

DÜZCE'DE YARI KENTSEL BİR BÖLGEDE ATMOSFERİK PM10 AEROSOLLERİNDE ELEMENTAL KARBON SEVİYELERİNİN İNCELENMESİ

Seda ASLAN KILAVUZ^{1(*)}, Zehra BOZKURT², Fatma ÖZTÜRK³

¹Kocaeli Üniversitesi, Çevre Mühendisliği Bölümü

²Düzce Üniversitesi Çevre Mühendisliği Bölümü

³Bolu Abant İzzet Baysal Üniversitesi Çevre Mühendisliği Bölümü

ÖZET

Bu çalışmada Düzce ilinde yarı kentsel bir bölgeden toplanan PM10 aerosollerinde EC konsantrasyonları ve mevsimsel değişimleri incelenmiştir. Örnekler nispeten ana yollar ve yerleşim yerlerinden uzak bir bölge olan Düzce Üniversitesi Mühendislik Fakültesi bahçesinde toplanmıştır. 2015 yılı içerisinde yaz ve kış aylarında yüksek hacimli örnekleyiciler ile toplanan PM10 örneklerinde, termal-optik karbon aerosol analizörü kullanılarak EC seviyeleri ölçülmüştür. Elde edilen verilere göre Düzce'de yarı kentsel bölgede EC seviyelerinin 0.17-1.31 $\mu\text{g m}^{-3}$ arasında değiştiği ve ortalama EC konsantrasyonunun 0.49 $\mu\text{g m}^{-3}$ olduğu görülmüştür (PM 10'un ortalama %1.5'u). Aerosollerdeki EC seviyelerinin mevsimsel farklılıklar gösterdiği ve kış aylarındaki ortalama EC konsantrasyonlarının yaz aylarına oranla yaklaşık olarak 1.5 kat fazla olduğu ortaya konmuştur. En yüksek konsantrasyonlar Mart ayında elde edilmiştir. Elde edilen ortalama konsantrasyonlar Dünya'nın diğer bölgelerinde elde edilen verilerle karşılaştırılabilir düzeyde bulunmuştur.

ANAHTAR SÖZCÜKLER

Elemental Karbon, PM10, Hava kirliliği

ABSTRACT

EC concentrations and seasonal variation of PM10 aerosols was investigated in a suburban area of Düzce. Samples were collected from Düzce University Faculty of Engineering garden, which is relatively remote from main roads and settlements. PM10 aerosols were collected with high volume sampler during summer and wintertime 2015. EC concentrations in aerosol samples were measured using thermal optical carbon aerosol analyzer. EC concentrations in suburban area ranged from 0.17-1.31 $\mu\text{g m}^{-3}$ with an annual mean value of 0.49 $\mu\text{g m}^{-3}$ (1.5% of PM10). EC concentrations in aerosols showed seasonal variability, with higher values observed during winter campaign (approximately 1.5 times more than summer). Highest EC values were observed in March. Obtained average concentrations were found comparable with those values in the other regions of the world

(*) sedaaslan@kocaeli.edu.tr

KEYWORDS

Elemental Carbon, PM10, air pollution

1. GİRİŞ

Şehirleşme ve endüstriyel faaliyetlerin artmasıyla birlikte kent merkezlerinde artan hava kirliliği, yarı kentsel ve hatta kırsal bölgeleri de etkileyebilmektedir. Öte yandan yarı kentsel ve kırsal bölgelerde ısınma amaçlı fosil yakıtların kullanımı da hava kirliliğine katkıda bulunmaktadır (Grigoratos vd., 2014; Rodriguez Martin vd., 2015). Artan kirlilik bu bölgelerde özellikle partikül madde (PM) seviyelerinin yükselmesine ve PM'e bağlı olarak havadaki inorganik ve organik kirletici konsantrasyonlarının da artışına neden olmaktadır.

Literatürde yapılan çalışmalarda, kirletici kompozisyonlarına bağlı olarak özellikle PM 10 ve PM 2.5'un insanlar üzerinde ciddi sağlık etkilerine neden olduğu ortaya konmuştur (Heninrich ve Salama, 2007; Ho vd., 2007; Samek, 2009; Patearaki vd., 2012). Atmosferdeki PM konsantrasyonlarını trafik, endüstriyel faaliyetler, fosil yakıtların yakılması vb. antropojenik kaynaklar ile orman yangınları, volkanik faaliyetler, toprak vb. doğal kaynaklar da etkilemektedir. Dolayısıyla yarı kentsel bölgeler de hava kirliliğini antropojenik kaynaklarla birlikte doğal kaynaklarda önemli oranda etkilemektedir. Bu nedenle özellikle bu bölgelerde yapılan kirletici karakterizasyonu çalışmaları kaynakların doğru olarak belirlenmesi açısından önemlidir.

Karbonlu aerosoller PM içerisindeki en önemli kimyasal bileşendirler. Bu aerosoller genellikle organik karbon (OC) ve elemental karbon (EC) içerirler (Feng et al. 2009). Yanma kaynaklı oluşan partikül maddelerinin yaklaşık olarak % 60'ını organik karbon (OC) ve %10'unu ise elemental karbon (EC) oluşturmaktadır (Masiello, 2004). OC binlerce farklı organik bileşeni içerir ve atmosfere, direk emisyon kaynaklarından (birincil OC) veya gaz öncüllerinin atmosferik oksidasyonu sonucu ikincil kaynaklardan yayılır (ikincil OC). EC nin kimyasal yapısı saflaştırılmamış grafit benzer ve daha çok fosil yakıtlar gibi karbonlu materyallerin tam yanmamasından kaynaklanır. EC'nin adsorptif yapısı nedeniyle iklim üzerindeki etkileri yanında havadaki görüş mesafesini de etkilemektedir. Yapılan çalışmalarda atmosferdeki EC'nin bölgesel olarak havanın ısınmasına neden olduğu ve buna bağlı olarak hidrolojik çevrimi etkilediği ortaya konmuştur. Öte yandan katalitik özellikleri nedeniyle yüzeyine tutunan diğer kirleticilerin reaksiyona girerek daha zararlı türlere dönüşmesine olanak sağlamakta ve bu nedenle sağlık açısından zararlı etkileri olmaktadır (Streets vd., 2003; Jianhua vd., 2003; Bond et al., 2004; Haywood et al., 1997; Myhre et al., 1998)

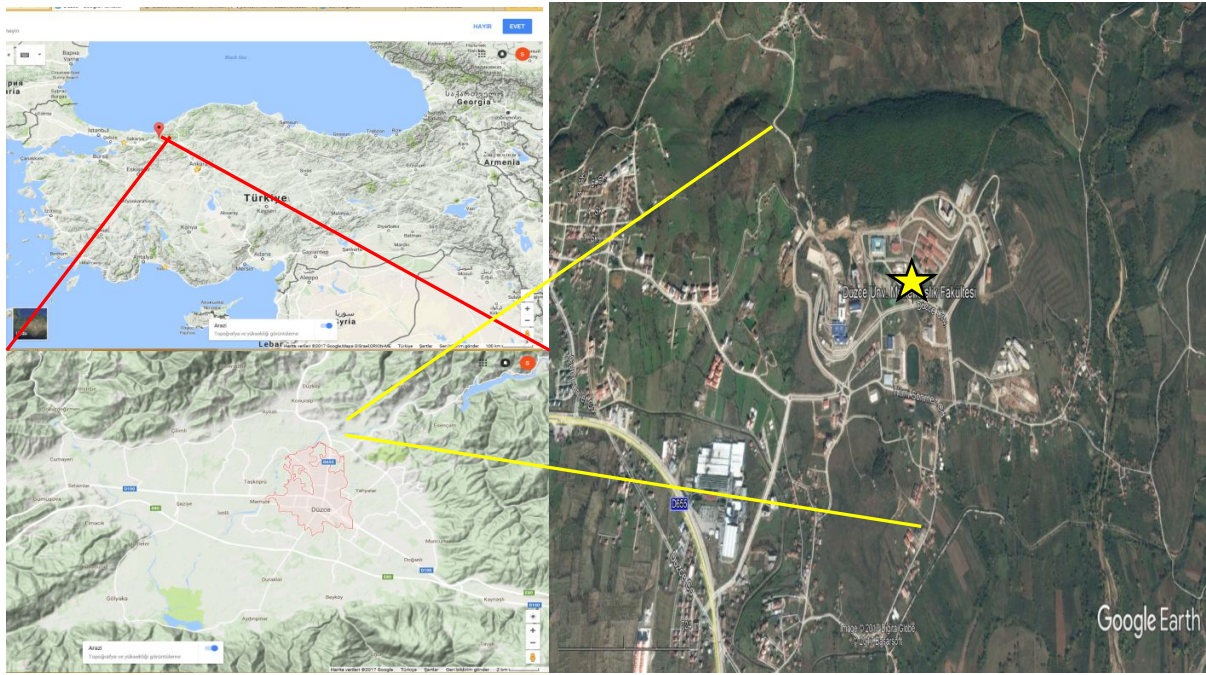
Atmosferdeki elemental karbonun ana kaynakları fosil yakıtlar ve biyokütlenin yakılması sonucu oluşan emisyonlardır (Kondo vd., 2006). Kent atmosferindeki EC'nun en önemli kaynakları başta trafik olmak üzere fosil yakıtların kullanıldığı evsel ısınmadır. Öte yandan yarı kentsel alanda hem kentten taşınımına gelen kirleticilerin yanı sıra, EC konsantrasyonuna sınırlı da olsa yerel trafik ve fosil yakıtların etkisiyle birlikte özellikle odunla ısınan evlerden kaynaklanan biyokütle emisyonlarının da etkisi önemli düzeydedir (Ramanathan vd., 2001; Han vd., 2009). Atmosferdeki EC seviyeleri ile ilgili Dünya'da özellikle Çin'de ve Hindistan'da bir çok çalışma yapılmıştır. Öte yandan Türkiye'de sınırlı sayıda çalışma yapılmıştır. Dolayısıyla Türkiye için önemli bir veri eksikliği söz konusudur. Bu nedenle bu çalışmada Türkiye'nin Düzce ilinde bulunan yarıkentsel

bir bölgesinde atmosferik PM₁₀ fraksiyonunda EC seviyelerinin ve mevsimsel değişimlerinin ortaya konması amaçlanmıştır.

2. MATERYAL VE METOT

2.1. Örneklemesi bölgesi

Çalışmada örneklemesi nispeten trafikten uzak yarı kentsel özelliklere sahip Düzce Üniversitesi Konuralp Yerleşkesinde gerçekleştirilmiştir (Şekil 1). Düzce, batıdan Sakarya, güney ve güney doğudan Bolu, kuzeydoğudan Zonguldak illeri ile çevrili Türkiye'nin kuzey-batısında yer alan bir ildir. Kuzeyde Karadeniz'de 35 km. uzunlukta bir kıyıya sahiptir. İlin yüz ölçümü 2.574 km², nüfusu 355.545 kişidir. Türkiye'nin en önemli karayollarından olan D-100, D-655 ve E-80 Düzce ilinden geçmektedir. İlde sanayileşme hızla artmaktadır. Düzce'deki en önemli sanayi faaliyetleri metal, plastik, cam, tekstil ve ahşap ürünleri üretimidir. Düzce merkezinde ilin etrafını çevreleyen dağ ve tepeler rüzgar hızının düşmesine neden olmaktadır. Hava, sıcaklık inversiyonu nedeniyle Ekim ayından Mart ayına kadar sislidir. Bu nedenle hava kirliliğine neden olan kirleticiler dağılamamakta ve yüksek seviyelerde maruziyet gerçekleşmektedir.



Şekil 1. Örneklemesi noktası

2.2. Örneklemesi ve analiz yöntemi

Kış örneklemesi Ocak-Mart 2015 tarihleri arasında, yaz örneklemesi Haziran-Ağustos 2015 tarihleri arasında günlük olarak yapılmıştır. Bu çalışmada PM₁₀ örnekleri Pall marka tissuequartz filtre üzerine Thermo marka yüksek hacimli hava örnekleyicisi kullanılarak toplanmıştır. Örneklemesi süresi 24 saat olup, cihazın hava akış debisi 1,13 m³/dk olarak ayarlanmıştır.

Örneklemeden önce quartz filtreler sabit tartıma getirilmiştir. PM konsantrasyonları gravimetrik olarak belirlenmiştir.

EC OC analizleri Bolu Abant İzzet Baysal Üniversitesi'nde bulunan Sunset Lab. (Oregon, ABD) temin edilen "termal-optik karbon aerosol analizörü" kullanılarak yapılmıştır.

Analizörün kuvars fırınına yerleştirilen standart büyüklükteki PM yüklü kuvars filtrelerden karbon bileşikleri, fırının sıcaklığı belli seviyelere çıkarılarak, ayrılır ve FID dedektörü kullanılarak EC ve OC konsantrasyonları belirlenir. Analizörde taşıyıcı gaz olarak helyum ve helyum/oksijen gazları karışımları kullanılmaktadır.

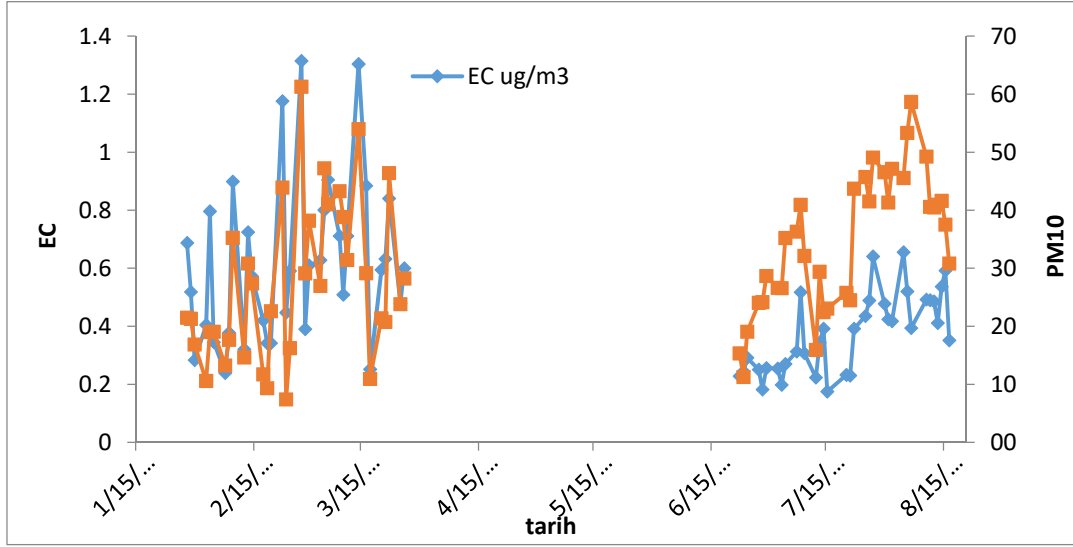
3. SONUÇLAR

3.1. EC ve PM seviyeleri

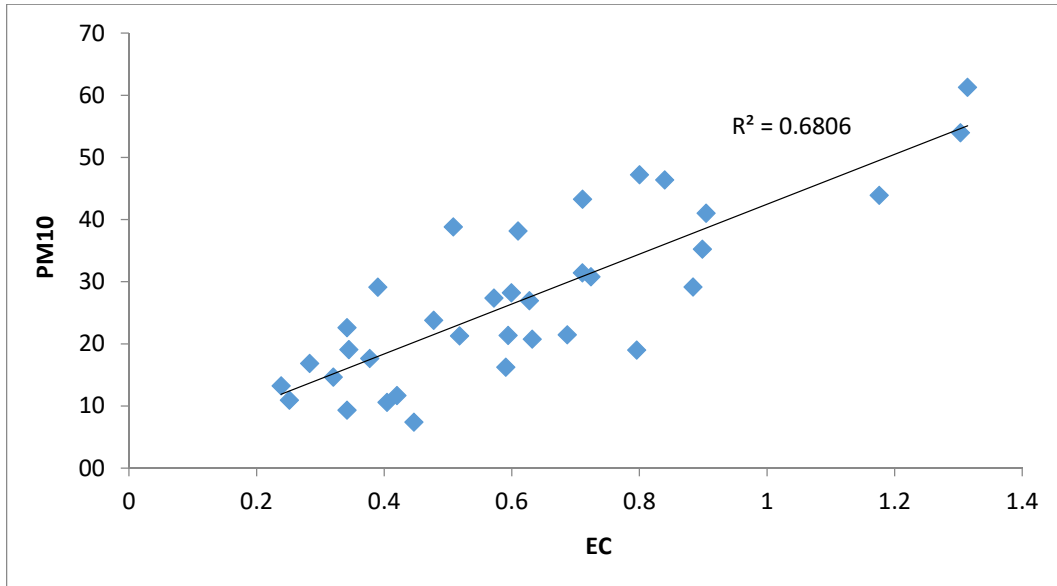
PM10 aerosol örneklerinde ölçülen EC ve PM10 konsantrasyonları Tablo 1 ve Şekil 2'de verilmiştir. Buna göre yıllık ortalama PM10 miktarı ortalama $31 \mu\text{g}/\text{m}^3$ olarak belirlenmiştir. Bu değer "Hava Kalitesi Değerlendirme ve Yönetimi Yönetmeliği" nde belirtilen sınır değeri aşmamaktadır. Ortalama EC konsantrasyonları 0.17 ile $1.31 \mu\text{g}/\text{m}^3$ aralığında belirlenmiştir. EC'ye ilişkin bir limit değeri bulunmamaktadır. Yıllık ortalama EC değeri PM10'un yaklaşık %1.5'ni oluşturmaktadır. Şekil 2 incelendiğinde PM10 ve EC konsantrasyonlarının benzer trend gösterdiği görülmektedir. Şekil 3'de görüldüğü gibi ise EC ve PM10 konsantrasyonları arasında pozitif bir korelasyon olup, R^2 değeri 0,68 olarak elde edilmiştir. EC ve PM10 konsantrasyonları arasındaki korelasyon daha önceden yapılan birçok çalışmada benzer şekilde bulunmuştur.

Tablo 1. Düzce yarı kentsel bölgede ölçülen PM10 ve EC konsantrasyonları ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

	PM10	EC	%EC/PM10
Yıllık ort	30.91	0.49	1.5
Med	29.12	0.46	1.5
SS	13.04	0.24	-
Min- Max	7.3-61.2	0.17-1.31	2.3-2.1
Kış ort	27,13	0,61	2,2
Yaz ort	34,69	0,37	1
K/Y	0.78	1.64	-
HS/Hİ	0.92	1.00	-



Şekil 2. EC ve PM10 konsantrasyonlarının zaman serisi



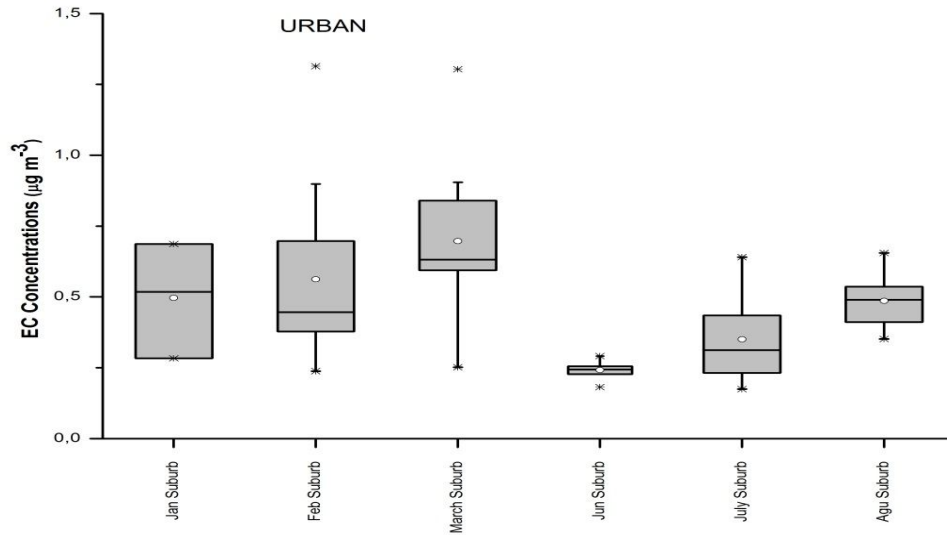
Şekil 3. EC ve PM10 konsantrasyonlarının dağılımı

3.2. Mevsimsel değişimler

Aylık ortalama EC ve PM konsantrasyonları Şekil 4’de verilmiştir. Şekilde görüldüğü gibi EC konsantrasyonları kış aylarında daha yüksek, yaz aylarında ise daha düşük olup, önemli oranda mevsimsel değişim göstermektedir. Kış aylarında ortalama EC konsantrasyonu $0.61 \mu\text{g m}^{-3}$ ’dür. Yaz aylarında ise ortalama EC konsantrasyonları $0.37 \mu\text{g m}^{-3}$ ’dür.

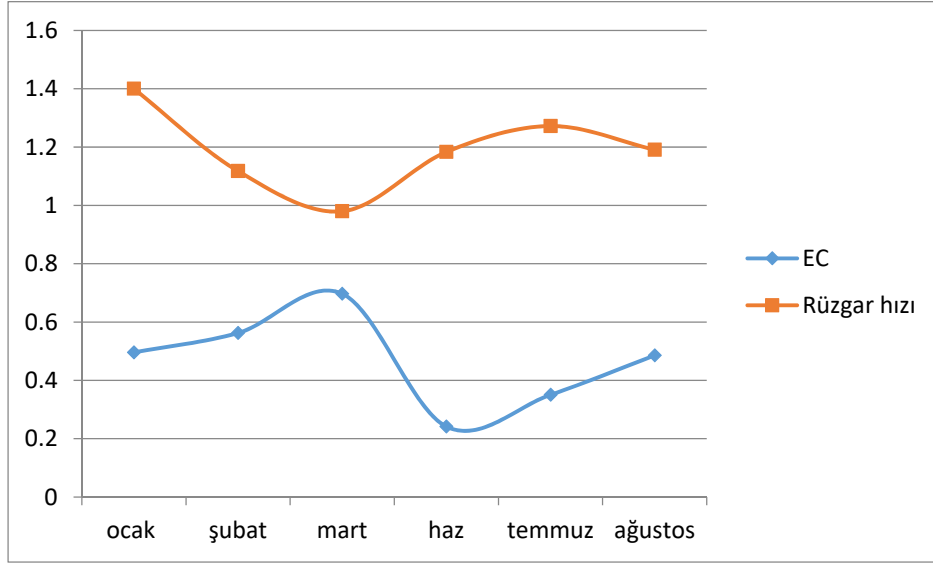
En yüksek ortalama EC konsantrasyonları Şubat ve mart aylarında elde edilmiştir. Düzce’de şubat ayı en düşük sıcaklıkların olduğu aydır. Buna bağlı olarak yakıt tüketimi ve emisyonlar artmaktadır. EC parametresi daha çok birincil emisyon kaynaklarının göstergesidir. Dolayısıyla bu ay içerisinde görülen yüksek EC konsantrasyonlarının nedeni olarak evsel ısınma emisyonları gösterilebilir.

Daha önce de ifade edildiği gibi EC’nin mevsimsel farklılığı oldukça belirgindir. Bilindiği gibi aerosollerdeki EC’nin ana kaynağı birincil kirleticilerdir (Zhao vd., 2013). Bu bağlamda, Düzce’de yarı kentsel bölgede emisyonların daha çok birincil kirleticilerden etkilendiği söylenebilir. Yarı kentsel bölgede birincil emisyon kaynakları daha çok doğal gazdan ve odun yakılmasından kaynaklanan emisyonlardır.



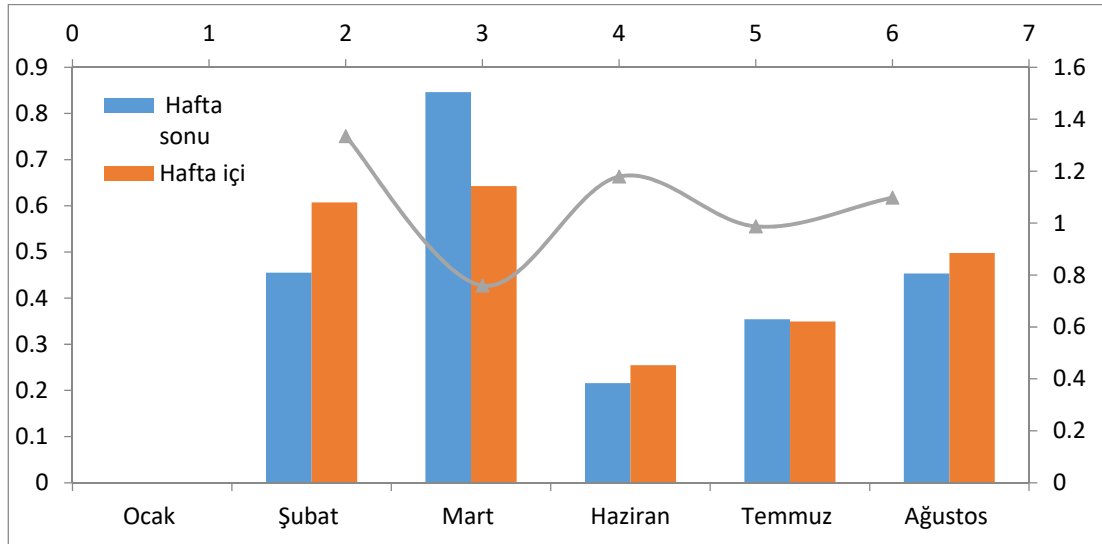
Şekil 4. EC konsantrasyonlarının aylık değişimi

Şekil 5’te ortalama rüzgar hızı ve EC konsantrasyonlarının aylık değişimleri verilmiştir. Şekilden de açıkça görüldüğü gibi EC konsantrasyonları rüzgar hızının azalmasıyla belirgin bir şekilde artmaktadır. Grafikte rüzgar eğrisine bakıldığında ortalama rüzgar hızının (m/sn) şubat ayından itibaren azalmaya başladığı ve mart ayında en düşük değere ulaştığı görülmektedir. Öte yandan en yüksek ortalama konsantrasyonların mart ayında elde edildiği görülmektedir. Atmosferdeki kirleticiler rüzgar hızı arttıkça daha fazla dağılmakta ve havadaki miktarları azalmaktadır. Dolayısıyla mart ayında elde edilen daha yüksek konsantrasyonların nedeni birincil kaynak emisyonlarıyla birlikte sakin hava koşullarında kirleticilerin atmosferde birikmesiyle de açıklanabilir.



Şekil 5. EC konsantrasyonları ve rüzgar hızının aylık değişim grafiği

Şekil 6'da EC konsantrasyonlarının hafta içi ve hafta sonu konsantrasyonları görülmektedir. Grafik incelendiğinde genellikle hafta içi konsantrasyonlarının hafta sonuna göre daha yüksek olduğu görülmektedir. Sadece mart ayında hafta sonu daha yüksek konsantrasyonlar elde edilmiştir.



Şekil 6. Hafta içi ve hafta sonu günlerinde EC konsantrasyonları

3.3. Meteorolojik parametrelerle EC konsantrasyonlarının ilişkisi

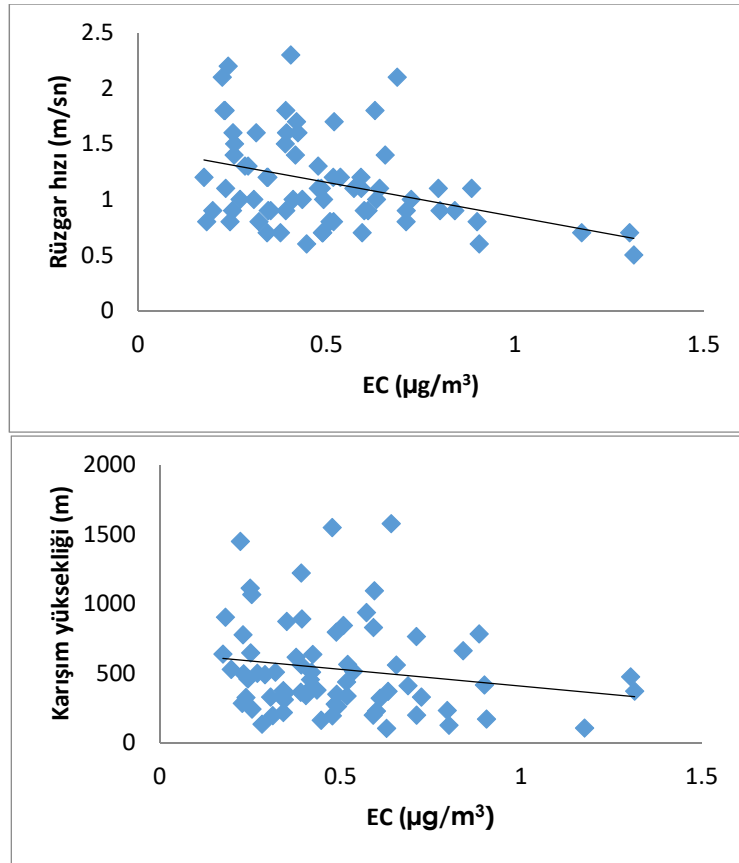
Düzce'deki ortalama meteorolojik veriler Tablo 2'de verilmiştir. Düzce'de kış aylarında ortalama sıcaklık 7°C civarında, yaz aylarında ise 24 °C'dir. Karışım yüksekliği ve rüzgar hızının ise yaz ve kış aylarında birbirine oldukça yakın olduğu ve yazın kısmen yüksek olduğu görülmektedir.

Ortalama rüzgar hızının 2 m/sn.'nin altında olduğu görülmektedir. Düşük rüzgar hızından dolayı Düzce'de kirletici konsantrasyonları kentte yoğunlaşmakta ve dağılamamaktadır.

Tablo 2. Düzce İli ortalama meteorolojik verileri

Örnekleme periyodu	Ortalama Bağıl Nem (%)	Ortalama Rüzgar Hızı (m/s)	Maksimum Rüzgar Hızı (m/s)	Sıcaklık (C°)	Ortalama Yağış (mm)	Toplam Yağış(mm)	Karışım Yüksekliği(m)	Basınç (hPa)
28.01-26.03/2015	76,4	1,08	5,4	7,2	3,1	109	404	1000
22.07-16.08/2015	68,5	1,23	6,5	24	1,6	54,3	654	995,5

Şekil 7'de EC konsantrasyonları ile karışım yüksekliği ve rüzgar hızının ilişkisi görülmektedir. Bilindiği gibi karışım yüksekliği ve rüzgar hızı arttıkça kirletici konsantrasyonları azalmaktadır. Düzce'de elde edilen EC konsantrasyonlarının bu iki parametreyle ilişkisi incelendiğinde konsantrasyonların beklendiği üzere karışım yüksekliği ve rüzgar hızıyla azalmakla birlikte, her iki meteorolojik parametre değerlerinin yıl boyunca çok fazla değişiklik göstermemesi nedeniyle azalma belirgin değildir.



Şekil 7. rüzgar hızı ve karışım yüksekliği ile EC konsantrasyonlarının değişimi

3.4. Konsantrasyonlarının literatürle karşılaştırılması

Tablo 3’de bu çalışmada elde edilen EC konsantrasyonları ile Dünya’nın çeşitli yerlerinde yapılan çalışmalarda elde edilen EC konsantrasyonları verilmiştir. Tablo incelendiğinde Düzce’de elde edilen konsantrasyonların genel olarak diğer çalışmalara göre daha düşük olduğu görülmektedir. Konsantrasyonların Çekya kırsal bölgede elde edilen değerlere yakın olduğu görülmektedir. Öte yandan bu çalışmada elde edilen en yüksek konsantrasyonlar $1.31 \mu\text{g m}^{-3}$ civarında olup bu değer Avrupa’da kentsel bölgelerde elde edilen konsantrasyonlara yakındır.

Tablo 3. Bu çalışmada elde edilen EC verilerinin literatürle karşılaştırılması

Region	Periyot	Bölge özelliği	Aerosol çapı	EC	Kaynak
Düzce,Türkiye	Ocak 15-Ağu15	Kentsel	PM ₁₀	0.49	Bu çalışma
Bolu,Türkiye (kış)	Ara14-Şub15	Kentsel	PM _{2.5}	5.92	Öztürk ve Keleş (2016)
Selanik, Yunanistan	Ara 06-Mar 07	Kentsel	PM ₁₀	1.82	Terzi vd. (2010)
Atina, Yunanistan	Nis 10-Nis 11	Kentsel	PM _{2.5}	1.6	Jedynska vd. (2014)
Prag, Çekya	Yaz	Kentsel	PM ₁₀	0.84	Vodicka vd. (2015)
	Kış			1.95	
Kosetic, Çekya	Yaz	Kırsal	PM ₁₀	0.59	Vodicka vd. (2015)
	Kış			1.17	
Veneto, İtalya	Nis 12-Şub 13	Yerleşim	PM _{2.5}	1.3	Khan vd. (2016)
Zurich, İsviçre		Kentsel	PM ₁₀	2.1	Putaud vd., 2004
St Jean de Maurienne, Fransa	Şub 01-Tem 03	Kentsel	PM ₁₀	0.9	Aymoz vd., 2007
Mira	Eyl 01-Oca 02	Yarı kentsel	PM _{2.5}	2.1	(Na vd., 2004)
Loma,Kaliforniya					
Pekin, Çin	Tem 12-Nis13	Kentsel	PM _{2.5}	3.3	(Wang vd., 2015)
Tangshan,Çin	Tem 12-Nis 13	Endüstriyel	PM _{2.5}	8.5	(Wang vd., 2015)
Şian, China (Winter)	Ara 03-Şub 04	Kentsel	PM _{2.5}	22.7	Cao vd., 2005
Kanpur, Hindistan	Oca-Mar 07	Kentsel	TSP	4.8	Ram ve Sarin (2010)
Jaduguda, Hindistan	Ara 2004	Kırsal	TSP	11.6	Ram ve Sarin (2010)
Beyrut, Lübnan	Oca 12-Şub 12	Yarı kentsel	PM _{2.5}	1.4	Waked et. al., 2013

4. TARTIŞMA VE ÖNERİLER

Bu çalışmada elde edilen verilere göre özetle aşağıdaki sonuçlar ortaya konmuştur.

- Düzce’de yarı kentsel bölgede PM10 fraksiyonlarında EC konsantrasyonları 0,17 ile 1,31 $\mu\text{g m}^{-3}$ arasında bulunmuştur
- EC konsantrasyonları kış aylarında daha yüksektir.
- EC konsantrasyonu PM10’un yaklaşık % 1,5’ünü oluşturmaktadır. EC ile PM10 konsantrasyonları arasında pozitif bir korelasyon bulunmuştur.
- EC’nin, mart ayı dışında, hafta içi konsantrasyonları hafta sonuna göre daha yüksek bulunmuştur
- EC konsantrasyonları rüzgar hızı ve karışım yüksekliğinin artışıyla azalmaktadır
- Düzce’deki EC konsantrasyonları Dünya’daki diğer bölgelere göre daha düşüktür.

Öneriler:

- Bu çalışmada sınırlı sayıda örnek alınmıştır, ilerleyen çalışmalarda daha fazla sayıda örneklemeler yapılarak tüm yıla ait EC değerleri ortaya konmalıdır
- Bu çalışma PM10 fraksiyonundaki aerosol örnekleriyle yapılmıştır. EC antropojenik bir kirlenme kaynağı olması ve daha çok ince partiküllerde bulunması nedeniyle, ilerleyen çalışmalarda PM2.5 aerosollerinde de EC konsantrasyonları belirlenmelidir.

KAYNAKLAR

- Nriagu, J.O., Pacyna, J.M., 1988. Quantitative assessment of worldwide contamination of air, water and soils by trace-metals. *Nature* 333, 134-139.
- Aymoz, G., Jaffrezo, J., Chapuis, D., Cozic, J., & Maenhaut, W. 2006. Seasonal variation of PM₁₀ main constituents in two valleys of the French Alps. I: EC/OC fractions. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 6(4), 6211-6254.
- Birch, M. E., and Cary R. A., 1996. Elemental carbon-based method for monitoring occupational exposures to particulate diesel exhaust. *Aerosol Sci. Technol.*, 25, 221– 241.
- Bond, T. C., Street, D. G., Yarber, K. F., Nelson, S. M., Woo, J.-H., and Klimont, Z., 2004, A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion. *J. Geophys. Res.*, 109,
- Cao, J. J., Chow, J. C., Lee, S. C., Li, Y., Chen, S. W., An, Z. S., . . . Liu, S. X., 2005. Characterization and source apportionment of atmospheric organic and elemental carbon during fall and winter of 2003 in Xian, China. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 5(3), 3561-3593.
- Feng, Y. L., Chen, Y. J., Guo, H., Zhi, G. R., Xiong, S. C., Li, J., Sheng, G. Y., & Fu, J. M., 2009. Characteristics of organic and elemental carbon in PM_{2.5} samples in Shanghai, China. *Atmospheric Research*, 92, 434–442.

- 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.
- Han, S., Kondo, Y., Oshima, N., Takegawa, N., Miyazaki, Y., Hu, M., . . . Wu, Y., 2009. Temporal variations of elemental carbon in Beijing. *J. Geophys. Res. Journal of Geophysical Research*, 114(D23).
- Haywood, J. M., Roberts, D. L., Slingo, A. J., Edwards, M., and Shine, K. P., 1997. General circulation model calculations of the direct radiative forcing by anthropogenic sulfate and fossil-fuel soot aerosol. *J. Clim.*, 10, 1562– 1577.
- Heinrich, J., Slama, R., 2007. Fine particles, amajor threat to children. *International Journal of Hygiene and Environmental Health*, 210, 617–622.
- 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.
- Jedynska, A., Hoek, G., Eeftens, M., Cyrus, J., Keuken, M., Ampe, C., . . . Kooter, I. M., 2014. Spatial variations of PAH, hopanes/steranes and EC/OC concentrations within and between European study areas. *Atmospheric Environment*, 87, 239-248.
- Khan, M. B., Masiol, M., Formenton, G., Gilio, A. D., Gennaro, G. D., Agostinelli, C., & Pavoni, B., 2016. Carbonaceous PM2.5 and secondary organic aerosol across the Veneto region (NE Italy). *Science of The Total Environment*, 542, 172-181.
- Kondo, Y., Komazaki, Y., Miyazaki, Y., Moteki, N., Takegawa, N., Kodama, D., . . . Ehara, K. 2006. Temporal variations of elemental carbon in Tokyo. *J. Geophys. Res. Journal of Geophysical Research*, 111(D12).
- Masiello, C.A., 2004. New directions in black carbon organic geochemistry. *Mar.Chem.*, 92(1-4), 201–213.
- Myhre, G., Stordal, F., Restad, K., and Isaksen, I. S., 1998, Estimation of the direct radiative forcing due to sulfate and soot aerosols. *Tellus, Ser. B*, 50, 463–477.
- Na, K., Sawant, A. A., Song, C., & Cocker, D. R., 2004. Primary and secondary carbonaceous species in the atmosphere of Western Riverside County, California, *Atmospheric Environment*, 38(9), 1345-1355.
- Öztürk, F., & Keleş, M., 2016. Wintertime chemical compositions of coarse and fine fractions of particulate matter in Bolu, Turkey, *Environmental Science and Pollution Research*, 23(14), 14157-14172.

- Patearaki, St., Assimakopoulos, V.D., Bougiatioti, A., Kouvarakis, G., Mihalo poulos, N., Vasilakos, Ch., 2012. Carbonaceous and ionic compositional patterns of fine particles over an urban Mediterranean area. *Science of the Total Environment*; 424, 251-263.
- Pusheng Z., Fan D., Yadong Y., Di H., Xiujuan Z., Wenzong Z., 2013. Characteristics of carbonaceous aerosol in the region of Beijing, Tianjin, and Hebei, China, *Atmospheric Environment*, 71, 389-398
- Putaud, J., Raes, F., Dingenen, R. V., Brüggemann, E., Facchini, M., Decesari, S., . . . Wiedensohler, A., 2004. A European aerosol phenomenology—2: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe. *Atmospheric Environment*, 38(16), 2579-2595.
- Ram, K., & Sarin, M., 2010. Spatio-temporal variability in atmospheric abundances of EC, OC and WSOC over Northern India. *Journal of Aerosol Science*, 41(1), 88-98.
- Ramanathan, V., P. J. Crutzen, J. T. Kiehl, and D. Rosenfeld (2001), Aerosols, climate, and the hydrological cycle, *Science*, 294, 2119 – 2124.
- Rodríguez Martín, J.A., Arana C. De, Ramos-Miras, J.J., Gil, C., Boluda, R., 2013. 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.
- Streets, D. G., et al. 2003, An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000, *J. Geophys. Res.*, 108, (D21), 8809.
- Yu, J., Chen, T., Benjamin, G., Helene, C., Yu, T., Liu, W., & Wang, X., 2006. Characteristics of carbonaceous particles in Beijing during winter and summer 2003. *Advances in Atmospheric Sciences*, 23(3), 468-473.
- Vodička, P., Schwarz, J., Cusack, M., & Ždímal, V., 2015. Detailed comparison of OC/EC aerosol at an urban and a rural Czech background site during summer and winter. *Science of The Total Environment*, 518-519, 424-433
- Waked, A., Afif, C., Brioude, J., Formenti, P., Chevaillier, S., Haddad, I. E., . . . Seigneur, C., 2013. Composition and Source Apportionment of Organic Aerosol in Beirut, Lebanon, During Winter 2012. *Aerosol Science and Technology*, 47(11), 1258-1266.
- Wang, G., Cheng, S., Li, J., Lang, J., Wen, W., Yang, X., & Tian, L., 2015. Source apportionment and seasonal variation of PM_{2.5} carbonaceous aerosol in the Beijing-Tianjin-Hebei Region of China. *Environmental Monitoring and Assessment*, 187(3).