

—— Tudományos Diákköri Dolgozat ——

ILLÉS TAMÁS

A légköri aeroszol higroszkópos tulajdonságai
Budapesten különleges események alkalmával

Témavezetők:

Dr. Salma Imre egyetemi tanár

Vörösmarty Máté PhD hallgató



—— Eötvös Loránd Tudományegyetem ——

—— Természettudományi Kar ——

—— Analitikai Kémiai Tanszék ——

—— Budapest, 2024 ——

Tartalomjegyzék

Rövidítésjegyzék.....	3.
1. Bevezetés és célkitűzések.....	4.
2. Felhőcseppek képződése a légkörben.....	6.
2.1. Felhőkondenzációs magvak.....	7.
2.2. Köhler-elmélet és parametrizációi	10.
3. Módszerek	15.
3.1. Felhőkondenzációs magvak mérése.....	16.
3.2. Az effektív kritikus átmérő	22.
4. Eredmények és megvitatásuk	23.
4.1. Tűzijáték	23.
4.2. Szublokális újrészcseke-képződés és növekedés	28.
4.3. Regionális újrészcseke-képződés és növekedés.....	33.
5. Összefoglalás.....	39.
Irodalomjegyzék	41.

Rövidítésjegyzék

CFC	– Chloro Fluoro Carbon – klórozott fluorozott szénhidrogének
RH	– Relative Humidity – relatív páratartalom
BpART	– Budapest platform for Aerosol Research and Training – Budapesti Aeroszol Kutató és Oktató Platform
CCN	– Cloud Condensation Nuclei – felhőkondenzációs magvak
NPF&G (SL, R)	– New Particle Formation and consecutive Growth events – újrészcseke-képződés és növekedés események (Sublocal – szublokális, Regional – regionális)
SMCA	– Scanning Mobility Cloud Condensation Nuclei Analysis - szkennelő mobilitás felhőkondenzációs mag analízis
CCNc	– Cloud Condensation Nuclei counter – felhőkondenzációs mag-számláló
OPC	– Optical Particle Counter – optikai részecskeszámláló
HEPA	– High-Efficiency Particulate Arrestance – nagy hatékonyságú részecskeszűrő
DMPS	– Differential Mobility Particle Sizer – differenciális mobilitás részecske szeparátor
DMA	– Differential Mobility Analyzer – differenciális mobilitás analízátor
CPC	– Condensation Particle Counter – kondenzációs részecskeszámláló

1. Bevezetés és célkitűzések

Élőhelyünk és környezetünk nagymértékben befolyásolja az egészségi jóllétünket, életszínvonalunkat és általános közérzetünket. A globális népességnövekedéssel és az antropogén tevékenység fokozódásával egyre nagyobb mértékben nő a környezet átalakítása és szennyezettsége. Ezek, és az ehhez hasonló folyamatok hatással lehetnek az éghajlati kényszerre.

A természetes folyamatok is szerepet játszanak a Föld energia-mérlegében, következésképpen éghajlati kényszer mindig is volt; azt nem az ember idézi elő. Az antropogén tevékenységből származó üvegházhatású gázok, aeroszol részecskék és egyéb szennyező anyagok új tényezőket iktatnak be a Föld klímájának alakulásába, vagy a meglévőket módosítják. Az ipar fejlődésével, a modernizációval, a pazarló életmóddal újabb és újabb ilyen tényezők jelennek meg a hétköznapi életben. Gondolhatunk a CO₂, CH₄, és a CFC-k (klórozott-fluorozott szénhidrogének) emelkedő légköri koncentrációjára.

A légköri aeroszol fontos meghatározó tényező lehet az éghajlati kényszer vonatkozásában. Egyrészt bizonyos optikailag aktív komponensei kölcsönhatásba lépnek a napsugárzással, másrészt a részecskék közvetett kapcsolatban vannak a felhőképződéssel. Ez utóbbi általában hűtő hatást fejt ki. A felhőcseppek a légkörben az aeroszol részecskéken keletkeznek kondenzáció útján. Minél több részecske van a levegőben, annál nagyobb a kondenzációs felület. Az így keletkezett felhők fehérebbek, ezért nagyobb mértékben verik vissza a napsugárzást, így hűtik a Földet.

Az éghajlatváltozást érintő ismereteink mind elméleti, mind pedig mérési szempontból hiányosak. Elméleti szempontból a legjelentősebb problémák közé tartozik, hogy légkörünk egy összetett rendszer, benne ciklikusan, dinamikusan változó folyamatokkal. Gyakoriak a perturbációk, melyeknek lehetnek rövid- vagy hosszútávú hatásai. További problémát jelent, hogy éghajlati modelljeink feltevéseket és elhanyagolásokat tartalmaznak, melyek ugyancsak bizonytalanságokat hordoznak.

Mérési hiányosságaink is jelentősek. Az éghajlatváltozás követésére folyamatos mérési módszerekre és technikákra van szükség. A mérések több helyen szakaszosak vagy hiányosak. A regionális mérések esetenként nehezen kivitelezhetők, ráadásul az antropogén tevékenység azt közvetlen befolyásolhatja. További gondot jelentenek a mérőműszerek hibái, így hibákkal terhelt adatok állnak rendelkezésre. A mai műszerek legtöbbször már szabványosítva és hitelesítve vannak, de a készülékek költségesek, kalibrálásuk és validálásuk, illetve standardizálásuk időigényes.

Az Eötvös Loránd Tudományegyetem Kémiai Intézetében működő Budapest Aeroszol Kutató és Oktató (Budapest platform for Aerosol Research and Training, BpART) Laboratóriumban egyedülálló, gyakran összekapcsolt mérőrendszerek üzemelnek az adott területen. Ezek a módszerek többféle légköri mérésre alkalmasak komplex módon. A kutatócsoport sok éves munkájának köszönhetően már rendelkezésre áll a felhőképződés folyamatát és ezen belül a kémia szerepének meghatározását lehetővé tevő mérési rendszer is, egy miniatűr felhőszimulátor. A módszer alkalmas mind a polidiszperz, mind pedig a méretszeparált aeroszol higroszkopicitásának és felhőképző tulajdonságainak feltérképezésére. Ráadásul folyamatos mérést tesz lehetővé, így hosszú idejű tendenciák követésére nyílik lehetőség.

Személyes feladataim közé tartozik a műszer működésének felügyelete és általános karbantartása. Ez alatt értendő a műszer egyes egységeinek rendszeres ellenőrzése és a hibaelhárításban való részvétel. További feladatom a Nafion előszárítójához használt szilikagél légszárító töltetének előre programozott fűtési ciklusokban történő előkészítése és cseréje. Segítek a mérőberendezés egyes részeinek beszerelésében, cseréjében, ezáltal az egyes egységek működését jobban megértem, elméleti hátterét elsajátítom. A mérésről naplót vezetek.

A munkám célja, hogy különleges események felhőképződésre gyakorolt hatását elemezzem. Ezt a felhőszimulátor mérési adataiból készített ábrakon keresztül szöveges formában teszem, tényszerű számadatokkal alátámasztva. Fontos részét képezi munkámnak a légköri aeroszol higroszkópos tulajdonságainak változása, ezen változások magyarázata és mérlegelése.

2. Felhőcseppek képződése a légkörben

Az időjárási jelenségek legnagyobb hányada a troposzférában zajlik. Fontos folyamat a felhőképződés, mely a Föld felszínére hűtő és fűtő hatást is gyakorolhat. Előbbire példa a napsugárzás visszatükrözése, utóbbira pedig a vastag téli felhőzet, mely növeli a légköri viaszugárzást. A felhőképződés egy többszörösen összetett folyamat, mely sok tényezőtől függ. Részt vesznek benne a globális légkörzés és regionális feláramlások, a troposzférában található aeroszol részecskék forrásai és nyelői, a páratartalom, illetve túltelítettség, valamint további fizikai-kémiai jelenségek (Salma és mks., 2012).

A tényezők közül kiemelt jelentőséggel bír a telítési arány, mely definíció szerint a víz aktuális parciális gőznyomásának (e) és az azonos hőmérsékleten vett tiszta víz síkfelület fölötti egyensúlyi gőznyomásának (e_s°) hányadosa ($s = e / e_s^\circ$) (Geresdi, 2004). Értékének százszorosa a relatív páratartalom (Relative Humidity, RH), melynek 100%-os értéke felett irányadó paraméter a túltelítettség (S). A telítési arányból a túltelítettség könnyen számolható:

$$S = (s - 1) \times 100\%, \quad (2.1)$$

ahol S a túltelítettség százalékban, s a vízgőz telítési aránya.

Túltelítettség jellemzően valamilyen lehűlés hatására alakul ki, ilyen lehet a feláramlásos adiabatikus, vagy a sugárzásos diabatikus lehűlések. A feláramlásos lehűlés során az adott relatív páratartalmú légtömeg a magassággal egyre hűlő környezetekben lehül, ekkor a relatív páratartalom megnő. A levegő túltelítetté válik, majd a vízgőz kondenzálódik az aeroszol részecskéken, felhőcseppeket képezve. A sugárzásos lehűlés során a Földfelszín közelében képződnek a cseppek, köd formájában. A túltelítettség tipikus értéke felhőkben kisebb, mint $S = 1\%$, medián értéke $S = 0.1\text{--}0.2\%$ között mozog, míg ködben ez az érték kisebb, mint $S = 0.05\%$ (Pruppacher és Klett, 2000).

A másik kulcsfontosságú tényező a cseppképződésben a felhőkondenzációs magvak (Cloud Condensation Nuclei, CCN) jelenléte (Andreae és Rosenfeld, 2008). Ezek jellemzően 50 – 100 nm feletti vízdíszítő részecskék. Kémiai összetételüket illetően fő komponensei az ammónium-sók (szulfát és nitrát), szerves vegyületek, nagyvárosokban pedig a gépjárműforgalomból származó korom és szerves részecskék is jelentősek. A vízdíszítőség előnyös tulajdonság a felhőkondenzációs magvak felhőképző sajátosságainak vonatkozásában (Seinfeld és Pandis, 2006). A részecskeszám koncentrációra az antropogén tevékenységnek jelentős hatása van. Megnövekedett koncentráció esetén nagyobb kondenzációs felület alakul ki, így a nagyobb összfelületű felhők fehérebbek, és így jobban visszatükrözik a beérkező napsugárzást.

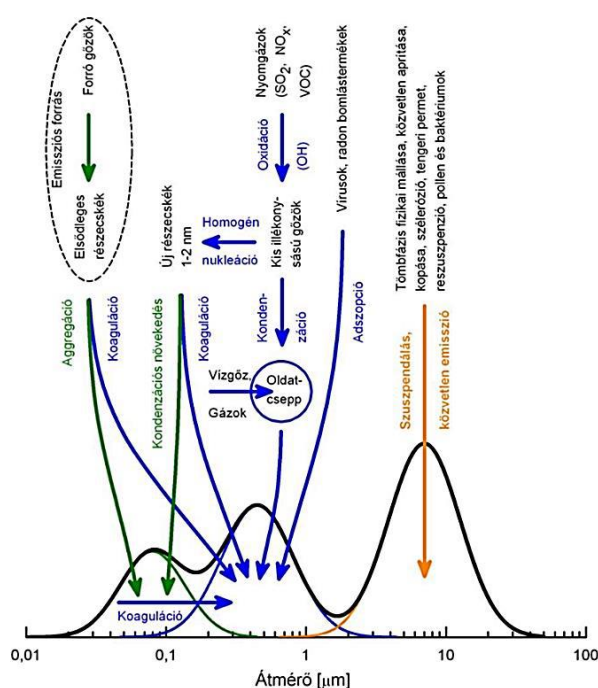
A Föld felszínéről visszavert és a beérkező napsugárzás arányát kifejező mennyiség az albedó. A felhőképződésnek közvetett hűtő hatása van a földfelszínre, ugyanis a felhők a Napból érkező sugárzás 30%-át verik vissza. Mivel a Föld felszíne általánosan 50%-ban felhőkkel borított, ez a hatás jelentős mértékű (Ramanathan és mks., 2001; Geresdi és mks., 2006; Andreae és Rosenfeld, 2008; Rosenfeld és mks., 2008, 2014). Nagy CCN-koncentráció esetén a felhők fehérebbek, így az albedó mértéke nagyobb, ráadásul az élettartamuk hosszabb. Nagyobb mértékben és hosszabb ideig verik vissza a fényt szürkébb társaiknál. Kis koncentrációknál a kondenzációs felület kisebb, így a cseppnövekedés nagyobb mértékű. Amikor a cseppek tömege elegendő lesz ahhoz, hogy a gravitációs vonzás meghaladja a lamináris és turbulens légáramlásokból, valamint légellenállásból származó erőket, a cseppek nedves ülepedéssel távoznak a troposzférából és a felszínre hullanak csapadék formájában. Ilyen módon a felhőkondenzációs magvak közvetlenül hatnak a hidrológiai ciklusra, mely igen fontos a növény- és állatvilág, valamint az emberek számára (Salma és mks., 2012). További hatása van az egyenlőtlen csapadékeloszlásra, mely az éghajlatváltozás egyik legfontosabb megjelenése. Árapályokat és árhullámokat eredményezhet (Kimutai és mks., 2024).

A felhőkondenzációs magvak koncentrációja nagyobb változékonyságot mutató és az urbanizációtól jobban függő mennyiség, mint a relatív páratartalom, így a felhőképződés gyakran CCN-vezérelt folyamat (Salma és mks., 2012, Rosenfeld és mks., 2014). Mindezekre tekintettel szükséges fizikai és kémiai tulajdonságaikat, folyamataikat tanulmányozni.

2.1. A felhőkondenzációs magvak

Elsődleges aeroszol részecskék keletkezhetnek természetes módon vagy antropogén emissziós forrásból. Előbbire jó példa a tengeri permet vagy a felszíni, szilárd anyagok darabolódása, utóbbihoz pedig kapcsolódnak például az ipari és égetési tevékenységből, valamint a nagyvárosok mindennapi ciklusából származó korom részecskék. Azonban nem minden ilyen, vagy hasonló módon keletkezett részecskéből lesz felhőkondenzációs mag. Ahhoz, hogy egy részecske a cseppképzés tulajdonságával rendelkezzen, több feltételnek is teljesülnie kell. Vízgőzkondenzáció koromrészecskéken például csak korlátozott mértékben megy végbe polaritásbeli különbségek miatt. Lehetséges folyamat az oxidáció vagy a szulfát-burok képződése.

Az újrészcseke-képződés és növekedés esemény (New Particle Formation and consecutive Growth events, NPF&G) folyamán másodlagos, általában vízzoldható részecskék jönnek létre légköri nukleációs folyamatok útján (Salma és mks., 2021). Ezek átmérője azonban 1,5–2,0 nm közötti és csak akkor tudnak felhőkondenzációs magként viselkedni, ha méretük elegendően nagyra nő. Ez kondenzációval, vagy kémiai és fizikai „öregedési” folyamattal mehet végbe. Ennek során a részecskék koagulációval az akkumulációs módusba kerülnek. A koaguláció sebessége a koncentrációcsökkenéssel és a méretnövekedéssel lelassul. Ezeket az öregedési folyamatokat szemlélteti az 1. ábra. Ennek során az újonnan keletkezett részecskék a cseppképződés szempontjából kedvezőbb tulajdonságokra tesznek szert (Gilányi és mks., 2000; Pruppacher és Klett, 2000; Kulmala, 2003; Merikanto és mks., 2009).



1. ábra: Az aeroszol részecskék részecskeszám méreteloszlása, forrásai és az egyes módusok közötti átmenetek – a részecskék öregedési folyamatai (Salma, 2012).

Azon aeroszol részecskéket, amelyek adott túltelítettség esetén vizet vesznek fel és ennek következtében cseppekké nőnek, aktiválódott részecskéknek, míg a folyamatot vízgőz aktivációnak (továbbiakban csak aktivációnak vagy aktiválódásnak) nevezzük. Ehhez fontos az úgynevezett kritikus túltelítettség (S_c) elérése, mely egy olyan vízgőz telítettségi érték, melyet meghaladva a csepp már spontán növekedik tovább. Ez egy jól meghatározott érték, mely a kémiai összetételtől, a keveredési aránytól, hőmérséklettől, felületi tulajdonságoktól, valamint elsősorban a részecskeátmérőtől függ. A kritikus túltelítettséghez tartozó átmérőt nevezzük kritikus átmérőnek (d_c). Az aktivációs arány megadja az aktiválódott részecskék számát az összes részecskére nézve, ezt az értéket 100-zal szorozva megkapjuk a százalékos arányt.

$$\alpha = \frac{N_a}{N_{6-1000 \text{ nm}}} \times 100, \quad (2.2)$$

ahol α az aktivációs arány százalékban kifejezve, N_a az aktiválódott részecskék száma, $N_{6-1000 \text{ nm}}$ az összrészecskeszám.

A gőz-fázis és kondenzált-fázis között kialakuló egyensúly tekintetében két fontosabb hatást mindenképpen érdemes kiemelni. Ezek a Kelvin-hatás, mely a görbült kondenzált határfelületeket érinti, valamint a Raoult-hatás, amely az oldatok feletti gőznyomással kapcsolatos.

A Kelvin-hatás megadja az adott görbületi sugárral rendelkező kondenzált fázis feletti és a síkfelület feletti gőznyomások arányát:

$$s = \frac{e_s}{e_s^\circ} = \exp\left(\frac{4 \sigma_w M_w}{R T \rho_w d_{\text{wet}}}\right), \quad (2.3)$$

ahol e_s a görbült határfelületű vízcsepp feletti egyensúlyi gőznyomás, e_s° a végtelen síkfelületű víz feletti egyensúlyi gőznyomás, σ a Laplace-nyomás, M_w a víz moláris tömege, R az egyetemes gázállandó, T az abszolút hőmérséklet, ρ_w a víz sűrűsége adott hőmérsékleten, d_{wet} pedig a csepp átmérője (Rose és mks., 2008).

A kondenzáció növeli részecskeátmérőt és csökkenti a páratartalmat. A kondenzációs növekedés addig tart, amíg az egyébként instabil túltelítettségi viszonyok megszűnnek. A Kelvin-hatás következménye, hogy a kisebb méretű, nagyobb gőznyomású cseppek elpárologhatnak és a nagyobb méretű, alacsonyabb gőznyomású cseppek megnőhetnek.

A Raoult-törvény a nem illékony oldott anyagok oldatainak és a felettük lévő gőzfázis viszonyát leíró összefüggés. Az egyenlet az alábbi alakban írható fel:

$$e_{s,\text{sol}} = x_w \gamma_w e_s^\circ = a_w e_s^\circ \quad (2.4)$$

ahol $e_{s,\text{sol}}$ a víz oldat feletti egyensúlyi gőznyomása, x_w a víz mólaránya az oldatban γ_w a víz abszolút aktivitási tényezője, a_w pedig a víz relatív aktivitása. Kondenzálódó vízgőz hatására a víz mólaránya növekszik az oldatban, így egyensúlyi gőznyomásának is növekednie kellene. Azonban ez egy ellentmondás, hiszen kondenzációval a páratartalomnak csökkennie kell. Ezért a Raoult-hatás vonatkozásában a kondenzációs növekedés nem spontán folyamat, a Kelvin-hatással ellentétes hatást fejt ki.

A légkörben található aeroszol részecskék sokszor szabálytalan alakúak, mely következtében a részecskeátmérőt nem lehet értelmezni. A probléma azonban kiküszöbölhető, ha a részecskékhez úgynevezett ekvivalens átmérőket rendelünk. Az ekvivalens átmérő egy olyan gömb alakú részecske átmérője, melynek valamilyen fizikai paramétere vagy tulajdonsága megegyezik a vizsgált, szabálytalan alakú részecskéjével (Salma és mks., 2012). A térfogatekvivalens átmérőt a gömb térfogatának matematikai képletéből kifejezve kapjuk:

$$d_{\text{ekv}} = \sqrt[3]{\frac{6 V_p}{\pi}}, \quad (2.5)$$

ahol d_{ekv} az ekvivalens átmérő meghatározott viszonyok között, V_p az adott részecskék térfogata.

2.2. A Köhler-elmélet és parametrizációi

A Köhler-elmélet leírja a felhőkondenzációs magvak viselkedését fizikai-kémiai paramétereik alapján (Seinfeld és Pandis, 2006). Ilyen paraméterek például az oldott anyag tömege, a molekulatömeg, a sűrűség és az aktivációs arány.

A 2.3 sz. és 2.4 sz. egyenletek összevonásával megkapjuk a felhőkondenzációs magvakon kialakuló oldatcsepp egyensúlyi átmérőjét, ha feltételezzük, hogy az ideálisan híg oldat feletti egyensúlyi gőznyomás megegyezik a tiszta vízával. Ez a Köhler-egyenlet:

$$s = a_w \exp\left(\frac{4 \sigma_{\text{sol}} M_w}{R T p_w d_{\text{wet}}}\right), \quad (2.6)$$

A víz aktivitásának definíciója:

$$a_w = \frac{n_w}{n_w + i n_s}, \quad (2.7)$$

ahol n_w és n_s rendre a víz és az oldott szilárd anyag anyagmennyiségei, i a van't Hoff tényező. A vízaktivitás kifejezhető továbbá a víz, valamint a feloldott anyag tömegeivel és molekulatömegeivel:

$$\frac{1}{a_w} = 1 + \frac{i M_w m_s}{M_s m_w}, \quad (2.8)$$

ahol M_w és m_w , M_s és m_s rendre a víz és az oldott szilárd anyag moláristömegei és tömegei. A Köhler-elmélet ilyen formában már tartalmazza az egymással ellentétes Kelvin- és Raoult-hatásokat a relatív páratartalom skálájának teljes tartományán. A probléma azonban az, hogy a víz aktivitása nagyon nehezen mérhető, ráadásul függ az oldott anyagok kémiai minőségétől, pH-értékétől és ionerősségétől. Vannak olyan esetek, amikor ez egyáltalán nem lehetséges. Ráadásul az i valós környezetben a részecskék tömegének több, mint felét adó szerves vegyületeknél és sóknál gyakorlatilag meghatározhatatlan.

Az ellentmondás feloldására a vízakaktivitást próbálták különböző fizikokémiai mennyiségekkel (például ozmózisnyomással) kifejezni. Igazi áttörést a higroszkopicitási paraméter (κ érték) bevezetése jelentett, melyet Kreidenweis és munkatársa intuitív módon, megalapozott sejtés útján posztulált a következő formában (Petters és Kreidenweis, 2007):

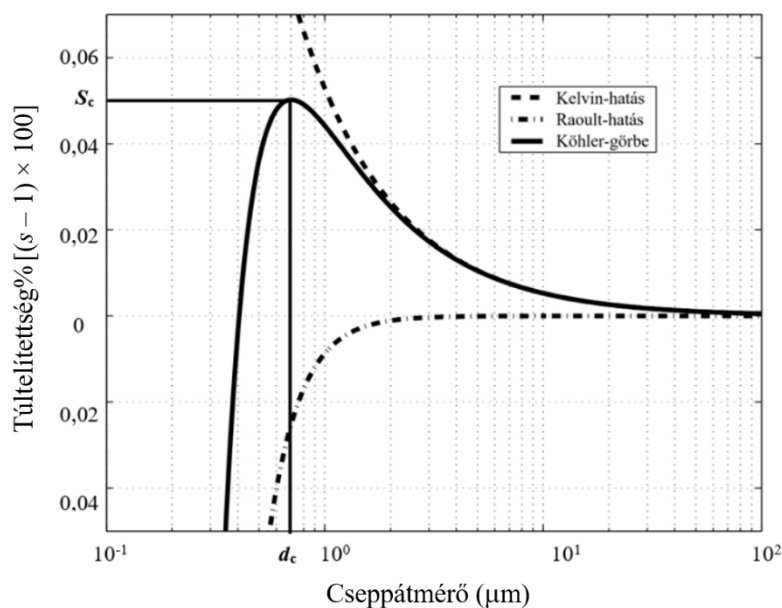
$$\frac{1}{a_w} = 1 + \kappa \frac{V_s}{V_w}, \quad (2.9)$$

ahol V_s a szilárd részecske térfogata, V_w a víz térfogata, κ pedig a higroszkopicitási paraméter. Ez a kémiai összetétel vízakaktivásra kifejtett összesített hatását fejezi ki. A κ érték tehát a felhőkondenzációs magvak kémiai összetételét kifejező, dimenzió nélküli mennyiség. Értéke 0 és 1 között változhat. Nulla, ha a részecske hidrofób, de nedvesíthető, valamint a vízoldhatóság növekedésével egyhez tart. Segítségével a légköri aeroszol felhőképző tulajdonsága, a kémia összesített hatása egyszerűen, számszerűsítve fejezhető ki.

A parametrizációt a 2.6 sz. egyenletbe írva és a kapott összefüggést az 1. sz. függelék alapján kifejtve, majd a 2.5 sz. egyenlet segítségével térfogat ekvivalens átmérővel kifejezve kapjuk az egyparaméteres Köhler-egyenletet (Petters és Kreidenweis, 2007):

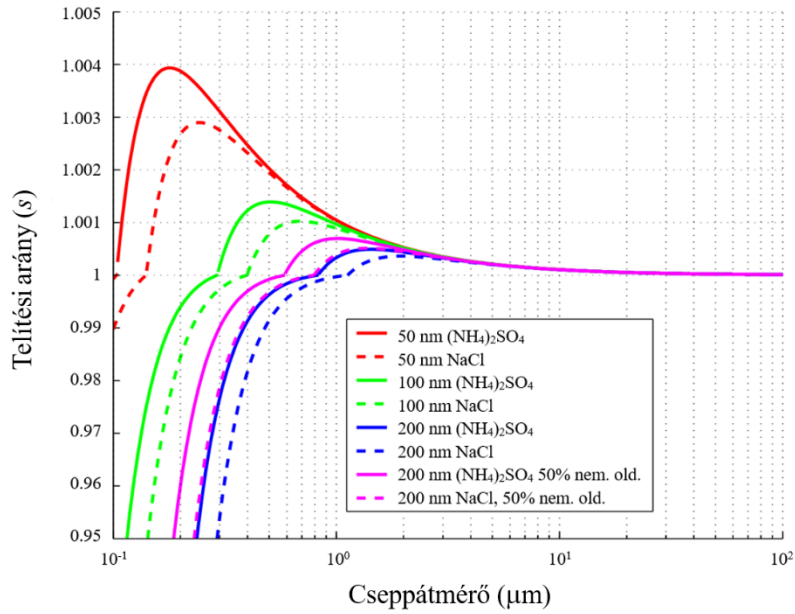
$$s(d_{wet}) = \frac{d_{wet}^3 - d_s^3}{d_{wet}^3 - d_s^3(1-\kappa)} \exp\left(\frac{4 \sigma_{sol} M_w}{R T \rho_w d_{wet}}\right), \quad (2.10)$$

ahol d_{wet} a cseppátmérő, d_s a száraz átmérő. A 2.10 sz. egyenlethez tartozó görbét a 2. ábra reprezentálja. Eleinte a Raoult-hatás dominál, mely gátolja a cseppnövekedést. Amikor a Raoult- és Kelvin-hatások kiegyenlítik egymást, a csepp a kritikus túltelítettségi maximumban (S_c) eléri kritikus átmérőjét (d_c). Ezután a csepp már spontán növekedik az energiaminimumra való törekvés és az instabilitást okozó túltelítettségi viszonyok miatt. Ekkor a meghatározó tényezők a diffúziós kinetika, valamint a vízgőz mennyisége (Roberts és Nenes, 2010).



2. ábra: Az egyensúlyi cseppátmérő és a vízgőz tútelítettség kapcsolata (McFiggans és mks, 2006). Szaggatott, valamint pont-szaggatott vonalakkal rendre a Kelvin- illetve Raoult-hatásokat jelölik, melyek összege adja a vastag vonallal jelzett Köhler-görbét.

Az aktiválódó részecskék azonban különböző száraz átmérőkkel rendelkeznek, mely felveti az aktivációs arány kérdését adott telítettségi viszonyok mellett. A 3. ábrán látható, hogy az adott tútelítettségi értéknek megfelelő kritikus tútelítettséggel (S_c) rendelkező csepptől nagyobb részecskék mind aktiválódnak kisebb S_c értékük miatt. Tehát a telítési viszonyok alsó átmérő-határt szabnak a cseppképződésben. Több helyen törés figyelhető meg a görbéken $s = 1$ értéknél. Ez a Raoult-hatás $RH=100\%$ alatti tartományban lévő dominanciáját jelzi. Utolsó két esetben (magenta szín) a részecskék tömeg szerint 50 – 50% nem oldható anyagot tartalmaznak. Ez esetben a kondenzáció gátoltabb, mint az azonos sugarú tiszta komponensek esetén, így magasabb S_c értéket és kisebb kritikus átmérőt kapunk.



3. ábra: Különböző száraz átmérővel rendelkező $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ és NaCl részecskék Köhler-görbéi (McFiggans és mkts., 2006).

Mivel a légköri aeroszol rendszerek sokszor külső keverékek (eltérő kémiai összetételű részecskék keveréke), valamint a kémiai összetétel változhat a részecskeátmérővel, az aktiválódott részecskék hányada is változhat. Ezen okból kifolyólag meghatározásra került az úgynevezett effektív kritikus száraz részecskeátmérő ($d_{c,\text{eff}}$), mely azt a száraz átmérőt adja meg, melynél a száraz részecskék 50%-a aktiválódik adott túltelítettségén (Rose és mkts., 2008, 2010; Salma és mkts., 2021).

A $d_{c,\text{eff}}$ meghatározása a CCN részecskeszám és a részecskeszám méreteloszlás ismeretében egyszerűen lehetséges a 2.11 sz. egyenlet szerint (Sihto és mkts., 2011; Kerminen és mkts., 2012; Schmale és mkts., 2018). A meghatározás elve, hogy elsőként a legnagyobb átmérővel rendelkező részecskék aktiválódnak, majd fokozatosan az egyre kisebbek.

$$N_{\text{CCN},S} = \sum_{i=d_{c,\text{eff}}}^{d_{\text{max}}} N_i, \quad (2.11)$$

ahol d_{max} egy részecske-méretszeparátor által mért legnagyobb átmérőcsatorna, $N_{\text{CCN},S}$ az adott túltelítettségén vett felhőkondenzációs magok részecskeszáma, N_i az i -edik csatornán mért részecskeszám (amiket egy párhuzamosan működtetett, független méretszeparációs készülékből kapunk). Adott túltelítettségén az $N_{\text{CCN},S}$ és az egyes mérési csatornában az N_i mérhetőek, míg d_{max} adott (Salma és mkts., 2021). A summázást addig folytatjuk a legnagyobb átmérőtől a kisebb átmérők felé, ameddig a méretcsatornában lévő koncentrációk összege megegyezik a felhőkondenzációs magvak (vagyis az aktiválódott cseppek) összkoncentrációjával. Egy másik módszer a méretszeparált CCN aktivációs profil meghatározása, melyet a 3.2 fejezetben tárgyalok.

A d_s átmérőt $d_{c,eff}$ meghatározásával közelítjük. Mivel a kezdetben oldódó nagymennyiségű só elhanyagolható mértékben befolyásolja a határfelületi feszültséget, ha azt feltételezzük, hogy felületaktív anyagok nincsenek jelen, akkor σ_{sol} -t σ_w -el helyettesíthetjük. Így a 2.10 sz. egyenletben már nemcsak, hogy a víz aktivitása nem szerepel, az így csak két ismeretlen mennyiséget (d_{wet} és κ) tartalmaz. Ezek értéke kiszámítható, ha megfontoljuk, hogy a túltelítettségnek maximuma van d_{wet} környezetében. Mivel a hőmérsékleti gradienst beállítjuk, így S -t kiszámíthatjuk, κ -t a mérési adatpontok között végzett iterációval meghatározhatjuk.

Különböző kémiai komponensekből álló aeroszolok κ értéke az additív keverési szabály szerint számolható (Pöhlker és mkts., 2023):

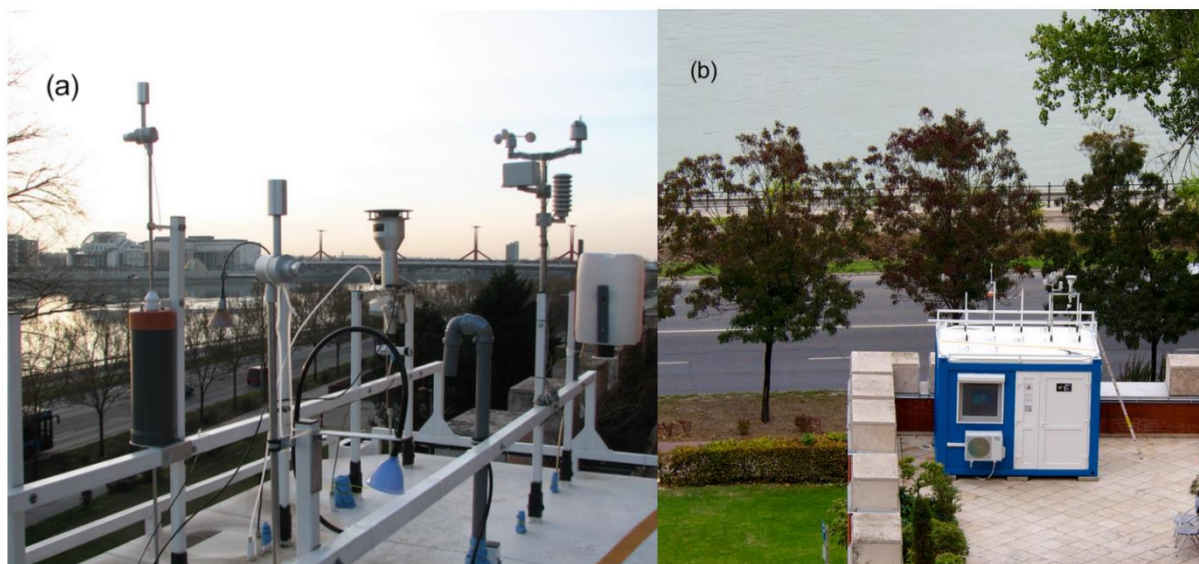
$$\kappa = \sum_i \varepsilon_i \kappa_i = \varepsilon_{org} \kappa_{org} + \varepsilon_{inorg} \kappa_{inorg}, \quad (2.12)$$

ahol ε_i a száraz komponens térfogataránya, κ_i pedig a komponensek egyedi κ értéke. Az egyenlet jobb oldalán található kifejezés a bal oldal egyszerűsített formája. Az „org” és „inorg” indexek rendre a szerves és szervetlen komponensek κ értékét jelzik, míg a hozzájuk tartozó ε értékek tömegarányokat jelölnek. A 2.12 sz. egyenlet definiálása fontos összefüggés a légköri aeroszolok κ értékének alakulásában a szerves-szervetlen anyag arányának változása tekintetében.

3. Módszerek

A BpART Laboratórium létesítménye egy $2,00\text{ m} \times 2,80\text{ m}$ alapterületű és $2,10\text{ m}$ magasságú hőszigetelt fém konténer, mely az ELTE Lágymányosi Campus Északi tömbjének második emeleti teraszán található. Jól átkevert, átlagos belvárosi levegőjű helyet képvisel (Salma és mks., 2016). A laboratórium a Dunától kb. 85 m távolságra, az utcaszinttől mintegy 11 m magasságra helyezkedik el.

A platform légkondicionáló és elektromos fűtőberendezéssel rendelkezik, és egy hőszigetelő függöny van felszerelve az ajtónál. Két független tápellátás van bekötve (230 V , 50 Hz , 12 A), mely a műszerek működtetéséhez elengedhetetlen. A mintavevő inletek és meteorológiai mérőegységek körülbelül $80 - 150\text{ cm}$ -re a tető felett helyezkednek el. Ezek vízállóak, és a mennyezeten keresztül szolgáltatnak légköri mintát. A platformról készült fényképek a 4. ábrán láthatóak.



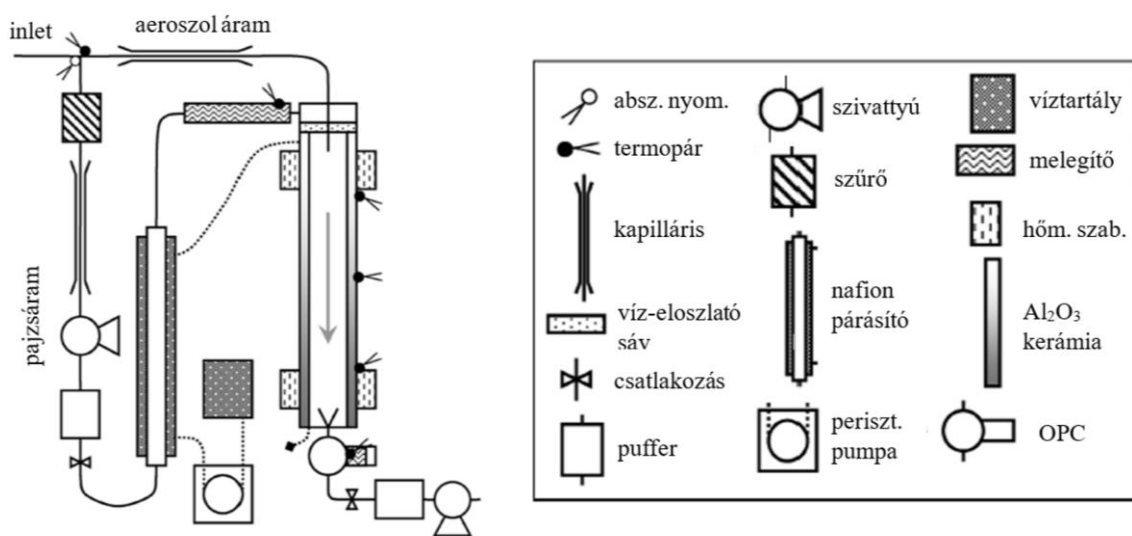
4. ábra: A BpART Laboratórium platformja. A bal oldali képen az inletek és meteorológiai szenzorok látszanak, a jobb oldalin a platformmal együtt fényképezett környezet és vegetáció láthatóak.

A BpART Laboratóriumban üzemeltetett műszeregyüttes felhőszimulátorként működik. Ezt egy kétoszlopos műszer kibővítésével és átalakításával értük el a laboratórium keretein belül, melyet a következő fejezetben tárgyalok. Ez Magyarországon egyedülálló módon, elsőként lett megépítve.

3.1. A felhőkondenzációs magvak mérése

A CCN-koncentrációk mérését különböző túltelítettségeken folyamatos áramlású hosszirányú hőmérséklet-gradienssel rendelkező diffúziós kamrával (a továbbiakban felhőkondenzációs magszámlálóval) (Cloud Condensation Nuclei counter, CCNc) végeztük (Chuang és mks., 2000; Roberts és Nenes, 2010).

A CCNc egy hengeres oszlopból, áramlásszabályozóból, optikai részecskeszámlálóból, programozott fűtőegységekből, és a pajzsáram előkészítésére szolgáló részekből áll. Sematikus rajza az 5. ábrán látható.

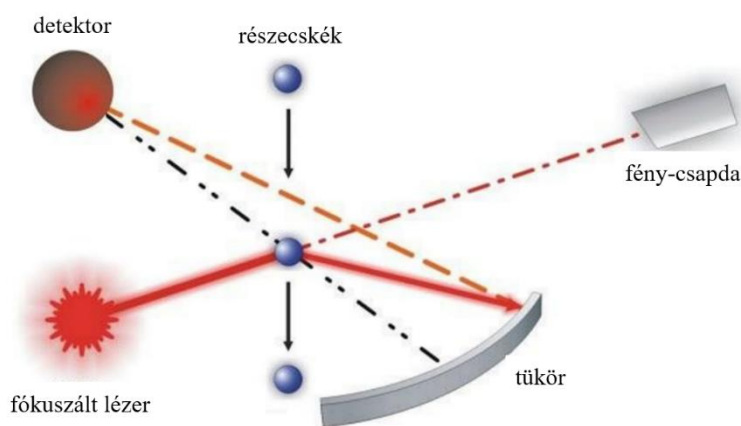


5. ábra: A felhőkondenzációs magszámláló sematikus ábrája (Roberts és Nenes, 2010).

A függőleges, porózusos Al_2O_3 -kerámia bélelt oszlop falát perisztaltikus pumpa segítségével állandó nedvesítés alatt tartjuk. A fal külseje jó hővezető tulajdonságú, körkörös fűtőegységekkel van ellátva. A hőszabályozó egységek lefelé növekvő lineáris hőmérsékleti gradienst állítanak be az oszlop belsejében. A levegőminta az oszlop közepén áramlik, mely légáramot a pajzsáram (sheath flow) veszi körül. Ez a pajzsáram előzetesen szűrt, vízgőzzel telített, az oszlop tetejénél magasabb hőmérsékletű légáram.

Az áramlásszabályozás a bejövő levegőminta (inlet) kettéágaztatásából áll, az oszlop és a pajzsáram előkészítő irányába. A két egységbe a levegő minden esetben rozsdamentes acél kapillárison keresztül áramlik. Tüszelpekkel és levegőpumpával szabályozzuk az áramlási arányt.

Az optikai részecskeszámláló (Optical Particle Counter, OPC) fényszóródás mérésén alapuló műszer, mely az oszlop alján helyezkedik el. Sematikus ábrája a 6. ábrán látható. Benne egy fotodiódás lézert fókuszálunk meghatározott mintatérfogatra. Az érzékelő szilíciumdióda merőlegesen helyezkedik el a lézerre, oda a fény egy lézerre merőleges görbített aranytükörrel fókuszálódik. Így csak akkor, amikor csepp halad át a detektoron, a lézerfény a cseppen szóródik és a detektor az előre beállított szóródás mértékéből szoftver segítségével megméri az áthaladt cseppek számát. A szoftvernek cseppátmérő adatokat kell beállítani, és automatikusan kiszámolja, hogy milyen szóródással rendelkező részecskéket számoljon meg.



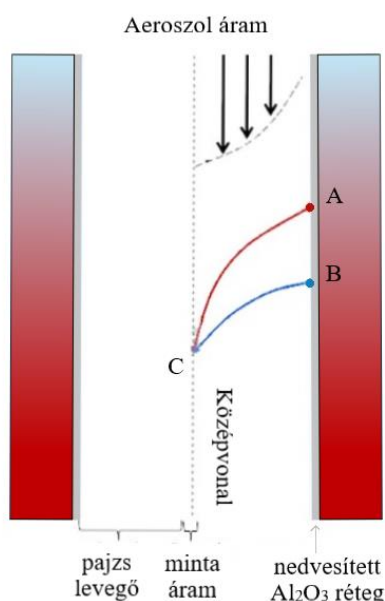
6. ábra: Az optikai részecskeszámláló működési elvének sematikus ábrája (K. Weber és mks., 2010).

Az oszlopfal vastagságát úgy kell megválasztani, hogy adott hővezetés és hőkapacitás mellett, a hosszirányú hőterjedéshez képesti radiális hővesztés elhanyagolható legyen. A hőszabályozó egységek az oszlopon körkörösén helyezkednek el, hővezető-szilícium pasztával vannak az oszlophoz erősítve.

A pajzsáram egy HEPA szűrőn megy keresztül, mely kiszűri a részecskéket. Ezután rozsdamentes acélkapillárison keresztül jut egy Nafion-párásítóba, mely állandó értéken tartja a relatív páratartalmat. A kondicionált levegő hőmérsékletét az oszlopba kerülés előtt szabályozzuk.

A rendszer valamennyi részét szoftverrel irányítjuk. A szabályozás leginkább hőmérséklet-érzékelő szenzorokon alapul, melyek jelen vannak az inlet, az oszlop és a pajzsáram hőszabályozóin, valamint az optikai részecskeszámláló kamráján.

Az oszlop működése a diffúziósebesség különbségein alapszik. A víz kisebb molekulatömeggel rendelkezik, mint a levegőt alkotó fő komponensek (N_2 , O_2), így annak radiális irányú diffúziósebessége nagyobb, mint a levegőt alkotó molekulák által közvetített radiális terjedésű hődiffúzió. A falról a hő és a telített vízgőz a középvonal felé áramlik. Mivel a vízgőz diffúziója gyorsabb a hő terjedésénél, az hamarabb éri el a középvonalat, minthogy a középvonal felvenné a fal hőmérsékletét. Ezáltal a középvonal túltelítetté válik. Mivel a fal hőmérséklete lineárisan változó, ezért a középvonalon kialakuló túltelítettség kellően kicsi hőmérsékleti gradiens esetén állandó. A túltelítettség értéke jól és precízen szabályozható a hőmérsékleti gradiens hangolásával.



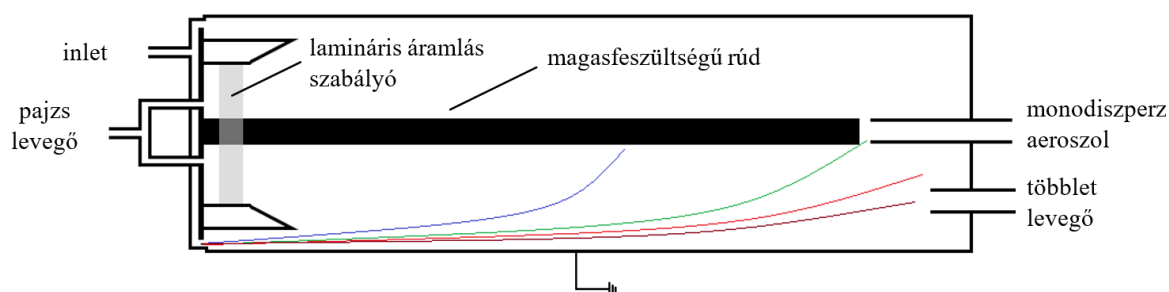
7. ábra: A felhőkondenzációs magszámláló működési elvének vizuális ábrázolása. A képen az A pontból induló vonal a hődiffúziót, a B pontból induló pedig a vízgőz diffúzióját szemlélteti. A C pontban az A pontnak megfelelő hőmérséklet és a B pontnak megfelelő telítési páratartalom értékek alakulnak ki. Mivel az A pont hőmérséklete kisebb, mint a B pontban lévő telítési értékhez rendelhető hőmérséklet, a C pontban túltelítettség jön létre. A túltelítettség érték szinte az egész középvonal mentén állandó.

A felhőkondenzációs magszámláló egy precízen állítható és jól meghatározható paraméterekkel rendelkező készülék, így alkalmas arra, hogy műszerkapcsolásokba építsük. Ennek jó példája a Szkennelő Mobilitás CCN Analízist (Scanning Mobility CCN Analysis, SMCA) megvalósító műszerkapcsolás, mely a polidiszperz légköri aeroszol méretfrakciók szerinti folyamatos vizsgálatát végzi. A méretszeparált aeroszolt egy differenciális mobilitás részecske szeparátor (Differential Mobility Particle Sizer, DMPS) (a továbbiakban részecskeszeparátor) állítja elő. A berendezés főbb részei a diffúziós szárító, a bipolaris töltő, a differenciális mobilitás analizátor (Differential Mobility Analyzer, DMA), mely a méretszeparációt végzi, valamint egy kondenzációs részecskeszámláló (Condensation Particle Counter, CPC).

A diffúziós szárító egy csőszerű rozsdamentes fémhálóra rögzített Nafion-membránból áll. A membrán külső oldalán szárazabb levegő (purge gas) áramlik a belső oldalon áramló nedves levegővel ellentétes irányban. Mivel a membrán két oldalán a víz koncentrációja eltér, potenciálkülönbség lép fel. Ennek hatására a vízgőz elsőrendű kinetikával átdiffundál a szárazabb légtér felé. Így a membrán kémiai tulajdonságai alapján, rendkívül nagy szelektivitással képes a vízgőzt kiszűrni a csőben áramló levegőből, jelentős részecskevesztés nélkül.

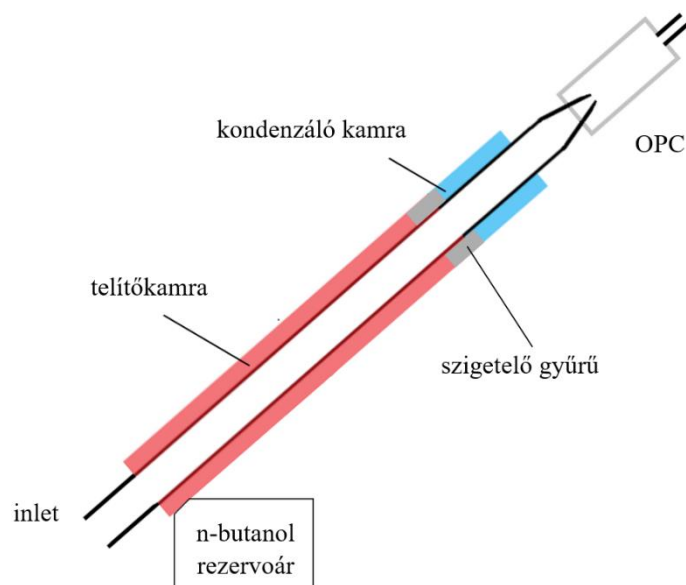
Az aeroszol részecskék töltése időnként eltérhet az egyensúlyi töltéeloszlástól, ami a koncentráció meghatározásának az alapja. Erre nyújt megoldást a bipoláris töltő (neutralizátor), mely jellemzően radioaktív forrást tartalmaz (például ^{60}Ni vagy ^{85}Kr) a cső körül, melyben az aeroszol áramlik. Ez a forrás béta-bomlással pozitív és negatív töltéseket generál, amely az aeroszol részecskéket egyensúlyi töltés-eloszlásra hozza.

A differenciális mobilitás analizátor a polidiszperz aeroszol méretfrakciókba történő válogatását végzi a részecskék elektromos mobilitása alapján. Ez elsősorban a részecskék méretétől függ. A kisebb részecskék elektromos tér hatására gyorsabban mozognak radiális irányban a palásttól a belső elektród felé. A készülék sematikus rajza a 8. ábrán látható. Rozsdamentes acélból készült leföldelt palást, melynek belsejében egy magasfeszültségű elektród található. Így az áramlásra radiálisan merőleges elektromos tér alakul ki. A palástban polidiszperz aeroszol (inlet), valamint részecskementes pajzslevegő halad át, azonban az elnevezések megtévesztőek lehetnek. Ebben a készülékben a pajzslevegőt öleli körbe az inlet. Mivel utóbbi így a külső köpenyben áramlik, a töltéssel rendelkező aeroszol részecskék az elektromos tér hatására a középvonal felé hajlanak, és a pajzslevegővel együtt távoznak a kilépőnyíláson. A feszültség állításával jól szabályozható az eltérülés mértéke, vagyis, hogy a távozó monodiszperz aeroszol milyen mérettartományú részecskéket tartalmazzon. A többletlevegő egy másik elvezetőn keresztül távozik, és megfelelő szűrés és előkészítés után pajzslevegőként recirkulálódik.



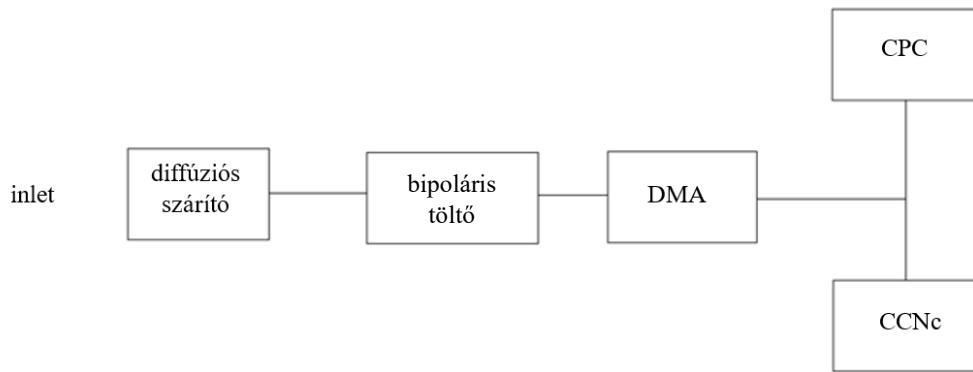
8. ábra: A differenciális mobilitás analizátor sematikus ábrája.

A kondenzációs részecskeszámláló feladata, hogy a 6 – 1000 nm részecskeátmérő tartományban minden, bármilyen részecskét megszámol. A fényszóráson alapuló részecskeszámlálás akkor működik, ha a részecske átmérője összevethető a fény hullámhosszával. A legtöbb részecske mérete azonban ettől kisebb. A részecskék átmérőjét megszámolásuk előtt n-butanol gőz kondenzációjával növeljük meg (ellentétben a CCNc-vel, ahol vízgőzt használunk), mely apoláros felével kötődik a hidrofób részecskéken (korom), és poláros végével a hidrofíl vegyületeken. A CPC sematikus rajza a 9. ábrán látható. A száraz levegő először egy porózus, cső alakú, felfűthető telítőkamrán halad át, mely butanollal van telítve. A telítőkamra után egy kondenzáló kamra van kapcsolva szigetelőgyűrűn keresztül, melyben a telítési arány megnő, az aeroszol túltelítetté válik. Ennek következtében a részecskéken kondenzáció megy végbe, a cseppek számát egy felfűtött optikai részecskeszámláló méri.



9. ábra: A kondenzációs részecskeszámláló sematikus ábrája.

A korábban említett SMCA mérőrendszer vázlatos rajza a 10. ábrán látható. Az inlet áthalad a diffúziós szárítón, a bipoláris töltőn, majd a DMA-n. Egy rozsdamentes acél Y-elágazással ketté válik; az egyik ág a kondenzációs részecskeszámlálóba, a másik pedig a felhőkondenzációs magszámlálóba megy. Így már az egyes átmérők (csatornák) és különböző túltelítettségek szerint is lehetővé válik az aeroszol részecskék mérése (Petters és Kreidenweis, 2007; Wex és mkts. 2007; Padró és mkts. 2007, 2009, 2010; Lance, 2007; Carrico és mkts. 2008; Petters és mkts. 2009; Rose és mkts. 2010; Dusek és mkts. 2010).

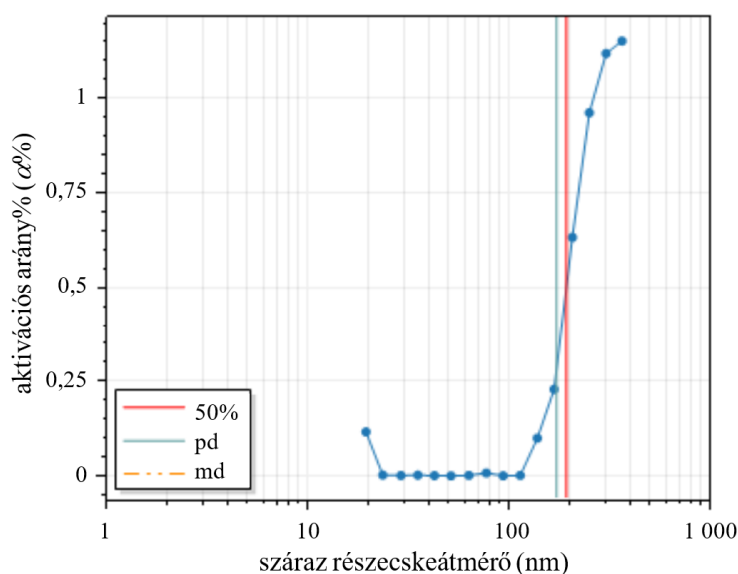


10. ábra: A kapcsolt szkennelő mobilitási felhőkondenzációs mag analizátor vázlatos rajza.

A laboratóriumban használt műszerkapcsolás során az inlet kétfelé ágaztatása után az egyik ág a kétoszlopos CCNc egyik oszlopába megy, a másik ág pedig egy SMCA-t megvalósító műszerkapcsolásba. Az első oszlop (B-oszlop) önmagában felhőkondenzációs magszámlálóként működik és a polidiszperz aeroszol aktiválódott részecskeszámát méri 0,1% – 0,2% – 0,3% – 0,5% – 1,0% túltelítettségeken. A második oszlopba (A-oszlop) a CPC-vel párhuzamosan, a DMPS után jut az aeroszol áram, mely monodiszperz aeroszolt állít elő a polidiszperzzel azonos túltelítettségi értékeken, nagyjából 20–400 nm mérettartományban (19–369 nm). A használt Nafion szárító ellenáramú levegőjét szilikagéllel töltött előszárítókámra biztosítja. Ezen kívül az új rendszerrel párhuzamosan működik egy pontosabb, nagyobb érzékenységű részecskeszámláló (DMPS) is, mely 6–1000 nm-es teljes tartományban méri a részecskeszám méreteloszlást.

3.2. Az effektív kritikus átmérő meghatározása

A 2.10 sz. egyenletben szereplő száraz részecskeátmérőt adott tútelítettségi értékeken meghatározott $d_{c,eff}$ értékekkel helyettesítjük. Ennek meghatározását egy alternatív módszerrel szoftveresen végeztük a mért adatokból felvett $d_s - \alpha$ diagramokból minden egyes tútelítettségi szinten. Egy ilyen meghatározást mutat be a 11. ábra. A görbe jellegzetes S-alakú, ideális esetben felezőpontja megfelel az 50%-os aktivációs aránynak, amelyből a $d_{c,eff}$ -t abszcisszára vetítéssel meghatározhatjuk. A 11. ábrán az ehhez tartozó $d_{c,eff}$ -értéket a piros vonal reprezentálja, így a $d_{c,eff} = 193$ nm-nek adódik. Tehát ezt az értéket kell a Köhler-egyenletbe helyettesíteni. A tútelítettség (0,1%) kiválasztása a felhőkben uralkodó viszonyoknak megfelelően történt. A kiértékelés során a $d_{c,eff}$ értékeket szoftveresen határoztuk meg és helyettesítettük a 2.10 sz. egyenletbe.



11. ábra: Az aktivációs arány szárazrészecske-átmérőtől való függése 0,1% tútelítettségen, a 2024. 08. 20-i tűzijáték alkalmával.

4. Eredmények és megvitatásuk

Az SMCA adataiból felvett CCN-koncentrációk, tútelítettségek szerinti CCN-koncentrációk idősorait, valamint a tútelítettségek szerint mért felhőkondenzációs mag méreteloszlásokból felvett kontúrgörbék értékeltem ki. A nagyobb mérettartományú DMPS adataiból a 0,1%-os tútelítettségen mért 6 – 1000 nm, 30 – 100 nm, 100 – 1000 nm-es méretfrakciók idősorait készítettem el, valamint a teljes tartományú méreteloszlásból készített kontúrgörbék értékeltem. A műszerek által felvett kiértékelendő koncentráció-értékek lognormális eloszlásúak:

$$\frac{\Delta N}{\Delta \log d} = \frac{\Delta N}{\Delta \log d_2 - \Delta \log d_1} = \frac{N}{\log \frac{d_2}{d_1}}, \quad (4.1)$$

ahol ΔN a részecskeszám változás, d_1 , d_2 az egyes DMPS által szeparált méretcsatornák részecskeátmérői ($d_1 < d_2$). Ebből részecskeszám-koncentrációt az egyenlet átrendezésével számoltam:

$$N = \frac{\Delta N}{\Delta \log d} \times \log \frac{d_2}{d_1}. \quad (4.2)$$

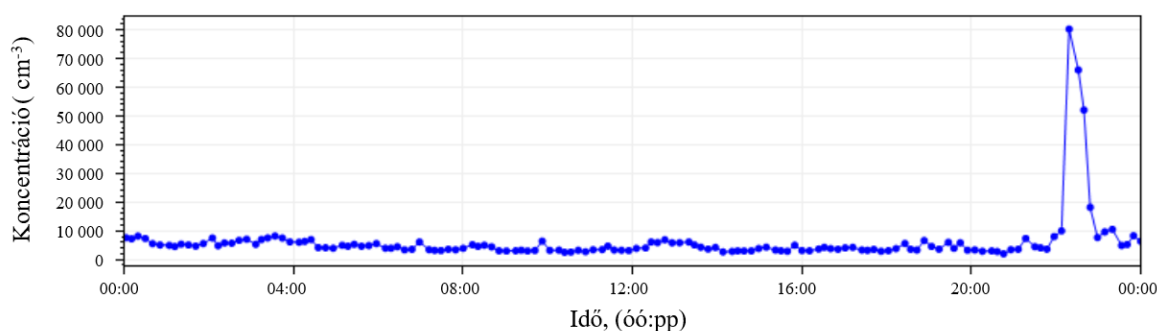
A kontúrgörbék a 4.1 sz. egyenletnek megfelelő lognormális koncentráció-értékek méret szerinti eloszlását vetítik az adott naptári év napjának időskálájára. Így a részecskeszám-méreteloszlás idősorát ábrázoljuk, a koncentrációkat kéktől vörösig terjedő (alacsony, illetve magas koncentrációk) színskálával jelölve. Így a 3 dimenziós ábra 2 dimenzióba vetített képét kapjuk, mely ordinátáján átmérőket, abszcisszáján időskálát ábrázol.

A 3. alfejezetben ismertetett műszerkapcsolás 3 hónapja üzemel, ezért megalapozott következtetéseket később lehet csak megfogalmazni. Addig is kiválasztottunk néhány érdekes esetet és napot, amelyek a mért effektust szépen bemutatják. Ezen napok időrendben a 2024. 08. 20-án zajlott tűzijáték, 2024. 09. 08-ai szublokális NPF&G esemény és a 2024. 10. 08-án történt regionális NPF&G esemény.

4.1. Tűzijáték

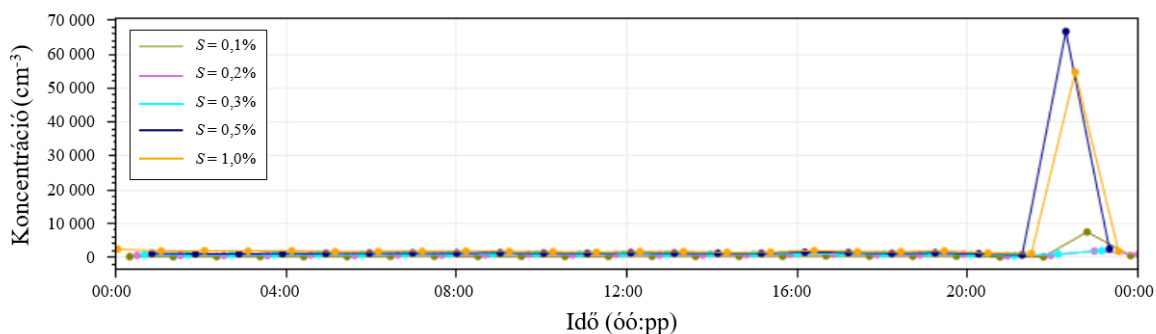
A 2024. 08. 20-ai tűzijáték a megszokottól eltérően vihar miatt egy órával később, 22:00 órakor kezdődött. Az esős időjárás remek körülményeket, alacsony háttérrel biztosított a tűzijáték során keletkezett aeroszol méréséhez. A napközbeni gépjárműforgalomból származó részecskék koncentrációja mérsékelt volt.

A tűzijáték rakéták és robbanások jellegzetes részecskéket juttatnak a levegőbe, mely a részecskék összkoncentrációjának, valamint a felhőkondenzációs magvak koncentrációjának ugrásszerű növekedésével jár együtt. Ilyen növekedést mutatnak be a 12. és 13. ábrák. A 12. ábrán 22:00 után közvetlenül kialakuló csúcs a tűzijáték eredménye. Korábbi méréseink alapján kb. egy órán keresztül fejt ki hatását (Salma és mkts., 2023).



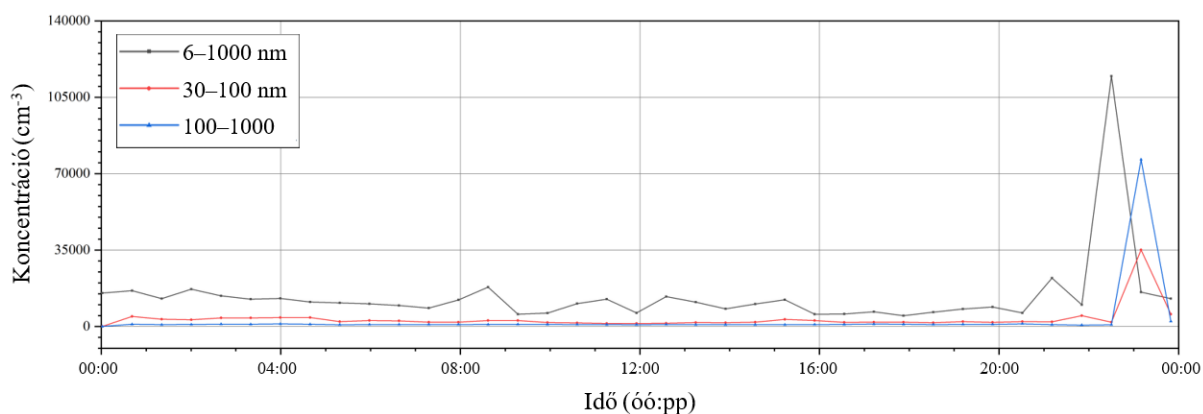
12. ábra: A 20–400 nm átmérőjű részecskék koncentrációjának idősora.

A 13. ábrán sötétkék és narancssárga vonallal jelzett kiugró koncentrációérték az előző mérési ciklus utolsó két adatpontját képviselik. Időpontjuk az esemény tetőpontjára tehető. Ezután az oliva, orchidea, ciánkék és ismét sötétkék vonalakkal jelzett görbék már a következő mérési ciklus részei. Egyre inkább kisebb koncentrációk mérhetőek az esemény lecsengése, valamint az egyre csökkenő túltelítettség miatt. Tudjuk azonban, hogy ugyanolyan koncentrációk esetén 1,0%-os túltelítettségen több részecske aktiválódna, mint 0,5%-on, így a mért koncentrációbéli tendenciák jól követik az esemény lefutását.



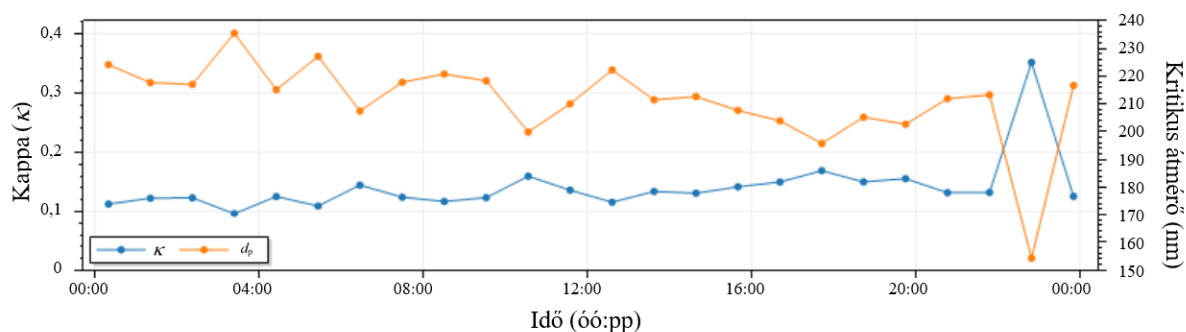
13. ábra: A 20–400 nm átmérőjű részecskék koncentrációjának idősorai 0,1% (oliva), 0,2% (orchidea), 0,3% (ciánkék), 0,5% (sötétkék), 1,0% (narancssárga) túltelítettségi értékeken.

A tűzijáték felhőképződésre gyakorolt hatásának tanulmányozására legfőképpen a 0,1% túltelítettségen felvett idősorok alkalmasak (14. és 15. ábrák). A 14. ábrán a részecskék összkoncentrációja (szürke) kora reggel tipikusan $10,4 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ volt, mely a tűzijáték során $115 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ -re nőtt (1000% relatív növekmény, RN). A 30 – 100 nm-es méretfrakció koncentrációja (piros) tipikusan napi $2,4 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ volt, ami $35 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ -re nőtt (RN=1300%). A kék görbe a 100 – 1000 nm tartományt mutatja. Maximális értéke a 30 – 100 nm-es méretfrakciónak több, mint kétszerese volt annak maximumában, amiből arra lehet következtetni, hogy az esemény során 100 nm-től nagyobb átmérővel rendelkező részecskék keletkeztek túlsúlyban.



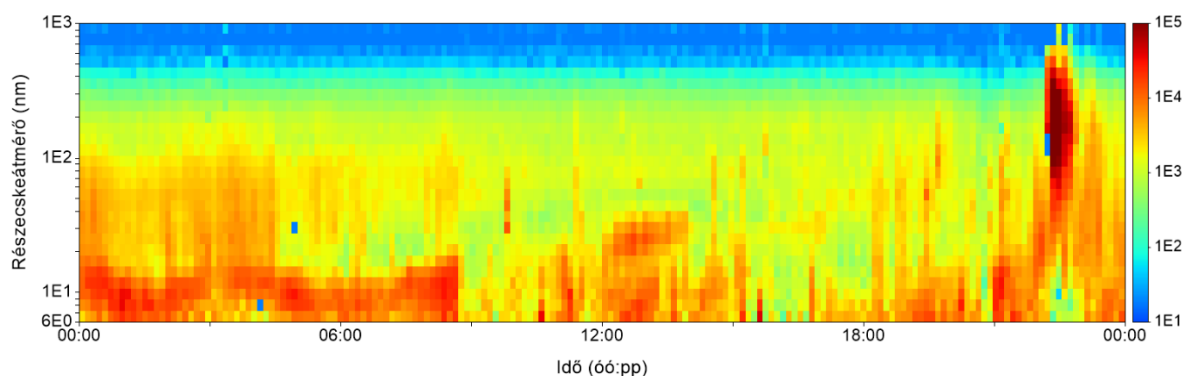
14. ábra: A 0,1% túltelítettségen mért felhőkondenzációs magvak koncentrációinak idősora 6 – 1000 nm, 30 – 100 nm, 100 – 1000 nm méretfrakciók szerint.

A 15. ábrán $d_{c,eff}$ (sárga) értéke a tűzijáték során lecsökkent, vagyis sokkal több részecske aktiválódott a napi átlaghoz képest. A 2.10 sz. egyenletnek megfelelően κ értéke követi a kritikus átmérő változásait. Napi átlagértéke 0,14 volt, amely a tűzijáték eseménye során 0,36-ra emelkedett (RN=160%). A két változást figyelembe véve elmondható, hogy főleg nagyméretű, vízdoldható aeroszol részecskék kerültek a levegőbe, melyek elősegítették a cseppképződést. Ennek során a szervesetlen – szerves arány megnőtt, így κ értéke is megnőtt.



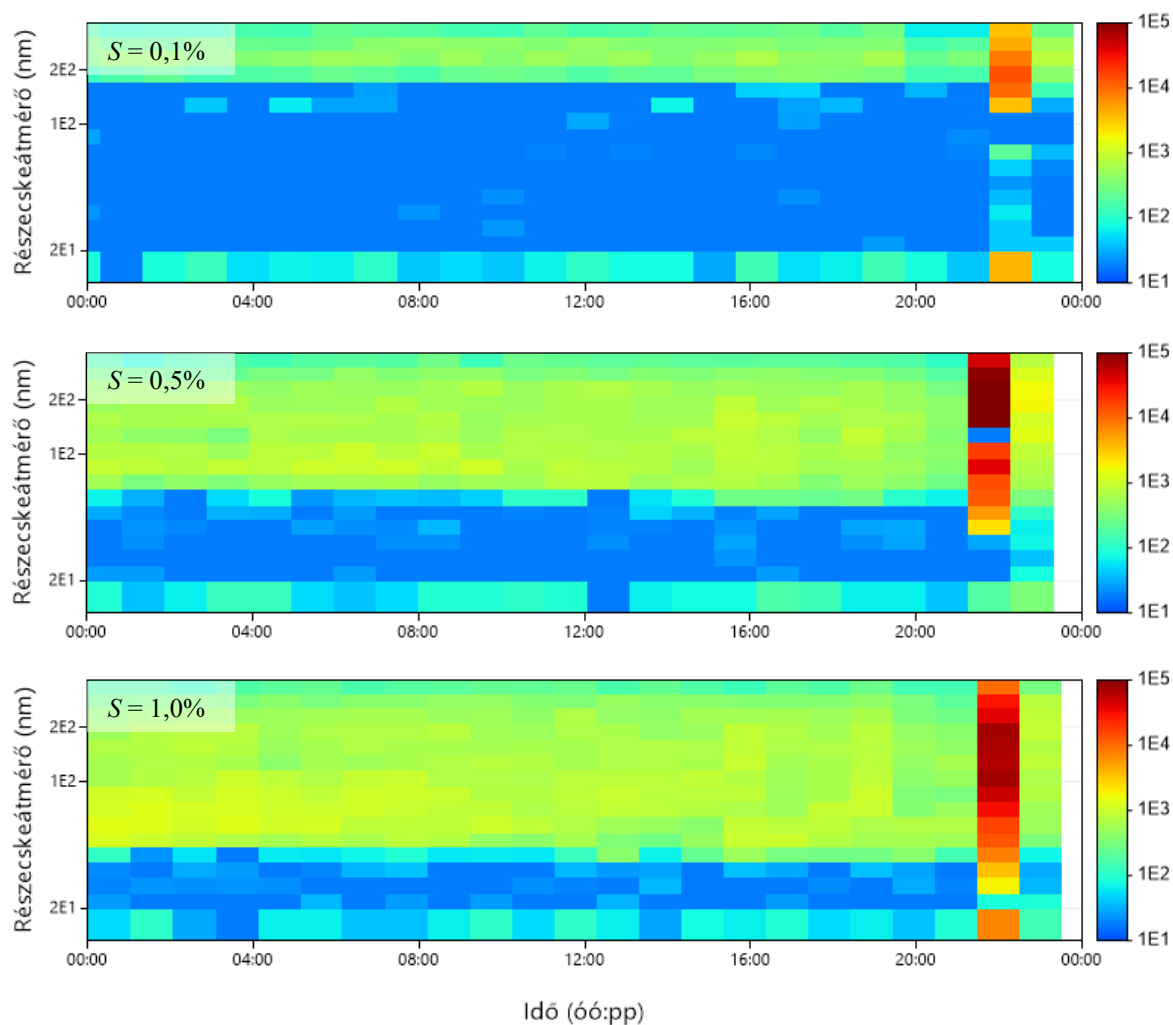
15. ábra: κ és $d_{c,eff}$ idősorai 0,1% túltelítettségen.

A mérési eredmények összhangban vannak a tűzijátékok összetételére vonatkozó ismereteinkkel. A színes fényeket okozó sók jellemzően átmenetifém- és nemesfém-nitrátok, -kloridok és -perklorátok (pl.: CuCl_2). Ezen sók higroszkóposága, valamint időszakosan megnövekedett koncentrációja nagyobb a szokásos légköri aeroszolénál, amiben nagyrészt $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, NH_4NO_3 és egyéb szerves vegyületek találhatóak. A keletkezett részecskék átmérője 100 nm feletti. Hogy utóbbi állítást igazoljuk, kontúrgörbéket készítettünk mindkét részecskeszeparátorral mért adatokból. A 16. ábra a részecskeszám méreteloszlást ábrázolja 6 – 1000 nm-es tartományban. Az esemény idejében a legnagyobb koncentrációk a 70 – 400 nm tartományban láthatóak.



16. ábra: A nagyobb mérettartományú részecskeszeparátor adataiból felvett kontúrgörbe.

A CCN-koncentrációban látható változás az egyes tútelítettségeken ábrázolt kontúrgörbéken is megjelenik. Az ilyen kontúrgörbék összehasonlításával megállapíthatóak az egyes tútelítettségekhez rendelhető legnagyobb mértékben aktiválódó méretfrakciók. Egy ilyen esetre példa az 0,1%, 0,5% és 1,0% tútelítettségeken kapott kontúrgörbék, melyek a 17. ábrán láthatóak. A felbontás ellenére is nyomon követhető az aktiválódott részecskék egyre kisebb méretfrakciókra való kiterjedése az egyre nagyobb S értékek során.



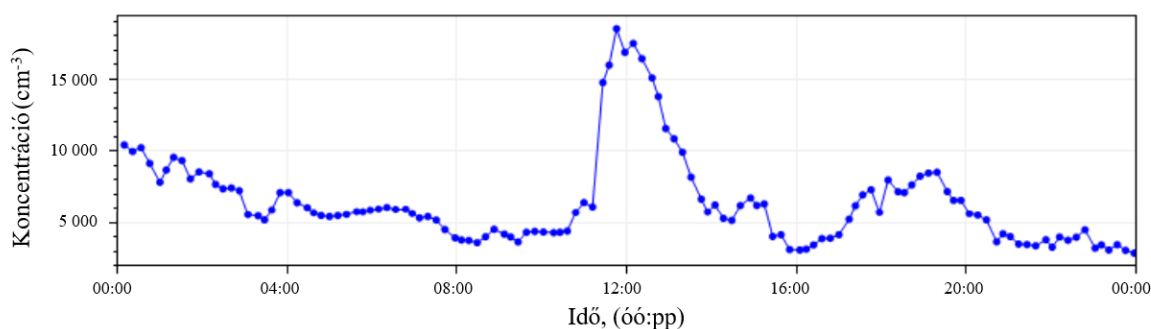
17. ábra: A 20–400 nm átmérőjű részecskék kontúrgörbéje 0,1%, 0,5% és 1,0% túltelítettségeken.

Belátható tehát, hogy a tűzijáték elősegíti a felhőképződést, amelyet vizuálisan is követhető sűrű füst formájában láthatunk. Ez valójában nemcsak füst, hanem a füst és a részecskékre kondenzálódott vízgőz együttese. Ez az oka annak, hogy a tűzijátékot szervezők időnként szünetet tartanak azzal a céllal, hogy a sűrű füst és köd elszálljon, így újra látványosak legyenek a színek és a fényeffektusok.

4.2. Szublokális újrészcseke-képződés és növekedés

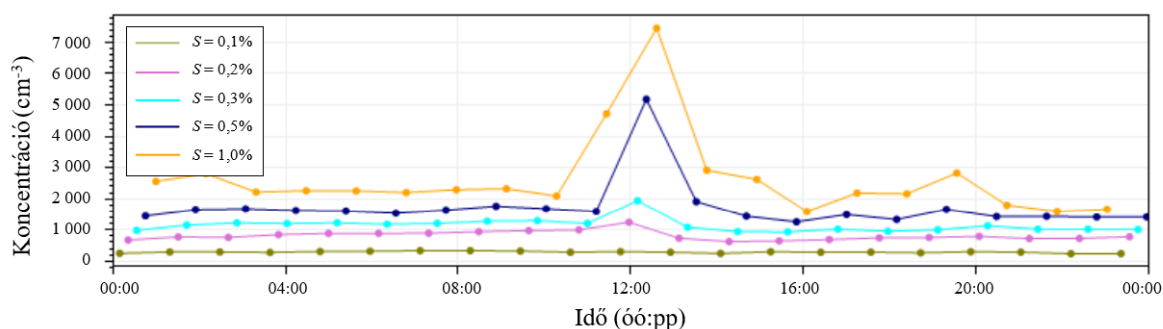
A 2024. 09. 08-án került sor a 39. Wizz Air Budapest Félmaraton nemzetközi rendezvényére, melyen 13 500 versenyző vett részt. A futóverseny 08:00-tól 14:00-ig tartott, a start és a cél a mérőállomás közelében helyezkedett el. Az esemény során 40 mobil-toalett-kabin, 4 mozgáskorlátozott-toalett-kabin és 8 nyílt piszoárt helyeztek el a BpART Laboratórium mérőállomás 20 – 60 m-es környezetében. Korábbi években is hasonló eredményeket kaptunk futóversenyek alkalmával, és a felvett kontúrgörbék konzisztens hasonlóságot mutattak. Mindez azt sugallja, hogy az emberi vizeletből kipárolgó ammónia a szublokális újrészcseke képződés és növekedés (Sublocal, SL–NPF&G) esemény hajtóereje, mely során sóképződési folyamatok indulnak be. A verseny során lezajló koncentrációbeli változásokat mutatják be a 18. és 19. ábrák.

A 18. ábrán látható jellegzetes, dél körüli csúcs eleje a futóverseny kezdetéhez képest eltolódva látható. Ennek oka, hogy az ábrán csak a 20 nm feletti részecskék koncentrációi szerepelnek. A legnagyobb koncentrációérték 12:00-kor volt mérhető. Ez leginkább a napsugárzással magyarázható, de részt vesznek a toalették látogatottsága, az ammónia párolgási sebessége, valamint turbulens diffúziósebessége. A csúcs 10:30-tól kezdve volt mérhető a BpART Laboratórium mérőállomáson, és nagyjából 3,5 óra állt rendelkezésre a mérési ciklusok futtatására.



18. ábra: A 20–400 nm átmérőjű részecskék koncentrációjának időszora.

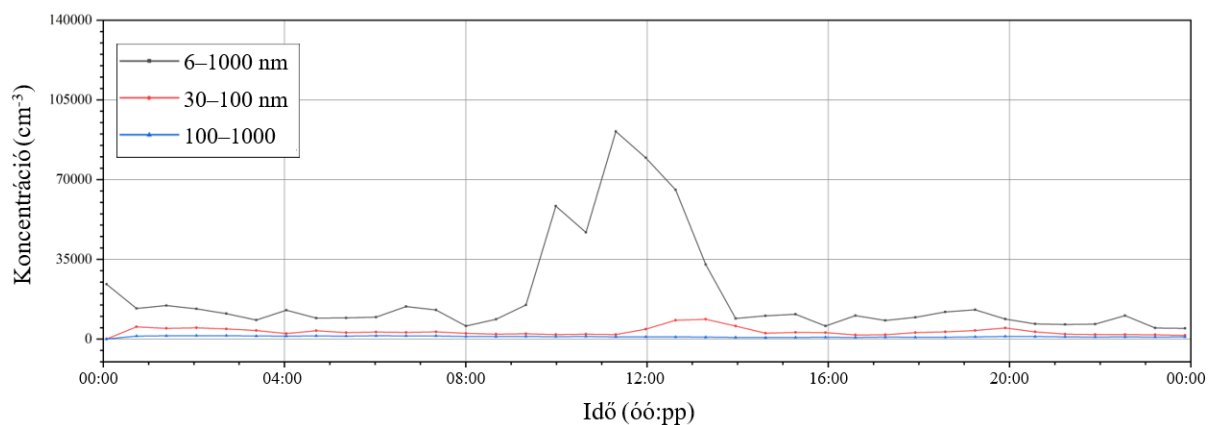
A 19. ábrán az esemény hosszabb időtartama miatt a felbontás is jobb, így a tetőpontban minden túltelítettségi értéken értelmezhető adatokat kaptunk. Az egyre nagyobb túltelítettségeken konzisztensen több részecske aktiválódik. Alacsony túltelítettségeken (0,1% – 0,2%) a tipikus napi koncentrációtól sehol sincs jelentősebb eltérés, azonban 0,5% túltelítettségen már rendkívüli koncentrációváltozás volt detektálható 12:00 után. Mindez azt sugallja, hogy a keletkezett részecskék főként kis méretűek és vízdoldhatóak.



19. ábra: A 20–400 nm átmérőjű részecskék koncentrációjának idősorai 0,1% (oliva), 0,2% (orchidea), 0,3% (ciánkék), 0,5% (sötétkék), 1,0% (narancssárga) túltelítettségi értékeken.

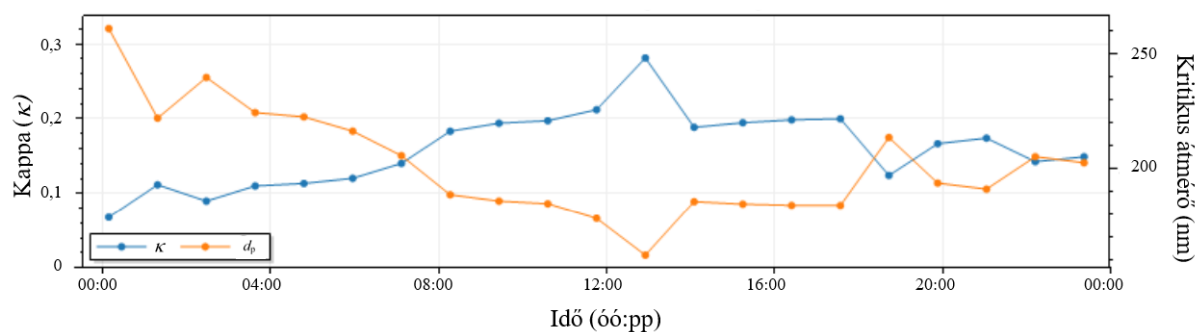
A futóverseny napján tiszta volt az ég, nagy globális sugárzási (Global Radiation, GRad) értékek, valamint magas H_2SO_4 -koncentrációk voltak jellemzőek. A jelentősen csökkent relatív páratartalomhoz gyengétől erős szélesebbesség és állandó szélirány társult. Az időjárási körülményeket és a 18. ábrát figyelembe véve a kipárolgó ammónia a levegőben lévő kénsav-molekulákkal ammónium-szulfát részecskéket képezett. A szublokális újrészecske képződési és növekedési folyamat jelentősen átalakította a cseppképződés feltételeit (20. és 21. ábrák).

A 20. ábrán a részecskék normális kezdeti összkoncentrációja (szürke) tipikusan napi $18,7 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ volt, mely a verseny során $91 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ -re nőtt ($\text{RN} = 390\%$). A 30 – 100 nm-es méretfrakció koncentrációja (piros) átlagosan napi $3,3 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ volt, ami $8,7 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ -re emelkedett ($\text{RN} = 170\%$). A kék görbe a 100 – 1000 nm-es tartományt mutatja. Maximális értéke nem haladja meg a 30 – 100 nm-es méretfrakciót, amiből arra következtetünk, hogy az esemény során főként a nukleációs tartományban keletkeztek 6 – 30 nm átmérőjű részecskék. Az is megfigyelhető, hogy a piros görbe csúcsának kezdete 4 órával van eltolódva a szürkéhez képest, annak lecsengő tartományában. Ez az újonnan keletkezett 6 – 30 nm átmérőjű részecskék növekedését jelezheti.



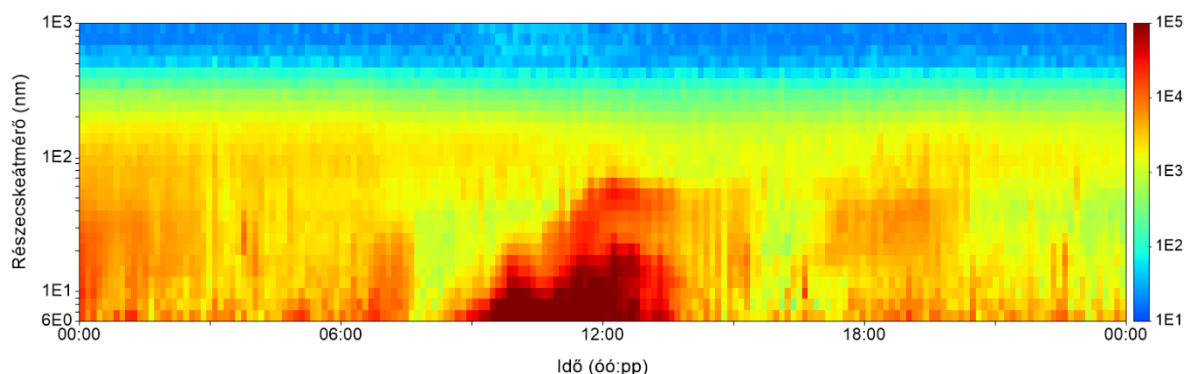
20. ábra: A 0,1% túltelítettségen mért felhőkondenzációs magvak koncentrációinak idősora 6 – 1000 nm, 30 – 100 nm, 100 – 1000 nm méretfrakciók szerint.

A 21. ábrán $d_{c,eff}$ (sárga) értéke a futóverseny során lecsökkent, vagyis sokkal több részecske aktiválódott a napi átlaghoz képest. A 2.10 sz. egyenletnek megfelelően κ követi a kritikus átmérő változásait. Napi átlagértéke 0,16 volt, amely a verseny során 0,28-ra emelkedett (RN = 75%). A két változást figyelembe véve elmondható, hogy a keletkezett vízdoldható aeroszol részecskék kisméretűek voltak, így csak nagyobb túltelítettségeken aktiválódtak. A vízdoldhatósággal párhuzamosan a szerves – szerves arány is megnőtt, így κ értéke is megnőtt.



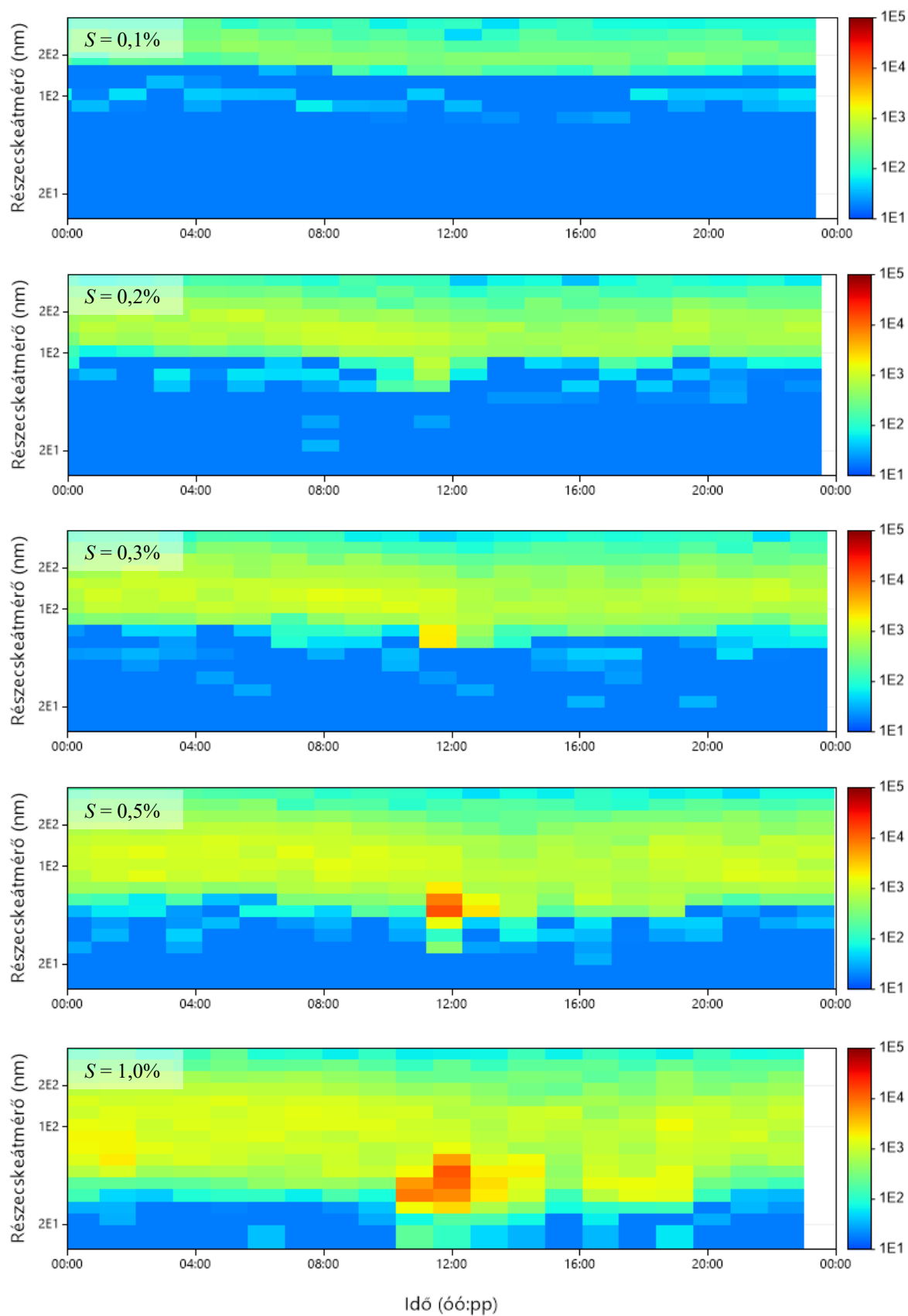
21. ábra: κ és $d_{c,eff}$ idősorai 0,1%-os túltelítettségen.

A keletkezett részecskék átmérője 30 nm alatti volt. Hogy ezt az állítást igazoljuk, kontúrgörbékét készítettünk mindkét részecskezeszeparátorral mért adatokból. A 22. ábra a részecskeszám méreteloszlást ábrázolja 6 – 1000 nm-es tartományban. Az esemény idejében a legnagyobb koncentrációk a 6 – 15 nm tartományban láthatóak.



22. ábra: A nagyobb mérettartományú részecskezeszeparátor adataiból felvett kontúrgörbe.

A felhőkondenzációs magvak koncentrációjában látható változás az egyes túltelítettségeken ábrázolt kontúrgörbéken is megjelenik. Az ilyen kontúrgörbék összehasonlításával megállapítható az aktiválódó méretfrakciók túltelítettségétől való függése. Egy ilyen esetre példa a 0,1%, 0,2%, 0,3%, 0,5% és 1,0% túltelítettségeken ábrázolt kontúrgörbék, melyek a 23. ábrán láthatóak. A túltelítettség növekedésével a kis átmérőjű tartományok aktivációs arányának növekedése is látható, melyet az egyre intenzívebb színek jeleznek.



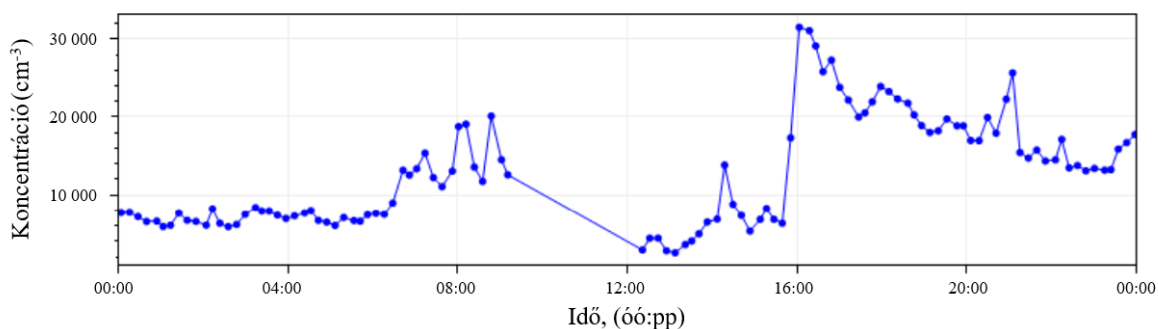
23. ábra: A 20–400 nm átmérőjű részecskék kontúrgörbéje 0,1%, 0,2%, 0,3%, 0,5% és 1,0% túltelítettségeken.

A mért részecskeszám koncentráció nem tükröződik vissza markánsan a CCN-koncentrációkban, különösen nem a 0,1% túltelítettséghez tartozó ábrán (23. ábra). Mindez azt sejteti, hogy keletkezett új részecskék a szublokális folyamat során nem nőnek meg elegendően nagyra ($d > 50 - 100$ nm) és kémiai összetételük sem tér el nagyon markánsan a levegőben általában jelenlévő részecskékétől. A keletkező aeroszol κ értékére koncentrációjával hat.

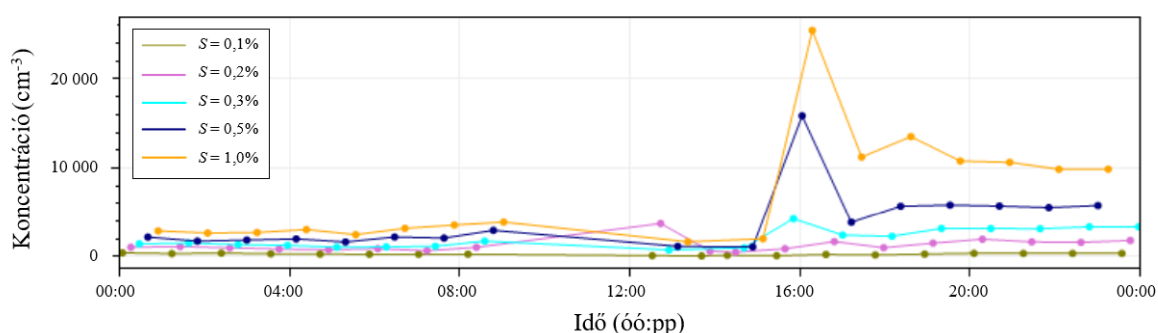
4.3. Regionális új részecske-képződés és növekedés

Eddig megmutattuk, hogy a mérési módszer időfelbontása viszonylag kicsi, a túltelítettség és a részecskeátmérő független szkennelése miatt körülbelül 1h 7min. Olyan események vizsgálatára alkalmas leginkább, amelyek időlefutása ezzel összemérhető, vagy ezen túlmutat. A néhány órás események ezért viszonylag jól követhetőek. Ilyen néhány órás események a regionális NPF&G (R–NPF&G) események, amelyekből a felvett idősorok jellegzetesek. Egy ilyen folyamatot mutatnak be a 24. és 25. ábrák. A 09:30-tól 12:30-ig tartó mérés kiesés miatt a mérések szüneteltek, így itt nincsenek értékelhető adataink. A 06:30-tól 09:30-ig tartó intervallum ezért nem értékelhető teljes bizonyossággal az idősorok alakulásának hiányában. Látszik azonban, hogy az újra-üzemelés követően a légköri koncentráció-adatok normalizálódtak a kora reggeli tipikus értékeknek megfelelően. Ezután 15:45-től kezdődően egy mindössze 15 perc alatt lejátszódó dinamikus koncentrációugrás figyelhető meg, amely 16:00 órai tetőzését követően fokozatos ütemben csökken a hajnali órákig.

A 25. ábrán 06:30-tól 09:30-ig tartó intervallumban a 24. ábrához képest nincs különösebb változás, vagyis ebben a szakaszban olyan részecskék keletkeztek, melyek cseppképzésre nem hajlamosak. Ilyenek a kisméretű koromrészecskék, amely logikus magyarázatként szolgál a 26. ábrán látható 6 – 1000 nm-es méretfrakció koncentrációjának megnövekedett értékeire, mely a reggeli gépjárműforgalomból származhatott. A 15:45-től kezdődő esemény azonban már markáns változást okozott a felhőkondenzációs magvak koncentrációjában is (24. ábra). Mivel az esemény kezdete gyors lefutású volt, akárcsak a tűzijáték esetében, a felbontás nem megfelelő, azonban detektálható. Az esemény további részében a felbontás javult, így az adatpontok gyakorisága minden túltelítettségen megfelelő. Az egyre nagyobb túltelítettségeken konzisztensen több részecske aktiválódott. Alacsony túltelítettségeken (0,1 – 0,2%) tipikus napi koncentrációktól nem volt jelentősebb eltérés, azonban 0,5% túltelítettségen már rendkívüli koncentrációváltozás volt mérhető. Mindez azt sugallja, hogy a keletkezett részecskék főként kis méretűek voltak, nyelőlük beindulása után cseppképzésre való hajamuk megnőtt.

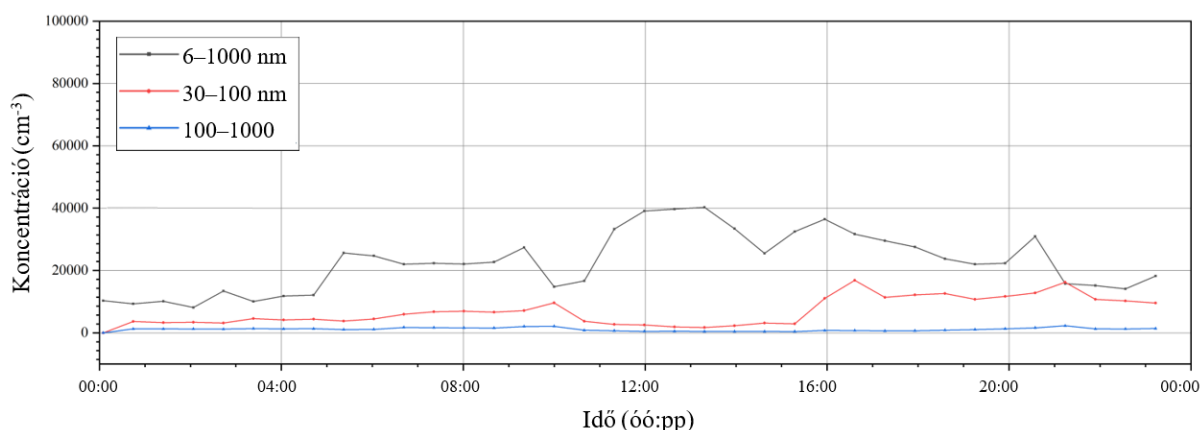


24. ábra: A 20–400 nm átmérőjű részecskék koncentrációjának idősora.



25. ábra: A 20–400 nm átmérőjű részecskék koncentrációjának idősorai 0,1% (oliva), 0,2% (orchidea), 0,3% (ciánkék), 0,5% (sötétkék), 1,0% (narancssárga) túltelítettségi értékeken.

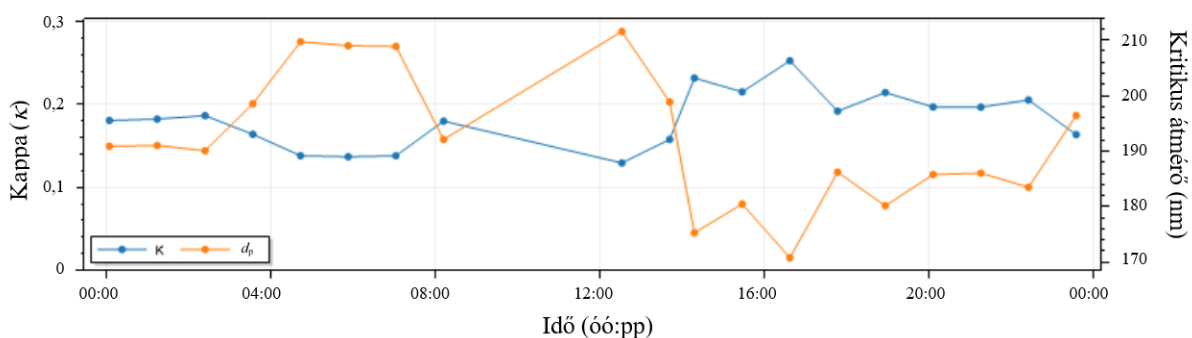
A 26. ábrán a részecskék összkoncentrációjának tipikus napi értéke (szürke) $10,7 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ volt, mely a valójában délben kezdődő esemény során $40 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ -re nőtt (RN = 280%). A 30 – 100 nm-es méretfrakció koncentrációja (piros) tipikus napi értéke $3,3 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ volt, ami $16,8 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ -re emelkedett (RN = 410%). A kék görbe a 100 – 1000 nm tartományt mutatja. Értéke nem haladja meg a 30 – 100 nm-es méretfrakciót, amiből arra következtetünk, hogy az esemény során főként a nukleációs tartományban keletkeztek 6 – 30 nm átmérőjű részecskék. Az is megfigyelhető, hogy a piros görbe csúcsának kezdete el van tolódva a szürkéhez képest, annak lecsengő tartományában található. Ez az újonnan keletkezett 6 – 30 nm átmérőjű részecskék átmérőjének és higroszkóposságának növekedését feltételezi.



26. ábra: A 0,1% túltelítettségén mért felhőkondenzációs magvak koncentrációinak időszora 6 – 1000 nm, 30 – 100 nm, 100 – 1000 nm méretfrakciók szerint.

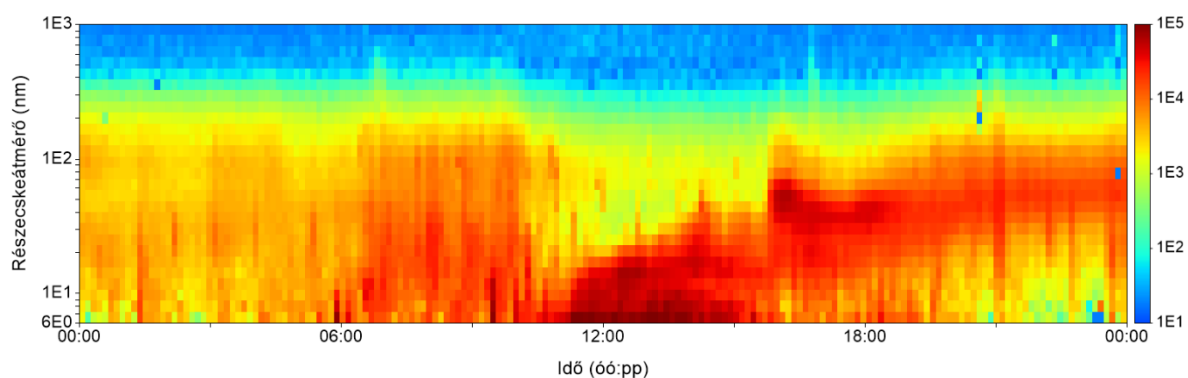
Az újonnan keletkezett kisméretű részecskék koncentrációja gyorsan megnőtt, azután szép fokozatos lecsengést mutat a méret és higroszkópos tulajdonságok növekedésével. Ebből már következtethetünk a részecskék nyelőjére. Az 1. ábrának megfelelően a keletkezett elsődleges részecskék koncentrációja koagulációval csökken, így méretük megnő, mely méretnövekedésben kondenzációs folyamatok is szerepet játszhatnak. A folyamatosan csökkenő koncentráció és méretnövekedés miatt azonban a koaguláció sebessége lecsökken, ezért a koncentrációk egyre kisebb mértékben lecsengő változást mutatnak.

A 27. ábrán $d_{c,eff}$ (sárga) értéke az esemény során lecsökkent, vagyis sokkal több részecske aktiválódott a napi átlaghoz képest. Ezután a koaguláció előrehaladtával a kisebb méretű részecskék koncentrációja lecsökken, valamint nagyobbak lesznek. Így a 3.3 sz. egyenletnek megfelelően értékének fokozatosan kell visszatérnie normális napi értékeihez. A Köhler-egyenletnek megfelelően κ követi a kritikus átmérő változásait. Napi átlagértéke 0,18 volt, amely 16:00 körül 0,25-re emelkedett (RN = 39%). Ezután fokozatosan kezdett csökkenni.



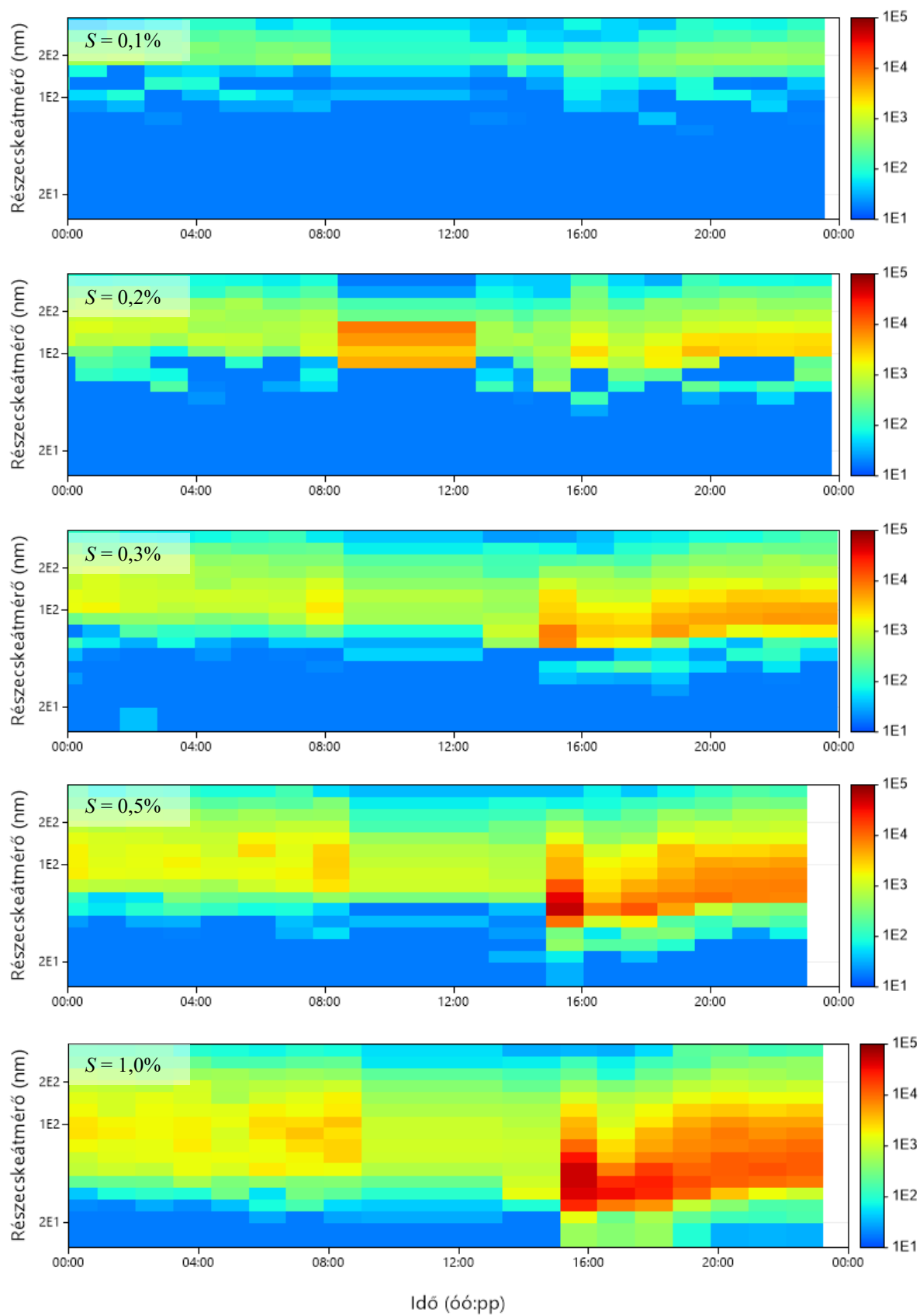
27. ábra: κ és $d_{c,eff}$ idősorai 0,1% túltelítettségén.

A két változást figyelembe véve elmondható, hogy eleinte kis méretű, 6 – 30 nm méretű kevésbé vízdoldható aeroszol részecskék kerültek a levegőbe, melyek kondenzációs és koagulációs növekedés után képesek voltak a cseppképződést megvalósítani. Ennek igazolására mutatom be a 28. ábrán látható kontúrgörbét, mely a részecskeszám méreteloszlást ábrázolja 6 – 1000 nm-es tartományban. Az esemény kezdete 11:00-ra tehető, ez előtt csak a reggeli gépjárműforgalom hatása látható. Az új részecskék a 6 – 10 nm-es tartományban találhatók, mely a nukleációs módusba esik. Ezután ez a mérettartomány fokozatosan tolódik a nagyobb átmérők felé, jellegzetes banán alakot kirajzolva. Ezt hívjuk banán-görbének.



28. ábra: A nagyobb mérettartományú részecskeszeparátor adataiból felvett kontúrgörbe.

A felhőkondenzációs magvak koncentrációjában látható változás az egyes túltelítettségeken ábrázolt kontúrgörbéken is megjelenik. Az ilyen kontúrgörbék összehasonlításával megállapítható, hogy a keletkezett új részecskék valóban a nukleációs tartományba tartoznak és növekedési folyamatokon mennek keresztül. Ezt mutatom be a 29. ábrán. A felbontás ellenére is nyomon követhető a banángörbe alakulása, az egyre növekvő telítettségi értékeken egyre nagyobb koncentrációkat látunk a banángörbéken. A nagyobb átmérőkhöz tartozó, de kisebb koncentrációkat képviselő „öregedett” részecskék kontúrja is kirajzolódik. Mivel utóbbi 0,1% és 0,2% túltelítettségeken nem látszik, valóban kevésbé vízdoldható aeroszol részecskék keletkeztek.



29. ábra: A 20–400 nm átmérőjű részecskék kontúrgörbéje 0,1%, 0,2%, 0,3% 0,5% és 1,0% tútelítettségeken.

A mért részecskeszám koncentráció eleinte nem tükröződik vissza markánsan a CCN-koncentrációkban, különösen nem a 0,1% túltelítettséghez tartozó ábrán (28. ábrán). Ezzel ellentétben nagyobb túltelítettségeken már látszódik a koncentrációk nagyobb mérettartományok felé tolódása. Mindez azt sejteti, hogy az új részecske-képződéssel létrejött részecskék a regionális folyamat során ugyan megnőnek, így cseppképző tulajdonságaik javulnak, de nem elegendően.

5. Összefoglalás

A légköri aeroszol jelentős szerepet tölt be az éghajlatrendszerben, különösen a felhőcseppképződésben. A felhők a beérkező napsugárzást jelentősen visszaverik, ezzel hűtő hatást fejtenek ki. A felhők szerkezetének megváltozása átalakíthatja a csapadékeloszlást és ezzel együtt a hidrológiai ciklust is. A felhőképződés bizonytalansága alkotja a legnagyobb egyedi járulékot az éghajlati modellekben.

A Köhler-egyenlet parametrizált formája egy jól használható modell a részecskék cseppképző tulajdonságainak meghatározására. Tartalmazza a higroszkopicitási paramétert (κ), ami a kémia összesített hatását számszerűsíti. A nagy méretű és vízdoldható részecskék a legalkalmasabbak felhőkondenzációs magvakként.

A BpART Laboratóriumban célirányos kutatásokat végzünk és nagy hangsúlyt fektetünk a légköri aeroszol felhőképződésben játszó szerepének megismerésére és megértésére. Ezt korszerű műszeregyüttesek alkalmazásával és folyamatos mérésekkel valósítjuk meg.

Munkám során egyedülálló műszerkapcsolással végzett mérésekbe kapcsolódtam be. Ez a műszerkapcsolás egy szkennelő mobilitás felhőkondenzációs mag analizátorból és egy párhuzamosan kapcsolt felhőkondenzációs magszámlálóból áll. Előbbi a légköri monodiszperz aeroszol száraz átmérőjének változtatásával 20 – 400 nm tartományban szkennel 0,1%-tól 1,0%-ig terjedő túltelítettségeken. A párhuzamosan kapcsolt felhőkondenzációs magszámláló a légköri polidiszperz aeroszol adott túltelítettségen aktiválódott részecskéit méri azonos mérési paraméterekkel.

Jelen dolgozat célja 3 kiválasztott esemény kiértékelése. Ezek rendre egy tűzijáték, egy futóverseny alkalmával megfigyelhető szublokális új részecske-képződés és növekedés, valamint egy regionális új részecske-képződés és növekedés esemény. Kifejezett célunk ezen különleges eseményeknek a felhőcsepp képződésre kifejtett hatásának meghatározása.

A tűzijáték során $115 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ maximális CCN-koncentrációt mértünk (RN = 1000%). A 30 – 100 nm-es frakció maximális koncentrációja $35,1 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ volt (RN = 1300%). A κ értéke 0,14-ről 0,36-ra emelkedett (RN = 160%). Az adatok és a kontúrgörbék alapján főként 70 – 400 nm átmérőjű vízdoldható részecskék kerültek a levegőbe, melyek már 0,1% túltelítettségen is detektálhatóak voltak. A tűzijátékból származó részecskék tehát jelentős arányban aktiválódnak, így felhőcsepp-képző tulajdonságaik kiválóak.

A szublokális új részecske-képződés és növekedés folyamán $91 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ -es összkoncentrációt mértünk az esemény csúcspontjában (RN = 390%). A 30 – 100 nm-es frakció maximális koncentrációja $8,7 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ volt (RN = 170%). A 100 – 1000 nm-es frakció koncentrációjában szinte egyáltalán nem volt változás. Abból, hogy κ értéke 0,16-ról 0,28-ra emelkedett, valamint a kontúrgörbékben arra következtethetünk, hogy a detektált 6 – 15 nm-es légköri nukleációval keletkező új részecskék vízdoldhatóak.

A regionális újrészecske-képződés és növekedés esemény alkalmával $40,3 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ -re emelkedett az összkoncentráció (RN = 280%), ezzel szemben 30 – 1000 nm közötti részecskéké alig változott. Azonban a 30 – 100 nm-es méretfrakció időbeli eltolódással jelentkező növekménye a cseppképzési képesség javulását eredményezte. A kontúrgörbékől és κ értékeiből levonható következtetés, hogy a légköri nukleációval keletkező 6 – 10 nm átmérőjű részecskék nem voltak higroszkóposabbak a légkörben alapvetően is jelenlévő részecskéktől. Így hát a cseppképződés gátolt folyamat volt, amire így a részecskék csak növekedés, vagy koncentrációcsökkenés révén (a kritikus átmérő tolódása révén) tudtak szert tenni. Ez a légkör keveredésével és koagulációval lehetséges.

A tűzijáték során levegőbe került szervesetlen sók (például CuCl_2) higroszkóposak, mely sűrű ködfelhők képződését idézheti elő. A szublokális NPF&G során keletkezett $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ részecskék kémiai összetétele ugyan ideális volt a cseppképződés folyamatára, kis méretük azonban nem tette lehetővé a cseppképződést. A regionális NPF&G esemény során csak a levegő átkeveredésével, koaguláció miatti méretnövekedéssel, így koncentrációcsökkenéssel nyílt lehetőség cseppképződésre.

A kutatómunka 2024. 08. 20-a óta van folyamatban. További mérési terveink között szerepel egy egyéves adatsor megmérése, kiértékelése és értelmezése. Ennek jelentősége κ értékének követése az évszakok váltakozásával, illetve az átlagos éves tendenciák megfigyelésére is lehetőség nyílik.

Irodalomjegyzék

- Andreae, M.O., Rosenfeld, D.: Aerosol–cloud–precipitation interactions, Part 1., The nature and sources of cloud-active aerosols, *Earth-Science Reviews*, 89, 13–41.,
<https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2008.03.001>, 2008.
- Bilde, M., Svenningsson, B.: CCN activation of slightly soluble organics: The importance of small amounts of inorganic salt and particle phase, *Tellus B*, 56, 128–134,
<https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2004.00090.x>, 2004.
- Butt, H.-J., Graf, K., Kappl, M.: *Physics and chemistry of interfaces*, Weinheim: Wiley-VCH,
<https://doi.org/10.1002/ange.200385136>, 2006.
- Carrico, C., Petters, M., Kreidenweis, S., J. C. Jr., Engling, G., Malm, W.: Aerosol hygroscopicity and cloud droplet activation of extracts of filters from biomass burning experiments, *J. Geophys. Res.*, 113, 206,
<https://doi.org/10.1029/2007JD009274>, 2008.
- Chuang, P., Smith, J., Flagan, R., Seinfeld, J.: Design of a CCN instrument for airborne measurement, *J. Atmos. Sci. Technol.* 17, 1005–1019,
[https://doi.org/10.1175/1520-0426\(2000\)017<1005:DOACIF>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0426(2000)017<1005:DOACIF>2.0.CO;2), 2000.
- Dusek, U., Frank, G., Curtius, J., Drewnick, F., Schneider, J., Kürten, A., Rose, D., Andreae, M., Borrmann, S., Pöschl, U.: Enhanced organic mass fraction and decreased hygroscopicity of cloud condensation nuclei (CCN) during new particle formation events, *Geophys. Res. Lett.*, 37, 804,
<https://doi.org/10.1029/2009GL040930>, 2010.
- Fitzgerald, J. W.: Dependence of supersaturation spectrum of CCN on aerosol size distribution and composition, *J. Atmos. Sci.*, 30, 628–634,
[https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1973\)030<0628:DOTSSO>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1973)030<0628:DOTSSO>2.0.CO;2), 1973.
- Geresdi, I.: *Felhőfizika, Dialóg Campus*, Budapest, 2004.
- Geresdi, I., Mészáros, E., Molnár, Á.: The effect of chemical composition and size distribution of aerosol particles on droplet formation and albedo of stratocumulus clouds, *Atmos. Environ.*, 40, 1845–1855.,
<https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.11.012>, 2006.
- Gilányi, T., Mészáros, R., Varga, I.: Phase transition in the adsorbed layer of catanionic surfactants at the air/solution interface, *Langmuir*, 16, 3200–3205.,
<https://doi.org/10.1021/la991266q>, 2000.
- Huff-Hartz, K. E. H., Tischuk, J. E., Chan, M. N., Chan, C. K., Donahue, N. M., Pandis, S. N.: Cloud condensation nuclei activation of limited solubility organic aerosol, *Atmos. Environ.*, 40, 605–617,
<https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.09.076>, 2006.
- Junge, C., McLaren, E.: Relationship of cloud nuclei spectra to aerosol size distribution and composition, *J. Atmos. Sci.*, 28, 382–390,
[https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1971\)028<0382:ROCNST>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1971)028<0382:ROCNST>2.0.CO;2), 1971.
- Kerminen, V.-M., Paramonov, M., Anttila, T., Riipinen, I., Fountoukis, C., Korhonen, H., Asmi, E., Laakso, L., Lihavainen, H., Swietlicki, E., Svenningsson, B., Asmi, A., Pandis, S. N., Kulmala, M., Petäjä, T.: Cloud condensation nuclei production associated with atmospheric nucleation: A synthesis based on existing literature and new results, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 12037–12059,
<https://doi.org/10.5194/acp-12-12037-2012>, 2012.
- Kimutai, J., Vautard, R., Zachariah, M., Tolasz, R., Šustková, V., Cassou, C., Skalák, P., Clarke, B., Haslinger, K., Vahlberg, M., Singh, R., Stephens, E., Cloke, H., Raju, E., Baumgart, N., Thalheimer, L., Chojnicki, B., Otto, F., Koren, G., Philip, S., Kew, S., Haro, P., Vibert, J., Von Weissenberg, A.: Climate change and high exposure increased costs and disruption to lives and livelihoods from flooding associated with exceptionally heavy rainfall in Central Europe, *Grantham Institute for Climate Change, Faculty of Natural Sciences*,
<https://doi.org/10.25561/114694>, 2024.
- Kulmala, M.: How particles nucleate and grow, *Science*, 302, 1000–1001.,
<https://doi.org/10.1126/science.1090848>, 2003.
- Kulmala, M., Laaksonen, A., Charlson, R. J., Korhonen, P.: Clouds without supersaturation, *Nature*, 388, 336–337,
<https://doi.org/10.1038/41000>, 1997.

- Laaksonen, A., Korhonen, P., Kulmala, M., Charlson, R. J.: Modification of the Köhler equation to include soluble trace gases and slightly soluble substances, *J. Atmos. Sci.*, 55, 853–862, [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1998\)055<0853:MOTKHE>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1998)055<0853:MOTKHE>2.0.CO;2), 1998.
- Lance, S.: Quantifying compositional impacts of ambient aerosol on cloud droplet formation, Ph.D. thesis, Georgia Institute of Technology, Atlanta, GA., <http://hdl.handle.net/1853/26700>, 2007.
- Merikanto, J., Spracklen, D. V., Mann, G. W., Pickering, S. J., Carslaw, K. S.: Impact of nucleation on global CCN, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8601–8616, <https://doi.org/10.5194/acp-9-8601-2009>, 2009.
- Padró, L., Asa-Awuku, A., Morrison, R., Nenes, A.: Inferring thermodynamic properties from CCN activation experiments: Single-component and binary aerosols, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5263–5274, <https://doi.org/10.5194/acp-7-5263-2007>, 2007.
- Padró, L.: Towards an understanding of the cloud formation potential of carbonaceous aerosol: laboratory and field studies, Ph.D. thesis, Georgia Institute of Technology, Atlanta, GA., <http://hdl.handle.net/1853/31780>, 2009.
- Padró, L., Tkacik, D., Lathem, T., Hennigan, C., Sullivan, A., Weber, R., Huey, L., Nenes, A.: Investigation of CCN relevant properties and droplet growth kinetics of water-soluble aerosol fraction in Mexico city, *J. Geophys. Res.*, 115, <https://doi.org/10.1029/2009JD013195>, 2010.
- Petters, M. D., Kreidenweis, S. M.: A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity. *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1961–1971, www.atmos-chem-phys.net/7/1961/2007/, 2007.
- Petters, M. D., Carrico, C., Kreidenweis, S., Prenni, A., DeMott, P., Collett, J. Jr., Moosmuller, H.: Cloud condensation nucleation activity of biomass burning aerosol. *J. Geophys. Res.*, 114, <https://doi.org/10.1029/2009JD012353>, 2009.
- Pöhlker, M. L., Pöhlker, C., Quaas, J., Mülmenstädt, J., Pozzer, A., Meinrat, O. A., Artaxo, P., Block, K., Coe, H., Ervens, B., Gallimore, P., Gaston, C. J., Gunthe, S. S., Henning, S., Herrmann, H., Krüger, O. O., McFiggans, G., Poulain, L., Raj, S. S., Reyes-Villegas, E., Royer, H. M., Walter, D., Wang, Y., Pöschl, U.: Global organic and inorganic aerosol hygroscopicity and its effect on radiative forcing, *Nat. Com.*, 14, 6139, <https://doi.org/10.1038/s41467-023-41695-8>, 2023.
- Pruppacher, H. R., Klett, J. D.: Microphysics of clouds and precipitation – Second revised and enlarged edition with an introduction to cloud chemistry and cloud electricity, <https://doi.org/10.1023/A:1005304329379>, 2000.
- Ramanathan, V., Crutzen, P.J., Kiehl, J.T., Rosenfeld, D.: Aerosols, climate, and the hydrological cycle, *Science*, 294, 2119–2124., <https://doi.org/10.1126/science.1064034>, 2001.
- Raymond, T. M., Pandis, S. N.: Cloud activation of single-component organic aerosol particles, *J. Geophys. Res.*, 107, 4787, <https://doi.org/10.1029/2002JD002159>, 2002.
- Raymond, T. M., Pandis, S. N.: Formation of cloud droplets by multicomponent organic particles, *J. Geophys. Res.*, 108, 4469, <https://doi.org/10.1029/2003JD003503>, 2003.
- Roberts, G. C., Nenes, A.: A continuous-flow streamwise thermal-gradient CCN chamber for atmospheric measurements, *Aer. Sci. and Tech.*, 39, 206–221, <https://doi.org/10.1080/027868290913988>, 2010.
- Rose, D., Gunthe, S. S., Mikhailov, E., Frank, G. P., Dusek, U., Andreae, M. O., Pöschl, U.: Calibration and measurement uncertainties of a continuous-flow cloud condensation nuclei counter (DMT-CCNC): CCN activation of ammonium sulfate and sodium chloride aerosol particles in theory and experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 1153–1179, <https://doi.org/10.5194/acp8-1153-2008>, 2008.
- Rose, D., Nowak, A., Achtert, P., Wiedensohler, A., Hu, M., Shao, M., Zhang, Y., Andreae, M. O., Pöschl, U.: Cloud condensation nuclei in polluted air and biomass burning smoke near the megacity Guangzhou, China – Part 1: Size-resolved measurements and implications for the modeling of aerosol particle hygroscopicity and CCN activity, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 3365–3383, <https://doi.org/10.5194/acp-10-3365-2010>, 2010.

- Rosenfeld, D., Andreae, M.O., Asmi, A., Chin, M., de Leeuw, G., Donovan, D.P., Kahn, R., Kinne, S., Kivekäs, N., Kulmala, M., Lau, W., Schmidt, K.S., Suni, T., Wagner, T., Wild, M., Quaas, J.: Global observations of aerosol-cloud-precipitation-climate interactions: Aerosol-cloud-climate interactions. *Reviews of Geophysics*, 52, 750–808., <https://doi.org/10.1002/2013RG000441>, 2014.
- Rosenfeld, D., Lohmann, U., Raga, G.B., O'Dowd, C.D., Kulmala, M., Fuzzi, S., Reissell, A., Andreae, M.O.: Flood or Drought: How do aerosols affect precipitation?, *Science*, 321, 1309–1313., <https://doi.org/10.1126/science.1160606>, 2008.
- Salma, I., Barkács, K., Bartholy, J., Kiss, K. T., Pongrácz, R., Reskóné Nagy, M., Sohár, P., Tóth, B.: *Környezetkémia*, Typotex, Budapest, 2012.
- Salma, I., Németh, Z., Weidinger, T., Kovács, B., Kristóf, G.: Measurement, growth types and shrinkage of newly formed aerosol particles at an urban research platform, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 7837–7851, <https://doi.org/10.5194/acp-16-7837-2016>, 2016.
- Salma, I., Thén, W., Vörösmarty, M., Gyöngyösi, A. Z.: Cloud activation properties of aerosol particles in a continental Central European urban environment, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 11289–11302, <https://doi.org/10.5194/acp-21-11289-2021>, 2021.
- Salma, I., Farkas, Á., Weidinger, T., Balogh, M.: Firework smoke: Impacts on urban air quality and deposition in the human respiratory system, *Environ. Pollut.* 328, 121612, <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2023.121612>, 2023.
- Schmale, J., Henning, S., Decesari, S., Henzing, B., Keskinen, H., Sellegri, K., Ovadnevaite, J., Pöhlker, M. L., Brito, J., Bougiatioti, A., Kristensson, A., Kalivitis, N., Stavroulas, I., Carbone, S., Jefferson, A., Park, M., Schlag, P., Iwamoto, Y., Aalto, P., Äijälä, M., Bukowiecki, N., Ehn, M., Frank, G., Fröhlich, R., Frumau, A., Herrmann, E., Herrmann, H., Holzinger, R., Kos, G., Kulmala, M., Mihalopoulos, N., Nenes, A., O'Dowd, C., Petäjä, T., Picard, D., Pöhlker, C., Pöschl, U., Poulain, L., Prévôt, A. S. H., Swietlicki, E., Andreae, M. O., Artaxo, P., Wiedensohler, A., Ogren, J., Matsuki, A., Yum, S. S., Stratmann, F., Baltensperger, U., Gysel, M.: Long-term cloud condensation nuclei number concentration, particle number size distribution and chemical composition measurements at regionally representative observatories, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 2853–2881, <https://doi.org/10.5194/acp-18-2853-2018>, 2018.
- Seinfeld, J.H., Pandis, S.N.: *Atmospheric chemistry and physics – From air pollution to climate change*. Wiley, New York, 2006.
- Shulman, M. L., Jacobson, M. C., Carlson, R. J., Synovec, R. E., Young, T. E.: Dissolution behavior and surface tension effects of organic compounds in nucleating cloud droplets, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 277–280, <https://doi.org/10.1029/95GL03810>, 1996.
- Sihto, S.-L., Mikkilä, J., Vanhanen, J., Ehn, M., Liao, L., Lehtipalo, K., Aalto, P. P., Duplissy, J., Petäjä, T., Kerminen, V.-M., Boy, M., Kulmala, M.: Seasonal variation of CCN concentrations and aerosol activation properties in boreal forest, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 13269–13285, <https://doi.org/10.5194/acp-11-13269-2011>, 2011.
- Svenningsson, B., Rissler, J., Swietlicki, E., Mircea, M., Bilde, M., Facchini, M. C., Decesari, S., Fuzzi, S., Zhou, J., Monster, J., Rosenorn, T.: Hygroscopic growth and critical supersaturations for mixed aerosol particles of inorganic and organic compounds of atmospheric relevance, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1937–1952, <https://doi.org/10.5194/acp-6-1937-2006>, 2006.
- Weber, K., Vogel, A., Fischer, C., van Haren, G., Pohl, T.: Airborne measurements of the Eyjafjallajökull volcanic ash plume over North-Western Germany with a light aircraft and an optical particle counter – first results, *Lidar Technologies, Techniques, and Measurements for Atmospheric Remote Sensing VI*, 7832, <https://doi.org/10.1117/12.869629>, 2010.
- Wex, H., Hennig, T., Salma, I., Ocskay, R., Kiselev, A., Henning, S., Massling, A., Wiedensohler, A., Stratmann, F.: Hygroscopic growth and measured and modeled critical supersaturations of an atmospheric HULIS sample, *Geophys. Res. Lett.*, 34, <https://doi.org/10.1029/2006GL028260>, 2007.