeket a vizsgálatokat kiegészíteni olyan modellel, melyben a szennyezőanyagok forrásvidékei azonosíthatók. A PSCF módszerhez hasonlóan rácsos tartományt alkalmaztak, melyben minden egyes rácscellára vonatkozóan az átlagos koncentrációt a következőképpen számították ki [Seibert, 1994]:

$$C_{ij} = \frac{1}{\sum_{l=1}^N T_{ijl}} \sum_{l=1}^N C_l T_{ijl}, \quad (7)$$

ahol C_{ij} az átlagos koncentráció az ij cellában, l a trajektória index, N az összes trajektória száma, C_l az l trajektória érkezésekor mért koncentráció, T_{ijl} az l trajektória ij cellában ténylegesen eltöltött idejét jelenti.

3.3. NCEP-GEFS modell

A receptorterületen észlelt poresemények vizsgálatokor a HYSPLIT trajektóriák mellett jól alkalmazhatók a különböző aeroszol optikai mélység és felületi por koncentráció térképek. A Nemzeti Környezetvédelmi központ (NCEP) és a Globális Előrejező Rendszer (GEFS) együttes tagjaként jött létre ez a modell. A por modellezés esetében az 5 napos előrejelzés mellett több évre vonatkozóan visszamenőleges futtatásokra is lehetőség van. A NCEP-GEFS képes modellezni a Föld felszínén a légköri por-részecskék koncentrációját, valamint az optikai mélységet a meteorológiai adatok alapján. A modell a 0,5°-os térbeli felbontású Global Data Assimilation System (GDAS) meteorológiai

adatbázisát alkalmazza. [Lu, 2016]. A modell egy FENGSHA néven ismert porkibocsátási sémát alkalmaz [Shao, 1993, Owen, 1964], melyet a következő összefüggéssel lehet megadni:

$$F = \sum_{j=1}^N K \cdot A \cdot \frac{\rho}{g} \cdot u(u^2 - u_{tj}^2), \quad (8)$$
$$u > u_{tj}$$

ahol N a talajtípusok száma egy adott rácscellában, K a függőleges és a vízszintes kibocsátási fluxus aránya, A a részecskék „elérhetőségét”, ρ a levegő sűrűségét, g a gravitációs gyorsulást, S a talaj erodálhatósági potenciálját, u a súrlódási sebességet, és az u_{tj} j talajtípusra vonatkozó súrlódási küszöbsebességet jelenti [Shao,1993]. A porkibocsátás csak akkor kerül kiszámításra, ha a súrlódási sebesség meghaladja a földhasználati típusra és a talajszerkezetre meghatározott küszöbértéket. A súrlódási küszöbsebességek laboratóriumban és terepen végzett szélcsatorna-méréseken alapulnak [Gillette, 1980].

3.4. Spearman korreláció

Különböző statisztikai módszereket lehet alkalmazni annak a kérdésnek a megválaszolására, hogy két változó között milyen összefüggés van és milyen azok nagysága. A Pearson és a Spearman korrelációt általánosan alkalmazzák ennek meghatározására. Számos hasonlóság van a két statisztikai módszer között, ugyanis mindkét korrelációs módszer azt méri, hogy két változó között milyen erős és milyen irányú az összefüggés. Mindkét korrelációs együttható (r_s) értéke -1 és +1 közötti intervallumban változik. Minél közelebb van az r_s értéke a két szélsőértékhez, annál erősebb a kapcsolat. A nullához közeli értékek az összefüggés hiányát jelzik. A pozitív előjelű korrelációs együttható a két változó között azonos irányú összefüggést jelöl, míg a negatív előjelű a két változó közötti ellentétes kapcsolatot mutatja. A két módszer közötti különbségek közé tartozik, hogy a Pearson korreláció a változók lineáris összefüggésén alapul, illetve az adatok közvetlen értékeit alkalmazza. Ezzel szemben a Spearman módszer a változók rangjait használja és kiugró értékekkel rendelkező adathalmaz esetén is alkalmazható. Összességében a Pearson korrelációt abban az esetben érdemes választani, ha a változók lineárisan összefüggenek és normális eloszlást mutatnak. Amennyiben a változók

közötti összefüggés nem lineáris, vagy ha az adatok nem követik a normális eloszlást, illetve kiugró értékeket is tartalmaznak, akkor a Spearman korreláció alkalmazása előnyösebb. Épp ezért jó választás a léggöri aeroszol esetében, melyre lognormális eloszlás és gyakran előforduló kiugró mérési adatok jellemzők.

A Spearman rangkorrelációt a következő összefüggés alapján határozhatjuk meg:

$$r_s = 1 - \frac{6\sum d_i^2}{n(n^2-1)}, \quad (9)$$

melyben r_s a Spearman rangkorreláció, d_i a két változó rangjainak különbsége, n az elemek darabszáma [Kendall, 1955; Müller, 1988].

4. Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön

Számos epidemiológiai tanulmány talált összefüggést a városiasodott területeken a közlekedési eredetűként azonosítható légszennyezés okozta szív- és érrendszeri, valamint a légzőszervi károsodások, illetve halálozások között [Madsen, 2012; Vahedian, 2017]. A levegőszennyezettség okozta egészségügyi hatásokat rögzített elhelyezésű mérőpontok adatai alapján állapítják meg [Özkaynak, 2013], azonban a valós személyi expozíció függ a helytől, tevékenységtől és a kitettség hosszától [Bekö, 2015]. A tapasztalatok azt mutatják, hogy a forgalmas utak mentén elhelyezett mérőállomásokon észlelt koncentrációk általában alábecsülik a valós személyi expozíciót.

A nagyvárosokban a tömegközlekedés több, mint 100 éve fontos szerepet játszik az emberek életében. Magyarországon a lakosság 80%-a napi rendszerességgel utazik, közülük 20% pedig valamilyen tömegközlekedési eszköz igénybevételével [KSH, 2010]. Kutatások alapján Európában a lakosok jellemzően napi idejük 5–8%-át töltik utazással [Hänninen, 2005; Faria, 2020], Magyarországon pedig átlagosan 6%-át. [KSH, 2010]. Mindennek ellenére ennek a rövid időszaknak a hozzájárulása jelentős a teljes PM expozícióhoz. A sofőrök és utasok expozíciójának vizsgálata során különböző típusú tömegközlekedési eszközökön (busz, villamos, metró, vonat) nagy tömegkoncentrációt észleltek a járműveken, mely jelentős személyi kitettséget eredményezett [Chan, 2002; Kumar, 2016; Martins, 2021]. A közlekedésből származó kültéri aeroszol-részecskék bejuthatnak a tömegközlekedési eszközök légterébe és a már meglévő beltéri szennyezőkkel feldúsulva, magasabb koncentrációkat eredményezhetnek [EEA, 2013]. Ebből következően mind a járművezetőt, mind az utasokat magas aeroszol koncentrációnak (akár a 24-órás kültéri PM₁₀ határérték többszörösét) teheti ki az utazás, ezáltal a légszennyező anyagoknak való kitettség az egy órás vagy annál rövidebb utazási időtartam alatt releváns egészségügyi kockázatot jelenthet [Michaels, 2000]. A közlekedési eredetű légszennyező anyagok személyi expozícióra gyakorolt hatása lényegesen jelentősebb a nagy forgalmú városrészekben, mint a kevésbé frekvenciált területeken. Így a közösségi

közlekedési eszközök utastérben tapasztalható aeroszol-szennyezettség vizsgálata továbbra is fontos közegészségügyi kérdésnek számít a forgalmas övezetekben.

A fejezet első részében áttekintést adok a városi tömegközlekedés magyarországi fejlődéséről és a mintavételi körülményekről, a továbbiakban pedig bemutatom a 2012–2014-es mintavételi időszak során az általam gyűjtött minták analízisének eredményeit, melyek különböző tömegközlekedési eszközökről származtak Debrecenből és Budapestről. A fejezet második részében tárgyalom a debreceni villamosokon 2017–2018-ban gyűjtött aeroszol minták elemzésének eredményeit.

Tudomásom szerint kutatómunkám a közép-európai régióban az első olyan tanulmányok közé tartozik, melyben tömegközlekedési eszközök beltéri aeroszol szennyezettségét vizsgálja utazás közben. Továbbá ebben a régióban ez az első olyan kutatás, melyben a detektált elemek tömeg szerinti méreteloszlásának elemzése is megtörtént.

4.1. Tömegközlekedés a városokban

A XIX. században a világ nagymértékű technikai fejlődésen ment keresztül, mely Magyarországra is jelentős hatást gyakorolt. A budapesti városvezetés úgy gondolta, hogy a város világvárosi jellegét nagyban emelné egy új közlekedési eszköz forgalomba helyezése. A tervet 1896-ban megvalósították, mivel megépült Európa első villamosított metró vonala az Andrásy út és a Városliget között, melyet Milleniumi Földalatti Vasútnak neveztek el [Budapesti Hírlap, 1896]. A népesség létszámának töretlen növekedése következtében a közlekedési hálózat bővítése igen lényeges kérdéssé vált és folyamatosan újabb és újabb beruházásokat igényelt. Jelenleg már négy metróvonallal rendelkezik a főváros, valamint számos villamos-, autóbusz-, trolibusz- és HÉV járáttal [BKV].

A vidéki Magyarországon a közösségi személyszállítás megindulásához nagyban hozzájárult az 1857-ben átadott, Debrecen a fővárossal összekötő vasútvonal, elsősorban amiatt, hogy távolabbról jobb minőségű útburkoló anyagot tudtak a városba szállítani [Ács, 1976]. Ennek hatására lóvasutat tervezett Debrecen, mellyel a közlekedés 1884-ben indult meg személy- és teherforgalommal egyaránt. A pályát két kitérővel és tizennégy megállóhellyel építették ki, a Nagyállomástól egészen a Nagyerdőig. Az 1900-as évek elején tárgyalások kezdődtek a gőzüzemű vontatás megvalósításáról és az országban elsőként Debrecenben indulhatott meg a gőzvasút. A villamosközlekedés további három pálya kiépítésével 1911-ben kezdődött meg, összesen 4 vonalon és 18 db Rába-Siemens-Schuckert típusú motorkocsival [DKV]. 1926-ban a villamossal történő személyszállítást már kiegészítette két Rába LHO autóbusz, melyekkel 3 vonalon indult meg a közlekedés azokba a városrészekbe, ahová a villamosok nem közlekedtek. A II. világháború idején a bombázások következtében jelentős károkat szenvedett a villamos- és busz állomány, a pályák és az utak egyaránt. A háború után megkezdődtek a helyreállítási munkák, ugyanakkor a rombolás lényegesen visszafogta a közlekedési fejlődés ütemét. A busz közlekedés az 50-es években kezdett igazán elterjedni hazai gyártású Ikarus buszokkal, melyekre kis méret és állandó zsúfoltság volt jellemző. Az új buszok üzembeállításával a korábbi 3 útvonalat 5-re bővítették. Az egyre növekvő lakossági igények miatt új

Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön

villamosvonalak létesítése történt, ennek eredményeképp az 50-es évek közepére már hét villamos vonallal rendelkezett a város [Völgyi, 2012]. Habár a kis befogadóképességű villamosokat nagyobb kapacitású FVV (Fővárosi Villamosvasút) járművekre cserélték, nyilvánvalóvá vált, hogy a teljesen tönkrement pályák felújítása nem tűr halasztást. 1975-ig magas fenntartási költségekre hivatkozva hat vonalat felszámoltak és a továbbiakban csak a vasútállomást az egyetemmel összekötő, legnagyobb forgalmú 1-es vonalon folytatódott a közlekedés. 1976-ra a buszközlekedés nagyobb fejlődésen esett át, ekkor már 34 vonalon közlekedtek autóbuszok [Völgyi, 2012]. 1985-ben indult el 2 vonalon a trolibusz közlekedés, majd 1988-tól kezdve 3 útvonalon történik személyszállítás mind a mai napig [Szűcs, 2004]. Kezdetben ZIU típusú trolibuszokat alkalmaztak, majd a járműpark korszerűsítésével 2005-től a jelenleg is közlekedő Ganz Solaris Trollino 12 típusú járművek közlekednek [DKV]. A 90-es évek elején tárgyalások folytak új villamoskocsik beszerzéséről és 1997-ben 11 db Közúti Csuklós Villamost (KCSV-6 1S) adtak át [Szűcs, 2004]. Tíz évvel később megállapodás született a 2-es villamosvonal kiépítésére, mely a tervek szerint a Nagyállomás és a Doberdó utca között közlekedő 31-es buszjárat kiváltására irányul az egyre jelentősebb dugók és környezetszennyezési problémák megoldására. 2014-ben átadták a 2-es vonalat, melyhez 18 db Construcciones y Auxiliar de Ferrocarriles S. A. (CAF Urbos 3) típusú alacsony padlós, klimatizált villamost szerzett be a város. 2009-ben a buszállományban is korszerűsítést vittek végbe új VOLVO B9L-ALFA CIVIS 12-18 autóbuszok vásárlásával [DKV]. Ebből a típusból még számos jármű közlekedik ma is, de a fejlesztések állandóan zajlanak, 2022-től kezdődően folyamatosan cserélik a járműveket modernebb Mercedes-Benz gyártmányú buszokra.

4.2. Mintavétel tömegközlekedési eszközökön

Az aeroszol kitettség¹⁷ jellemzésére gyűjtöttem mintákat utazás közben különböző típusú tömegközlekedési eszközökön: Debrecenben helyi autóbuszon, trolibuszon, régi villamoson, új villamoson, Debrecen és Budapest között közlekedő Intercity (IC) vonaton és a budapesti 3-as számú metróon (8. ábra). Ezzel párhuzamosan városi háttérterületen, az ATOMKI-ben kültéri mintavételezés történt, annak érdekében, hogy összehasonlítást tudjak végezni a járműveken tapasztalható és a külső levegő szennyezettsége között.



8. ábra. Térkép a vizsgált közlekedési vonalokról, a városi háttérterületekről (ATOMKI, Országos Légszennyezettségi Mérőhálózat (OLM) mérőpontok) Debrecenben; Debrecen és Budapest közötti vasútvonal, valamint a budapesti 3-as metró vonala.

A vizsgált időszakokban (2012, 2014) Debrecen közlekedési hálózatát 2 villamos-, 3 trolibusz- és 60 buszvonala alkotta. A vizsgált helyi buszok (Volvo B9L-Alfa Civis 12–18) 2009 óta közlekednek, a trolibuszok (Ganz Solaris Trollino 12) pedig 2005 óta. Mindkét jármű rendelkezik előre programozható hűtő- és fűtő rendszerrel, valamint Euro 4 és Euro 5 dízelmotorokkal. A mintavétel idején, a buszokon és trolibuszokon nem működtették a klímát, így az ablakok biztosították a hűtést és a szellőzést, ahogy ez a nyári időszakban általában jellemző. A villamos járatok

¹⁷ Kitettség: valamilyen fizikai, kémiai vagy egyéb hatásnak, például a levegőben lévő szennyezőanyagoknak való kitettség. A környezetet szennyező anyagok esetében a kitettséget a környezetbe kikerült vegyi anyag mennyisége, illetve koncentrációja jelenti [Körinfó].

esetében két típus közlekedik menetrendszerűen, az egyik a KCSV-6 1S (továbbiakban KCSV vagy régi típus), a másik pedig a CAF Urbos 3, (továbbiakban CAF vagy új típus) villamos. A régi villamosok 1997 óta, míg az újak 2014 óta állnak szolgálatban az új CAF típusok rendelkeznek modern hűtő-, fűtő- és szellőztető egységekkel, melyeket az időjárási viszonyok szerint előre beprogramoznak, viszont az ablakok nem nyithatók az utasok által. A régi villamoson, a jármű tetején helyezkedik el a központi szellőztető- és fűtő berendezés. A téli időszakban óránként 37-szer, nyáron pedig 24-szer valósul meg a teljes levegő csere a villamoson, a hűtés pedig az ablakokon keresztül biztosított [DKV]. A vizsgált Intercity személykocsikat (BP 20–67) 1970 és 1971 között gyártották, majd 1994 és 2000 között felújításon mentek keresztül [Vonatösszeállítás, 2014]. A vagonok légjavító és hűtő berendezéssel ellátottak. A légcserre kizárólag a szellőztető rendszeren keresztül történik, mivel az ablakok csak a vasúti személyzet által nyithatók. Budapest főváros lévén számos busz, trolibusz, villamos és metró hálózattal rendelkezik, azonban a dolgozatban csak a metróvonalakat tárgyalom. A jelenleg négy metróvonallal rendelkező Budapesten kutatásom során a 3-as számú metróvonalon (M3) vizsgáltam, amely a leghosszabb a maga 16,3 km hosszúságával. A vizsgált metró kocsik (Ev 3 típus) 1976 óta üzemeltek egészen 2016-ig. A metró szerelvényhez nem tartozik hűtőegység, így a szellőztetés és a hűtés elsősorban a kocsik tetején található nyílásokon keresztül történik, a metró alagút pedig saját szellőztető berendezéssel rendelkezik [BKV].

A mintavételek időpontjait, az alkalmazott mintavevőket és a mintagyűjtés során mért frakciókat az 2. táblázat foglalja össze. Az aeroszol gyűjtéséhez a 2.1. fejezetben ismertetett kétfokozatú személyi mintavevőt és négyfokozatú kaszkád impaktort használtam körülbelül 150 cm-es magasságban. A kétfokozatú mintavevőnél a térfogatáram 3 l/min, míg a kaszkád impaktor esetében 8,3 l/min volt. A vizsgálatokhoz szükséges elegendő aeroszol-részecske mennyiség gyűjtéséhez a mintavevők átlagosan 3–4 órán keresztül üzemeltek. A kampányok alapvetően száraz és csapadékmentes időben zajlottak. 2012–2014-ben a mintagyűjtés csúcsidejében délután egy és öt óra között történt. A hőmérséklet 2012-ben a vizsgált időszakban +25–30 °C között, míg 2014-ben +20–25 °C között alakult. A 2017–2018-as mintavételi kampányban a

Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön

fűtési (téli) szezonban 5db, míg a nem fűtési (nyári) időszakban 4db mintavétel történt. A fűtési szezonnak az október 15. és április 15. közötti hivatalos időszakot tekintetem. Ebben az esetben a gyűjtés a délelőtti órákban 8–12 óra között valósult meg. A téli mintavétel során a hőmérséklet -2 és +5 °C között, nyáron pedig + 20–25°C között változott. Az aeroszol minták tömegkoncentrációját mikromérleggel, míg a szűrőkre, illetve kapton fóliára gyűjtött minták elemösszetételét PIXE analitikai módszerrel határoztam meg mindkét mintavételi kampány során. Miután a 2012–2014-es mintavételi kampányok alatt gyűjtött durva frakciós minták esetében bizonyos szennyezőkre a tömbi analízis nem adott választ, így pásztázó elektronmikroszkóppal további vizsgálatokat végeztünk.

2. táblázat. A vizsgált járművek, mintavételi időpontok, alkalmazott mintavevők a 2012–2014-es és 2017–2018-as mintavételi kampányok ideje alatt.

Jármű	Dátum	Mintavevők típusa	Dátum	Mintavevők típusa
Helyi busz	2012.09.27	NP	2014.03.12	NP, impaktor
Trolibusz	2012.09.25	NP	2014.03.31	NP, impaktor
IC vonat	2012.10.01	NP	2014.03.20	NP, impaktor
Metró	-	-	2014.03.20	NP, impaktor
Régi villamos (1-es vonal)	2012.09.24	NP	2014.04.02	NP, impaktor
Új villamos (2-es vonal)	-	-	2014.03.13	NP, impaktor
Régi és új villamos	2017.11.07	NP	2018.05.24	NP, impaktor
2017/18 (1-es vonal)	2017.11.17	NP	2018.05.31	NP, impaktor
	2017.11.24	NP	2018.06.01	NP, impaktor
	2017.01.24	NP	2018.06.05	NP, impaktor
	2017.01.25	NP	-	-

* NP: Nuclepore kétfokozatú mintavevő.

** impaktor: Sioutas négyfokozatú kaszkádimpaktor.

4.3. Közösségi közlekedési eszközök aeroszol-szennyezettsége a 2012–2014-es mintavételi időszakban

4.3.1. Tömegkoncentráció a vizsgált járműveken utasterében

A tömegközlekedési eszközökön, az ATOMKI városi háttérterületén, valamint az Országos Légszennyezettségi Mérőhálózat (OLM) állomásain mért $PM_{2,5}$, PM_{durva} és PM_{10} koncentrációk összefoglalását a 3. táblázatban mutatom be.

A kültéren mért adatok alapján azt tapasztaltam, hogy a szennyezettség átlagos szintű volt a városban, valamint a meteorológiai körülmények is hasonlóan alakultak a mintavételi napokon. A járműveken a PM_{durva} koncentráció 29 és $354 \mu\text{g}/\text{m}^3$ között, míg a $PM_{2,5}$ koncentráció 12 és $189 \mu\text{g}/\text{m}^3$ között változott. A legalacsonyabb értékeket mindkét frakció esetében az új villamoson tapasztaltam, míg jelentősen megnövekedett szennyezést észleltem a régi villamos, a helyi busz, az IC vonat és a metró esetében (lásd 3. táblázat 3–4. oszlop). A debreceni járműveken mért $PM_{2,5+durva}$ koncentrációkat összehasonlítottam az OLM két debreceni automata mérőállomásának ugyanabban az időszakban mért koncentrációival, illetve az ATOMKI adataival. Minden esetben azt tapasztaltam, hogy a tömegkoncentráció magasabb volt a járműveken, a kültéren mért értékekhez képest. A durva frakcióban átlagosan $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ feletti koncentrációkat detektáltam a járműveken mindkét évben. A megállapítás alól kivétel az új villamos ($29 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Ezen felül a finom frakció esetében a 2014-es kampány során szignifikánsan nagyobb értékek (3,5-12-szer) voltak megfigyelhetők, mint 2012-ben. Az egyedüli kivételt a helyi buszjárat esetében tapasztaltam, ugyanis az első mintavételi kampány során $168 \mu\text{g}/\text{m}^3$ -t, míg 2014-ben $52 \mu\text{g}/\text{m}^3$ -t detektáltam. Ennek az lehet a magyarázata, a vizsgált helyi buszjárat a város külső területein (33-as számú főutat érintve) is közlekedik, amely mellett szeptember lévén mezőgazdasági munkálatok zajlottak. A nyári idő miatt a buszon működött a klíma, viszont emellett az összes ablak le volt húzva, így arra a következtetésre lehet jutni, hogy a mezőgazdasági munkák, a reszuszpendált por és a busz működéséből származó kibocsátás együttesen eredményezte a megemelkedett tömegkoncentrációt a jármű utasterében az

Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön

első mintavételi kampány idején. A 2014-es mintavételi időszakban a régi villamoson a durva frakcióban $248 \mu\text{g}/\text{m}^3$, a finom frakcióban pedig $145 \mu\text{g}/\text{m}^3$ tömegkoncentrációt mértem, ami a többi debreceni járműhöz képest jelentősen magasabb. A mintavételi napon a villamos pálya bizonyos szakaszain útmunkák zajlottak, amelyek a megnövekedett koncentrációkat okozhatták. Ezt támasztják alá a debreceni villamosokon 2017–2018-ban végzett vizsgálataim eredményei is, melyeket a 4.4. fejezetben részletezek.

A $\text{PM}_{2,5}$ koncentráció közötti különbségek a két mintavételi kampányban a különböző utazási körülményekkel magyarázhatók, úgymint a meleg időben teljesen leengedett ablakok vagy a járművek korából adódó kevésbé korszerű szellőztető, légkondicionáló berendezések. Miután ezek karbantartásának és tisztításának gyakoriságáról nincs információm, nem lehet további konklúziót levonni.

3. táblázat. A járműveken és az ATOMKI-ben mért PM_{durva} , $\text{PM}_{2,5}$ és PM_{10} koncentrációk ($\mu\text{g}/\text{m}^3$), valamint az OLM automata mérőállomásai által mért koncentrációk városi háttérterületen (OLM1) és közlekedési csomópontban (OLM2).

Dátum	Jármű	PM_{durva}	$\text{PM}_{2,5}$	$\text{PM}_{2,5+\text{durva}}$	OLM1	OLM2	ATOMKI		
					PM_{10}	PM_{10}	PM_{durva}	$\text{PM}_{2,5}$	PM_{10}
($\mu\text{g}/\text{m}^3$)									
2012	Helyi busz	224	168	392	49	46	-	-	-
	Trolibusz	159	30	189	28	24	-	-	-
	IC vonat	354	19	373	-	-	-	-	-
	Régi villamos	180	12	192	34	31	-	-	-
2014	Helyi busz	n.a.*	52	-	25	33	6	14	20
	Trolibusz	160	104	264	22	38	14	20	34
	IC vonat	182	66	248	-	-	-	-	-
	Régi villamos	248	145	393	24	30	13	23	36
	Új villamos	29	17	46	28	31	19	17	36
	Metró	288	189	477	-	-	-	-	-

*n.a.: nincs adat.

A közösségi közlekedési eszközökön vizsgált aeroszol szennyezettség nemzetközileg is kutatott téma. A járműveken tapasztalt $\text{PM}_{2,5}$ és PM_{10} tömegkoncentráció eredményeimet összevettem hasonló külföldi kutatások adataival, többek között Hong Kong [Chan, 2002], München [Praml, 2000], Barcelona [Moreno, 2015], Lisszabon [Martins, 2021] és a Debrecenben mért átlagos utastéri tömegkoncentráció

Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön

értékekkel [Papp, 2020]. A 4. táblázat adataiból látható, hogy az azonos típusú tömegközlekedési eszközökön mért koncentrációk nagyságrendileg megegyeztek a különböző városokban. Debrecenben a legtöbb esetben hasonló vagy magasabb koncentrációkat mértem.

A metróban mért PM-koncentrációk értékei összhangban voltak más irodalmi eredményekkel, pl. Rómában átlagosan $407 \mu\text{g}/\text{m}^3$ [Ripanucci, 2006], Londonban átlagosan $800 \mu\text{g}/\text{m}^3$ [Smith, 2020] vagy a Stockholmban tapasztalt átlagos $470 \mu\text{g}/\text{m}^3$ értékkel [Johansson, 2003].

4. táblázat. A mért PM_{10} és $\text{PM}_{2,5}$ koncentrációk összehasonlítása más tanulmányokkal.

	Jármű	PM_{10} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) **	$\text{PM}_{2,5}$ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
Jelen tanulmány *	Nem klímás helyi busz (2012)	392	168
	Nem klímás helyi busz (2014)	nincs adat	52
	Nem klímás trolibusz (2012)	189	30
	Nem klímás trolibusz (2014)	264	104
	Régi villamos (2012)	192	12
	Régi villamos (2014)	393	145
	Új villamos (2014)	46	17
	IC vonat (2012)	373	19
	IC vonat (2014)	248	66
	Metró (2014)	477	189
Hong Kong	Villamos	110–240	68–163
	Nem klímás busz	80–161	78–109
	Vonat	41–89	29–68
München	Busz	110–165	-
	Villamos	átlag 161	-
Barcelona	Metró	-	átlag 37; 42***
	Busz	-	átlag 48; 49; 39
	Villamos+séta	-	átlag 27; 29; 35
Lisszabon	Busz	-	átlag 28
	Metró	átlag 84	átlag 38
Debrecen *	Régi villamos-(2017–18)	70–176	31–54
	Régi villamos-nyár (2018)	69–152	29–50
	Új villamos-tél (2017–18)	36–153	17–49
	Új villamos-nyár (2018)	46–71	22–49

* A jelen tanulmány és a Debrecen jelölés a saját kutatási eredményeimet jelöli. **Az eredményeimben a PM_{10} a $\text{PM}_{2,5}+\text{PM}_{\text{durva}}$ frakció összegét jelenti. *** Az átlagok külső publikációban megjelent értékeket jelentenek.

Az IC vonat esetében a megfigyelt PM_{10} koncentrációk jelentősen magasabbak voltak, mint más tanulmányokban szereplő értékek [Li, 2007; Park, 2008; Mohsen, 2018], míg a $\text{PM}_{2,5}$ koncentrációk jó összhangban voltak a más országokból származó adatokkal [Kam, 2011; Cartení, 2015;

Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön

Mohsen, 2018]. A metróra és a vonatokra vonatkozó részletesebb összehasonlító adatokat az 5. táblázatban mutatom be kiegészítve az athéni [Barmparetos, 2016] és az isztambuli [Sahin, 2012] metróból származó koncentrációkkal.

5. táblázat. Az átlagos PM₁₀ és PM_{2,5} koncentrációk összehasonlítása különböző városokban vonat és metró esetében.

Város	Helyszín	PM ₁₀ (µg/m ³)*	PM _{2,5} (µg/m ³)
Debrecen	IC-vonat (2012)	373	19
	IC-vonat (2014)	248	66
	Metró (2014)	477	189
Budapest	Metró-peronon (2007)	155	-
Róma	Metró (2006)	407	-
London	Metró (2018)	-	800
Stockholm	Metró (2000)	470	260
Athén	Metró (2013)	400	100
Isztambul	Metró (2007)	200	-
Sydney	Vonat (2015)	18	15
Peking	Vonat (2004)	108	37
Szöul	Vonat (2008)	141	121
Los Angeles	Vonat (2010)	16	14
Nápoly	Vonat (2006)	37	17

* A PM₁₀ a debreceni mérések esetén a finom és a durva frakció összegét jelentik.

4.3.2. Az aeroszol-szennyezés forrásai a járművek utasterében

Az aeroszol minták elemösszetételének meghatározásával az volt a célom, hogy megállapítsam a járművekre és a kültéri levegőre jellemző elemösszetételt, koncentrációt, valamint az adott elem forrását. A finom és durva méretfrakciójú aeroszol eredményeket 2012-re vonatkozóan a 6. táblázat, míg 2014-re az 7. és 8. táblázatokban mutatom be.

A forrásazonosítás szempontjából fontos annak szétválasztása, hogy az adott elem természetes vagy mesterséges eredetű. Ennek eldöntésére meghatároztam a finom és durva frakciós aeroszol elemkoncentrációkból az átlagos felszíni közetkez viszonyított dúsulási tényezőt (EF¹⁸) titán referencia elemet választva az alábbi összefüggés alkalmazásával [Mason, 1982]:

¹⁸ EF: „Enrichment Factor” angol nyelvű kifejezés a dúsulási tényező elnevezésére.

$$EF=(C_i/[Ti])_{PM}/(C_i/[Ti])_{kéreg}, (10)$$

melyben X jelöli a kérdéses elemet. A szakirodalom a 10-nél kisebb dúsulási tényezővel rendelkező elemeket általában természetes eredetűnek, míg az e fölöttieket mesterséges eredetűnek tekinti [B.J. Finlayson-Pitts, 2000]. Azonban vannak tanulmányok, melyek az 5 vagy annál magasabb dúsulási értéket nem-kéreg eredetű hozzájárulásnak tekintik [Gao, 2002]. Mindkét mintavételi kampány dúsulási értékeinek vizsgálatakor azt tapasztaltam, hogy minden járműtípus esetében 10 alattiak voltak az értékek az Al, Si, P, K, Ca, V, Mn és Ba esetében, így arra következtetek, hogy a talaj reszuszpenzió volt a forrásuk. Ezzel szemben a S, Cl, Cr, Fe, Cu, Zn és Pb elemek magas dúsulási tényező értékkel rendelkeztek, ami antropogén eredetre utal. Jelentősen magasabb EF értékeket észleltem a vas és mangán elemek esetében a vasúti járműveken (pl. villamos és IC vonat) esetében, így ezen elemek további forrása feltételezhetően a sínek kopása volt.

A természetes forrásból származó aeroszol-részecskék jelentős hányada főként a földkéreg mechanikus aprózódásával jön létre. A felszíni kőzet átlagos összetétele alapján megállapítható, hogy az Al, Si, Ca, Ti, Fe, Mg, Na és K oxidjai, valamint a kristályvíz a kőzet tömegének több, mint 80%-át alkotja [Mason, 1982]. Annak érdekében, hogy meg tudjam határozni az ásványi eredetű komponensek tömegkoncentráció járulékát az egyes járműveken, a következő formulát alkalmaztam az említett elemek járulékának figyelembevételével [Cohen, 2020]:

$$1.9[Al] + 2.14[Si] + 1.4[Ca] + 1.3[K] + 1.67[Ti] + 1.44[Fe], (11)$$

A képlet alkalmazása feltételezi, hogy ezen elemek oxidformájukban fordulnak elő. Azonban a sínparókon közlekedő járművek esetében valószínűsíthető, hogy a vas nem-kéreg eredetű koncentráció hányada volt a domináns, amit megerősítenek a dúsulási értékek. Ebből következően további számítást végeztem, hogy elkülöníthető legyen a talajeredetű és a sínek kopásából származó vas mennyisége és hozzájárulása a tömeghez:

$$[Fe]_{PM, kéreg}=[Fe]_{kéreg}/[Ti]_{kéreg} \cdot [Ti]_{PM} (12)$$

Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön

ahol $PM(Ti)_{\text{aeroszol}}$ a Ti koncentrációját jelöli a mintában, a $(Fe/Ti)_{\text{kéreg}}$ reprezentálja a kérdéses elem kéregben becsült koncentrációját [Salma, 2007]. Ez alapján az ásványi porra vonatkozó számításaim a kéreg eredetű Fe tartalom figyelembevételével történtek (lásd 6-8. táblázat). Az eredmények azt mutatták, hogy az ásványi por hozzájárulása a durva frakcióban 30–50 % között változott, míg az új villamosnál ez az érték 70%, az IC vonaton pedig mindössze 5% volt. A finom frakcióban az ásványi por hozzájárulás 5% (helyi buszon 2012-ben, IC vonaton) és 25% (trolibuszon, új villamoson) között alakult. Kivételek közé tartozott 2014-ben a helyi busz 45%-os és a régi villamos 60%-os ásványi por hozzájárulása a tömeghez. A vasúti járműveken a nem ásványi porból származó Fe összetevő (Nmd. Fe)¹⁹ hozzájárulása az összes vas koncentrációhoz 70–99% között változott mindkét méretfrakcióban, ami arra utal, hogy a sínek kopása a járműveken belüli szennyezés elsődleges forrása.

¹⁹ Nmd. Fe: „Non-mineral dust Fe” angol nyelvű kifejezés a nem ásványi por eredetű vas hozzájárulás elnevezésére.

Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön

6. táblázat. Elemkoncentrációk (ng/m³), dúsulási tényező, ásványi por koncentráció PM_{durva} és PM_{2,5} frakciókban 2012-ben különböző járművek utasterében.

Elem	Helyi busz				Trolibusz				Régi villamos				IC vonat			
	PM _{durva}		PM _{2,5}		PM _{durva}		PM _{2,5}		PM _{durva}		PM _{2,5}		PM _{durva}		PM _{2,5}	
	(ng/m ³)	EF	(ng/m ³)	EF	(ng/m ³)	EF	(ng/m ³)	EF	(ng/m ³)	EF	(ng/m ³)	EF	(ng/m ³)	EF	(ng/m ³)	EF
Al	5035	1	1390	2	3615	1	1130	3	2725	1	1350	5	2085	1	1790	10
Si	21160	1	1570	1	12320	1	680	1	16650	1	1730	2	2310	0.4	755	1
P	140	1	<DL*	-	140	2	<DL	-	65	1	<DL	-	<DL	-	<DL	-
S	765	25	1020	540	750	45	1550	1300	765	55	1970	2045	885	165	945	1520
Cl	985	65	30	35	9295	1075	45	70	1225	178	50	105	915	340	120	395
K	3225	1	425	3	1640	1	245	3	1890	2	215	3	800	2	205	5
Ca	8815	2	600	2	6660	2	370	0.3	5150	2	305	2	2560	5	495	5
Ti	650	-	40	-	380	-	25	-	300	-	20	-	120	-	15	-
V	30	1	<DL	-	30	1	<DL	1	20	1	<DL	-	<DL	-	15	15
Cr	100	10	<DL	-	<DL	-	<DL	10	40	10	<DL	-	15	10	<DL	-
Mn	175	2	25	3	95	2	15	3	160	5	30	10	60	3	50	20
Fe	8435	1	1070	3	4960	1	600	2	13860	5	2170	10	7250	5	5690	40
Nmd. Fe***	1050	-	615	-	640	-	315	-	10450	-	1945	-	5885	-	5520	-
Cu	255	40	45	110	80	20	40	170	60	20	20	85	30	25	25	185
Zn	195	25	35	70	270	60	20	65	175	45	20	85	185	130	75	445
Ba	295	5	40	10	260	10	10	5	200	10	<DL	-	215	25	255	255
Pb	50	35	<DL	-	25	30	20	320	<DL	-	<DL	-	<DL	-	35	1155
PM **	224	-	168	-	159	-	30	-	180	-	12	-	354	-	19	-
Ásványi por	83250	-	8120	-	51610	-	5345	-	55980	-	7330	-	15710	-	6235	-

*<DL: az elemkoncentráció kisebb volt a detektálási határnál. **PM: A koncentráció µg/m³-ben van megadva. *** Nmd. Fe: nem ásványi eredetű vas hozzájárulást jelent.

Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön

7. táblázat. Elemkoncentrációk (ng/m³), dúsulási tényező, beltér/kültér (I/O) elemkoncentráció arányok és ásványi por koncentráció a PM_{durva} frakcióban 2014-ben különböző járművek utasterében.

Elem	Helyi Busz	EF	Kültér	EF	I/O	Trolibusz	EF	Kültér	EF	I/O	Régi v.	EF	Kültér	EF	I/O	Új v.	EF	Kültér	EF	I/O	IC vonat	EF	Metró	EF
	(ng/m ³)		(ng/m ³)			(ng/m ³)		(ng/m ³)			(ng/m ³)		(ng/m ³)			(ng/m ³)		(ng/m ³)			(ng/m ³)		(ng/m ³)	
Al	18100	0.4	300	2	60	2785	0.3	520	1	5	2470	0.3	510	1	5	300	0.2	485	1	1	100	0.1	<DL	-
Si	88200	1	395	1	223	15690	1	1200	1	13	31690	1	985	1	32	6665	1	1350	1	5	1380	0.4	1830	0.3
P	265	0.4	10	3	27	50	0.4	10	1	5	<DL	-	5	1	-	<DL	-	10	1	-	40	3	675	30
S	2130	14	60	96	36	715	24	320	176	2	610	25	215	117	3	125	28	365	150	0.3	280	95	<DL	-
Cl	4670	60	15	50	311	850	58	15	17	56	695	58	20	20	35	205	92	15	13	14	160	110	570	225
K	10200	1	90	1	113	1945	1	240	1	8	1850	1	165	1	11	395	1	380	2	1	290	1	460	1
Ca	30400	1	180	2	169	7520	2	600	2	13	6795	2	430	2	16	2255	4	580	2	4	1010	2	2385	3
Ti	2620	-	10	-	258	495	-	30	-	17	405	-	30	-	14	75	-	40	-	2	50	-	85	-
V	65	1	<DL*	-	-	<DL	-	<DL	-	-	<DL	-	<DL	-	-	<DL	-	<DL	-	-	<DL	-	<DL	-
Cr	115	2	<DL	-	-	<DL	-	<DL	-	-	65	7	<DL	-	-	<DL	-	<DL	-	-	<DL	-	120	60
Mn	685	1	5	3	137	100	1	10	2	10	250	3	10	1	25	40	2	15	2	3	70	5	2020	110
Fe	31600	1	125	1	253	5740	1	530	2	11	19220	4	415	1	46	2085	2	600	1	3	9230	15	207000	215
Nmd. Fe***	1825	-	-	-	-	115	-	-	-	-	14620	-	-	-	-	1235	-	-	-	-	8660	-	206035	-
Cu	180	5	2	13	106	120	19	5	15	24	35	7	5	10	7	<DL	-	10	13	-	15	25	655	615
Zn	380	9	2	11	223	165	21	5	12	33	85	13	5	8	17	20	17	10	10	2	85	105	45	35
Br	35	24	<DL	-	-	<DL	-	<DL	-	-	<DL	-	<DL	-	-	<DL	-	<DL	-	-	<DL	-	85	1760
Ba	960	3	5	4	192	220	4	15	5	15	140	3	10	2	14	35	4	20	4	2	230	40	810	85
Pb	160	21	1	41	130	20	14	10	84	2	65	54	5	34	13	30	135	10	97	3	<DL	-	360	1435
PM **	nincs adat	-	6	-	-	160	-	14	-	11	248	-	13	-	19	29	-	19	-	1.5	182	-	288	-
Ásványi por	327145	-	1985	-	-	61035	-	5540	-	-	91950	-	4550	-	-	19900	-	6075	-	-	5865	-	9430	-

*<DL: az elemkoncentráció kisebb volt a detektálási határnál. **PM: A koncentráció µg/m³-ben van megadva. *** Nmd. Fe: nem ásványi eredetű vas hozzájárulást jelent.

Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön

8. táblázat. Elemkoncentrációk (ng/m³), dúsulási tényező, beltér/kültér (I/O) elemkoncentráció arányok és ásványi por koncentráció a PM_{2,5} rakcióban 2014-ben különböző járművek utasterében.

Elem	Helyi Busz	EF	Kültér	EF I/O	Trolibusz	EF	Kültér	EF I/O	Régi v.	EF	Kültér	EF I/O	Új v.	EF	Kültér	EF I/O	IC vonat	EF	Metró	EF
	(ng/m ³)																			
Al	1370	0.5	330	2 4	305	1	450	2 0.7	615	1	145	1 4	145	1	315	2 0.5	455	1	<DL	-
Si	5380	1	180	0.4 30	1030	1	555	1 2	4140	1	265	0.3 16	1160	1	425	1 3	505	0.4	505	0.4
P	<DL *	-	<DL	- -	<DL	-	<DL	- -	<DL	-	<DL	- -	<DL	-	<DL	- -	30	6	<DL	-
S	580	65	345	765 2	1240	700	1185	1437 1.04	1500	565	1525	1821 0.9	290	325	445	720 0.65	580	490	410	345
Cl	260	55	10	40 26	35	40	5	12 7	65	50	1	2 74	20	45	10	35 2	30	50	230	390
K	840	1	385	10 2	355	2	445	5 0.8	340	1	395	5 0.9	220	2	475	8 0.5	115	1	95	1
Ca	2180	2	80	1 27	495	2	225	2 2	685	2	150	1 5	740	6	165	2 4	525	3	390	2
Ti	155	1	10	- 16	30	1	15	- 2	45	1	15	- 3	15	1	10	- 1.5	20	1	20	1
V	<DL	-	<DL	- -	<DL	-	<DL	- -	<DL	-	<DL	- -	<DL	-	<DL	- -	15	25	<DL	-
Cr	<DL	-	<DL	- -	<DL	-	1	4 -	<DL	-	<DL	- -	<DL	-	<DL	- -	<DL	-	85	185
Mn	60	1	5	3 11	15	2	5	2 3	45	5	5	2 9	15	5	5	2 3	55	15	1050	245
Fe	3030	2	95	1 32	690	2	335	2 2	3580	7	260	2 14	545	3	300	3 2	6860	30	104700	460
Nmd. Fe***	1270	-	-	- -	350	-	-	- -	3070	-	-	- -	375	-	-	- -	6635	-	104475	-
Cu	90	47	2	25 16	35	93	5	35 7	70	124	5	25 15	<DL	-	5	35 -	20	80	210	840
Zn	70	28	25	210 3	35	75	30	136 1.15	45	65	35	150 1.3	15	65	20	130 0.7	80	250	<DL	-
Br	<DL	-	2	555 -	<DL	-	3	355 -	<DL	-	5	530 -	<DL	-	2	360 -	<DL	-	<DL	-
Ba	90	5	5	7 18	30	10	15	11 2	<DL	-	15	10 -	<DL	-	10	8 -	295	130	505	220
Pb	<DL	-	<DL	- -	<DL	-	<DL	- -	<DL	-	<DL	- -	<DL	-	<DL	- -	<DL	-	130	2200
PM **	52	-	14	- 4	104	-	20	- 5	145	-	23	- 6	17	-	17	- 1	66	-	189	-
Ásványi por	21090	-	1790	- -	4990	-	3455	- -	12260	-	1980	- -	4360	-	2820	- -	3190	-	2115	-

*<DL: az elemkoncentráció kisebb volt a detektálási határnál. **PM: A koncentráció µg/m³-ben van megadva. *** Nmd. Fe: nem ásványi eredetű vas hozzájárulást jelent.

4.3.3. Az elemkoncentrációk beltér/kültér arányának alakulása

A 2012-ben zajlott mintavételhez kapcsolódóan, kültéri adatokkal nem rendelkezem, ugyanis ebben az időszakban történt épületfelújítás a mintavételi helyszín közvetlen közelében. Emiatt nem tudtam beltér/kültér (I/O) koncentrációarány összehasonlítást végezni, azonban jelentős koncentrációkat észleltem a vizsgált elemekre az egyes járművek légterében. Erre példa a durva frakcióban a régi villamoson 13860 ng/m^3 vas, a helyi buszon 21160 ng/m^3 szilícium, a trolibuszon pedig 9295 ng/m^3 klór koncentráció. Ezek az értékek a 4. táblázatban találhatóak. A 2014-es mintavételi kampányban rendelkezésre álltak kültéri adatok, így lehetőség volt az egyedi szennyezőkből származó beltér/kültér arány összehasonlítására (lásd 7. és 8. táblázat). A tapasztalataim alapján, a járművek belső terében és a kültéren mintavételezett aeroszol elemösszetétele hasonlóan alakult, azonban jelentősen nagyobb koncentrációkat mértem a járműveken. Mindkét frakcióban hasonló I/O arány jellemezte a régi villamost és a trolibuszt. Alapvetően 5–10-szer magasabb beltér/kültér arányok voltak jellemzőek a durva, mint a finom frakciójú mintákban. Ezek az arányok jelentősebbek voltak az ásványi por alkotói között, mint például az Al, Si, Ca, Ti és Ba, mint az antropogén eredetű elemeknél (pl. S, Zn, Pb vagy finom frakciós K). Az ásványi por nagyobb mértékű akkumulációja a közlekedés és az utasok által reszuszpendált porhoz köthető. A legmagasabb I/O arányokat a helyi autóbusznál mértem, a legalacsonyabbakat pedig az új villamoson. Az utóbbi esetben alacsonyabb $\text{PM}_{2,5}$ koncentrációjú antropogén eredetű elemeket detektáltam, mint kültéren, ami azt jelzi, hogy a modern villamosok légszűrő rendszere hatékonyan működik. Mindemellett körülbelül fele akkora tömeg- és elemkoncentrációt tapasztaltam a modern CAF villamosokon, mint a régi típusokon, melyek a mintavétel időszakában már 18 éve közlekedtek.

Az összes általam vizsgált közlekedési eszközre vonatkozóan találtam legalább egy olyan tipikus elemet, amely az adott típusra jellemző, és amelynek eredete maga a jármű vagy annak infrastruktúrája volt. Ezeket az elemeket a magas EF értékek és I/O arányok alapján azonosítottam. A villamosokon, a vonaton és a metróon tapasztalt magas vas és mangán

koncentrációk a sínkopásból, míg a réz és cink koncentrációk nagy valószínűséggel a felsővezeték kopásból származtak a trolibusz, a vonat és a villamosok esetében. A klórt jelentős I/O arányok, utastéri dúsulások jellemezték, melyek klór járműből származó forrására utalnak.

A többi járműtípuson detektált elemösszetételhez képest eltéréseket és számos elem esetében igen magas koncentrációt tapasztaltam a metró elemzése során. A Mn, Fe, Br, Ba, Pb elemek dúsulási tényezője a többszöröse volt a felszíni tömegközlekedési eszközöknél észlelt értékeknek. Ez a metró zárt jellegű rendszerével, korlátozott szellőztetésével és speciális kibocsátó forrásokkal, úgymint elektromos vezetősínek, áramszedők, fékbetétek, közönséges sínek, kerekek kopásával és sűrűlódásával magyarázható [Salma, 2009]. A Fe a mért tömeg több mint 50%-át tette ki és a többi nehézfém, mint a Cr, Mn, Cu, Br és Pb, szintén jelentős hányadát adta a tömegnek. Ezen elemek legvalószínűbb forrása a sínkopás volt. Azonban fontos megjegyezni, hogy azok az elavult orosz metrószerelvények, melyeken a mintavétel zajlott, már nem üzemelnek.

Az IC vonaton mindkét alkalommal magas koncentrációkat mértem a durva frakcióban. Miután az elemkoncentrációk vizsgálata nem adott magyarázatot a magas PM_{2,5} és PM_{durva} tömegkoncentrációkra, így a lehetséges szennyezőket pásztázó elektronmikroszkóppal vizsgáltam, melynek részletes leírását 4.3.6. fejezetben taglalom.

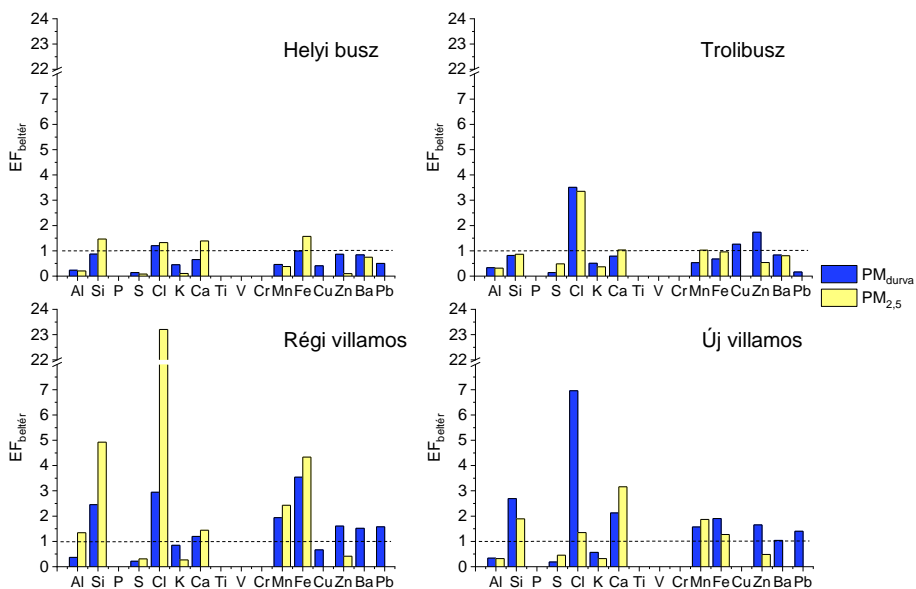
4.3.4. Az aeroszol utastéri forrásai a járműveken

Annak érdekében, hogy megállapítható legyen, hogy az egyes elemi összetevők a járművek utasteréből vagy külső környezeti forrásból származtak, a következő számítással határoztam meg [Mason, 1982]:

$$EF_{\text{beltér}} = \frac{(C_i/[Ti])_{\text{PM}}}{(C_i/[Ti])_{\text{kéreg}}}_{\text{beltér}} / \frac{(C_i/[Ti])_{\text{PM}}}{(C_i/[Ti])_{\text{kéreg}}}_{\text{kültér}}, \quad (13)$$

Amennyiben az adott elemre 1 vagy az alatti a $EF_{\text{beltér}}$ értéke, külső forrást, míg az 1 feletti beltéri forrást jelez. A 9. ábrán látható, hogy a legtöbb esetben a vártaknak megfelelően 1 körüli értékeket tapasztaltam. Azonban bizonyos esetekben, ettől magasabb $EF_{\text{beltér}}$ arány jellemezte a járműveket. Erre példák a durva frakcióban a régi villamos utasterében észlelt vas (4) és szilícium (5), illetve az új villamos légterében a Fe (2) és a Si (3)

eredmények. A vas legvalószínűbb forrása a sín- és a villamos kerekeinek kopása lehetett. A buszokon azt tapasztaltam, hogy mindkét frakciónak 1 körüli volt a $EF_{\text{beltér}}$ értéke, ami azt jelenti, hogy a szennyezők a külső környezetből származtak. A klórra volt jellemző a legmagasabb $EF_{\text{beltér}}$ érték a régi és új típusú villamosokon és a trolibuszon. A finom frakcióban a Cl forrása feltételezhetően a nátrium-hipoklorit, amelyet a villamosok tisztítására, fertőtlenítésére használnak. A durva frakciós klór eredetének feltérképezésére pásztázó elektronmikroszkópos vizsgálatot végeztünk, mely eredményeit a 4.3.6. fejezetben mutatom be. A cink $EF_{\text{beltér}}$ értéke 1 fölött volt a trolibuszokon és a két villamoson, ez az elem nagy valószínűséggel a felsővezetékek kopásából származott.



9. ábra. $EF_{\text{beltér}}$ értékek a különböző járműveken a $PM_{2,5}$ és a PM_{durva} frakciókban 2014-ben.

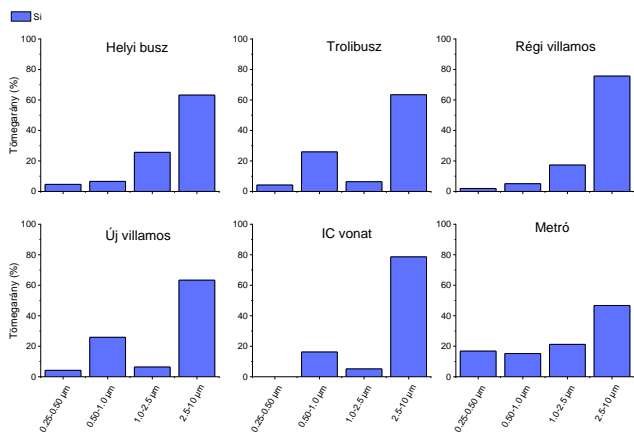
4.3.5. Aeroszol méreteloszlások a különböző járműveken

Az elemösszetétel meghatározása után a tömegközlekedési eszközök utasterében személyi kaszkádimpaktorról gyűjtött minták analíziséből a méreteloszlásra vonatkozó eredményeket mutatom be. 2014 tavaszára vonatkozóan 17 elem méretfrakciónkénti relatív tömegét határoztam meg a négy méretfrakció össztömegére vonatkoztatva.

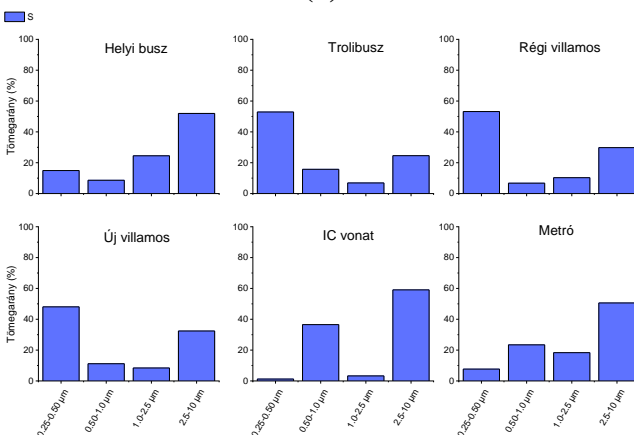
Eredetük szerint megkülönböztettem kültéri kéreg-, kültéri antropogén- és beltéri antropogén eredetű elemeket az aeroszol-részecskékben. Csoportonként egy tipikus elem méretfrakciónkénti eloszlását mutatom be a dolgozatban, a függelékben (1. függelék) pedig az általam meghatározott összes elem méretfrakciónkénti relatív tömege megtalálható.

Az első csoportot a kéreg eredetű elemek alkotják. Ezen elemek esetében megfigyeltem, hogy a tömeg döntő hányada a durva frakcióban jelent meg. Példaként a szilícium látható a 10.a ábrán. A második csoportba a kültéri antropogén eredetű elemek tartoznak. Itt a kén kerül bemutatásra, mely méreteloszlása a legtöbb esetben bimodális alakot mutatott (10.b ábra). Az egyik csúcs jellemzően a kondenzációs módusban $0,25\text{--}0,50\ \mu\text{m}$), míg a másik a durva frakcióban jelent meg. A S méretfrakciónkénti relatív tömeg szerinti méreteloszlása a villamosok és a trolibusz utasterében hasonlóan alakult, ugyanis a tömeg nagy hányada a kondenzációs módusban volt észlelhető. Ugyanakkor a helyi buszon és a metróon a durva frakciós tömeg volt domináns. Az IC vonat esetében mind a durva frakció és mind a cseppmódus ($0,5\text{--}1,0\ \mu\text{m}$) meghatározó. Az IC vonatoknak saját szellőztető rendszere van, ami felelős lehetett a tapasztalt eloszlásért. A harmadik csoportot utastéri forrásból származó elemek alkotják. Ebbe a csoportba tartozik a klór, melynek méretfrakciónkénti relatív tömege (10.c ábra) eltérő volt az egyes tömegközlekedési eszközök légterében. A legnagyobb tömeget a durva frakcióban lehetett észlelni, azonban bizonyos járművek esetében, mint például az új villamos, a tömeg döntő része a $1,0\text{--}2,5\ \mu\text{m}$ -es méretfrakcióban jelent meg. A klór lehetséges forrásaként a tisztítószeres használatát állapítottam meg, azonban ez nem magyarázza a durva frakcióban tapasztalt tömeg dominanciáját. A metróon a többi járműhöz képest teljesen eltérő relatív tömeg szerinti méreteloszlást észleltem, ami a metró közlekedéséhez köthető sajátos mikroklíma eredménye.

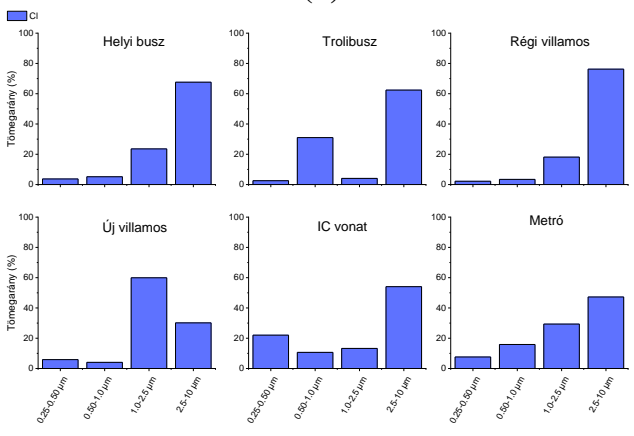
Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön



(a)



(b)



(c)

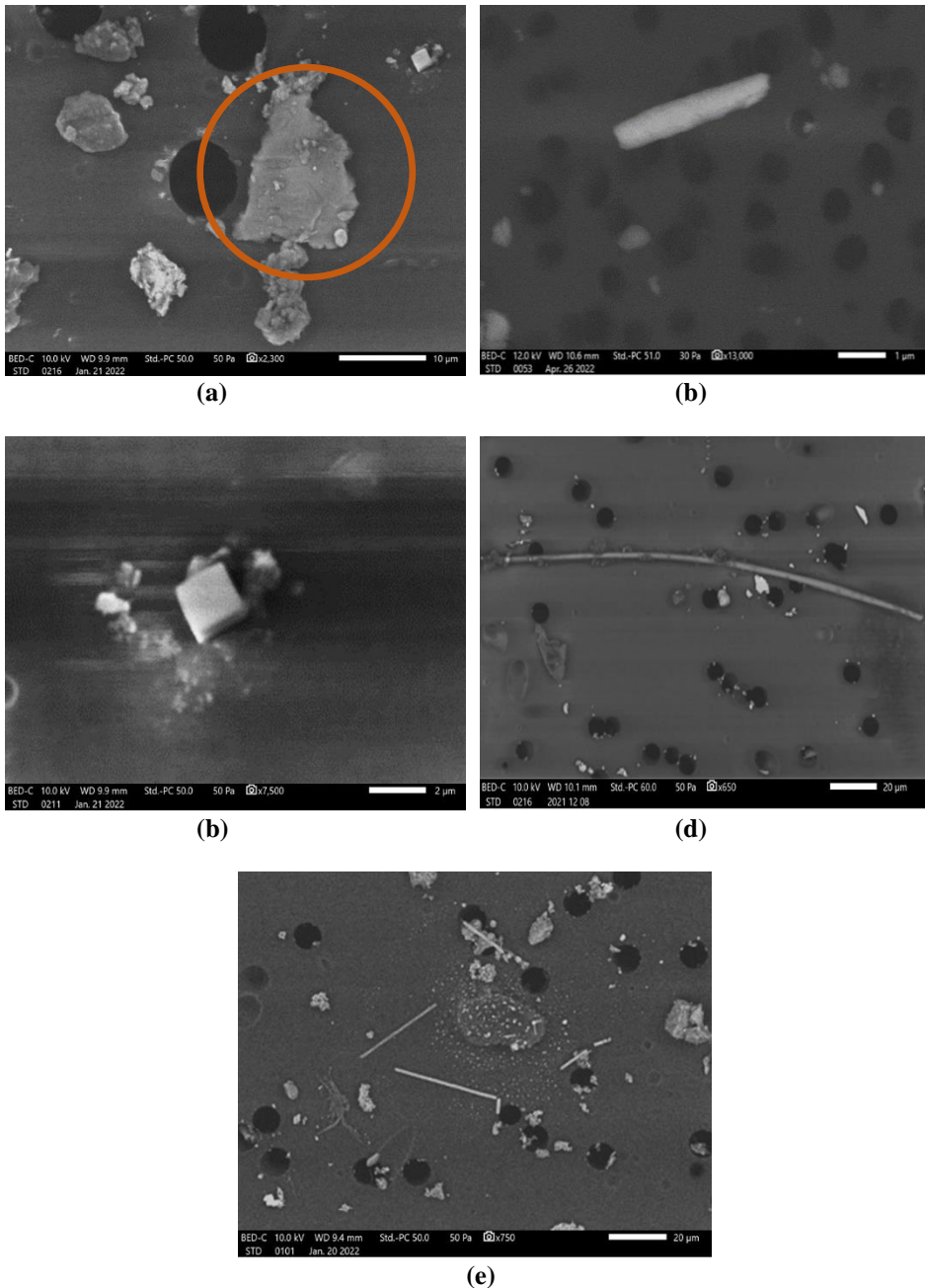
10. ábra. Méretfrakciónkénti relatív tömeg a Si (a), S (b), Cl (c) esetében a különböző járművek utasterében 2014-ben.

4.3.6. Egyedi aeroszol-részecske analízis pásztázó elektronmikroszkóppal

A 4.2. fejezetben említettem, hogy néhány esetben a tömbi analízis nem adott elfogadható magyarázatot a magas tömeg-és elemkoncentrációkra. Az egyik felmerülő kérdés az IC vonaton és a régi villamoson a durva frakcióban tapasztalt több $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ -es tömegkoncentrációra vonatkozik. Emellett a legtöbb esetben klór eredetét övezte a legnagyobb bizonytalanság. Mindennek következtében a pásztázó elektronmikroszkópon végzett vizsgálataink során elsősorban ezen felmerülő kérdések megválaszolására összpontosítottam. Az analízis során a vizsgált járművek légteréből származó durva frakciós mintákat elemeztem. A vizsgálatok alapján különböző formájú részecskéket azonosítottam a járműveken:

- szabálytalan alak: Al-Si-ban, Al-Si-Fe-ban, Si-ban és Fe-ban gazdag,
- szálas alak: C-O-ben és Al-Si-K-ban gazdag,
- szálas-rostos alak: Fe-ban gazdag,
- kocka alak: KCl és NaCl szemcsék.

A 11.a. ábrán egy szabálytalan alakú, Al-Si-K-Mg-ban gazdag aeroszol-részecske látható, melyet ásványi eredetűként azonosítottam. Jelentős számban figyeltem meg ilyen részecskéket minden vizsgált tömegközlekedési eszközön, melyeket más tanulmányokban is gyakran azonosítanak [Pipal, 2019]. Számottevő vasban gazdag szálas-rostos részecskéket (11.b. ábra) figyeltem meg a metrón, ami ennek a járműnek volt a sajátossága. Ezek a szemcsék lehetnek a felelősek a rendkívül magas vas koncentrációért, amit a metrón észleltem. A klórt kálium és nátrium tartalmú kocka alakban azonosítottam a járműveken. 2014. szeptemberben a trolibuszon figyeltem meg kálium és klór tartalmú részecskét, kálium és klór tartalmút pedig 2012. márciusban a régi villamoson (11.c. ábra). A klór forrása kora tavasszal az utak téli sózásából visszamaradt só, míg ősszel a műtrágya használat volt [Angyal, 2010]. Az egyes részecskékhez tartozó spektrumok a 2. függelékben találhatóak.



11. ábra. Néhány pásztázó elektronmikroszkóppal azonosított részecske: (a) Al-, Si-, K- és Mg-ban gazdag szabálytalan alakú részecske (régí villamos, 2012); (b) Magas Fe tartalmú szálas-rostos részecske (metró, 2014); (c) K és Cl tartalmú kocka alakú részecske (régí villamos, 2012); (d) szálas C-és O-ben gazdag szálas részecske (IC vonat, 2014); (e) Al, Si és K tartalmú szálas részecskék (régí villamos, 2014).

Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön

Szénben és oxigénben gazdag részecskék szálas-rostos alakban jelentek meg az összes jármű típus légterében (11.d. ábra), melyeket az összetétel alapján szerves részecskeként azonosítottam. Az IC vonatról származó minta jelentős számban tartalmazott ilyen típusú részecskéket. Al, Si és K tartalmú szálas alakú szemcséket figyeltem meg a régi villamoson 2014-ben (11.e. ábra). A szálas részecskék feltételezett forrásai az ülések és az azokból reszuspendált por, valamint az IC vonat esetében a szellőztető rendszer. A megemelkedett PM_{durva} koncentrációt szálas részecskék nagyszámú jelenléte okozhatta az IC vonaton.

4.4. A debreceni régi és új típusú villamosok utasterének aeroszol-szennyezettsége 2017–2018 között

A 2012–2014-es mintavételi időszak folytatásaként a debreceni helyi tömegközlekedési eszközökön, azon belül is a villamosokon folytattam kutatómunkámat. Debrecenben 2014-ben adták át a 2-es vonalat, melyen új CAF típusú villamosok kezdtek közlekedni. 2017-től kezdődően pedig az 1-es vonalon a régi KCSV villamosok mellett az új típusok is menetrendszerűen megkezdték a személyszállítást. Ezáltal lehetőség nyílt a két típus utasterében tapasztalható aeroszol szennyezettség összehasonlító vizsgálatára azonos útvonalon és ugyanazon időben. A következőkben a villamosok belső terében mért tömegkoncentrációkat, elemkoncentrációkat, ezek városi háttérterülethez viszonyított arányait és az utastéri forrásokat tárgyalom.

4.4.1. Tömegkoncentráció a debreceni villamosokon

A régi és az új villamosok utasterében, valamint az ATOMKI városi háttérterületen (kültér) vett minták tömegkoncentrációját és a beltér/kültér (Indoor/Outdoor) arányokat a 9. és 10. táblázatokban mutatom be fűtési (téli) és nem fűtési (nyári) időszakokra vonatkozóan különböző méretfrakciókban.

9. táblázat. A fűtési időszakban a régi (régi v.) és az új (új v.) villamosokon, városi háttérterületen (kültér) mintavételezett $PM_{2,5}$ és PM_{durva} tömegkoncentrációk ($\mu\text{g}/\text{m}^3$), beltér/kültér (I/O) arányok és átlagok.

Dátum	PM_{durva} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)					$PM_{2,5}$ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)				
	Kültér	Régi v.	I/O	Új v.	I/O	Kültér	Régi v.	I/O	Új v.	I/O
2017.11.07.	11	62	5,9	51	4,8	14	37	2,6	31	2,2
2017.11.17.	8	114	14,1	52	6,5	14	52	3,7	49	3,4
2017.11.24.	14	106	7,5	62	4,4	11	47	4,5	46	4,4
2018.01.24.	9	39	4,2	19	2,0	26	31	1,2	17	0,7
2018.01.25.	9	122	12,8	115	12,1	18	54	3,0	38	2,1
Átlag	10	88	8,9	60	6,0	17	44	3,0	36	2,6

A fűtési időszakban a tömegkoncentrációk a durva frakcióban 19 és $122 \mu\text{g}/\text{m}^3$ között, míg a finom frakcióban 17 és $54 \mu\text{g}/\text{m}^3$ között alakultak a villamosokon. A nem fűtési szezonban 22 és $102 \mu\text{g}/\text{m}^3$ közötti értékeket

Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön

tapasztaltam, a finom frakcióban pedig 22 és 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ között változtak a koncentrációk. A legalacsonyabb értékeket minden esetben a városi háttérterületen figyeltem meg.

10. táblázat. A nem fűtési időszakban a debreceni villamosokon, városi háttérterületen mintavételezett $\text{PM}_{2,5}$ és PM_{durva} tömegkoncentrációk ($\mu\text{g}/\text{m}^3$), beltér/kültér (I/O) arányok és átlagok.

Dátum	PM_{durva} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)					$\text{PM}_{2,5}$ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)				
	Kültér	Régi villamos	I/O	Új villamos	I/O	Kültér	Régi villamos	I/O	Új villamos	I/O
2018.05.24.	6	40	6,9	23	3,9	9	29	3,2	23	2,5
2018.05.31.	21	102	4,9	28	1,4	9	50	5,8	31	3,6
2018.06.01.	13	72	5,6	34	2,7	13	41	3,2	22	1,7
2018.06.05.	11	81	7,1	22	1,9	14	49	3,4	49	3,4
Átlag	13	74	6,1	27	2,5	11	42	3,9	31	2,8

Mindkét méretfrakcióban és mindkét szezonban, a legtöbb esetben magasabb koncentrációkat észleltem a villamosokon, mint a kültéri levegőben. A két típust összehasonlítva megfigyelhető, hogy a régi villamosok utasterében nagyobb koncentráció volt mérhető, mint az új típuson. Az eltérés a villamosok különböző szellőztető rendszerével magyarázható, melyeket részletesen bemutattam a 4.2. fejezetben. A 10. táblázat eredményei alapján tárgyalom a szellőztető egység okozta további különbségeket.

11. táblázat. Fűtési és nem fűtési időszakban átlagos $\text{PM}_{2,5}/\text{PM}_{2,5+\text{durva}}$ tömeg arányok és standard deviáció (SD), valamint beltér/kültér arányok és SD $\text{PM}_{2,5}$ és PM_{durva} frakciókban.

	$\text{PM}_{2,5}/\text{PM}_{2,5+\text{durva}}$				Beltér/Kültér (I/O) arány							
	Fűtési sz.		Nem fűtési sz.		Fűtési szezon				Nem fűtési szezon			
	Átlag	SD	Átlag	SD	PM_{durva}		$\text{PM}_{2,5}$		PM_{durva}		$\text{PM}_{2,5}$	
Régi v.	0,35	0,06	0,37	0,04	8,9	4,4	3,0	1,2	6,1	1,0	3,9	1,3
Új v.	0,40	0,10	0,53	0,12	6,0	3,8	2,6	1,4	2,5	1,1	2,8	0,9
Kültér	0,61	0,12	0,49	0,14	-	-	-	-	-	-	-	-

Az átlagos $\text{PM}_{2,5}/\text{PM}_{2,5+\text{durva}}$ tömeg arány télen 0,35 volt a régi villamoson, 0,40 az új típuson, kültéren pedig 0,61. A nem fűtési szezonban 0,37 és 0,53 jellemezte a régi és új villamost, míg a kültéri levegő esetében 0,49 volt ez az érték. A téli időszakban a $\text{PM}_{2,5}/\text{PM}_{2,5+\text{durva}}$ arányok hasonlóak voltak a két villamoson. Nyáron azonban az új villamoson kapott

arány a kültérihez volt hasonló, a régi villamoson pedig jelentősen alacsonyabb értékeket tapasztaltam. A kültéri finom frakció hozzájárulása a $PM_{2,5+durva}$ frakcióhoz több mint 60% volt a fűtési szezonban, míg a nem fűtési időszakban 50% körül alakult, ami tipikusnak számít városi háttérterületeken [Putaud, 2010]. A villamosokon a téli időszakban a durva frakció hányada volt domináns, nyáron pedig a régi villamos $PM_{2,5}/PM_{2,5+durva}$ aránya (0,37) a fűtési időszakhoz képest mutatott hasonlóságot. Az új villamos ezzel szemben a kültéri hányadoshoz volt hasonló a nem fűtési időszakban. A villamosokon a durva frakcióban tapasztalt emelkedett koncentrációkért nagy valószínűséggel a reszuszpendált por, valamint a pálya kopásból származó szennyezők felelősek.

Beltér/kültér tömegkoncentráció arányokat számoltam annak érdekében, hogy jellemezni tudjam a kültéri és a villamosok belső terében tapasztalt tömegkoncentrációk közötti kapcsolatot (lásd 11. táblázat). A fűtési időszakban, a durva frakcióban a régi villamoson az I/O arány átlagosan $8,9 \pm 4,4$ (átlag + SD), míg $6,0 \pm 3,8$ volt az új villamos esetében. A finom frakcióban $3,0 \pm 1,2$ arány jellemezte a régi típust, míg $2,6 \pm 1,4$ az új villamost. 2018. január 25-én kiugró növekedést észleltem a tömegkoncentrációkban, ezért az I/O arányokat összevetettem az előző napi adatokkal Mivel az időjárási körülmények és a városi háttérterületen mért szennyezettség jelentősen nem különbözött, a megemelkedett koncentrációk a villamos vonal közvetlen közelében január 25-én megkezdett útmunkáknak tulajdoníthatók. Továbbá közlekedési rend változás miatt 2017. november 17-én és 24-én szintén útmunkálatok zajlottak a sínek közelében. Feltételezésem szerint mindezek jelentős hatással voltak a villamosok utasterében tapasztalt emelkedett aeroszol koncentrációra, ami alig volt kimutatható a városi háttérterületen. Egy korábbi tanulmányban az épülő debreceni 2-es villamos vonal mellett történt mintavétel. Kimutatták, hogy az útépitések hatása csak az adott területen megfigyelhető, míg a városi többi pontján csak a közelben zajló munkálatok okozhatnak megnövekedett koncentráció értékeket [Furu, 2015]. A nem fűtési időszakban, a durva frakcióban az átlagos I/O arány a régi villamoson $6,1 \pm 1,0$, az új villamoson $2,5 \pm 1,1$ volt, míg a finom frakcióban a régi típuson $3,9 \pm 1,3$, az új típuson pedig $2,8 \pm 0,9$ volt. A téli

időszakban ezen arányok változékonysága jelentősebb volt a durva frakcióban, amit a sínek melletti gyakori útmunkáknak tulajdonítottam.

4.4.2. Elemkoncentrációk

A régi és új villamosok utasterében a városi háttérterületen fűtési és nem fűtési időszakban mindkét méretfrakcióra vonatkozólag a 12. és 13. táblázatok mutatják be a detektált elemek koncentrációit, valamint a hozzájuk tartozó standard deviációt (SD). Az eredmények alapján megállapítottam, hogy a mért koncentrációk magasabbak voltak a villamosokon, mint kültéren, azonban az akkumuláció mértéke a különböző elemek esetében változó volt attól függően, hogy melyik időszaktól, méretfrakcióból vagy villamos típus utasteréből származott a minta. Az átlagkoncentrációk számítása során a 2018. január 25-i minta kiugró adatait nem használtam fel. Habár a városi háttérterületen aznap normális értékeket észleltem, a villamosok utasterében szokatlanul magas (átlagosan 10–30-szor nagyobb) Cl, Cr és Zn szinteket detektáltam a durva frakcióban, emellett pedig igen jelentős Si, Cl és Fe tartalom jellemezte a finom frakciót is. Mindemellett hasonló koncentráció növekedést tapasztaltam a Cl és Zn esetében a régi villamoson. Az úton végzett munkálatok megemelték a tömegkoncentrációt és az ásványi por eredetű elemek (Si, Ca, Ti, Fe) koncentrációját a járművek utasterében. Továbbá a január 25-én mért Cl, Mn, Cu, Zn koncentrációk 6–15-ször voltak magasabbak a régi villamoson, mint a külső levegőben. Összevetve az új és régi villamoson mért adatokat, az összetétel hasonlóan alakult, azonban néhány esetben a régi típuson 20–50% magasabb koncentrációt detektáltam a fűtési időszakban. A nyári szezonban, a durva frakcióban 2–5-ször, a finom frakcióban pedig 1,5–3-szor magasabb koncentráció jellemezte a régi villamost. A különbségek jelentősebbek voltak az ásványi eredetű elemek és a Cr, Mn és Fe esetében.

Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön

12. táblázat. Átlagos PM_{durva} és $PM_{2,5}$ elemkoncentrációk SD-val a fűtési időszakban a régi és új villamosok utasterében és a városi háttérterületen.

	PM_{durva} (ng/m ³)			$PM_{2,5}$ (ng/m ³)		
	Kültér	Régi v.	Új v.	Kültér	Régi v.	Új v.
Al	775 ± 500	1310 ± 365	1400 ± 815	125 ± 140	280 ± 430	115 ± 35
Si	750 ± 155	12200 ± 9920	7315 ± 5910	100 ± 45	800 ± 580	630 ± 485
P	10 ± 5	95 ± 90	90 ± 80	10 ± 15	10 ± 10	15 ± 15
S	90 ± 45	300 ± 100	200 ± 70	170 ± 35	170 ± 30	120 ± 20
Cl	75 ± 30	425 ± 175	390 ± 90	20 ± 5	25 ± 10	25 ± 10
K	95 ± 25	480 ± 175	470 ± 230	105 ± 30	110 ± 35	85 ± 30
Ca	380 ± 165	2035 ± 1195	1740 ± 1305	40 ± 25	125 ± 85	180 ± 175
Ti	10 ± 5	90 ± 50	70 ± 40	1 ± 1	5 ± 2	5 ± 5
Cr	2 ± 3	20 ± 2	20 ± 15	1 ± 1	5 ± 2	2 ± 2
Mn	5 ± 2	45 ± 30	40 ± 20	2 ± 1	5 ± 5	5 ± 2
Fe	235 ± 125	3990 ± 2010	2450 ± 1925	40 ± 25	505 ± 335	270 ± 270
Co	5 ± 5	50 ± 25	30 ± 5	2 ± 1	5 ± 1	5 ± 1
Ni	5 ± 2	10 ± 5	5 ± 5	1 ± 1	1 ± 1	1 ± 0.5
Cu	5 ± 1	30 ± 10	25 ± 10	2 ± 1	10 ± 5	5 ± 1
Zn	25 ± 20	60 ± 35	65 ± 40	5 ± 5	5 ± 2	10 ± 5
Br	5 ± 5	10 ± 2	10 ± 3	2 ± 1	5 ± 2	5 ± 1
Ba	10 ± 5	45 ± 30	50 ± 30	2 ± 1	5 ± 1	10 ± 10

13. táblázat. Átlagos PM_{durva} és $PM_{2,5}$ elemkoncentrációk SD-val a nem fűtési időszakban a régi és új villamosok utasterében és a városi háttérterületen.

	PM_{durva} (ng/m ³)			$PM_{2,5}$ (ng/m ³)		
	Kültér	Régi v.	Új v.	Kültér	Régi v.	Új v.
Al	275 ± 205	2500 ± 890	1900 ± 530	415 ± 155	810 ± 240	460 ± 75
Si	115 ± 785	9820 ± 3870	1800 ± 430	480 ± 170	4000 ± 1240	1345 ± 450
P	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -
S	40 ± 20	295 ± 40	80 ± 45	365 ± 90	940 ± 270	650 ± 170
Cl	30 ± 10	355 ± 35	155 ± 80	60 ± 15	135 ± 20	95 ± 10
K	135 ± 75	750 ± 220	215 ± 80	90 ± 40	300 ± 100	135 ± 30
Ca	470 ± 405	2725 ± 995	600 ± 300	135 ± 80	835 ± 300	270 ± 90
Ti	20 ± 20	150 ± 70	45 ± 10	10 ± 10	60 ± 20	20 ± 5
Cr	5 ± 2	25 ± 15	15 ± 10	5 ± 1	15 ± 10	5 ± 2
Mn	10 ± 5	80 ± 30	20 ± 5	5 ± 5	40 ± 15	15 ± 5
Fe	305 ± 285	6070 ± 2370	1095 ± 350	140 ± 90	3100 ± 1010	1020 ± 465
Co	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -
Ni	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -
Cu	5 ± 5	60 ± 10	30 ± 5	2 ± 2	25 ± 15	25 ± 5
Zn	10 ± 5	90 ± 20	45 ± 20	10 ± 5	30 ± 10	30 ± 10
Br	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -
Ba	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -	<DL ± -

Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön

A 14. táblázatból látható, hogy a régi típusú villamosokon a beltér/kültér elemkoncentráció arányok hasonlóan alakultak mindkét szezonban. Nyáron magas beltér/kültér értékeket (10 feletti) figyeltem meg a durva frakcióban a Cl (12,6), a Fe (20,0), a Cu (12,9) és a Zn (12,1) esetében. Alapvetően a nem fűtési szezonban magasabb beltér/kültér arányokat tapasztaltam, mint télen. Az új villamosokon mindkét évszakban eltérő I/O eredményeket észleltem. A durva frakciót lényegesen magasabb I/O arányok jellemezték télen, mint nyáron, kivéve az Al, Zn és Cl elemeket. A finom frakcióban az ásványi por eredetű elemek (pl. Al, Ca, Ti) magasabb beltér/kültér értékeket mutattak a fűtési szezonban, mint nyáron, míg a réz (11,3) és cink (3,8) pedig a nem fűtési időszakban volt jelentősebb.

14. táblázat. Fűtési és nem fűtési időszakban PM_{durva} és $PM_{2,5}$ elemkoncentrációk beltér/kültér (I/O) arányai a villamosokon.

	Fűtési szezon I/O				Nem fűtési szezon I/O			
	PM_{durva}		$PM_{2,5}$		PM_{durva}		$PM_{2,5}$	
	Régi v.	Új v.	Régi v.	Új v.	Régi v.	Új v.	Régi v.	Új v.
Al	1,7	1,8	2,3	0,9	9,1	6,9	2,0	1,1
Si	16,4	9,9	8,1	6,4	8,8	1,6	8,3	2,8
P	7,6	7,2	0,9	1,2	-	-	-	-
S	3,3	2,3	1,0	0,7	7,5	2,0	2,6	1,8
Cl	5,8	5,3	1,4	1,4	12,6	5,5	2,3	1,6
K	5,0	4,9	1,1	0,8	5,6	1,6	3,4	1,5
Ca	5,3	4,6	3,3	4,6	5,8	1,3	6,2	2,0
Ti	8,6	6,7	5,1	6,0	7,0	2,2	5,3	1,7
Cr	11,0	9,6	5,8	4,3	7,2	4,0	5,6	1,9
Mn	8,2	6,6	3,3	1,9	9,7	2,1	6,3	2,6
Fe	16,9	10,4	12,4	6,5	20,0	3,6	22,6	7,5
Co	7,5	4,3	1,7	2,1	-	-	-	-
Ni	2,5	2,0	1,7	1,2	-	-	-	-
Cu	11,4	9,4	4,3	1,5	12,9	6,5	10,5	11,3
Zn	2,3	2,7	0,8	1,6	12,1	6,2	4,1	3,8
Br	1,1	1,3	1,9	2,1	-	-	-	-
Ba	4,8	5,2	1,9	3,3	-	-	-	-

A $PM_{2,5}/PM_{durva}$ elemkoncentráció arányok tanulmányozása során (lásd 15. táblázat) azt tapasztaltam, hogy a fűtési időszak alatt hasonlóak voltak az értékek mindkét villamos esetében, viszont a kültéri adatoktól jelentősen különböztek. A nyári időszakban ezzel szemben, a két villamos légtérében mért értékek között figyeltem meg nagymértékű különbségeket,

Aeroszol-szennyezettség közösségi közlekedési eszközökön

azonban a $PM_{2,5}/PM_{durva}$ elemkoncentráció arányok közelebb voltak a külső levegő értékeihez. Az ásványi eredetű elemek, úgymint az Al, Si, Ca, Ti jelentős akkumulációját figyeltem meg a villamosok utasterében. Ez az utasok és a közlekedés által reszuszpendált pornak tulajdonítható. Ezen elemek esetében a téli időszakban a tipikus $PM_{2,5}/PM_{durva}$ elemkoncentráció arány 0,1 volt a külső levegőben és a villamosokon egyaránt. A nem fűtési időszakban viszont 0,24–0,75 között változott ez az arány és magasabb értékeket figyeltem meg az ásványi eredetű elemek esetében az új villamoson az alumínium kivételével.

A kén, melyet antropogén eredetű elemként azonosítottam, $PM_{2,5}/PM_{durva}$ elemkoncentráció aránya 1,92 volt télen és 9,22 nyáron a kültéri levegőben. A fűtési időszakban ez az érték a régi villamoson 0,56, az új típuson 0,58 volt, míg nyáron 3,16 volt a régi típuson és 8,15 az új villamoson.

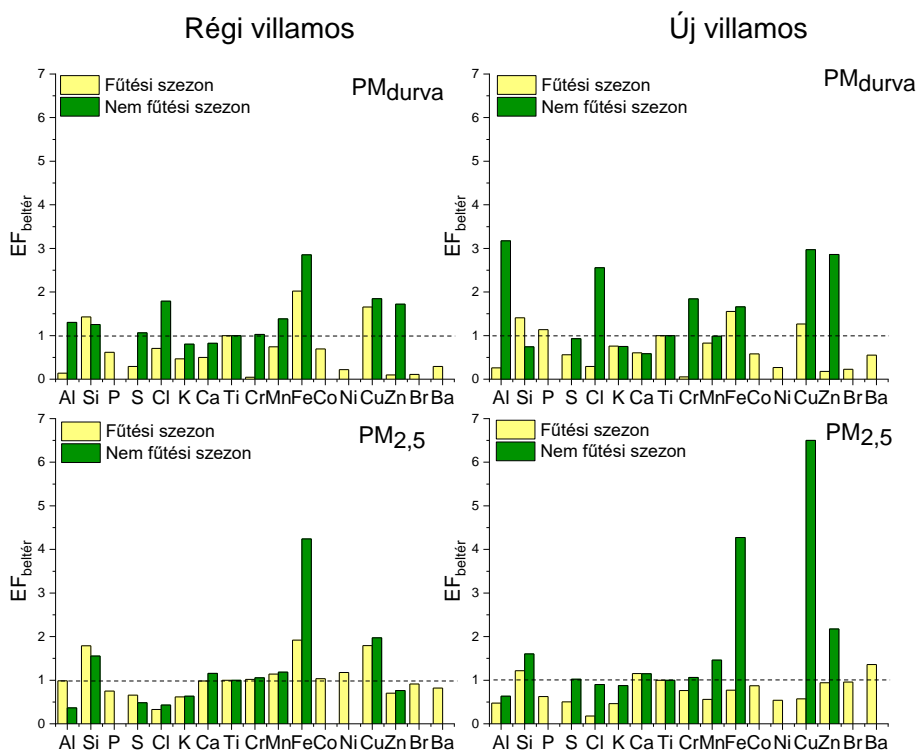
A klór esetében azt tapasztaltam, hogy az elemkoncentrációk $PM_{2,5}/PM_{durva}$ hányadosa 10-szer magasabb volt nyáron, mint a fűtési szezonban a városi háttérterületen. A villamosokon ez az arány 1 alatt maradt, viszont a téli és nyári értékek között jelentősebb különbségek voltak.

15. táblázat. Fűtési és nem fűtési időszakban az elemkoncentrációk $PM_{2,5}/PM_{durva}$ arányai a villamosokon.

	$PM_{2,5}/PM_{durva}$					
	Fűtési szezon			Nem fűtési szezon		
	Kültér	Régi v.	Új v.	Kültér	Régi v.	Új v.
Al	0,16	0,21	0,08	1,51	0,32	0,24
Si	0,13	0,07	0,09	0,43	0,41	0,75
P	0,80	0,10	0,13	-	-	-
S	1,92	0,56	0,58	9,22	3,16	8,15
Cl	0,23	0,06	0,06	2,10	0,38	0,59
K	1,09	0,23	0,18	0,67	0,40	0,63
Ca	0,10	0,06	0,10	0,29	0,31	0,45
Ti	0,09	0,05	0,08	0,50	0,38	0,41
Cr	0,27	0,15	0,12	0,84	0,65	0,39
Mn	0,32	0,13	0,09	0,80	0,52	0,95
Fe	0,17	0,13	0,11	0,45	0,51	0,93
Co	0,26	0,06	0,13	-	-	-
Ni	0,25	0,17	0,15	-	-	-
Cu	0,73	0,28	0,12	0,50	0,40	0,88
Zn	0,22	0,08	0,13	1,08	0,36	0,66
Br	0,26	0,44	0,44	-	-	-
Ba	0,23	0,09	0,14	-	-	-

4.4.3. Az aeroszol utastéri forrásai a villamosokon

Annak érdekében, hogy meg tudjam határozni a detektált elemek eredetét, az átlagos kéreg összetételhez viszonyított dúsulási tényezőt számoltam, mely módszert részletesen bemutattam a 4.3.2. fejezetben. A kapott átlagos EF eredmények azt mutatták, hogy az Al, Si, P, K, Ca dúsulási értéke 10 alatti volt, így ezek az elemek a talaj reszuszpenzióknak tulajdoníthatók minden mintavételi helyszínen. Továbbá a S, Cl, Cr, Co, Ni, Cu, Zn és Br elemek 10 feletti dúsulási tényezővel rendelkeztek, amiből arra következtetek, hogy antropogén forrásokból származtak. Annak érdekében, hogy meg tudjam állapítani mely elemek származtak utastéri forrásokból beltér/kültér dúsulási arányokat számoltam, melyet az 12. ábrán mutatok be.



12. ábra. $EF_{beltér}$ arányok a régi és az új villamoson $PM_{2,5}$ és PM_{durva} frakciókban fűtési és nem fűtési időszakban.

Az eredmények a legtöbb esetben 1 körüliek, míg bizonyos elemek ennél nagyobb értékeket mutattak. A vas esetében a két villamoson megegyező $EF_{\text{beltér}}$ hányadost tapasztaltam (régi: 4,24; új: 4,27) a téli időszakban, a finom frakcióban. A vas nagy valószínűséggel a sínek kopásából származott. A legmagasabb $EF_{\text{beltér}}$ arányt az új villamos finom frakciójában tapasztaltam nyáron a réz esetében (6,5). 1 feletti volt a cink értéke az új villamoson mindkét frakcióban és időszakban, valamint nyáron a régi villamos durva frakciójában. A réz és cink eredetként a felsővezeték kopását állapítottam meg. Ezen elemek (Cu, Zn) a szellőztető rendszeren keresztül juthattak be a villamosok utasterébe. A klórnak a nem fűtési időszakban az új villamoson volt magas $EF_{\text{beltér}}$ hányadosa (2,6) a durva frakcióban és forrásaként a tisztítószerek alkalmazását állapítottam meg.

5. Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése

A városokban egyre gyakoribb légköri aeroszol-szennyezés és az ennek hatására kialakuló szmog manapság az egyik legnagyobb környezetvédelmi- és egészségügyi probléma a világon. Amióta a kutatók és döntéshozók felismerték ennek jelentőségét, különféle határértékeket vezettek be a kibocsátás szabályozására. Ennek hatására az Európai Unióban a PM_{10} kibocsátás 30%-kal, míg a $PM_{2,5}$ emisszió 32%-kal csökkent 2005 és 2020 között [EEA, 2022]. Ennek ellenére, az EU városi lakosságának 97%-a volt a WHO $PM_{2,5}$ -re vonatkozó iránymutatásait meghaladó mennyiségű terhelésnek²⁰ kitéve [EEA, 2022]. Határérték túllépéseket azonban nemcsak lokális és regionális források okozhatnak, hanem a több száz és ezer kilométerről, nagytávolságú transzporttal érkező szennyezők is. Épp ezért a döntéshozóknak ismerni kell a határérték túllépés okait, a szennyező anyagok lehetséges kibocsátó forrásait és azok hozzájárulásának megoszlását. Jelenleg Magyarországon és az Európai Unióban az energiaszektor szerkezete, a közlekedés, és így a kibocsátó források megoszlása is átalakulóban van, ezért elsősorban ezeken a területeken lenne szükséges a PM_{10} összetételének, a kibocsátó források azonosításának, hozzájárulásának részletesebb monitorozására. Magyarországon a kiemelt légszennyezettségi zónák közé tartozik Budapest térsége, a Sajó-völgye és Pécs övezete, mely helyszíneken igen nagy rendszerességgel történt határérték túllépés 2007 és 2017 között [Ferenczi, 2021].

Ebben a fejezetben Magyarország öt nagyvárosának (Budapest, Debrecen, Pécs, Miskolc és Nyíregyháza) $PM_{2,5}$ és PM_{10} szennyezését és a nagytávolságú transzportból származó szennyezőket vizsgálok 2015. január és augusztus között. A fejezet első részében áttekintést adok a mintavételi helyszínekről és az alkalmazott mintavételi eljárásokról, ezt követően pedig bemutatom az általunk gyűjtött minták elemzésének eredményeit.

²⁰ Terhelés: A levegőterhelés a légszennyező anyag levegőbe juttatása [306/2010. (XII. 23.) Korm. rendelet].

5.1. Városi aeroszol mintavétele és analízise

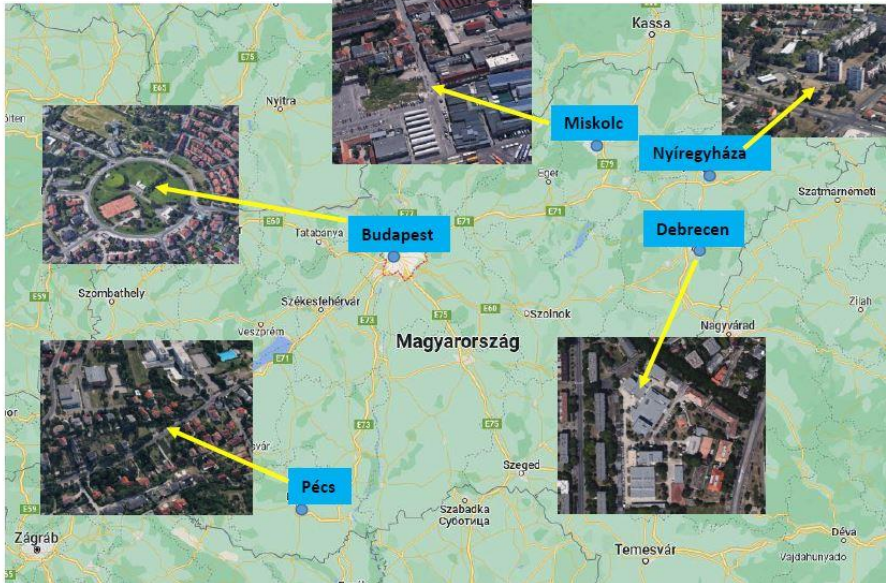
Az aeroszol minták gyűjtése 2015. január és augusztus között zajlott, melyet a regionális környezetvédelmi felügyelőségek bevonásával valósítottunk meg Budapesten, Debrecenben, Miskolcon, Nyíregyházán és Pécsen (lásd 13. ábra). A mintákat Gent-típusú mintavevővel, heti két alkalommal szinkronizáltan gyűjtöttük 24 órán keresztül. Az alkalmazott mintavevő jellemzői a 2.1. fejezetben megtalálhatók. A helyes forrásmeghatározás érdekében fontos ismerni az egyes városok pontforrásait, közlekedését és a lakossági fűtés módját. A vizsgált helyszíneket a következőkben ismertetem.

Budapest Magyarország fővárosa megközelítőleg 1,8 millió lakossal, mely az EU kilencedik legnépesebb fővárosa. Mindemellett az ország politikai, kereskedelmi, kulturális, közlekedési és ipari központja. Területét tekintve is az ország legnagyobb települése 525 km²-es kiterjedésével. Budapesten a levegőminőség-monitorozó hálózat 12 állomásból áll, amelyek közlekedési (4), ipari (3) vagy városi háttér (5) besorolásúak. A mérőállomások közül a Gilice téri városi háttérállomásnál (Budapest délkeleti részén) történt a mintavételezés. Ez a helyszín a Magyar Meteorológiai Szolgálat Marcell György Főobszervatóriumának területén található. A mérőpont körül közvetlen aeroszol források lehetnek a környező területek: a Halmierdő, a Gloriett-telep, a Bókay-kert és a Szent Lőrinc-telep.

Debrecen Magyarország második legnagyobb városa mintegy 200.000 fős lakosságával, mely Hajdú-Bihar vármegye és a debreceni járás székhelye. A város az Észak-Alföldön helyezkedik el, domborzati viszonyait tekintve két régió határán fekszik, melyet a Nyírség homokos területe és a Hajdúság löszös vidéke alkot [Pásztor, 2018]. A Debrecenben üzemelő automata monitoring állomások közül egy közlekedési, három pedig városi háttérterület minősítésű. A mintavételek az Atommagkutató Intézet területén valósultak meg, mely városi háttérterületnek számít. A pontforrások közé tartozik a TEVA gyógyszergyár, a Nyugati-és Déli Ipari Park, a városközpont, a Debreceni Hőerőmű, a szennyvíztisztító telep és a Debreceni Nemzetközi Repülőtér. Az elmúlt években megállapítottuk, hogy a város fő szennyező forrásai: a biomassza égetés, a közlekedés,

Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése

másodlagos aeroszol, ásványi por, szén- és olajégetés, különféle építkezések és a biogén emisszió [Kertész, 2010; Almeida, 2020; Angyal 2021; Furu, 2022].



13. ábra. Mintavételi helyszínek öt magyarországi nagyvárosban: Budapesten (Gilice tér), Debrecenben (ATOMKI), Miskolcon (Búza tér), Nyíregyházán (Széna tér) és Pécsen (Boszorkány utca).

Miskolc az ország negyedik legnépesebb városa, az Észak-Magyarországi régió centruma és az ország egyik legjelentősebb ipari központja. Elhelyezkedését tekintve a Szinva-, a Sajó- és a Hernád-völgyében, a Bükk-hegységgel körülvéve helyezkedik el. A légszennyezés szempontjából ez meglehetősen kedvezőtlen földrajzi elhelyezkedés, ugyanis ez a különleges tagoltság hozzájárul számos hosszú távú (néhány naptól hetekig tartó) szennyező epizód kialakulásához [Ferenczi, 2021]. Miskolcon három monitoring állomás működik, melyek közül egy közlekedési, kettő pedig városi háttérterületen található. A mintavételek a Búza téri konténernél valósultak meg, mely városi közlekedési helyszínnek minősül, mivel a mérőponton jelentős a közlekedési eredetű források hozzájárulása.

Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése

Pécs a Dunántúl legnagyobb települése, mely Baranya vármegye és a Pécsi járás székhelye, illetve a Dél-Dunántúl központja. A város Magyarország délnyugati szélén, a horvát határ közelében található, körülbelül 50 km-re a Dunától. Déli oldalról a Pécsi-síkság, míg az északi részről a Mecsek-hegység határolja. Ezek a domborzati adottságok Miskolccal összehasonlítva jóval kedvezőbbek a város déli nyitottságának köszönhetően. A terület egyik fő ipari kibocsátó forrása egy szén és biomassza tüzelésű erőmű. Az erőmű korszerű elektrosztatikus szűrővel van felszerelve, mely segíti a PM_{10} kibocsátás további csökkentését a városban [Ferenczi, 2021]. A mintavételek a Boszorkány utcai városi háttér besorolású monitoring állomásnál történtek, mely egy külvárosi övezetben található. A pécsi levegőminőség-mérő hálózat 3 állomásból áll, amelyek közlekedési (1) és városi háttérállomásra (2) oszthatók.

Nyíregyháza az Észak-Alföld második legjelentősebb városa, mely a Nyírség központjában fekszik, Szabolcs-Szatmár-Bereg vármegye, valamint a Nyíregyházi járás székhelye. Két jelentős ipari parkja van, a Déli- és a Nyugati Ipari Park. A Nyíregyházán működő automata mintavételi állomás a városközpontban, a Széna téren helyezkedik el. A monitoring állomást egyik oldalról tízemeletes házak, a többi oldalról pedig kertes házak és alacsony épületek határolják, illetve több mint 50 méterre egy forgalmas főút is található. Besorolás szerint városközponti állomásnak nevezhető, melyre jelentős hatással vannak a közlekedési eredetű források.

Az aeroszol minták tömegkoncentrációját mikromérleggel, elemi összetételüket pedig PIXE analitikai módszerrel állapítottam meg.

5.2. Aeroszol tömegkoncentráció az öt nagyvárosban

Annak érdekében, hogy össze tudjam hasonlítani az öt nagyvárosban mért $PM_{2,5}$, PM_{durva} és PM_{10} tömegkoncentrációkat, a vizsgált időszakban meghatároztam a minták átlagos tömegkoncentrációját, középértékét és szórását a téli (fűtési) és a nyári (nem fűtési) időszakokra. A téli időszaknak január és április 15-e közötti időszakot, míg a nem fűtési periódust április 15-től a mintavételi kampány befejezéséig (augusztus) tekintettem. Mindemellett kiszámoltam a $PM_{2,5}/PM_{10}$ tömegkoncentráció arányokat, melyek információval

Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése

szolgálnak a finom frakciós aeroszol PM₁₀-hez való hozzájárulásáról. A kapott értékeket a 15. táblázatban mutatom be. A PM₁₀ átlagkoncentrációk az öt városban a következőképp alakultak mindkét szezonban: Budapesten 18–19 µg/m³, Debrecenben 18–21 µg/m³, Pécsen 13–15 µg/m³, Miskolcon 28–30 µg/m³, Nyíregyházán pedig 13–28 µg/m³. Az eredmények alapján látható, hogy a legmagasabb átlagkoncentrációt Miskolcon, a közlekedési mérőponton detektáltam. A fűtési időszakban Nyíregyháza kivételével minden városban magasabb volt a PM_{2,5}/PM₁₀ arány, mint a nyári időszakban, átlagosan 50–73% közötti értékekkel.

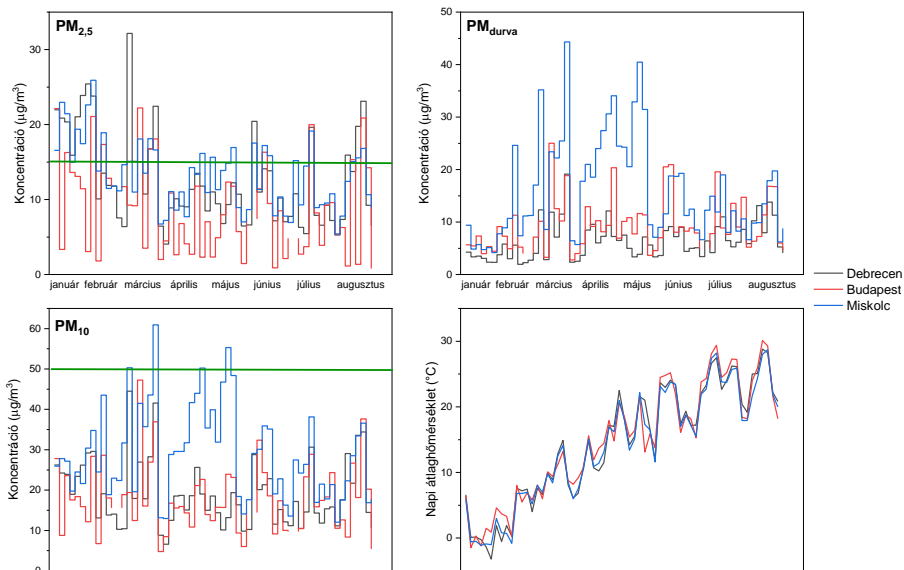
16. táblázat. Az öt városban mért PM_{2,5}, PM_{durva}, PM₁₀ tömegkoncentrációk (µg/m³-ben) és a PM_{2,5}/PM₁₀ arányok fűtési és nem fűtési időszakokra vonatkozó átlaga, szórása, minimum és maximum értéke.

		Fűtési szezon				Nem fűtési szezon			
		PM _{2,5}	PM _{durva}	PM ₁₀	PM _{2,5} /PM ₁₀	PM _{2,5}	PM _{durva}	PM ₁₀	PM _{2,5} /PM ₁₀
Budapest	Átlag	11	8	19	0,57	8	10	19	0,44
	Medián	11	7	17	0,68	7	9	18	0,40
	Szórás	7	5	10	0,69	6	4	8	0,77
	Min	2	3	5	0,38	1	4	5	0,14
	Max	22	25	47	0,47	21	21	38	0,55
Debrecen	Átlag	15	6	21	0,73	11	7	18	0,60
	Medián	14	4	19	0,76	9	6	16	0,60
	Szórás	7	4	9	0,77	5	3	7	0,66
	Min	4	2	7	0,62	5	3	10	0,54
	Max	32	19	44	0,72	23	14	34	0,67
Pécs	Átlag	7	7	13	0,51	7	9	15	0,46
	Medián	6	5	12	0,51	6	8	15	0,43
	Szórás	3	5	6	0,49	4	4	5	0,77
	Min	1	2	5	0,19	1	1	6	0,24
	Max	12	22	35	0,35	23	19	30	0,78
Miskolc	Átlag	15	15	30	0,50	12	16	28	0,43
	Medián	15	11	28	0,52	11	12	27	0,42
	Szórás	5	10	11	0,46	4	9	12	0,31
	Min	7	4	13	0,52	5	6	12	0,45
	Max	26	44	61	0,43	19	40	55	0,35
Nyíregyháza	Átlag	16	11	28	0,59	9	4	13	0,68
	Medián	14	7	23	0,59	9	4	12	0,72
	Szórás	12	12	19	0,64	3	1	4	0,80
	Min	2	2	5	0,46	2	2	6	0,36
	Max	55	51	83	0,66	14	7	20	0,72

A mintavételi időszakban mért PM_{2,5}, PM_{durva} és PM₁₀ tömegkoncentrációk alakulását Budapesten, Debrecenben és Miskolcon a 14. ábrán mutatom be kiegészítve a napi átlaghőmérséklettel. A számított koncentrációkat minden városra vonatkozóan összehasonlítottam a jogszabályban meghatározott PM₁₀-re vonatkozó 24 órás átlagos

Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése

határértékkel [4/2011. (I. 14.) VM rendelet]. A vizsgált periódusban azt tapasztaltam, hogy PM_{10} -re vonatkozóan 24 órás átlagos határérték túllépés Budapesten, Debrecenben és Pécsen nem történt, viszont Miskolcon hatszor, Nyíregyházán pedig háromszor haladta meg a koncentráció az $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ -t.



14. ábra. 24 órás $PM_{2.5}$, PM_{durva} és PM_{10} tömegkoncentráció, feltüntetve a PM_{10} -re vonatkozó 24 órás átlagos határérték, valamint a napi átlaghőmérséklet Debrecen (városi háttér), Budapest (városi háttér) és Miskolc (közlekedési mérőpont) városokban.

$PM_{2.5}$ -re vonatkozóan csak WHO által ajánlott 24 órás átlagos értékről beszélhetünk, mely $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ [WHO, 2021a]. Ezzel az értékkel csak tájékoztató jelleggel hasonlítottam össze a mért koncentrációkat. Ez alapján azt tapasztaltam, hogy a legtöbbször – 23 esetben – Miskolcon (közlekedési csomópontban) haladta meg a $PM_{2.5}$ tömegkoncentráció a $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 24 órás átlagos ajánlott határértéket, ezt követte Debrecen (18-szor), Budapest és Nyíregyháza (10-10 alkalommal), valamint Pécs (1 esetben).

5.3. Elemkoncentrációk az öt városban

Az öt vizsgált városban az aeroszolban meghatározott elemek koncentrációinak kiszámoltam az átlagát, minimumát, maximumát és szórását az elemzett periódusban. A 17–20. táblázatban Budapest,

Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése

Debrecen és Miskolc eredményeit mutatom be, a Pécsre és Nyíregyházára vonatkozó elemkoncentrációkat pedig a 3-6. függelékben található meg mutatom be a durva és a finom méretfrakciókban, elkülönítve a fűtési és a nyári időszakot. Mindemellett feltüntettem a tömegkoncentrációkat, a korom koncentrációkat, valamint az ásványi por és a szulfát (SO_4^{2-}) koncentrációját és hozzájárulását a tömeghez. A fűtési periódusban 26 mintavételi nap, míg a nem fűtési időszakban 35 mintavételi nap volt.

Általánosan elmondható, hogy az ásványi por eredetű elemek (Al, Si, Ca, Ti, Mn, Fe, Ba) koncentrációi Miskolcon mindkét frakcióban és periódusban magasabb értékeket mutattak a többi városhoz képest. Hasonló megfigyelést tettem a mesterséges eredetű elemek (pl. S, Cl, K, Cu) esetében, ugyanis szintén Miskolcon mutattak magasabb koncentrációkat. Ez azzal magyarázható, hogy ebben a városban közlekedési helyszínen zajlott a mintavétel, ahol az állandó forgalom indukálta reszuszpenzió és a jármű kibocsátások együttesen felelősek a magasabb koncentrációkért.

A durva frakciós tömeg fő összetevője az ásványi por volt, mely hozzájárulása a városokban mindkét időszakban átlagosan 13 és 42% között változott. Az ásványi por koncentrációjának számítási módját részletesen bemutattam a 4.3.2. fejezetben. A $\text{PM}_{2,5}$ esetében a fő összetevők közé tartozott a korom (8–25%), a szulfát (14–24%) és az ásványi por (7–13%). Feltételezve, hogy a kén szulfát formájában [Yao, 2003] jelenik meg és az ásványi por eredetű elemek oxidformájukban vannak jelen, a mért komponensek átlagosan a teljes PM tömeg több, mint 30%-át teszik ki.

A korom az egyik fő összetevője a finom frakciónak. A korom koncentráció az öt vizsgált városban a fűtési időszakban átlagosan 265–2855 ng/m^3 között, míg a nem fűtési periódusban 380–2760 ng/m^3 között alakult. Az átlagos szezonális hozzájárulás a tömeghez 11–20% (téli) és 8–25% (nyári) volt. A legmagasabb korom koncentrációt és tömeghez való hozzájárulást minden esetben a közlekedési csomópontban, Miskolcon észleltem. A városi területeken a korom fő forrásai a közlekedés és a biomassza égetés [Rajesh, 2017; Salma 2020a].

Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése

17. táblázat. Budapesten, Debrecenben és Miskolcon kapott tömeg- és elemkoncentrációk (ng/m³) átlaga, mediánja, szórása, minimum és maximum értékei, valamint néhány komponens hozzájárulása a tömeghez (%) a durva frakcióban.

	Budapest					Debrecen					Miskolc				
	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max
PM _{durva}	8250	7145	5135	2780	25030	15170	14285	7165	4060	32160	14825	10915	10330	4165	44315
Al	35	10	55	2.0	210	290	335	165	2.0	545	75	30	100	2.0	335
Si	385	230	405	45	1820	340	215	305	57	1285	760	595	690	90	2565
P	1.4	0.8	1.3	0.8	4.8	1.9	0.8	1.6	0.8	5.8	2.0	0.8	2.7	0.8	10
S	145	125	90	25	330	115	110	80	25	340	275	205	235	55	890
Cl	110	75	120	0.8	460	50	15	65	0.8	220	265	125	410	0.8	1740
K	105	75	90	25	415	70	55	55	25	265	205	125	180	40	670
Ca	515	400	535	60	2675	225	125	275	35	1295	935	785	755	125	2985
Ti	15	10	15	2.8	75	10	6.3	10	1.8	55	30	20	30	3.8	115
V	0.5	0.4	0.3	0.4	1.2	0.5	0.4	0.2	0.4	1.2	0.6	0.4	0.3	0.4	1.2
Cr	1.5	1.3	1.3	0.4	5.5	1.2	0.9	0.9	0.4	3.3	4.3	3.0	3.1	0.4	15
Mn	5.3	4.5	3.7	1.4	20	3.6	2.7	2.9	0.6	10	10	10	8.6	2.1	30
Fe	320	240	215	85	980	165	120	135	35	645	655	570	365	190	1615
Co	2.4	2.2	2.0	0.9	8.8	1.2	0.9	0.8	0.9	4.7	2.7	1.8	2.2	0.9	6.9
Ni	1.3	1.0	0.9	0.4	4.2	1.0	0.7	0.7	0.4	3.1	1.3	0.4	1.4	0.4	5.1
Cu	4.2	3.9	1.5	2.3	7.2	2.0	1.5	1.2	0.6	5.4	7.4	6.7	3.3	3.1	15
Zn	8.2	8.3	4.7	1.7	25	3.3	2.5	2.3	0.4	10	20	15	30	4.2	160
Br	0.5	0.5	0.0	0.5	0.5	0.5	0.5	0.0	0.5	0.5	2.0	1.4	2.2	0.5	10
Sr	4.4	3.4	4.5	1.0	20	2.2	1.0	2.6	1.0	10	6.9	5.2	4.2	2.1	15
Ba	7.2	7.0	5.4	1.0	25	3.6	1.0	3.5	1.0	10	15	10	9.2	5.1	40
Pb	2.6	0.8	2.7	0.8	10	1.4	0.8	1.5	0.8	6.2	15	10	15	0.8	75
Ásványi por	2090	1605	2020	340	9575	1855	1495	1275	425	5795	4080	3255	3245	650	12820
SO ₄ ²⁻	435	375	270	80	995	345	325	245	70	1020	820	620	700	160	2695
Komponensek hozzájárulása a tömeghez (%)															
Ásványi por	21.4	21.9	5.8	5.3	38.3	13.0	10.6	7.2	4.5	32.0	25.2	27.2	6.7	13.7	37.5
SO ₄ ²⁻	4.3	2.8	3.8	0.8	21.1	2.2	1.9	0.9	1.0	4.6	7.2	4.4	6.8	2.1	27.3

Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése

18. táblázat. Budapesten, Debrecenben és Miskolcon kapott tömeg- és elemkoncentrációk (ng/m³) átlaga, mediánja, szórása, minimum és maximum értékei, valamint néhány komponens hozzájárulása a tömeghez (%) a finom frakcióban.

	Budapest					Debrecen					Miskolc				
	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max
PM _{2,5}	10770	11440	6595	1805	22210	15170	14285	7165	4060	32160	14915	14815	5130	6735	25900
Al	100	85	45	4.9	210	285	360	200	2.0	635	30	20	25	2.0	90
Si	105	65	150	2.2	535	210	105	250	30	1055	155	100	160	10	530
P	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL
S	605	550	480	40	1605	900	930	455	165	1710	730	725	320	170	1330
Cl	15	7.2	20	0.7	105	15	8.5	25	0.7	115	25	15	35	0.7	165
K	200	180	150	14	480	340	260	210	60	770	305	250	165	70	705
Ca	105	70	140	5.5	620	110	45	180	8.9	805	165	135	140	5.6	515
Ti	4.9	2.9	6.7	0.4	25	8.0	3.6	10	0.9	45	7.1	4.6	6.4	1.4	25
V	0.5	0.3	0.3	0.3	1.3	0.4	0.3	0.3	0.3	1.1	0.4	0.3	0.3	0.3	1.4
Cr	0.6	0.3	0.6	0.3	2.7	0.9	0.3	1.0	0.3	4.6	0.9	0.4	0.9	0.3	3.4
Mn	3.7	3.4	1.9	1.1	8.9	4.4	2.3	9.2	0.4	50	4.1	3.8	2.1	0.8	8.2
Fe	110	85	95	7.5	370	125	80	110	30	520	205	215	85	30	340
Co	1.0	0.7	0.9	0.7	4.4	1.0	0.7	0.9	0.7	4.8	1.1	0.7	0.8	0.7	2.9
Ni	0.5	0.3	0.5	0.3	2.0	0.3	0.3	0.2	0.3	1.1	0.5	0.3	0.8	0.1	4.0
Cu	2.7	2.7	1.6	0.4	7.0	1.7	1.4	1.3	0.4	4.9	5.1	4.5	3.6	0.4	20
Zn	20	20	15	1.8	55	20	15	11	4.8	40	35	20	35	6.0	135
Br	1.7	0.6	1.4	0.6	5.1	1.4	0.6	1.4	0.6	5.0	1.9	0.6	1.8	0.6	6.8
Sr	1.9	1.0	1.4	1.0	6.2	1.8	1.0	1.7	1.0	7.9	2.3	1.6	1.5	1.0	5.4
Ba	2.7	0.8	3.3	0.8	15	3.8	2.7	3.7	0.8	15	4.9	4.9	2.8	0.8	10
Pb	9.1	9.4	7.0	0.9	20	6.9	4.4	8.4	0.9	40	20	15	20	0.9	85
Ásványi por	960	765	835	190	3605	1340	1005	990	230	4545	925	745	680	145	2440
SO ₄ ²⁻	1810	1645	1435	125	4815	2695	2790	1370	490	5130	2195	2170	965	505	3985
BC	1700	1455	1205	130	3500	265	215	140	45	460	2855	2965	800	690	4005
Komponensek hozzájárulása a tömeghez (%)															
Ásványi por	9.7	9.0	4.3	4.0	19.9	9.4	7.4	5.8	3.5	27.5	7.1	6.1	5.4	1.0	22.2
SO ₄ ²⁻	14.9	14.4	6.6	6.6	27.7	18.0	18.2	6.0	4.8	30.5	14.6	15.0	4.3	5.9	23.2
BC	14.6	14.9	5.4	5.5	25.2	11.3	10.8	2.9	5.0	18.2	20.4	19.7	6.0	4.6	30.0

Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése

18. táblázat. Budapesten, Debrecenben és Miskolcon kapott tömeg- és elemkoncentrációk (ng/m³) átlaga, mediánja, szórása, minimum és maximum értékei, valamint néhány komponens hozzájárulása a tömeghez (%) a durva frakcióban a nem fűtési szezonban.

	Budapest					Debrecen					Miskolc					
	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	
Nem fűtési szezon	PM _{durva}	10165	8870	4850	3665	20940	10645	9390	4535	5275	23105	16345	12360	9085	6210	40450
	Al	50	35	50	2.0	185	50	40	35	2.0	160	120	60	115	10	390
	Si	405	310	270	45	1060	380	360	230	85	900	955	540	810	225	2995
	P	8.8	8.0	4.5	2.7	20	7.5	7.0	3.0	2.8	15	9.2	9.0	5.2	0.8	25
	S	90	65	65	35	375	70	65	30	25	145	160	140	105	50	550
	Cl	110	80	65	20	270	85	75	50	20	340	260	220	145	50	650
	K	110	90	65	35	270	95	85	125	30	225	215	140	740	55	590
	Ca	520	450	315	80	1480	245	200	8	60	570	1095	805	25	320	3055
	Ti	15	15	10	3.7	45	15	15	0	3.3	35	35	20	0.2	9.7	100
	V	0.6	0.4	0.4	0.4	1.7	0.8	0.7	1.3	0.4	1.8	0.4	0.4	3.1	0.4	1.4
	Cr	1.9	1.7	1.2	0.4	5.4	1.6	1.2	2.8	0.4	6.3	4.0	2.9	8.4	0.4	15
	Mn	5.3	4.8	3.0	0.8	14	4.6	4.3	135	0.8	11	15	10	20	3.1	35
	Fe	290	245	155	85	760	205	175	1	40	640	625	560	2.6	205	1365
	Co	2.3	2.1	1.3	0.9	5.3	1.8	1.0	0.3	0.9	4.7	3.7	3.5	1.3	0.9	8.3
	Ni	0.9	0.7	0.8	0.4	3.6	0.6	0.4	1.2	0.4	1.5	1.3	0.4	2.7	0.4	4.3
	Cu	3.1	2.7	1.8	0.8	10	1.5	1.3	1.4	0.4	5.3	6.3	5.9	10	2.8	15
	Zn	6.1	4.9	6.5	1.7	40	2.8	2.6	0.1	0.4	6.0	15	15	0.9	3.8	65
	Br	0.7	0.5	0.6	0.5	2.7	0.5	0.5	2.1	0.5	1.4	1.2	0.5	3.0	0.5	3.5
	Sr	5.1	4.4	3.1	1.0	15	3.6	3.4	3.5	1.0	8.1	7.2	6.9	6.9	2.9	15
	Ba	7.3	6.4	4.6	1.0	20	5.4	5.2	2.4	1.0	15	15	15	9.2	5.2	35
Pb	3.9	2.1	4.7	0.8	25	2.8	2.5	2.4	0.8	10	10	10	9.2	0.8	50	
Ásványi por	2130	1710	1275	510	5405	1565	1375	900	385	3865	4765	3045	3440	1540	13075	
SO ₄ ²⁻	265	200	195	105	1120	210	190	90	70	430	480	415	310	155	1650	
Komponensek hozzájárulása a tömeghez (%)																
Ásványi por	20.5	21.0	5.0	5.3	28.5	15.0	13.1	7.6	6.0	37.7	27.2	26.9	5.0	18.4	38.1	
SO ₄ ²⁻	2.8	2.2	1.7	0.8	7.8	2.0	2.0	0.8	1.1	4.8	3.1	2.5	1.6	1.4	8.4	

Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése

19. táblázat. Budapesten, Debrecenben és Miskolcon kapott tömeg- és elemkoncentrációk (ng/m³) átlaga, mediánja, szórása, minimum és maximum értékei, valamint néhány komponens hozzájárulása a tömeghez (%) a finom frakcióban a nem fűtési szezonban.

	Budapest					Debrecen					Miskolc					
	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	
Nem fűtési szezon	PM _{2,5}	7470	6660	5480	785	20880	10645	9390	4535	5275	23105	12115	11330	3675	5415	19125
	Al	20	2.0	30	2.0	115	25	7.4	35	2.0	125	25	2.0	35	2.0	145
	Si	140	85	150	2.7	615	245	200	175	20	760	315	180	275	25	1105
	P	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL
	S	530	360	565	25	1885	845	740	465	280	2335	760	635	405	200	1895
	Cl	20	8.0	35	0.7	200	2.5	0.7	110	0.7	25	20	0.7	85	0.7	190
	K	75	70	70	1.5	295	135	100	80	20	520	170	150	230	55	460
	Ca	135	95	125	3.6	515	130	100	7.4	10	335	310	240	10	40	865
	Ti	6.4	4.7	6.9	0.4	30	10	8.7	0.4	1.7	35	15	8.9	0.4	1.0	40
	V	0.5	0.4	0.3	0.3	1.3	0.7	0.3	1.9	0.3	1.8	0.6	0.3	1.2	0.3	1.6
	Cr	0.4	0.3	0.3	0.3	1.4	1.8	1.3	2.3	0.3	7.8	1.8	1.5	3.4	0.3	4.6
	Mn	2.1	1.4	1.8	0.4	7.7	3.2	2.6	105	0.4	9.3	5.5	5.2	125	0.3	15
	Fe	135	135	105	5.2	365	175	150	0.8	35	450	305	300	1.3	75	530
	Co	0.9	0.7	0.6	0.6	2.9	1.1	0.7	0.2	0.7	3.4	1.6	0.7	0.3	0.7	4.3
	Ni	0.5	0.4	0.3	0.3	1.4	0.3	0.3	8.7	0.3	1.1	0.3	0.3	2.8	0.3	1.5
	Cu	3.0	2.5	2.6	0.4	9.4	4.2	2.1	6.9	0.4	55	5.3	5.3	8.8	1.7	20
	Zn	8.3	6.9	7.9	0.3	40	10	8.0	0.9	1.5	35	15	15	1.0	4.5	45
	Br	0.8	0.6	0.5	0.6	2.4	1.5	1.4	1.7	0.6	4.0	1.3	0.6	2.0	0.6	4.1
	Sr	2.5	1.5	2.0	1.0	8.9	3.4	3.3	3.0	1.0	7.7	4.1	4.0	2.7	1.0	8.9
Ba	3.5	2.7	3.0	0.8	10	5.2	5.2	8.2	0.8	15	7.8	7.7	10	2.9	15	
Pb	6.0	4.0	5.9	0.9	20	7.3	5.9	8.2	0.3	50	20	15	10	0.9	50	
Ásványi por	830	620	775	25	3110	1025	830	685	115	2985	1615	1170	1120	270	4130	
SO ₄ ²⁻	1590	1075	1690	70	5660	2530	2220	1390	840	7010	2280	1900	1220	600	5690	
BC	770	885	655	25	2245	930	715	590	255	2655	2760	2735	415	1825	3480	
Komponensek hozzájárulása a tömeghez (%)																
Ásványi por	9.6	9.9	3.9	1.7	18.7	9.5	9.0	5.4	1.8	34.0	12.9	11.6	6.7	3.0	28.8	
SO ₄ ²⁻	16.8	15.9	8.3	4.8	33.8	23.7	22.8	7.3	8.0	48.6	17.5	17.1	5.1	6.8	28.1	
BC	9.0	8.3	7.3	0.7	29.8	8.9	7.9	5.0	2.9	25.7	24.9	23.2	8.8	14.4	56.7	

5.4. Elemkoncentrációk időbeli alakulása a városokban

A szimultán, azonos napokon történő mintavétel lehetővé tette, hogy vizsgáljam az aeroszol és az egyes komponenseinek lehetséges forrásait a városokban. Budapest, Debrecen, Pécs, Miskolc és Nyíregyháza között Spearman korrelációs módszerrel tanulmányoztam a tömegkoncentrációk, valamint az ásványi por, a BC és az elemkoncentrációk összefüggéseit. A kapott eredményeket a 20-21. táblázatban mutatom be, az erős és közepes korrelációs együtthatók feltűntetésével. Az eredmények alapján azt tapasztaltam, hogy télen három városban (Debrecen, Miskolc, Nyíregyháza) erős kapcsolat volt a finom frakciós kén, cink és kálium között, ami ezen szennyezők regionális forrására utal. Pécs a többi várossal a legtöbb esetben gyengén korrelált néhány esetet kivéve. Ennek az lehet az oka, hogy ebben a városban leginkább a lokális források domináltak.

Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése

20. táblázat. Erős és közepes Spearman korrelációk (r_s) a Budapest (Bp), Debrecen (Db), Pécs (P), Miskolc (Mi) és Nyíregyháza között a PM, a Cl és a S esetében a durva (Durva f.) és a finom (Finom f.) frakciókban, $p < 0,001$ szignifikancia szintre számolva.

PM		Bp	Db	P	Mi	Ny
Durva f. tél	Bp	1	-	0,70	0,77	-
	Db	-	1	-	-	-
	P	0,70	-	1	0,65	-
	Mi	0,77	-	0,65	1	-
	Ny	-	-	-	-	1

PM		Bp	Db	P	Mi	Ny
Durva f. nyár	Bp	1	-	0,74	0,57	-
	Db	-	1	-	-	-
	P	0,74	-	1	-	-
	Mi	0,57	-	-	1	-
	Ny	-	-	-	-	1

Cl		Bp	Db	P	Mi	Ny
Durva f. tél	Bp	1	-	-	-	0,53
	Db	-	1	-	0,65	0,65
	P	-	-	1	-	-
	Mi	-	0,65	-	1	-
	Ny	0,53	0,65	-	-	1

Cl		Bp	Db	P	Mi	Ny
Durva f. nyár	Bp	1	-	-	-	-
	Db	-	1	-	-	-
	P	-	-	1	0,75	-
	Mi	-	-	0,75	1	-
	Ny	-	-	-	-	1

S		Bp	Db	P	Mi	Ny
Finom f. tél	Bp	1	-	-	-	-
	Db	-	1	-	0,85	0,73
	P	-	-	1	-	-
	Mi	-	0,85	-	1	0,67
	Ny	-	0,73	-	0,67	1

S		Bp	Db	P	Mi	Ny
Finom f. nyár	Bp	1	-	-	-	-
	Db	-	1	-	0,83	-
	P	-	-	1	-	-
	Mi	-	0,83	-	1	-
	Ny	-	-	-	-	1

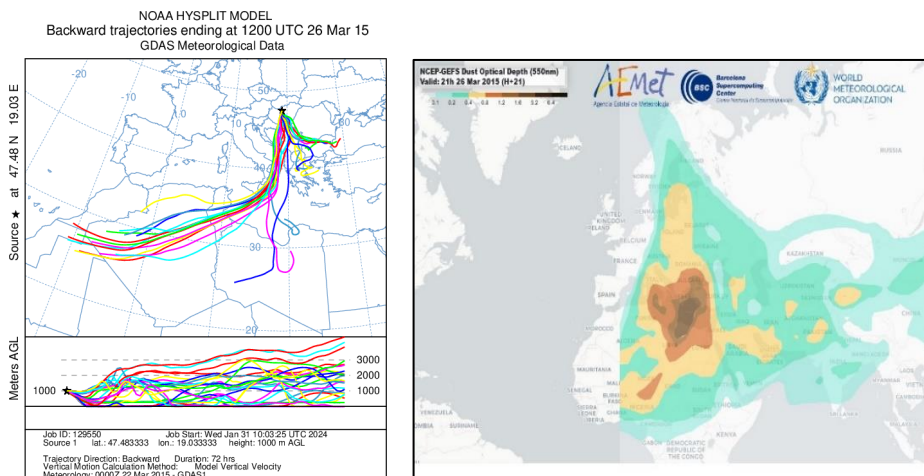
Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése

21. táblázat. Erős és közepes Spearman korrelációk (r_s) a Budapest (Bp), Debrecen (Db), Pécs (P), Miskolc (Mi) és Nyíregyháza között a PM, aZn, a BC és az ásványi por esetében a durva (Durva f.) és a finom (Finom f.) frakciókban, $p < 0,001$ szignifikancia szintre számolva.

Zn	Bp	Db	P	Mi	Ny	Ásványi por	Bp	Db	P	Mi		
Finom f. tél	Bp	1	-	-	-	Durva f. nyár	Bp	1	0,50	-	-	
	Db	-	1	-	0,80		0,72	Db	0,50	1	-	-
	P	-	-	1	-		-	P	-	-	1	-
	Mi	-	0,80	-	1		0,64	Mi	-	-	-	1
	Ny	-	0,72	-	0,64		1	Ny	0,50	-	-	0,80
BC	Bp	Db	P	Mi	Ny	Ásványi por	Bp	Db	P	Mi		
Finom f. tél	Bp	1	-	-	0,55	-	Durva f. tél	Bp	1	-	0,66	0,66
	Db	-	1	-	0,52	0,71		Db	-	1	0,54	0,75
	P	-	-	1	0,50	-		P	0,66	0,54	1	0,67
	Mi	0,55	0,52	0,50	1	-		Mi	0,66	0,75	0,67	1
	Ny	-	0,71	-	-	1		Ny	-	0,56	-	-
K	Bp	Db	P	Mi	Ny	Ásványi por	Bp	Db	P	Mi		
Finom f. tél	Bp	1	-	-	-	-	Finom f. nyár	Bp	1	0,50	-	-
	Db	-	1	-	0,82	0,72		Db	-	1	-	0,54
	P	-	-	1	-	-		P	-	-	1	-
	Mi	-	0,82	-	1	0,72		Mi	-	-	-	1
	Ny	-	0,72	-	0,72	1		Ny	-	-	-	0,74

Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése

A mért elemkoncentrációk időbeli vizsgálata során több olyan eseményt is detektáltam, amikor egy vagy több elem koncentrációja jelentősen megnövekedett más mintavételi napokhoz képest. Az ilyen változással járó eseteket emissziós epizódoknak nevezzük, melyek általában lokális vagy regionális antropogén tevékenységhez (pl. ipari kibocsátás, közlekedés) vagy különféle természeti események (pl. szaharai por) okán hosszú távú transzport eredményeként jelentek meg a városok légkörében. A kutatásomban megfigyeltem számos epizódot, melyek több városban ugyanazon a napon történtek. Az ásványi por eredetű elemek epizódszerű koncentráció növekedését szaharai-, ázsiai és helyi poreseményekhez kötöttem. Mind az öt várost érintő porepizódot azonosítottam 2015. március 16-án és 26-án. Mindkét napon megemelkedett a tömegkoncentráció, átlagosan $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ -t mértem a PM_{10} esetében.

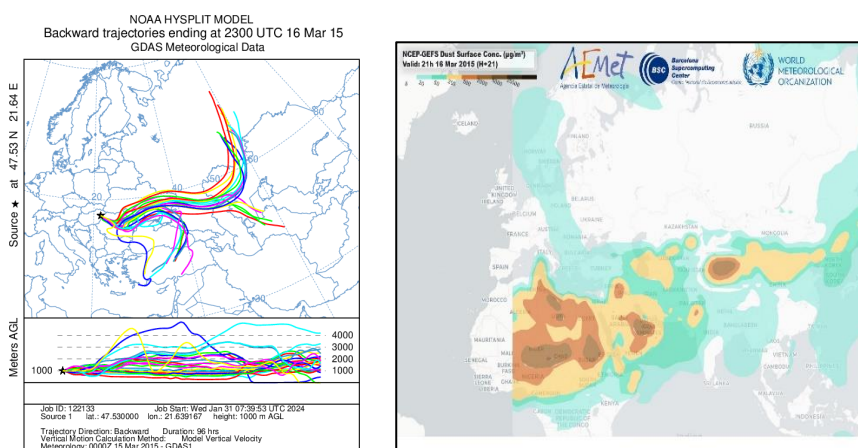


15. ábra. A bal oldali képen láthatók az öt napra ezer méteres magasságra számolt NOAA HYSPLIT backward trajektóriák, ami alapján a légtömegek déli irányból érkeztek. A jobb oldali képen a NCEP-GEFS modell por optikai mélységének térképe látható 2015. március 26-ra vonatkozóan.

Mindemellett március 26-án jelentősen megnövekedett titán és vas koncentrációt is detektáltam, mely általában jellemző a szaharai porepizódokra [Kertész, 2024]. Az időben visszafelé számolt trajektóriák és az optikai mélység térkép (NCEP – GEFS modell) megerősítette, hogy

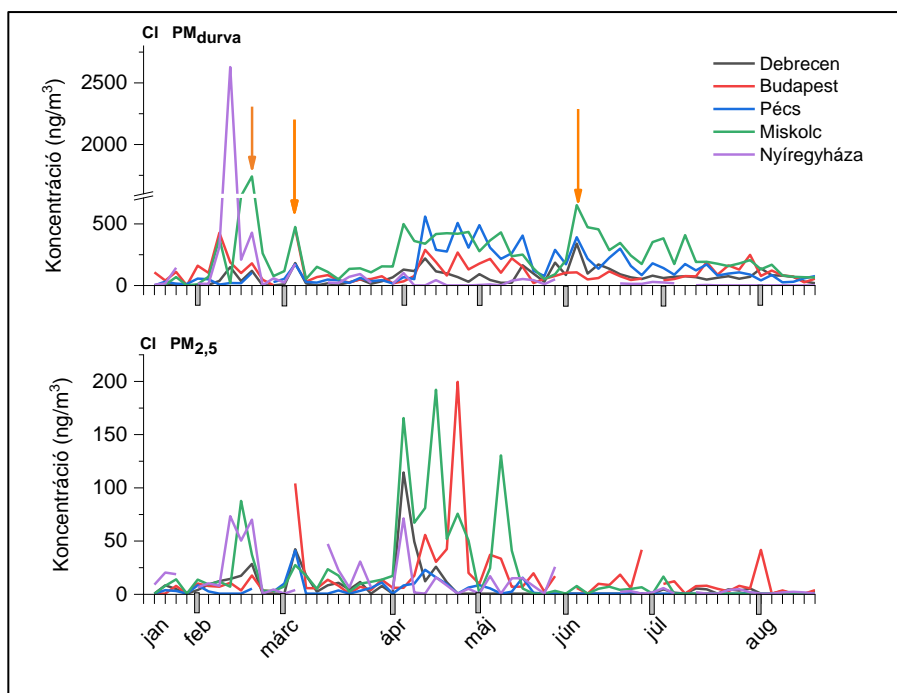
Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése

Afrika felől érkeztek légtömegek. A 15. ábrán a Budapestre vonatkozó trajektóriákat és optikai mélység térképet mutatom be. Ezzel szemben a 2015. március 16-ra végzett trajektória számítások alapján légtömegek Ázsia felől érkeztek a városokba. A Debrecenre vonatkozó trajektóriákat és a felületi por koncentráció térképét a 16. ábrán mutatom be. Az Ázsia irányából érkező porok összetételére a megemelkedett Mg és Sr koncentráció [Kertész, 2024] jellemző. Azonban a mintáimnál Mg mérésére még nem volt lehetőség, viszont a Sr koncentrációban növekedést tapasztaltam más mintavételi napokhoz képest.



16. ábra. A bal oldali képen láthatók a négy napra ezer méteres magasságra számolt NOAA HYSPLIT backward trajektóriák, ami alapján a légtömegek Ázsia irányából érkeztek. A jobb oldali képen NCEP-GEFS modell por felületi koncentrációjának térképe látható 2015. március 16-ra vonatkozóan.

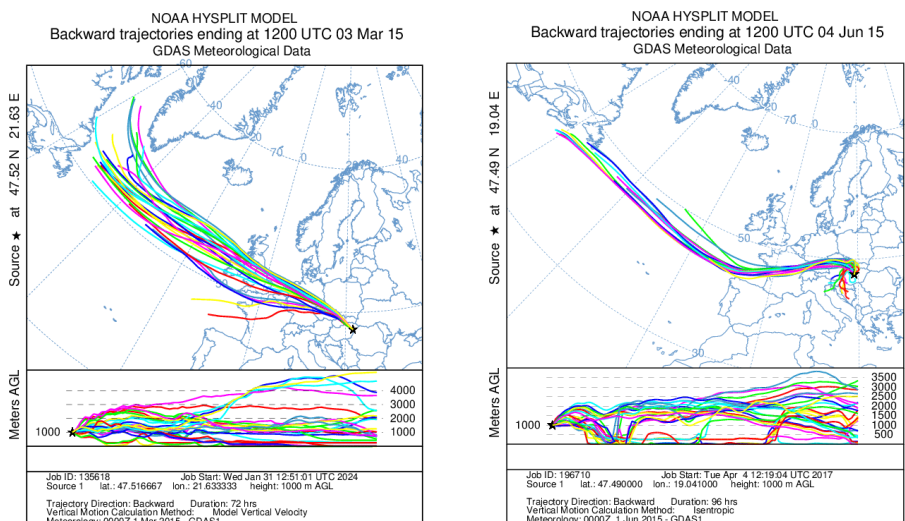
A klór koncentrációk értelmezését alapvetően megnehezíti, hogy számos különböző forrása lehet mindkét méretfrakcióban, mint például só, növényvédő szerek, műtrágyák, biomassza égetés vagy ipari kibocsátások [Angyal, 2010].



17. ábra. A durva és finom frakciós klór elemkoncentrációjának időbeli változása a teljes mintavételi időszakban az öt városban.

Az esetek többségében a durva frakcióban a klór leginkább só formájában fordul elő. A Cl koncentrációk időbeli változásai (17. ábra) alapján megfigyeltem, hogy a kiugró elemkoncentrációk epizódszerűen jelennek meg a városokban. A durva frakció esetében Budapesten, Debrecenben, Pécsen és Miskolcon 2015. március 3-án és június 4-én országos eseteket azonosítottam. A téli időszakban általában a havazásokhoz és az utak fel sózásához szokták kötni a megjelenő durva frakciós klór epizódokat. A meteorológiai adatok alapján azonban megállapítottam, hogy a márciusi országos eset nem volt összefüggésben havazással, ugyanis ezen a napon nem hullott csapadék az érintett városokban. A június 4-i eseménynél azt feltételeztem, hogy nagytávolságú transzportból érkező aeroszol-részecskék okozhatták a durva frakciós klór több 100 ng/m³-es koncentráció emelkedését. A 18. ábrán az időben visszafelé számolt trajektóriák alapján látható, hogy a légtömegek az Atlanti-Óceán felől érkeztek, ebből következően a tengeri só lehetett az indoka a megemelkedett klór koncentrációknak.

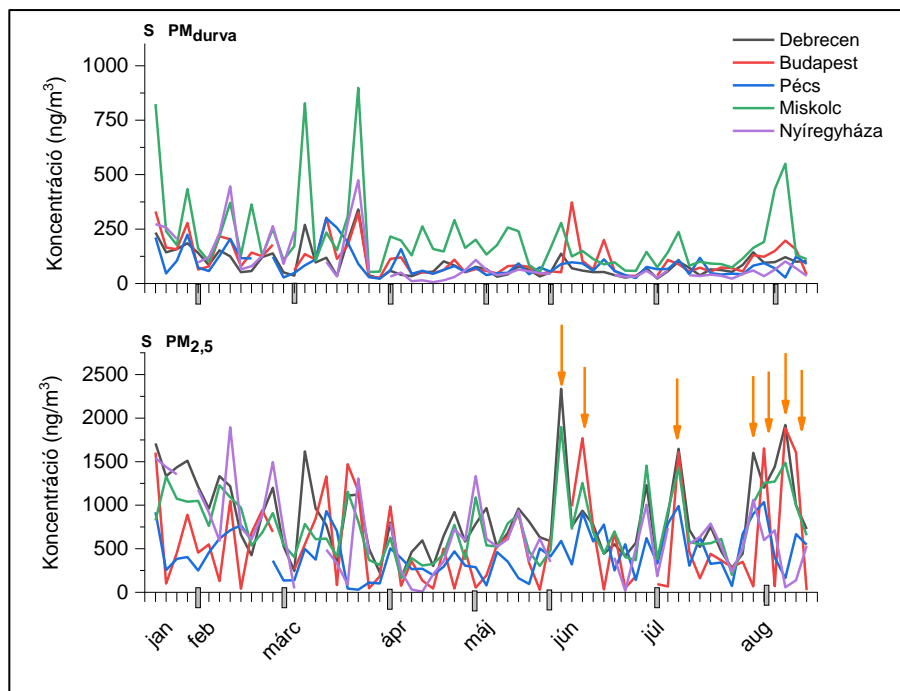
Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése



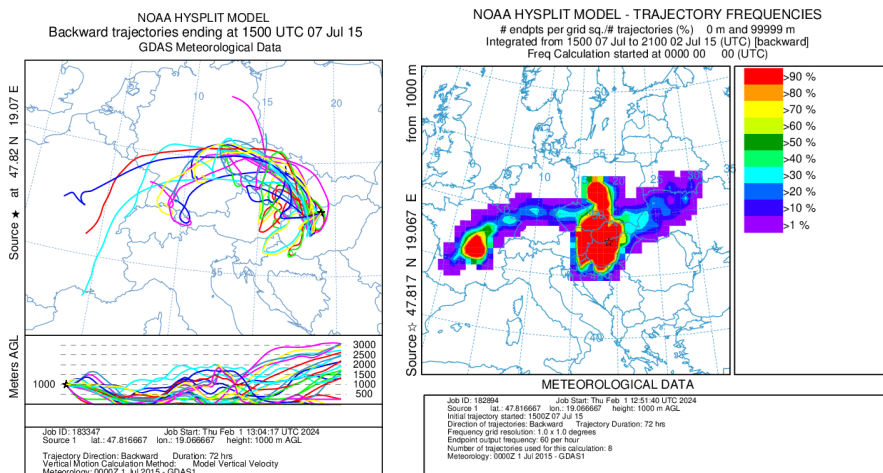
18. ábra. A NOAA HYSPLIT három napra visszszámolt trajektóriai ezer méteres magasságban. A térképeken a 2015. március 3-án és június 4-én Magyarországára érkező légtömegek és jellemző irányuk látható.

A finom méretfrakciós aeroszol lényeges alkotói közé tartozik a kén, mely a légkörben elsősorban szulfát (SO_4^{2-}) formában található meg, ebben a frakcióban pedig általában regionális forrásból származik. A kén koncentrációjának időbeli változásait vizsgálva (19. ábra) a finom frakcióban nem tapasztaltam szezonális különbségeket, azonban a durva frakcióban téli maximumot detektáltam, ami a városokban a lakossági fűtésre utal. Emellett a $\text{PM}_{2,5}$ -ben 2015. június 3-án Debrecenben és Miskolcon kiugró értékeket mértem (2335 ng/m^3 és 1895 ng/m^3), míg további epizódszerű koncentráció növekedést tapasztaltam minden városban 2015. július 7-én, 2015. augusztus 3-án, 4-én, 12-én és 13-án. Az elvégzett trajektória számítások alapján arra következtetek, hogy a kén koncentrációjának ily mértékű megnövekedését nagytávolságú transzportból érkező aeroszol-részecskék okozták ezeken a napokon. A 20. ábrán láthatók példaként a 2015. július 7-re vonatkozó trajektóriák és legvalószínűbb forrásterületük, mely alapján megállapítottam, hogy a koncentráció emelkedés regionális forráshoz köthető.

Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése



19. ábra. A durva és finom frakciós kén koncentrációjának időbeli változása a teljes mintavételi időszakban, az öt városban.

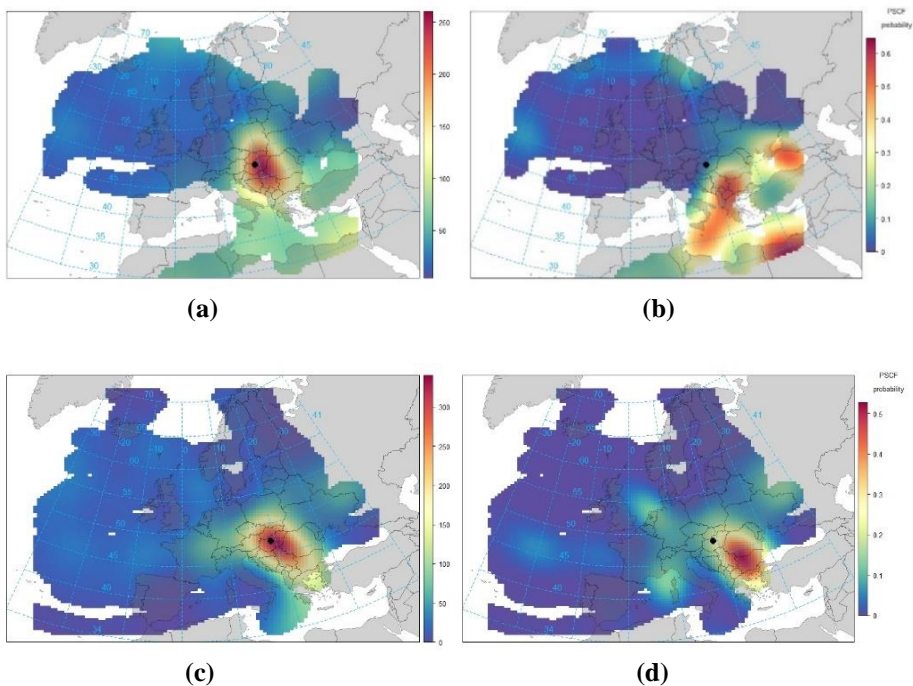


20. ábra. A NOAA HYSPLIT három napra visszszámolt trajektóriai ezer méteres magasságban. A térképeken a 2015. július 7-én Magyarországára érkező légtömegek (bal) és legvalószínűbb forrásterületük (jobb) látható.

5.5. Az egyes aeroszol komponensek földrajzi forrásterület meghatározása

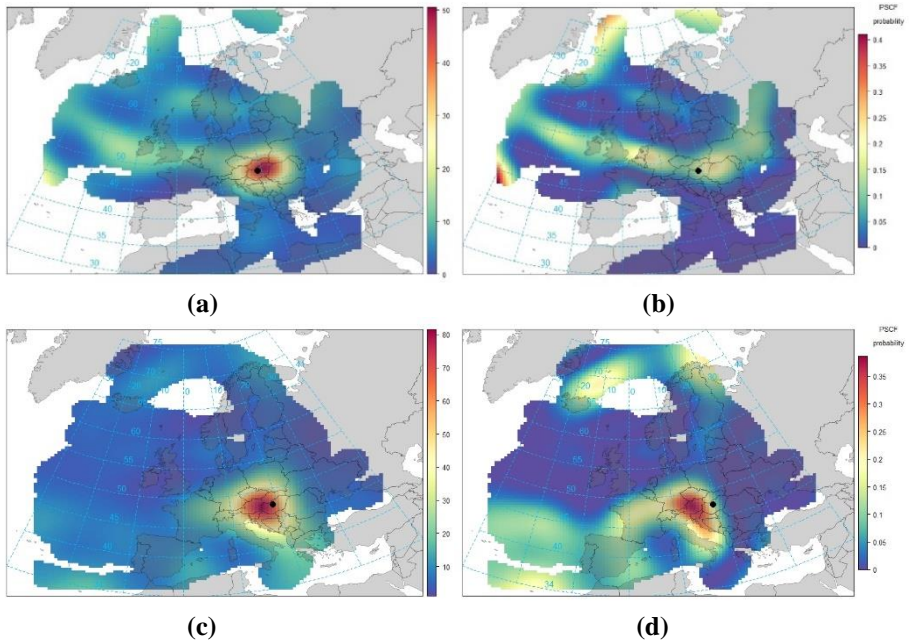
Annak érdekében, hogy a mintavételi periódusban meg tudjam határozni a finom frakciós kén és a durva frakciós klór földrajzi forrásterületét, valamint azok szezonális változásait, időben visszafelé számolt trajektóriákat futtattam, hogy megismerjem a receptorterületre érkező légtömegek irányát. A trajektóriákat felhasználva - a PSCF és a CWT módszerekkel - meghatároztam a kérdéses összetevők földrajzi forrásterületét mind a fűtési mind a nem fűtési időszakban.

A PSCF és CWT vizsgálatok alapján azt tapasztaltam, hogy a szulfát télen és nyáron is lokális és regionális forrásokból származott. A téli és nyári időszakból példaként bemutatom Budapestre vonatkozó eredményeket, melyek a 21. ábrán láthatók. A többi eredményt a 7–8. függelékben mutatom be. A vizsgálatok alapján azt tapasztaltam, hogy a fő forrásterületek Délnyugat-Románia, a Balkáni országok, és esetenként Szlovákia és Ukrajna.



21. ábra. A szulfátra vonatkozó CWT (21.a.) és PSCF (75%-os küszöbértékkel) (21.b.) eredmények a fűtési időszakban, valamint a nem fűtési időszakra vonatkozó CWT (21.c.) és PSCF (75%-os küszöbértékkel) (21.d.) eredmények Budapesten, 2015-ben.

A 22. ábrán mutatom be a durva frakciós klór fűtési és nem fűtési időszakra vonatkozóan kapott PSCF és CWT eredményeit Budapesten, míg a másik négy városra vonatkozó eredmények a 6–7. függelékben láthatók. A kapott eredmények azt mutatták, hogy a téli időszakban az Atlanti-Óceán, a Jeges-tenger és regionális területek voltak a fő forrásterületek, míg nyáron főként az Adriai-tenger és az Atlanti-Óceán irányából érkeztek a domináns légtömegek.



22. ábra. Durva méretfrakciós klórra vonatkozó vonatkozó CWT (22.a.) és PSCF (75%-os küszöbértékkel) (22.b.) eredmények a fűtési időszakban, valamint a nyári időszakra vonatkozó CWT (22.c.) és PSCF (75%-os küszöbértékkel) (22.d.) eredmények Budapesten, 2015-ben.

Összefoglalás

Doktori disszertációmban az Atommagkutató Intézetben végzett kutatómunkám eredményeit mutattam be „Aeroszol-szennyezés jellemzése Magyarország nagyvárosaiban” témakörben. Munkám során elemeztem a tömegközlekedési eszközök utasterében gyűjtött aeroszol minták tömegkoncentrációját, elemi összetételét és szennyező forrásait. Emellett Magyarország öt nagyvárosában szinkronizált mintavételi kampányok során vizsgáltam a városi aeroszol tömeg- és elemkoncentrációkat, illetve azok változásait, valamint a nagytávolságú transzportból származó szennyezők földrajzi forrásterületeit.

1. Légtéri aeroszol-szennyezés a közösségi közlekedési eszközök utasterében

A munka során két mintavételi kampányban vizsgáltam az aeroszol-szennyezettséget különböző közösségi közlekedési eszközök utasterében 2012-ben és 2014-ben. A debreceni járműveken légtérben mért $PM_{2,5+durva}$ koncentrációkat összehasonlítottam az Országos Légszennyezettségi Mérőhálózat két debreceni automata mérőpontjának a mintavételi időszakban mért koncentrációival, valamint az ATOMKI városi háttérterületről származó adataival. Mindez alapján megállapítottam, hogy 2–19-szer magasabb tömegkoncentrációk voltak a járművek utasterében, mint a kültéri helyszíneken.

A járműveken a megemelkedett szennyezettségi szinteket a talaj eredetű por és az út porának felferődése, a motorok kibocsátása és különböző beltéri források okozták, mint például a bútorok, tisztítószer, sínek és felső vezetékek kopása, valamint a nem megfelelően karbantartott szellőztető- és klímarendszerek.

Elemeztem a tömegközlekedési eszközök utasterében a méretfrakciónkénti relatív tömeget, mely során a detektált elemeket három csoportra osztottam. Az elsőbe tartoznak a földkéreg-eredetű elemek. Esetükben megállapítottam, hogy a méretfrakciónkénti relatív tömeg nagy része a 2,5–10 μ m-es mérettartományban jelent meg. A kültéri antropogén elemek esetében azt tapasztaltam, hogy a 0,25–0,50 μ m és a 2,5–10 μ m

tartományban, míg az utastérből származó elemeknél (3.csoport) a tömeg döntő hányada a 2,5–10 μ m-es mérettartományban jelent meg.

2. A debreceni régi és új típusú villamosok utasterének aeroszol-szennyezettsége 2017-2018 között

Ebben a munkában összehasonlítottam két különböző generációs debreceni villamos utasterének aeroszol szennyezettségét fűtési és nem fűtési időszakokban. A mintavételek párhuzamosan valósultak meg a két villamos típus és a kültéri mérőpont (ATOMKI városi háttérterület) között.

A PM_{2,5} és PM_{durva} tömeg- és elemkoncentrációk elemzése során megállapítottam, hogy a járműveken jelentősen magasabbak voltak a koncentrációk, mint a városi háttérterületen. A PM_{2,5}/PM_{2,5+durva} arányok alapján kimutattam, hogy kültéren a finom frakció hozzájárulása a teljes tömeghez télen 60%, míg nyáron 50% körül alakult. A villamosok légterében a fűtési időszakban a durva frakció volt domináns (a PM_{2,5}/PM_{2,5+durva} arány értéke 35%, illetve 40% volt a régi és az új villamos légterében). Nyáron a régi villamos utasterében a durva frakció hozzájárulása hasonló volt, mint a fűtési időszakban, míg az új villamos esetében pedig a kültérihez hasonló volt a PM_{2,5}/PM_{2,5+durva} arány.

A durva frakció megemelkedett koncentrációját az utasok és a járművek által felvert por, valamint a sínpálya kopása okozta, a szezonális különbséget pedig a különböző szellőztető rendszerekkel magyaráztam.

3. Öt magyarországi nagyváros aeroszol-szennyezésének jellemzése

A 2015. január- és augusztus között zajlott mintavételi kampány során gyűjtött minták eredményeit hasonlítottam össze Magyarország öt nagyvárosában. Megállapítottam, hogy a PM_{2,5}, PM_{durva} és PM₁₀ tömegkoncentrációk átlagosan magasabbak voltak Miskolcon, a közlekedési mérőpontban, mint a többi helyszínen, ahol a mérőpontok városi háttérterületeken helyezkedtek el. Az átlagos PM_{2,5}/PM₁₀ arányok 50–73% között alakultak a fűtési időszakban. A nyári arányokkal (43–60%) összehasonlítva megállapítottam, hogy minden városban a finom frakció járult hozzá nagyobb mértékben a teljes tömeghez. Ehhez képest nyáron a durva frakció hozzájárulása volt jelentősebb.

A minták elemösszetételének vizsgálata alapján kimutattam, hogy az ásványi por eredetű elemek (Al, Si, Ca, Ti, Mn, Fe, Ba) koncentrációi Miskolcon mindkét frakcióban és időszakban nagyobbak voltak a többi várossal összehasonlítva. A mesterséges eredetű elemek esetében (pl. S, Cl, K, Cu) szintén Miskolcon tapasztaltam magasabb értékeket.

Megállapítottam, hogy durva frakciós tömeg fő összetevője az ásványi por volt, mely hozzájárulása a városokban mindkét időszakban átlagosan 13 és 42% között változott. A finom frakcióban a fő összetevők közé tartozott a korom (8-25%), a szulfát (14-24%) és az ásványi por (7-13%).

A tömeg- és elemkoncentrációk időbeli változását vizsgálva egy szaharai- és egy ázsiai porepizódot azonosítottam mind az öt városban (Budapest, Debrecen, Pécs, Miskolc, Nyíregyháza) ugyanazon a napon. Ezen epizódokat a tömeg, a titán, a vas és a stroncium koncentrációk változásai, valamint trajektória számítások, illetve a NCEP–GEFS modell optikai mélység és felületi porkoncentráció térképei alapján azonosítottam. Továbbá számos klór és kén epizódot mutattam ki az elemkoncentrációk és trajektória számítások alapján a vizsgált időszakban.

A PSCF és CWT analízis alapján megállapítottam a finom frakciós kén és a durva frakciós klór földrajzi forrásterületét. Megmutattam, hogy a szulfát regionális forrásból származott mindkét időszakban és a jellemző forrásterületei a Balkáni országok és esetenként Szlovákia voltak. A durva frakciós klór esetében a forrásterületek télen az Atlanti-Óceán és a Jeges-tenger nyáron pedig főként az Adriai-tenger és az Atlanti-Óceán voltak.

Summary

In my PhD thesis I presented the results of my research conducted at the Institute for Nuclear Research with the title "Characterization of Aerosol Pollution in major cities in Hungary". The first scientific topic of my work, I analysed the mass and elemental concentrations and pollutant sources in aerosol samples collected in passengers compartment of public transport vehicles. The second one is a comparative study on aerosol pollution in Budapest, Debrecen, Pécs, Miskolc and Nyíregyháza. I determined the aerosol concentration and its elemental composition and identified the geographical source areas of pollutants from long-range transport.

1. Aerosol pollution in the passenger compartment of public transport vehicles

In this part of my study, I investigated aerosol pollution inside different public transport vehicles during travelling in two sampling campaigns in 2012 and 2014. Compared to the mass concentration data from the Hungarian Air Quality Network and ATOMKI urban background station, I found that the mass concentrations in the passenger compartment of the vehicles were 2-19 times higher than in outdoor locations. I compared the mass concentrations in the interior of each vehicle with those in the passenger compartments of vehicles in other cities around the world, and found that the mass concentrations I measured were about the same as in other cities.

Elevated aerosol pollution levels inside the vehicles were caused by resuspension of soil and road dust, engine emissions and various indoor sources such as furniture, cleaning products, the abrasion of the rails and overhead wires, and poorly maintained ventilation and air conditioning systems.

In the analysis of the relative mass per size fraction, I divided the detected elements into three groups. The first group includes elements of crustal origin. In their case, I found that most of the relative mass per size fraction appeared in the 2.5-10 μ m size range. For the outdoor anthropogenic elements, I found that the majority of the mass appeared in

the 0.25-0.50 μm and 2.5-10 μm ranges, while for the elements from the passenger compartment (Group 3), the majority of the mass appeared in the 2.5-10 μm size range.

2. Aerosol pollution in the passenger compartments of old and new type trams in Debrecen in 2017-2018

In this work, I compared the aerosol pollution of two different generations of trams interior in Debrecen in heating and nonheating periods. Sampling was performed in parallel between the two types of trams and the ATOMKI urban background area.

I found that $\text{PM}_{2.5}$ concentrations were average 2.6–4 times and $\text{PM}_{\text{coarse}}$ mass concentrations were 2.5–4 times higher inside trams than in the urban background area.

Based on the $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{2.5+\text{coarse}}$ ratios, I showed that the outdoor contribution of the fine fraction to the total mass was around 60% in winter and 50% in summer. In the airspace of the trams, the coarse fraction was dominant during the heating season. In summer the contribution of the coarse fraction was more significant in the case of the old tram, while the $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{2.5+\text{coarse}}$ ratio was similar to the outdoor ratio for the new tram. ($\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{2.5+\text{coarse}}$ ratios were 35% and 40% for the old and new trams, respectively). In summer, the contribution of the coarse fraction was similar for the old tram compared $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{2.5+\text{coarse}}$ ratio for the new tram was similar to the outdoor one.

3. Characterisation of aerosol pollution in five major cities of Hungary

I compared the results of samples collected during a sampling campaign between January and August 2015 in five major cities in Hungary. I found that the mass concentrations of $\text{PM}_{2.5}$, $\text{PM}_{\text{coarse}}$ and PM_{10} were on average higher in Miskolc, the traffic monitoring site, than in the other locations, where the monitoring points were located in urban background areas. Average $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ ratios ranged from 50–73% during the heating period. Compared to the summer ratios (43–60%), it was found

Summary

that in all cities the fine fraction contributed more to the total mass. In comparison, the contribution of the coarse fraction was more significant in summer.

The main component of the coarse fraction mass was mineral dust, whose contribution varied between 13 and 42% on average in the cities both periods. I found that for $PM_{2.5}$ the main components were black carbon (8–25%), sulphate (14–24%) and mineral dust (7–13%).

I identified one Saharan and one Asian dust event on the same day in the five studied cities. I identified these episodes based on changes in mass, titanium, iron and strontium concentrations, as well as on HYSPLIT backward trajectories and NCEP-GEFS model optical depth and surface dust concentration maps. I also identified a number of chlorine and sulphur episodes based on elemental concentrations and trajectory calculations over the studied period.

I identified the geographic source areas of coarse fraction chlorine and fine fraction sulphur. The results show that sulphate originated from regional sources in both periods and that the typical source areas were the Balkan countries and occasionally Slovakia. The source areas for coarse fraction chlorine were the Atlantic Ocean and the Arctic Ocean in winter and mainly the Adriatic Sea and the Atlantic Ocean in summer.

Köszönetnyilvánítás

Szeretnék köszönetet mondani témavezetőmnek, Dr. Kertész Zsófiának a doktori munkám során nyújtott szakmai tanácsokért és a munkám elvégzéséhez szükséges feltételek biztosításáért.

Köszönöm Dr. Angyal Anikónak, a szakmai konzultációkat és segítséget, amellyel nagymértékben hozzájárult dolgozatom elkészítéséhez.

Köszönöm Dr. Fodorné Furu Enikőnek a kutatómunkám alatt nyújtott támogatást.

Hálával tartozom Dr. Halász Zoltánnak, aki mindvégig segített és tanácsokkal látott el disszertációm elkészítése során.

Köszönet illeti az ATOMKI Örökségtudományi- és a Tandetron Laboratóriumában dolgozó munkatársaimat a segítségért és a támogatásért, ami hozzájárult a munkám sikeres elvégzéséhez.

Köszönöm a Részecskegyorsító Központ munkatársainak, hogy kutatómunkámhoz mindig biztositották a megfelelő kísérleti körülményeket.

Külön köszönet illeti a Nukleáris Asztrofizika Kutatócsoport és a „kávé klub” tagjait, az évek során nyújtott folyamatos támogatásért.

Végül, de nem utolsó sorban szeretnék köszönetet mondani Édesanyámnak és Vőlegényemnek támogatásukért és szeretetükért, ami nélkül a doktori disszertációm nem készülhetett volna el.

Publikációk

A PhD értekezés alapjául szolgáló publikációk

1. **Papp, E.**, Nagy, D., Szoboszlai, Z., Angyal, A., Török, Z., Csepregi, Á., Furu, E., Kertész, Z. Investigation of aerosol pollution inside trams in Debrecen, Hungary, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. Sect. B 477, 138-143, 2020.
2. **Papp, E.**, Angyal, A., Furu, E., Szoboszlai, Z., Török, Zs., Kertész, Zs. Case Studies of Aerosol Pollution in Different Public Transport Vehicles in Hungarian Cities. Atmosphere 13:5 Paper: 692, 18 p, 2022.
3. **Papp, E.**, Angyal, A., S. Bán, M. Molnár, I. Major, T. Varga, Furu, E. Kertész, Zs. Characterization of APM pollution in five major cities in Hungary in 2015. (előkészületben)

További közlemények

Magyar nyelvű könyvrészletek

4. Angyal, A., Bálint, M., Bacskai, I., Csedreki, L., Furu, E., Kertész, Z., **Papp, E.**, Szoboszlai, Z., Szikszai, Z.: A második hajdúböszörményi szitula elemanalitikai vizsgálata. Eötvös Lóránd Tudományegyetem Régészettudományi Intézet; Hajdúböszörmény Hajdúsági Múzeum; Budapest, 69-77, 2017.

Idegen nyelvű tudományos közlemények külföldi folyóiratban

5. Kertész, Zs.; Aljboor, S.; Angyal, A.; **Papp, E.**; Furu, E.; Szarka, M.; Bán, S.; Szikszai, Z. Characterization of urban aerosol pollution before and during the COVID-19 crisis in a central-eastern European urban environment. Atmos. Environ. 318 Paper: 120267, 2024.

6. Tóth, Á.; Gyürky, Gy.; **Papp, E.**; Szücs, T. Experimental ^7Be production cross section from the $\text{Li } ^7(\text{p}, \text{n}) ^7\text{Be}$ reaction at $E_p = 3.5 - 13 \text{ MeV}$. Nucl. Phys. A 1041 Paper: 122778, 2024.
7. Tarbay J., G., Dani, J., Bálint, M., Kertész, Z., Szikszai, Z., **Papp, E.**, Lukács, B., Angyal, A. PIXE analysis of Late Bronze Age situlae from the eponymous Hajdúböszörmény-Csege-halom I hoard and Sényő-Dajkahegy, Northeastern Hungary. ARCHEOLOGICKE ROZHLEDY 75:3 pp. 278-292.,15 p. (2024)
8. Aljboor, S.; Angyal, A.; Baranyai, D.; **Papp, E.**; Szarka, M.; Szikszai, Z.; Rajta, Is.; Vajda, I.; Kertész, Zs. Light-element sensitive in-air millibeam PIXE setup for fast measurement of atmospheric aerosol samples J. Anal. At. Spectrom. 38:1 pp. 57-65., 9 p., 2023.
9. Vörösmarty, M.; Uzu, G.; Jaffrezo, J-L.; Dominutti, P.; Kertész, Zs.; **Papp, E.**; Salma, I. Oxidative potential in rural, suburban and city centre atmospheric environments in central Europe Atmos. Chem. Phys.23:22 pp. 14255-14269, 15 p., 2023.
10. Furu, E.; Angyal, A.; Szoboszlai, Z.; **Papp, E.**; Török, Zs.; Kertész, Zs. Characterization of Aerosol Pollution in Two Hungarian Cities in Winter 2009–2010. Atmosphere 13:4 Paper: 554, 2022.
11. Angyal, A., Ferenczi, Z., Manousakas, M., Furu, E., Szoboszlai, Z., Török, Z., **Papp, E.**, Szikszai, Z., Kertész, Z. Source identification of fine and coarse aerosol during smog episodes in Debrecen, Hungary. Air Qual. Atmos. Health. 14 (7), 1017-1032, 2021.
12. Sánchez de, I. T. M., Angyal, A., Kertész, Z., Dubernet, S., Le Bourdonnec, F. X., **Papp, E.**, Szoboszlai, Z., Török, Z., Csepregi, Á., Szikszai, Z.: Micro-PIXE studies on prehistoric chert tools: elemental mapping to determine Palaeolithic lithic procurement. Archaeol. Anthropol. Sci. 11 (6), 2375-2383, 2018.

13. Sánchez de, I. T. M., Angyal, A., Kertész, Z., Dubernet, S., Le Bourdonnec, F. X., Csedreki, L., Furu, E., **Papp, E.**, Szoboszlai, Z., Szikszai, Z.: Trace element mapping of two Pyrenean chert deposits (SW Europe) by PIXE. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B-Beam Interact. Mater. Atoms. 400, 58-64, 2017.

Magyar nyelvű absztrakt kiadványok

14. **Papp, E.** Városi aeroszol szennyezés földrajzi eredete öt magyarországi nagyvárosban. XV. Magyar Aeroszol Konferencia előadás-kivonatai. Hévíz, 2022. szeptember 21-23.
15. Angyal, A., Furu, E., **Papp, E.**, Török, Z., Szikszai, Z., Kertész, Z.: Helyi forrásokból, hosszú- és rövidtávú transzportból származó aeroszol azonosítása. In: A XIV. Magyar Aeroszol Konferencia, Wigner Fizikai Kutatóközp., Budapest, 33-34, 2019.
16. **Papp, E.**, Nagy, D., Szoboszlai, Z., Angyal, A., Török, Z., Csepregi, Á., Furu, E., Kertész, Z.: Légköri aeroszol szennyezettség vizsgálata a debreceni villamosokon. In: A XIV. Magyar Aeroszol Konferencia, Wigner Fizikai Kutatóközp., Budapest, 91-92, 2019.
17. Török, Z., Angyal, A., Furu, E., **Papp, E.**, Borbélyné Kiss, I., Kertész, Z.: Szulfát tartalmú aeroszol részecskék forrásai Debrecenben. In: A XIV. Magyar Aeroszol Konferencia, Wigner Fizikai Kutatóközp., Budapest, 74-75, 2019.
18. Kertész, Zs., Szoboszlai, Z., Major, I., Varga, T., Angyal, A., Török, Zs., **Papp, E.**, Molnár, M. Légköri aeroszol szennyezés vizsgálata szmog epizód alatt méreteloszlás, radiokarbon és PIXE analízis alapján. In: A XIV. Magyar Aeroszol Konferencia, Wigner Fizikai Kutatóközp., Budapest, 74-75, 2019.
19. Furu, E., Angyal, A., Szoboszlai, Z., Török, Z., **Papp, E.**, Kertész, Z.: Aeroszol szennyezettség Budapesten és Debrecenben 2009-2010 telén. In: A XIII. Magyar Aeroszol Konferencia előadás-kivonatai. Szerk.: Schmeller Gabriella, Pécsi Tudományegyetem, Pécs, 61-62, 2017.

20. **Papp, E.**, Furu, E., Szoboszlai, Z., Angyal, A., Török, Z., Kertész, Z.: Léggöri aeroszol koncentrációja, összetétele, méreteloszlása és forrásai tömegközlekedési eszközökön. In: A XIII. Magyar Aeroszol Konferencia előadás-kivonatai. Szerk.: Schmeller Gabriella, Pécsi Tudományegyetem, Pécs, 69-70, 2017.
21. Angyal, A., Bétéri, G., Furu, E., **Papp, E.**, Szoboszlai, Z., Török, Z., Kertész, Z.: Városi aeroszol forrásainak azonosítása fűtési időszakban. In: A XIII. Magyar Aeroszol Konferencia előadás-kivonatai. Szerk.: Schmeller Gabriella, Pécsi Tudományegyetem, Pécs, 65, 2017.
22. **Papp, E.**, Furu, E., Kertész, Z.: Léggöri aeroszol szennyezés vizsgálata tömegközlekedési eszközökön Debrecenben. In: A XII. Magyar Aeroszol Konferencia előadás-kivonatai. Szerk.: Filep Ágnes, Mucsiné Égerházi Lilla, Szegedi Tudományegyetem, Szeged, 46-47, 2015.
23. **Papp, E.**, Furu, E., Angyal, A., Szoboszlai, Z., Török, Z., Kertész, Z.: Léggöri aeroszol terhelés vizsgálata tömegközlekedési eszközökön. In: XI. Magyar Aeroszol Konferencia: programok és előadáskivonatok: Debrecen 2013. október 28-30, MTA Atommagkutató Intézet, Debrecen, 48-49, 2013.

Idegen nyelvű absztrakt kiadványok

24. Angyal, A., Furu, E., **Papp, E.**, Török, Z., Szikszai, Z., Kertész, Z.: Identification of Urban Aerosol Sources During Heating Seasons in Debrecen, Hungary. European Aerosol Conference 2019, 066, 2019.
25. Török, Z., Angyal, A., Furu, E., **Papp, E.**, Kouznetsov, R., Sofiev, M., Kertész, Z.: Long-range Transport of Fine Aerosol Particles in Debrecen, Hungary. European Aerosol Conference 2019, 069, 2019.
26. Szoboszlai, Z., Major, I., Molnár, M., Varga, T., Angyal, A., Pásztor-Török, Zs., **Papp, E.**, Kertész, Zs. Characterization of urban aerosol pollution under a smog episode in Debrecen by size distribution, PIXE and radiocarbon analysis In: P., Cristina Chaves;

- Miguel, A. Reis 16th International Conference on Particle Induced X-ray Emission PIXE2019 - Programme and Abstracts Caldas da Rainha, Portugália (2019) p. 128.
27. **Papp, E.**, Nagy, D., Angyal, A., Szoboszlai, Z., Török, Zs., Csepregi, Á., Kertész, Zs. Investigation of aerosol pollution on trams in Debrecen (Hungary) In: P., Cristina Chaves; Miguel, A. Reis 16th International Conference on Particle Induced X-ray Emission PIXE2019 - Programme and Abstracts Caldas da Rainha, Portugália (2019) p. 122.
28. Kertész, Z., Angyal, A., Bétéri, G., Furu, E., Major, I., **Papp, E.**, Szikszai, Z., Szoboszlai, Z., Török, Z., Molnár, M.: Composition and sources of particulate matter pollution in five Hungarian cities in 2015. In: 15th International Conference on Particle Induced X-ray Emission: PIXE2017. Ed.: Fazinic S., Zamboni I, Ruder Boskovic Institute, Split, 65, 2017.
29. Angyal, A., Bálint, M., Bacskai, I., Csedreki, L., Furu, E., **Papp, E.**, Szoboszlai, Z., Kertész, Z., Szikszai, Z.: Quantitative elemental analysis of Bronze Age situla by external micro-PIXE. In: 15th International Conference on Particle Induced X-ray Emission: PIXE2017. Ed.: Fazinic S., Zamboni I, Ruder Boskovic Institute, Split, 93, 2017.
30. **Papp, E.**, Furu, E., Szoboszlai, Z., Angyal, A., Török, Z., Kertész, Z.: Study of aerosol pollution on public transport vehicles. In: 15th International Conference on Particle Induced X-ray Emission: PIXE2017. Ed.: Fazinic S., Zamboni I, Ruder Boskovic Institute, Split, 98, 2017.

Irodalomjegyzék

- [Ackermann, 2012] S. A. Ackerman, J. A. Knox, Meteorology, Jones & Bartlett Publishers (2012) 57.
- [Ács, 1976] Ács I. (1976) Debrecen és a közlekedés. – Városi közlekedés, (16. évf.) 1. sz. pp. 57-89.
- [Andreae, 1997] Andreae, M.O., Crutzen, P.J., Science 276, (1997) 1052–1058.
- [Angyal, 2010] Angyal, A. et al. (2010). Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. 268, 2211–2215.
- [Angyal, 2021] Angyal A. et al. (2021). Air Qual. Atmos. Health 14 (7), 1017-1032.
- [Albrecht, 1989] B.A., Science 245, (1989) 1227–1230.
- [Almeida, 2020] S.M. Almeida et al. (2020). Environ. Pollut., 266, 115199.
- [Aljboor, 2023] S. Aljboor et al. (2023). J. Anal. Atomic Spectrom., 38 (1), 57-65.
- [Artesani, 2020]
- [Barmmparesos, 2016] Barmmparesos, N. et al. (2016). AIMS Environ. Sci., 3, 199–219.
- [Borbélyné-Kiss, 1997] Borbély-Kiss I. (1997), *Doktori (PhD) értekezés. (in Hung.)* Debrecen, Kossuth Lajos Tudományegyetem.
- [Borbélyné-Kiss, 1999] Zs. Kertész et al. (1999) Nucl. Instr. Meth. 150, pp. 339-344.
- [Bekő, 2015] Bekő et al. (2015). Atmos. Environ. 110, 122–129.
- [BKV] Budapesti Közlekedési Zrt. Elérhető itt: <https://www.bkv.hu/>
- [Budapesti Hírlap, 1896] A földalatti elektromos vasút bemutatása. Budapest, április 7. *Budapesti Hírlap*, 1896. április 8. 16. évfolyam, 97. szám, 5. o.
- [Baron, 2011] P. A. Baron, K., Willeke, Aerosol Measurement: Principles, Techniques, and Applications, Published by Wiley and Sons, Inc., Hoboken, New Jersey, 2011.
- [Bergamaschi, 2006] Bergamaschi, A. (2006). J. Occup. Environ. Hyg. 3, 16–25.
- [Brook, 2010] Brook, R.D. et al. (2010). Circulation 121, 2331–2378.
- [Boucher, 2013] Boucher, O. et al. (2013). Clouds and Aerosols. In Stocker, T.F. et al. (eds): Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge, New York: Cambridge University Press.
- [Claeys, 2004] Claeys, M. et al. (2004). Science 303, 1173–1176. Atmos. Environ. 38, 4093–4098.
- [Carslaw, 2008] Carslaw, K. (2008). International Summer School on Atmospheric and Oceanic Sciences 2008, L’Acquila.
- [Calvo, 2013] A.I. Calvo et al. (2013). Atmos. Res., 120–121, 1-28.
- [Campbell, 2011] J.L. Campbell et al. (2011). Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. 269, 57.

- [Canberra, 2005] <http://www.canberra.com/products/detectors/pdf/SiLi-Super-Det-SS.pdf>, 2005 Canberra Industries.
- [Carlaw D. C., 2012] Carlaw, D. C., and K. Ropkins (2012) *Environ. Mod. Soft.* 27–28 (0): 52–61.
- [Carlaw D.C., 2019] Carlaw, D.C., *The openair manual — open-source tools for analysing air pollution data. Manual for version 2.6-6.*, University of York.
- [Clayton, 1987] E. Clayton, P. Duerden and D.D.Cohen (1987). *Nucl. Instr. Meth.* 22, 64.
- [Chan, 2002] Chan, L.Y et al. (2002). *Atmos. Environ.*, 36, 3363–3373.
- [Carteni, 2015] Carteni, A.; Cascetta, F.; Campana, S. (2015). *Atmos. Environ.* 101, 328–337.
- [Cesaroni, 2012] Cesaroni, G., et al. (2012). *Occup. Environ. Med.* 69(2),133-139.
- [Cohen, 2020] Cohen, D.D.; Atanacio, A.; Crawford, J.; Siegele, R. (2020). *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.* 477, 122–132.
- [Couespel, 2020] Couespel, N. and Price, R. (2020). *Strengthening Europe in the fight against cancer*, European Parliament, Policy Department of Life Policies: [https://www.europarl.europa.eu/thinktank/en/document/IPOL_STU\(2020\)642388](https://www.europarl.europa.eu/thinktank/en/document/IPOL_STU(2020)642388)
- [Chow, 2002] Chow, J. C., Watson, J. G. (2002). *Energy and Fuels* 16, 222-260.
- [Chow, 2004] Chow, J. C. et al. (2004). *Chemosphere* 54, 185-208.
- [Draxler, 1998] Draxler, R.R., 1998. *Aust. Meteorol. Mag.* 47, 295–308.
- [Davidson, 2005] C. I. Davidson et al. (2005). *Aerosol Sci. Technol.*, 39:8, 737-749.
- [Directive 2008/50/EC] Directive 2008/50/EC on ambient air quality and cleaner air for Europe. *Official Journal of the European Union*, L152/1-44, 11.6.2008.
- [Desboeufs, 2018] Desboeufs, K. et al. (2018). *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 14477–14492.
- [DKV] Debreceni Közlekedési Zrt. Elérhető itt: <https://www.dkv.hu/>
- [EEA, 2013] European Environment Agency. *Air Quality in Europe 2013. Report no. 9/2013.*
- [EEA, 2017] European Environment Agency. *Air Quality in Europe 2017. Report no 13/2017.*
- [EEA, 2019] European Environment Agency. *Air Quality in Europe 2019. Report, no. 10/2019.*
- [EEA, 2021a] European Environment Agency. *Air Quality in Europe 2021. Elérhető itt: <https://www.eea.europa.eu/publications/air-quality-in-europe-2021/>*
- [EEA, 2020] European Environment Agency. *Air Quality in Europe 2020. Report no. 09/2020.*
- [EEA, 2022] European Environment Agency. *Air Quality in Europe 2022. Report no. 05/2022.*
- [EEA, 2023] European Environment Agency. *Report, Europe's air quality status 2023. EEA Report no. 05/2023.*

- [EU, 1996] Council Directive 96/62/EC of 27 September 1996 on ambient air quality assessment and management. Elérhető itt: <https://eur-lex.europa.eu/legal-content/EN/TXT/?uri=CELEX:31996L0062>.
- [EU, 2008] Directive 2008/50/EC of the European Parliament and of the Council of 21 May 2008 on ambient air quality and cleaner air for Europe. Elérhető itt: <https://eur-lex.europa.eu/legal-content/EN/TXT/?uri=CELEX:32008L0050>.
- [EU, 2016] Directive 2016/2284/EC of the European Parliament and of the Council of 14 December 2016 on the reduction of national emissions of certain atmospheric pollutants. Elérhető itt: <http://eur-lex.europa.eu/legal-content/EN/TXT/PDF/?uri=CELEX:32016L2284&from=EN>.
- [Faria, 2020] Faria, T. et al. (2020). *Build. Environ.* 171, Article: 106666.
- [Finnlayson-Pitts, 2001] Finnlayson-Pitts, B.J., Finnlayson, J.N. (2001). *Atmospheric Chemistry: Fundamentals and Experimental Techniques*. John Wiley & Sons, New York.
- [Fleming, 2012] Zoë L. Fleming, Paul S. Monks, Alistair J. Manning (2012). *Atmos. Res.* 104-105, 1-39.
- [Ferenczi, 2021] Ferenczi, Z. et al. (2021). *Aerosol Air Qual. Res.* 21, Article: 210048.
- [Furu, 2015] E. Furu et al. (2015). *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.* 363, 124–130.
- [Furu, 2022] E. Furu et al. (2022). *Atmosphere* 13:4 Paper: 554.
- [Gundel, 1984] L.A. Gundel, R.L. Dod, H. Rosen, T. Novakov (1984). *Sci. Total Environ.*, 36, 197-202.
- [Gaiero, 2013] Gaiero, D. M. et al. (2013): Ground/satellite observations and atmospheric modeling of dust storms originated in the high Puna-Altiplano deserts (South America): Implications for the interpretation of paleo-climatic archives.
- [Gao, 2002] Y. Gao et al. (2002). *Atmos. Environ.* 36, 1077.
- [Hinds, 1982] W. C. Hinds: *Aerosol Technology, Properties, behaviour, and measurement of airborne particles*, John Wiley & Son, Chichester, New York, Chichester, Brisbane, Toronto, Singapore, 1982.
- [Gillette, 1980] Gillette, D. A.J. (1980). *Geophys. Res.*, 93, 12645–12662.
- [Hopke, 1997] Hopke, P. K. & Song, X. (1997). *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 37, 5–14.
- [Hsu, 2003] Hsu, Y.-K., T. M. Holsen and P. K. Hopke (2003). *Atmos. Environ.* 37.4, 545–562.
- [Hänninen, 2005] O. Hänninen et al. (2005). *Indoor Air* 15, 246–256.
- [Hvidtfeldt, 2021] Hvidtfeldt, U. A., et al. (2021). *Environ. Res.* 193, p. 110568.
- [He, 2006] He, L.-Y. et al. (2006). *Chemosphere* 62, 1565-1573.
- [IC] Vonat típusok Magyarországon. Elérhető itt: <http://www.vonatosszeallitas.hu/kocsik.html>
- [IPCC, 2001] *Climate Change 2001: The Scientific Basis*. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Fejezet: Aerosols, their direct and indirect effects. 289-348. Szerk.: Penner, J.E. et al. Cambridge University Press, Cambridge, UK

- [IPCC, 2007] Climate Change 2007: The Physical Science Basis, Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Szerk.: Solomon, S. et al., Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- [IPCC, 2021] Climate Change 2021: The Physical Science Basis, Contribution of Working Group I. to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Szerk.: Masson-Delmotte et al. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, pp. 33–144.
- [Johansson, 1970] T.B. Johansson, R. Akselsson, S.A.E. Johansson (1970). Nucl. Instrum. Meth. 84, 141.
- [Johansson, 1988] S.A.E. Johansson, J.L. Campbell. PIXE: A Novel Technique for Elemental Analysis Published by Wiley and Sons, 1988.
- [Johansson, 2003] Johansson, C.; Johansson, P.-Å. (2003). Atmos. Environ. 37, 3–9.
- [Karlsson, 2005] Karlsson, H.L., Nilsson, L., Möller, L., 2005. Chem. Res. Toxicol. 18, 19–23.
- [Kam, 2011] Kam, W.; Cheung, K.; Daher, N.; Sioutas, C. (2011). Atmos. Environ. 45, 1506–1516.
- [Kelly, 2012] Kelly, F.J., Fussell, J.C. (2012). Atmos. Environ. 60, 504–526.
- [Kendall, 1955] Kendall M.G. (1955). Rank Correlation Methods.
- [Kertész, 2010] Zs. Kertész et al. (2010). Nucl. Instrum. Meth. 268, 924–1928.
- [Kertész, 2013] Zs. Kertész et al. (2013). Spectro. Acta B.79-80 pp. 58-62.
- [Kertész, 2024] Zs. Kertész et al. (2024). Atmos. Environ. 318, 120267.
- [Koltay, 1992] E. Koltay (1992). Ionokkal keltett Auger-elektronok és röntgensugárzás. Akadémiai kiadó, Budapest.
- [Körinfó] Környezetvédelmi Információ. <https://www.enfo.hu/>
- [KSH, 2010] Központi Statisztikai Hivatal (KSH) (2010). A 15-74 éves népesség napi időfelhasználása. Statisztikai tükör V. évfolyam 87. szám.
- [Kulmala, 2007] Kulmala, M. et al. (2007). M. Science 318, 89–92.
- [Kulhánová, 2018] Kulhánová, I., et al. (2018). Environ. Int. 121, pp. 1079-1086.
- [Kukkonen, 2012] Kukkonen, J. et al. (2012). Atmos. Environ. 44 (10), 1308–1320.
- [Kumar, 2016] Kumar, P., Goel, A., (2016). Environ. Sci.: Proc. Imp. 18, 1220–1235.
- [Lohman, 2005] Lohmann, U. and Feichter, J. Atmos. Chem. Phys., 5, 715–737.
- [Liu, 2019] Liu., C. et al. (2019). N. Engl. J. Med. 381, 705–715.
- [Li, 1996] Li, X. Y., Gilmour, P. S., Donaldson, K., MacNee, W. (1996) Thorax. 51, 1216-1222.
- [Li, 2012] Li, M. et al. (2012). Sci.Total Environ. 414: 525.
- [Li, 2007] Li, T.T.; Bai, Y.H.; Liu, Z.R.; Li, J.L. (2007). Transp. Res. DTrans. Environ. 12, 64–67.
- [Loomis, 2013] Loomis, D. et al. (2013). Lancet Oncol. 14 (13), 1262–1263.
- [Lu, 2016] Lu, C.-H., da Silva et al. (2016). Geosci. Model Dev., 9, 1905–1919.

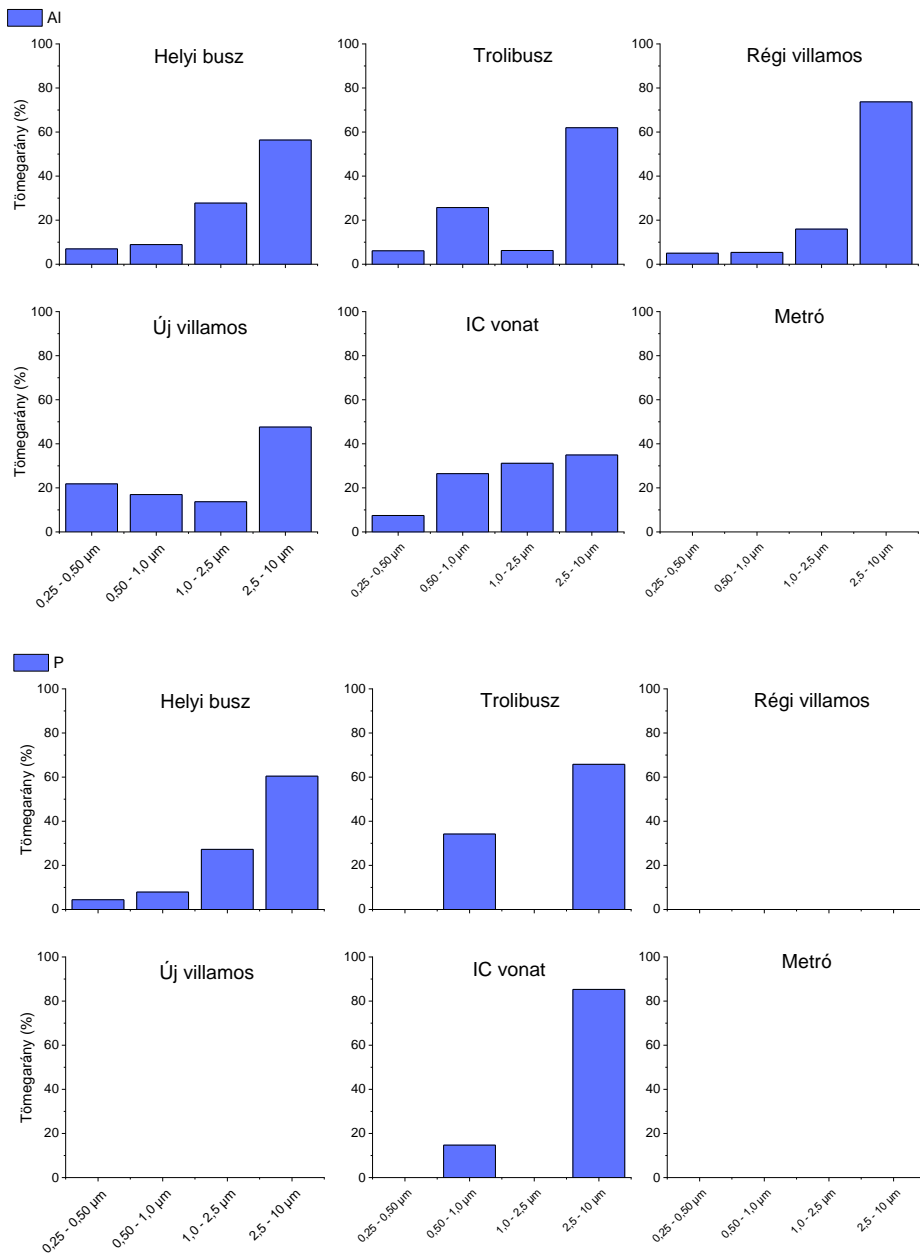
- [Meister, 2011] Meister, K., Johansson, C., Forsberg, B. (2012). *Environ. Health Persp.*, 120, 3.
- [Magyar, 1998] Magyar, P., Hutás, I., Vastag, E. (1998). A tüdő és a légzőrendszer anatómiája. *Pulmonológia*, 3–13., Medicina, Győr.
- [Mitra, 2002] Mitra, A.P., Morawska, L., Sharma, C., Zhang, J. (2002). *Chemosphere* 49, 903–922.
- [Mahonwald, 2018] Mahowald, N.M. et al. (2018). *Nat. Commun.*, 9, 2614.
- [Madsen, 2012] Madsen et al. (2012). *Eur. J. Epidemiol.* 27, 717–727.
- [Martins, 2021] Martins, V. et al. (2021). *J. Environ. Sci.* 100, 51–61.
- [Michaels, 2000] Michaels, R.A., Kleinman, M.T. (2000). *Aerosol Sci. Technol.* 32, 93–105.
- [Metró] Metró típusok Magyarországon. Elérhető itt: <http://metros.hu/jarmu/ev.html>
- [Moreno, 2015] Moreno et al. (2015). *Environ. Res.*, 142, 495–510.
- [Mohsen, 2018] Mohsen, M.; Ahmed, M.B.; Zhou, J.L. (2018). *Transp. Res. D Trans. Environ.* 62, 112–124.
- [Morillas, 2020] H. Morillas, et al. (2020). *Sci.Total Environ.* 721, 137687.
- [Mason, 1982] Mason, B.H.; Moore, C.B. *Principles of Geochemistry*, 4th ed.; Wiley: New York, NY, USA, 1982.
- [Müller, 1988] Müller, J. Spearman's Rank Correlation Coefficient. *Encyclopedia of Statistical Sciences*. 8. New York: John Wiley & Sons, 1988.
- [Owen, 1964] Owen, P. R. (1964). *J. Fluid Mech.*, 20, 225–242
- [Özkaynak, 2013] Özkaynak, H., Baxter, L.K., Dionisio, K.L., Burke, J. (2013). *J. Expo. Sci. Environ. Epidemiol.* 23, 566–572.
- [Pallon, 2009] J. Pallon et al. (2009). *Nucl. Instr. Meth.* 267, 2080.
- [Pöschl, 2005] U. Pöschl. (2005). *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* 44, 7520.
- [PIXE Int. Corp.] PIXE International Corporation, P.O. Box 2744, Tallahassee, FL 32316.
- [Praml, 2000] Praml, G.; Schierl, R. (2000). *Int. Arch. Occup. Environ. Health.* 73, 209–214.
- [Park, 2008] Park, D.U.; Ha, K.C. (2008). *Environ. Int.* 34, 629–634.
- [Patra, 2008] Patra, A. et al. (2008). *Patra Atmospheric Environment* 42, 3911–3926.
- [Pásztor, 2018] L. Pásztor et al. (2018). *Geoderma* 311, 93–108.
- [Pérez, 2011] Pérez et al. (2011). *Atmos. Chem. Phys.*, 11 (24) pp. 13001–13027.
- [Pipal, 2019] Pipal, A.S.; Singh, S.; Satsangi, G.P. (2019). *Urban Clim.* 27, 243–258.
- [Putaud, 2010] Putaud, J.-P. et al. (2010). *Atmos. Environ.* 44, 1308–1320.
- [Rajesh, 2017] T.A. Rajesh, S. Ramachandran (2017). *Environ. Sci. Pollut. Control Ser.*, 24 (9), pp. 8411–8424.
- [Rolph, 2009] Rolph, G. D. et al. (2009). Description and Verification of the NOAA Smoke Forecasting System: The 2007 Fire Season, *Weather Forecast.*, 24(2), 361–378.
- [Ripanucci, 2006] Ripanucci, G. et al. (2006). *J. Occup. Environ. Hyg.*, 3, 16–25.

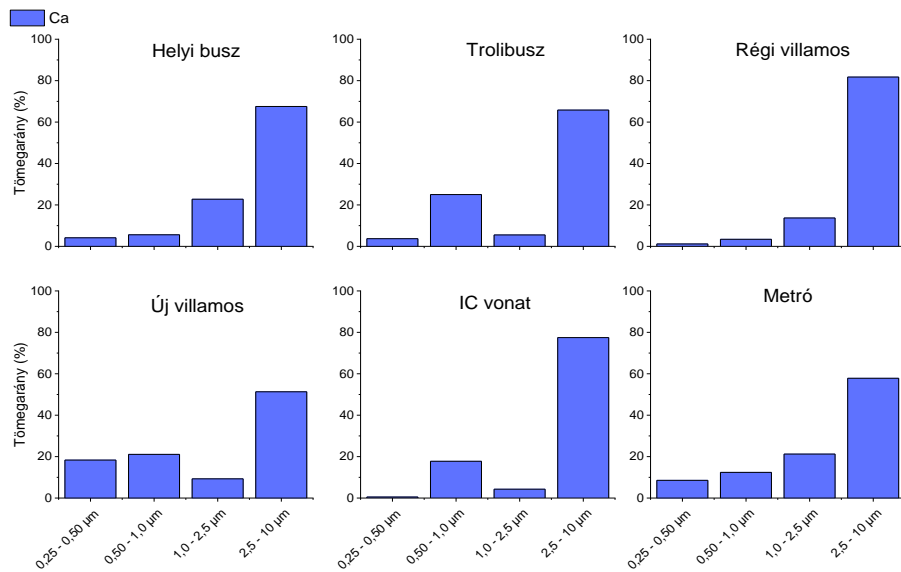
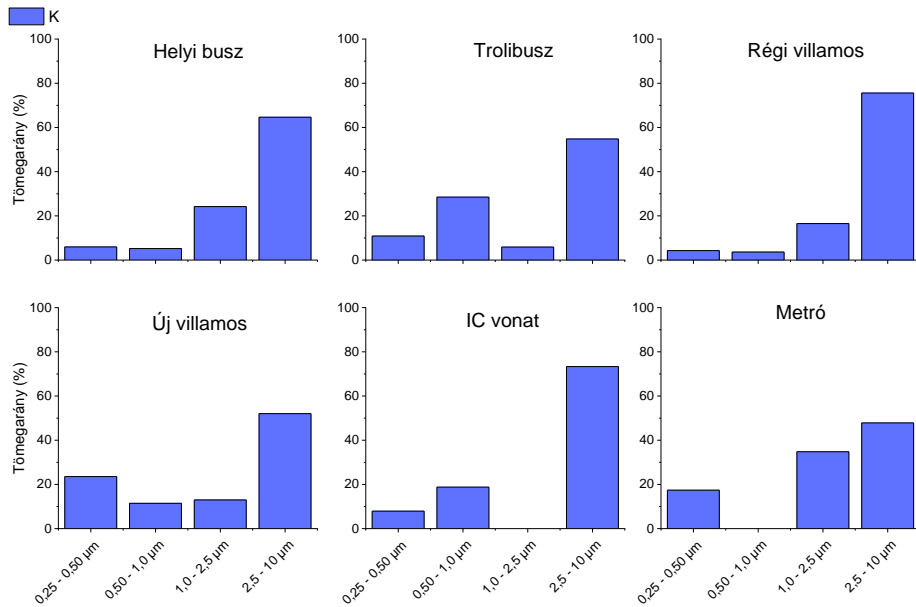
- [Sahin, 2012] Sahin, Ü.A. et al. (2012). *Transport. Res. D Trans. Environ.* 2012, 17, 48–53.
- [Salma, 2002a] I. Salma et al. (2002). *J. Aer. Sci.* 33, 119-132.
- [Salma 2005] Salma, I., Ocskay, R., Raes, N., Maenhaut, W. (2005) *Atmospheric Environment* 39, 5363-5374.
- [Salma, 2007] Salma, I.; Weidinger, T.; Maenhaut, W. (2007). *Atmos. Environ.* 41, 8391–8405.
- [Salma, 2009] Salma, I. et al. (2009). *Atmos. Environ.*, 43, 3460–3466.
- [Salma, 2020a] Salma, I. et al. (2020a). *Atmos. Chem. Phys.* 20 (7), 4295–4312.
- [Schauer, 2006] J. J., Lough et al. (2006) Characterization of metals emitted from motor vehicles. Health Effects Institute.
- [Shao, 1993] Shao, Y.J. et al. (1993). *Geophys. Res.*, 98, 12719–12726
- [Sioutas] Sioutas Personal Cascade Impactor. Elérhető itt: <https://www.skcltd.com/products2/sampling-heads/sioutas-personalcascade-impactor.html>
- [Seibert, 1994] Seibert, P. et al. (1994). Academic Publishing, Den Haag, pp. 689–693.
- [Simoneit, 2002] Simoneit, B. R. T. (2002). *Applied Geochem.* 17, 129-162.
- [Stein, 2015] A.F. Stein et al. (2015). *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 96 (12), pp. 2059-2077.
- [Szűcs, 2004] Szűcs E. Z. (2004). A debreceni kötőtpályás közlekedés 120 éve: 1884-2004. Debrecen, Debreceni Közlekedési Vállalat, 96 p.
- [Smith, 2020] Smith, J.D. et al. (2020). *Environ. Int.* 134, Article: 105188.
- [Szabó, 1993] Gy. Szabó, I. Borbély-Kiss (1993). *Nucl. Instr. Meth.* 75, 123.
- [Szabó, 2009] Gy. Szabó. PIXEKLIM programrendszer PIXE spektrumok kiértékelésére. MTA ATOMKI, Debrecen, 2009.
- [Torseth, 2012] Torseth, K. et al. (2012). *Atmos. Chem. Phys.* 12 (12), 5447–5481.
- [Twomey, 1974] Twomey, S.A. (1974). *Atmos. Environ.* 8, 1251–1256.
- [Török, 2015] Zs. Török et al. (2015). *Nucl. Instr. Meth* 362 pp. 167-171.
- [Uzonyi, 2005] I. Uzonyi, G. Szabó (2005). *Nucl. Instr. Meth.* 231, 56.
- [Vahedian, 2017] Vahedian, M., Khanjani, N., Mirzaee, M., Koolivand, A., (2017). *J. Environ. Health Sci. Eng.* 15, 17.
- [Viana, 2008] M. Viana et al. (2008). *Aerosol Sci.* 39, 827–849.
- [Vonatöszeállítás] Vonat típusok Magyarországon. Elérhető itt: http://www.vonatosszeallitas.hu/jarmuvek_jelleg_2osztaly.html
- [Völgyi, 2012] K. Völgyi Á. (2012). A városi közforgalmú közlekedés kialakulása és jelenlegi helyzete a debreceni közösségi közlekedés példáján. Doktori értekezés.
- [Watson, 2001] Watson, G.J., Chow, C.J. (2001). *Sci. Total Environ.* 276, 33–47.
- [Watson, 2010] J.G. Watson et al. (2010). *Aer. Air Qual. Res.* 11: 331–350.
- [Warneck, 1999] Warneck, P. (1999) *Chemistry of the Natural Atmosphere. Academic Press, San Diego.*

- [WHO, 2021a] Global air quality guidelines: Particulate matter (PM_{2.5} and PM₁₀), ozone, nitrogen dioxide, sulfur dioxide and carbon monoxide.
- [WHO, 2006] WHO Air quality guidelines for particulate matter, ozone, nitrogen dioxide and sulfur dioxide: global update 2005: summary of risk assessment.
- [WHO, 2013] Review of evidence on health aspects of air pollution - REVIHAAP Project. Technical Report:
http://www.euro.who.int/__data/assets/pdf_file/0004/193108/REVIHAAP-Final-technical-report-final-version.pdf.
- [Wuana, 2011] Wuana, R.A., Okieimen, F.E. (2011). Int. Schol. Res. Not. Article: 402647.
- [whatman,2013]
<http://www.whatman.com/PopTopandSwinLokPlasticFilterHolders.aspx>
- [Yao, 2003] X. Yao et al. (2003). Atmos. Environ., 37 (21), 2991-3000
- [Yatkin, 2008] Yatkin, S., Bayram, A. (2008). Chemosphere 71, 685-696.
- [Záray, 2019] Záray Gy., Mihucz V., G. Az elemanalitika korszerű módszerei. Akadémiai Kiadó. 2019.
- [Zhang, 2018] Zhang, Y. et al (2018). The Cryosphere, 12, 413–431.
- [Zhang, 2011] Zhang, Q. et al. (2011). Anal. Bioanal. Chem. 401 (10), 3045–3067.
- [4/2011. (I. 14.) VM rendelet] 4/2011 (I.14.) VM rendelete a levegőterheltségi szint határértékeiről és a helyhez kötött légszennyező pontforrások kibocsátási határértékeiről, 2011. Magyar Közlöny 4, 487-533.
- [306/2010. (XII. 23.) Kormányrendelet] Kormányrendelet a levegő védelméről. 2010. Magyar Közlöny 197.

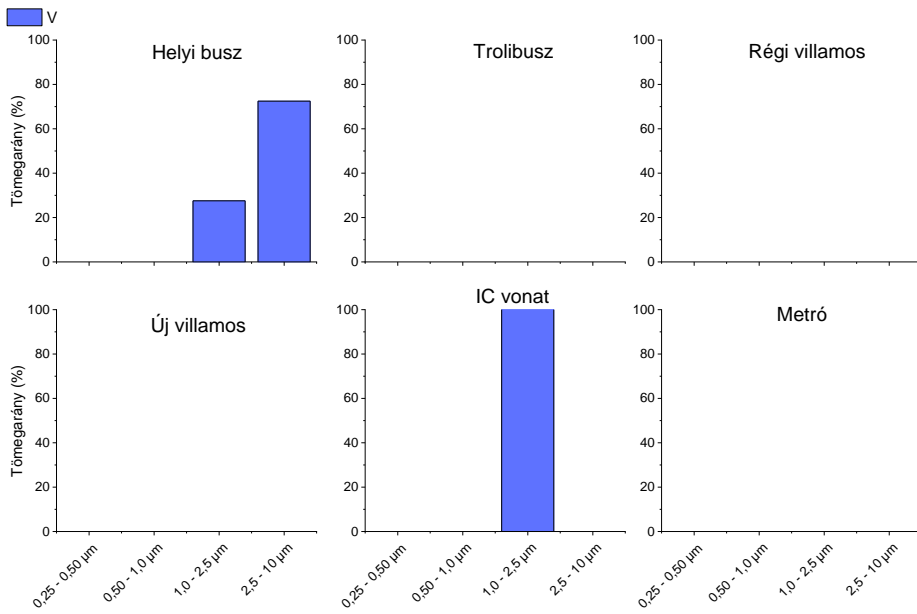
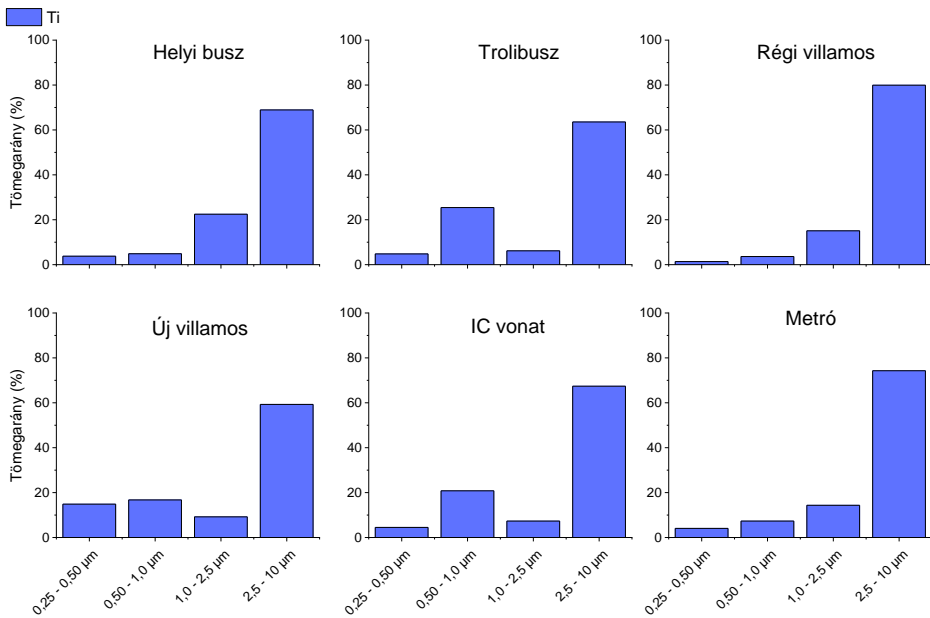
Függelék

1. függelék. Méreteloszlás az egyes elemek esetében különböző tömegközlekedési eszközökön 2014-ben.

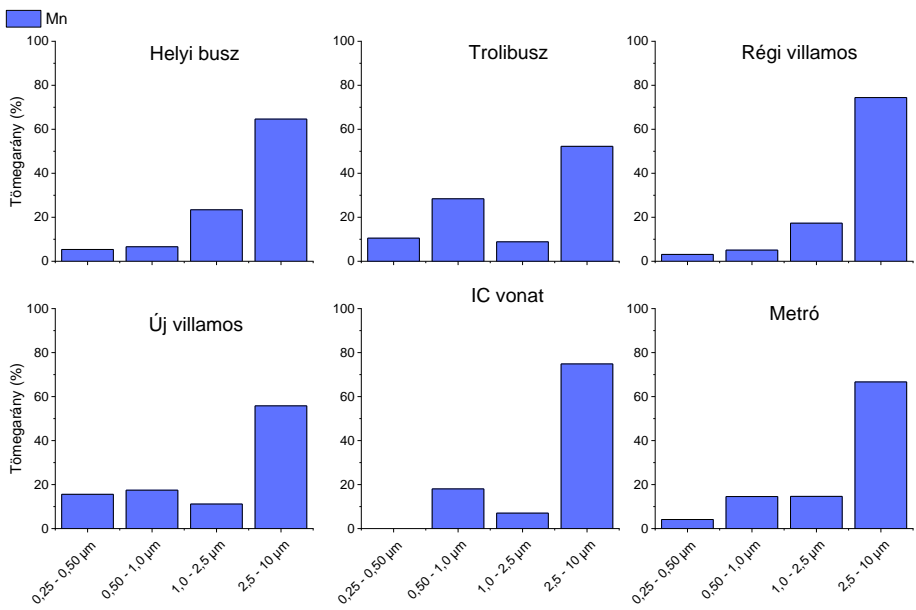
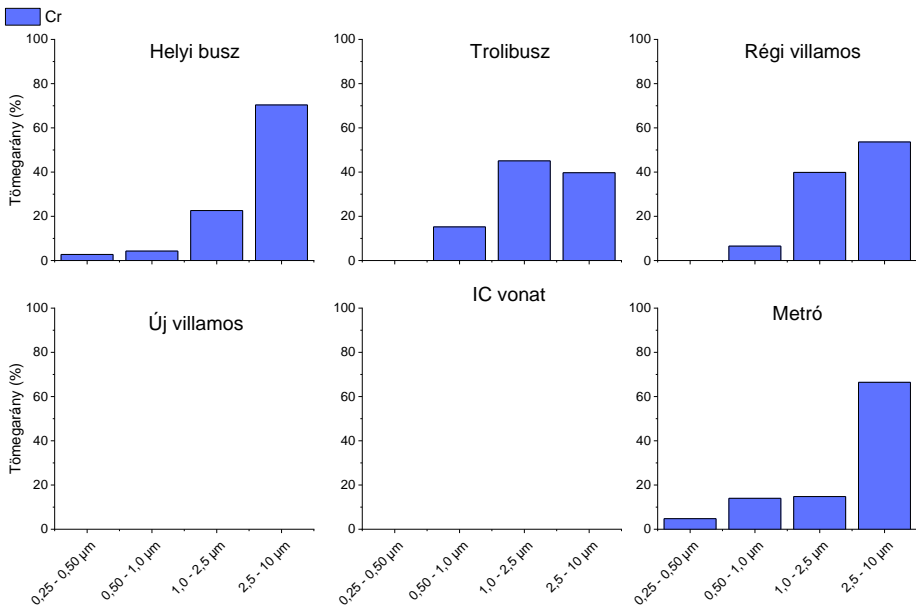


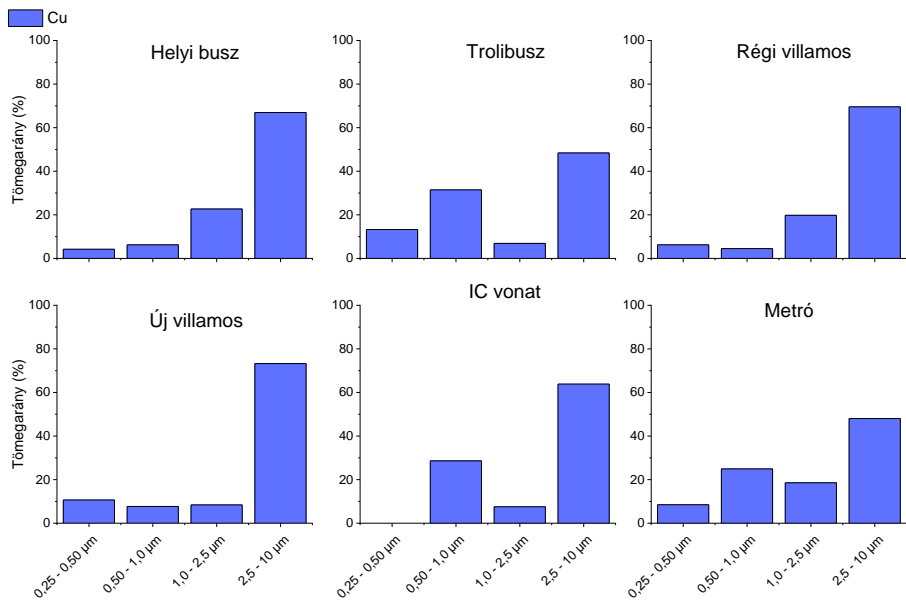
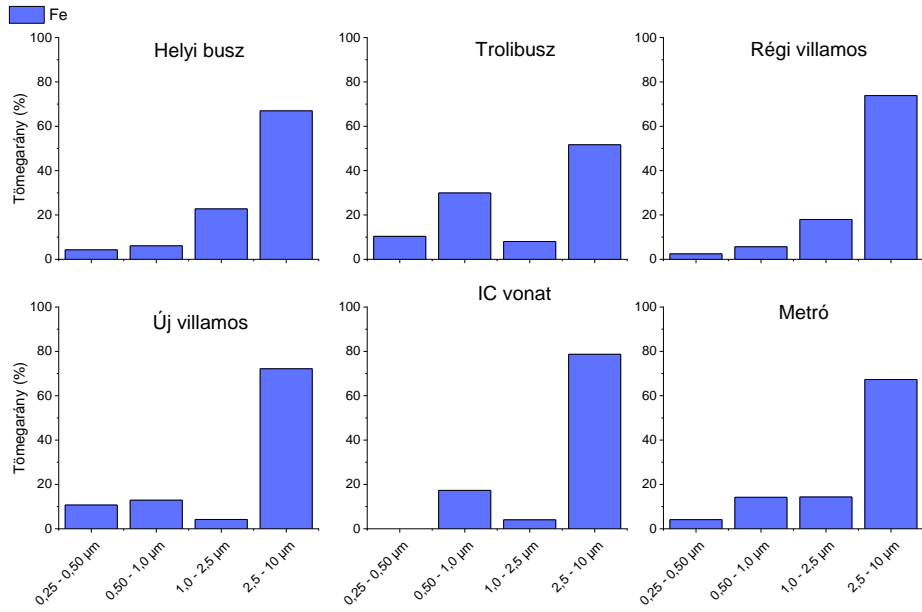


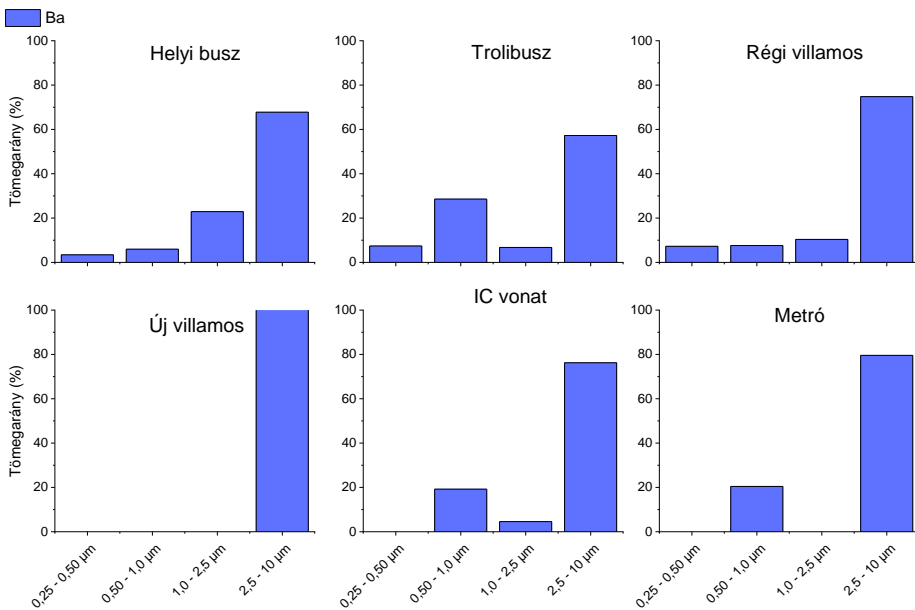
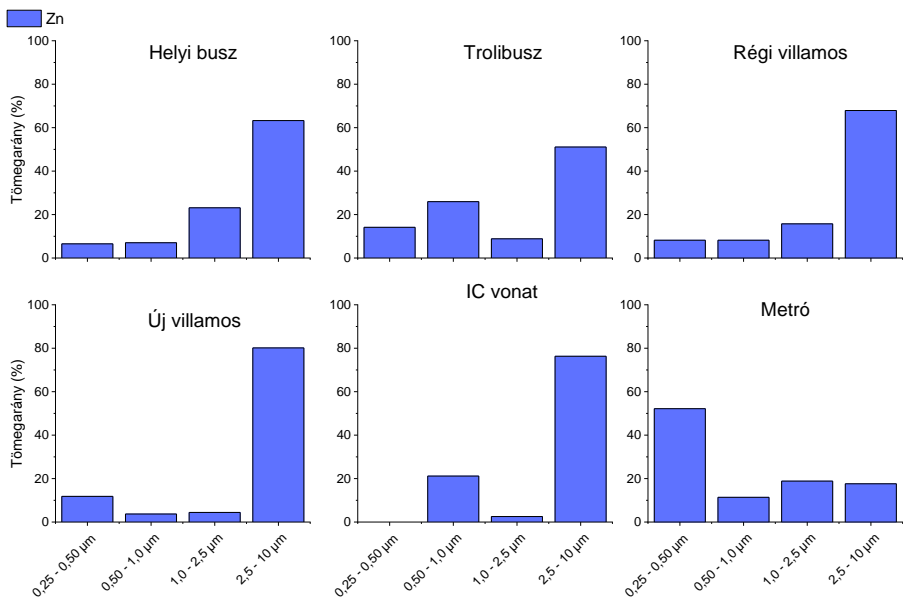
Függelék

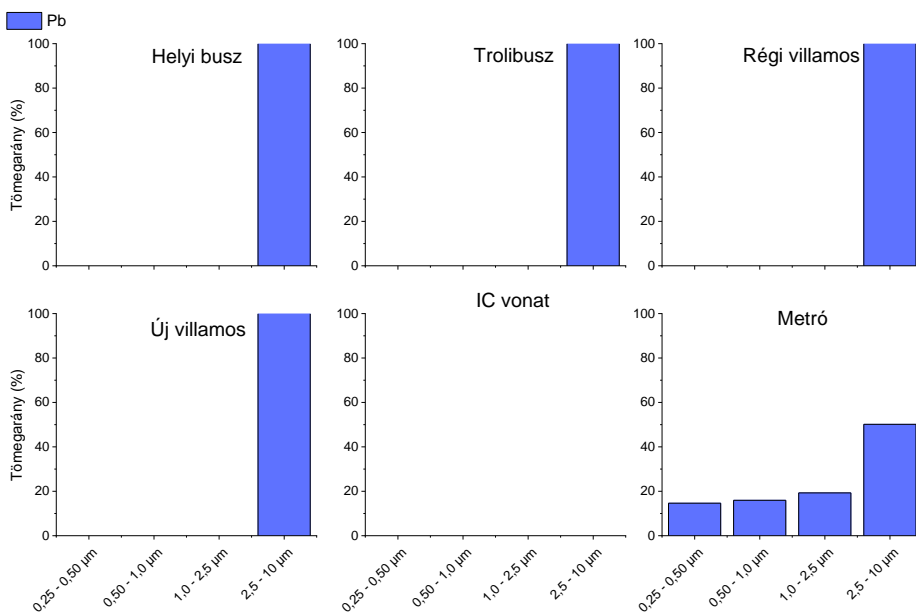


Függelék



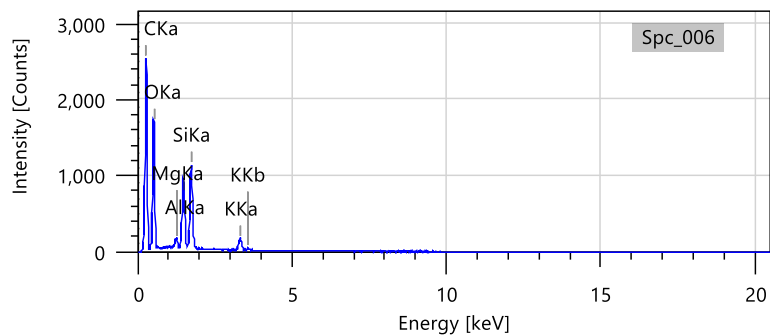




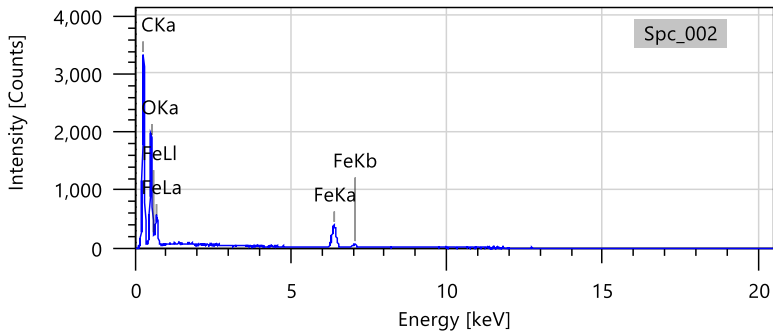


2. függelék. A pásztázó elektronmikroszkóppal vizsgált aeroszol-részecskékhez tartozó spektrumok az Intenzitás (Intensity) és az energia (Energy) függvényében.

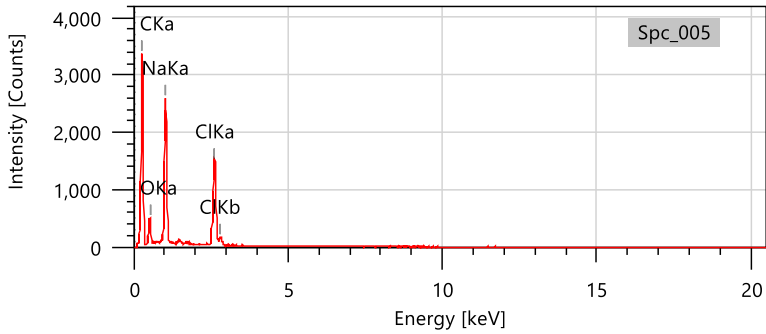
Szabálytalan alakú Al, Si, Mg, K tartalmú részecske:



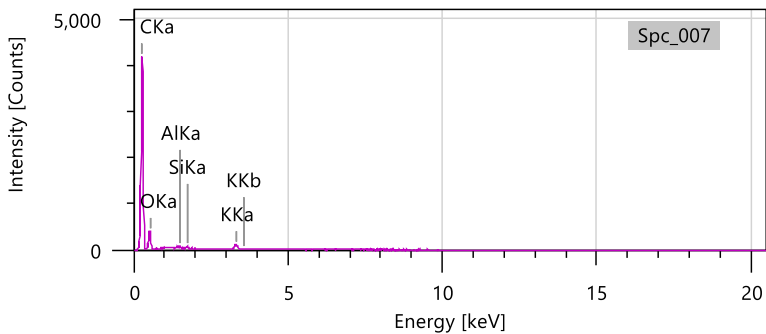
Fe tartalmú szálas-rostos részecske:



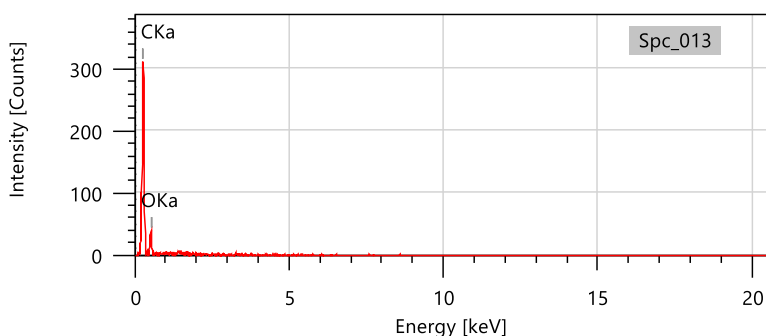
Kocka alakú Na és Cl tartalmú részecske:



Al, Si, K tartalmú részecske:



C és O tartalmú szűlt részecske:



3. függelék. Pécsen és Nyíregyházán kapott tömeg- és elemkoncentrációk (ng/m^3) átlaga, mediánja, szórása, minimum és maximum értékei, valamint néhány komponens hozzájárulása a tömeghez (%) a durva frakcióban a fűtési szezonban.

	Pécs					Nyíregyháza				
	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max
Fűtési szezon										
PM _{durva}	6515	4710	4825	1980	22445	11220	7120	11810	2190	51080
Al	30	9.3	50	2.0	225	475	475	285	2.0	1110
Si	375	265	395	30	1830	675	420	645	105	2455
P	1.0	0.8	0.5	0.8	3.1	3.3	1.6	3.5	0.8	15
S	115	105	75	25	300	160	110	135	10	475
Cl	65	40	110	8.2	560	200	25	555	0.8	2630
K	90	65	90	20	445	130	85	130	9.3	450
Ca	545	390	600	45	2780	385	220	455	20	1853
Ti	15	7.7	15	1.7	80	20	15	20	1.6	85
V	0.4	0.4	0.1	0.3	0.9	0.7	0.4	0.9	0.4	4.3
Cr	1.4	0.8	1.5	0.4	6.5	2.6	1.7	1.7	0.6	7.6
Mn	3.4	2.5	3.5	0.4	15	6.2	4.9	5.4	0.3	20
Fe	185	140	185	25	890	395	285	425	25	1785
Co	1.6	0.9	1.1	0.8	5.0	0.9	0.9	0.0	0.9	0.9
Ni	1.3	1.0	1.2	0.4	5.1	1.0	0.4	0.9	0.4	4.0
Cu	1.9	1.5	1.4	0.4	7.5	5.1	4.8	4.5	0.6	20
Zn	3.9	3.3	2.8	0.4	15	7.4	6.3	7.3	0.5	30
Br	0.6	0.5	0.4	0.5	1.8	0.9	0.5	1.0	0.5	4.0
Sr	3.7	2.5	3.5	1.0	15	4.2	2.0	4.8	1.0	20
Ba	4.1	2.9	3.3	1.0	15	10	6.2	15	1.0	55
Pb	1.6	0.8	1.5	0.8	5.8	2.6	0.8	3.6	0.8	10
Ásványi										
por	1920	1220	2060	175	9645	3490	2960	2735	850	11465
SO ₄ ²⁻	345	315	230	70	900	480	330	400	30	1425
Komponensek hozzájárulása a PM-hez (%)										
Ásványi										
por	25.2	24.9	7.8	8.9	43.0	42.4	37.3	31.3	2.8	162.1
SO ₄ ²⁻	7.3	5.6	6.2	1.5	27.1	5.8	4.5	5.1	0.7	20.4

4. függelék. Pécsen és Nyíregyházán kapott tömeg- és elemkoncentrációk (ng/m^3) átlaga, mediánja, szórása, minimum és maximum értékei, valamint néhány komponens hozzájárulása a tömeghez (%) a finom frakcióban a fűtési szezonban.

	Pécs					Nyíregyháza					
	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	
Fűtési szezon	PM _{2,5}	6760	6325	3095	1060	12155	16430	13545	11945	2060	54845
	Al	45	40	25	2.0	120	410	500	260	15	815
	Si	85	45	110	6.5	470	195	135	200	15	855
	P	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL
	S	410	385	260	30	930	780	725	555	8.5	1895
	Cl	6.0	3.2	9.0	0.7	40	20	8.6	25	0.7	75
	K	125	110	75	9.2	260	410	275	395	1.1	1685
	Ca	100	55	125	6.7	505	110	45	175	1.4	640
	Ti	3.5	2.1	4.5	0.5	20	6.9	4.5	8.5	0.4	35
	V	0.4	0.3	0.2	0.0	1.2	0.3	0.3	0.0	0.3	0.3
	Cr	0.3	0.3	0.2	0.3	1.0	1.6	0.8	1.9	0.3	6.8
	Mn	1.8	1.6	1.0	0.7	5.0	2.9	2.5	2.0	0.4	7.4
	Fe	50	30	55	6.5	240	150	120	150	0.5	595
	Co	0.8	0.7	0.4	0.5	1.9	1.1	0.7	1.0	0.7	4.6
	Ni	0.4	0.3	0.2	0.2	0.9	0.5	0.3	0.5	0.3	1.9
	Cu	0.9	0.9	0.4	0.4	2.1	3.0	1.8	3.2	0.4	10
	Zn	7.1	7.4	3.6	0.6	15	20	15	15	0.3	65
	Br	0.9	0.8	0.5	0.6	2.5	2.4	2.0	1.9	0.6	6.7
	Sr	1.5	1.0	1.0	1.0	5.0	1.8	1.0	2.3	1.0	10
	Ba	1.6	0.8	1.7	0.8	7.8	4.1	3.0	4.2	0.8	15
	Pb	3.0	3.0	1.6	0.9	6.9	6.8	2.5	8.0	0.9	30
	Ásványi										
	por	470	275	520	90	2330	1575	1490	940	115	3785
	SO ₄ ²⁻	1180	1140	805	90	2795	2335	2180	1670	25	5685
	BC	740	735	350	15	1275	2505	1745	2215	25	9315
	Komponensek hozzájárulása a PM-hez (%)										
	Ásványi										
	por	8.1	5.3	6.3	1.4	21.6	10.9	8.6	5.7	5.0	26.8
	SO ₄ ²⁻	17.4	17.7	7.1	6.0	32.5	14.2	13.9	10.1	1.2	46.7
	BC	10.8	11.0	4.0	1.1	18.2	12.7	14.8	6.0	1.0	20.8

Függelék

5. függelék. Pécsen és Nyíregyházán kapott tömeg- és elemkoncentrációk (ng/m^3) átlaga, mediánja, szórása, minimum és maximum értékei, valamint néhány komponens hozzájárulása a tömeghez (%) a durva frakcióban a nem fűtési szezonban.

	Pécs					Nyíregyháza					
	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	
Nem fűtési szezon	PM _{durva}	8590	8145	4040	1425	19025	4055	3700	1440	1730	6770
	Al	45	40	30	2.0	115	120	15	195	2.0	565
	Si	370	360	225	50	975	165	115	120	35	505
	P	7.3	7.1	2.5	3.3	10	2.8	2.9	2.0	0.8	8.9
	S	65	65	25	25	125	45	40	20	6.5	110
	Cl	190	165	55	25	510	15	3.0	15	0.8	55
	K	110	105	265	20	275	40	30	25	10	80
	Ca	460	415	8.8	105	1325	85	60	50	20	180
	Ti	15	15	0.2	1.9	40	6.0	4.3	3.8	2.0	15
	V	0.4	0.4	0.8	0.4	1.8	0.5	0.4	0.2	0.4	1.1
	Cr	1.5	1.4	2.3	0.4	3.4	1.6	1.3	1.0	0.5	4.9
	Mn	3.9	3.8	105	0.5	10	1.6	1.2	1.3	0.3	4.3
	Fe	185	185	0.7	35	480	95	70	60	10	235
	Co	1.7	1.7	0.3	0.8	3.3	1.0	0.9	0.3	0.9	2.2
	Ni	0.6	0.4	1.4	0.3	1.5	0.7	0.4	0.5	0.4	2.4
	Cu	1.5	1.1	1.3	0.3	7.4	1.3	1.2	0.9	0.4	4.6
	Zn	3.0	2.9	0.3	0.9	6.2	1.4	1.4	0.9	0.1	4.0
	Br	0.6	0.5	2.1	0.5	1.6	0.5	0.5	0.0	0.5	0.5
	Sr	4.3	4.3	2.8	1.0	8.7	1.5	1.0	1.2	1.0	6.1
	Ba	4.9	4.5	1.8	1.0	10	2.3	1.0	1.7	1.0	6.7
Pb	2.9	2.7	1.8	0.8	7.8	1.1	0.8	0.6	0.8	3.1	
Ásványi por	1810	1700	1030	315	4130	840	730	645	145	2705	
SO ₄ ²⁻	200	190	80	75	370	140	125	65	20	325	
Komponensek hozzájárulása a PM-hez (%)											
Ásványi por	27.9	21.0	45.5	1.9	281.4	19.8	15.1	12.2	7.7	49.5	
SO ₄ ²⁻	3.1	2.3	3.1	0.7	19.1	3.5	3.2	1.5	0.5	8.2	

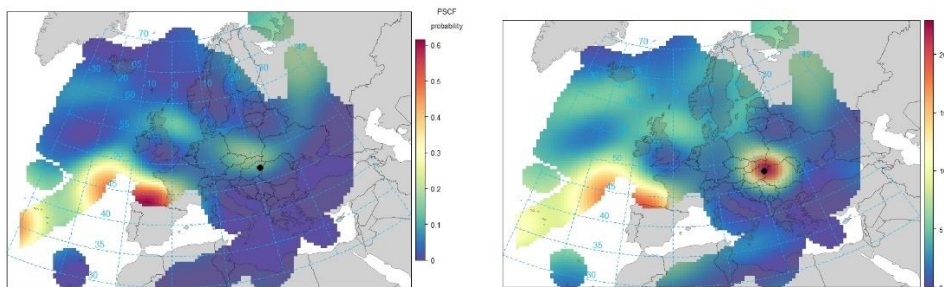
Függelék

6. függelék. Pécsen és Nyíregyházán kapott tömeg- és elemkoncentrációk (ng/m³) átlaga, mediánja, szórása, minimum és maximum értékei, valamint néhány komponens hozzájárulása a tömeghez (%) a finom frakcióban a nem fűtési szezonban.

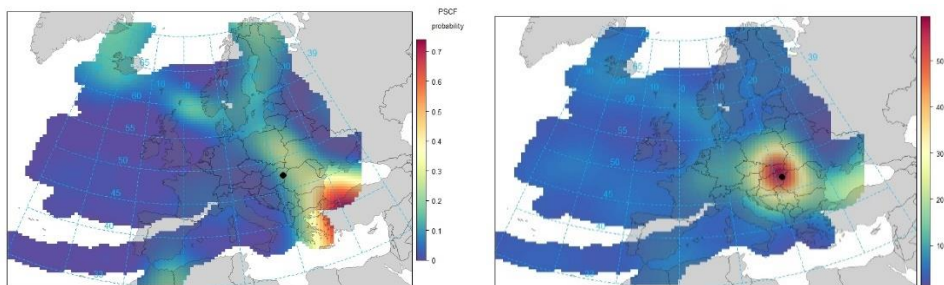
	Pécs					Nyíregyháza					
	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	Átlag	Medián	Szórás	Min	Max	
Nem fűtési szezon	PM _{2,5}	7065	6335	4205	1395	23260	8505	8700	3175	2195	14150
	Al	4.2	2.0	7.1	2.0	35	130	15	215	2.0	545
	Si	110	90	89	3.3	360	120	105	100	7.2	480
	P	<DL	<DL	<DL	<DL	<DL					
	S	460	405	265	75	1035	550	545	300	20	1335
	Cl	2.4	0.7	40	0.7	15	5.0	1.9	6.4	0.7	25
	K	65	60	90	5.2	175	80	65	55	1.1	240
	Ca	120	110	4.2	6.5	355	50	45	35	1.4	170
	Ti	5.4	4.4	0.2	0.4	20	4.5	3.8	4.2	0.4	20
	V	0.4	0.3	0.6	0.3	1.3	0.6	0.5	0.3	0.3	1.5
	Cr	1.0	1.0	1.7	0.3	2.2	0.8	0.4	0.7	0.3	2.7
	Mn	1.8	1.3	55	0.3	7.6	1.6	1.5	1.0	0.4	3.7
	Fe	80	65	0.4	5.9	225	95	90	60	0.5	250
	Co	0.9	0.7	0.6	0.5	2.2	0.7	0.7	0.2	0.7	1.6
	Ni	0.4	0.3	0.5	0.3	3.1	0.4	0.3	0.3	0.3	1.4
	Cu	1.0	0.9	2.6	0.3	2.4	2.1	2.1	1.0	0.4	4.0
	Zn	4.4	4.0	0.3	0.9	10	6.6	6.6	3.8	0.3	15
	Br	0.8	0.6	1.1	0.6	1.4	0.7	0.6	0.4	0.6	2.0
	Sr	2.0	1.7	1.5	0.9	4.7	1.6	1.0	1.2	1.0	6.1
	Ba	2.5	2.2	1.4	0.8	7.1	2.6	2.1	2.0	0.8	7.0
Pb	2.0	1.2	1.4	0.9	6.3	5.0	3.8	4.1	0.9	20	
Ásványi											
por	540	450	395	40	1685	720	510	605	25	2000	
SO ₄ ²⁻	1380	1220	790	220	3110	1645	1630	895	60	4000	
BC	380	420	210	25	765	1135	1170	590	25	2340	
Komponensek hozzájárulása a PM-hez (%)											
Ásványi											
por	7.8	6.8	4.3	1.1	17.5	7.8	5.6	5.9	1.0	20.2	
SO ₄ ²⁻	19.4	19.0	6.4	8.6	33.4	17.8	17.5	6.3	2.7	30.9	
BC	7.5	5.5	6.2	0.3	22.9	12.9	13.2	6.0	1.1	24.9	

7. függelék. PSCF (75%-os küszöbérték) és CWT eredmények (1000 m-re vonatkozóan) 2015-ben fűtési és nem fűtési időszakban a durva frakciós CI esetében Debrecenben, Miskolcon, Pécsen és Nyíregyházán.

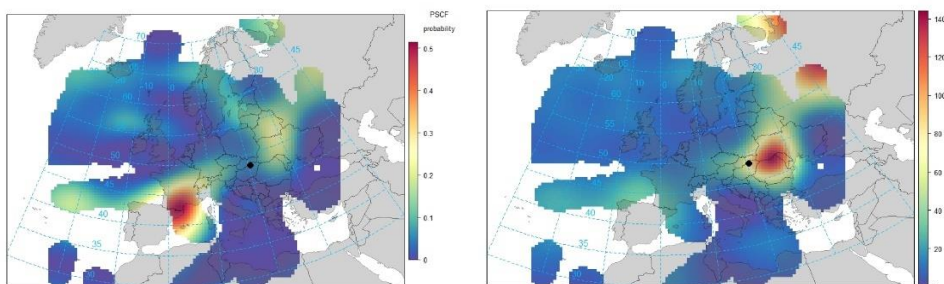
Debrecen – fűtési időszak:



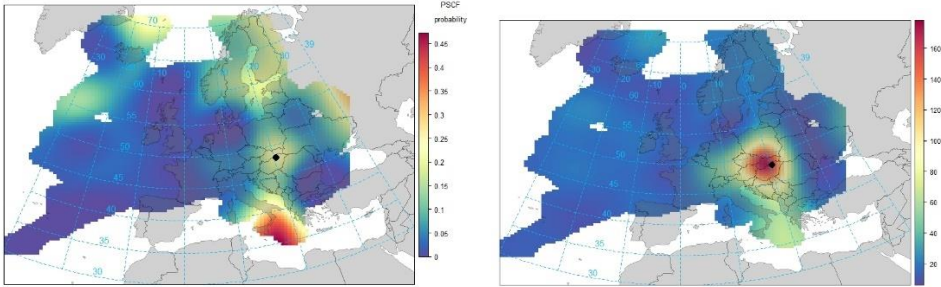
Debrecen – nem fűtési időszak:



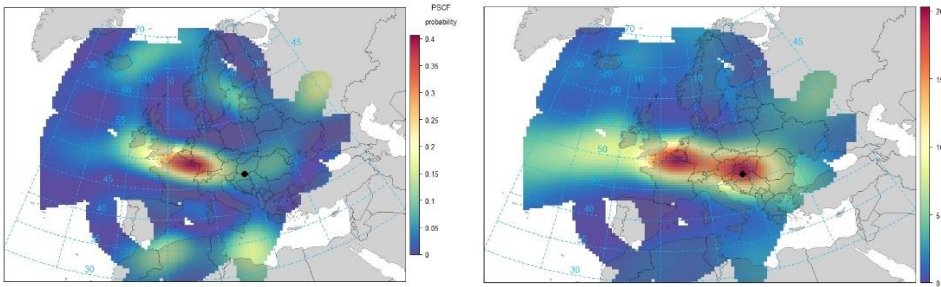
Miskolc – fűtési időszak:



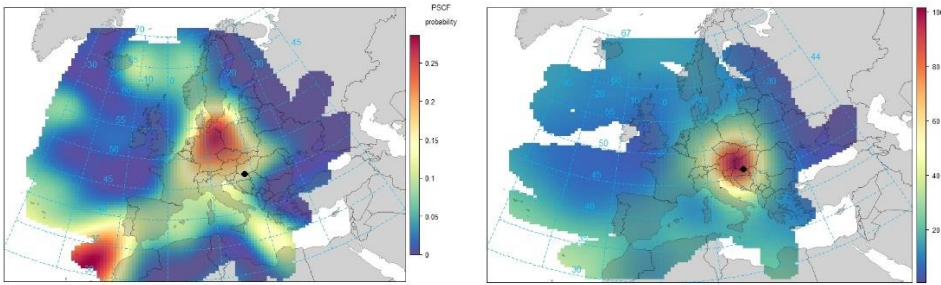
Miskolc – nem fűtési időszak:



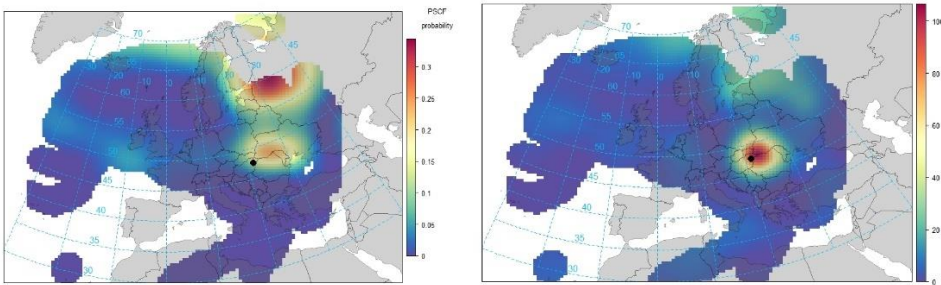
Pécs – fűtési időszak:



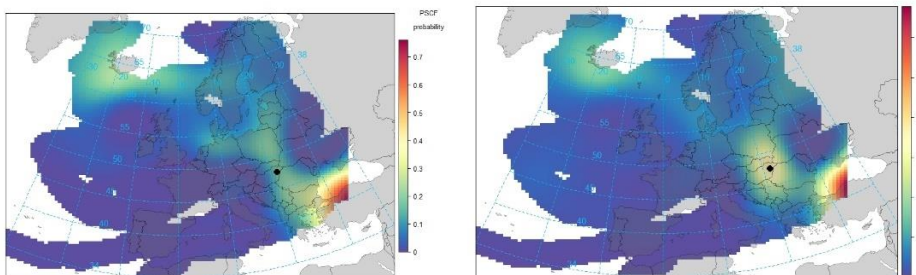
Pécs – nem fűtési időszak:



Nyíregyháza – fűtési időszak:

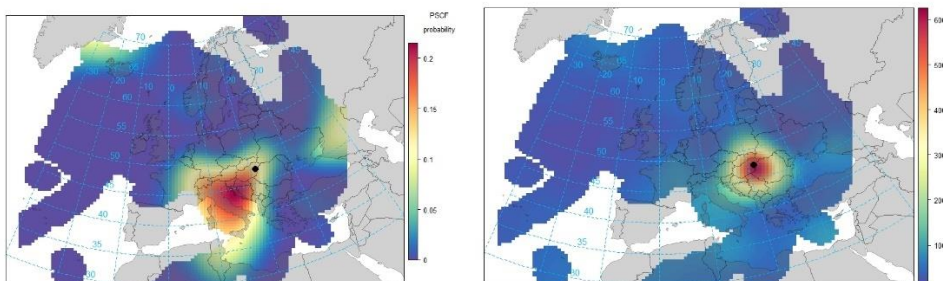


Nyíregyháza – nem fűtési időszak:

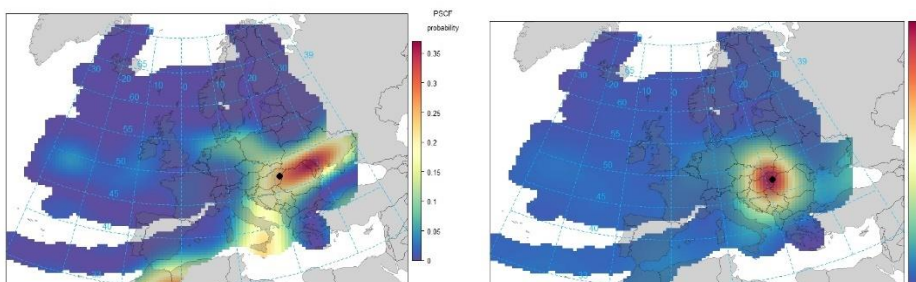


8. függelék. PSCF (75%-os küszöbérték) és CWT eredmények (1000 m-re vonatkozóan) 2015-ben fűtési és nem fűtési időszakban a finom frakciós S esetében Debrecenben, Miskolcon, Pécsen és Nyíregyházán.

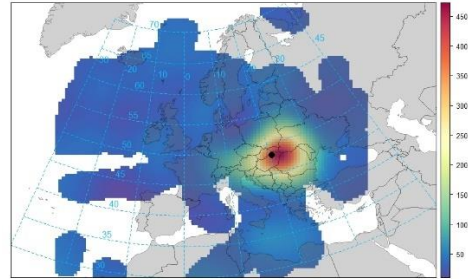
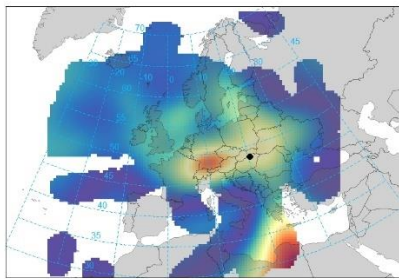
Debrecen – fűtési időszak:



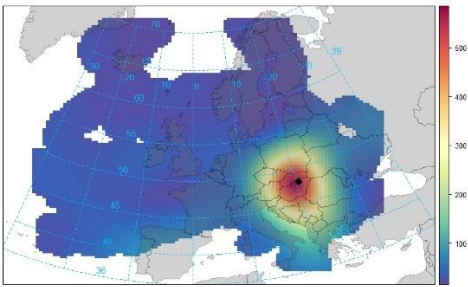
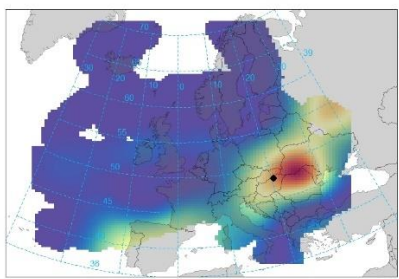
Debrecen – nem fűtési időszak:



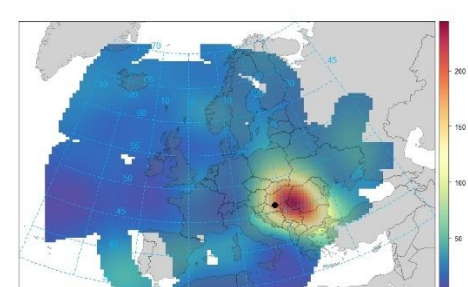
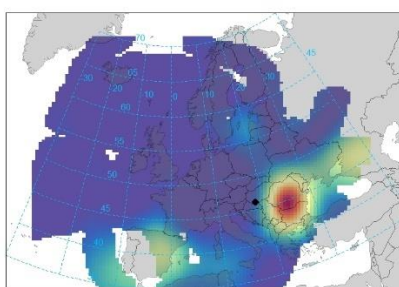
Miskolc – fűtési időszak:



Miskolc – nem fűtési időszak:

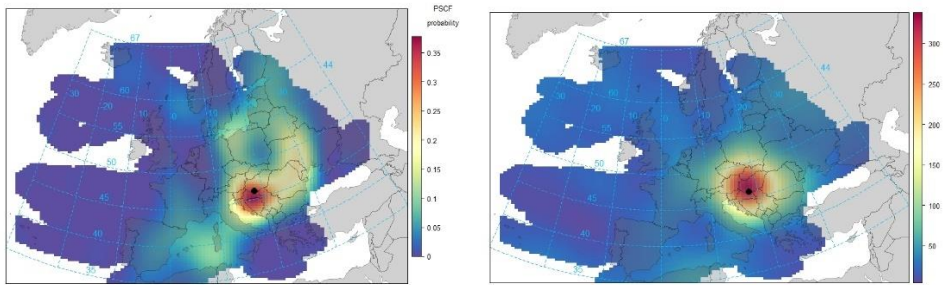


Pécs – fűtési időszak:

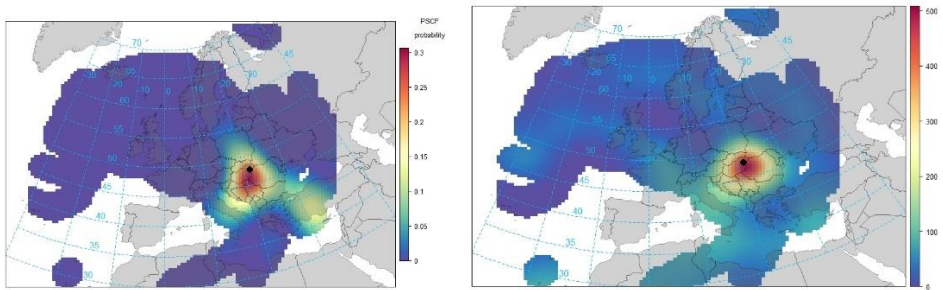


Függelék

Pécs – nem fűtési időszak:



Nyíregyháza – fűtési időszak:



Nyíregyháza – nem fűtési időszak:

