

——— Tudományos Diákköri Dolgozat ———

NÉMETH ZOLTÁN

Vegyész MSc II. évfolyam

Légekőri nukleáció városi környezetekben

Témavezető:

Dr. Salma Imre, egyetemi tanár

ELTE TTK, Kémiai Intézet
Analitikai Kémiai Tanszék



——— Eötvös Loránd Tudományegyetem ———
——— Természettudományi Kar ———
—— Budapest, 2011 ——

Tartalomjegyzék

1. Bevezetés és célkitűzések	3
2. Új aeroszol részecskék keletkezése és növekedése	5
2.1 A légköri nukleáció és feltételei	5
2.2 Keletkezési sebesség	7
2.3 Kondenzációs növekedés.....	8
2.4 Koaguláció.....	9
3. Módszerek	11
3.1 Differenciális mobilitás részecskeszeparátor	11
3.2 Mérési helyszínek és időszakok.....	13
4. Eredmények és megvitatásuk.....	16
4.1 Légköri koncentrációk.....	16
4.2 Méreteloszlások időváltozása	19
4.3 Méreteloszlások osztályozása	22
4.4 Nukleációs gyakoriság.....	24
5. Összefoglalás és további tervek	26
6. Irodalomjegyzék	28
7. Köszönetnyilvánítás	31

1. Bevezetés és célkitűzések

Aeroszoknak nevezzük a levegőben elosztatott szilárd és folyékony részecskék rendszerét. A részecskék átmérője a néhány nanométeres tartománytól mintegy 100 μm -ig terjed. Elvi és gyakorlati okok miatt az aeroszol részecskéket három csoportra célszerű osztani: durva ($d > 2,5 \mu\text{m}$), finom ($d < 2,5 \mu\text{m}$) és ultrafinom ($d < 100 \text{ nm}$) részecskékre (Raes et al., 2000). Az első két csoport tulajdonságairól és hatásairól viszonylag sok ismerettel rendelkezünk, míg az ultrafinom részecskék eddig a háttérben maradtak (Fuzzi et al., 2006). A légköri ultrafinom aeroszol részecskék természetes és antropogén úton is keletkeznek (Holmes, 2007). Fő természetes képződési folyamatuk a légköri nukleáció. Antropogén forrásaik főleg magashőmérsékletű folyamatokból származó, közvetlen emissziót foglalnak magukba. Legfontosabbak a közúti közlekedés, a háztartási fűtés, a tüzelés és a hulladékégetés. Az utóbbi években kiderült, hogy az ultrafinom aeroszoknak nagyon fontos éghajlati szerepe és egészségügyi hatásai vannak (Ramanathan et al., 2001; Kulmala et al., 2004; IPCC, 2007).

Az aeroszol leginkább a felhőkondenzációs magvakon (CCN, Cloud Condensation Nuclei) keresztül alakítja a Föld éghajlatát. A feláramló levegő lehűl, és a benne található vízgőz túltelítetté válik. A vízgőz aeroszol részecskék felületére kondenzálódik, és cseppek jönnek létre. Ha nincsenek jelen aeroszol részecskék (vagy elektromos töltések) a levegőben, akkor a túltelítettség önmagában nem eredményez felhőket. Kondenzációs magvaként főleg a 100–200 nm átmérőjű részecskék hatásosak, de ezek csaknem fele nukleáció utáni növekedéssel alakul ki (Merikanto et al., 2009). A felhők jelentős mértékben (22%-ban) visszaverik a napfényt az űrbe (IPCC, 2007), ami fontos szerepet játszik a Föld energiamérlegében. A Föld légkörében lévő vízgőz teljes mennyisége lényegében állandó, de az ultrafinom aeroszol részecskék száma jelentősen nőhet - például az emberi tevékenység hatására. Ilyenkor az állandó mennyiségű vízgőzből sokkal több felhőcsepp alakul ki, ami azt jelenti, hogy a cseppek mérete kisebb, számuk pedig nagyobb lesz. Az ilyen felhők egyrészt jobban visszaverik a napsugárzást („fehérebbek”), másrészt az átlagos élettartamuk hosszabb, tehát a fényvisszaverő hatásukat is hosszabb ideig fejtik ki. A kisebb cseppeket tartalmazó felhőkből ráadásul ritkábban hullik csapadék, mert a sok csepp nem tud kellően nagyra nőni a vízpára korlátozott mennyisége miatt ahhoz, hogy távozzon a levegőből. Az aeroszol részecskék tehát egyrészt befolyásolják a víz körforgását, másrészt hűtő hatásúak.

Ezzel komolyan ellensúlyozzák az üvegházhatású gázok melegítő hatását, és hozzájárulnak az elérhető éghajlat fenntartásához és szabályozásához (Borsós és Salma, 2011).

Az ultrafinom aeroszol egészségügyi többletkockázatot is jelenthet az emberre a durva és finom részecskékkel összehasonlítva. A részecskék légzéssel kerülnek a tüdőbe, ahol kiülepedhetnek. Egynapi belélegzett térfogat egészséges felnőtt esetén tipikusan 20 m^3 levegőt jelent, amely 100 milliárd nagyságrendű részecskét tartalmaz városokban. A légzőszervek védekező mechanizmusai (pl. a falósejtek) nem tudnak ilyen nagyszámú idegen anyagot hatásosan eltávolítani a tüdőből. A legkisebb, néhány nanométer nagyságú részecskék ráadásul átjuthatnak a sejtmembránon is, bekerülhetnek a vérkeringésbe, amely egyrészt elszállítja őket szervezetünk más, érzékeny részeibe (például a központi idegrendszerbe, csontvelőbe), másrészt a részecskék megváltoztathatják a vér bizonyos tulajdonságait, például az alvadékonyságot (Oberdörster et al., 2005; JRC-EASAC 64792, 2011). Mindezeknek súlyos egészségügyi következményei lehetnek. Az ultrafinom részecskék nagy fajlagos felülettel rendelkeznek, ezáltal a szervezetben katalizátorként viselkedhetnek, és elősegíthetik az oxidatív stressz kialakulását. Az aeroszol részecskék felületén kémiai reakciók játszódhatnak le és gyökök keletkeznek, melyek képesek a fehérjéket oxidálni, a lipideket peroxidálni, a DNS szerkezetét megváltoztatni. In vivo létrejöhetnek reaktív oxigéntartalmú részecskék (ROS, reactive oxygen species), melyek képesek befolyásolni a szervezet redoxi folyamatait, külön tekintettel a mitokondrium működésére (Brown et al., 2000, 2001).

A légköri nukleáció és az ultrafinom részecskék közvetlen emissziója között kapcsolatrendszer létezik. A kölcsönhatások városokban markánsan jelentkeznek. Az összefüggések és a fent említett hatások jobb megértése miatt szükséges a képződési típusok elkülönítése, ami a részecskék méreteloszlása időváltozásának tanulmányozásával megvalósítható. Mindezek érdekében méréseket végeztünk Budapest négy, eltérő típusú (városi háttér, belváros, utcakanyon, közlekedési) környezetében. Személyes feladatom a városi háttérben és az utcakanyonban végzett kísérleti/terepi munkában való részvétel és a mérések felügyelete, a mért adatok feldolgozása, kiértékelése, és az egyes környezetekre vonatkozó tulajdonságok összehasonlítása volt. Munkám részét képezi az ELTE Kémiai Intézetben folyó aeroszol kutatásoknak.

2. Új aeroszol részecskék keletkezése és növekedése

Az ultrafinom aeroszol részecskék 100 nm-nél kisebb (elektromos mobilitási) átmérővel rendelkeznek. Ezen részecskék magashőmérsékletű emisszióval vagy nukleációval keletkeznek. A gépjárművek tipikusan 20–100 nm közötti átmérőjű részecskéket emittálnak (Ristovski et al., 1998; Shi és Harrison, 1999; Wåhlin et al., 2001), míg a fűtési és égetési folyamatokban 35–100 nm átmérőjű részecskék jönnek létre (Qian et al., 2007; Salma et al., 2011a). Nukleációval keletkező részecskék átmérője a lehető legkisebb, 1,5 nm körüli. A természetes és antropogén források elkülönítése az új részecske-képződés tanulmányozásával végezhető, ezért a továbbiakban elsősorban ezzel foglalkozok.

2.1 A légköri nukleáció és feltételei

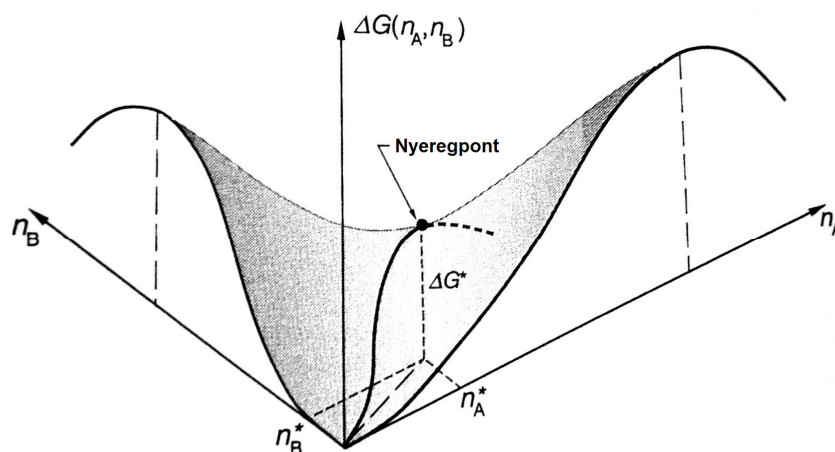
Légköri nukleációnak nevezzük azt az elsőrendű fázisátmenetet (légnemű-folyadék vagy légnemű-szilárd fázisváltás), amikor homogén, légnemű légköri összetevők (SO_2 , VOC: Volatile Organic Compounds, illékony szerves vegyületek) fotokémiai oxidációjával kisebb egyensúlyi gőznyomású, tehát kondenzációra képes gőzök (pl. H_2SO_4) keletkeznek, és ezek további légköri összetevőkkel (H_2O , NH_3 , NH_2R , NHR_1R_2 , VOC) kölcsönhatva szilárd vagy folyékony fázis megjelenését, vagyis új aeroszol részecskéket eredményeznek. A folyamat megvalósulásának kedvez, ha nagy az elővegyületek koncentrációja, erős a napsugárzás, illetve kicsi a rendelkezésre álló felület a versengő kondenzációs folyamat részére, melyet kondenzációs nyelőnek nevezünk.

A szakirodalomban több légköri nukleációs elmélet létezik. A legegyszerűbb, homogén homomolekuláris nukleáció esetén a folyamat szabadentalpia-változása (ΔG) felírható az alábbi alakban (Seinfeld és Pandis, 1998):

$$\Delta G = -\frac{4}{3}\pi R_p^3 \frac{kT}{v_l} \ln S + 4\pi R_p^2 \sigma, \quad (1)$$

ahol R_p a részecske sugara, $S=p_A/p^\circ_A$ a telítettség mértéke, v_l a folyadék parciális moláris térfogata, σ a részecske felületi feszültsége, k a Boltzmann-állandó, T az abszolút hőmérséklet, p_A a gáz parciális nyomása, p°_A a gáz egyensúlyi gőznyomása. A kifejezés első tagja a kémiai potenciált, míg a második tag a határfelületi energia változását fejezi ki.

Túltelítettség esetén ($S>1$) az egyenlet jobb oldalának első tagja nullánál kisebb és a sugár harmadik hatványával csökken, míg a második tag nullánál nagyobb és a sugár második hatványával nő. Ennek következtében létezik egy kritikus átmérő, amelynél $\Delta G=0$, vagyis az ettől nagyobb részecske, molekulaklaszter képes spontán módon ($\Delta G<0$) növekedni. A kritikus méret függ az érintett anyag termodinamikai tulajdonságaitól (σ , v_l), és csökken a telítettség mértékével. Homogén bimolekuláris nukleáció (Kulmala és Laaksonen, 1990) esetén a folyamat szabadentalpia-változását az 1. ábrán mutatom be.



1. ábra: Kétkomponensű rendszer szabadentalpia-változása homogén nukleáció során

Homogén bimolekuláris nukleáció abban az esetben lehetséges, ha mindkét komponens - a légkörben jellemzően a $\text{H}_2\text{O}-\text{H}_2\text{SO}_4$ elegy - túltelítetté válik oldatuk gőznyomásához viszonyítva. Ez sokkal gyengébb feltétel a homogén homomolekuláris nukleációhoz képest. A modell jól közelíti az aeroszol részecskék képződési sebességét a troposféra felső részében, de az alsó troposzférában alkalmazhatósága korlátozott. A legfontosabb légköri homogén ternális nukleáció a $\text{H}_2\text{O}-\text{H}_2\text{SO}_4-\text{NH}_3$ rendszerben játszódik le (Korhonen et al., 1999; Kulmala et al., 2000). A modell jól alkalmazható a szennyezett keveredési rétegben. Ion-indukált nukleáció esetén egy ion más részecskékkel klasztert formál, és ez teszi előnyössé a nukleációt (Arnold, 1980; Yu és Turco, 2000). Ilyen környezet lehet a tengerparti levegő, ahol a tengervízből származó jodid-ion játszik szerepet a klaszter létrejöttében (Kathmann et al., 2005). Kinetikus modell esetén ammónia és kénsav gőzök egyszerre kondenzálódnak kevésbé illékony szerves vegyületek jelenlétében, ezáltal jön létre a növekedésre képes klaszter (Laakso et al., 2004). Vizsgálták a kozmikus sugárzás hatását is az újrészecske-képződés folyamatára (Kirkby et al., 2011). A nukleáció során az új aeroszol részecskék

létrejöttének sebességét érzékenyen befolyásolja a légkörben jelenlévő aminok (NH_2R , NHR_2) és VOC-k koncentrációja (O'Dowd et al., 2002; Zhang et al., 2004). Adott meteorológiai paraméterek mellett a keletkezési sebesség akár az ezerszeresére is nőhet az említett gázok vagy gőzök jelenlétében (Kirkby et al., 2011).

Fontos tudatosítanunk azonban, hogy a nukleációs elméleteknek elvi korlátai is vannak. Termodinamikai megközelítés szempontjából a kritikus klaszter létrejöttében túl kevés molekula vesz részt, míg kvantumkémiai szempontból túl sok molekulával (többtest-problémával) állunk szemben.

2.2 Keletkezési sebesség

A nukleáció során a fázisváltás miatt új részecskék jönnek létre. Az aeroszol részecskék keletkezési sebessége kifejezhető az általános dinamikai egyenlet alapján, amely diszkrét reprezentációban kifejezhető a következő alakban (Seinfeld és Pandis, 1998):

$$\frac{dN_k}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{k-1} K_{j,k-j} N_j N_{k-j} - N_k \sum_{j=g}^{\infty} K_{k,j} N_j + p_{k-1} N_{k-1} - (p_k + \gamma_k) N_k + \gamma_{k+1} N_{k+1} + J_0(t) \delta_{g^*,k} + S_k - R_k \quad (2)$$

Az egyenlet jobb oldalának első tagja a koaguláció által létrejött részecskék számát, második tagja a koaguláció miatti veszteséget fejezi ki, ahol N_k a k monomert tartalmazó aeroszol részecskék száma egységnyi térfogatban, és K az összetapadó részecskék számát írja le. A harmadik, negyedik és ötödik tag a kondenzáció és párolgás során létrejövő részecskeszám-változást írja le, ahol p_k a részecske és k -mer ütközésének gyakorisága, γ a k -merből kilépő részecskék aránya. A homogén nukleációban létrejövő aeroszol részecskék keletkezési sebességét J_0 jelöli, g^* a részecskék száma a kritikus méretű klaszterben, míg δ értéke a monomer méretétől függően 0 vagy 1. Az utolsó két tag a nukleáció mérettartományában lévő részecskék egyéb emissziós forrásait (S_k) és nyelőit (R_k) fejezi ki. A koaguláció miatti részecskeszenökedés elhanyagolható mértékű a kondenzációs folyamat mellett. Elhanyagolható mértékű még a néhány nm-es mérettartományban lévő aeroszol részecskék egyéb forrásai és nyelői, az ionok által vezérelt kondenzáció mértéke, továbbá a közel azonos méretű aeroszol részecskék koagulációja és a részecskék felületén lejátszódó kémiai reakciók is. Ennek eredményeként a kifejezés a következő egyszerűbb alakra hozható (Dal Maso et al., 2002):

$$\frac{\partial n(d_p, t)}{\partial t} = -n(d_p, t) \text{CoagS}(d_p, t) - \frac{\partial}{\partial d_p} \left[\frac{dd_p}{dt} n(d_p, t) \right] + J(d_p) \delta(d_p - d_{p0}), \quad (3)$$

ahol a három tag a koagulációt, kondenzációt és nukleációt írja le. A tárgyalás során a légköri rétegek függőleges keveredését és az advekciót elhanyagoljuk. Az alkalmazott mérési rendszer alsó mérési korlátja 6 nm, ezért a mérési rendszerünkhöz igazodva $J_d = J_6$, továbbá a keletkezési sebesség számításakor figyelembe vett tartomány: 6–25 nm. 25 nm-nél nagyobbra ugyanis ritkán nőnek meg a részecskék úgy, hogy ne fejeződne be az újrészecske-képződés.

2.3 Kondenzációs növekedés

Ha egy részecske a nukleáció során létrejött, akkor a felszínével folyamatosan ütköznek környezetének molekulái. A molekulák a részecskére kondenzálódhatnak, ezáltal a részecske mérete nő. Ha a csepp nincs egyensúlyban a környező gázfázissal, mind párolgás, mind kondenzáció történhet. Aeroszol részecskék növekedésének fő mechanizmusa a kondenzáció. A folyamat hajtóereje a koncentráció-különbség a csepp felszíne és attól távolabbi térrész között, mely az alábbi egyenlettel írható le (Hinds, 1982):

$$\frac{d(d_p)}{dt} = \frac{4D_i M}{\rho d_p} \beta_M (c_\infty - c_d), \quad (4)$$

ahol d_p a részecske átmérője, t az idő, M és D_i a kondenzáló részecske moláris tömege és diffúziós együtthatója levegőben, c_d és c_∞ a koncentráció a részecske felszínének közelében és attól messze, ρ a részecskék sűrűsége és β_M egy korrekciós faktor, mely a kisebb és nagyobb részecskék közötti, mechanizmusbeli különbséget veszi figyelembe. A korrekciós faktor leírásához bevezethetjük a Knudsen-számot (Hinds, 1982):

$$Kn = \frac{2\lambda}{d_p}, \quad (5)$$

ahol λ a kondenzálódó gáz közepes szabad úthossza levegőben. Ha $Kn < 1$, akkor folyamatos rezsimről beszélünk, és ekkor a gáz molekuláit diszkrét entitásoknak tekinthetjük a részecskék szempontjából. Ha $Kn \gg 1$, akkor szabad molekuláris rezsimről beszélünk. Ebben az esetben a gázt folyamatos közegnek tarthatjuk a részecskék szemszögéből. $Kn \sim 1$ esetén átmeneti rezsimről van szó, melyben a szabad molekuláris és folyamatos rezsim tulajdonságai egyaránt érvényesülnek. Ennek ismeretében a korrekciós faktor kifejezhető az alábbi formában (Fuchs és Sutugin, 1971):

$$\beta_M = \frac{1 + Kn}{1 + \left(\frac{4}{3\alpha} + 0,337\right)Kn + \frac{4}{3\alpha}Kn^2}, \quad (6)$$

ahol α annak a valószínűsége, hogy a részecskék ütközés után összetapadva együtt maradnak. A kondenzáció folyamata szabályozott laboratóriumi körülmények között ismert, a légkörben azonban a kondenzálódó gőzök és azok aktuális koncentrációi gyakran ismeretlenek, és ezért a növekedés meghatározása nehézséget jelent.

2.4 Koaguláció

Koagulációnak nevezzük azt a folyamatot, amikor az aeroszol részecskék a levegőben mozogva véletlenszerűen ütköznek egymással és összetapadnak. Ennek következtében a részecskék mérete megnő, számuk pedig csökken. A koaguláció mértéke függ a részecskék koncentrációjától és a koagulációs hatékonyságtól, ami az ütköző részecskék relatív sebességének és az ütközési hatáskeresztmetszetüknek a függvénye. A részecskék mozgását több tényező is okozza: a gravitáció okozta ülepedés, turbulencia, de az ultrafinom aeroszol részecskék esetében a legfontosabb a Brown-mozgás. Két részecske esetén a koaguláció hatékonyságát a koagulációs együttható írja le (Hinds, 1982):

$$K(u, v) = \frac{K_C}{\frac{r_{uv}}{r_{uv} + \sigma_{uv}} + \frac{4D_{uv}}{C_{uv} * r_{uv}}}, \quad (7)$$

ahol D_{uv} a két részecskéből álló aeroszol diffúziós együtthatója, $\bar{c}_{uv}$ a sebességük, r_{uv} a részecske sugara, σ_{uv} az ütközési hatáskeresztmetszet és K_C a koagulációs együttható. A folyamatos tartományban (Hinds, 1982):

$$K_c = 4\pi \times r_{uv} D_{uv} \cdot \quad (8)$$

A koagulációs elmélet egyik általános megállapítása, hogy akkor leghatékonyabb a folyamat, ha a termikusan lassabban mozgó, tehát nagyobb (és ezért nagyobb felülettel rendelkező) részecskék, és a nagyobb termikus sebességgel mozgó, tehát kisebb (ezért nagyobb diffúziós együtthatójú) részecskék ütköznek össze. Leggyakrabban a koaguláció határozza meg, hogy a frissen nukleálódott részecskék elérik-e a detektálható mérettartományt vagy megszűnnek.

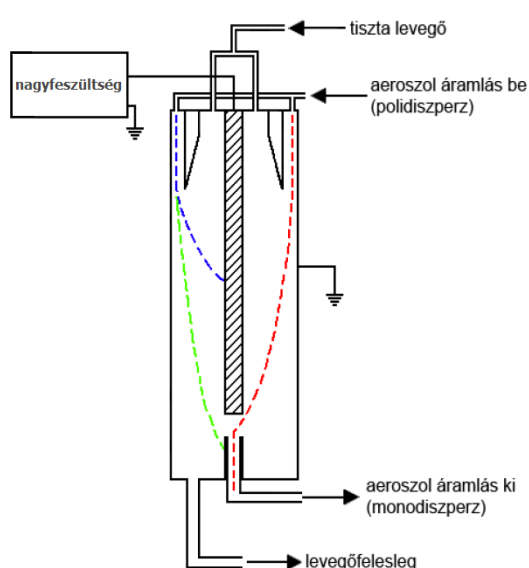
3. Módszerek

Az ultrafinom aeroszol részecskék méreteloszlásának meghatározásához a korábbiakban általánosan használt, aerodinamikai elvek helyett elektrosztatikai elveken alapuló mérőrendszer szükséges a részecskék rendkívül kis mérete miatt (McMurry, 2000). Kutatómunkánk során differenciális mobilitás részecskeszeparátort (DMPS, Differential Mobility Particle Sizer) alkalmaztunk.

3.1 Differenciális mobilitás részecskeszeparátor

A mérőrendszer három fő egységből áll. A levegő egy 6 mm belső átmérőjű rézcsövön halad keresztül előszeparátor nélkül a neutralizáló felé. A differenciális veszteség nem függ a cső átmérőjétől (Hinds, 1982). A beáramló levegő először egy neutralizálón halad keresztül, melynek feladata, hogy az aeroszol részecskék elektromos töltését egyensúlyi (Boltzmann-) töltéseloszlásra hozza. Egy radioaktív sugárforrás - esetünkben ^{241}Am - ionizálja a levegő molekuláit, melyek az aeroszol részecskékkal ütközve egyensúlyi töltéseloszlást eredményeznek. A részecskék innen a differenciális mozgékonyság analizátorba (DMA, Differential Mobility Analyser) kerülnek. A DMA elektromos mozgékonyságuk alapján szétválogatja az aeroszol részecskéket. Az elektromos mozgékonyság definíciója (Hinds, 1982):

$$Z = \frac{ezC_c}{3\pi\eta d}, \quad (9)$$

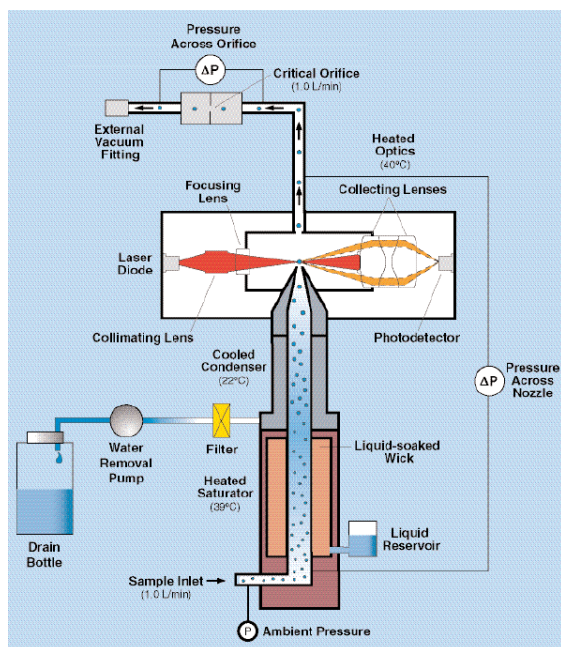


2. ábra: A DMA vázlatos felépítése

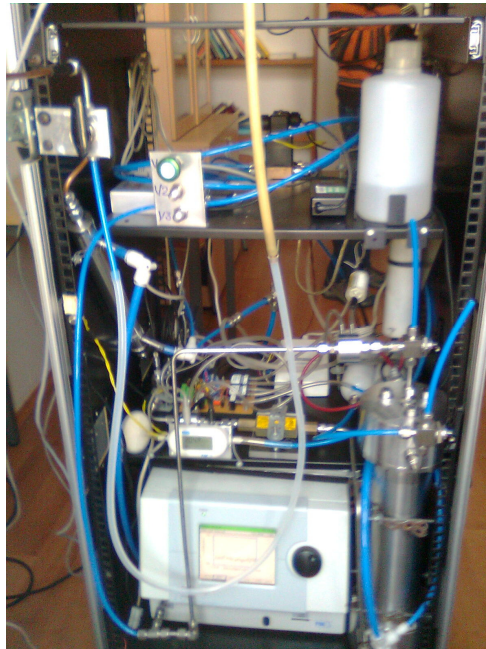
ahol d a részecske átmérője, η a közeg dinamikus viszkozitása, e az elemi elektromos töltés, z a részecske töltése, és C_c a Cunningham-faktor. A DMA készülék vázlatos felépítését a 2. ábrán mutatom be. A mérés során egy 28 cm hosszú Hauke-típusú DMA-t használtunk. A belső elektród körül nagytisztaságú, részecskéket nem tartalmazó levegő áramlik. A külső palástnál vezetjük be az aeroszolt. Az alkalmazott nagyfeszültségnek megfelelő elektromos mozgékonyságú részecskék bejutnak az elektródon lévő résen, és távoznak a

detektor felé. A nagyfeszültséget lépésekben változtatva - esetünkben 30 lépésben, 10 V és 10 kV között - különböző átmérőjű részecskéket szeparálhatunk. A résen áthaladó aeroszol már monodiszperznek tekinthető.

A DMA-ból a részecskék a kondenzációs részecskeszámlálóba jutnak (CPC, Condensation Particle Counter), melynek vázlatos felépítése az 3. ábrán látható. A CPC működési elve a lézervény szórásán alapul. A módszernek alsó elvi határt szab a részecskék átmérőjének és a fény hullámhosszának a viszonya. Annak érdekében, hogy a legkisebb részecskéket is detektálhassuk a szórás alapján, szükség van a részecskék megnövesztésére. Ezt egy segédgőz kondenzációjával érjük el. Esetünkben a részecskék egy butanollal telített, 39°C-ra fűtött térbe jutnak. Ezután továbbhaladnak egy 29°C-ra hűtött kondenzátorba, ahol a butanol kondenzálódik a részecskékre, így méretük kondenzáció révén megnő és mindegyik detektálható méretűvé válik. Egy kollimált lézernyalábra merőlegesen vezetjük tovább a mintát, ami szórja a lézervényt, és a szórt fény intenzitását egy fotodetektorral mérjük. A szórt fény detektálása alapján határozzuk meg a részecskék számát. A mérésre TSI 3775 (US) típusú, n-butanollal működő CPC-t használtunk.



3. ábra: A CPC vázlatos felépítése



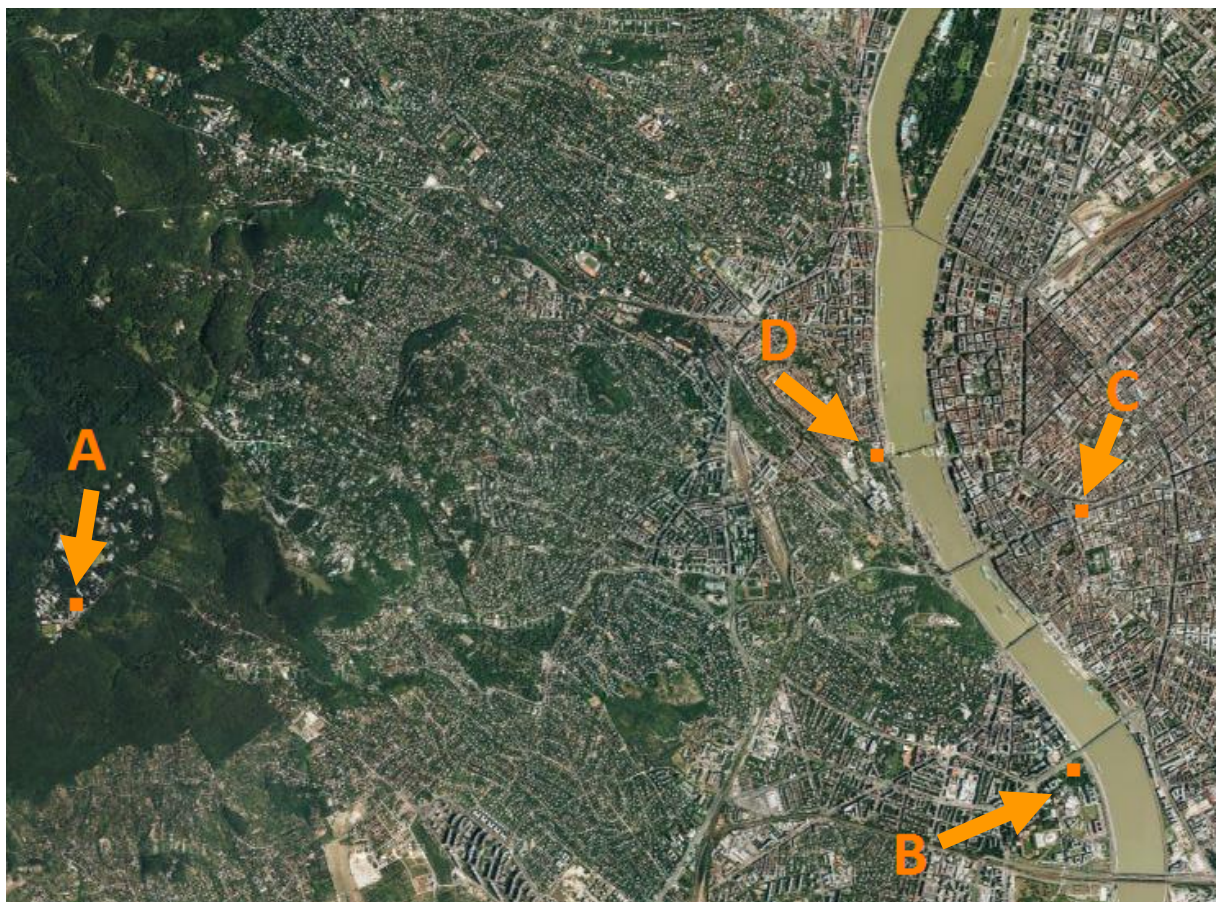
4. ábra: A DMPS előlnézeti képe

A DMPS előlnézeti képét a 4. ábrán mutatom be. A rendszert egy számítógép vezérli. Egy teljes méreteloszlás felvétele a 6–1000 nm tartományban körülbelül 10 percig tart.

Méreteloszlás mérésekor az áramlások tipikus értékei: az aeroszol esetén 20 és 3 liter/perc, míg a részecskementes levegő esetén 2 és 0,3 liter/perc. A műszert összeszerelésekor latex részecskékkal kalibrálták. A DMPS működését összehasonlítottuk egy azonos típusú CPC-vel adathitelesítési céllal. A teljes részecske-koncentráció különbség 5%-nál kisebb volt, melyet a gyártó azonos műszerek esetén hitelesnek minősít. Az áramlások és a feszültség rendszeres ellenőrzésére és beállítására van szükség a helyes működés érdekében, melyet mérési kampányok kezdetekor és a mérések során körülbelül hetente elvégzünk.

3.2 Mérési helyszínek és időszakok

Mérési kampányok folyamán a DMPS rendszer folyamatosan működött napi 24 órában. Budapest 4 különböző környezetében végeztünk méréseket, melyek az 5. ábrán jelöltem.



5. ábra: Mérési helyszínek

A mérési helyszínek részletes jellemzése az 1. táblázatban található.

1. táblázat: A mérési kampányok áttekintése

Jel	Mérés helye	GPS-koordináták	Környezet típusa	Mérés ideje
A	KFKI Telephely	N 47° 29' 12.50" E 18° 57' 17.71"	Városi háttér	2011. 06. 01 – 08. 10.
B	ELTE Lágymányosi Campus	N 47° 28' 25.22" E 19° 03' 48.65"	Belvárosi nyílt tér, Duna-part	2008. 11. 03 – 2009. 11. 02.
C	ELTE, Rákóczi út 5.	N 47° 29' 39.36" E 19° 03' 36.30"	Belváros, utcakanyon	2011. 03. 28 – 06. 01.
D	Várhegy-alagút	N 47° 29' 54.49" E 19° 02' 24.57"	Közlekedési mikrokörnyezet	2010. 07. 12 – 07. 26.

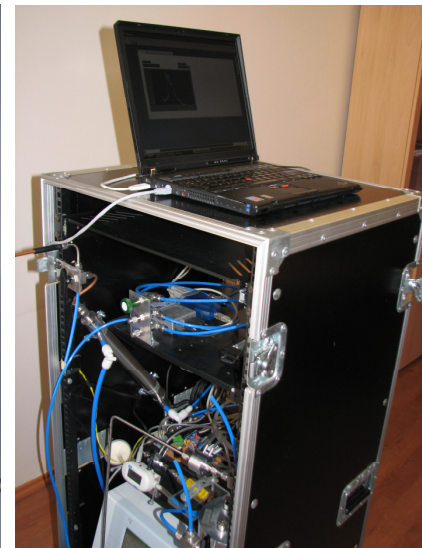
A 6a–6e. ábrákon a mérési helyszínekről készült képeket mutatom be. Minden mérési helyszínen látható a rendszer elhelyezkedése és a mintavételi cső.



6a. ábra: A mérési helyszín és a DMPS látképe a KFKI Telephelyen



6b. ábra: A mérési helyszín és a DMPS látképe a Lágymányosi Campuson



6c. ábra: A mérési helyszín és a DMPS látképe a Rákóczi út 5. szám alatt



6d. ábra: A mérési helyszín és a DMPS látképe a Várhegy-alagútban

4. Eredmények és megvitatásuk

A DMPS vezérlő számítógépe a mérési adatokat fájlokba rendezi. Minden mérési naphoz 3 fájl tartozik. Ezek tartalmazzák a részecskék átmérőjét, koncentrációját, és a segédparamétereket, például hőmérsékletet, áramlási értékeket, relatív páratartalmat. A mért adatok MatLab szkripttel történő invertálása után kapjuk meg a spektrumot: 6–1000 nm közötti átmérőintervallumban, 30 csatornában mért normalizált részecskeszám koncentrációkat. Egy spektrum felvétele mintegy 10 percig tart. A mérési kampányok során felvett spektrumok becsült számát a 2. táblázatban foglaltam össze.

2. táblázat: A feldolgozott spektrumok becsült száma

Mérési helyszín	Spektrumok száma
Városi háttér	8 550
Belváros	47 740
Utcakanyon	8 410
Alagút	1 930
Összesen	66 630

4.1 Légtörő koncentrációk

A spektrumokból különböző átmérőtartományban mért részecskék számának koncentrációja megkapható. Közülük az összes részecske számának a koncentrációját és az ultrafinom részecskék számának a koncentrációját határoztam meg. A különböző budapesti környezetekre vonatkozó, összes részecskeszám koncentráció medián értékét a 3. táblázatban foglaltam össze.

3. táblázat: Az aeroszol részecskék számának napi medián koncentrációja 10^3 cm^{-3} egységben

	Városi háttér	Belváros	Utcakanyon	Alagút
Medián	4,3	11,8	23	143

A városi háttértől a város központja, vagyis a növekvő gépjármű-forgalom felé haladva a részecskék koncentrációja monoton módon nő. Az Alagútban mint zárt térrészben extrém nagy koncentrációt tapasztaltunk, melyet a mikrokörnyezet sajátosságai és a fokozott gépjármű-emisszió együtt okoz. A 4. táblázatban az ultrafinom részecskék koncentrációját tüntettem fel.

4. táblázat: Az ultrafinom részecskék koncentrációjának tartománya, napi átlaga és szórása, valamint a legnagyobb mért egyedi érték 10^3 cm^{-3} egységben

	Városi háttér	Belváros, Duna-part	Belváros, utcakanyon	Alagút
Minimum	1,25	2,7	4,9	3,7
Maximum	10,1	20	41	392
Átlag	3,6	10,2	22	134
Szórás	2,1	3,5	9,2	8,0
Legnagyobb mért érték	80	244	353	465

Az ultrafinom részecskék minimum és maximum koncentrációja közötti különbség a különböző környezetekben rendre 8–szoros, 7–szeres, 8–szoros és 106–szoros. Ez a környezetek közötti meteorológiai paraméterekkel és sajátosságokkal, valamint a gépjármű-emisszió intenzitásának változásával magyarázható. A koncentrációk átlaga monoton módon nő a belváros és a növekvő gépjármű-emisszió felé haladva, és 37–szeres különbséget tapasztaltunk a városi háttér és a zárt közlekedési mikrokörnyezet között. Az Alagútban az áthaladás körülbelül 10 percet vesz igénybe, ezért relevánsabb a legnagyobb mért adat (10 perces felbontásban mért legnagyobb érték), ami maximálisan $465 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ részecske volt. Ez a részecske expozíció egy átsétálás alatt összemérhető kb. 1 óra 15 perc belvárosi séta alkalmával kapott expozícióval. Ez egyértelműen egészségügyi többletkockázatot jelent az Alagútban tartózkodókra nézve.

5. táblázat: Az ultrafinom részecskék járuléka a teljes koncentrációhoz

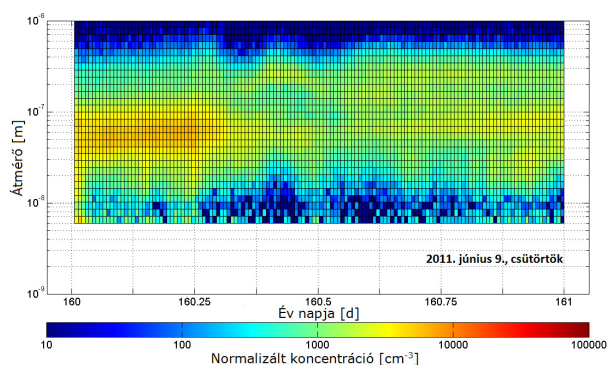
	Városi háttér	Belváros, Duna-part	Belváros, utcakanyon	Alagút
Minimum	0,56	0,58	0,80	0,61
Maximum	0,93	0,92	0,95	0,98
Átlag	0,76	0,79	0,86	0,85
Szórás	0,09	0,06	0,03	0,02

Budapest levegőjében lévő összes aeroszol részecske számának igen nagy, döntő hányadát (76–86%) az ultrafinom részecskék képezik. Ennek komoly egészségügyi hatásai lehetnek. A koncentrációk közötti nagy különbség ellenére az ultrafinom részecskék járuléka ugyan monoton módon nő a városközpont felé haladva, de a változás meglehetősen mérsékelt. A változás a háttérkörnyezethez viszonyítva csupán 13%. A járulék minden esetben nagyobb volt 50%-nál, átlagosan 82%, míg az Alagútban elérte a 98%-ot is. Ennek oka egyrészt a gépjármű-emisszió (ami a belvárosban dominál), másrészt a légköri nukleáció (mely a városi háttérben markáns), melyek eltérő mechanizmusuk ellenére - a járulékot tekintve - nagyon hasonló következménnyel járnak. A mikrometeorológiai paramétereknek is befolyása van egyes környezetekben. Az Alagútban a zárt térrész, a nagy emissziós forrás miatt a részecskék száma megnő. Az utcakanyonba a szélirány megváltozásával tisztább légtömeg jut be. Az ultrafinom részecskék járulékának változása nagyobb a belváros és a városi háttér között (6–szoros), mint a PM₁₀ tömeg esetében (3–szoros) (Salma et al., 2001).

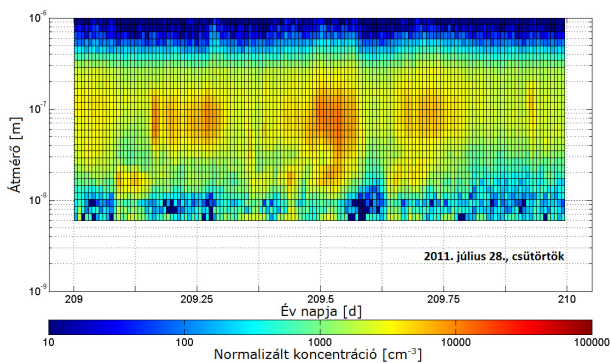
A részecskék koncentrációját összehasonlítottam korábbi, európai városokban mért adatokkal (Putaud et al., 2010). A részecskék koncentrációja Délnyugat- és Közép-Európában átlagosan 40.000 cm⁻³ forgalmas városi környezet esetén, míg Budapesten ez az érték 22.000 cm⁻³, mely alapján az utcakanyon enyhén szennyezett városi környezetnek tekinthető. A többlet egészségügyi kockázat ellenére a részecskeszám koncentráció nincs szabályozva egyetlen országban sem, így az Európai Unióban és Magyarországon sem.

4.2 Méreteloszlások időváltozása

A mérési adatok megjelenítése során előnyös egyszerre ábrázolni a részecskék átmérőjét, számát és az időt. Az így kapott kontúrgörbe az egyik leggyakrabban használt háromdimenziós megjelenítési mód. Az abszcisszán az idő, az ordinátán a részecskék átmérője található. Színkód jelöli a részecskék (a mérési rendszer csatornaszélességére) normalizált koncentrációját. A mérési spektrumok osztályozásakor néhány tipikus kontúrgörbét figyelhetünk meg, melyek alakja mind természetes, mind antropogén okokra visszavezethető. Ugyanakkor az Aitken-módus részecskéinek ($10\text{ nm} < d < 100\text{ nm}$) tartózkodási ideje kevesebb, mint 1 óra, ezért a koncentrációk változását közvetlen kapcsolatba lehet hozni a források intenzitásával.

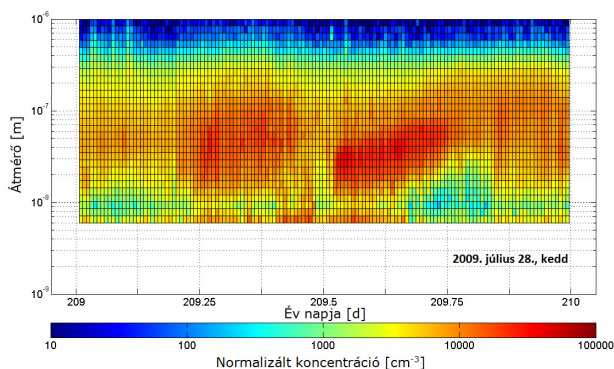


7. ábra: Viszonylag tiszta levegőjű nap
városi háttérben

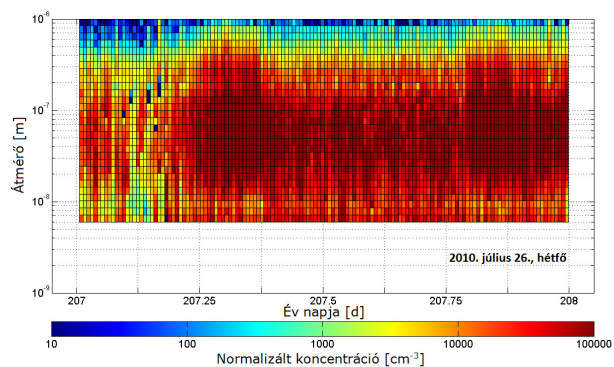


8. ábra: Tüzeléses emissziós források
a városi háttérben

A 7. ábrán látható, hogy a városi háttérben 2011. június 9-én, csütörtökön általában és egész nap kicsi volt a részecskék koncentrációja. A kevés részecske oka egyértelműen a városi háttér következtében a kevés/kis intenzitású emissziós forrással és meteorológiai tényezőkkel magyarázható. Ugyanakkor 2011. július 28-án (8. ábra) emissziós források azonosíthatóak. Ezek egyértelműen biomassza égetéséből erednek, mert jellemzően a 20–100 nm közötti mérettartományban jelennek meg foltszerűen rövid ideig, és nincs nagyszámú részecske a 10 nm-nél kisebb tartományban.

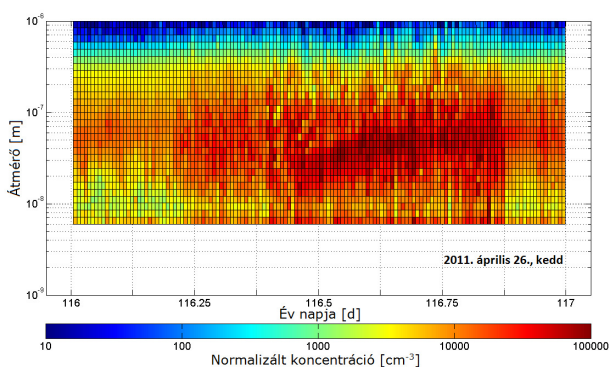


9. ábra: Fotokémiai növekedés
a belvárosban

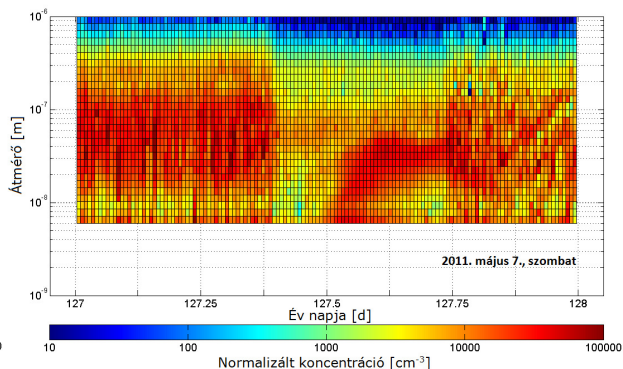


10. ábra: Gépjármű-emisszió
tipikus alakulása az Alagútban

A 9. ábrán 2009. július 28-i, keddi napon bekövetkező fotokémiai növekedés látható. A részecskék napsugárzás hatására a légkörben kialakuló gőzök kondenzációjának hatására megnőnek. Ennek következménye, hogy a meglévő részecskék nagyobbak lesznek, míg a részecskeszám lényegében változatlan marad. A 10. ábrán 2010. július 26-i, hétfői gépjármű-forgalom miatti, tipikus emisszió látható az Alagútban. A hajnali órákban kicsi az aeroszol részecskék koncentrációja. Az első vörös folt, ami a nagy részecske-koncentrációt jelenti, 6 és 9 óra között a reggeli csúcsforgalom következtében alakul ki, majd csökken az emisszió mértéke, de állandó szinten marad délutánig. Az Alagútban 8 és 18 óra között munkanapokon szellőző berendezés üzemel, mely a részecskék koncentrációjának csökkenését okozza (Salma et al., 2011b). Ezután 18 órát követően következik a második vörös sziget szintén a növekvő gépjármű-forgalom, továbbá a ventiláció kikapcsolása miatt.

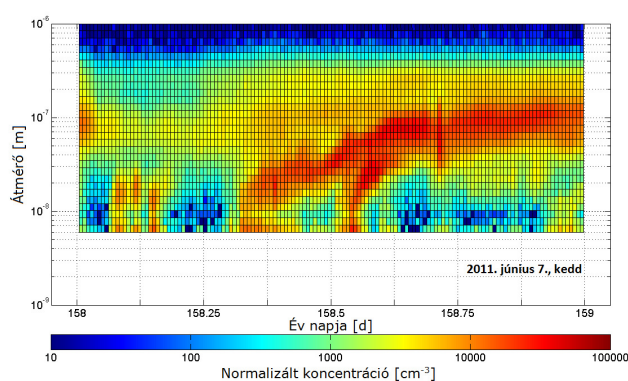


11. ábra: Szennyezett levegőjű nap
az utcakanyonban

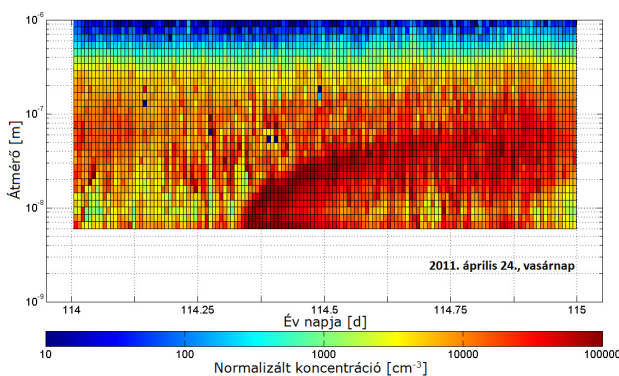


12. ábra: Banángörbe megjelenése és
eltűnése az utcakanyonban

2011. április 26-án, kedden (11. ábra) az utcakanyon erősen szennyezett volt. A szennyezett levegő a kanyon jelleg, az intenzív emissziós forrás és a meteorológia miatt alakult ki. A 12. ábrán éles változást figyelhetünk meg 9 óra után. 2011. május 7-én, szombaton az utcakanyonban megváltoztak a meteorológiai paraméterek. Az uralkodó széljárás irányt váltott. Az addigi szennyezett levegő a Duna felé távozott, helyette új, tisztább légtömeg került az utcakanyonba, mely kedvezett az újrészecske-képződésnek. Azonban 18 óra körül újra szennyezett levegő került az utcakanyonba, mely az újonnan keletkezett részecskék növekedését megakadályozta. Előfordult olyan légköri esemény, amikor a Duna felől érkező légáramlat csupán behozta a nukleálódó felhőt és a növekedés folytatódott, és feltehetően volt olyan is, amikor az utcakanyon is részese volt egy nagyobb, nukleálódó felhőnek.

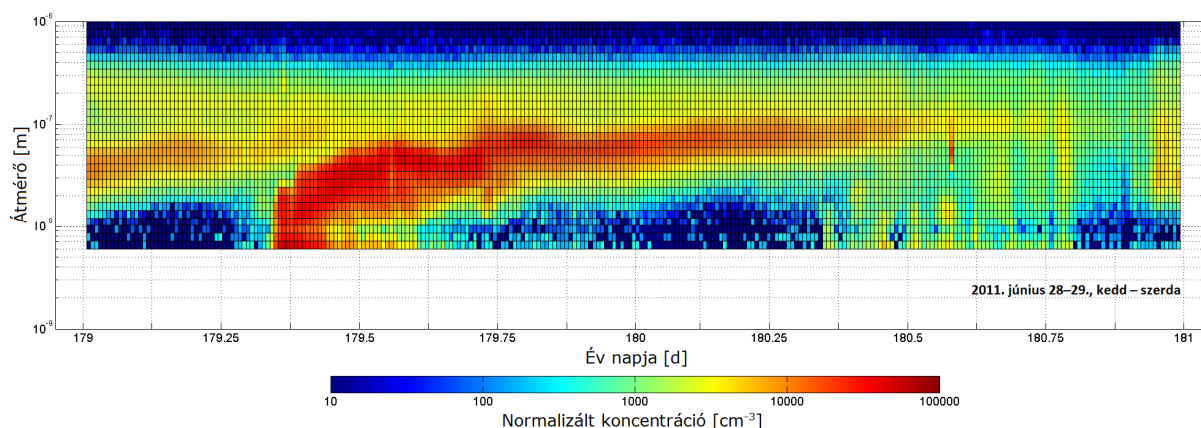


13. ábra: Többszörös nukleáció
a városi háttérben



14. ábra: Nukleáció szennyezett levegőben,
az utcakanyonban

A 13. ábrán 2011. 06. 07-én, a városi háttérben lejátszódó többszörös nukleáció látható. Többszörös nukleáció létrejöttéhez speciális meteorológiai viszonyok szükségesek, melyek értelmezése terveink között szerepel. 2011. 04. 24-én az utcakanyonban (14. ábra) a szennyezett környezet ellenére is lejátszódott nukleáció. A koagulációs nyelő nagysága nem volt elég nagy ahhoz, hogy meggátolja új aeroszol részecskék keletkezését.

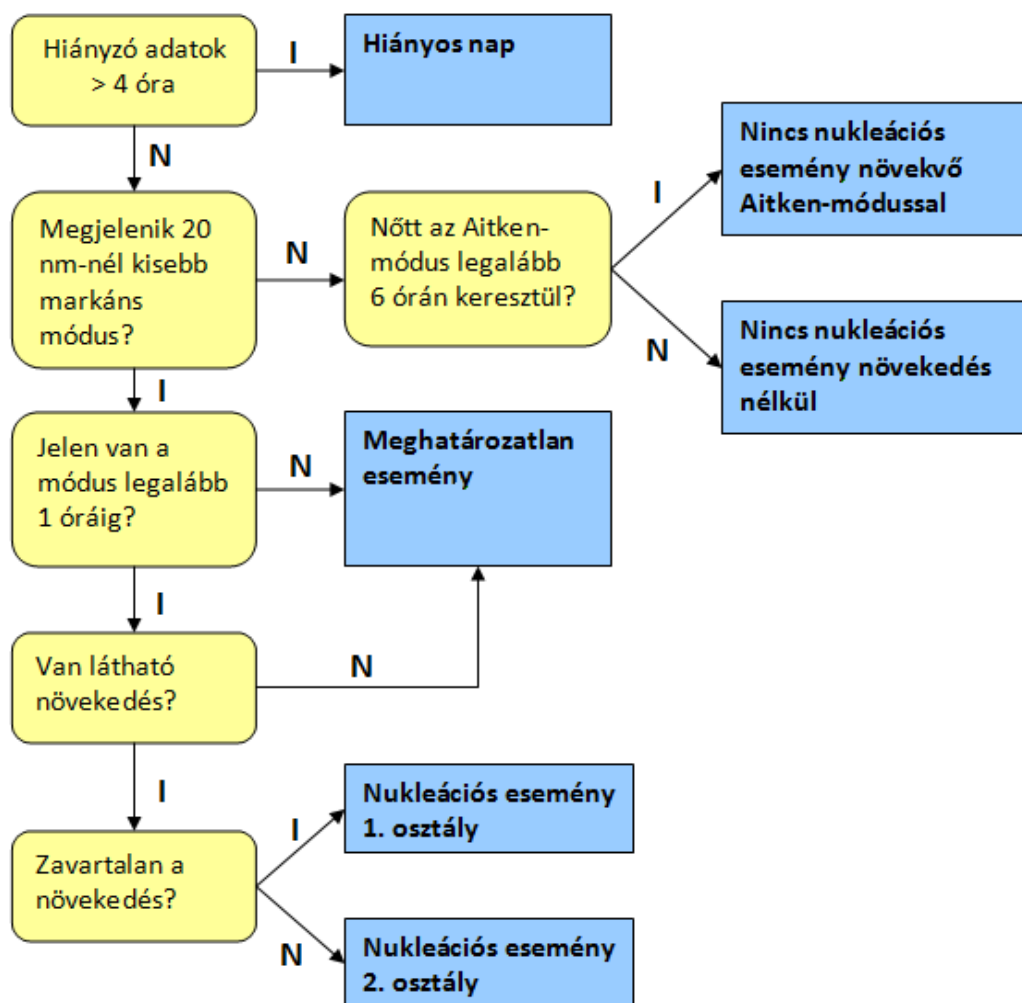


15. ábra: Új aeroszol részecskék képződése és növekedése két napon keresztül

Az 15. ábrán 2011. június 28-án új részecske-képződés figyelhető meg. A nukleáció feltételei adottak voltak új aeroszol részecskék keletkezéséhez. A létrejött új részecskék növekedéséhez szükséges kedvező feltételek és meteorológiai viszonyok miatt a növekedési folyamat hosszú ideig fennmaradt, és a következő napon is folytatódott.

4.3 Méreteloszlások osztályozása

A nukleáció vagy az új részecske-képződés (NPF, New Particle Formation) gyakoriságának megállapítását a spektrumok időváltozásának osztályozásával határoztuk meg (Dal Maso et al., 2005; Hamed et al., 2007). Az osztályozást napi skálán végezzük. Ennek magyarázata, hogy az NPF tipikus kezdeti ideje a késő délelőtti, déli órákra volt tehető, és az esti órákra mindig be is fejeződött. Az osztályozás fő célja az egyértelmű új részecske-képződési események és az egyértelmű nem-nukleációs események kiválogatása, elkülönítése. Az osztályozás a 16. ábrán látható algoritmus alapján végeztük.

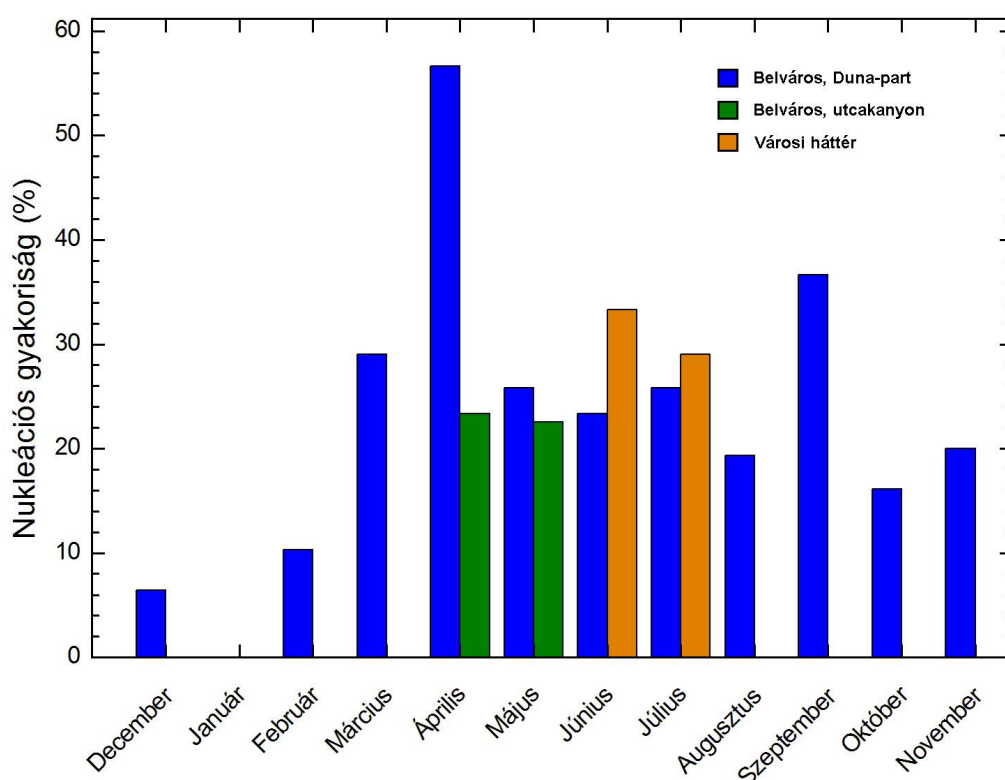


16. ábra: A döntési eljárás algoritmusa

Ha mérés során több, mint 4 órán át hiányzó adatok fordultak elő, akkor a mérést nem tekintjük kiértékelhetőnek. Ellenkező esetben megvizsgáljuk, hogy a részecskék képeznek-e 20 nm-nél kisebb markáns módust, a módus jelen van legalább 1 órán át, látható növekedés lejátszódik-e, illetve ez zavartalan-e. Az algoritmus alapján különítjük el a csoportokat: meghatározatlan a nukleációs esemény, ha a 20 nm-nél kisebb markáns módus vagy nincs jelen legalább 1 órán át, vagy nem látható növekedés. Ha egyáltalán nincs ilyen módus, akkor nincs nukleációs esemény. A növekedés szakadása szerint beszélünk 1. és 2. nukleációs osztályról. Az említett algoritmuson túl figyelembe vesszük a meteorológiai paramétereket, például napsugárzás, szélesebség, relatív páratartalom aktuális értékeit, és a SO₂ koncentrációjának alakulását is.

4.4 Nukleációs gyakoriság

A mérési spektrumok osztályozásával elkülönítettük az egyértelműen nukleációs eseményeket és az egyértelműen nem-nukleációs eseményeket. Nukleációs gyakoriságnak nevezzük a nukleációs napok arányát az adott hónapban lévő releváns napokhoz viszonyítva (nem tekintve a hiányzó napokat és nem meghatározható eseményeket). Méréseink során a nukleációs gyakoriságot a különböző környezetekben hónapokra vonatkoztatva a 17. ábrán mutatom be.



17. ábra: A nukleációs gyakoriság havi átlaga
a különböző városi helyszíneken, Budapesten

A különböző környezetekben más-más valószínűséggel fordult elő újrézecske-képződés. A kevésbé illékony gőzök nagyobb koncentrációja (pl. H_2SO_4 , szerves vegyületek oxidációs termékei), a légkörben jelenlévő több OH-gyök elősegíti, ugyanakkor a már jelenlévő aeroszol részecskék gátolják a nukleációt (Kulmala et al., 2004). Nyílt belvárosi területen a napok 27%-ban történt nukleáció éves skálán. A nukleációs gyakoriságnak télen minimuma volt (7,3%), míg tavasszal elérte a 44%-ot. Az évszakos változékonyság helyi és meteorológiai

adottságokkal, a biogén forrásból származó szerves elővegyületek nagyobb koncentrációjával, és a kénsavgőz kialakulásának általános levegőkémiai és meteorológiai feltételeivel kapcsolatos. Az utcakanyonban a szennyezettebb levegő, vagyis nagyobb kondenzációs nyelő miatt ritkábban tapasztaltunk nukleációt, mint a belvárosi nyílt helyszínen az azonos hónapokat összehasonlítva, míg a városi háttérben a tisztább levegő és légköri folyamatoknak köszönhetően gyakrabban fordult elő. Az ábrán nem szerepelnek az Alagútra vonatkozó adatok, mert ott nem tapasztaltunk egyetlen nukleációt sem. A rendkívül nagy kondenzációs nyelő és a napsugárzás hiánya miatt nem alakultak ki olyan körülmények, amelyek lehetővé tették volna új aeroszol részecskék képződését. A nukleációs gyakoriság hasonló St. Louis-ben (USA). A 8%-os minimum télen, és a 36%-os maximum április-szeptemberben volt (Qian et al., 2007). A legnagyobb nukleációs gyakoriságot nyáron városban, St. Louis-ben, tavasszal a Hyytiälä-erdőben (FI) (Dal Maso et al., 2005) és Rochester-ben (USA) (Jeong et al., 2006), télen és tavasszal a Hohenpeissenberg hegységben (D) (Birmili et al., 2003) tapasztalták. A nukleációs gyakoriság évszakos változása helyi körülményektől erősen függ, úgymint a napsugárzás, hőmérséklet, relatív páratartalom, biogén emisszió, szélsőségek, keveredési réteg magassága, illetve az aeroszol részecskék koncentrációja és méreteloszlása (Kulmala et al., 2004; Kiendler-Scharr et al., 2009). Új aeroszol részecskék képződése összefüggésbe hozható néhány regionális korlátozó vagy kiváltó folyamattal is.

5. Összefoglalás és további tervek

A légköri ultrafinom aeroszol részecskék ($d < 100$ nm) az utóbbi időben a tudományos érdeklődés előterébe kerültek kiemelt éghajlati és egészségügyi hatásai miatt. Részletesebb megismerésük és környezeti következményeik jobb megértése a természetes és antropogén keletkezési folyamatok (légköri nukleáció, magashőmérsékletű folyamatok közvetlen emissziója) és a keletkező aeroszol tulajdonságainak vizsgálatával lehetséges. Városokban az említett keletkezési folyamatok együttesen jelentkeznek.

Méréseket végeztünk Budapest négy, eltérő környezetében: városi háttérben (KFKI Telephely), nyílt belvárosi területen (ELTE Lágymányosi Campus), utcakanyonban (ELTE Rákóczi út) és közlekedési mikrokörnyezetben (Várhegy-alagút). Az aeroszol részecskék számának változását az átmérő és az idő függvényében differenciális mobilitás részecske szeparátorral (DMPS, Differential Mobility Particle Sizer) mértük. A rendszer a 6–1000 nm átmérőtartomány 30 csatornában szolgáltat koncentráció-adatokat, időfelbontása körülbelül 10 perc. Méréseinket alapvető meteorológia paraméterek meghatározásával egészítettük ki.

Az aeroszol részecskék napi medián koncentrációja a városi háttérben, a belvárosban, egy utcakanyonban és a Várhegy-alagútban rendre $4,3 \times 10^3$, $11,8 \times 10^3$, 23×10^3 és $143 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ volt. A medián tehát monoton módon és jelentősen nőtt a város középpontja, illetve a növekvő gépjármű-forgalom felé haladva. A legnagyobb mért, individuális értéket ($465 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$) az Alagútban kaptuk. A különbség főleg az antropogén források eltérő intenzitásával, a légköri nukleáció gyakoriságával, valamint a meteorológiai viszonyokkal magyarázható. Az ultrafinom részecskék átlagos járuléka az összes részecskeszámhoz 81% volt. Az átlagos arány kismértékben $[(76 \pm 9)\% \text{-r} \text{ol} (86 \pm 3)\% \text{-ra}]$, de monoton módon nőtt a növekvő gépjármű-forgalommal. Mindez elsősorban azzal kapcsolatos, hogy a gépjármű-emisszió (ami a belvárosban dominál), valamint a légköri nukleáció (ami a városi háttérben markáns) utáni (gyors) növekedés hasonló méreteloszlást, vagyis járulékot eredményez. Az ultrafinom részecskék tehát meghatározóak Budapest légkörében a részecskeszámot tekintve.

A mért spektrumokból kontúrgörbék alakítottunk ki, amelyek a részecskék számának átmérő- és időfüggését egyszerre szemléltetik. A kontúrgörbék és más, segédváltozók alapján új aeroszol részecskék képződését és növekedését azonosítottuk banángörbék

formájában. A banángörbéknek különböző típusait különböztettük meg: 1) időben és térben pontszerű nukleáció (nukleációs „burst”), 2) elhúzódó és/vagy térben kiterjedt nukleáció, és 3) nukleáció többszörös indulással. Sikertelenül azonosítottunk új részecske-képződést viszonylag szennyezett környezetben (utcakanyonban) is, ahol a nukleálódó gőzök kondenzációs nyelője és a frissen kialakult részecskék koagulációs nyelője igen jelentős. A városi háttérben a részecskék növekedése akár két napon keresztül is zavartalan és folytonos maradhat.

A kontúrgörbét egy döntési algoritmus alapján osztályoztuk a nukleációs gyakoriság meghatározása érdekében. Megállapítottuk, hogy a légköri nukleáció nem ritka jelenség Budapesten. Nyílt belvárosi területen a napok 27%-ban történt nukleáció éves skálán. A nukleációs gyakoriságnak télen minimuma volt (értéke ekkor 7,3%), míg tavasszal elérte a 44%-ot. Az évszakos változékonyság helyi és meteorológiai adottságokkal, és a biogén emisszióval kapcsolatos. Az utcakanyonban kisebb, míg a városi háttérben nagyobb nukleációs gyakoriságot figyeltünk meg, mint a nyílt belvárosi területen. Mindez az eltérő környezetek levegőkémiai és meteorológiai adottságaival magyarázható. Az eredmények nemzetközi folyóiratban való publikálása folyamatban van.

További terveink között szerepel a különböző városi környezetekben azonosított légköri nukleáció és a légszennyező gázok, valamint a meteorológiai paraméterek kapcsolatrendszerének szisztematikus vizsgálata, illetve a nukleáció térbeli eredetének becslése.

6. Irodalomjegyzék

- Arnold, F.: Multi-ion complexes in the stratosphere—implications for trace gases and aerosol. *Nature* 284, 610-611, 1980.
- Birmili, W., Berresheim, H., Plass-Dülmer, C., Elste, T., Gilge, S., Wiedensohler, A., Uhrner, U.: The Hohenpeissenberg aerosol formation experiment (HAFEX): a longterm study including size-resolved aerosol, H_2SO_4 , OH, and monoterpenes measurements. *Atmos. Chem. Phys.* 3, 361–376, 2003.
- Borsós, T., Salma, I.: A Várhegy-alagút közepén. *Természet Világa* 142/6, 257–260, 2011.
- Brown, D. M., Stone, V., Findlay, P., MacNee, W., Donaldson, K.: Increased inflammation and intracellular calcium caused by ultrafine carbon black is independent of transition metals or other soluble components. *Occup. Environ. Med.* 57, 685–691, 2000.
- Brown, D. M., Wilson, M. R., MacNee, W., Stone, V., Donaldson, K.: Size-dependent proinflammatory effects of ultrafine polystyrene particles: a role for surface area and oxidative stress in the enhanced activity of ultrafines. *Toxicol. Appl. Pharmacol.* 175, 191–199, 2001.
- Dal Maso, M., Kulmala, M., Lehtinen, K. E. J., Mäkelä, J. M., Aalto, P., O'Dowd, C. D.: Condensation and coagulation sinks and formation of nucleation mode particles in coastal and boreal forest boundary layers. *J. Geophys. Res.* 107, 2002.
- Dal Maso, M., Kulmala, M., Riipinen, I., Wagner, R., Hussein, T., Aalto, P. P., Lehtinen, K. E. J.: Formation and growth of fresh atmospheric aerosols: eight years of aerosol size distribution data from SMEAR II, Hyytiälä, Finland. *Boreal Environ. Res.* 10, 323–336, 2005.
- Fuchs, N. A., Sutugin, A. G.: Noncoagulated highly dispersed aerosols. *J. Aerosol Sci.* 2, 371–379, 1971.
- Fuzzi, S., Andreae, M. O., Huebert, B. J., Kulmala, M., Bond, T. C., Boy, M., Doherty, S. J., Guenther, A., Kanakidou, M., Kawamura, K., Kerminen, V.-M., Lohmann, U., Russell, L. M., and Pöschl, U.: Critical assessment of the current state of scientific knowledge, terminology, and research needs concerning the role of organic aerosols in the atmosphere, climate, and global change. *Atmos. Chem. Phys.* 6, 2017–2038, 2006.
- Hamed, A., Joutsensaari, J., Mikkonen, S., Sogacheva, L., Dal Maso, M., Kulmala, M., Cavalli, F., Fuzzi, S., Facchini, M. C., Decesari, S., Mircea, M., Lehtinen, K. E. J., Laaksonen, A.: Nucleation and growth of new particles in Po Valley, Italy. *Atmos. Chem. Phys.* 7, 355–376, 2007.
- Hinds, W.C., *Aerosol Technology*. Wiley, New York, 1982.
- Holmes, N. S.: A review of particle formation events and growth in the atmosphere in the various environments and discussion of mechanistic implications. *Atmos. Environ.* 41, 2183–2201, 2007.
- IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change), *The Physical Science Basis. Working Group I Contribution to the Fourth Assessment Report*. Cambridge University Press, New York, 2007.

- Jeong, C.-H., Evans, G. J., Hopke, P. K., Chalupa, D., Utell, M. J.: Influence of atmospheric dispersion and new particle formation events on ambient particle number concentration in Rochester, United States, and Toronto, Canada. *J. Air Waste Manage. Assoc.* 56, 431–443, 2006.
- JRC-EASAC 24847 (European Commission, Joint Research Centre - European Academies Science Advisory Council), Impact of engineered nanoparticles on health: Considerations for benefit - risk assessment, Reference Report 24847, Publications Office of the European Union, Luxembourg, 2011.
- Kathmann, S. M., Schenter, G. K., Garrett, B. C.: Ion-Induced Nucleation: The Importance of Chemistry. *Physical Review Letters* 94 (11), 116104, 2005.
- Kiendler-Scharr, A., Wildt, J., Dal Maso, M., Hohaus, T., Kleist, E., Mentel, T. F., Tillmann, R., Uerlings, R., Schurr, U., Wahner, A.: New particle formation in forests inhibited by isoprene emissions. *Nature* 461, 381–384, 2009.
- Kirkby, J., Curtius, J., Almeida, J., Dunne, E., Duplissy, J., Ehrhart, S., Franchin, A., Gagné, S., Ickes, L., Kürten, A., Kupc, A., Metzger, A., Riccobono, F., Rondo, L., Schobesberger, S., Tsagkogeorgas, G., Wimmer, D., Amorim, A., Bianchi, F., Breitenlechner, M., David, A., Dommen, J., Downard, A., Ehn, M., Flagan, R. C., Haider, S., Hansel, A., Hauser, D., Jud, W., Junninen, H., Kreissl, F., Kvashin, A., Laaksonen, A., Lehtipalo, K., Lima, J., Lovejoy, E. R., Makhmutov, V., Mathot, S., Mikkilä, J., Minginette, P., Mogo, S., Nieminen, T., Onnela, A., Pereira, P., Petäjä, T., Schnitzhofer, R., Seinfeld, J. H., Sipilä, M., Stozhkov, Y., Stratmann, F., Tomé, A., Vanhanen, J., Viisanen, Y., Vrtala, A., Wagner, P. E., Walther, H., Weingartner, E., Wex, H., Winkler, P. M., Carslaw, K. S., Worsnop, D. R., Baltensperger U., Kulmala M.: Role of sulphuric acid, ammonia and galactic cosmic rays in atmospheric aerosol nucleation. *Nature* 476, 429–435, 2011.
- Korhonen, P., Kulmala, M., Laaksonen, A., Viisanen, Y., McGraw, R., Seinfeld, J. H.: Ternary nucleation of H_2SO_4 , NH_3 , and H_2O in the atmosphere. *J. Geophys. Res.* 104, 26349–26353, 1999.
- Kulmala, M., Vehkamäki, H., Petäjä, T., Dal Maso, M., Lauri, A., Kerminen, V.-M., Birmili, W., McMurry, P.H.: Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations. *J. Aerosol Sci.* 35, 143–176, 2004.
- Kulmala, M., Laaksonen, A.: Binary nucleation of water–sulphuric acid system: comparison of classical theories with different H_2SO_4 saturation vapor pressures. *J. Chem. Phys.* 93, 696–701, 1990.
- Kulmala, M., Pirjola, L., Mäkelä, J. M.: Stable sulphate clusters as a source of new atmospheric particles. *Nature* 404, 66–69, 2000.
- Laakso, L., Anttila, T., Lehtinen, K. E. J., Aalto, P. P., Kulmala, M., Horrak, U., Paatero, J., Hanke, M., Arnold, F.: Kinetic nucleation and ions in boreal forest particle formation events. *Atmos. Chem. Phys.* 4, 2353–2366, 2004.
- McMurry, P.: A review of atmospheric aerosol measurements. *Atmos Environ.* 34, 1959–1999, 2000.
- 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, 2009.

- Oberdörster, G., Oberdörster, E., Oberdörster, J.: Nanotoxicology: an emerging discipline evolving from studies of ultrafine particles. *Environ. Health Perspect* 113, 823–839, 2005.
- O'Dowd, C., Aalto, P., Hämeri, K., Kulmala, M., Hoffmann, T.: Atmospheric particles from organic vapours. *Nature* 416, 497–498, 2002.
- Putaud, J.-P., Van Dingenen, R., Alastuey, A., Bauer, H., Birmili, W., Cyrys, J., Flentje, H., Fuzzi, S., Gehrig, R., Hansson, H. C., Harrison, R. M., Herrmann, H., Hitzenberger, R., Hüglin, C., Jones, A. M., Kasper-Giebl, A., Kiss, G., Koussa, A., Kuhlbusch, T. A. J., Löschau, G., Maenhaut, W., Molnar, A., Moreno, T., Pekkanen, J., Perrino, C., Pitz, M., Puxbaum, H., Querol, X., Rodriguez, S., Salma, I., Schwarz, J., Smolik, J., Schneider, J., Spindler, G., ten Brink, H., Tursic, J., Viana, M., Wiedensohler, A., Raes, F.: A European aerosol phenomenology - 3: Physical and chemical characteristics of particulate matter from 60 rural, urban, and kerbside sites across Europe. *Atmos. Environ.* 44, 1308–1320, 2010.
- Qian, S., Sakurai, H., McMurry, P. H.: Characteristics of regional nucleation events in urban East St. Louis. *Atmos. Environ.* 41, 4119–4127, 2007.
- Raes, F., Van Dingenen, R., Vignati, E., Wilson, J., Putaud, J.P., Seinfeld, J. H., Adams, P.: Formation and cycling of aerosol in the global troposphere. *Atmos. Environ.* 34, 4215–4240, 2000.
- Ramanathan, V., Crutzen, P. J., Kiehl, J. T., Rosenfeld, D.: Aerosols, climate, the hydrological cycle. *Science* 294, 2119–2124, 2001.
- Ristovski, Z., Morawska, L., Bofinger, N. D., Hitchins, J.: Submicrometer and supermicrometer particulate emission from spark ignition vehicles. *Environ. Sci. Technol.* 32, 38–45, 1998.
- Salma, I., Maenhaut, W., Zemplén-Papp, É., Záray, Gy.: Comprehensive characterisation of atmospheric aerosols in Budapest, Hungary: physicochemical properties of inorganic species. *Atmos. Environ.* 35, 4367–4378, 2001.
- Salma, I., Borsós, T., Weidinger, T., Aalto, P., Hussein, T., Dal Maso, M., Kulmala, M.: Production, growth and properties of ultrafine atmospheric aerosol particles in an urban environment. *Atmos. Chem. Phys.* 11, 1339–1353, 2011a.
- Salma, I., Borsós, T., Aalto, P., Kulmala, M.: Time-resolved number concentration and size distribution of aerosol particles in an urban road tunnel. *Boreal. Environ. Res.* 16, 262–272, 2011b.
- Seinfeld, J. H., Pandis, S. N.: *Atmospheric Chemistry and Physics*, Wiley, New York, 1998.
- Shi, J. P., Harrison, R. M.: Investigation of ultrafine particle formation during diesel exhaust dilution, *Environ. Sci. Technol.* 33, 3730–3736, 1999.
- Yu, F., Turco, R. P.: Ultrafine aerosol formation via ion-mediated nucleation. *Geophys. Res. Lett.* 27, 883–886, 2000.
- Wåhlin, P., Palmgren, F., Van Dingenen, R.: Experimental studies of ultrafine particles in streets and the relationship to traffic. *Atmos. Environ.* 35, 63–69, 2001.
- Zhang, R., Suh, I., Zhao, J., Zhang, D., Fortner, E. C., Tie, X., Molina, L. T., Molina, M. J.: Atmospheric new particle formation enhanced by organic acids. *Science* 304, 1487–1490, 2004.

7. Köszönetnyilvánítás

Szeretném megköszönni témavezetőmnek, Dr. Salma Imre egyetemi tanárnak a fáradhatatlan emberi és szakmai támogatást, mellyel ez a dolgozat elkészülhetett.

Köszönöm Borsós Tibornak, hogy a DMPS üzembe helyezését, kalibrálását és az adatok feldolgozását megismertette velem.

Köszönöm Családomnak és Kedvesemnek szerető támogatásukat.