

BOLU İL MERKEZİNDE TOPLANAN PARTİKÜL MADDE ÖRNEKLERİNİN KİMYASAL KOMPOZİSYONUNUN PARÇACIK BOYUTU İLE DEĞİŞİMİN İNCELENMESİ

Soulemane Halif NGAGINE, Melek KELEŞ, Fatma ÖZTÜRK^(*)

Abant İzzet Baysal Üniversitesi, Mühendislik Mimarlık Fakültesi, Çevre Mühendisliği
Bölümü, Gölköy Kampüsü/BOLU

ÖZET

Havada bulunan partikül maddenin (PM) insan sağlığı üzerindeki etkisi partikül maddenin kimyasal ve fiziksel özelliklerine ve insanların partikül maddeye maruz kalma sürelerine bağlı olarak değişmektedir. Partikül madde kütlesinin zamanla değişimini izlemek tek başına yerel hava kirliliğinin boyutlarını anlamak için yeterli olmamaktadır. Partikül maddenin insan sağlığı üzerindeki etkisini belirleyen en önemli özelliklerinden biriside parçacığın büyüklüğüdür. Özellikle parçacık boyutu 2.5 µm'nin altında olan partikül maddenin insan sağlığını olumsuz yönde etkilediği bilindiğinden bu parçacık boyutunda olan partiküllerin ayrıntılı kimyasal kompozisyonunun belirlenmesi oldukça büyük önem taşımaktadır. Bu çalışma kapsamında değerlendirilen örnekler Bolu şehir merkezinde Temmuz-Ağustos 2015 tarihleri arasında kaskat örnekleyici kullanılarak kuvars filtre üzerinde sekiz farklı parçacık boyutunda (9.0-10.0 µm, 5.8-9.0 µm, 4.7-5.8 µm, 3.3-4.7 µm, 2.1-3.3 µm, 1.1-2.1 µm, 0.65-1.1 µm, 0.43-0.65 µm) toplanmıştır. Toplanan örnekler alüminyum folyaya sarılmış, etiketlenmiş ve daha sonra ağzı kilitli poşetlere yerleştirilerek analiz anına kadar -18 °C'de saklanmıştır. Analizden önce örnekler sabit nem ve sıcaklıkta sabit tartıma getirilmiş ve daha sonra hassas terazi ile filtreler üzerinde toplanan partikül maddenin ağırlığı belirlenmiştir. Daha sonra örnekler dört parçaya bölünmüş ve her parçacığın ağırlığı belirlenmiştir. Örneklerin ilk parçasında elementel ve organik karbon (sırasıyla EC ve OC), ikinci parçasında ise ana iyonlar (SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, NH₄⁺, K⁺, Ca²⁺ ve Mg²⁺) belirlenmiştir. PM kütlesi ve örneklerde belirlenen parametrelerin parçacık boyutuna göre dağılımı incelenmiştir. PM, OC, EC'nun iki tepeli dağılım gösterdiği belirlenmiştir. Analiz edilen iyonlardan NO₃⁻, Cl⁻, K⁺, ve Ca²⁺ iki tepeli dağılım gösterirken, SO₄²⁻ ve NH₄⁺ iyonlarının tek tepeli dağılım gösterdiği belirlenmiştir.

ABSTRACT

The impact of particulate matter (PM) on human health depends on the chemical and physical properties of PM and the duration that human exposed to this pollutant. The monitoring of PM mass alone does not contribute much to explore the air quality in a specific area. One of the most significant properties of PM affects human health is the particle size. It is well reported in the literature that particles with aerodynamic diameter less than 2.5 µm adversely affect human health. As a results, the identification of chemical composition of these particles is the most crucial. In the framework of this study, size segregated samples were collected on quartz filters by using a cascade impactor at a station located in Bolu city center. The

* oztfatma@gmail.com

impactor contained nine filters (9.0-10.0 μm , 5.8-9.0 μm , 4.7-5.8 μm , 3.3-4.7 μm , 2.1-3.3 μm , 1.1-2.1 μm , 0.65-1.1 μm , 0.43-0.65 μm , <0.43 μm) in series and exposed to air for 24-hours to collect daily PM. The collected samples were first wrapped to aluminium foil, labeled and placed in ziplock bags and keep in -18 °C till analysis. Prior to analysis, samples were conditioned at constant temperature and humidity, and weighed with 0.01 mg sensitivity microbalance to determine the PM mass collected on the filter. The filters were divided into four parts and each part was weighed separately. Elemental and organic carbon (hereafter, EC and OC, respectively) were determined in the first quarter of the filter while major ions (SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- , NH_4^+ , K^+ , Ca^{2+} and Mg^{2+}) were analyzed in the second one. The rest of the filters were archived for further analysis. The distribution of PM mass and other measured parameters in the filter samples were evaluated with respect to particle size. It has been found that PM, OC and EC depicted bimodal distribution. While NO_3^- , Cl^- , K^+ , and Ca^{2+} showed typical bimodal distribution, unimodal distribution were observed for SO_4^{2-} and NH_4^+ .

ANAHTAR SÖZCÜKLER

Partikül Madde, Kaskat Örnekleyici, Ana iyonlar, Metaller, Organic Karbon (OC), Elemental Karbon (EC)

1. GİRİŞ

Atmosferdeki aerosoller doğal ve antropojenik kaynaklı olmak üzere iki sınıfa ayrılmaktadır. Doğal kaynaklı aerosoller deniz tuzları, volkanik patlamalar, orman yangınları sonucu atmosfere verilirken, antropojenik kaynaklı aerosoller ise trafik emisyonları, evsel ısınma ve endüstriyel faaliyetleri sonucu atmosfere salınmaktadır. Ayrıca atmosferde bulunan aerosollerin bir kısmı gaz halinde bulunan parçacıkların bir takım tepkimeler sonucunda oluşmaktadır. Partikül maddenin fiziksel ve kimyasal özelliğini belirlemek için yapılan araştırmalarda partikül maddenin insan sağlığı (Harrison ve Yin, 2000; Lippmann, 1997; Thurston vd., 1994; Schwartz vd., 1996; Anderson, 2000; Dockery ve Pope, 1994; Nel, 2005), iklim (Ackerman vd., 2000; Jacobson vd., 2002; Ram vd., 2008) ve çevre (Öztürk vd., 2012; Zhuang vd., 1992; Chiapello vd., 1997) üzerinde etkilerinden dolayı son yıllarda önem kazanmaktadır.

Partikül maddenin şekil ve boyutu insan solunum sistemi üzerindeki etkilerinden dolayı önemli bir faktördür. PM nin şekil ve boyutunun yanında kimyasal ve fiziksel özelliği ve birçok diğer faktörler insan sağlığı üzerindeki etkileri arttırmaktadır (Janja Turşic vd., 2007). Farklı aerodinamik çaplardaki PM insan solunum sistemi üzerinde farklı etkiler oluşturmaktadır. Genellikle aerodinamik çapı 10 μm 'den daha küçük olan partiküller solunum sisteminde alveollere kadar taşınmaktadır (Mc Cornac, 1971). Aerodinamik çapı 5 μm 'den küçük olan partiküller burun ve üst solunum yollarında kalırken, 1-2 μm 'den küçük olan partiküller akciğerlerde alveollere kadar taşınmakta ve orada kalmaktadırlar. Özellikle havada bulunan elementlerin % 60-80'i 1-2 μm 'den küçük olan partikül maddelerde bulunmaktadır (Infante and Acosta 1990). Aerodinamik çapı 2.5 mm'den küçük olan partiküller ise büyük partiküllere göre daha fazla akut etkiler göstermektedir (Schwartz ve Neas, 2000).

Partikül maddeyi oluşturan ana mekanizmalar ve kaynaklar arasında yoğunlaşma, yanma, toprağın ve deniz tuzunun rüzgar ile atmosfere taşınması sayılabilir. Yanma ile daha çok küçük çaplı sıvı ve katı parçacıklar atmosfere salınırken, karbon (soot) içeren büyük

parçacıklarda atmosfere salınabilmektedir (Gupta vd., 2008). Çapları 2.5 µm'den büyük olan parçacıklar genellikle mekanik prosesler ile oluşmakta ve antropojen ve doğal toprak parçacıklarını içermektedir. Toprağın yanında deniz tuzu ve volkanik patlamalar sonucu atmosfere salınan parçacıklarında yine çapları 2.5 µm'den büyüktür. Çaplarının büyük olmalarından dolayı bu parçacıklar atmosferden kuru çökme yoluyla birkaç saat ile gün arasında değişen çok kısa bir zaman diliminde uzaklaşırlar. Parçacık boyutları 0.1 µm ila 2.5 µm arasında değişen parçacıklar birikme (accumulation) modunda bulunan parçacıklar olarak bilinmekte olup, toplam partikül madde kütesinin önemli bir kısmını oluşturmaktadır. Birikme modunda bulunan parçacıklar genellikle ultra ince daneli partikül maddenin yumaklaşması ile oluştukları gibi buhar fazında bulunan gazların atmosferde halihazırda bulunan parçacıklar üzerine yoğunlaşması ile de oluşabilmektedir. Bu modda bulunan partikül maddelerin parçacık boyutu çok küçük olduğundan atmosferde çok uzun süre kalabilmekte ve uzun mesafeli olarak atmosferde taşınmaktadır.

İnsan sağlığı üzerinde zararlı etkilere sahip olan ve partikül maddenin kimyasal kompozisyonunu oluşturan bileşenler arasında metaller, asitler, organik bileşikler, çözülmüş tuzlar, peroksit ve siyah karbon bulunmaktadır (Lighty vd., 2000). Atmosferde bulunan ince daneli parçacıklar genellikle içerdikleri sülfat, nitrat, amonyum, su, organik ve elemental karbon (sırasıyla OC ve EC) nedeniyle asidik bir karaktere sahipken, kaba daneli parçacıklar toprak kökenli mineralleri, bunların oksitlerini ve deniz tuzunu içerdiklerinden bazik özelliğe sahiptir. Eser elementler, nitrat ve organik karbon her iki parçacık boyutunda da bulunurken, OC'nın çoğunğunun ince daneli partikül madde ile ilişkili olduğu bulunmuştur (Saarikoski, 2008).

Yapılan bu çalışma ile Bolu şehir merkezine ait farklı boyutlarda partikül madde örnekleri toplandı ve toplanan örneklerin kimyasal kompozisyonları her bir fraksiyon için belirlendi. Proje kapsamında yapılan bu çalışmada her bir fraksiyona ait örneklerde iyonlar ve elemental karbon ve organik karbon açısından analiz edilerek her bir fraksiyondaki dağılımı belirlendi.

2. MATERYAL VE METOD

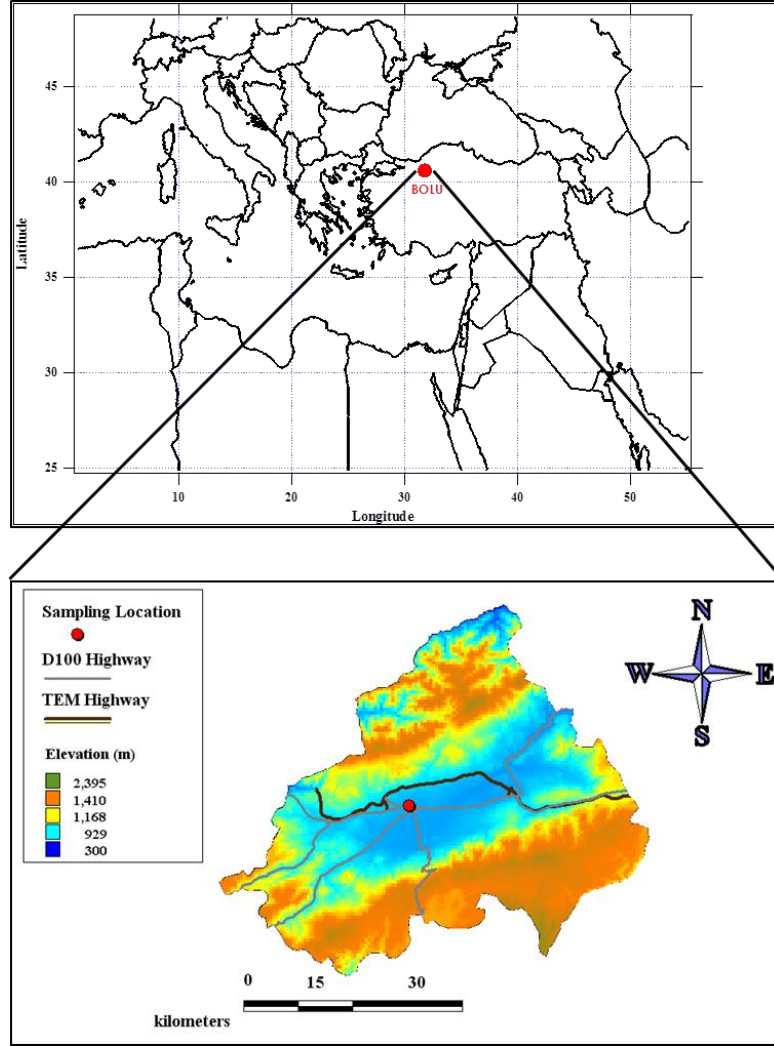
2.1 Örneklerin toplanması

Örnekleme çalışması şehir merkezinde bulunan Devlet Meteoroloji Genel Müdürlüğü'nün bahçesinde bulunan istasyonda gerçekleştirilmiştir. Örnekleme noktası Şekil 1'de gösterilmiştir.

Örnekleme için sekiz katmandan oluşan (9.0-10.0 µm, 5.8-9.0 µm, 4.7-5.8 µm, 3.3-4.7 µm, 2.1-3.3 µm, 1.1-2.1 µm, 0.65-1.1 µm, 0.43-0.65 µm) kaskat impaktör (Thermo Fisher Scientific Inc., ABD) kullanılmıştır. Örnekleme hızı 28.3 L/dk hava akımına göre tasarlanmıştır. Örneklerin toplanması için, cihazın her katmanında bulunan 81 mm çapında kuvars (PALL) filtreler kullanılmıştır. Örneklerin çapı ise her katmana göre değişmekte ve yukarıdan aşağıya doğru azalmaktadır.

PM örnekleri kuvars filtreler üzerinde toplanmıştır. Kuvars filtreler, yapılarında bulunan kirlenmeleri uzaklaştırmak için de kullanılmadan önce 900°C'de üç saat boyunca kül fırınında yakılmıştır. Kül fırınında yakılan filtreler örneklemeden önce ve örneklemeden sonra sabit nem (% 40 ± 5) ve sıcaklıkta (20 °C ± 2) bekletilerek tartım için hazır hale getirilmiştir ve örneklerin boş ve dolu ağırlıkları belirlenmiştir.

Toplanan PM örnekleri dört eşit parçaya ayrılmış ve herbir parça ayrı ayrı tartılmıştır. Herbir parça analiz edileceği parametre göz önünde bulundurularak ayrı ayrı etiketlenmiş ve analiz anına kadar -18 °C’de tutulmuştur.



Şekil 1. Örnekleme noktasının konumu (Öztürk ve Keleş, 2015)

2.2 PM örneklerinin EC ve OC açısından analiz edilmesi

Toplanan örneklerde EC ve OC içeriği Sunset Laboratvarı (ABD)’dan temin edilen *OCEC Termal Optik Karbon Aerosol Analizörü* kullanılarak analiz edilmiştir. OCEC analizörünün çalışma prensibi yüksek sıcaklıklardaki ısıl desorpsiyonu ile cihaz içerisinde bulunan lazer ışığının optik transmisyonunun birleşmesi ile oluşmakta olup, quartz filtre üzerinde toplanan karbon bileşiklerini iki fraksiyona ayırma işlemine dayanmaktadır.

Filtre üzerinden 1.5 cm² alanında filtre kesilerek analiz edilmektedir. Analiz iki kısımdan oluşmaktadır. İlk kısımda OC analizi gerçekleştirilirken, ikinci kısımda ise EC analizi gerçekleştirilmektedir. OC analizi sırasında sıcaklık dört kademedede 870 °C’e çıkmakta ve

OC'na ait dört farklı pik vermektedir. OC analizi gerçekleştirildikten sonra sıcaklık aniden düşmekte ve bundan sonra EC analizi için tekrar yükselmeye başlamaktadır. EC analizi için sıcaklık tekrar yükselmeye başlamakta ve burada EC' ait pikler termogram üzerinde gösterilmektedir. Analiz sonunda her bir pike ait OC ve EC değerleri verilmekte ve cihaz tarafından otomatik olarak OC ve EC pikleri ayrılmaktadır (split point).

2.3 PM örneklerinin iyonlar açısından analiz edilmesi

İyon analizleri için ayrılan filtrelerin ağırlıkları belirlendikten sonra örnekler küçük parçalara ayrılarak beherlere alınmış ve üzerlerine 7 mL 18.3 MΩ de-iyonize su eklenmiştir. Filtre üzerinde bulunan partiküllerin suya kolay geçmesi için, beherler Bandelin Sonorex marka ultrasonik karıştırıcıda 45 dakika tutulmuştur. Karıştırma işlemi tamamlanan örnekler, oda koşullarında yarım saat bekletilmiştir. Oda sıcaklığına gelen örnekler 0.22 µm gözenekli şırınga filtrelerden süzülerek steril deney tüplerine doldurulmuştur. Hazırlanan örnekler analiz edilene kadar buzdolabında bekletilmektedir.

Sıvı faza alınan örneklerde anyon (F^- , Cl^- , NO_2^- , Br^- , NO_3^- , PO_4^{3-} ve SO_4^{2-}) ve kation (Li^+ , Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , ve Ca^{2+}) analizleri AİBÜ Çevre Mühendisliği'nde bulunan Thermo Scientific Dionex ICS 1100 (ICS-1100) marka İyon Kromatografi cihazı kullanılarak yapılmıştır.

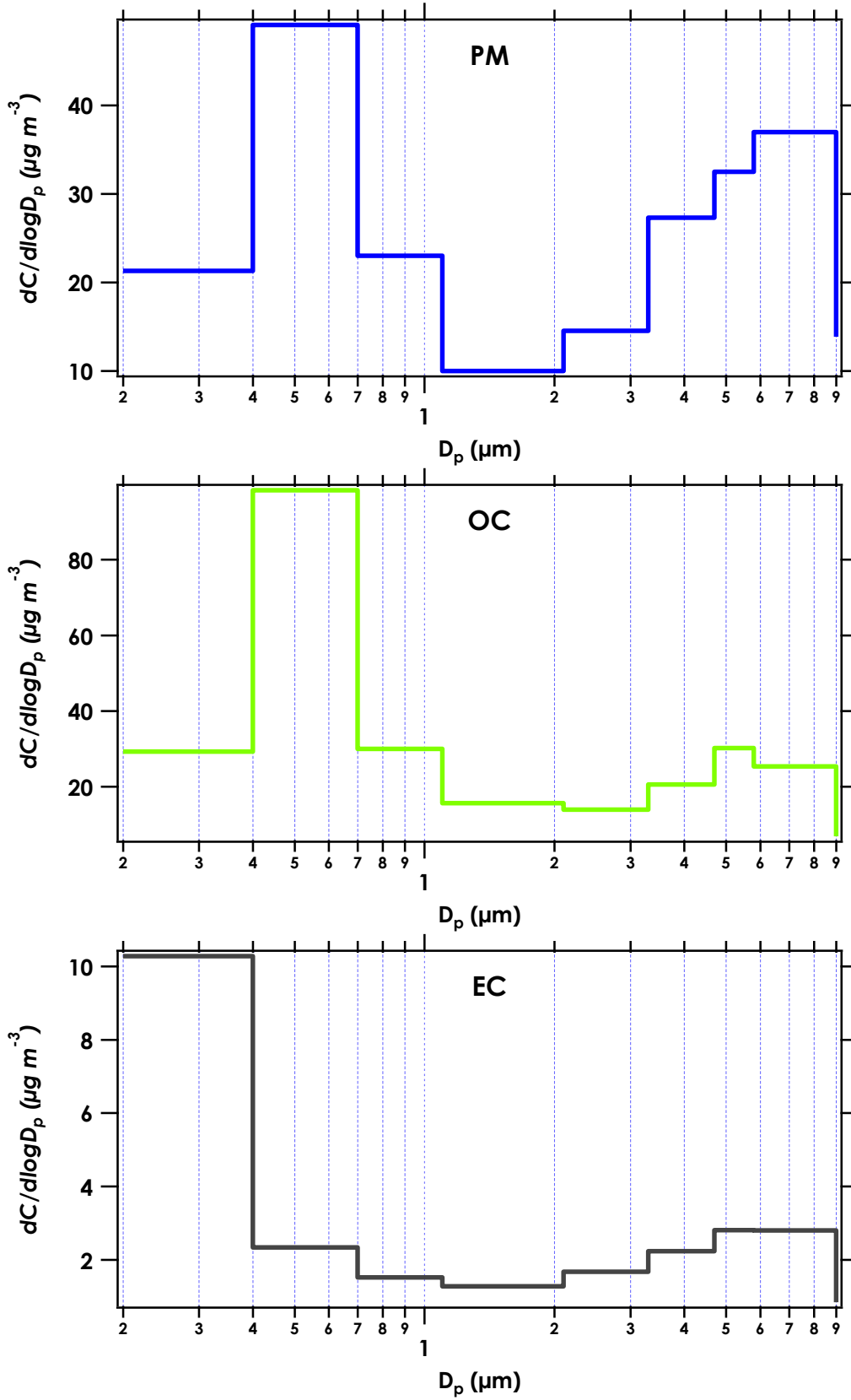
3. SONUÇLAR

Bu çalışmada 17 Temmuz-12 Ağustos arasında kaskat örnekleyici ile dokuz farklı parçacık boyutunda toplanan PM örneklerinin içerikleri EC/OC ve ana iyonlar açısından belirlenmiştir. Elde edilen bulguların istatistiksel özeti Tablo 1'de sunulmuştur.

Tablo 1. Çalışmada belirlenen parametrelere ait istatistiksel özet (Birim:µg/m³)

Parametre	PM ₁₀	PM ₄	PM ₁	Parametre	PM ₁₀	PM ₄	PM ₁
PM Kütle	52.8	32.4	24.1	Cl ⁻	0.103	0.056	0.032
OC	61.5	48.8	40.6	Ca ²⁺	3.13	1.48	0.68
EC	6.4	5.0	4.1	NH ₄ ⁺	1.66	1.62	1.45
SO ₄ ²⁻	6.1	5.7	5.2	K ⁺	0.653	0.413	0.317
NO ₃ ⁻	1.06	0.64	0.36				

PM₁₀, PM₄, ve PM₁ kütlelerinin hesap edilmesinde Aryal vd. (2013) tarafından kullanılan yöntem takip edilmiştir. Çalışma kapsamında değerlendirilen parametrelerden en yüksek ortalama konsantrasyon değeri PM₁₀ fraksiyonunda 61.5 µg/m³ ile OC için hesaplanmıştır. EC ve SO₄²⁻ için PM₁₀ fraksiyonunda ortalama konsantrasyon değeri sırasıyla 6.4 ve 6.1 µg/m³ olarak bulunmuştur. Analiz edilen diğer parametrelere ait ortalama konsantrasyon değeri ise 0.103 ve 3.13 µg/m³ arasında değişmektedir. Çalışmada herbir katmanda ölçülen değerlerin o katmana ait kesme çapı (cut-off diameter) ile değişimi Şekil 2'de sunulmuştur.



Şekil 2. PM, OC ve EC konsantrasyonlarının parçacık çapı ile değişimi

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

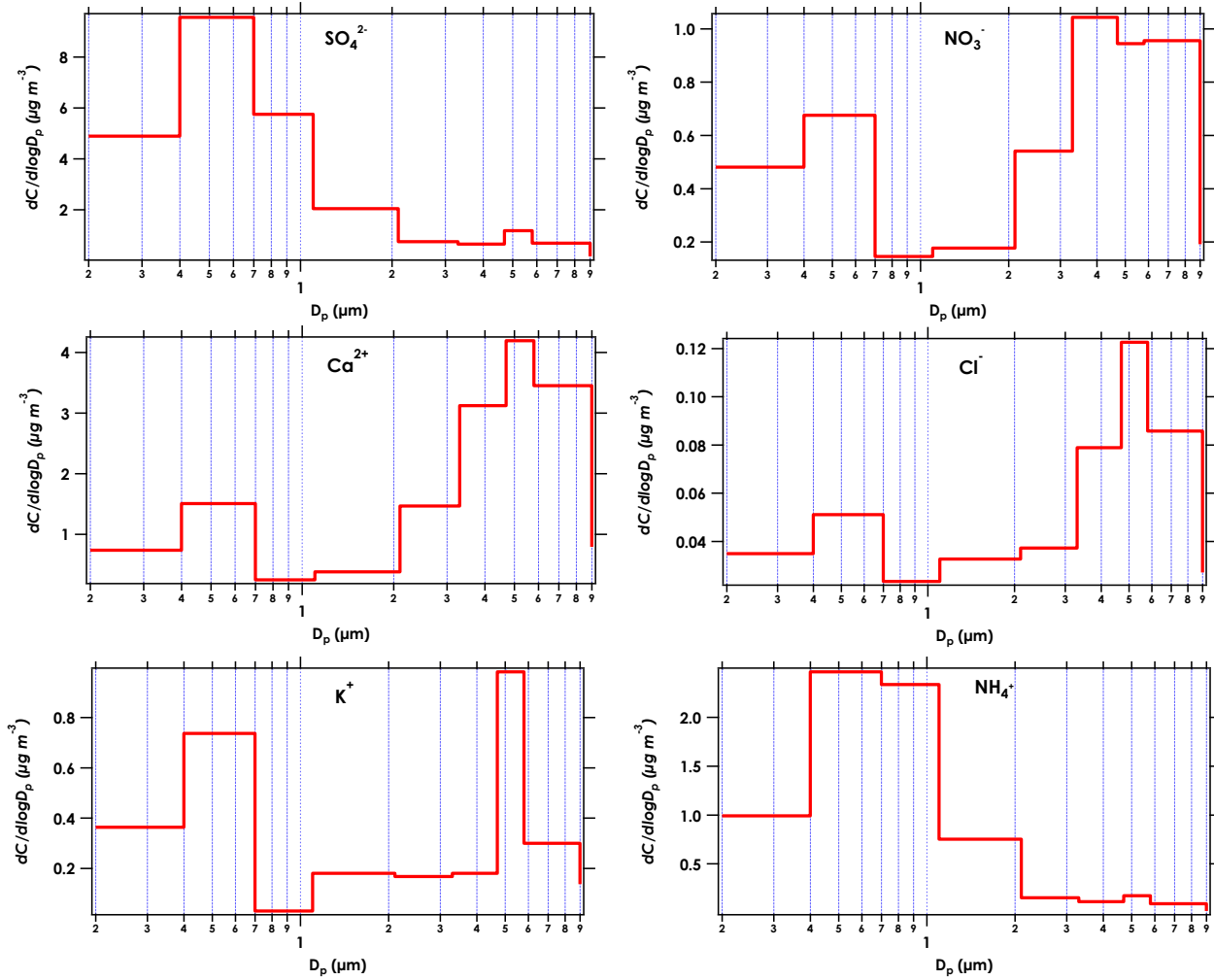
Şekil 2'den görüldüğü gibi, PM, OC ve EC konsantrasyonlarının parçacık boyutu ile değişimleri iki tepeli dağılım göstermektedir. PM konsantrasyonunun biri 0.4-0.7 μm arasında diğeri de 6-8 μm arasında iki pik gösterdiği, ancak birinci pikde gözlemlenen konsantrasyon değerinin ikinci pikde gözlemlenen değere göre oldukça yüksek olduğu Şekil 2'den açıkça görülmektedir. Tablo 1'de PM_{10} ve PM_1 konsantrasyon değerlerinin, sırasıyla, 52.8 ve 24.1 $\mu\text{g m}^{-3}$ olduğu verilmiştir. Bu değerlerden PM_1 konsantrasyonunun PM_{10} konsantrasyonuna katkısının yaklaşık olarak % 46 olduğu sonucu çıkarılabilir. Antropojen kaynaklardan atmosfere salınan PM'in daha çok küçük parçacık boyutunda gerçekleştiği bilindiğinden, Bolu şehir merkezinde hava kalitesini belirleyen en önemli kirlenici kaynağının antropojen faaliyetler olduğunu söylemek hiçde yanlış olmayacaktır.

OC konsantrasyonunun parçacık çapı ile değişimi Şekil 2'de sunulmuştur. OC biri 0.4-0.7 μm 'de diğeri yaklaşık olarak 5-6 μm 'de olmak üzere iki pik gösterdiği görülmektedir. PM dağılımından farklı olarak, OC dağılımının ikinci pikine karşılık gelen konsantrasyon değerine kıyasla oldukça düşük olduğu görülmektedir. EC konsantrasyonunun parçacık boyutuna bağlı olarak değişimi de PM ve OC konsantrasyonlarında olduğu gibi bimodal dağılım göstermektedir. Ancak EC konsantrasyonunun dane çapları 0.4 μm 'den küçük olan parçacıklarda daha yüksek olduğu Şekil 2'den görülebilir. EC konsantrasyonu kaba fraksiyonda 5.0-9.0 μm arasında ikinci pik değerine sahip olup, bu değere karşılık gelen konsantrasyonun ilk pike karşılık gelen konsantrasyona kıyasla oldukça küçük olduğu söylenebilir.

Çalışma kapsamında değerlendirilen iyonların (SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- , NH_4^+ , K^+ , ve Ca^{2+}) parçacık boyutu ile değişimi Şekil 3'de sunulmuştur. Bu iyonlardan SO_4^{2-} ve NH_4^+ 'un unimodal (tek tepeli) dağılım gösterirken, diğer iyonların bimodal dağılım gösterdikleri bulunmuştur. Hem SO_4^{2-} hem de NH_4^+ iyonunun 0.4-0.7 μm aralığında azami konsantrasyona ulaştıkları Şekil 3'den çıkarılabilir. Amonyum ve SO_4^{2-} benzer bir trend göstermeleri, ve NO_3^- iyonunun kaba parçacık çapında konsantrasyon değerinin daha yüksek olması, Bolu atmosferinde ikincil inorganik parçacıkların daha çok amonyum sülfat ($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$) formunda bulunduğu sonucuna ulaşmamızı sağlamaktadır. Örneklerin yaz mevsiminde toplanması ve NH_4NO_3 'ün $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 'a göre uçuculuğunun daha fazla olması nedeniyle partikül fazda konsantrasyonun daha az olması bu çalışmada gözlemlenen $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 'ün ince parçacıklar üzerinde baskın tür olmasına açıklık getirmektedir.

Sülfat ve NH_4^+ iyonlarından farklı olarak NO_3^- , hem ince hemde kaba parçacık modunda pik göstermiştir. İnce parçacık modunda pik yaklaşık olarak 0.5 μm çapında gözlenirken, kaba parçacık çapında 4 μm çapında görülmüştür. Kalsiyum ve Cl^- iyonlarına ait konsantrasyon değerlerinin parçacık çapı ile benzer bir dağılım gösterdiği Şekil 3'den açıkça görülebilir. Her iki iyonunun biri 0.4-0.7 μm arasında diğeri ise kaba modda 5 μm çapında iki pike sahip olduğu, ancak kaba modda konsantrasyon değerlerinin daha yüksek olduğu gözlemlenmiştir. Potasyum iyonu NO_3^- iyonunun dağılımına benzer bir dağılım göstermiş, ince parçacık modunda 0.4-0.7 μm çap aralığında bir pik gösterirken, kaba parçacık modunda 4 μm çapta ikinci piki göstermiş ve heriki modda konsantrasyon değerlerinin karşılaştırılabilir olduğu bulunmuştur.

Çalışma kapsamında değerlendirilen iyonlardan Mg^{2+} ve Na^+ sadece kaba parçacık modunda gözlemlenmiş olup, bu sonuç söz konusu iyonların daha çok doğal yollarla atmosfere salınmasıyla açıklanabilir.



Şekil 3. İyon konsantrasyonlarının parçacık çapı ile değişiminin incelenmesi

4. (SONUÇLARIN) DEĞERLENDİRİLMESİ

Bu çalışma kapsamında 17 Temmuz-12 Ağustos 2015 tarihleri arasında PM örnekleri kaskat örnekleyici kullanarak haftalık olarak dokuz farklı parçacık boyutunda toplanmıştır. Toplanan örnekler EC, OC ve ana iyonlar açısından analiz edilmiştir. Örnekleme dönemi boyunca PM₁₀, PM₄ ve PM₁ kütleleri sırasıyla, 52.8, 32.4 ve 24.1 $\mu\text{g/m}^3$ olarak bulunmuştur. PM₁ kütlelerinin PM₁₀ kütlelerine katkısı yaklaşık olarak % 46 olarak belirlenmiş olup bu sonuç ultra-ince parçacıklarına ait konsantrasyonların Bolu şehir atmosferinde hiçde azımsanmayacak seviyelerde olduğunu göstermektedir. Analiz edilen parametrelerden, EC, SO₄²⁻, ve NH₄⁺ unimodal dağılım gösterirken, OC, NO₃⁻, Cl⁻, Ca²⁺, ve K⁺ un bimodal dağılım gösterdiği bulunmuştur. Magnezyum ve Na⁺ iyonları ise sadece kaba parçacık modunda gözlemlenmiştir.

5. TARTIŞMA (VE ÖNERİLER)

Bu çalışmada örnekleme 17 Temmuz-12 Ağustos 2015 tarihleri arasında haftalık olarak gerçekleştirilmiş olup, örnekleme çalışması devam etmektedir. Sonbahar ve kış döneminde de örneklemenin devam etmesi ile toplanan örnekler EC, OC ve iyonlar açısından analiz edilecek ve ölçülen parametrelerin konsantrasyonlarında mevsimsel bir değişim olup olmadığı kontrol edilecektir. Aynı zamanda, bu parametrelerin parçacık çapına bağlı değişimlerinde mevsimsellik gösterip göstermediği belirlenebilecektir.

6. TEŞEKKÜR

Bu çalışma TÜBİTAK ÇAYDAG 114Y429 numaralı proje kapsamında desteklenmiş olup, bu desteğinden dolayı ilgili kuruma teşekkür ederiz.

KAYNAKLAR

Ackerman, A.S., Toon, O.B., Stevens, D.E., Heymsfield, A.J., Ramanathan, V., Welton, E.J., 2000. Reduction of tropical cloudiness by soot. *Science*. 288, 1042-1047.

Anderson, J. R., Agget, F. J., Buseck, P. R., Germani, M. S., & Shattuck, T. 1988. Chemistry of individual aerosol particles from Chandler, Arizona, an arid urban environment. *Environmental*

Aryal, R., Kim, A., Lee, B.K., Kamruzzaman, M., Beecham, S., 2013. Characteristics of Atmospheric Particulate Matter and Metals in Industrial Sites in Korea. *Environment and Pollution* 2(4), ISSN 1927-0909.

Dockery, D. W., and Pope III, C. A. 1994. Acute respiratory effects of particulate air pollution. *Annu. Rev. Public Health* 15, 107–132.

Esra Kuloglu and Gurdal Tuncel, 2005. Size distribution of trace elements and major ions in the Eastern Mediterranean atmosphere. *Science and Technology*, 22, 811–818.

Gupta, S., Srivastava, A., Jain, V.K. 2008. Particle size distribution of aerosols and associated heavy metals in kitchen environments, *Environmental Monitoring and Assessment*, 142, 141-148.

Harrison, R.M., Yin, J., 2000. Particulate matter in the atmosphere: which particle properties are important for its effects on Health. *Science and Total Environmental*, 249, 85–101

Infante, R. and Acosta, I. L.: 1991, 'Size distribution of trace metals in Ponce, Puerto Rico air particulate matter', *Atmos. Environ.* 25B, 121–131.

Jacobson, M.Z., 2002. Control of fossil-fuel particulate black carbon and organic matter, possibly the most effective method of slowing global warming. *Journal of Geo. Research*. 107 (D19), 4410. doi:10.1029/2001JD001376.

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

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.

Lighty, J.S., Veranth, J.M. and Sarofim A.F. 2000. Combustion aerosols: factors governing their size and composition and implications to human health, Journal of the Air & Waste Management Association 50, 1565-1618.

McCormac, B.H., 1971. Introduction to the scientific study of atmospheric pollution. Reide Dordrecht, Holland.

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.

Ram, K., Sarin, M.M., Hegde, P., 2008. Atmospheric abundances of primary and secondary carbonaceous species at two high-altitude sites in India: Sources and temporal variability. Atmospheric Environment. 42, 6785-6796.

Saarikoski, S., Timonen, H., Saarnio, K., Aurela M., Jarvi, L., Keronen, P., Kerminen, V.M. and Hillamo, R., 2008. Sources of organic carbon in fine particulate matter in northern European urban air. Atmospheric Chemistry and Physics. 8, 6281-6295.

Sanchez A.M. Campa, de la., Moreno, T., Dela Rosa, J., Alastuey, A., Querol, X., 2011. Size distribution and chemical composition of metalliferous stack emissions in the San Roque petroleum refinery complex, southern Spain. Journal of Hazardous Materials 190, 713-722.

Schwartz, J., Neas, L.M., 2000. Fine particles are more strongly associated than coarse particles with acute respiratory health effects in schoolchildren. Epidemiology 11 (1), 6-10.

Schwartz, J.; Dockery, D. W.; Neas, L. M., 1996. Is daily mortality associated specifically with fine particles? J. Air Waste Manage. Assoc., 46, 927-939.

Tursic, J.; Podkrajšek, B.; Grgic', I.; Ctyroky, P.; Skantar, J., Cuhalev, I., 2007. Measurements of Size-Segregated Emission Particles by a Sampling System Based on the Cascade Impactor, Environ. Sci. Technol., 42, 878-883