

VILNIAUS UNIVERSITETAS
VALSTYBINIS MOKSLINIŲ TYRIMŲ INSTITUTAS
FIZINIŲ IR TECHNOLOGIJOS MOKSLŲ CENTRAS

VADIMAS DUDOITIS

**SMULKIŲ IR ANGLIES TURINČIŲ AEROZOLIO DALELIŲ ŠALTINIŲ
NUSTATYMAS MIESTO IR FONINĖJE APLINKOSE**

Daktaro disertacijos santrauka
Fiziniai mokslai, fizika (02P)

Vilnius, 2015

Disertacija buvo rengta 2010–2015 metais VMTI Fizinių ir technologijos mokslų centre, Vilnius, Lietuva.

Mokslinis vadovas:

dr. Vidmantas Ulevičius (VMTI Fizinių ir technologijos mokslų centras, fiziniai mokslai, fizika – 02P)

Disertacija bus ginama Vilniaus universiteto Fizikos mokslo krypties taryboje:

Pirmininkas:

dr. Raselė Girgždienė (VMTI Fizinių ir technologijos mokslų centras, fiziniai mokslai, fizika – 02P).

Nariai:

dr. Rūta Druteikienė (VMTI Fizinių ir technologijos mokslų centras, fiziniai mokslai, fizika – 02P)

dr. Dainius Martuzevičius (Kauno technologijos universitetas, technologijos mokslai, aplinkos inžinerija ir kraštotvarka – 04T).

dr. Jurgita Ovadnevaitė (Galway Nacionalinis Airijos universitetas, fiziniai mokslai, fizika – 02P).

prof. dr. Valdas Šablinskas (Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika – 02P)

Disertacija bus ginama viešame Fizikos mokslo krypties (02P) tarybos posėdyje 2015 m. lapkričio 27 d. 11:00 val. VMTI Fizinių ir technologijos mokslų centre, Fizikos instituto salėje.

Adresas: Savanorių pr. 231, LT-02300, Vilnius, Lietuva.

Disertacijos santrauka išsiuntinėta 2015 m. spalio 27 d.

Disertaciją galima peržiūrėti Vilniaus universiteto ir VMTI Fizinių ir technologijos mokslų centro bibliotekose, VU svetainėje adresu:
<http://www.vu.lt/lt/naujienos/ivykiu-kalendorius>

VILNIUS UNIVERSITY
STATE RESEARCH INSTITUTE
CENTER FOR PHYSICAL SCIENCES AND TECHNOLOGY

VADIMAS DUDOITIS

**SOURCE APPORTIONMENT OF FINE
AND CARBONACEOUS AEROSOL PARTICLES IN URBAN
AND BACKGROUND ENVIRONMENTS**

Summary of doctoral dissertation
Physical sciences, Physics (02P)

Vilnius, 2015

Dissertation was prepared at the SRI Center for Physical Sciences and Technology, Vilnius, Lithuania during the period from 2010 to 2015.

Scientific supervisor:

dr. Vidmantas Ulevičius (SRI Center for Physical Sciences and Technology, physical sciences, physics – 02P)

Defence council of physical sciences at Vilnius University:

Chairman:

dr. Raselė Girgždienė (SRI Center for Physical Sciences and Technology, Physical sciences, Physics – 02P).

Members:

dr. Rūta Druteikienė (SRI for Physical Sciences and Technology, Physical sciences, Physics – 02P).

dr. Dainius Martuzevičius (Kaunas University of Technology, Technological sciences, Environmental engineering and landscape planning – 04T).

dr. Jurgita Ovadnevaitė (National University of Ireland, Galway, Physical sciences, Physics – 02P).

prof. dr. Valdas Šablinskas (Vilnius University, Physical sciences, Physics – 02P)

The defence of doctoral dissertation will take place at the Council meeting of Physical sciences at the auditorium of Institute of Physics, on 27th November, 2015 at 11:00 a.m.

Address: Savanoriu ave. 231, LT-02300 Vilnius, Lithuania.

Summary of the dissertation was sent on 27th October, 2015.

The dissertation is available at the libraries of Vilnius University and SRI Center for Physical Science and Technology, and VU website: <http://www.vu.lt/lt/naujienos/ivykiu-kalendorius>.

SANTRUMPOS

ACSM	(angl. <i>aerosol chemical speciation monitor</i>) aerozolio cheminės sudėties monitorius
APS	(angl. <i>aerodynamic particle sizer</i>) aerodinaminis aerozolio spektrometras
BC	(angl. <i>black carbon</i>) juodoji anglis
CPC	(angl. <i>condensation particle counter</i>) kondensacinis dalelių skaitiklis
CWT	(angl. <i>concentration weighted trajectory</i>) koncentracija normuotos trajektorijos
D_A	(angl. <i>aerodynamic diameter</i>) aerodinaminis skersmuo
D_P	(angl. <i>mobility diameter</i>) judrumo skersmuo
HYSPLIT-4	(angl. <i>hybrid single particle Lagrangian integrated trajectory</i>) hibridinis vienos dalelės integruotos trajektorijos Lagranžo modelis
MOUDI	(angl. <i>micro-orifice uniform deposition impactor</i>) kaskadinis impaktorius
OA	(angl. <i>organic aerosol</i>) organinio aerozolio dalelės
PCA	(angl. <i>principal component analysis</i>) pagrindinių komponentų analizė
PM_x	(angl. <i>particulate matter</i>) stambiosios aerozolio frakcijos dalelės, kurių 50 % efektyvumo nukirtimo skersmuo D_{50} yra ties $x = 10,0, 2,5$ ar $1,0 \mu\text{m}$.
PNC	(angl. <i>particle number concentration</i>) skaitinė dalelių koncentracija
PSCF	(angl. <i>potential source contribution function</i>) pagrindinio šaltinio indėlio nustatymo funkcija
RH	(angl. <i>relative humidity</i>) santykinė oro drėgmė
SD	(angl. <i>standard deviation</i>) standartinis nuokrypis
SMPS	(angl. <i>scanning mobility particle sizer</i>) skenuojantis dalelių judrio spektrometras
SV-OOA	(angl. <i>semi-volatile oxygenated organic aerosol</i>) pusiau lakios oksiduotos organinės aerozolio dalelės
LV-OOA	(angl. <i>low-volatile oxygenated organic aerosol</i>) mažai lakios oksiduotos organinės aerozolio dalelės
TC	(angl. <i>total carbon</i>) bendroji anglis
$\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$	anglies stabilųjų izotopų santykis ($^{13}\text{C}:^{12}\text{C}$).
WD	(angl. <i>wind direction</i>) vėjo kryptis
WS	(angl. <i>wind speed</i>) vėjo greitis

ĮVADAS

Smulkių aerozolio dalelių tyrimai yra svarbūs dėl to, kad šios dalelės turi įtakos klimato kaitos vyksmams ir turi neigiamą poveikį žmonių sveikatai. Pagrindiniai antropogeninės kilmės šaltiniai, turintys poveikį dalelių skaitinei koncentracijai (PNC) miesto aplinkoje, yra transportas, biomasės degimas ir foto-cheminė nukleacija (Pey ir kt., 2009; Pérez ir kt., 2010; Srinivas ir kt., 2011). Šių šaltinių įvertinimą apsunkina tai, kad jų indėlis kinta priklausomai nuo pasirinktos vietos ar aplinkos, naujų dalelių susidarymą nulemia skirtingi vyksmai ir meteorologinės sąlygos (de Foy ir Schauer, 2015).

Anglies turinčios aerozolio dalelės veikia Žemės klimatą, sugerdamos ir išsklaidydamos saulės spinduliuotę, dalyvauja debesų formavimosi vyksmuose ir sąveikauja tarpusavyje bei su kitais atmosferoje esančiais junginiais (Chung ir kt., 2012; Burkart ir kt., 2011). Pagrindiai antropogeniniai anglies turinčių aerozolio dalelių šaltiniai yra biomasės ir iškastinio kuro deginimas. Įrodyta, kad juodosios anglies (BC) dalelių nusėdimas ant sniego, ledo ir ledynų, keičia jų paviršiaus albedo ir paspartina tirpimo vyksmą (Hadley ir Kirchstetter, 2012). Aerozolio dalelių erdvinio pasiskirstymo ir jų šaltinių vertinimo rezultatai padeda tiksliau nusakyti antropogeninio indėlio poveikį klimato kaitos prognostiniuose modeliuose. Nepaisant to, kad šaltinių nustatymo tyrimai yra svarbūs ir reikalingi ne tik mokslinei bendruomenei, tačiau daug receptorinių modeliavimų rezultatų iš įvairių Europos šalių nėra sukaupta (Viana ir kt., 2008).

PNC ir BC koncentracijų šaltiniams įvertinti buvo pritaikytas receptorinis modeliavimas. Pasiękti geresni BC erdvinio pasiskirstymo ir šaltinių kilmės nustatymo rezultatai Pietryčių Baltijos jūros regione. Šie rezultatai gali būti taikomi tikslinant visuotinio klimato atšilimo prognostinius modelius. Nustatyti pagrindiniai vyksmai, lemiantys PNC padidėjimą Vilniaus miesto foninėje aplinkoje. Parodyta, kad kompleksinis aerozolio dalelių pasiskirstymo pagal dydį matavimų ir anglies stabiliųjų izotopų santykio ($\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$) tyrimų metodas yra tinkamas iškastinio kuro degimo ir neiškastinio kuro emisijos šaltiniams įvertinti.

Darbo tikslas ir uždaviniai

Šio darbo tikslas buvo identifikuoti ir įvertinti smulkių ir anglies turinčių aerolio dalelių vyksmus ir šaltinius miesto bei foninėje aplinkose. Tikslams pasiekti buvo suformuoti šie uždaviniai:

1. Atlikti ilgalaikius smulkių aerolio dalelių skaitinės koncentracijos ir juodosios anglies tyrimus miesto ir jūrinėje foninėje aplinkose, įvertinti pagrindinius vyksmus, lemiančius jų erdvinį ir laikinį pasiskirstymą.
2. Įvertinti anglies turinčių aerolio dalelių erdvinį pasiskirstymą ir jų šaltinius Pietryčių Baltijos jūros regione, deginant biomasę (pernykštę žolę).
3. Sujungiant aerolio dalelių dydžių pasiskirstymo ir anglies stabilųjų izotopų santykio ($\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$) tyrimo metodus, nustatyti iškastinio kuro degimo ir neiškastinio kuro emisijos šaltinius.

Darbo naujumas

1. Pritaikant receptorinio modeliavimo metodus nustatyti aerolio dalelių skaitinės koncentracijos šaltiniai miesto aplinkoje.
2. Nustatyta, kad aerolio dalelių dydžių pasiskirstymo ir $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$ tyrimų kompleksinių matavimų metodas yra tinkamas vertinti iškastinio kuro degimo ir neiškastinio kuro emisijos šaltinius.

Praktinė vertė

1. Pritaikius taršos šaltinių receptorinį modeliavimą buvo tiksliau įvertintas juodosios anglies išplitimas atmosferoje, kuris gali būti taikomas tikslinant visuotinio klimato atšilimo prognostinius modelius.
2. Atmosferos teršalų receptorinis modeliavimas Pietryčių Baltijos jūros regione papildo šaltinių vertinimo metodus ir suteikia svarbių žinių tolimesnei regiono bei Europos šalių oro kokybės vertinimo programai plėtoti.

Ginamieji teiginiai

1. Oro masių pernašos padidina aerozolio dalelių skaitinę koncentraciją Vilniaus miesto aplinkoje rudenį iki 2,2 karto, žiemą – iki 1,6 karto ir pavasarį – iki 2,3 karto.
2. Tolimoji oro masių pernaša yra pagrindinis veiksnys, nulemiantis juodosios anglies aerozolio masės koncentracijos padidėjimą Pietryčių Baltijos jūros regione pavasarį iki 1,8 karto, rudenį – iki 1,5 karto ir žiemą – iki 4,5 karto.
3. Pavasarinis biomasės (pernykštės žolės) deginimas iki 50 % padidina foninę organinio aerozolio dalelių masės koncentraciją Pietryčių Baltijos jūros regione.
4. Iškastinio kuro degimas yra pagrindinis smulkios modos aerozolio dalelių ($D_A = 0,23 \mu\text{m}$; $SD = 0,02 \mu\text{m}$) šaltinis, o neiškastinio kuro degimas ir biogeninė emisija – pagrindinis stambios modos aerozolio dalelių ($D_A = 7,05 \mu\text{m}$; $SD = 3,56 \mu\text{m}$) šaltinis, kiekvieno jų indėlis sudaro nuo 60 % iki 100 %.

Aprobacija

Su disertacijos darbo tema susijusių tyrimų rezultatai yra publikuoti 6 periodiniuose mokslo leidiniuose, turinčiuose cituojamumo rodiklį (angl. *Impact Factor*) Thomson Reuters *Web of Knowledge* duomenų bazėje, pristatyti 8 pranešimai tarptautinėse ir 3 pranešimai nacionalinėse mokslinėse konferencijose.

Autoriaus mokslinės publikacijos doktorantūros tema periodiniuose leidiniuose:

1. S. Byčenkienė, V. Ulevičius, **V. Dudoitis** and J. Pauraitė, Identification and characterization of black carbon aerosol sources in the East Baltic region, *Adv. Meteorol.* Vol. 2013, Article ID 380614 (2013).
2. V. Ulevičius, S. Byčenkienė, K. Plauškaitė and **V. Dudoitis**, Variation of particle number concentration and size distributions at the urban environment

- in Vilnius (Lithuania), Nucleation and atmospheric aerosols: 19th International Conference, AIP Publishing LLC. Vol. 1527, 527–530 (2013).
3. S. Byčėnkiėnė, K. Plauškaitė, **V. Dudoitis** and V. Ulevičius, Urban background levels of particle number concentration and sources in Vilnius, Lithuania, *Atmos. Res.* 143, 279–292 (2014).
 4. S. Byčėnkiėnė, **V. Dudoitis** and V. Ulevičius, The use of trajectory cluster analysis to evaluate the long-range transport of black carbon aerosol in the South-Eastern Baltic region, *Adv. Meteorol.* Vol. 2014, Art. ID 137694 (2014).
 5. A. Mašalaitė, A. Garbaras, **V. Dudoitis**, V. Ulevičius, D. Čeburnis and V. Remeikis, Elucidating carbonaceous aerosol sources by the stable carbon $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$ ratio in size segregated particles, *Atmos. Res.* 158, 1–12 (2015).
 6. **V. Dudoitis**, S. Byčėnkiėnė, K. Plauškaitė, G. Mordas and V. Ulevičius, Relationships between atmospheric carbonaceous particles and air masses in a background marine atmosphere, *Acta Geophys.*, priimta (2015).

Autoriaus pranešimai disertacijos tema mokslinėse konferencijose:

1. J. Šakalys, D. Valiulis, **V. Dudoitis**, K. Kvietkus and V. Ulevičius, Aerosol particle chemical component density variation in urban environment, 40th Lithuanian National Physics Conference, 2013.06.10–12, Vilnius, Lithuania.
2. **V. Dudoitis**, V. Ulevičius, K. Plauškaitė-Šukienė and G. Mordas, The comparison of the light scattering coefficient measured in urban and coastal environments, European Aerosol Conference (EAC 2013), 2013.09.01–06, Prague, Czech.
3. S. Byčėnkiėnė, V. Ulevičius, **V. Dudoitis** and J. Andriejauskienė, Identification and characterization of black carbon aerosol sources in Lithuania, European Aerosol Conference (EAC 2013), 2013.09.01–06, Prague, Czech.
4. V. Ulevičius, A. S. H. Prévôt, K. Plauškaitė-Šukienė, S. Byčėnkiėnė, G. Mordas, **V. Dudoitis**, V. Remeikis, A. Garbaras, K. Kvietkus, I. Garbarienė, J. Dommen, J. G. Slowik, C. Bozzetti and U. Baltensperger,

Project AEROLIT (Aerosol in Lithuania): Investigation of primary-secondary and regional local contributions to particulate matter in the South-Eastern Baltic region, European Aerosol Conference (EAC 2013), 2013.09.01–06, Prague, Czech.

5. S. Byčenkienė, J. Pauraitė, **V. Dudoitis** and V. Ulevičius, Sources of wintertime black carbon aerosols in an atmosphere in Vilnius, Open Readings 2014, 2014.03.19–21, Vilnius, Lithuania.
6. S. Byčenkienė, J. Pauraitė, **V. Dudoitis** and V. Ulevičius, Sources of wintertime black carbon aerosols in an atmosphere in Vilnius, International Aerosol Conference (IAC 2014), 2014.08.28–09.02, Busan, South Korea.
7. V. Ulevičius, A. S. H. Prévôt, S. Byčenkienė, K. Plauškaitė, G. Mordas, C. Bozzetti, **V. Dudoitis**, V. Remeikis, A. Garbaras, J. Dommen, J. G. Slowik, J. Blees and F. Canonaco, Source apportionment of the carbonaceous aerosol in the South-Eastern Baltic region, International Aerosol Conference (IAC 2014), 2014.08.28–09.02, Busan, South Korea.
8. **V. Dudoitis**, S. Byčenkienė, K. Plauškaitė, N. Prokopčičuk, G. Mordas and V. Ulevičius, Receptor models application in long-range transport of carbonaceous aerosol particles in coastal environment, Open Readings 2015, 2015.03.24–27, Vilnius, Lithuania.
9. **V. Dudoitis**, V. Ulevičius, S. Byčenkienė, K. Plauškaitė, G. Mordas, C. Bozzetti, R. Froehlich and A. S. H. Prévôt, Long-range transport of carbonaceous aerosol at coastal site in the South-Eastern Baltic region, European Aerosol Conference (EAC 2015), 2015.09.06–11, Milan, Italy.
10. V. Ulevičius, S. Byčenkienė, C. Bozzetti, A. Vlachou, K. Plauškaitė, G. Mordas, **V. Dudoitis**, G. Abbaszade, J. Blees, R. Fröhlich, K. R. Dällenbach, F. Canonaco, J. G. Slowik, J. Dommen, R. Zimmermann, J. Schnelle-Kreis, G. A. Salazar, K. Agrios, S. Szidat, I. El Haddad and A. S. H. Prévôt (2015). Fossil and non-fossil source contributions to atmospheric carbonaceous aerosols during grassland fires. European Aerosol Conference (EAC 2015), 2015.09.06–11, Milan, Italy.

11.C. Bozzetti, M. Xiao, V. Ulevičius, I. El Haddad, K. R. Dällenbach, **V. Dudoitis**, G. Mordas, J. G. Slowik, U. Baltensperger, and A. S. H. Prévôt (2015). Argon Offline-AMS source apportionment of organic aerosol over a yearly cycle for 3 different stations in Lithuania. European Aerosol Conference (EAC 2015), 2015.09.06–11, Milan, Italy.

Autoriaus indėlis

Autoriaus indėlis sudarė:

1. Matavimų Preilos atmosferos užterštumo tyrimų stotyje ir miesto foninėje aplinkoje Vilniuje planavimas bei vykdymas.
2. Mokslinės įrangos kalibravimas. Dalyvavimas prietaisų sulyginimuose (angl. *intercomparison workshop*).
3. Tyrimų duomenų surinkimas, analizavimas ir gautų rezultatų interpretavimas.
4. Mokslinių rezultatų publikavimas periodiniuose mokslo leidiniuose ir pristatymas mokslinėse konferencijose.

3. ĮRANGA IR TYRIMŲ METODAI

Ilgalaikiai aerozolio dalelių dydžių pasiskirstymo ir skaitinės koncentracijos tyrimai Vilniaus miesto foninėje aplinkoje (54°38'N, 25°18'E, 165 m AGL) buvo atliekami skenuojančiu dalelių judrio spektrometru (SMPS, IFT Leibniz Tropos) (Wiedensohler ir kt., 2012) ir kondensaciniu dalelių skaitikliu (CPC, UF-02proto modelis) (Mordas ir kt., 2008) nuo 2010 m. liepos 1 d. iki lapkričio 1 d. ir nuo 2011 m. sausio 1 d. iki rugsėjo 30 d. Juodosios anglies masės koncentracija jūrinėje foninėje aplinkoje Preilos Atmosferos užterštumo tyrimų stotyje (55°55'N, 21°04'E, 5 m AGL) buvo matuojama pagal šviesos sugertį aetalometru (Magee Sci. 7-ių bangos ilgių modelis AE31) (Snyder ir kt., 2007) nuo 2011 m. sausio 1 d. iki gruodžio 31 d.

Pavasarinis žolės deginimo poveikis atmosferos užterštumui Pietryčių Baltijos jūros regiono foninėje aplinkoje buvo tiriamas 2014 m. kovo mėn. 1–31 d. naudojant aerozolio cheminės sudėties monitorių (ACSM, Aerodyne Res.) (Ng ir kt., 2011a). Šis prietaisas realiu laiku matuoja aerozolio dalelių ir jas sudarančių cheminių komponentų (organinių junginių, nitratų, amonio, sulfatų ir chloridų) kiekybinę masės koncentraciją. Meteorologiniai ir oro teršalų duomenys (PM₁₀, azoto oksidai, anglies monoksidas ir sieros dioksidas) buvo gauti iš Aplinkos apsaugos agentūros matavimų stotelių: Lazdynų ir Savanorių Vilniaus m. ir Centro Klaipėdos m.. Juodoji anglis (BC) ir dalelių dydžių pasiskirstymas buvo matuojami atitinkamai aetalometru ir SMPS prietaisais.

Iškastinio kuro degimo ir neiškastinio kuro emisijos šaltinių įvertinimui buvo atlikti $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$ tyrimai Vilniaus miesto-foninėje aplinkoje 2012 m. spalio 1–31 d. naudojantis stabiliųjų masių spektrometru (Thermo Fisher Sci. modelis Finnigan Delta Plus Advantage) ir elementiniu analizatoriumi (Thermo Fisher Sci. modelis Flash EA 1112). Mėginiai šiam tyrimui buvo renkami 11 pakopų impaktoriumi (MOUDI), nusodinant aerozolio daleles ant aliuminio folijos (vieno mėginio paėmimo trukmė – 72 val.). Tuo pačiu metu buvo atliekami dalelių dydžių pasiskirstymo tyrimai SMPS prietaisu (7–299 nm judrio skersmens D_p intervale (TSI modelis 3936) (Asbach ir kt., 2009) ir aerodinaminiu aerozolio spektrometru

(0,5–20,0 μm aerodinaminio skersmens D_A intervale (APS, TSI modelis 3321) (Peters ir kt., 2006).

Atgalinės oro masių trajektorijos buvo skaičiuojamos naudojantis hibridiniu vienos dalelės integruotos trajektorijos Lagranžo modeliu (HYSPLIT-4), meteorologiniai duomenys buvo gauti iš NCEP/NCAR Reanalysis duomenų bazės (Draxler ir kt., 2015). K-vidurkio atgalinių oro masių trajektorijų klasterinė analizė buvo atlikta siekiant iširti ryšį tarp aerozolio dalelių cheminių komponentų savybių ir oro masių kilmės (Dall'Osto ir kt., 2011). Panašios kilmės oro masių trajektorijos, t. y. turinčios tokį pat advekcijos kelią ir oro masių judėjimo greitį, buvo grupuojamos į bendrus klasterius.

Aerozolio dalelių ir BC taršos šaltinių poveikis atmosferos užterštumui skirtingais metų sezonais buvo nustatytas taikant hibridinius receptorinius modelius, leidžiančius įvertinti galimo tolimojo šaltinio įtaką tiriamai aplinkai (Cheng ir kt., 2013; Kabashnikov ir kt., 2011). Bendrinė hibridinio receptorinio modelio išraiška, aprašyta lygtyje (1):

$$C_{i,j} = \frac{\sum_{T=1}^L f(C_T) \tau_{i,j,T}}{\sum_{T=1}^L \tau_{i,j,T}}, \quad (1)$$

čia $f(C_T)$ – sąlyginė šaltinio koncentracijos vertė receptoriniame taške kiekvienai trajektorijai T , L – bendras trajektorijų skaičius, $\tau_{i,j,T}$ – trajektorijos T trukmė geografinėje gardelėje (i,j) , $C_{i,j}$ apibrėžiamas, kaip šaltinio teršalų intensyvumas (koncentracija) vietovėje.

PSCF metodas leido įvertinti teršalų koncentracijos tikimybę oro masėse. Taršos šaltinių analizei naudotas koncentracija normuotų trajektorijų (CWT) metodas pasižymi tuo, kad receptoriniame taške išmatuota koncentracija yra naudojama kaip svertinis koeficientas įvertinti pasirinkto teršalo lygį pernašos metu.

Dalelių dydžių pasiskirstymai gauti iš APS-SMPS matavimų, buvo perskaičiuoti į tūrinę ir masės koncentraciją, pateikiami lygtyje (2). Korekcijos koeficientas nebuvo pritaikytas SMPS duomenims, dėl to, kad abiejų prietaisų matavimo intervalai nebuvo persikloję (Khlystov ir kt., 2004):

$$M_{\text{TOT}} = \frac{\pi}{6} \rho_P N \left(\frac{D_A}{\sqrt{\rho_P}} \right)^3, \quad (2)$$

Modeliavimui buvo pasirinktas aerozolio dalelių tankis $\rho_P = 1,3 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$. Perskaičiuota dalelių masės koncentracija buvo sutapatinta su MOUDI impaktoriaus kaskadomis.

Pagrindinių komponentių analizė (PCA) yra susijusių kintamųjų tiesinė transformacija tokiu būdu, kad gautos komponentės išsidėstytų pagrindinės, turinčios didžiausią dispersiją, kryptimi. Pagrindinės komponentės yra statmenos viena kitos atžvilgiu, todėl yra tarpusavyje nepriklausomos (Jolliffe, 2005).

Ši transformacija yra aprašyta lygtyje (3):

$$PC_i = \sum_{j=1}^{J-1} b_{i,j} \cdot v_j, \quad (3)$$

čia J – kintamųjų skaičius pradiniuose duomenyse, $b_{i,j}$ yra pagrindinių komponentių PC_i pradinių kintamųjų v_j indėlis. Komponentių skaičius gali būti toks pat ar mažesnis, nei pradinių kintamųjų skaičius duomenyse.

Supaprastintas metodas charakterizuoti anglies turinčių aerozolio dalelių senėjimą gali būti taikomas su ACSM duomenims (Ng ir kt., 2011b). Iš bendro m/z spektro išskiriami du pagrindiniai oksiduotų organinių junginių (OOA) fragmentai: f_{43} (m/z 43 ir bendro signalo santykis), priskiriami iš rūgščių kilusiai cheminių junginių grupei, tokiai kaip $\text{C}_2\text{H}_3\text{O}^+$, ir f_{44} – nerūgštiniai oksiduoti junginiai, tokie kaip CO_2^+ (Russell ir kt., 2011). Atidedama f_{44} priklausomybė nuo f_{43} . Visos organinio aerozolio (OA) komponentės išsidėstytų trikampio viduje, apriboto tiesėmis ($y = -6,020 \cdot x + 0,415$ ir $y = -1,844 \cdot x + 0,332$) (Ng ir kt., 2010). Šių tiesių susikirtimo taškas (0,020; 0,295). Angliavandenilinėms OA komponentėms priskiriamos $f_{44} < 0,05$ vertės, pusiau ir mažai lakių oksiduotų organinių junginių (SV-OOA ir LV-OOA) faktoriai atitinkamai užima apatinę ir viršutinę trikampio dalis.

Iškastinio kuro degimo ir neiškastinio kuro emisijos šaltinių vertinimui buvo naudojamas Bajeso stabilijų izotopų maišymosi modelis ir jo atskiras sprendinys, pritaikytas dviem šaltiniams nustatyti su vienu izotopu (Phillips ir kt., 2003):

$$\delta^{13}C_M \cdot k_M = \delta^{13}C_1 \cdot k_1 + \delta^{13}C_2 \cdot k_2, \quad (4)$$

$$k_1 + k_2 = k_M, \quad (5)$$

čia $\delta^{13}C_M$ – išmatuota bandinio anglies stabiliųjų izotopų santykio vertė, k_M – išmatuotas bendroje anglyje (TC) esantis CO_2 kiekis santykiniais vienetais, $\delta^{13}C_1 = -28,0 \pm 0,9 \text{ ‰}$ yra 1-ojo šaltinio izotopinio santykio fiksuota vertė, $\delta^{13}C_2$ – 2-ojo šaltinio kintanti vertė ($-24,0 \text{ ‰}$, $-26,0 \text{ ‰}$), k_1 ir k_2 – atitinkamai 1-ojo ir 2-ojo šaltinių indėliai.

TYRIMŲ REZULTATAI

1. Smulkių aerozolio dalelių skaitinė koncentracija ir jų šaltiniai miesto aplinkoje

Aerozolio dalelių skaitinės koncentracijos (PNC) lygiai buvo išmatuoti Vilniaus miesto aplinkoje. Nustatytas didelis PNC kitimas, priklausantis išskirtinai nuo aerozolio dalelių paros eigos ir sezono (1 pav.). Buvo nustatyti du sezoniniai PNC ciklai: 1) žiema–pavasaris, maksimali PNC užregistruota 2011 m. balandžio mėn. ($1,90 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$; $SD 1,50 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$) ir 2) sumažėjimas vasaros laikotarpiu, mažiausios PNC vertės užregistruotos 2011 m. liepos–rugpjūčio mėn. ($3,8 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$; $SD 3,00 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$). Mėnesinė vidutinė dalelių skaitinė koncentracija rudenį kito nuo $3,4 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$ ($SD 3,0 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$) spalio mėn. iki $1,20 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$ ($SD 8,0 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$) rugsėjo mėn. PNC vertės Vilniaus miesto aplinkoje buvo palygintos su kitų miestų vertėmis (1 lentelė). Nustatyta, kad aerozolio dalelių skaitinė koncentracija miesto aplinkoje priklauso nuo keleto veiksnių, t. y. eismo intensyvumo, sezoninės kaitos ir oro sąlygų. Šaltuoju periodu, kai oro temperatūra nukrenta žemiau $0 \text{ }^\circ\text{C}$, buvo užregistruotos didesnės PNC vertės. Tai galima paaiškinti aerozolio dalelių akumuliacija žemesniuose atmosferos sluoksniuose dėl padidėjusios emisijos ir silpnesnės atmosferos pažemio sluoksnio konvekcijos (Gao ir kt., 2007). Kaip buvo pastebėta tyrimuose (Meyer ir kt., 2007; Karvosenoja ir kt., 2008), iškastinio kuro naudojimas ir biomasės deginimas šildymui namų ūkiuose gali stipriai padidinti aerozolio dalelių koncentraciją. Pavasarį viena pagrindinių PNC padidėjimo miesto aplinkoje priežasčių yra atmosferos tarša dėl biomasės ir žolės deginimo Pietryčių Baltijos jūros regione (Ulevicius ir kt., 2010).

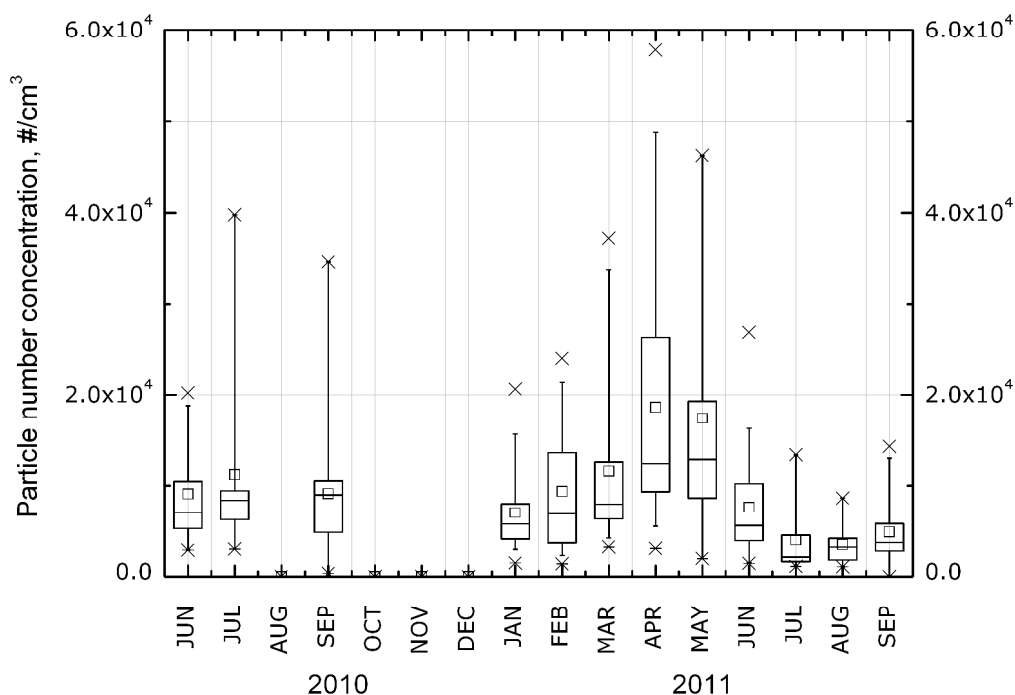
1 lentelė. Dalelių skaitinės koncentracijų metinių (arba sezoninių) verčių miestų aplinkose suliginimas

Vieta	Vietovės klasifikacija	Tyrimų laikotarpis	PNC vertės, cm^{-3}	Šaltinis
Augsburgas (DE)	miesto	2001 m. balandis– 2003 m. birželis; 2003 m. rugsėjis– gruodis	$1,02 \cdot 10^4$ ^A	Aalto ir kt., 2005
Brisbane (AU)	miesto	1996 m.–1997 m.	$0,8 \cdot 10^4$ – $1,54 \cdot 10^4$ ^A	Thomas ir kt., 2002
Budapeštas (HU)	miesto	2008 m. lapkritis– 2009 m. lapkritis	$1,18 \cdot 10^4$ ^A	Salma ir kt., 2011
Gwangju (KR)	miesto	2006 m.–2007 m.	$7,4 \cdot 10^3$ ^W	Park ir kt., 2008
Helsinkis (FI)	miesto/jūrinė	1997 m. gegužė– 2001 m. kovas	$1,67 \cdot 10^4$ ^A	Laakso ir kt., 2003
Stokholmas (SE)	miesto	2001 m. balandis– 2003 m. gruodis	$1,03 \cdot 10^4$ ^A	Thomas ir kt., 2002
Vilnius (LT)	miesto	2010 m. birželis– 2011 m. rugsėjis**	$1,00 \cdot 10^4$ ^A	Šis tyrimas

^A – PNC metinis vidurkis

^W – PNC žiemos sezono vidurkis

** – Duomenys nuo 2010 m. spalio–gruodis nebuvo įtraukti.



1 pav. Vidutinė mėnesinė dalelių skaitinė koncentracija Vilniaus miesto aplinkoje 2010 m. birželio–2011 m. rugsėjo mėn. Horizontali linija – mediana, stačiakampis – 25-asis ir 75-asis procentiliai, „ūšai“ – 5-asis ir 95-asis procentiliai, slankiojantis kvadratas – mėnesio vidurkis ir kryžiuokai – minimali ir maksimali vertės.

Tam, kad būtų įvertinta įvairių veiksnių įtaka smulkių dalelių koncentracijai buvo atlikta PCA. Šios analizės rezultatai pateikti 2 lentelėje, kurioje yra apskaičiuoti kiekvienos komponentės faktorių koreliacijos koeficientai. 2 lentelės apatinėje eilutėje nurodyta, kiek duomenų išsibarstymo paaiškina kiekviena papildoma komponentė. Rezultatų aptarimui buvo apsiribota pirmosiomis trimis komponentėmis. PC_1 paaiškina 45 % duomenų išsibarstymo, PC_2 – 17 % ir PC_3 – 12 %. Pagrindinė komponentė (PC_1) dėl stiprios PM_{10} , azoto monoksido ir azoto dioksido faktorių tarpusavio koreliacijos buvo susieta su automobilių transporto taršos šaltiniu. Meteorologiniai parametrai (WS ir p) neigiamai koreliavo su PNC. Atmosferos teršalų skiedimas ir maišymasis spartėja dėl padidėjusio pažemio sluoksnio (didesnės p vertės) ir vėjo greičio (didesnės WS vertės). Neigiamas ozono koncentracijos koreliacijos koeficientas ($-0,90$) yra siejamas chemine pusiausvyra tarp azoto oksidų ir ozono.

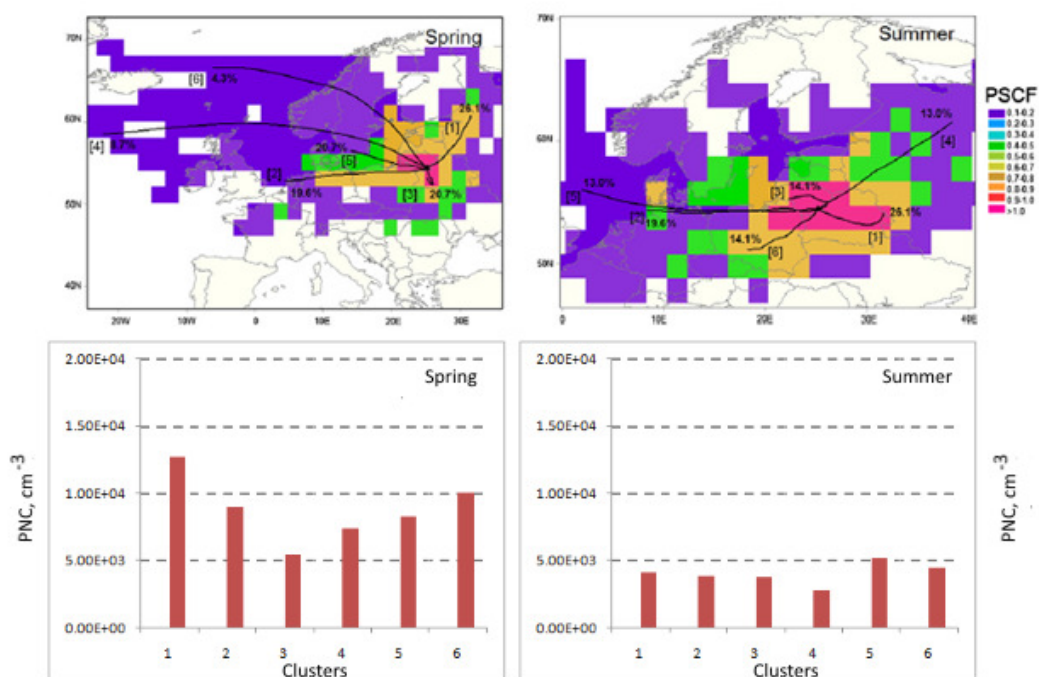
2 lentelė. Pagrindinių komponentių matrica. PM_{10} , išmetamųjų dujų ir meteorologiniai duomenys buvo gauti iš Aplinkos apsaugos agentūros stotelių (Savanorių ir Lazdynų), o PNC iš miesto foninės aplinkos stoties Vilniuje. Reikšmingi faktorių koreliacijos koeficientai (absoliutinės vertės > 0.6) yra paryškinti.

Faktorius	PC ₁	PC ₂	PC ₃
PM ₁₀	0,74	0,15	-0,02
SO ₂	0,19	0,73	-0,29
NO	0,59	0,23	0,60
NO ₂	0,90	0,11	-0,34
NO _x	0,94	0,19	0,01
O ₃	-0,90	0,16	0,18
RH	0,20	-0,77	-0,27
<i>p</i>	-0,51	0,39	-0,41
WS	-0,77	-0,12	0,42
CO	0,62	-0,56	0,02
PNC	0,55	0,16	0,59
Paaiškinta variacija	45 %	17 %	12 %

Antroje komponentėje (PC₂) stebimas didelis sieros dioksido faktoriaus koreliacijos koeficientas (0,73), kuris yra susietas su oro tarša iš gyvenamųjų namų šildymo, dėl to, kad sieros dioksidas išsiskiria, naudojant anglį ir sunkiuosius naftos produktus kaip kurą (Marković et al., 2008). PC₃ komponentėje didelę svarbą turėjo azoto monoksido dujų (0,60) ir PNC (0,59) faktorių koreliacija. Stipri anglies monoksido dujų koreliacija ir neigiama (arba maža) PM₁₀, azoto dioksido ir sieros dioksido faktorių koreliacija identifiko taršos šaltinį iš automobilių variklių

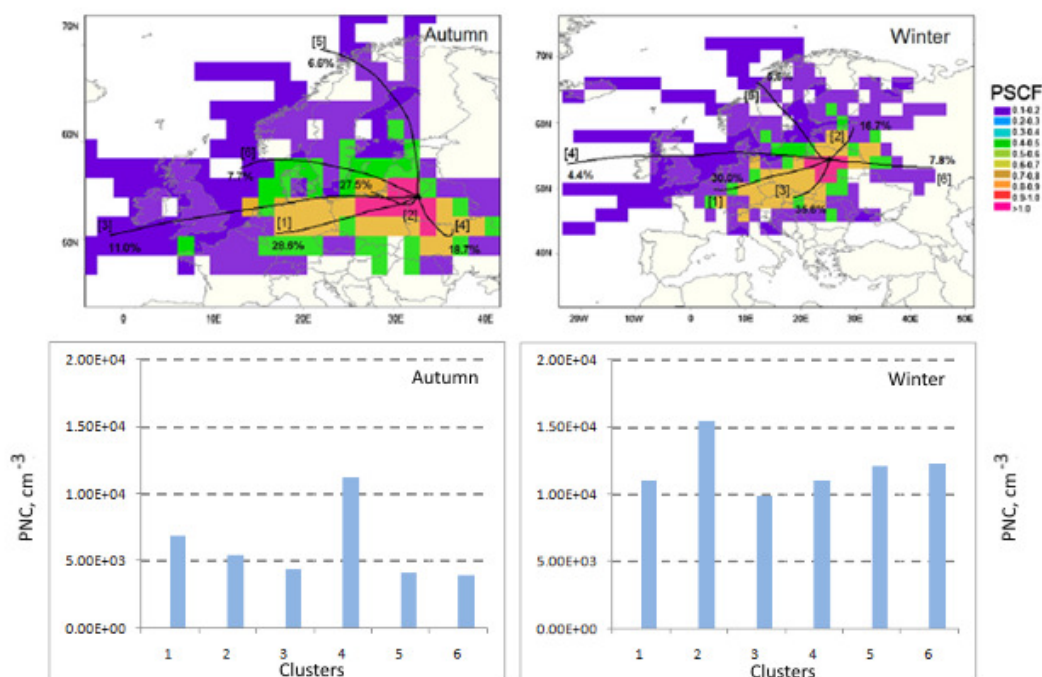
išmetimų. PC₃ komponentėje PNC ir anglies monoksido faktorių tarpusavio koreliacija parodė, kad šios dujos buvo naujų dalelių susidarymo šaltinis (Cheung ir kt., 2011). PC₁ ir PC₂ komponentėse PNC ir PM₁₀ faktorių koreliacija parodė, kad aerozolio dalelių padidėjimui turėjo bendras taršos padidėjimas miesto aplinkoje.

PSCF, CWT ir oro masių klasterizacijos metodai buvo pritaikyti sezoninių aerozolio dalelių skaitinės koncentracijos duomenų analizei atlikti, tam, kad būtų nustatyti pagrindiniai šaltiniai, lemiantys PNC padidėjimą miesto aplinkoje (2 ir 3 pav.). Pagrindinės oro masės pasiekia Lietuvą iš V, ŠV, PV ir PR. Ilgos ir greitai judančios oro masės buvo kilusios iš vakarų ir šiaurės vakarų regionų. Oro masės, kilusios iš P ir PV, dažniausiai buvo trumpos ir lėtai judančios virš Lenkijos, Vokietijos ir Kaliningrado.



2 pav. Atgalinių oro masių trajektorijų ir dalelių skaitinės koncentracijos (PNC) klasterinė analizė Vilniaus miesto foninėje aplinkoje. Pagrindiniai šaltinio indėlio nustatymo žemėlapiai (PSCF) modeliuoti panaudojant PNC vertes (1 val. vidurkiai). Modeliavimo parametrai: trajektorijų trukmė – 72 val., aukštis – 100 m AGL, klasterių skaičius – 6, tyrimų laikotarpiai – 2011 m. pavasaris ir vasara.

Pavasario metu vidutinė aerozolio dalelių koncentracija siekė $1,63 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$. Oro masių trajektorijos iš 1-ojo klasterio (26 % visų trajektorijų, iš ŠR krypties) turėjo didžiausias PNC vertes ($1,27 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$; $SD 1,0 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$), o iš 3-iojo klasterio (21 % visų trajektorijų, iš PR krypties) – mažiausias PNC vertes ($5,5 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$, $SD 1,22 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$) Vilniaus mieste (2 pav.). Vasaros metu PNC koncentracijos buvo mažiausios ir kito nuo $2,8 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$ ($SD 1,2 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$) ketvirtajame klasteryje (13 % visų trajektorijų, iš ŠR krypties) iki $5,2 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$ ($SD 7,0 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$) penktajame klasteryje (13 % visų trajektorijų, iš V krypties). Šį sezoną tolimųjų oro masių daroma įtaka nebuvo nustatyta.



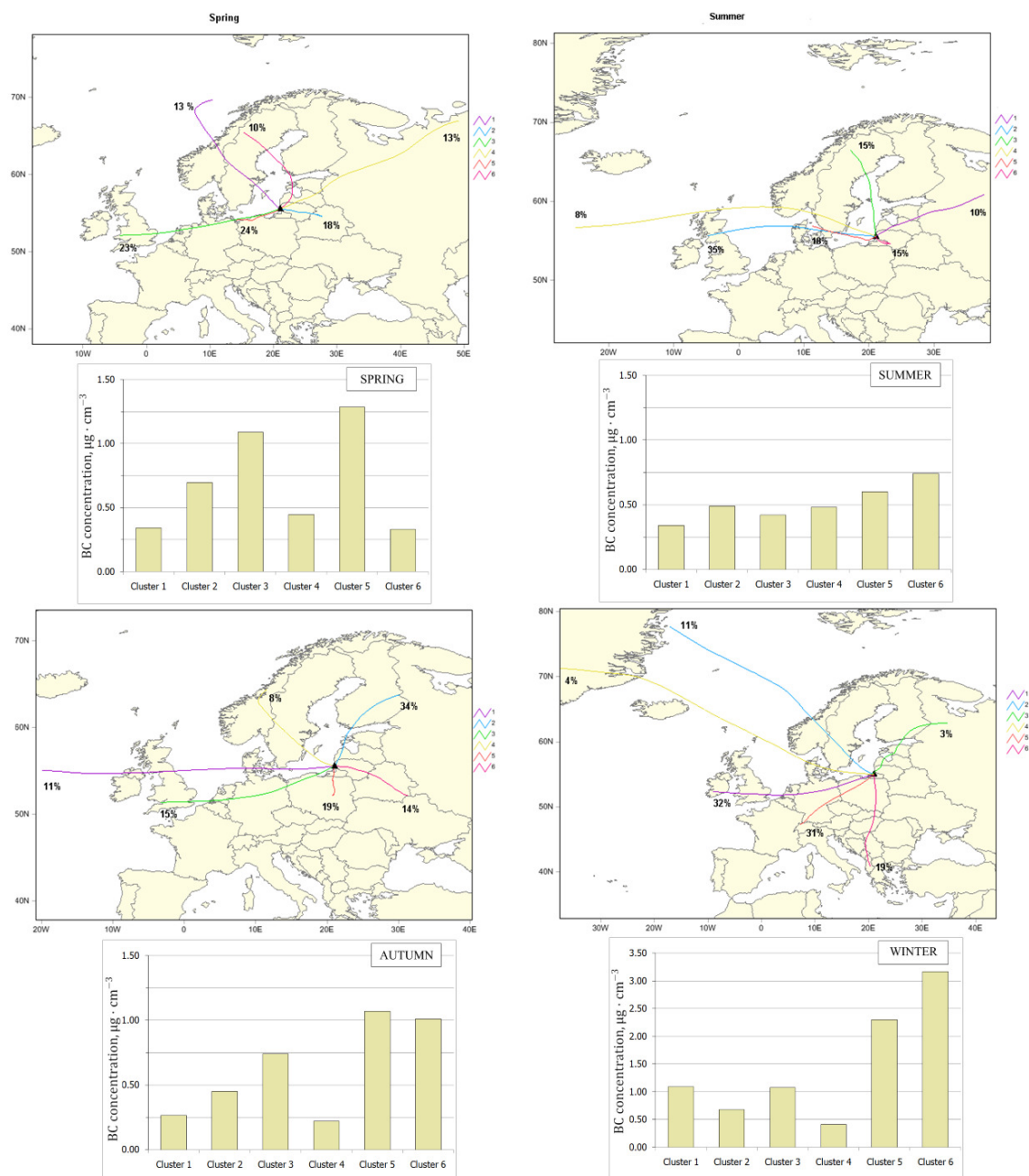
3 pav. Atgalinių oro masių trajektorijų ir dalelių skaitinės koncentracijos (PNC) klasterinė analizė Vilniaus miesto foninėje aplinkoje. Pagrindiniai šaltinio indėlio nustatymo žemėlapiai (PSCF) modeliuoti panaudojant PNC vertes (1 val. vidurkiai). Modeliavimo parametrai: trajektorijų trukmė – 72 val., aukštis – 100 m AGL, klasterių skaičius – 6, tyrimų laikotarpiai – 2010 m. ruduo ir 2011 m. žiema.

Rudenį oro masės iš 4-ojo klasterio (19 % visų trajektorijų, iš PR krypties) labiausiai padidino PNC vertes ($1,12 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$; $SD 6,3 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$), o atslinkusios iš ŠV

5-ojo ir 6-ojo klasterių turėjo mažiausias PNC vertes atitinkamai $4,1 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$ (*SD* $7,7 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$) ir $4,0 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$ (*SD* $2,5 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$) (3 pav.). Žiemos foninė PNC koncentracija ($1,00 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$) buvo didesnė, nei visais kitais sezonais ($5,0 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$). Didžiausios PNC vertės ($1,55 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$; *SD* $8,6 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$) buvo nustatytos oro masių pernašose iš ŠR 2-ajame klasteryje (17 % visų trajektorijų), mažiausios PNC vertės ($9,9 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$; *SD* $7,6 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$) – iš PV 3-iajame klasteryje (36 % visų trajektorijų).

2. Juodosios anglies šaltinių nustatymas Pietryčių Baltijos jūros regione

Siekiant įvertinti oro masių pernašas Preilos stotyje buvo atliktas receptorinis modeliavimas (PSCF, CWT ir klasterinė oro masių tyrimai) kiekvienam sezonui: žiemos (gruodis–vasaris), pavasario (kovas–gegužė), vasaros (birželis–rugsjūtis) ir rudens (rugsėjis–lapkritis).



4 pav. Sezoninė atgalinių oro masių trajektorijų kaita, sugrupuota į 6 klasterius. BC masės koncentracija ($\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) pavaizduota kiekviename klasteryje kiekvieno sezono metu.

Įvertinus atgalinių oro masių trajektorijų klasterius buvo nustatytos didžiausios kiekvieno sezono BC koncentracijos (4 pav.): žiemos – 6-asis klasteris, BC koncentracija $3,10 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (SD $1,20 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), pavasario – 3-asis klasteris, BC koncentracija $1,28 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (SD $1,02 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), vasaros – 6-asis klasteris, BC koncentracija $0,72 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (SD $0,50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) ir rudens – 5-asis klasteris, BC koncentracija $1,07 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (SD $0,70 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). Pavasarį kontinentines oro masių pernašas iš 5-ojo klasterio paveikė biomasės (pernykštės žolės) deginimas. Išskyrus iškastinio kuro deginimą, biomasės deginimas, įskaitant gaisrus, yra svarbus veiksnys, padidinantis BC koncentracijas Pietryčių Baltijos jūros regione.

Nustatytos mažiausios BC koncentracijos kiekvieno sezono metu buvo: žiemą – 4-asis klasteris, BC koncentracija $0,45 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (SD $0,20 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$); pavasarį – 6-asis klasteris, BC koncentracija $0,33 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (SD $0,12 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$); vasarą – 1-asis klasteris, BC koncentracija $0,35 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (SD $0,10 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) ir rudenį – 4-asis klasteris, BC koncentracija $0,22 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (SD $0,11 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). Šios švarios oro masių pernašos dažnai formuojasi virš Šiaurinės Europos dalies ar Atlanto vandenyno. Kirsdamos Baltijos jūrą, jos nusileidžia iš 3000 m aukščio ir perneša mažiausias BC koncentracijas.

3. Taršos šaltinių charakterizavimas žolės deginimo metu Pietryčių Baltijos jūros regione

Žolės deginimas yra viena iš aktualių Pietryčių Baltijos jūros regiono oro taršos problemų pavasario sezono metu. Šis antropogeninis šaltinis keičia oro masių cheminę sudėtį bei fizikines savybes, o su oro masėmis ši tarša išplinta į tolimesnius regionus (Beverland ir kt., 2000; Abdalmogith ir Harrison, 2005). 2014 m. kovo 1–31 d. Preilos stotyje buvo tiriamos oro masių pernašos, siekiant įvertinti taršos šaltinių indėlį Pietryčių Baltijos jūros regiono foninei aplinkai.

Dažniausiai pavasarinis žolės deginimas įvyksta dėl pievų, ganyklų ir laukų valymo, esant palankioms oro sąlygoms atmosferos slėgiui ir oro temperatūrai. Kovo mėn. buvo nustatyti du aukšto slėgio laikotarpiai (kovo 5–14 d. ir kovo 26–30 d.). Pirmuoju laikotarpiu vidutinis atmosferos slėgis buvo vidutiniškai 13,1 hPa ir

antruoju – 8,8 hPa didesnis nei standartinis atmosferos slėgis jūros lygyje (1013,25 hPa). 2014 m. kovo mėn. buvo šiltesnis lyginant su 2013 m., vidutinė mėnesio temperatūra buvo 3,8 °C. Vidutinės paros temperatūros kovo 10, 21 ir 28 d. buvo atitinkamai 7,9 °C, 9,8 °C ir 10,5 °C. Dėl aukšto atmosferos slėgio bei šiltų orų šiomis dienomis buvo susidariusios palankios oro sąlygos atsirasti didesniai žolės deginimo vietų skaičiui.

Tiriamuoju laikotarpiu PM₁₀ teršalų koncentracija Klaipėdos m. Aplinkos apsaugos agentūros stotelėje kito nuo 10,3 iki 114,6 μg·m⁻³. Kovo mėn. oro tarša buvo smarkiai padidėjusi – 29 % atvejų (9 iš 31 paros) buvo viršyta PM₁₀ ribinė paros koncentracijos vertė (50,0 μg·m⁻³). Aukštesnės nei įprasta PM₁₀ koncentracijos buvo stebimos kovo 7–10 d., 20–21 d., 27 d., o kovo 30 d. PM₁₀ paros vidutinė koncentracija siekė 60,6 μg·m⁻³. Užterštose oro masėse žolės deginimo epizodo metu (kovo 10 d.), buvo užregistruota didžiausia PM₁₀ paros koncentracija (114,6 μg·m⁻³), kuri triskart viršijo PM₁₀ kovo mėn. vidutinę koncentraciją (38,1 μg·m⁻³).

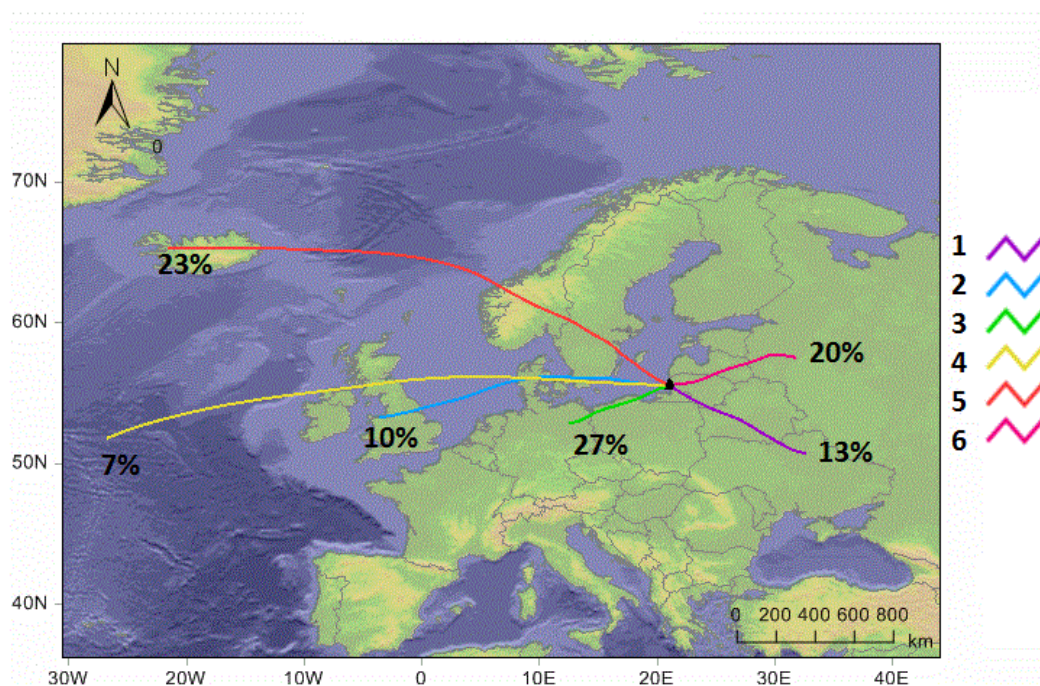
3 lentelė. Pagrindinių komponentių matrica. PM₁₀, išmetamųjų dujų ir meteorologiniai duomenys buvo gauti iš Aplinkos apsaugos agentūros Klaipėdos miesto centro stotelės, BC – iš jūrinės foninės stoties Preiloje. Reikšmingi faktorių koreliacijos koeficientai (absoliutinės vertės > 0.6) yra paryškinti.

Faktorius	Tikrinės reikšmės	PC₁	PC₂	PC₃
PM ₁₀	3,4	0,87	0,21	-0,07
BC	1,7	0,65	0,39	0,18
SO ₂	1,1	0,59	0,42	-0,26
NO ₂	0,7	0,80	-0,29	-0,06
CO	0,6	0,28	0,79	0,14
WD	0,2	0,07	-0,05	0,96
WS	0,2	0,58	-0,75	0,03
RH	0,1	-0,24	-0,72	-0,01

Atlikus PCA nustatyta, kad pirmosios trys komponentės bendrai paaiškina 86,0 % verčių kitimą. Tolimesnės komponentės nebuvo nagrinėtos dėl menko jų indėlio.

Faktorių PM_{10} , BC ir sieros dioksido tikrinės reikšmės yra $> 1,0$, todėl jie yra svarbiausi faktoriai, apibūdinantys oro taršą tiriamuoju periodu (3 lentelė). Pagrindinė komponentė (PC_1) yra daugiausia susijusi su atvirojo degimo šaltinių faktorių koreliacija (PM_{10} , BC ir sieros dioksidas). Antrajai komponentei (PC_2) didesnę įtaką daro meteorologiniai veiksniai – vėjo kryptis (WD) ir santykinė oro drėgmė (RH), nei išmetamosios dujos. PC_2 paaiškina 21,3% verčių kitimą. PC_3 rodo koncentracijos didėjimą tik kintant vėjo kryptiai (13,1 %).

Kovo mėn. buvo atlikti aerolio cheminių komponentų (organinių junginių, nitratų, amonio, sulfatų, chloridų) gautų iš ACSM matavimai, bei BC koncentracijos, gautos iš aetalometro matavimų, bei atgalinių oro masių trajektorijų klasterinė analizė. Pasirinktas optimalus klasterių skaičius – 6 (5 pav.). Oro masės iš šiaurės ir šiaurės vakarų buvo aprašytos klasteriais Nr. 2, Nr. 4 ir Nr. 5, buvo ilgiausios ir judėjo greičiau, nei iš klasterių Nr. 1, Nr. 3 ir Nr. 6, kuriuose vyraavo kontinentinė oro masių pernaša.



5 pav. Atgalinių oro masių trajektorijų virš Preilos stoties klasterinė analizė. Grupavimas į 6 klasterius. Tyrimų periodas – 2014 m. kovo mėn.

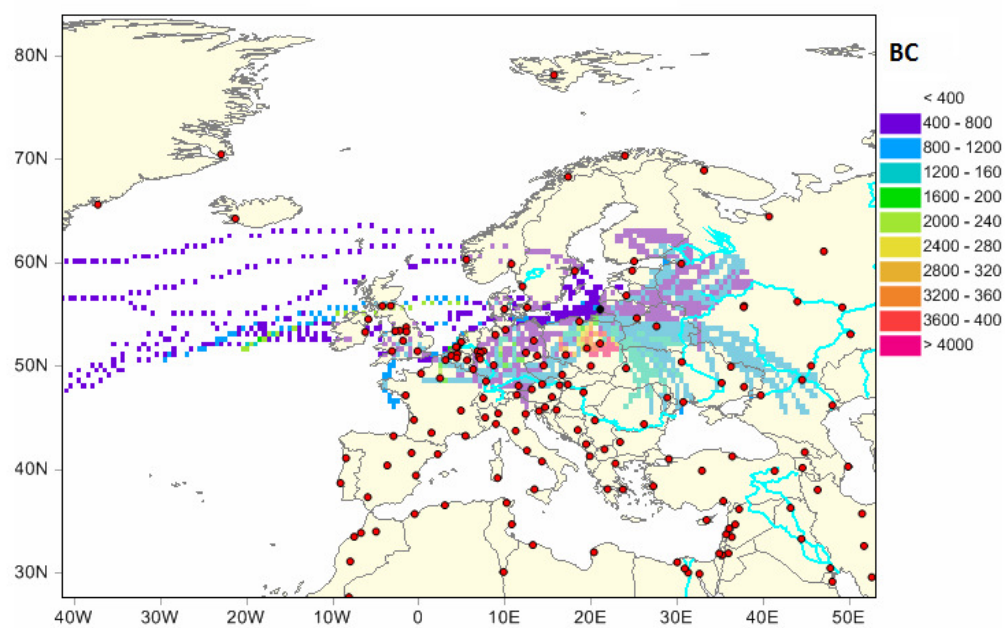
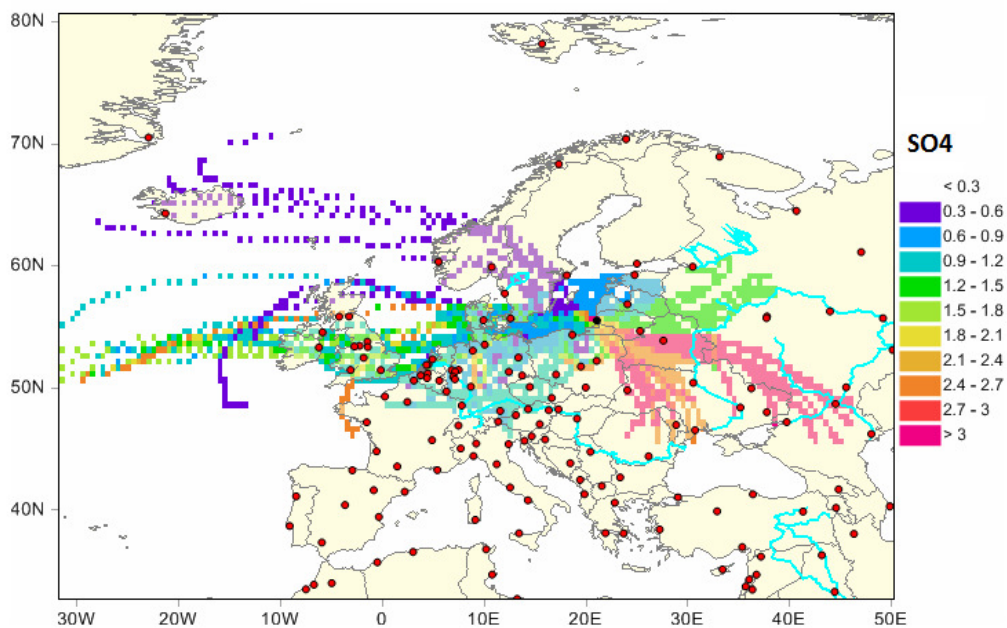
Nustatyta, kad labiausiai užterštos oro masės buvo kilusios iš 1-ojo ir 3-ojo klasterių (4 lentelė). Oro masių pernaša iš 1-ojo klasterio yra siejama su intensyviu biomasės degimu Baltarusijoje ir Ukrainoje. BC koncentracija sudarė $1,29 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ir

buvo 1,8 karto didesnė už 2013 m. nustatytą Pietryčių Baltijos jūros regiono metinę foninę juodosios anglies koncentraciją ($0,71 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). Šiame klasteryje buvo nustatytos didžiausios vidutinės mėnesio teršalų (organinių junginių, nitratų, amonio, sulfatų, chloridų ir BC) koncentracijos. Verta paminėti, kad trumpiausios iš visų šešių trajektorijos buvo nustatytos 3-ajam klasteryje, šios oro masių pernašos turėjo palankias sąlygas teršalams kauptis iš atvirų biomasės degimo vietų Kaliningrado ir Lenkijos šiaurės rytų regionuose.

4 lentelė. Atgalinių oro masių trajektorijų klasteriai ir teršalų: organinių junginių, nitratų, amonio, sulfatų, chloridų ir BC vidutinės koncentracijos juose. Tyrimų periodas – 2014 m. kovo mėn.

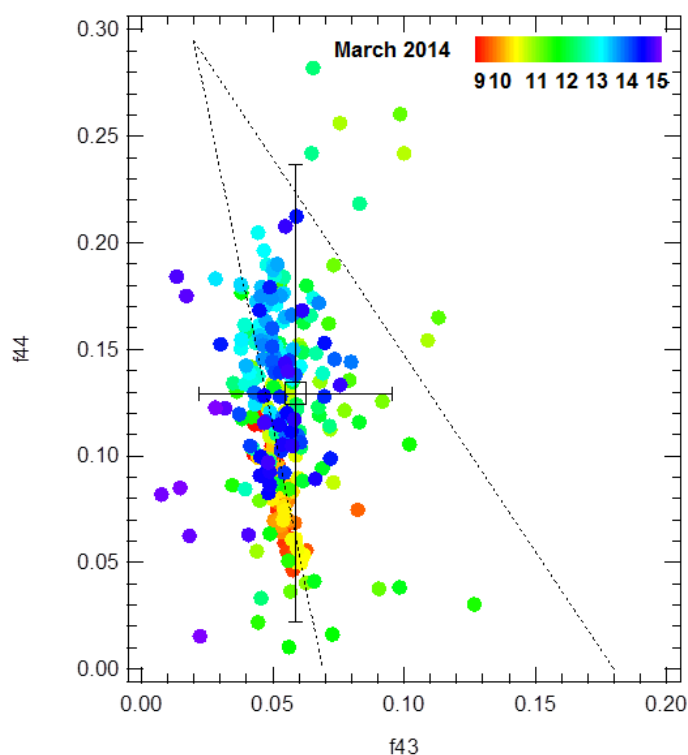
Klasteris	Org., $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	SO_4^{2-} , $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	NO_3^- , $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	NH_4^+ , $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	Cl^- , $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	BC, $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$
Nr. 1	8,94	2,25	0,56	1,68	0,23	1,29
Nr. 2	5,64	0,91	1,10	1,34	0,18	0,51
Nr. 3	3,30	1,20	3,23	1,03	0,21	0,50
Nr. 4	6,81	2,21	1,42	1,28	0,06	0,25
Nr. 5	1,60	0,71	1,26	0,30	0,08	0,08
Nr. 6	4,62	1,12	1,54	1,35	0,23	0,60

CWT žemėlapiuose vaizduojamos aerolio cheminių komponentų koncentracijos, kuriuose išryškėja pagrindiniai šaltiniai, lemiantys teršalų koncentracijų kitimą Preilos stoties jūrinėje foninėje aplinkoje (6 pav.). Oro taršos padidėjimas taip pat pastebimas dėl didelių sulfatų koncentracijos verčių pietrytinėse oro masių pernašose CWT žemėlapyje ($2,3\text{--}4,0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) (6 a pav.). BC koncentracijos 4-ajame ir 5-ajame klasteriuose buvo žemiausios, tai parodo, kad jūrinės oro masių pernašos iš vakarų buvo švaresnės negu kontinentinės oro masių pernašos iš pietryčių. BC koncentracija ženkiai padidėja, kai oro masės atslenka iš Lenkijos (6 b pav.). Biomasės degimas namų ūkiuose yra didžiausias organinių junginių aerolio dalelėse antropogeninis šaltinis (Kulmala ir kt., 2011; Visschedijk ir kt., 2009).



6 pav. CWT žemėlapiai a) sulfatų ir b) BC masės koncentracijos atgalinėse oro masių pernašos trajektorijose visų stebėjimų laikotarpiu. Spalvų paletė nurodo komponentės koncentraciją ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). Pagrindiniai šaltiniai yra tamsiai raudoni (CWT vertės ≤ 90 -asis procentilis), šaltinių nebuvimas – tamsiai mėlyna spalva (CWT vertės ≤ 10 -asis procentilis).

OA komponentėių trikampio metodas buvo pritaikytas f_{44} ir f_{43} komponentės buvo gautos iš ACSM matavimo duomenų Preilos stotyje 2014 m. kovo 9–15 d. (7 pav.). Taškas vaizduoja 30 min. trukmės aerozolio komponentėių apkrovų matavimus, o spalva nurodo dieną, kurią buvo vykdomi matavimai. Kovo 14–15 d. į Preilą atslinkusios oro masės nebuvo paveiktos žolės deginimo taršos. f_{44}/f_{43} vertės buvo išsidėsčiusios viršutinėje trikampio dalyje. PMF faktoriaus LV-OOA indėlis buvo didžiausias šio epizodo metu ir parodė, kad didesnė OA komponentės dalis buvo oksiduota, o tai charakterizuoja aerozolio dalelių senėjimo vyksmą ir vietinių šaltinių daromą įtaką. Žolės degimo metu (kovo 9–10 d.) f_{44}/f_{43} vertės yra išsidėsčiusios apatinėje trikampio ploto dalyje palei vieną iš jo kraštinių ($y = -6,0204 \cdot x + 0,4154$) (Ng ir kt., 2010). Tai patvirtina, kad oksidacijos reakcijos didelės OA koncentracijos metu buvo pastovios.



7 pav. OA komponentės signalo f_{44} verčių vaizdavimas f_{43} atžvilgiu tyrimų laikotarpiu – 2014 m. kovo 9–15 d. Preilos stotyje. Brūkšninė linija parodo OOA komponentės ribas.

Šiuo atveju PMF faktorius SV-OOA buvo dominuojantis ir parodo, kad OA komponentė buvo ne iki galo oksiduota, o jos kilmė gali būti susieta su dalelių formavimusi iš atvirų biomasės degimo produktų išmetimų (Ulbrich ir kt., 2009).

4. Kompleksinių aerolio dalelių dydžių pasiskirstymo ir anglies stabiliųjų izotopų santykio tyrimų pritaikymas iškastinio kuro degimo ir neiškastinio kuro šaltinių identifikavimui

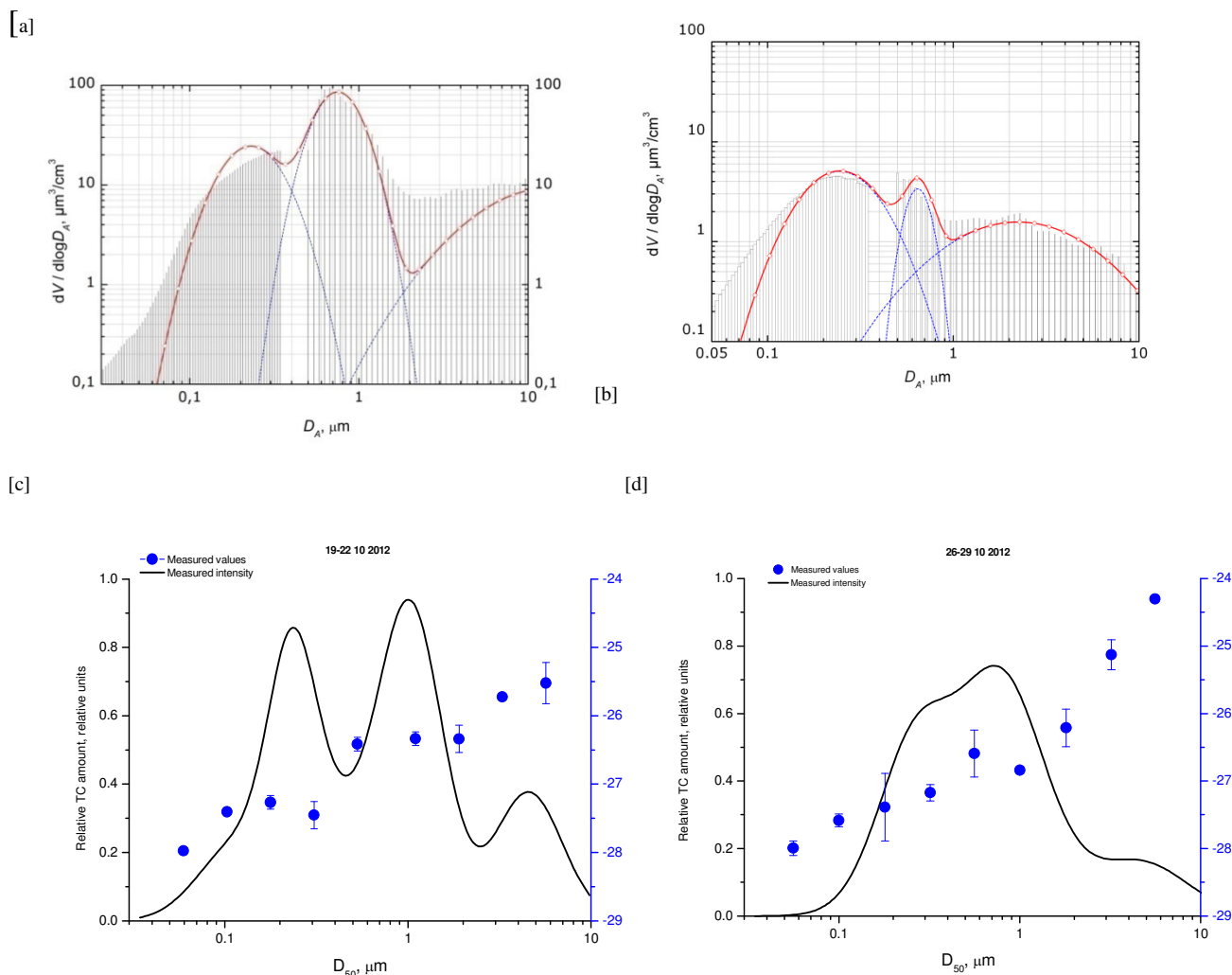
Kompleksiniai SMPS-APS matavimai Vilniaus miesto foninėje aplinkoje padengė 3 iš 5 mėginių siurbimus su MOUDI kaskadiniu impaktoriumi. Aerolio dalelių skaitinė koncentracija buvo perskaičiuota į masę pagal lygtį (2) ir pakoreguota, įvertinus impaktoriaus kaskadų dalelių surinkimo efektyvumus. 5 lentelėje pateikiama įvertinta smulkios aerolio modos (D_A : 0,10–0,17 μm , < 0,3 μm ir 0,5–1,0 μm) masės koncentracija: $17,71 \pm 0,50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, $8,07 \pm 0,50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ir $3,93 \pm 0,50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ bandinių paėmimo laikotarpiais: atitinkamai 2012 m. spalio 19–22 d., 23–26 d. ir 26–29 d.

5 lentelė. Sujungtų SMPS-APS matavimų aerolio dalelių dydžių pasiskirstymų ir perskaičiuotos masės koncentracijos indėlio įvertinimas pagal MOUDI impaktoriaus kaskadas

Matavimų periodas		APS/SMPS					Bendra konc.
		Inlet+Cas.X	Cas.VII+V III+IX	Cas.IV+V+ VI	Cas. II+III	Cas.I	
Pradžia	Pabaiga	D_{50} : 9,7–17,5 μm ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	D_{50} : 1,7–6,0 μm ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	D_{50} : < 0,3 μm ; 0,5–1,0 μm ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	D_{50} : 0,10– 0,17 μm ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	D_{50} : 0,07 μm ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	0,02– 0,30 μm ; 0,5–20,5 μm ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)
2013-09-19	2013-09-22	3,44	4,76	12,47	5,24	0,47	26,38
2013-09-23	2013-09-26	0,52	3,42	4,90	3,17	0,31	12,32
2013-09-26	2013-09-29	0,25	1,66	2,12	1,81	0,25	6,09

Tapati aerolio masės koncentracijos kitimo eiga buvo nustatyta ir stambiųjų dalelių frakcijoje (D_A : 1,7–20,5 μm): atitinkamai $8,20 \pm 0,50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, $3,94 \pm 0,50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ir $1,91 \pm 0,50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Nuodugniau buvo ištirti užterštų ir švarių oro masių matavimų epizodai. Pirmasis epizodas buvo charakterizuotas pagal didžiausią smulkių dalelių masės koncentraciją ($17,71 \pm 0,50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) ir mažą $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$ kaitą (nuo $-25,2\%$ iki

–28,0 ‰), t. y. spalio 19–22 d. Antrasis epizodas buvo charakterizuotas pagal mažiausią smulkių dalelių masės koncentraciją ($3,93 \pm 0,50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) ir $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$ kaitą (nuo –24,3 ‰ iki –28,0 ‰), t. y. spalio 26–29 d. laikotarpis.



8 pav. Kompleksinių SMPS-APS matavimų aerozolio dalelių tūriniai pasiskirstymai ($dV/d\log D_A$) užteršto ir švaraus epizodo metu, atitinkamai: a) 2012 m. spalio 21-ąją ir b) 2012 m. spalio 28-ąją. $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$ vertės suskirstytose pagal dydį dalelėse šiais laikotarpiais: c) 2012 m. spalio 19–22 d., d) 2012 m. spalio 26–29 d. Kartu išmatuotas TC signalo intensyvumas, t. y. jame esantis anglies dioksido kiekis, santykiniais vienetais.

Aerozolio dalelių dydžių pasiskirstymai, nustatyti SMPS-APS būdu, ir TC signalo intensyvumo kreivės tarpusavyje sutapo (8 pav.). Mažiausios TC modos dalelių maksimumas buvo ties $D_A = 0,23 \mu\text{m}$. Šios modos aerozolio –dalelių $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}} = -28,0 \text{‰}$ nurodo iškastinio kuro degimą. Smulkių dalelių pikas buvo stebėtas ties $D_A = 0,70 \mu\text{m}$.

Abu degimo šaltiniai turėjo svarų indėlį TC signalo intensyvumui šiame intervale. Anglies turinčios aerolio dalelės su labiau neigiama stabilijų izotopų santykio verte buvo stebimos stambiujų dalelių modeje nuo $D_A = 7,05 \mu\text{m}$.

Dviejų šaltinių Bajeso stabilijų izotopų maišymosi modelis, aprašytas lygtyse (4) ir (5), buvo pritaikytas su MOUDI nusodintoms ant filtrų ir pagal dydį suskirstytoms aerolio dalelėms. Šiame tyrime buvo išskirti du pagrindiniai taršos šaltiniai miesto aplinkoje. Ankstesniuose tyrimuose buvo parodyta, jog $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$ vertės iškastinio kuro degimui aerolio dalelėse kinta priklausomai nuo Europos regiono. Pavyzdžiui, lietuviškam etanolui (E85, sudėtis: 85 % etanolis, 15 % benzinas) buvo nustatyta $-28,6 \pm 0,7 \text{‰}$ vertė, dyzelinui – $-31,6 \pm 0,1 \text{‰}$ (Mašalaitė ir kt., 2012). Dažniausiai $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$ vertės benzinui ir dyzelinui iš to paties regiono išlieka nepakitusios. Šio tyrimo stebėjimai patvirtino, kad smulkios modos aerolio dalelių ($D_A < 1,0 \mu\text{m}$) vidutinė $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$ vertė buvo $-28,0 \text{‰}$. Todėl buvo padaryta prielaida, kad pirmasis šaltinis yra išskirtinai susietas su iškastinio kuro degimu. Antrajam šaltiniui šiame modelyje priskiriamas neiškastinio kuro šaltinis, kuriam įtaką daro ir biomasės degimas, ir biogeninės emisijos. Biomasės degimo metu gautos $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$ vertės yra mažiau neigiamos negu iškastinio kuro degimo atvejais ir gali smarkiai kisti priklausomai nuo pasirinkto kuro. Pavyzdžiui, skirtingo biokuro degimo tyrimuose medienos granulės turėjo $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}} = -27,0 \pm 0,2 \text{‰}$ vertes, granulės iš saulėgrąžų atraižų – $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}} = -25,1 \pm 0,2 \text{‰}$ (Garbaras ir kt., 2015). Kiekvieno iš dviejų šaltinių indėlis buvo įvertintas pagal Bajeso stabilijų izotopų maišymosi modelio lygtis (4) ir (5). Iš tiesų, šiame modelyje buvo patikrintos abiejų šaltinių vertės, tačiau rezultatai tenkino tik kelios šaltinių porų vertės, atitinkančios apibrėžtas pradines sąlygas. Viena iš tokių sąlygų, jei vieno šaltinio indėlis viršija 100 %, kitas šaltinis tampa neigiamu, todėl tokios poros buvo atmetamos.

Tolimesnis modeliavimas buvo atliktas su užterštų ir švarių oro masių epizodais: atitinkamai spalio 19–22 d. ir spalio 26–29 d. Rastos tinkamiausios poros buvo tos, kurių iškastinio kuro degimo šaltinio $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$ vertė buvo $-28,0 \text{‰}$, antrojo šaltinio vertės buvo nuo $-25,0 \text{‰}$ iki $-25,5 \text{‰}$. Iškastinio kuro degimas buvo pagrindinis šaltinis (nuo 60 % iki 100 %) anglies turinčioje smulkių aerolio dalelių modeje ($V_{\text{TOT}} = 180 \pm 138 \text{ cm}^{-3}$, $D_A = 0,23 \pm 0,02 \mu\text{m}$, $\sigma_g = 1,58 \pm 0,16$). Pereinamoji sritis (šaltiniai su vienodais indėliais) buvo nustatyta intervale nuo $0,5 \mu\text{m}$ iki $2,0 \mu\text{m}$. Neiškastinio kuro šaltinis buvo pagrindinis (nuo 60 % iki 100 %) stambioje dalelių frakcijoje ($V_{\text{TOT}} = 176 \pm 185 \text{ cm}^{-3}$,

$D_A = 7,05 \pm 3,56 \mu\text{m}$, $\sigma_g = 1,98 \pm 0,30$). Taigi, dviejų šaltinių maišymosi modelis padeda suprasti $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$ verčių išdėstymą suskirstytose pagal dydį anglies turinčiose aerozolio dalelėse.

IŠVADOS

1. Oro masių pernašos padidino miesto foninės aplinkos dalelių skaitines koncentracijas Vilniaus mieste: rudenį oro masės iš V ir PR 40 % ir 120 % viršijo nustatytą sezono foninį lygį ($5,0 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$). Iš PV ir ŠV atslinkusios oro masės žiemą – 20 % ir 55 %, o pavasarį – 65 % ir 130 % viršijo nustatytus sezoninius foninius lygius atitinkamai $1,00 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$ ir $5,0 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$.
2. Tolimoji oro masių pernaša buvo pagrindinis šaltinis, lemiantis juodosios anglies masės koncentracijos fono Pietryčių Baltijos jūros regione padidėjimą. Rudenį oro masės iš P ir PR juodosios anglies foninę koncentraciją ($0,71 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) padidino iki 50 %, žiemą oro masės iš ŠR, PV ir P atitinkamai ją padidino 50 %, 220 % ir 350 %, ir pavasarį oro masės iš PV lėmė 80 % padidėjimą.
3. Pavasarinis žolės deginimas lėmė organinio aerozolio masės koncentracijos padidėjimą Pietryčių Baltijos jūros regione iki 50 %.
4. Iškastinio kuro degimo šaltiniui buvo nustatyta $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}} = -28,0 \text{ ‰}$ vertė, o jo indėlis smulkių dalelių modeje ($V_{\text{TOT}} = 180 \pm 138 \text{ cm}^{-3}$, $D_A = 0,23 \pm 0,02 \mu\text{m}$, $\sigma_g = 1,58 \pm 0,16$) sudarė nuo 60 % iki 100 %. Antrasis šaltinis buvo susietas su neiškastinio kuro degimu ir biogenine emisija, kuriam buvo modeliuotos $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}} = -25,3 \pm 0,3 \text{ ‰}$ vertės, jo indėlis stambiųjų dalelių modeje ($V_{\text{TOT}} = 176 \pm 185 \text{ cm}^{-3}$, $D_A = 7,05 \pm 3,56 \mu\text{m}$, $\sigma_g = 1,98 \pm 0,30$) sudarė nuo 60 % iki 100 %.

LITERATŪRA

- Aalto, P., Hämeri, K., Paatero, P., Kulmala, M., Bellander, T., Berglind, N., et al.: Aerosol particle number concentration measurements in five European cities using TSI-3022 condensation particle counter over a three-year period during health effects of air pollution on susceptible subpopulations., *J. Air Waste Manag. Assoc.*, 55(8), 1064–1076, 2005.
- Abdalmogith, S. S. and Harrison, R. M.: The use of trajectory cluster analysis to examine the long-range transport of secondary inorganic aerosol in the UK, *Atmos. Environ.*, 39(35), 6686–6695, 2005.
- Asbach, C., Kaminski, H., Fissan, H., Monz, C., Dahmann, D., Mülhopt, S., et al.: Comparison of four mobility particle sizers with different time resolution for stationary exposure measurements, *J. Nanoparticle Res.*, 11(7), 1593–1609, 2009.
- Beverland, I. J., Tunes, T., Sozanska, M., Elton, R. A., Agius, R. M. and Heal, M. R.: Effect of long-range transport on local PM 10 concentrations in the UK, *Int. J. Environ. Health Res.*, 10(3), 229–238, 2000.
- Burkart, J., Steiner, G., Reischl, G. and Hitzenberger, R.: Long-term study of cloud condensation nuclei (CCN) activation of the atmospheric aerosol in Vienna, *Atmos. Environ.*, 45(32), 5751–5759, 2011.
- Cheng, I., Zhang, L., Blanchard, P., Dalziel, J. and Tordon, R.: Concentration-weighted trajectory approach to identifying potential sources of speciated atmospheric mercury at an urban coastal site in Nova Scotia, Canada, *Atmos. Chem. Phys.*, 13(12), 6031–6048, 2013.
- Cheung, H. C., Morawska, L. and Ristovski, Z. D.: Observation of new particle formation in subtropical urban environment, *Atmos. Chem. Phys.*, 11(8), 3823–3833, 2011.
- Chung, C. E., Ramanathan, V. and Decremer, D.: Observationally constrained estimates of carbonaceous aerosol radiative forcing, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 109(29), 11624–11629, 2012.
- Dall'Osto, M., Monahan, C., Greaney, R., Beddows, D. C. S., Harrison, R. M., Ceburnis, D., et al.: A statistical analysis of North East Atlantic (submicron) aerosol size distributions, *Atmos. Chem. Phys.*, 11(24), 12567–12578, 2011.

- De Foy, B. and Schauer, J. J.: Origin of high particle number concentrations reaching the St. Louis, Midwest Supersite, *J. Environ. Sci.*, 2015.
- Draxler, R. R. and Rolph, G. D.: HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY, <http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>, (2015-01-17).
- Gao, J., Wang, J., Cheng, S.-H., Xue, L.-K., Yan, H.-Z., Hou, L.-J., et al.: Number concentration and size distributions of submicron particles in Jinan urban area: Characteristics in summer and winter, *J. Environ. Sci.*, 19(12), 1466–1473, 2007.
- Garbaras, A., Masalaite, A., Garbariene, I., Ceburnis, D., Krugly, E., Remeikis, V., et al.: Stable carbon fractionation in size-segregated aerosol particles produced by controlled biomass burning, *J. Aerosol Sci.*, 79, 86–96, 2015.
- Hadley, O. L. and Kirchstetter, T. W.: Black-carbon reduction of snow albedo, *Nat. Clim. Chang.*, 2(6), 437–440, 2012.
- Jolliffe, I.: Principal Component Analysis, in *Encycl. Stat. Behav. Sci.*, John Wiley & Sons, Ltd, Chichester, UK., 2005.
- Kabashnikov, V. P., Chaikovsky, A. P., Kucsera, T. L. and Metelskaya, N. S.: Estimated accuracy of three common trajectory statistical methods, *Atmos. Environ.*, 45(31), 5425–5430, 2011.
- Karvosenoja, N., Tainio, M., Kupiainen, K., Tuomisto, J. T., Kukkonen, J. and Johansson, M.: Evaluation of the emissions and uncertainties of PM_{2.5} originated from vehicular traffic and domestic wood combustion in Finland, *Boreal Environ. Res.*, 13(5), 465–474, 2008.
- Khlystov, A., Stanier, C. and Pandis, S. N.: An Algorithm for Combining Electrical Mobility and Aerodynamic Size Distributions Data when Measuring Ambient Aerosol Special Issue of Aerosol Science and Technology on Findings from the Fine Particulate Matter Supersites Program, *Aerosol Sci. Technol.*, 38(sup1), 229–238, 2004.
- Kulmala, M., Asmi, A., Lappalainen, H. K., Baltensperger, U., Brenguier, J.-L., Facchini, M. C., et al.: General overview: European Integrated project on Aerosol Cloud Climate and Air Quality interactions (EUCAARI) – integrating aerosol research from nano to global scales, *Atmos. Chem. Phys.*, 11(24), 13061–13143, 2011.

- Laakso, L., Hussein, T., Aarnio, P., Komppula, M., Hiltunen, V., Viisanen, Y., et al.: Diurnal and annual characteristics of particle mass and number concentrations in urban, rural and Arctic environments in Finland, *Atmos. Environ.*, 37(19), 2629–2641, 2003.
- Marković, D. M., Marković, D. A., Jovanović, A., Lazić, L. and Mijić, Z.: Determination of O₃, NO₂, SO₂, CO and PM₁₀ measured in Belgrade urban area, *Environ. Monit. Assess.*, 145(1-3), 349–359, 2008.
- Mašalaitė, A., Garbaras, A. and Remeikis, V.: Stable isotopes in environmental investigations, *Lith. J. Phys.*, 52(3), 261–268, 2012.
- Meyer, N. K.: Particulate, black carbon and organic emissions from small-scale residential wood combustion appliances in Switzerland, *Biomass and Bioenergy*, 36, 31–42, 2012.
- Mordas, G., Sipilä, M. and Kulmala, M.: Nanometer Particle Detection by the Condensation Particle Counter UF-02proto, *Aerosol Sci. Technol.*, 42(7), 521–527, 2008.
- Ng, N. L., Canagaratna, M. R., Jimenez, J. L., Chhabra, P. S., Seinfeld, J. H. and Worsnop, D. R.: Changes in organic aerosol composition with aging inferred from aerosol mass spectra, *Atmos. Chem. Phys.*, 11(13), 6465–6474, 2011b.
- Ng, N. L., Canagaratna, M. R., Zhang, Q., Jimenez, J. L., Tian, J., Ulbrich, I. M., et al.: Organic aerosol components observed in Northern Hemispheric datasets from Aerosol Mass Spectrometry, *Atmos. Chem. Phys.*, 10(10), 4625–4641, 2010.
- Ng, N. L., Herndon, S. C., Trimborn, A., Canagaratna, M. R., Croteau, P. L., Onasch, T., et al.: An Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM) for Routine Monitoring of the Composition and Mass Concentrations of Ambient Aerosol, *Aerosol Sci. Technol.*, 45(7), 780–794, 2011a.
- Park, K., Park, J. Y., Kwak, J.-H. H., Cho, G. N. and Kim, J.-S. S.: Seasonal and diurnal variations of ultrafine particle concentration in urban Gwangju, Korea: Observation of ultrafine particle events, *Atmos. Environ.*, 42(4), 788–799, 2008.
- Pérez, N., Pey, J., Cusack, M., Reche, C., Querol, X., Alastuey, A., et al.: Variability of Particle Number, Black Carbon, and PM₁₀, PM_{2.5}, and PM₁ Levels and Speciation: Influence of Road Traffic Emissions on Urban Air Quality, *Aerosol Sci. Technol.*, 44(7), 487–499, 2010.

- Peters, T. M., Ott, D. and O'Shaughnessy, P. T.: Comparison of the Grimm 1.108 and 1.109 Portable Aerosol Spectrometer to the TSI 3321 Aerodynamic Particle Sizer for Dry Particles, *Ann. Occup. Hyg.*, 50(8), 843–850, 2006.
- Pey, J., Querol, X., Alastuey, A., Rodríguez, S., Putaud, J. P. and Van Dingenen, R.: Source apportionment of urban fine and ultra-fine particle number concentration in a Western Mediterranean city, *Atmos. Environ.*, 43(29), 4407–4415, 2009.
- Phillips, D. L. and Gregg, J. W.: Source partitioning using stable isotopes: coping with too many sources, *Oecologia*, 136(2), 261–269, 2003.
- Russell, L. M., Bahadur, R. and Ziemann, P. J.: Identifying organic aerosol sources by comparing functional group composition in chamber and atmospheric particles, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 108(9), 3516–3521, 2011.
- Salma, I., Borsòs, T., Weidinger, T., Aalto, P., Hussein, T., Dal Maso, M., et al.: Production, growth and properties of ultrafine atmospheric aerosol particles in an urban environment, *Atmos. Chem. Phys.*, 11(3), 1339–1353, 2011.
- Snyder, D. C. and Schauer, J. J.: An Inter-Comparison of Two Black Carbon Aerosol Instruments and a Semi-Continuous Elemental Carbon Instrument in the Urban Environment, *Aerosol Sci. Technol.*, 41(5), 463–474, 2007.
- Srinivas, B., Kumar, A., Sarin, M. M. and Sudheer, A. K.: Impact of continental outflow on chemistry of atmospheric aerosols over tropical Bay of Bengal, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 11(7), 20667–20711, 2011.
- Szidat, S., Jenk, T. M., Synal, H.-A. A., Kalberer, M., Wacker, L., Hajdas, I., et al.: Contributions of fossil fuel, biomass-burning, and biogenic emissions to carbonaceous aerosols in Zurich as traced by ^{14}C , *J. Geophys. Res.*, 111(D7), D07206, 2006.
- Thomas, S. and Morawska, L.: Size-selected particles in an urban atmosphere of Brisbane, Australia, *Atmos. Environ.*, 36(26), 4277–4288, 2002.
- Ulbrich, I. M., Canagaratna, M. R., Zhang, Q., Worsnop, D. R. and Jimenez, J. L.: Interpretation of organic components from Positive Matrix Factorization of aerosol mass spectrometric data, *Atmos. Chem. Phys.*, 9(9), 2891–2918, 2009.
- Ulevicius, V., Byčėnkiėnė, S., Remeikis, V., Garbaras, A., Kecorius, S., Andriejauskienė, J., et al.: Characterization of pollution events in the East Baltic

- region affected by regional biomass fire emissions, *Atmos. Res.*, 98(2-4), 190–200, 2010.
- Viana, M., Kuhlbusch, T. a J., Querol, X., Alastuey, A., Harrison, R. M., Hopke, P. K., et al.: Source apportionment of particulate matter in Europe: A review of methods and results, *J. Aerosol Sci.*, 39(10), 827–849, 2008.
- Visschedijk, A. J. H., van der Gon, H., Dröge, A. C., der Brugh, H. and Kooter, I. M.: A European high resolution and size-differentiated emission inventory for elemental and organic carbon for the year 2005, TNO report., 2009.
- Wiedensohler, A., Birmili, W., Nowak, A., Sonntag, A., Weinhold, K., Merkel, M., et al.: Mobility particle size spectrometers: harmonization of technical standards and data structure to facilitate high quality long-term observations of atmospheric particle number size distributions, *Atmos. Meas. Tech.*, 5(3), 657–685, 2012.

SANTRAUKA ANGLŲ KALBA (SUMMARY)

Fine and ultrafine particles play important role in the climate systems, however the largest uncertainties of the anthropogenic radiative forcing occurs due to the underestimation of aerosol contribution. Thus, it is important to assess the spatial variability and pollution sources of atmospheric aerosol constituents.

In this work the receptor modelling (potential source contribution function (PSCF), chemical weighted trajectory (CWT) analysis and air mass trajectory cluster analysis) of aerosol particle number concentration (PNC) and black carbon (BC) sources was applied. The effects of air mass transport of atmospheric pollutants from regional biomass burning and vegetation fires in the South-Eastern Baltic Sea region were estimated. The loadings of aerosol constituents were investigated by aerosol chemical speciation monitor (ACSM) and aethalometer, particle number concentration and size distribution were depicted by condensational particle counter (CPC), scanning mobility particle sizer (SMPS) and aerodynamic particle sizer (APS), stable isotope mass spectrometry was conducted on collected filters.

Results from receptor modelling indicated that the long-range transport of air masses had increased the PNC background level values ($1.00 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$) up to 55% during the winter period in Vilnius city. In autumn and spring the estimated background level values ($5.0 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$) were increased up to 130%. The background BC level in the South-Eastern Baltic Sea region was estimated to be $0.71 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$. Receptor modelling of BC concentration showed that during the whole study period the lowest concentrations had been observed in the clusters from N and NW and had varied in the range from $0.22 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ to $0.45 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$. The increase of BC concentration was affected in winter by biomass burning up to 350% and in spring – by vegetation fires up to 80%.

It was proved that the combined aerosol particle sizing technique and stable carbon isotope ratio ($\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}}$) analysis were suitable for fossil fuel combustion and non-fossil emission source estimation. From the Bayesian isotope mixing model the fossil fuel source main contribution was indentified in the fine particle mode from 60% to 100% with $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}} = -28.0\text{‰}$ and the non-fossil source main contribution – in the coarse particle mode from 60% to 100% with $\delta^{13}\text{C}_{\text{TC}} = -25.3\text{‰}$.

TRUMPOS ŽINIOS APIE DOKTORANTĄ

Gimimo data:	1984 m. rugpjūčio 23 d.
Vardas pavardė:	Vadimas Dudoitis
Pilietybė:	Lietuvos Respublikos
Gyvenamoji vieta:	Šalčininkai, Lietuva
Telefono numeris:	8 615 40 132
Elektroninio pašto adresas:	vadimas.dudoitis@ftmc.lt
Šeimyninė padėtis:	nevedęs

Išsilavinimas ir kvalifikacija:

2010 m.–2014 m. Doktorantūros studijos (fiziniai mokslai, fizika – 02P),
Vilniaus universitetas, Fizinių ir technologijos mokslų centras, Vilnius.

2006 m.–2008 m. Fizikos magistras, Aplinkos ir Cheminė fizika,
Vilniaus universitetas, Vilnius.

2002 m.–2006 m. Fizikos bakalauras, Modernių technologijų vadyba,
Vilniaus universitetas, Vilnius.

1997 m.–2002 m. Lietuvos tūkstantmečio vidurinė mokykla, Šalčininkai.

Darbo patirtis:

Nuo 2015 m. Fizinių ir technologijos mokslų centras, Aplinkotyros skyrius,
Savanorių pr. 231, Vilnius, Lietuva.

Pareigos: Jaunesnysis mokslo darbuotojas.

2012 m.–2015 m. Fizinių ir technologijos mokslų centras, Aplinkotyros skyrius,
Savanorių pr. 23, Vilnius, Lietuva.

Pareigos: Inžinierius.