

BOLU İL MERKEZİNDE KIŞ MEVSİMİNDE TOPLANAN PM_{2.5-10} ve PM_{2.5} FRAKSİYONLARINI ETKİLEYEN KİRLİTİCİ KAYNAKLARININ BELİRLENMESİ

Fatma ÖZTÜRK^(*), Melek KELEŞ

Abant İzzet Baysal Üniversitesi, Mühendislik Mimarlık Fakültesi, Çevre Mühendisliği
Bölümü, Gölköy Kampüsü, Bolu, Türkiye

ÖZET

Kış mevsiminde sıcaklığın düşmesi ve doğalgazın hala yaygın olarak kullanılmaması özellikle bu mevsimde Bolu şehir merkezinde hava kalitesini olumsuz yönde etkilemektedir. Çevre ve Şehircilik Bakanlığı tarafından şehir merkezinde konuşlandırılan istasyonda düzenli olarak PM₁₀ ölçümleri yapılmakta ancak bu veriler şehrin hava kalitesini etkileyen ana kaynaklar hakkında bilgi sahibi olmaktan yeterli olmamaktadır. Bu çalışmada analiz edilen partikül madde (PM) örnekleri şehir merkezinde halı hazırda bulunan istasyonda Aralık 2014 ve Şubat 2015 tarihleri arasında kaba (PM_{2.5-10}) ve ince (PM_{2.5}) fraksiyonda toplanmıştır. Kaba ve ince fraksiyonda PM örnekleri SFU örnekleyici kullanılarak nükleopor filtre üzerinde toplanmış ve toplanan örneklerde metal içeriği (Al, As, Ba, Ca, Cu, Fe, K, Mg, Mn, Na, Pb, S, Si, Ti, V ve Zn) WDXRF cihazı ile bakılmıştır. Ayrıca eş zamanlı olarak PM_{2.5} örnekleri Thermo Partisol örnekleyici kullanılarak kuvars filtreler üzerinde toplanmış ve toplanan örneklerde elemental, organik ve toplam karbon (sırasıyla EC, OC, ve TC) konsantrasyonları belirlenmiştir. Elde edilen veriler değerlendirildiğinde kaba ve ince fraksiyonda ölçülen toplam sülfat miktarının yaklaşık olarak 7.7 µg/m³ olduğu bulunmuştur. PM_{2.5} fraksiyonunda ölçülen OC, EC ve TC konsantrasyonlarının sırasıyla 59.9±50.4, 5.92±4.79, 65.8±54.9 µg m⁻³ olarak ölçülmüştür. Kirletici kaynaklarını belirlemek amacıyla üretilen veri setine faktör analizi uygulanmıştır. Kaba fraksiyonda toprak ve yanma kaynaklı emisyonlar önemli kirletici kaynakları olarak bulunmuştur. İnce fraksiyonda ise toprak, petrol ve odun-kömür yakılmasından kaynaklı olan emisyonlar ana kirletici kaynakları olarak bulunmuştur.

ABSTRACT

Air quality in Bolu city center has been worsened during winter due to low temperature and not wide use of natural gas. Ministry of Environment and Forestry has monitored the PM₁₀ concentration regularly, which is not enough to figure out the pollution sources affecting the air quality of the city. The data interpreted in this study were generated by analyzing the samples collected at a station located in the city center between December 2014 and February 2015. Coarse and fine particulate matter (PM_{2.5-10} and PM_{2.5}, respectively) samples were collected by means of SFU sampler on nucleopore filters. These filters were analyzed in terms of metals (Al, As, Ba, Ca, Cu, Fe, K, Mg, Mn, Na, Pb, S, Si, Ti, V and Zn) by using WDXRF. In addition, concurrent PM_{2.5} samples were collected on quartz filters using Thermo Partisol sampler. The generated data revealed that the average sulfate concentration in sum of coarse and fine fraction of PM was about 7.7 µg/m³. The average concentrations of OC, EC and TC

* oztfatma@gmail.com

in PM_{2.5} samples were found as 59.9 ± 50.4 , 5.92 ± 4.79 and $65.8 \pm 54.9 \mu\text{g m}^{-3}$, respectively. The sources affecting the PM composition were resolved with factor analysis. While combustion and crustal emissions were identified as the main sources influencing the coarse fraction, coal-biomass combustion, oil combustion and crustal sources were found as major sources contributing the PM_{2.5} composition.

ANAHTAR SÖZCÜKLER

Partikül Madde (PM), Elementler, Organik Karbon (OC), Elementel Karbon (EC)

1. GİRİŞ

Şehirleşme ve endüstriyel faaliyetlerin artması sonucu insanlar kırsal alanlardan şehir merkezlerine göç etmeye başlamışlardır (Nriagu, 1990). Böylece şehir merkezlerinde oluşan nüfus yoğunluğu, trafik emisyonları ve endüstriyel faaliyetler gibi antropojenik faaliyetleri arttırmış ve beraberinde şehir merkezlerinde yoğun bir hava kirliliği oluşturmuştur (Grigoratos vd., 2014; Fantozzi vd., 2013; Sawidis vd., 2011; Rodriguez Martin vd., 2015). Yapılan çalışmalarda partikül madde kaynaklı hava kirliliğinin insanlar ve çevre üzerindeki etkileri incelenmektedir (Hueglin vd., 2005; Manalis vd., 2005) (Samek, 2009). Özellikle yüksek konsantrasyonlardaki PM₁₀ ve PM_{2.5} şehir merkezlerinde insanlar üzerinde ciddi sağlık etkilerine neden olduğu bulunmuştur (Heninrich ve Salama, 2007; Ho vd., 2007). PM miktarlarının bilinmesi önemlidir, fakat insan ve çevre üzerindeki etkilerinin daha iyi anlaşılması için sadece madde miktarı değil ayrıca da partikül madde kompozisyonunu oluşturan maddelerin de incelenmesi gerekmektedir (Samek, 2009).

Partikül madde kompozisyonunu organikler, inorganikler, mineral toz, deniz tuzları ve elementler oluşturmaktadır (Patearaki vd., 2012; Sharma vd., 2014). PM kompozisyonundaki bileşikler bulunduğu yer ve zamana göre değişiklik göstermektedir.

PM örneklerinde bulunan karbonlu bileşiklerin atmosfer sistemi, iklim değişikliği ve insanlar üzerinde etkileri bulunmaktadır (Lioussse vd., 1996; Jacobson, 2001). Yanma kaynaklı oluşan partikül maddelerinin % 60'ını organik karbon (OC) ve % 5-10'unu ise elemental karbon (EC) oluşturmaktadır. Elemental karbonun atmosferdeki kaynakları fosil yakıtları, orman yangınları ve evsel ısınma amaçlı kullanılan yakıtlardır (Cooke vd., 1999; Masiello, 2004).

PM kompozisyonunu oluşturan metaller düşük konsantrasyonlarda olsa bile insanlar üzerindeki sağlık etkilerinden dolayı PM'de içeriğindeki miktarları sürekli izlenmektedirler (Gavett vd., 2003; Schaumann vd., 2004; Guastadisegni vd., 2010). Metal kirleticiler atmosfere hem doğal kaynaklardan hem de antropojenik kaynaklardan salınmaktadırlar. Metal kirleticiler atmosfere doğal kaynaklardan volkanik patmalar, mineral tozları ve kayaların ayrışması sonucu salınmaktadırlar. Atmosfere salınan metal kirleticilerinin çoğunun antropojenik kaynaklı olduğu ve daha çok trafik emisyonları ve endüstriyel faaliyetler sonucu atmosfere verildikleri yapılan çalışmalar sonucunda bulunmuştur (Lv vd., 2014; Oduma vd., 2014; Rodriguez Martin vd., 2014). Trafik emisyonları ile havaya salınan metaller daha çok Ba, Pb, Cu, Cr, Sn, Sb ve Zr iken, endüstriyel faaliyetler sonucunda V, Ni, Co, Sb, Cr, Fe, Mn, Cu, Zn, As ve Sn atmosfere verilmektedirler (Querol vd., 2002; Lin vd., 2005; Alastuey vd., 2005; Birmilli vd., 2006; Bukowiecki vd., 2010; Moreno vd., 2011).

2. MATERYAL VE METOD

2.1. İstasyon bilgileri

Bolu şehir merkezinde gerçekleştirilen bu çalışmada Devlet Meteoroloji Genel Müdürlüğü'nün bahçesinde (40° 44' 01.71" K ve 31° 36' 05.74" D) hali hazırda bulunan kabin kullanılmıştır. Kabinin bulunduğu yer tam olarak şehir merkezinde trafik yoğunluğunun görüldüğü iki ana cadde arasındadır. Ayrıca Bolu genelinde hem doğalgaz hem de kömür ve odun ısınma amaçlı olarak kullanılmakta, buda farklı yanma tiplerinden kaynaklanan emisyonların şehrin hava kalitesinin farklı parametreler açısından farklı ölçülerde etkilenmesine neden olmaktadır.

2.2. PM örneklerinin toplanması

Şehir merkezinde konuşlandırılmış istasyonda 1 Aralık 2014-6 Şubat 2015 tarihleri arasında günlük ölçümler yapılmıştır. Bu ölçümler için Gent marka Stack Filter cihazı (Salma vd., 2004; Mkoma vd., 2009) kullanılarak PM_{2.5-10} ve PM_{2.5} örnekleri polikarbonat filtre üzerinde toplanmıştır. Ayrıca aynı istasyonda bulunan PartisolTM 2000i (Thermo, ABD) cihazı ile kuvars filtre üzerinde PM_{2.5} örnekleri toplanmıştır.

Her iki cihazda da yapılacak ölçümlerde kullanılacak olan filtreler istasyona götürülmeden önce sabit sıcaklık (20°C) ve nemde(% 25-30) şartlandırılarak ağırlıkları kaydedilmiştir. Ayrıca kuvars filtrelerin içeriğinde bulunan karbon yapısından dolayı tartım işleminden önce 900 °C'de kül fırınında yakma işlemine maruz bırakılmıştır (Zhao vd., 2013; Sharma vd., 2014). Bu işlem ile filtre içeriğindeki karbon giderilmektedir. Günlük olarak toplanan filtreler araziden getirildikten sonra tekrar sabit sıcaklık ve nem ortamında tutularak partikül madde kütlesi belirlenmektedir. PM kütlesi belirlenen filtreler analiz edilene kadar -18°C'de tutulmaktadır.

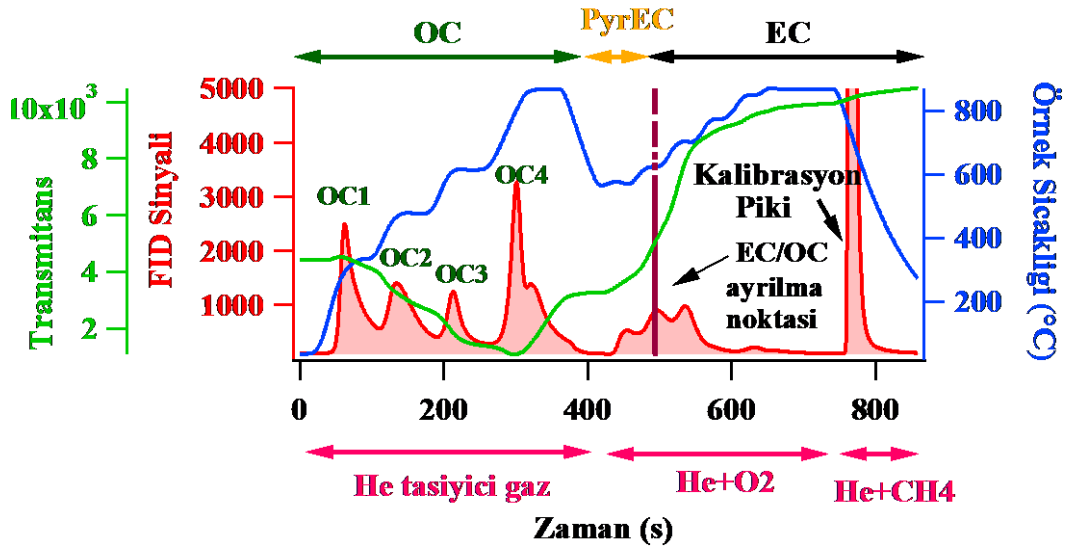
2.3. PM örneklerinin analizi

PM örneklerinin metal içeriğinin belirlenmesi. Polikarbonat filtre üzerinde toplanan PM örneklerinde Na, Mg, Al, Si, S, K, Ca, Ti, V, Mn, Fe, Cu, Zn, As, Ba and Pb içeriğini belirlemek için Panalytical Axios Advance model WDXRF (dalga boyu dağılımlı x-ışınları floresans) cihazı ile analiz edildi. Analiz için cihazda 4.0 kW gücünde X-Ray tüpü (Imax= 160 mA, Vmax= 60 kV) ve Rh anot (SST-mAX) kullanıldı. WDXRF analizinde Ba ve Pb elementleri için L- α çizgisi kullanılırken diğer ölçülen elementler için K- α çizgisi kullanılmıştır. Örneklemde kullanılan filtrenin çapı 47 mm olmasına rağmen cihaz ile analiz yapılırken 25 mm çapı X-Ray ışınına maruz kalmış fakat ölçülen sonuçlar filtrenin çapı için doğrulanmıştır. Analiz sırasında yapılan ölçümlerin doğru örnekler aynı koşullarda analiz edilen SRM 2783 (Air Particulate Matter on Filter Media, NIST, ABD) ile kontrol edilmiştir.

PM örneklerinde OC ve EC analizi. Bu çalışmada toplanan kuvars filtreler üzerinde toplanan PM_{2.5} örneklerinde EC/OC analizleri Sunset Lab. (Oregon, ABD) temin edilen "termal-optik karbon aerosol analizörü" kullanılarak yapılmıştır.

Bu yöntemde standart büyüklükte kesilen PM yüklü kuvars filtreler kuvars fırına yerleştirilmektedir. Fırının içine gönderilen helium gazı fırının sıcaklığını 870°C seviyesine çıkarmakta, artan sıcaklıkla örnekten desorbe olan organik bileşikler piroliz ürünlerine dönüşerek mangan dioksit (MnO₂) yükseltgen fırına hareket etmektedir. MnO₂ fırında hareket eden karbon fragmanları burada CO₂ gazına dönüşmektedir. Yükseltgen ortamdan

helyum gazıyla süpürülen CO₂ hidrojen gazı ile karışmaktadır. Daha sonra bu karışım ısıtılmış nikel katalizde CH₄ gazına dönüşmekte ve alevli iyonlaşma dedektörü (FID) ile örnekte bulunan karbon tayin edilmektedir. Kuvars örnekleme fırınında ilk basamak tamamlandıktan sonra fırının içerisindeki sıcaklık 550°C'ye düşürülmekte ve fırından bu kez helyum/oksijen taşıyıcı gaz karışımı akmaktadır. Bu yükseltgen gaz karışımıyla ikinci bir sıcaklık sıçramasıyla örnekte bulunan elemental karbonda filtreden okside olarak MnO₂ fırına hareket etmektedir. Daha sonra elemental karbon da organik karbon gibi FID dedektörle tayin edilmektedir. Şekil 1'de toplanan örneklerden birine ait bir termogram sunulmuştur. Tipik bir termogramda dört adet organik karbon piki (OC₁, OC₂, OC₃ ve OC₄) ve altı adet elemental karbon piki (EC₁, EC₂, EC₃, EC₄, EC₅ ve EC₆) bulunmaktadır.

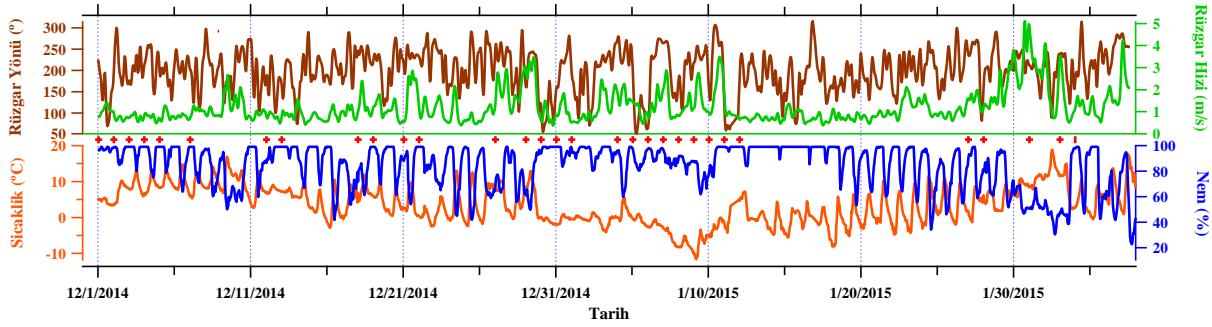


Şekil 1. Analiz edilen örneklerden birine ait termogram

EC/OC analizöründe toplanan örneklerin analizine başlamadan önce kuvars filtreden kaynaklanabilecek karbon miktarını belirlemek amacıyla temiz kuvars filtreler de analiz edilmiştir. Ayrıca her gün analize başlamadan önce cihazdan gelebilecek hata payını görmek amacıyla cihaz içerisine örnek yerleştirmeden boş çalıştırılmıştır. Cihazdaki ölçümlerin doğruluğunu belirlemek amacıyla bilinen miktarda sükröz boş temiz filtrelerin üzerine enjekte edilerek örneklerle aynı koşullarda analiz edilmiştir. Ayrıca her analiz sonunda belirli miktarda metan gazı dış standart olarak sistemden geçirilerek, cihazın performansında gözlenen küçük değişimler normalize edilmekte böylece analiz sonuçlarının tekrarlanabilirliği ve kararlılığı kontrol altında tutulmaktadır.

Örneklere alınan 1.5 cm² büyüklüğünde parçalar kuvars örnekleme fırınına yerleştirilerek OC ve EC tayini yapılmıştır.

Meteorolojik veriler. Devlet Meteoroloji Genel Müdürlüğüne ait meteoroloji istasyonu ile örnekleme yapılan kabin aynı yerde olduğu için meteorolojik veriler (sıcaklık, nispi nem, yağış, rüzgar hızı ve yönü) için hali hazırda bulunan meteoroloji istasyonu kullanılmıştır. Örnekleme dönemine ait verilerin zamansal değişimi Şekil 2'de sunulmuştur.



Şekil 2. Örneklemeye döneminde ölçülen meteorolojik verilerin zamansal değişimi (kırmızı artı işareti kar yağışını göstermektedir) (Öztürk ve Keleş, 2015)

3. SONUÇLAR

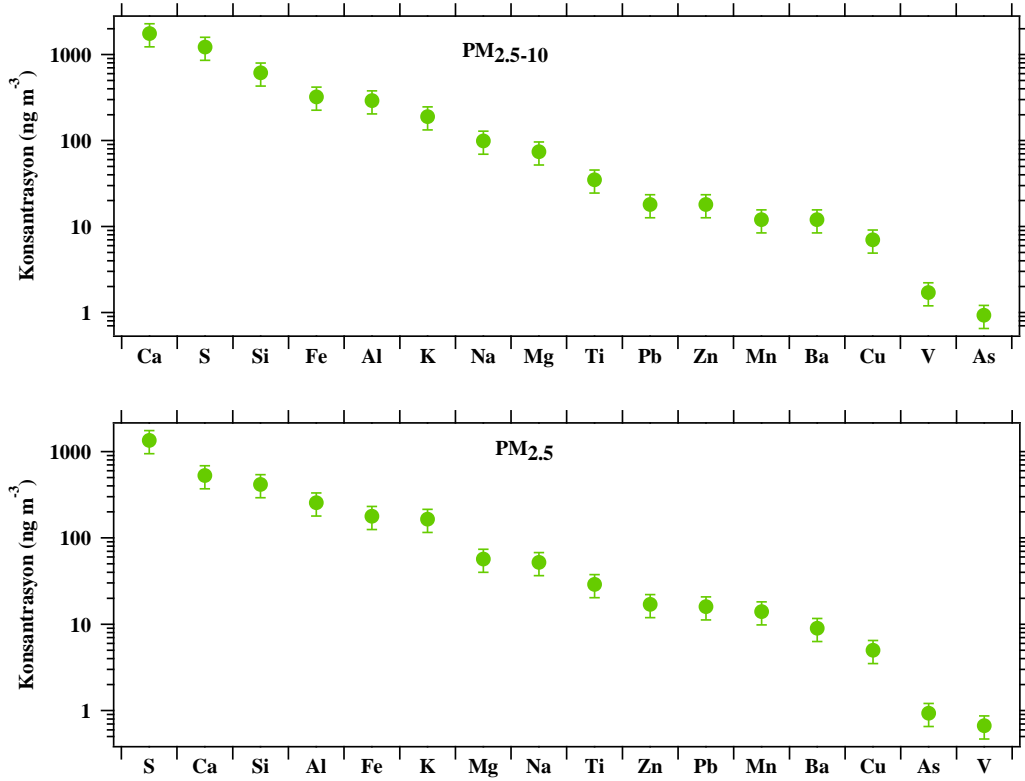
3.1. Meteorolojik veriler

Örneklemeye süresi boyunca sıcaklık, yağış, nispi nem, rüzgar hızı ve yönü verileri saatlik ortalamaları şeklinde alınmıştır. Bolu şehir merkezinde Aralık ve Şubat arasındaki dönemde ortalama sıcaklık 3.7 °C iken maksimum sıcaklık 18.9 °C minimum sıcaklık -11.6 °C olarak kaydedilmiştir. Rüzgar yönü ise daha çok 210 ° ile 240 ° arasında, hızı ise ortalama 1.23 m/s olarak belirlenmiştir. Aynı şekilde örneklemeye süresi boyunca nispi nem ortalama % 84 olarak kaydedilmiştir.

3.2. Metal sonuçları

PM_{2.5-10} ve PM_{2.5} olarak toplanan örneklerde partikül madde konsantrasyonları ortalama olarak büyük çaplı partiküllerde (PM_{2.5-10}) 31±22 µg m⁻³ olarak bulunmuştur. Küçük çaplı partiküllerde ise (PM_{2.5}) 20±15 µg m⁻³ bulunmuştur. PM kompozisyonunun büyük bir bölümünü oluşturan sülfat iyonunun PM_{2.5-10} ve PM_{2.5} fraksiyonlarındaki ortalama konsantrasyonları sırasıyla 3669±3138 ve 4029±4203 ng m⁻³ olarak bulunmuştur.

Toprak kökenli olarak bilinen metallere ise Ca, Si, Fe, Al, Mg ve Ti konsantrasyonları kaba fraksiyonda sırasıyla 1756±2194, 615±793, 322±306, 291±346, 74±108 ve 35±31 ng m⁻³ olarak tespit edilmiştir. Bu elementlerin küçük çaplı partiküllerdeki konsantrasyonları ise sırasıyla 527±701, 416±497, 178±116, 255±259, 57±78 ve 29±18 ng m⁻³ olarak bulunmuştur. Kuloğlu ve Tuncel (2005) tarafından yapılan çalışmada da toprak kökenli metallere daha çok büyük çaplı partiküllerde olduğu saptanmıştır. Atröjenik kaynaklı olarak salınan Pb, Zn, Cu, As ve Ni gibi elementlerin konsantrasyonları büyük çaplı partikül maddelerde, küçük çaplı olanlara göre daha yüksek bulunmuştur. Şekil 3'de hem büyük çaplı partiküllerde (PM_{2.5-10}) hem de küçük çaplı partiküllerdeki metal konsantrasyonları gösterilmiştir.



Şekil 3. PM_{2.5-10} ve PM_{2.5} metal konsantrasyonları

3.3. OC/EC sonuçları

Şehir merkezinde kış mevsiminde toplanan PM_{2.5} örneklerinde ortalama OC, EC ve TC konsantrasyonları sırasıyla 59.9±50.4, 5.92±4.79, 65.8±54.9 µg m⁻³ olarak ölçülmüştür. En yüksek PM_{2.5} konsantrasyonu 18 Ocak 2015 tarihinde 278 µg m⁻³ olarak belirlenmiştir. Bu tarihte alınan meteorolojik verilerde ise en düşük sıcaklığın -3°C olduğu tespit edilmiştir. PM_{2.5} konsantrasyonunun ve bunlara ek olarak karbon konsantrasyonlarının yüksek çıkması kış mevsiminde evsel ısınma faaliyetlerinin artması ve buna bağlı olarak da emisyonların artması ile açıklanmıştır.

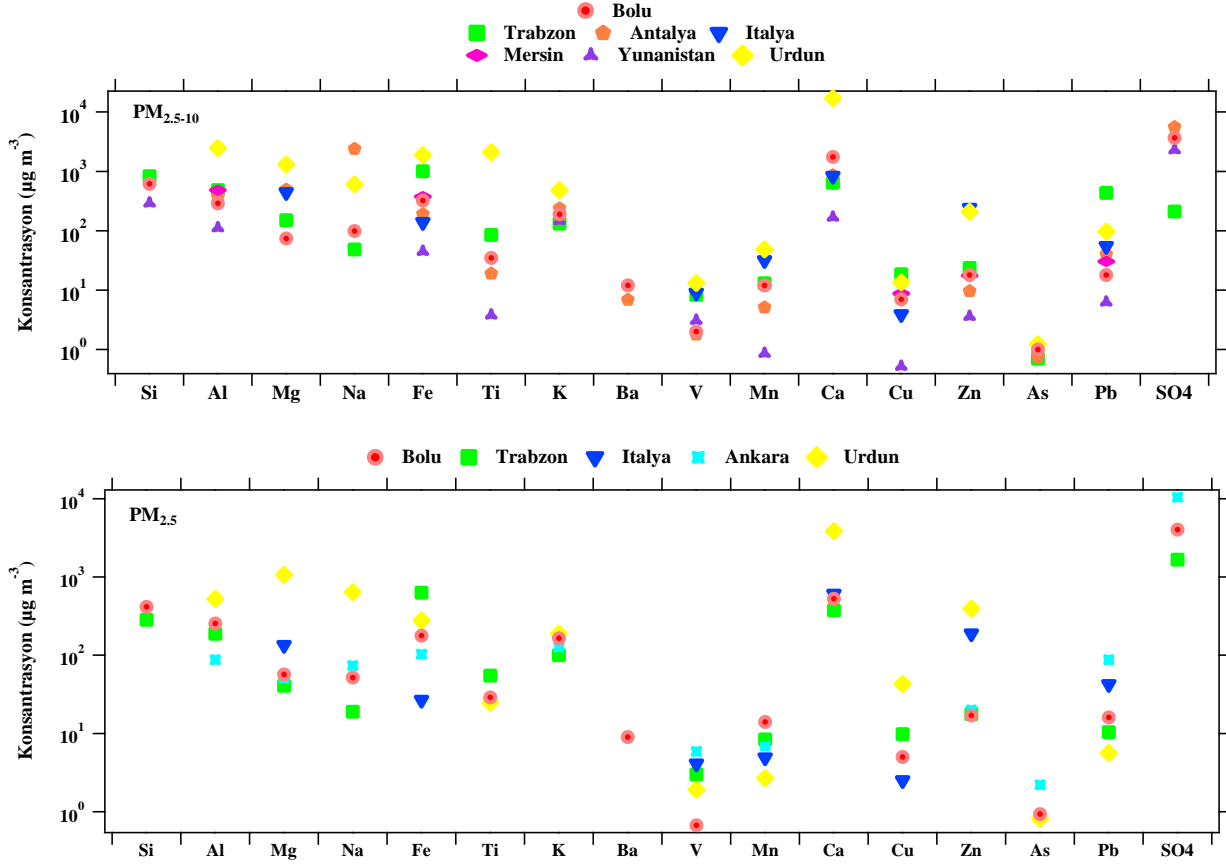
4. SONUÇLARIN DEĞERLENDİRİLMESİ

4.1. Metal konsantrasyonlarının değerlendirilmesi

Bu çalışmada ölçülen elementlerin konsantrasyonları diğer çalışmalar ile kıyaslandığında en yüksek sülfat konsantrasyonunun Bolu şehir merkezinde ölçüldüğü bulunmuştur. Yatın ve arkadaşlarının (2000) yılında Ankara şehir merkezinde toplanan PM_{2.5} örneklerinde sülfat konsantrasyonu 10488 ng m⁻³ olarak bulunmuştur. Antalya'da yapılan bir diğer çalışmada ise PM₁₀ fraksiyonunda kış mevsiminde ölçülen ortalama sülfat konsantrasyonu 5583 ng m⁻³ olarak tespit edilmiştir (Öztürk vd., 2012).

Kış mevsiminde yapılan diğer çalışmalardaki bulunan değerlerle Bolu şehir merkezinde yapılan ölçümlerle kıyaslanmış ve konsantrasyonlar Şekil 4'de gösterilmiştir. Bu çalışmada bulunan sülfat konsantrasyonunun diğer çalışmalara oranla daha yüksek çıktığı bulunmuştur.

Magnezyum elementi ise karşılaştırma yapılan diğer çalışmalara göre en düşük seviyede bulunmuştur.



Şekil 4. PM_{2.5-10} ve PM_{2.5} metal konsantrasyonlarının literatür ile karşılaştırılması

4.2. OC/EC konsantrasyonlarının değerlendirilmesi

Bu çalışmada kış mevsiminde ölçülen OC ve EC konsantrasyonlarının PM_{2.5} kütlesi ile güçlü korelasyon ($R \geq 0.90$, $p < 0.001$) gösterdiği bulunmuştur. Ayrıca OC ve EC arasında da güçlü bir korelasyon ($R \geq 0.94$, $p < 0.001$) olduğu saptanmıştır.

Yittri ve arkadaşlarının (2007) 2002-2003 yılları arasında kırsal alanda yaptıkları çalışmada PM₁₀ kompozisyonunun % 30 unu karbonlu bileşiklerin oluşturduğunu bulmuşlardır. Ayrıca bu karbonlu bileşiklere organik karbonun kütlece katkısı % 27 ± 9 seviyesinde gözlenirken, elemental karbonun katkısı % 3.4 ± 1 olarak belirlenmiştir. Ayrıca aynı çalışmada organik madde konsantrasyonunun sülfata kıyasla daha yüksek olduğu bulunmuştur. Yine aynı şekilde farklı bölgelerde yapılan bir çalışmada, Putaud vd. OC ve EC' nun PM₁₀ kütlesindeki katkısı % 25-40 iken PM_{2.5} % 30-50 arasında olduğunu göstermiştir.

Feng ve arkadaşları(2009) Çin, Japonya, Tayvan ve Kore'de OC ve EC ile ilgili yapılan çalışmaları değerlendirmiştir. Yapılan çalışmalar doğrultusunda EC sadece birincil kaynaklardan salındığını ve atmosferde oluşmadığını kanıtlamışlardır. OC ise hem birincil

kaynaklardan salındığını hem de atmosferdeki fotokimyasal tepkimeler sonucunda oluştuğunu bulmuşlardır. Özellikle şehir merkezlerinde, trafiğin yoğun olduğu bölgelerde (otoban gibi) ve endüstriyel faaliyetlerin yoğun olduğu bölgelerde OC ve EC değerlerinin yüksek çıktığı görülmektedir. Ayrıca kırsal alanlarda yapılan çalışmalarda ise OC ve EC değerlerinin şehir merkezlerine göre daha düşük çıktığı görülmektedir.

4.3. Kirlenme kaynaklarının belirlenmesi

Bu çalışmada üretilen veri setine faktör analizi uygulanarak PM kompozisyonunu etkileyen kirlenme kaynakları belirlenmeye çalışılmıştır. Faktör analizi hem kaba hem de ince fraksiyona ayrı ayrı uygulanmıştır. Kaba fraksiyonda kirlenme kaynakları toprak ve odun-kömür yanması olarak bulunurken, ince fraksiyonda kirlenme kaynakları toprak, kömür-odun yanması ve petrol yakılması olarak bulunmuştur.

5. TEŞEKKÜR

Bu çalışma kapsamında örneklerin toplanmasında kullanılan cihazları ve her türlü desteği sağlayan Prof. Dr. Gürdal TUNCER'e ve Dr. Seyfi REMZİOĞLU teşekkürü bir borç biliriz. Ayrıca Devlet Meteoroloji Genel Müdürlüğü'ne katkılarından dolayı teşekkür ederiz.

KAYNAKLAR

Alastuey, A., Querol, X., Castillo, X., Avila, A., Cuevas, E., Estarellas, C., Torres, C., Exposito, F., Garcia, O., Diaz, J. P., Van Dingenen, R., and Putaud, J. P., 2005. Characterisation of TSP and PM_{2.5} at Izaña and Sta. Cruz de Tenerife (Canary Islands, Spain) During a Saharan Dust Episode (July 2002), *Atmos. Environ.* 39, 4715–4728.

Birch, M., Cary, R., 1996. Elemental carbon-based method for monitoring occupational exposures to particulate diesel exhaust, *Aerosol Science and Technology* 25(3), 221-241.

Birmili, W., Allen, A., Bary, F., and Harrison, R., 2006. Trace Metal Concentrations and Water Solubility in Size-Fractionated Atmospheric Particles and Influence of Road Traffic, *Environ. Sci. Technol.*, 14, 1144–1153.

Bukowiecki, N., Lienemann, P., Hill, M., Figi, R., Richard, A., Furger, M., Rickers, K., Falkenberg, G., Zhao, Y., Cliff, S. S., Prevot, A. S. H., Baltensperger, U., Buchmann, B., and Gehrig, R., 2009. Real-world emission factors for antimony and other brake wear related trace elements: Size-segregated values for light and heavy duty vehicles, *Environ. Sci. Technol.*, 43, 8072–8078.

Cooke, W.F., Liousse, C., Cachier, H., Feichter, J., 1999. Construction of a 1 degrees x 1 degrees fossil fuel emission data set for carbonaceous aerosol an dimplementation and radiative impact in the ECHAM4 model. *J.Geophys.Res.*104(D18), 22137–22162.

Fantozzi, F., Monaci, F., Blanusa, T., Bargagli, R., 2013. Holm Oak (*Quercus ilex*) canopy as interceptor of airborne trace elements and their accumulation in the litter and topsoil. *Environ. Pollut.* 183, 89-95.

6. Ulusal Hava Kirliliği ve Kontrolü Sempozyumu-2015
7-9 Ekim 2015, İZMİR

- Feng, Y., Chen, Y., Guo, H., Zhi, G., Xiong, S., Li, J., Sheng, G., Fu, J., 2009. Characteristics of organic and elemental carbon in PM_{2.5} samples in Shanghai, China. *Atmos. Res.* 92, 434–442.
- Gavett, S. H., Haykal-Coates, N., Copeland, L. B., Heinrich, J., and Gilmour, M. I.: Metal Composition of Ambient PM_{2.5} Influences Severity of Allergic Airways Disease in Mice, *Environ. Health Perspect.*, 111, 1471–1477, doi:10.1289/ehp.6300, 2003.
- Grigoratos, T., Samara, C., Voutsas, D., Manoli, E., Kouras, A., 2014. Chemical composition and mass closure of ambient coarse particles at traffic and urban background sites in Thessaloniki, Greece. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 21, 7708-7722.
- Guastadisegni, C., Kelly, F. J., Cassee, F. R., Gerlofs-Nijland, M. E., Janssen, N. A., Pozzi, R., Brunekreef, B., Sandstrom, T., and Mudway, I. S., 2010. Determinants of the Proinflammatory Action of Ambient Particulate Matter in Immortalized Murine Macrophages, *Environ. Health Perspect.*, 118, 1728–1734.
- Heinrich, J., Slama, R., 2007. Fine particles, a major threat to children, *International Journal of Hygiene and Environmental Health* 210, 617–622
- Hueglin, Ch., Gehring, R., Baltensperger, U., Gysel, M., Monn, Ch., Vonmont, H., 2005. Chemical characterization of PM_{2.5}, PM₁₀ and coarse particles at urban, near-city and rural sites in Switzerland, *Atmospheric Environment* 39 637–651.
- Ho, W.Ch., Hartley, W.R., Myers, L., Lin, M.H., Lin, Y.S., Lien, Ch.H., Lin, R.S., 2007. Air pollution, weather, and associated risk factors related to asthma prevalence and attack rate, *Environmental Research* 104, 402–409.
- Jacobson, M.Z., 2001. Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols. *Nature* 409, 695–697.
- Keleş, M. 2014. PM_{2.5} ve PM₁₀ fraksiyonlarında belirlenen Organik ve Elemental karbon konsantrasyonlarının zamansal değişiminin Bolu yarı-kırsalında incelenmesi. Yüksek lisans Tezi, Abant İzzet Baysal Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Bolu, Türkiye.
- Kuloglu E, Tuncel G 2005 Size distribution of trace elements and major ions in the eastern Mediterranean atmosphere. *Water Air Soil Poll* 167:221-241.
- Lin, C., Chen, S. and Huang, K., 2005. Characteristics of metals in nano/ultrafine/fine/coarse particles collected beside a heavily trafficked road, *Environ. Sci. Technol.*, 39, 8113–8122.
- Liousse, C., Penner, J.E., Chuang, C., Walton, J.J., Eddleman, H., Cachier, H., 1996. A global three-dimensional model study of carbonaceous aerosol. *J. Geophys. Res.* 101, 19411–19432.
- Lv, J., Liu, Y., Zhang, Z., Dai, B., 2014. Multivariate geostatistical analyses of heavy metals in soils: spatial multi-scale variations in Wulian, Eastern China. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 107, 140-147.

6. Ulusal Hava Kirliliği ve Kontrolü Sempozyumu-2015 7-9 Ekim 2015, İZMİR

Manalis, N., Grivas, G., Protonotarios, V., Moutsatsou, A., Samara, C., Chaloulakou, A., 2005. Toxic metal content of particulate matter, within the Greater Area of Athens, *Chemosphere* 60 557–566.

Masiello, C.A., 2004. New directions in black carbon organic geochemistry. *Mar. Chem.* 92(1-4),201–213, <http://dx.doi.org/10.1016/j.marchem.2004.06.043>

Mkoma SL, Maenhaut W, Chi X, Wang W, Raes N, 2009. Characterisation of PM₁₀ atmospheric aerosols for the wet season 2005 at two sites in East Africa. *Atmos Environ* 43: 631-639.

Moreno, T., Querol, X., Alastuey, A., Reche C., Cusack M., Amota F., Pandolfi M., Pey, J., Richard A., Minguillón, M. C., Prevot A.S.H., Furger M, and Gibbons, 2011. Variations in time and space of trace metal and aerosols concentration in urban areas and their surroundings, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 9415–9430.

Nriagu, J.O., 1990. Global metal pollution: poisoning the biosphere? *Environ. Sci. Policy Sustain. Dev.* 32, 7-33.

Odumo, B., Carbonell, G., Angeyo, H., Patel, J., Torrijos, M., Rodríguez Martín, J., 2014. Impact of gold mining associated with mercury contamination in soil, biota sediments and tailings in Kenya. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 1-10.

Öztürk, F., Zararsız, A., Dutkiewicz, V.A., Husain, L., Hopke, P.K., Tuncel, G., 2012. Temporal variations and sources of Eastern Mediterranean aerosols based on a 9-year observation. *Atmospheric Environment* 61, 463–475.

Öztürk, F., ve Keleş, M., 2015. Wintertime Chemical Compositions of Coarse and Fine Fractions of Particulate Matter in Bolu, Turkey. *Basıma hazırlanıyor.*

Patearaki, St., Assimakopoulos, V.D., Bougiatioti, A., Kouvarakis, G., Mihalopoulos, N., Vasilakos, Ch., 2012. Carbonaceous and ionic compositional patterns of fine particles over an urbanMediterranean area. *Science of the Total Environment*; 424, 251-263.

Querol, X., Alastuey, A., De La Rosa, J., Sanchez, A., Plana, F., and Ruiz, C. R., 2002. Source apportionment analysis of atmospheric particulates in an industrialised urban site in south-western Spain, *Atmos. Environ.*, 36, 3113–3125.

Rodríguez Martín, J.A., Arana C. De, Ramos-Miras, J.J., Gil, C., Boluda, R., 2013c. Spatial relations of heavy metals in arable and greenhouse soils of a Mediterranean environment region (Spain). *Geoderma* 200-201, 180-188.

Samek L., 2009. Chemical characterization of selected metals by X-ray fluorescence method in particulate matter collected in the area of Krakow, Poland, *Microchemical Journal* 92 140–144.

Salma I, Chi X, Maenhaut W, 2004. Elemental and organic carbon in urban canyon and background environments in Budapest, Hungary. *Atmos Environ* 38: 27-36.

6. Ulusal Hava Kirliliği ve Kontrolü Sempozyumu-2015 7-9 Ekim 2015, İZMİR

Sawidis, T., Breuste, J., Mitrovic, M., Pavlovic, P., Tsigaridas, K., 2011. Trees as bioindicator of heavy metal pollution in three European cities. *Environ. Pollut.* 159, 3560-3570.

Schaumann, F., Born, P., Herbrich, A., Knoch, J., and Pitz, M.: Metal-rich ambient particles (PM_{2.5}) cause airway inflammation in healthy subjects, *Am. J. Respir. Crit. Care Med.*, 170, 898–903, 2004.

Sharma, S.K., Mandal, T.K., Saxena, M., Rashmi, Sharma, A. Datta, A. Saud, T., 2014. Variation of OC, EC, WSIC and trace metals of PM₁₀ in Delhi, India. *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics* 113, 10–22.

Zhao, P., Dong, F., Yang, Y., He, D., Zhao, X., Zhang, W., Yao, Q., Liu, H., 2013. Characteristics of carbonaceous aerosol in the region of Beijing, Tianjin, and Hebei, China. *Atmospheric Environment*. 71, 389-398.

Yttri, K.E., Aas, W., Bjerke, A., Cape, J.N., Cavalli, F., Ceburnis, D., Dye, C., Emblico, L., Facchini, M.C., Forster, C., Hanssen, J.E., Hansson, H.C., Jennings, S.G., Maenhaut, W., Putaud, J.P., Tørseth, K., 2007. Elemental and organic carbon in PM₁₀: a one year measurement campaign within the European Monitoring and Evaluation Programme EMEP. *Atmospheric Chem. Phys.* 7, 5711-5725.