

TÜBİTAK
ARAŞTIRMA PROJESİ
Nihai Bilimsel Rapor

PROJE NO
108Y306
PROJE YÜRÜTÜCÜSÜ
Gürdal Tuncel

Ankara
Temmuz 2013

ÖZET

Bu çalışmada Türkiye'nin dört farklı yerinde kurulan izleme istasyonlarında toplanan aerosol ve yağmur suyu örneklerinin EDXRF, ICPMS ve IC ile analizleriyle oluşturulan veri setlerine istatistik araçlar uygulanmış ve ölçülen konsantrasyonların ne kadarının Türkiye'deki kaynaklardan ve ne kadarının da yur dışındaki kaynaklardan geldiği bulunmaya çalışılmıştır. Her istasyonda iki yıl süre ile çok sayıda örnek toplanıp analiz edildiğinden, çok büyük veri setleri oluşmuştur. Bu setlere uygulanan istatistik araçlarla sadece yurt içi ve yurt dışı kaynakların göreceli katkılarının ötesinde daha pek çok kapsamlı bilgi elde etmek mümkün olmuştur. Toplanan aerosol örneklerinde EDXRF tekniği kullanılarak 18 element, yağmur suyu örneklerindeyse ICPMS tekniği kullanılarak 40 dolayında element ölçülmüştür. IC tekniği ile Na, K, Mg, Ca, SO₄²⁻, NO₃⁻, ölçülmüştür. Ancak, NO₃⁻ dışındakiler ICPMS ve EDXRF teknikler ile de ölçüldüğünden, bu iyonlardan sadece NO₃⁻ istatistik değerlendirmelerde kullanılmıştır.

Bu çalışmada kullanılan istasyonlarda ölçülen element ve iyon konsantrasyonları Akdeniz'in başka bölgeleri için literatürde verilen konsantrasyonlardan çok farklı değildir. Ufak tefek farklar da değişik çalışmalarda yapılan ölçümlerin farklı yıllarda olmasından kaynaklanmıştır. Element ve iyonların istasyonlarda ölçülen konsantrasyonları benzer mevsimsel değişimler göstermiştir. Bütün istasyonlarda toprak kökenli elementlerin yaz mevsimi konsantrasyonları kış mevsiminde ölçülen konsantrasyonlardan iki kat daha yüksektir. Deniz tuzu kökenli elementlerin ölçülen konsantrasyonlarında ters bir mevsimsel değişim söz konusudur. Antropojenik kökenli elementler ise birbirlerinden farklı değişimler sergilemiştir.

Bölgemizde hava kütlelerinin genellikle kuzey ve kuzeybatıdan geldiği gösterilmiştir. Bu akış pattern ülkemizin daha çok batı, kuzeybatı ve kuzeydeki kirlenici kaynaklarından etkilenmesi gerektiğini göstermektedir. Ancak istasyonları etkisi altında tutan bölgeler bütün istasyonlar için aynı değildir.

Gerek istasyonlarda ölçülen elementlerin medyan değerlerinin karşılaştırılması ve gerekse Kırklareli istasyonunun üzerinden geçtikten sonra diğer istasyonlara ulaşan geri yörüngeler bazında yapılan hesaplamalar, Yurt içi ve Yurt dışı kaynakların göreceli katkılarının değişik bölgeler ve farklı parametreler için farklı olabileceğini göstermiştir.

Yapılan PMF çalışmalarında istasyonlarda toplanan aerosol örneklerinde 4 – 5 faktör yağmur suyu örneklerinde ise 6-7 faktör çıkmıştır. Faktör sayısındaki bu değişikliğin nedeni aerosol ve yağmur suyu faktör sayısındaki bu farklılık kullanılan analitik cihazlarda yatmaktadır.

İÇİNDEKİLER

Özet

1.	GİRİŞ	
1.1	Aerosol	4
1.2.	Atmosferdeki parçacıkların boyut dağılımı	5
1.3.	Aerosol kaynakları	8
1.4.	İkincil parçacıkların oluşumu	10
1.5.	Parçacıkların Atmosferden Uzaklaşma Mekanizmaları	11
1.6.	Parçacıkların çevresel etkileri	14
1.7.	Aerosollerin kimyasal kompozisyonu	16
1.8.	Parçacıkların atmosfer yoluyla uzun mesafeli taşınımı	28
1.9	Hava kalitesi standartları	30
1.10	Aerosollerin Modellenmesi	31
1.11.	Doğu Akdeniz bölgesi aerosollerinin kompozisyonu	34
1.11.	Doğu Akdeniz bölgesi aerosollerinin kompozisyonu	42
2.	MATERYAL VE METOT	47
2.1.	Örnekleme noktaları	47
2.1.1.	İstasyon yer seçimi çalışmaları.	47
2.1.2.	Kırlareli istasyonu	48
2.1.3.	Bolu istasyonu	51
2.1.4.	Antalya istasyonu	52
2.1.5.	Trabzon (Torul) istasyonu	56
2.1.6.	İstasyonlardaki Teçhizat	62
2.1.7.	İstasyonlarda uygulanan eğitim programı	62
2.2.	Aerosol Örneklerinin toplanması	64
2.2.1.	Filtrelerin hazırlanması	64
2.2.2.	İstasyonlarda aerosol örnekleme	64
2.2.3.	İstasyondan gelen örneklerin analize hazırlanması	69
2.3.	Yağmur örneklerinin toplanması	69
2.4.	Aerosol Örneklerinin Analizi	80
2.5.	Yağmur suyu örneklerinin ICP-MS tekniği kullanılarak analizi	89
2.6.	Verilerin kalite kontrol çalışmaları	89
2.6.1.	Uygulanan QA-QC programının elemanları	89
2.6.3.	Aerosol Blank değerleri	99
2.6.4.	Elementlerin yağmur suyu kör örneklerindeki düzeyleri	102
2.6.5.	Aerosol ve Yağmur suyu ölçümlerinde belirsizliğin değerlendirilmesi	106
2.6.6.	SRM analizi sonuçları	106
2.6.7.	ICPMS ölçümlerinde analitik belirsizliğin değerlendirilmesi, ve kullanılacak izotopların seçimi	109
2.7.	Geri yörünge modellemesi	112
2.8.	Zenginleşme Faktörünün (ZF) Hesaplanması	113
2.9.	Pozitif Matriks Faktörizasyonu (PMF)	113
2.10.	Potansiyel Kaynak Katkı Fonksiyonu (PKKF)	118

3.	SONUÇLAR ve TARTIŞMA	121
3.1.	Veri setlerinin istatistik özellikleri	121
3.2.	Verilerin literatür değerleri ile karşılaştırılması	132
3.3.	Element ve iyon konsantrasyonlarının mevsimsel değişimi	137
3.4.	İstasyon noktalarında üst atmosfer klimatolojisi	150
3.5.	Aerosol verilerinin kullanılarak, element ve iyonların istasyonlarda ölçülen miktarlarına yurt içindeki ve yurt dışındaki katkılarının bulunması	154
3.6.	Aerosol ve Yağmur suyu örneklerinde ölçülen element ve iyonların kaynaklarının belirlenmesi (PMF)	165

ŞEKİLLER

Şekil 1.1	Aerosollerin oluşum mekanizmalarına bağlı boyut dağılımları	14
Şekil 1.2	Parçacıkların, sayısal yüzeysel ve hacimsel boyut dağılımları	16
Şekil 1.3	Atmosferik parçacıkların kaynakları ve dönüşüm mekanizmaları	17
Şekil 1.4	Kara kökenli ince parçacıkların tipik kompozisyonu	25
Şekil 1.5	Deniz tuzu parçacıklarının kabarcık patlaması mekanizmasıyla oluşması	28
Şekil 1.6	Okyanusta DMS üretimi ile iklim arasındaki ilişkinin şematik gösterimi	29
Şekil 1.7	Kükürt döngüsü	31
Şekil 1.8.	Azot döngüsü	32
Şekil 1.9	Doğu Akdeniz bölgesindeki tanımlanmış taşınım mekanizmaları	45
Şekil 1.10	10 Doğu Atlantik ve Akdeniz'i içeren bölgedeki Ağustos 2001 ayı için hesaplanan deniz seviyesi ortalama basınç haritası	53
Şekil 1.11	Türkiye çevresindeki siklon yolları	55
Şekil 2.1	Çalışmada kullanılan dört istasyonun yerleri	58
Şekil 2.2.	Kırklareli istasyonunun uydu fotoğrafı ve yakından görünüşü	59
Şekil 2.3	Kırklareli (Dereköy) istasyonundan değişik görüntüler	61
Şekil 2.4	Eski Bolu istasyonunu içeren uydu fotoğrafları ve istasyonunu içeren uydu fotoğrafları.	62
Şekil 2.5	Eski Bolu istasyonundan görüntüler	63
Şekil 2.6	Yeni Bolu istasyonunu içeren uydu fotoğrafı	64
Şekil 2.7	Yeni Bolu istasyonunu gösteren fotoğraflar	66
Şekil 2.8	Antalya istasyonunun konumunu gösteren bir uydu fotoğrafı ile teçhizatın fotoğrafları	67
Şekil 2.9	Torul (Trabzon) istasyonunun konumu	69
Şekil 2.10	Torul (Trabzon) istasyonundan görüntüler	70
Şekil 2.11	Stack Filter Unit örnekleme sisteminde PM10 ön impactor ve filtre tutucusu	75

Şekil 2.12	Kaskat filtre tutucusu ve polikarbonat filtreler	76
Şekil 2.13	"Stack Filter Unitin" genel görünüşü	77
Şekil 2.14	Yağmur örneklemesinde kullanılan şişeler	82
Şekil 2.15	Antalya ve Dereköy istasyonlarında kullanılan yağmur suyu örnekleycileri	83
Şekil 2.16	Yağış örnekleycisinin bölümleri	84
Şekil 2.17	Çalışmada kullanılan mikrodalga çözünürleştirme sistemi	87
Şekil 2.18	Çalışmada kullanılan HF uçurma kapları	88
Şekil 2.19	Çalışmada kullanılan "sub-boiling destilasyon ünitesinin fotoğrafı	90
Şekil 2.20	XRF şematik gösterim	91
Şekil 2.21	Oxford ED-2000 XRF cihazı	93
Şekil 2.22	EDXRF cihazındaki sekiz pozisyonlu örnekleme tepsi	93
Şekil 2.23	Aerosollerin EDXRF analizi sırasında kullanılan prosedür	95
Şekil 2.24	Tipik bir XRF spektrumu	97
Şekil 3.1	Bu çalışmada elde edilen sonuçlarla karşılaştırılan Akdeniz istasyonlarının konumları	150
Şekil 3.2.	Antalya istasyonu için hazırlanan elementlerin yaz ve kış mevsimi medyan değerleri	157
Şekil 3.3	Antalya istasyonunda aerosollerde ölçülen bazı elementlerin konsantrasyonlarının mevsimsel değişimi	158
Şekil 3.4	Kırklareli aerosol örneklerinde ölçülen element konsantrasyonlarının yaz-kış değişimi	160
Şekil 3.5	Kırklareli istasyonunda aerosollerde ölçülen bazı elementlerin konsantrasyonlarının mevsimsel değişimi	162
Şekil 3.6	Trabzon aerosol örneklerinde ölçülen element konsantrasyonlarının yaz-kış değişimi	163
Şekil 3.7	Trabzon istasyonunda aerosollerde ölçülen bazı elementlerin konsantrasyonlarının mevsimsel değişimi	164
Şekil 3.8	Bolu aerosol örneklerinde ölçülen element konsantrasyonlarının yaz-kış değişimi	165
Şekil 3.9	Bolu istasyonunda aerosollerde ölçülen bazı elementlerin konsantrasyonlarının mevsimsel değişimi	166
Şekil 3.10	İstasyonlarda toplanan yağmur sularında ölçülen elementlerin yaz ve kış mevsimi medyan değerleri	167

Şekil 3.11	. Kırklareli istasyonunu iki yıl boyunca ulaşan geri yörüngelerin saatlik segmentlerinin dağılımı.	169
Şekil 3.12.	Farklı istasyonlar için gritlerdeki segment sayısı farklarının grit sistemindeki dağılımı	170
Şekil 3.13	İstasyonlarda ölçülen toprak kökenli elementlerin medyan konsantrasyonları	173
Şekil 3.14	İstasyonlarda ölçülen kütlelesel konsantrasyonların ve deniz tuzundan kaynaklanan elementlerin medyan konsantrasyonları	174
Şekil 3.15	İstasyonlarda ölçülen antropojenik kökenli elementlerin medyan konsantrasyonları	175
Şekil 3.16	İstasyonlarda ölçülen karışık kökenli elementlerin medyan konsantrasyonları	176
Şekil 3.17	İki istasyondan aynı anda geçen geri yörünge örnekleri	178
Şekil 3.18	Torul istasyonundan başlayan geri yörüngelerde Torul ve Dereköy istasyonlarında ölçülen SO ₄ -2 ve As konsantrasyonlarının düzeyleri	181
Şekil 3.19	Torul istasyonundan başlayıp Dereköy istasyonundan geçen geri yörüngeler için hesaplanan ortalama TORUL/DEREKÖY oranları	182
Şekil 3.20	Antalya istasyonundan başlayıp Dereköy istasyonundan geçen geri yörüngeler için hesaplanan ortalama Antalya/DEREKÖY oranları. .	183
Şekil 3.21	Antalya aerosol veri setine uygulanan PMF ile hesaplanan faktörlerin kompozisyonu ve her elementin açıklanan yüzdeleri	185
Şekil 3.22	Antalya aerosol veri setine uygulanan PMF ile hesaplanan G-score değerlerinin aylık ortalamaları ve faktörlerin kompozisyonu kullanılarak hesaplanan zenginleşme faktörleri	186
Şekil 3.23	Antalya yağmur suyu veri setine uygulanan PMF ile hesaplanan Faktörlerin kompozisyonu (F-loading) ve elementlerin faktörler tarafından açıklanan yüzdeleri	188
Şekil 3.24.	Antalya Yağmur suyu veri setine uygulanan PMF ile hesaplanan G-score değerlerinin aylık ortalamaları ve faktörlerin kompozisyonu kullanılarak hesaplanan zenginleşme faktörleri	189

TABLULAR

Tablo 2.1	Mikrodalga çözünürleştirme programı	88
Tablo 2.2	Oxford ED-2000 XRF Cihaz spesifikasyonları	92
Tablo 2.3.	OXFORD ED-2000 X-ray fluorescence spektrometresinde değişik elementler için uygulanan uyarma koşulları	96
Tablo 2.4.	Bu çalışmada kullanılan ICP-MS parametreleri	100
Tablo 2.5.	Analiz edilen elementlerin kütleleri, kalibrasyon eğrisindeki R2 değerleri ve eğimleri.	101
Tablo 2.6	Elementlerin ICMS tayin sınırları ve her istasyonda tayin sınırı altında kalan fraksiyonları	106
Tablo 2.7	Aerosol örneklerinde ölçülen element düzeylerinin kör örneklerde gözlenen konsantrasyonlarla karşılaştırılması	109
Tablo 2.8	Yağmur suyu örneklerinde kör örnek düzeyleri ve çıkartılan kör seviyeleri	114
Table 2.9	XRF analizlerinde ölçülen elementler için hesaplanan belirsizlik düzeyleri ve bu düzeylere karşı gelen gözlem sıklıkları	119
Tablo 2.10	NIST 2783 standart referans maddesinin (SRM) (filtre üzerinde tutulmuş parçacıklar) EDXRF analiz sonuçlarının doğrulanmış sonuçlarla karşılaştırılması	120
Tablo 2.11	NIST SRM 1648'da (Urban Particulate) Seçilmiş bazı elementlerin ölçülen ve doğrulanmış konsantrasyonlarının karşılaştırılması	121
Tablo 2.12	ICPMS ölçümlerinde sayım istatistiği ve gözlem sıklığı	122
Tablo 3. 1	Aerosol örneklerinin istatistik değerleri: Antalya istasyonu	133
Tablo 3.2.	Aerosol örneklerinin istatistik değerleri: Bolu istasyonu	135
Tablo 3.3	Aerosol örneklerinin istatistik değerleri: Kırklareli istasyonu	136
Tablo 3. 4	Aerosol örneklerinin istatistik değerleri: Trabzon istasyonu	138

Tablo 3. 5	Yağmur Suyu örneklerinin istatistik değerleri: Antalya istasyonu	140
Tablo 3. 6	Yağmur Suyu örneklerinin istatistik değerleri: Bolu istasyonu	141
Tablo 3. 7	Yağmur Suyu örneklerinin istatistik değerleri: Kırklareli istasyonu	143
Tablo 3. 8	Yağmur Suyu örneklerinin istatistik değerleri: Trabzon istasyonu	144
Tablo 3.9	Bu çalışmada ölçülen element ve iyon konsantrasyonlarının Akdenizin farklı bölgelerinde ölçülen değerlerle karşılaştırılması	151
Tablo 3.10	Antalya, Bolu, Trabzon ve Kırklareli istasyonlarında toplanan aerosol örneklerinde ölçülen elementlerin yaz ve kış mevsimi medyan değerleri	154

1. GİRİŞ

1.1. Aerosol

Atmosferik aerosol çok değişik şekillerde tanımlanabilmektedir. Aerosol klasik anlamda katı sıvı ve gazdan oluşan üç fazlı bir sistemdir. Ortasında bir çekirdek bulunur ve bu çekirdek bir sıvı ile çevrilidir. Bu sistem bir gaz içerisinde hareket etmektedir (Pöschl, 2005). Atmosferde bu tanıma uyan aerosoller sadece bulut ve sis damlacıklarıdır. Gerçek hayatta ise atmosferde askıda bulunan ve çapı 0.001 μm ile 100 μm arasında değişen her türlü katı parçacık aerosol olarak tanımlanmaktadır (Spurny, 1999).

Çap aralığının alt sınırı bu tür parçacıkları ölçebileceğimiz teknoloji ile sınırlıdır. Mevcut teknoloji ile ölçebileceğimizi en küçük parçacık 0.001 μm (veya 1 nm) çapındadır. Bu boyuttaki parçacıkları "difusion battery" ile ölçmek mümkündür. Çapı > 0.001 μm parçacıkları ölçebilecek bir teknoloji henüz mevcut değildir. Ayrıca Angstrom (0.1 nm) boyutundaki parçacıklar, kararlı bir parçacıktan ziyade koagüle olmuş molekül gurupları olarak tanımlamak daha doğrudur.

Yukarıdaki tanımda 100 μm olarak tanımlanan üst sınır ise parçacıkların atmosferde kalabilmesine bağlanabilir. >100 μm parçacıkların atmosferde kaldıkları süre, çok yüksek sedimentasyon hızları nedeniyle, çok kısa olduğundan bu tür parçacıklar aerosol olarak tanımlanmamaktadır.

Atmosferik aerosolun çok çeşitli doğal ve antropojenik kaynağı bulunmaktadır. Toprak, deniz tuzu ve volkanlar en iyi bilinen doğal kaynaklardır. Buna karşılık fosil yakıtların yanması ve endüstriyel emisyonlar da en iyi bilinen antropojenik kaynaklardır. Bazı durumlarda doğal ve antropojenik kaynakları birbirinden ayırmak çok kolay olmamaktadır. Örneğin, toprak doğal bir aerosol kaynağıdır. Rüzgarla topraktan havalanan parçacıklar global ölçekte aerosol kütlesinin önemli bir bölümünü oluşturmaktadır. Ne var ki, rüzgarla havalanan her tozun doğal olduğunu söylemek mümkün olmamaktadır. İnsan aktiviteleri sonucu artan çölleşme, atmosferdeki toprak parçacıklarının kütleli konsantrasyonlarını bölgesel veya lokal olarak arttırabilmektedir. Toprak ne kadar doğal bir kaynak olursa olsun, bu şekilde bir çölleşme süreci sonucunda oluşan parçacıklar doğal değildir.

Diğer bir örnek ise orman yangınlarıdır. Orman yangınları, yıldırım gibi doğal nedenlerle oluşursa doğal bir parçacık kaynağı olmaktadır. Ancak insanlar tarafından çıkarılan orman yangınları, doğal değil, antropojenik parçacık kaynağıdır.

Atmosferdeki parçacıklar çok değişik kaynaklardan atmosfere salındığından çok farklı fiziksel (parçacık çapı, yüzey alanı, yoğunluk sayısal ve kütleli konsantrasyon gibi) ve kimyasal hallerde olabilmektedir.

Aerosollerin atmosferdeki konsantrasyonları ve kompozisyonları, doğal ve antropojenik emisyonlara, çökme, taşınma, hava kütlelerinin bölgesel dönüşümü gibi iklimsel koşullara, söz konusu noktanın kaynaklara uzaklıklarına, bitki örtüsüne ve bunlar gibi pek çok coğrafik, demografik ve meteorolojik faktöre bağlıdır. Bu faktörler dünya üzerinde bir yerden diğerine büyük farklar gösterdiğinden aerosollerin özellikleri de benzer şekilde değişmektedir.

Bu çalışmada ve bu raporda aerosol ve parçacık kelimeleri eş anlamlı olarak kullanılmıştır. Aynı şeyi ifade eden partiküler madde, askıdaki katı madde, PM ve benzer birkaç kelime daha olsa da aerosol ve parçacık ifadelerinden başkasının kullanılmamasına, olası bir kavram kargaşasının önüne geçebilmek adına, özen gösterilmeye çalışılmıştır.

Çalışmada filtreler üzerinde toplanan parçacıklardan çapları $< 2.5 \mu\text{m}$ olanlar bir filtreye, çapları $2.5 \mu\text{m}$ ile $10 \mu\text{m}$ arasında olanlar ise başka bir filtreye toplanmıştır. Bu iki filtre ayrı ayrı analiz edilerek iki farklı veri set oluşturulmuştur. Çapları $< 2.5 \mu\text{m}$ olan parçacıklar raporda "ince" veya $\text{PM}_{2.5}$ olarak ifade edilmiştir. Çapları $2.5 \mu\text{m}$ ile $10 \mu\text{m}$ arasında olan parçacıklar ise "kaba" veya $\text{PM}_{2.5-10}$ olarak ifade edilmiştir. Raporda geçen PM_{10} konsantrasyonlar ise $\text{PM}_{2.5} + \text{PM}_{2.5-10}$ konsantrasyonlardır.

1.2. Atmosferdeki parçacıkların boyut dağılımı

Önceleri ulusal hava kalitesi standartlarının belirlenmesinde atmosferde bulunan toplam askıda madde temel teşkil etmiştir. Ancak, insan sağlığı için asıl tehlike oluşturan parçacıklar aerodinamik çapı $10 \mu\text{m}$ 'den küçük olanlardır. PM_{10} olarak adlandırılan bu parçacıklar, solunum sistemine nüfuz edebilecek kadar küçük olduğundan sağlık açısından büyük parçacıklara nazaran daha tehlikeli olmaktadır.

Atmosferik aerosol çok farklı yoğunluk ve şekildeki parçacıklardan oluşmaktadır. Dolayısı ile parçacıkların hepsini küre olarak düşünmek ve ona göre çaplarını tanımlamak mümkün değildir. Bu nedenle atmosferdeki parçacıklar "aerodinamik çap" ile tanımlanmaktadır. Aerodinamik çap, gerçek parçacıklarla aynı davranışı gösteren, çökme hızları gerçek parçacıklara eşdeğer ve yoğunluğu 1gr cm^{-3} olan küresel cismin çapı olarak tanımlanmaktadır (Istomin ve Koutsenogii, 2010).

Aerodinamik çapı $2,5 \mu\text{m}$ 'den küçük olan parçacıklar ($\text{PM}_{2.5}$), bazı ağır metaller bu parçacıklarla birleşip kanda çözülebilir hale geldiğinden ve bu şekilde hızlıca kan dolaşımına katılabildiğinden, insan sağlığı için büyük öneme sahiptir.

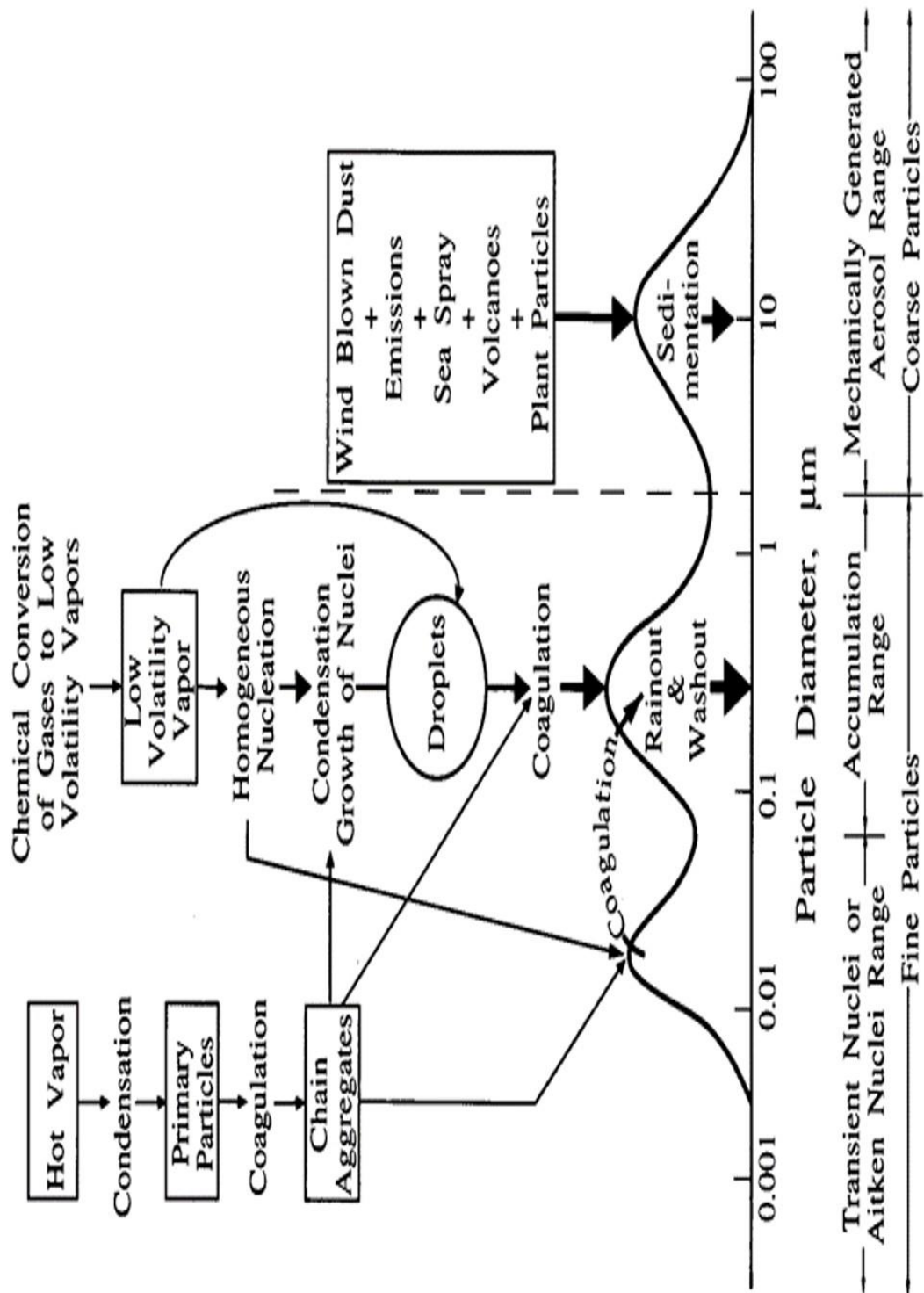
Aerosoller atmosferde değişik boyutlarda bulunmaktadır. Atmosferik aerosoller ağırlıklı olarak (1) Çekirdek modu (Aitken modu) ($D < 0.01 \mu\text{m}$), akümülyasyon modu ($0.01 \mu\text{m} < D < 2.0 \mu\text{m}$) ve (3) kaba parçacık modu ($D > 2.0 \mu\text{m}$) şeklinde sınıflandırılmaktadır. Çekirdek veya Aitken modunu oluşturan parçacıklar gaz-partikül dönüşümünden kaynaklanmaktadır, bu tür parçacıkların atmosferde kalış süreleri, çok yüksek koagülyasyon hızları nedeniyle oldukça kısadır. Akümülyasyon modundaki parçacıklar ya, Aitken Parçacıkları gibi gaz-partikül dönüşümünden, ya da çekirdek modundaki parçacıkların büyümesi ve koagülyasyonundan oluşmaktadır. Kaba parçacık modu ($> 2 \mu\text{m}$) ise, genellikle sürtünme, aşınma gibi mekanik işlemlerden kaynaklanmaktadır (Jacob, 2000).

Aerosol oluşumuna yol açan mekanizmalar Şekil 1.1 'de gösterilmiştir (Whitby ve Sverdrup, 1980). Oluşan parçacıkların boyutları (aerodinamik çapları) ne tür bir proses sonucu oluştuklarına bağlı olduğundan, yukarıdaki mekanizmalar önemlidir. Aerosol kütlesinin çoğu akümülyasyon ve kaba parçacık modlarında bulunmaktadır. Bu durum parçacıkların oluşum mekanizmaları ile ilgilidir. Aitken ve akümülyasyon modlarındaki parçacıkların büyük bir bölümü ikincil parçacıklardır. Diğer bir deyişle, herhangi bir kaynaktan atılmamış, atmosferdeki farklı gazların birbirleriyle reaksiyona girmesi sonucu oluşmuş parçacıklardır. Buradan da anlaşılacağı gibi, parçacıkların sağlık etkileri ve taşınımları açısından en önemli boyut aralığı $0.08 \mu\text{m}$ ile $2.0 \mu\text{m}$ arasındaki akümülyasyon modudur. Akümülyasyon modundaki parçacıklar genel olarak sülfat, nitrat, amonyum, organik bileşikler ve elementel karbondan oluşmaktadır. Bu grupta bulunan parçacıklar gazdan partiküle dönüşüm ve yanma prosesiyle meydana geldiğinden yapıları karmaşıktır.

Kaba aerosol grubuna giren parçacıklar ise genel olarak toz (kalsiyum karbonat, silika, metal oksitleri) ve deniz tuzundan oluşmaktadır (Jacob, 2000). Kaba parçacıklar, ışığı saçma özellikleri ve çok miktarda üretilmeleri nedeniyle atmosferin önemli bir bileşenidir. Kaba parçacıkların atmosferdeki ömrü, büyük kütleleri nedeniyle hızla çökdiklerinden, daha küçük boyutlu parçacıklara nazaran daha kısadır.

Akümülyasyon modunda bulunan parçacıklar, daha önce de ifade edildiği gibi, en önemli parçacık grubunu oluşturmaktadır. Böyle olmasının bir nedeni de kimyasal olarak aktif yüzeylerinin çok büyük olmasıdır. Bu özellik Aitken boyutundaki parçacıklarda da görülmekle birlikte, o gruptaki parçacıkların

ömürlerinin çok daha kısa olması, akümülyasyon modundaki parçacıkları daha önemli hale getirmektedir.



Şekil 1.1 Aerosollerin oluşum mekanizmalarına bağlı boyut dağılımları

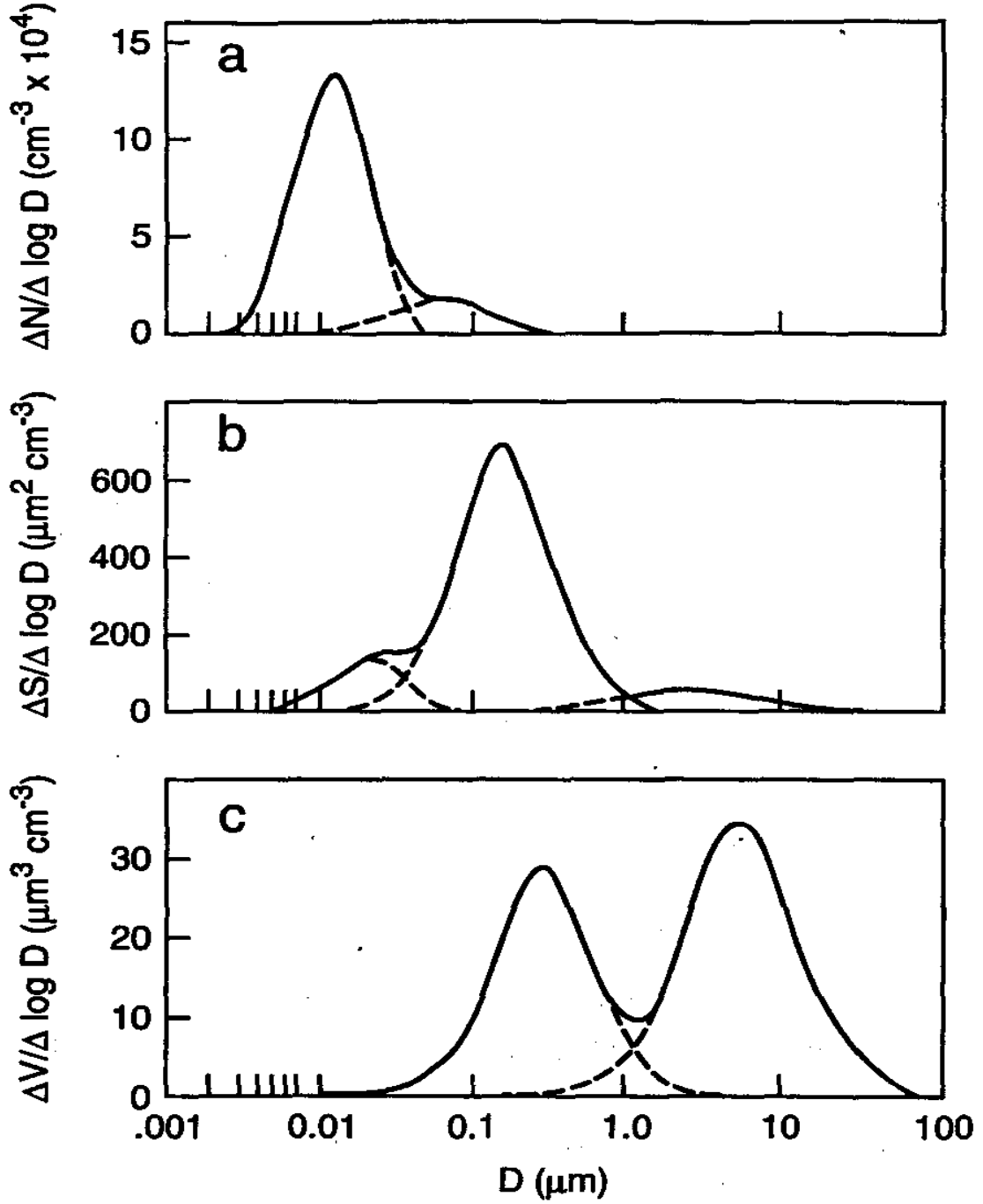
Atmosferde kirletici olarak bildiğimiz parçacıkların çok büyük bir bölümü ikincil parçacıklardır. İkincil parçacıkların oluşum mekanizmaları çok karmaşık olmakla birlikte, çok basit olarak, atmosferdeki öncül gazlar dediğimiz gazların (precursor) reaksiyonu ile düşük buhar basınçlı ürünlerin meydana gelmesi ile oluştukları söylenebilir. İkincil parçacık çekirdekleri oluşuktan sonra bunlar büyümeye başlar. Büyüme hızları 1 - 20 nm/saat aralığında bir değere ulaşana kadar büyümeye devam ederler. Bu tür parçacıkların boyutları itibariyle sağlık etkileri önemlidir. Çapları küçük olduğundan solunum sisteminin en diplerine kadar ulaşabilirler. Bu parçacıklar aynı zamanda, 0.1 µm ile 2.0 µm arasındaki çapları nedeniyle atmosferden uzaklaşmaya direnç gösterdiklerinden uzun mesafeli taşınabilmektedir.

Partikül dağılımları sayısal olarak ya da kütleli dağılım olarak ifade edilebilir. Sayısal olarak özellikle kentlerde, partikül maddelerin %80'den fazlası Aitken modundaki küçük parçacıklardır. Parçacıkların boyut dağılımlarına kütleli olarak bakıldığında ise tam tersi bir durum söz konusudur. Parçacık kütlelerinin >%90 bölümü, Aitken modunda değil, 0.08 µm – 2.0 µm boyut aralığını içeren akümülyasyon modundadır. Bunun nedenleri kütleli etkinin r^3 şeklinde değişmesi sonucu büyük parçacıkların kütleli konsantrasyona katkılarının yüksek olması ve Aitken modundaki parçacıkların hızla koagüle olarak akümülyasyon moduna geçmeleridir. Aerosollerin kütleli, sayısal ve hacimsel sıklık dağılımları Şekil 1.2'de gösterilmektedir (Whitby ve Sverdrup, 1980).

1.3. Aerosol kaynakları

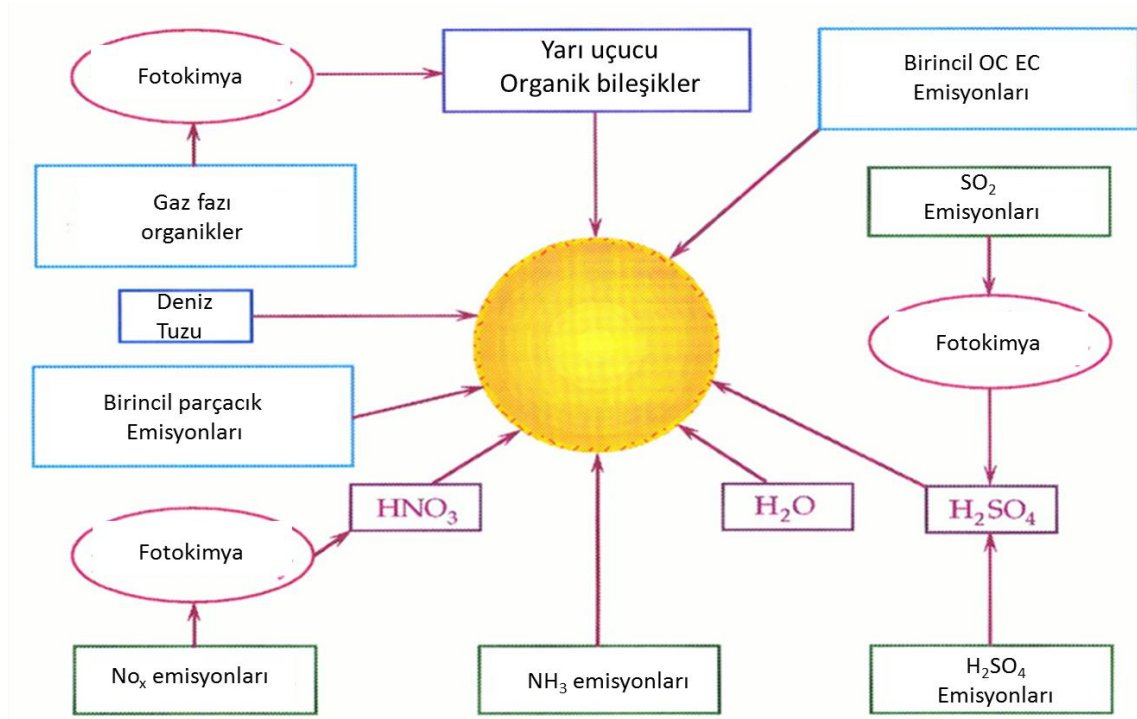
Aerosoller doğal ve antropojenik (insan kökenli) kaynaklardan atmosfere salınmaktadır. Parçacıkların çeşitli kaynakları ve dönüşüm mekanizmaları Şekil 1.3 de gösterilmiştir (Meng vd., 1997).

Volkanlar, toprak ve deniz tuzu atmosferdeki parçacıkların en önemli doğal kaynaklarıdır. Volkanlar, aynı zamanda, atmosfere yüksek sıcaklıkta emisyon yapan tek doğal kaynaktır. Dolayısı ile emisyonları bir ölçüde antropojenik emisyonlara benzemektedir (Cuoco ve d., 2013; Pfeffer ve d., 2012). Volkanlardan atmosfere çok farklı emisyonlar olmakla birlikte en önemli emisyonlar toz ve SO₂ dir. Volkanik emisyonların en önemli özelliği büyük bir güçle atmosfere salınmalarıdır. Bunun sonucu stratosfere kadar ulaşmakta ve orada uzun süre kalarak atmosferdeki önemli proseslerde yer almaktadır. Yer yüzünden yaklaşık 12 – 15 km yükseklikte sülfat tabakası tamamen volkanlardan atılan SO₂ den oluşmaktadır (Schmale ve d., 2008; Servant, 1991). Bu tabakadaki SO₄²⁻ aerosollerinin stratosferdeki ozon deliğinin oluşumunda oynadığı rol çok iyi bilinmektedir (örneğin, Pitari, ve Visconti, 1991).



Şekil 1.2 Parçacıkların, sayısal yüzeysel ve hacimsel boyut dağılımları

Volkanların atmosferdeki PM miktarına katkısı yıllık 30 Tg (teragram, 10¹² gram) olarak belirlenmiştir (Seinfeld ve Pandis, 2006, Kiehl ve Rodhe, 1995). Volkanik kükürt emisyon miktarları bu kadar kesin belirlenememekle birlikte, yıllık 0.75 Tg ile 25 Tg arasında değişmektedir (Andres ve Kasgnoc, 1998, Berresheim ve Jaeschke, 1983, Graf v.d., 1997, Lambert v.d., 1988, Stoiber v.d., 1987).



Sekil 1.3 Atmosferik parçacıkların kaynakları ve dönüşüm mekanizmaları (Meng ve d., 1997)

Bir diğer doğal kaynak da, rüzgâr ile yerden kalkan toprak parçalarından oluşan toprak aerosolleridir. Kuzey Afrika ve Orta Asya'da bulunan Sahra-Sahel bölgesinin en büyük küresel toz kaynağı olduğu bilinmektedir. Toprak tozunun başlıca bileşenleri Fe, Ca, Si, Al ve Ti gibi litofilik elementlerdir. Mineral tozların küresel aerosol kütesine katkısı 1000-3000 Tg arasında değişmektedir (Dentener v.d., 1996, Todd v.d., 2008, Zender v.d., 2004).

Deniz tuzu da atmosferdeki parçacıkların önemli doğal kaynaklarından birisidir ve başlıca bileşenleri Na^+ , Cl^- , Mg^{2+} , SO_4^{2-} ve K^+ 'dir (Song ve Carmichael, 1999, Murphy v.d., 1997, Keene v.d., 1986). Deniz tuzunun atmosferdeki mevcut aerosol kütesine katkısı 300-2000 Tg olarak hesaplanmıştır (Pueschel, 1995, Gong v.d., 1997, Liao v.d., 2003). Polen, tohum ve orman yangınları da doğal aerosol kaynaklarıdır ancak katkıları toprak ve denizden kaynaklan aerosollere göre çok daha azdır.

Atmosfere aerosol ve/veya öncü gazları salan antropojenik kaynaklar çok çeşitlidir. Bunların en önemlileri fosil yakıt yakılması (Gustafsson ve d., 2009; Schwartz, 1993), biokütle yakılması (Gustafsson ve d., 2009; Slater ve d., 2002), endüstriyel prosesler ve tarımsal faaliyetlerdir. Antropojenik aerosollerin büyüklüğü genellikle $1 \mu\text{m}$ 'den daha küçüktür. Antropojenik aerosollerin toplam aerosol miktarına katkısı kaba parçacık modunda çok önemli olmamakta

birlikte 2.5 µm den küçük olan akümülyasyon modunda çok daha büyük boyuttadır.

1.4. İkincil parçacıkların oluşumu

Daha önceki bölümlerde de ifade edildiği gibi Atmosferde bulunan parçacıklar, ya kaynaktan doğrudan atmosfere atılırlar, ya da atmosferde çeşitli reaksiyonlar sonucunda meydana gelirler. Atmosfere çeşitli kaynaklardan salınan aerosollere birincil aerosoller, farklı gazların kimyasal reaksiyonlarıyla oluşanlara da ikincil aerosoller denmektedir.

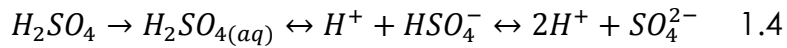
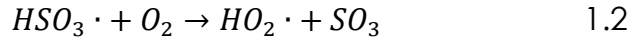
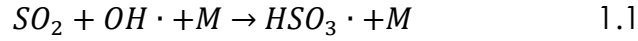
İkincil aerosoller atmosferde homojen ve heterojen çekirdeklenme işlemiyle meydana gelmektedir. Aerosollerin gaz moleküllerinin kümelenmesi ile oluştuğu prosesler homojen çekirdeklenme olarak bilinmektedir. SO₂'nin gaz fazındaki oksitlenmesi ile SO₄²⁻ meydana getirdiği reaksiyonlar homojen çekirdeklenmeye bir örnektir.

Düşük buhar basıncına sahip gazların bir reaksiyon sonucu oluştuğundan sonra önceden atmosferde bulunan parçacıkların üzerinde yoğunlaşıp tekrara gaz faza geçememesi sonucu parçacıkları oluşturması ise heterojen çekirdeklenme olarak bilinmektedir. Heterojen çekirdeklenmede ise önce öncül gazlar (precursor gases) kimyasal bir reaksiyon ile buhar basıncı düşük bir ürün oluşturmakta, ürün olarak tanımlanan moleküller ortamda mevcut olan parçacıklar üzerinde tutunmaktadır. SO₂, NO_x atmosferde bulunan öncül gazların (precursor gases) tipik örnekleridir. Aynı şekilde, atmosferde bolca bulunan deniz tuzu ve mineral toz parçacıkları da reaksiyon sonucu oluşan düşük buhar basıncı moleküllerin tutundukları yüzeylere örnek olarak gösterilebilir (Andreae ve Crutzen,1997, Song ve Carmichael,1999).

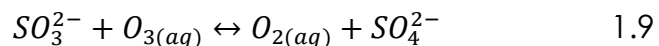
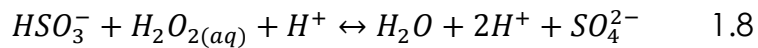
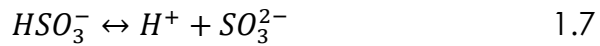
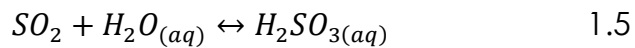
İkincil aerosollerin oluşum mekanizmaları ve süreçleri oldukça karmaşıktır ve tümüyle açıklanamamıştır. Bu nedenle, bu kısımda yalnızca oluşum mekanizmaları biraz daha iyi bilinen ikincil aerosoller olan SO₄²⁻, NO₃⁻ ve NH₄⁺ tartışılmıştır.

SO₂ oksitlenmesi ile SO₄²⁻ parçacıklarının oluşması hem homojen çekirdeklenme hem de heterojen çekirdeklenme mekanizmalarıyla olabilmektedir. Homojen çekirdeklenme SO₂ in tamamen gaz fazında fotokimyasal reaksiyonlar ile oksitlenmesini içermektedir. SO₂ i bu şekilde oksitleyecek peç çok oksidant bulunmasına rağmen, oksitlenme hızı göz önüne alındığında SO₂'nin OH (hidroksil radikali) ile reaksiyonu ile başlayan mekanizma en önemli ve dominant olarak kabul edilmektedir (Gleason v.d., 1987, Margitan, 1984, Stockwell ve Calvert, 1983).

Bu reaksiyonlar Denklem 2.2.1'den Denklem 2.2.3'e kadar olan kısımda gösterilmiştir. H_2SO_4 oluşur oluşmaz çözünerek SO_4^{2-} iyonunu oluşturmaktadır (Denklem 2.2.4).



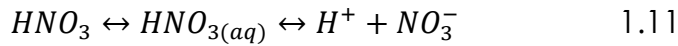
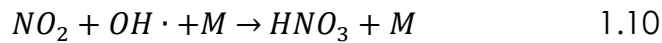
Sülfat aynı zamanda heterojen çekirdeklenme reaksiyonları (sulu-faz reaksiyonları) ile de oluşmaktadır. Literatürde bu şekilde sulu faz reaksiyonlarına bir çok örnek vardır. Bunların en önemlileri O_3 (ozon), H_2O_2 (hidrojen peroksit), Mn^{2+} and Fe^{3+} ile katalize olmuş O_2 (oksijen), OH (hidroksil radikali), $HCHO$ (formaldehid) ve Cl_2^- (diklorid) oksidaysonlarıdır (Pandis ve Seinfeld, 1989) Denklem 2.2.5'ten 2.2.8'e kadarki reaksiyonlar ortamın pH'sına bağlıdır. $pH < 6$ için 2.2.8 numaralı denklem sülfat üretimindeki en önemli reaksiyon olurken , $pH > 6$ için ise 2.2.9 numaralı denklem en önemli reaksiyon olmaktadır. Çoğu sulu faz SO_2 oksidasyonu, ortamın uygun olması nedeniyle, bulutların içinde gerçekleşmektedir.



SO_4^{2-} in aksine, in aksine, NO_3^- iyonu daha ziyade azot oksitlerin gaz fazındaki homojen reaksiyonları ile oluşmaktadır. NO_3^- oluşumunda heterojen mekanizmaların rolünün az almasının nedeni, NO_3^- oluşumunda öncül gazlar olan NO ve NO_2 in çözünürlüklerinin düşük olması sonucu bu gazların heterojen

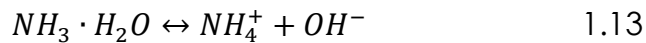
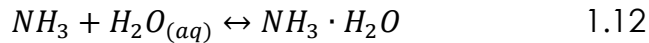
oluşum mekanizmalarının olduğu bulut damlalarında ancak sınırlı düzeyde çözünmeleridir (Carshaw v.d., 1997, Jacob, 2000, Russell v.d., 1986).

NO₂'in atmosferde oksitlenmesi NO₃⁻ iyonunun oluşumunda ve dolayısı ile asit yağmurları açısından önemlidir. Bu oksitlenme mekanizması doğrudan OH radikali ile (Denklem 2.2.10), ya da O₃ ve HCHO ile gireceği bir seri reaksiyon sonucu meydana gelmektedir. Bağıl nem, pH ve sıcaklığa bağlı olarak HNO₃'ün bir kısmı atmosferdeki parçacık yüzeyleri üzerinde yoğunlaşmakta, diğer kısmı ise gaz fazında kalmaktadır (Wang v.d., 2006, Tang ve Munkelwitz, 1993).



Amonyak gazı bazik özellikleri nedeniyle asit yağmurları açısından atmosferde bulunan önemli bir gazdır. Amonyak gazının gaz fazındaki reaksiyonları çok yavaş olduğundan bu yolla NH₄⁺ oluşumu önemsiz kabul edilmektedir. NH₃'ün yağmur ve sis damlalarında gerçekleşen sulu faz reaksiyonları ise Denklem 2.2.12 ve 2.2.13'te verilmiştir. Bu mekanizma da önemli olan NH₃'ün damlalarda çözünmesidir. İkinci adım olan NH₄⁺ iyonunun oluşumu oldukça hızlı bir reaksiyondur.

Amonyak, ayrıca, aerosollerde bulunan sülfat ve nitrat ile reaksiyona girmekte ve onları nötrleyerek amonyum tuzlarına dönüştürmektedir. Bu reaksiyonlar atmosferdeki asitliğin nötrlenmesi açısından çok önemlidir. Atmosferdeki NH₄⁺ miktarı NH₃, H₂SO₄, miktarlarına, bağıl nem düzeylerine ve pH değerlerine bağlı olarak değişmektedir (Nenes v.d., 1999).



Çok asidik durumlarda, (NH₃/H₂SO₄ mol oranı 0,5'ten küçük ise), aerosol kompozisyonunu H₂SO₄ belirlemektedir. Asidik durumlarda, (NH₃/H₂SO₄ mol oranı 0,5 ile 1,5 aralığında ise) dominant kükürt bileşeni HSO₄⁻ (bisulfat) olmaktadır. Eğer ortamda H₂SO₄'ü nötrleyebilecek miktarda NH₃ varsa aerosol SO₄²⁻, doğal olarak (NH₄)₂SO₄ halinde olmaktadır.

Amonyak NH_3 ve HNO_3 konsantrasyonlarının yüksek, H_2SO_4 konsantrasyonlarının düşük olduğu durumlarda amonyum bir baz olarak HNO_3 ile reaksiyona girerek NH_4NO_3 parçacıklarını oluşturmaktadır. Ancak NH_4NO_3 'ün kararlılığı sıcaklık ve bağıl neme bağlıdır. Örneğin, düşük sıcaklıklarda NH_4NO_3 katı fazda bulunurken yüksek sıcaklıklarda NH_3 and HNO_3 olarak gaz fazında bulunur. Bu nedenle aerosollerdeki NO_3 ' ölçümlerin belirsizliği, koşullara bağlı olarak, ölçümler ne kadar hatasız yapılırsa yapılsın, çok yüksek olabilmektedir (Pandis ve Seinfeld, 1989).

1.5. Parçacıkların Atmosferden Uzaklaşma Mekanizmaları

Hava kaynaklı aerosoller sedimantasyon, kuru çökme ve yağ çökme (yağış) olmak üzere iki temel mekanizma ile yer yüzeyine döndürülebilmektedir (Bertrand et al., 2008). Kuru çökme, parçacıkların yağ çökme olmadığı durumlarda yer yüzeyine veya başka bir yüzeye taşınması olarak tanımlanabilir (Connan ve d., 2013). Parçacıkların kuru çökmesi Sedimantasyon veya çarpışma (impaction) yoluyla olabilmektedir. Sedimantasyon büyük parçacıklar üzerinde etkin olurken çarpışma genellikle daha küçük parçacıkların (çapı $0.5 \mu\text{m}$ 'den küçük olanlar) atmosferden uzaklaşmasında etkilidir (Fang ve d., 2012). Kuru çökme genellikle aşağıdaki ifade ile hesaplanmaktadır:

$$F_k = v_k \times C$$

Bu eşitlikte F_k kuru çökme akısını, C konsantrasyonu v_k ise "kuru çökme hızını" göstermektedir. Kuru çökme hızı, bu konuda bilinmesi gereken en önemli parametrelerden birisidir. v_k parçacık boyutuna (Zhang ve D., 2012), meteorolojik parametrelere (Chen ve d., 2012) ve çökmenin olduğu yüzeye (Roupsard ve d., 2013) bağlı olarak değiştiğinden kuru çökme hesaplarında belirsizliğe neden olan parametrelerin başında gelmektedir. Kuru çökme suda çözünürlüğü az olan parçacıklar için ve yıllık yağış miktarının az olduğu bölgeler için büyük önem taşımaktadır (Li ve d., 2010).

Yağ çökme parçacıkların atmosferden, yağmur kar ve benzer yağışlarla uzaklaştırılması olarak tanımlanmaktadır. Her ne kadar her türlü yağış yağ çökme neden olabilirse de, en yaygın yağış türü olmasından dolayı yağmur en etkin yağ çökme mekanizmasıdır.

Yağ çökme bulut içi (in cloud – rainout) ve bulut altı (below-cloud veya washout) olmak üzere iki farklı yöntem ile olabilmektedir (Aikawa ve Hiraki 2009). Bu iki mekanizmanın mekansal etkileri açısından anlamları çok farklıdır. Bulut içi (in cloud – rainout) olarak bilinen mekanizmada parçacıkları bulut veya sis damlalarına girmekte ve bir müddet sonra bulut yağmur olarak yağdığı zaman

yağmur damlaları ile yere düşmektedir. Parçacıkların bulut damlacıklarına dahil olması, bir çekirdek olarak bulut damlasının parçacık etrafında oluşması şeklinde olabileceği gibi, parçacıkların bulut ve sis damlaların çözünmesi şeklinde de olabilmektedir. Bu durumda, parçacıkların bulut damlalarına girmesi ile yağış olarak çöktüğü nokta arasında yüzlerce, hatta binlerce kilometre mesafe olabileceğinden, bulut içi mekanizmaların bölgesel nitelikte olduğu söylenebilir (Bertrand et al., 2008; Han et al 2013).

Bulut altı mekanizmada ise parçacık ve gazların bulut damalarına girmesi söz konusu değildir. Bu mekanizmada her hangi bir noktada atmosferde bulunan parçacıklar yağın yağmur damlaları ile yıkanmakta ve bu şekilde yüzeye çökmektedir. Yıkanma işlemi yağmurun yağdığı noktada olduğundan bulut altı olarak bilinen yağ çökeltme etkileri lokal olan bir mekanizmadır (Bertrand et al., 2008).

1.6. Parçacıkların çevresel etkileri

Atmosferdeki parçacıkların insan sağlığına etkileri bir dizi olumsuz etkilerinden bir tanesidir (Anderson, 2009). Parçacıkların, insan sağlığı dışında, malzemeler (Grossi ve Brimblecombe, 2002, Tidblad ve Kucera, 1998), görünürlük (visibility) (Watson, 2002), değişik ekosistem bileşenleri (Bergin ve ark., 2001) ve iklim (IPCC var , 2001, Lelieveld ve ark., 2002) üzerinde de olumsuz etkileri bulunmaktadır. Aerosollerin olumsuz sağlık etkileri, literatürde çok değişik boyutlarda tartışılmıştır (Dockery ve ark., 1993, Papa ve ark., 1992, Pope, 2000, Schwartz ve ark., 1996, Samet ve ark., 2000).

Parçacıkların bütün özelliklerinin insan sağlığına etkisi tam olarak anlaşılmamış olsa da, partikül büyüklüğü ve kompozisyonun insan sağlığını etkileyen en önemli faktörler olduğu bilinmektedir (Englert, 2004). Epidemiyolojik çalışmalar solunum ve kardiyovasküler sistemlere bağlı yaşanan ölüm ve hastalıklar ile partikül madde düzeyleri arasında bir ilişki olduğu göstermiştir (Adler ve ark., 1994, Singh et al., 2002). Sağlık etkisini belirleyen ana faktörlerden birinin) maruz kalma süresini olduğunu gözlemlenmiştir (Papa, 2000, Papa ve Dockery, 2006. Papa ve ark. (1995), sağlıkla ilgili sorunlar yaratan PM için herhangi bir alt eşik değer olamayacağını gözlemlenmiştir. Literatürdeki çalışmaların büyük bir çoğunluğu küçük parçacıkların daha büyük parçacıklara göre daha fazla soruna neden olduğunu göstermektedir. Pb, Cd, V, Fe, Zn, Cr, Ni, Mn ve Cu gibi potansiyel toksik eser elementler içeren parçacıkların yüksek konsantrasyonlarda mevcut olmasının insan sağlığını olumsuz yönde etkilediği iyi bilinmektedir (Ghio ve ark., 1999, Hlavay ark 1992, Natusch ve ark., 1974). Diğer taraftan bu metallerin toksisitelerinin çözünürlükleri ve reaktivitelerine bağlı olduğu da öne sürülmüştür (Karthikeyan ve d., 2006).

Aerosollerin sađlık etkilerinde paracık boyutları en nemli parametredir. Bunun nedeni, byk paracıklar solunum sisteminin, burun, bođaz gibi st taraflarında tutunurken, apları 2.5 μm den kk olan paracıkların btn bariyerleri ařarak solunum solunum sisteminin en alt blmlerine bile kolayca ulařmasıdır.

Aerosollerin iklimsel etkileri iřıđı absorplama ve sama (scattering) etkilerinden kaynaklanmaktadır. Atmosferde bulunan gaz veya paracıkların sıcaklıđın artmasına (pozitive radiative forcing veya pozitif zorlama) veya azalmasına (negative radiative forcing veya negatif zorlama) neden olan etkileri bulunmaktadır. Aerosollerin iklim deđiřikliđine etkisi infrared radyasyonu saması veya absorbe etmesine bađlıdır. Atmosferdeki paracıkların absorpsiyon zelliklerinin ne ıkması durumunda, sera gazları gibi davranarak sıcaklıđın artmasına neden olabildikleri ngrlmekte, ancak kızıltesi iřıđı sama zelliklerinin ne ıkması halindeyse negatif zorlama durumu oluřacađından sıcaklıđın dřmesine veya sođumaya neden olabilecekleri ngrlmektedir. Mevcut durumda atmosferde bulunan paracıkların global lekte negatif bir zorlamaya neden oldukları ve sıcaklıđın dřmesi ynnde bir etkilerinin olduđu kabul edilmektedir (Prospere vd., 2000). Bunun nedeni atmosferde en yaygın olarak bulunan paracıkların SO_4^{2-} aerosolleri ve deniz tuzu olmasıdır. Bu iki paracık tr de kızıltesi radyasyonu absorplamamaktadır. Dolayısı ile global lekte paracıkların IR radyasyonu sama zelliklerinin dominant olduđu sylenebilir. Bu da paracıkların iklim deđiřimine sera gazlarının etkilerinin tersi ynnde bir etkisi olması ve sıcaklıđın azalmasına neden olması sonucunu dođurmaktadır.

Atmosferdeki paracıklar ok yakın zamana kadar iklim modellerine dahil edilmemiřtir. Ancak son 10 yılda iklim deđiřiminin neden olduđu sıcaklık artıřının ters ynndeki etkileri modellere dahil edilmekte ve bunun modellerin dođruluđunu arttırdıđı ifade edilmektedir.

Mevcut paracıklar arasında IR iřıđı absorplayabilen tek paracık tr elementel karbondur (EC). Dolayısı ile atmosferdeki karbon konsantrasyonu artarsa paracıklar da sera gazları gibi iklim deđiřiklinden kaynaklanan sıcaklık artıřına neden olabilecektir. Ancak mevcut durumda karbon paracıklarının konsantrasyonları ancak kent atmosferlerinde yksek olduđundan, aerosollerin absorpsiyon etkilerinin global lekte ok nemli olmadığı kabul edilmektedir.

Aerosollerin iklim zerinde dolaylı etkileri de olmaktadır. Paracıklar ekirdek gibi davranarak bulut damlacıklarının etraflarında oluřmasını sađlaması bulut oluřumu ve yađıř verimliliđini etkilemektedir. Bulutlar da iřıđı saarak ve yansıtarak iklim deđiřikliđinden kaynaklanan sıcaklık artıřına ters bir durum

oluşturduğundan, parçacıkların da bu şekilde dolaylı bir etkisi olduğu ifade edilebilir (IPCC, 2001, Haywood ve Boucher, 2000).

Aerosoller görünür bölgedeki ışığı absorblama ve yansıtma özellikleri nedeniyle görüntü bozukluğuna neden olmaktadır. Çapları 0,4 ve 0,7 µm aralığında olan parçacıklar görünür ışık dalga boyuna yakın olduğundan bu tür görüntü bozulmasına en çok katkıda bulunan parçacık grubudur (Japar ve d., 1986).

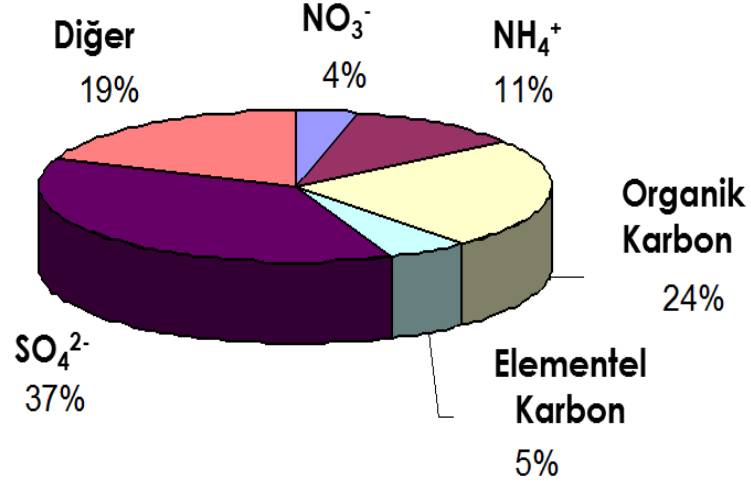
Kükürt ve azotça zengin parçacıkların su kütleleri ve toprak üzerine çökmesinin (Krug ve Frink, 1983, Likens ve diğerleri., 1996) asitleşme sorununa neden olduğu bilinmektedir. Asit yağmurları olarak bilinen Bu asitleşme suyun pH'sını düşürerek toksik metallerin çözünürlüğünü arttırmakta ve bu şekilde balık ve diğer canlı türleri olumsuz etkileyerek ekosisteme zarar vermektedir.

1.7. Aerosollerin kimyasal kompozisyonu

Önceden yapılan çalışmalar atmosferde dört ana PM bileşen grubu olduğunu göstermiştir. Birinci bileşen grubu elementel ve organik karbondan oluşmaktadır. Bu grubun kaynağı özellikle dizel motorlu araçlardır. İkinci bileşen grubu, inorganik iyonlar olarak tanımlanan, amonyum sülfat ve amonyum nitratı kapsamaktadır. Bu bileşenler atmosferde kükürt dioksit ve azot dioksitin oksitlenmesi sonucunda ortaya çıkmaktadır. İyonlar atmosferde uzun süre kalabildiğinden, atmosferde uzun mesafelere taşınabilmektedir. Rüzgârın ve akan trafiğin etkisiyle yoldan havalanan mineral maddeler de bir diğer tipik bileşen grubunu oluşturmaktadır.

Son bileşen grubu sodyum klorürdür. Bu grup deniz yüzeyinde "kabarcık patlaması" (bubble bursting) olarak bilinen mekanizmayla atmosfere salınmaktadır. Kara kökenli ve çapları ince ($D < 2.5 \mu\text{m}$) aerosollerin tipik kompozisyonları (kütle) Jacob (2000) tarafından tanımlanmış ve Şekil 1. 4 'de sunulmuştur.

Herhangi bir noktadaki aerosol kütlesi çeşitli doğal ve antropojenik kaynaklardan atmosfere salınmış parçacıkların bir karışımıdır. Bu kaynakların bir bölümü önceki bölümlerde tartışılmıştır.



Şekil 1.4 Kara kökenli ince parçacıkların tipik kompozisyonu (Jacob, 2000)

Atmosferdeki parçacıkların bir bölümü birincil parçacıklar ve diğ er bir bölümü ise ikincil parçacıklardan oluşmaktadır. Birincil parçacıklar genellikle toprağın havalanması, volkanik patlamalar, kabarcık patlaması ve benzer mekanizmalarla oluşmaktadır. Bunun aksine, sülfat (SO₄²⁻), nitrat (NO₃⁻) ve bazı yarı uçucu organik parçacıklar ikincil karakterdedir. Birincil ve ikincil parçacıklar daha önceki bölümlerde tartışıldığından burada uzun uzun tartışılmayacaktır.

Doğal birincil aerosoller temel olarak toprak tozu, deniz tuzu ve biyojenik kökenli parçacıkları içermektedir. Bunlara ek olarak, volkanik patlamalardan kaynaklanan partiküller de bu kategori altında sınıflandırılabilirler.

Deniz tuzu parçacıkları "kabarcık patlaması" olarak adlandırılan bir mekanizma ile oluşmaktadır. Söz konusu mekanizma deniz yüzeyinde özellikle yüksek rüzgar hızlarında, dalgaların tepelerinde görülen beyaz köpüklerin patlamasını ve bu sırada deniz suyu damlalarının atmosfere atılmasını içeren bir mekanizmadır. Bu şekilde hem büyük çaplı damlacıklar hem de çok küçük, mikron boyutunda damlacıklardan oluşmaktadır. Büyük damlacıklar (çapı 2 mm den büyük olabilir) "jet damlası", küçük damlacıklar ise "film damlaları" olarak tanımlanmaktadır. Jet damlaları çok büyük olduklarında atmosferde fazla kalmamakta ve tekrar deniz yüzeyine çökelmektedir. Küçük film damlaları ise buharlaşarak ortalama boyutu 3 – 5 µm olan deniz tuzu parçacıklarını oluşturmaktadır. Film ve jet

damlacıklarının deniz yüzeyinin üstünde kabarcık patlaması sırasında nasıl oluştuğu şematik olarak Şekil 1.5'de gösterilmiştir.

Doğal birincil aerosoller:

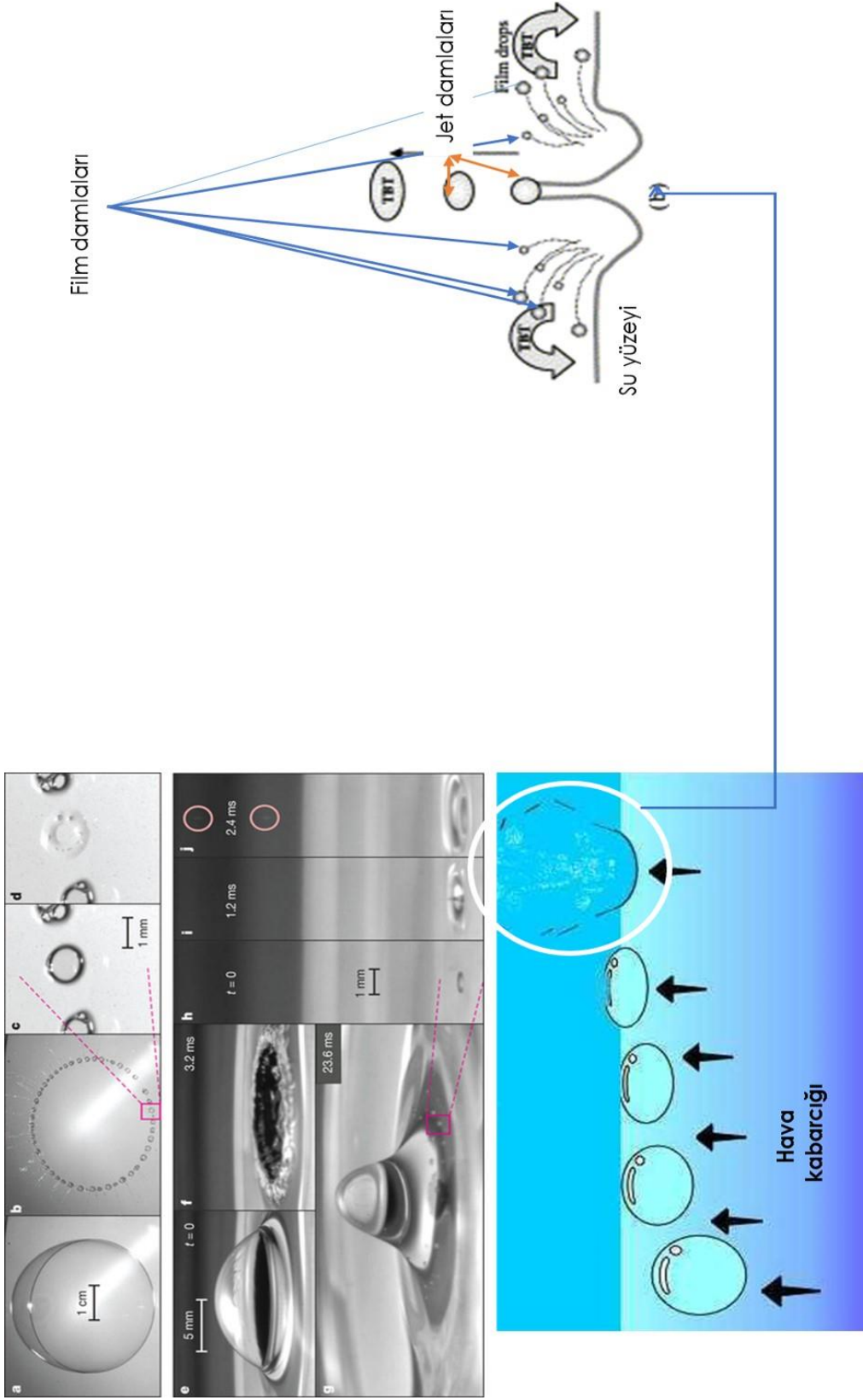
Deniz tuzu parçacıkları genellikle büyük boyuttaki (çapları 2.5 µm den büyük) parçacıklardır ve atmosferde kalma süreleri bu nedenle kısadır. Bu tür parçacıklarının konsantrasyonları, doğal olarak, denize yakın yerlerde daha yüksek olmaktadır. M. Koçak v.d (2007) nin çalışmasında, Erdemli ve Mersin'den toplanan örneklerin PM10 konsantrasyonlarının %50'sinden fazlasının deniz tuzu partiküllerinden kaynaklandığı gösterilmiştir. Bu sonuç sahil bölgeleri için beklenen bir durumdur.

Deniz tuzu parçacıkları yüksek düzeylerde Na, Cl, Br ve Mg içermektedir. Dolayısı ile, denize yakın örnekleme istasyonlarında ölçülen Na, Cl, Br ve Mg konsantrasyonlarının önemli bir bölümü denizden kaynaklanmaktadır. Bu elementlerin dışında deniz çok önemli bir SO₄²⁻ kaynağıdır. Denizdeki S konsantrasyonu 880 ppm gibi önemli bir boyutta olduğundan, yukarıda anlatılan mekanizma ile oluşan deniz tuzu parçacıklarında önemli miktarda S bulunmaktadır. Ancak deniz kökenli ikinci, ve daha önemli, SO₄²⁻ kaynağı, planktonlardan oluşan biyojenik sülfatdır. Fitoplanktonların belirli türleri dimethylsulfoniopropionate (DMSP) şeklinde bir metabolik ürün oluşturmaktadır. Bu en önemli doğal SO₄²⁻ kaynağıdır. DMS emisyonunun dünya üzerinde diğere S emisyonlarına göre daha homojen dağılmış olması bu kaynağın önemini arttırmaktadır. DMS doğal yollarla indirgenmiş tek kükürt gazı olup dolaylı olarak iklim değişikliğine yol açan mekanizmaları etkileyebilmektedir (Howard vd., 2006; Nunes vd., 2005). DMS'in küresel iklim değişikliğindeki mekanizması Şekil 1.6'de sunulmaktadır (Charlson vd., 1987).

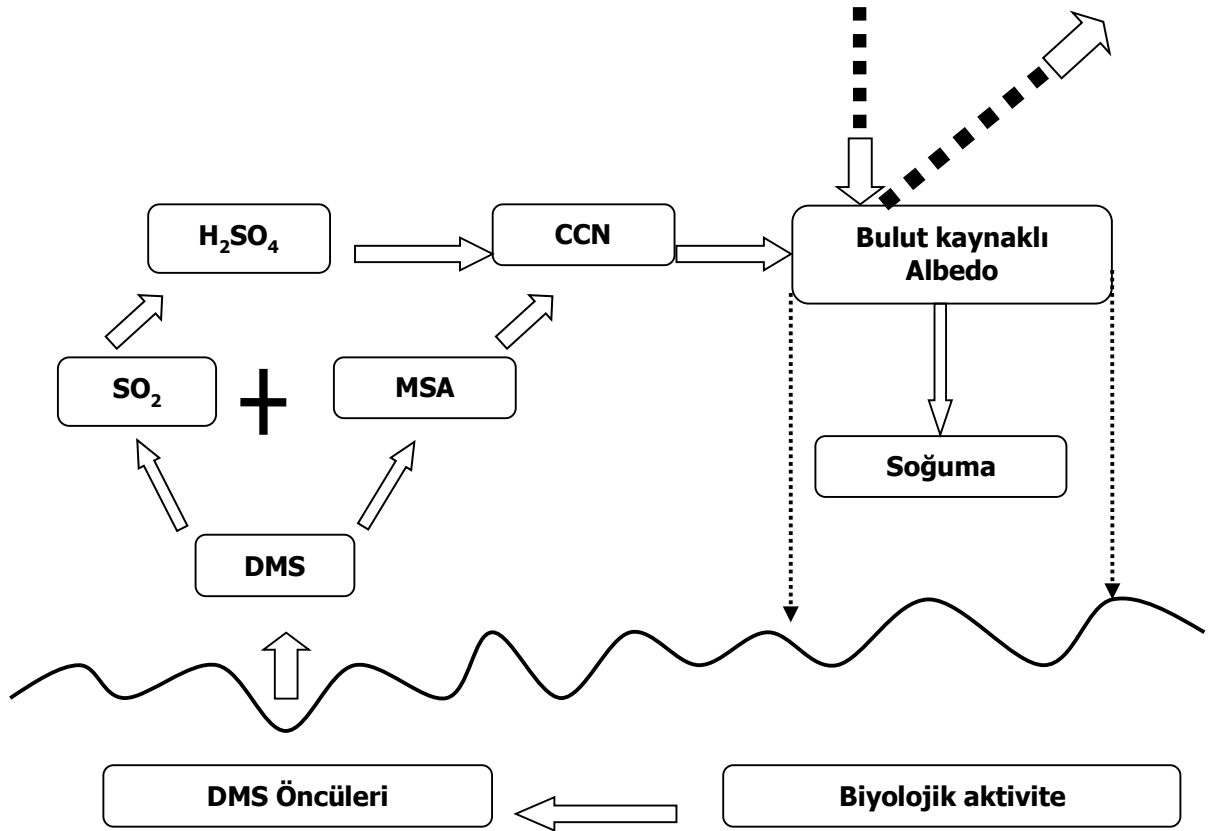
Şekil 1.6'de verilen hipoteze göre, denizlerdeki fitoplankton metabolik aktivitesi sonucu DMS'lerin üretimine neden olmaktadır. Oluşan DMS, sudaki çözünürlüğü çok az olduğundan, büyük ölçüde, atmosfere taşınmaktadır. Burada da, sırasıyla, önce daha az uçucu olan metansulfonk aside(MSA), sonra SO₂'e ve sonunda da SO₄²⁻'a oksitlenmektedir. Bu son ürünler atmosferde bulut yoğunlaştırma çekirdeklerini (CCN) oluşturmaktadır ve böylece bulutların albedo etkisi artmakta ve güneş ışığı daha çok yansıtılmaktadır. Bu mekanizma atmosferin soğumasına sebep olmaktadır (Cox, 1997; Charlson vd., 1987).

Atmosferde çokça bulunan diğere bir aerosol bileşeni toprak (veya toz) parçacıklarıdır. Rüzgar ve atmosferik türbülanslar toprak tozunun atmosfer içinde taşınımını sağlayan ana mekanizmalardır. 20-200 µm çapındaki parçacıkları asılı tutmak için yaklaşık 0.2 ms⁻¹ hızında bir rüzgara ihtiyaç vardır. Yeryüzünün üçte birini kaplayan yarı kurak bölgeler ve çöller toz parçacıklarının

ana kaynağıdır. Topraktaki konsantrasyonları yüksek olduğundan ve toprak dışındaki kaynakları sınırlı olduğundan Alüminyum, Fe, Sc ve Si toprak tozunun en önemli izleyici (tracer) elementleridir.



Şekil 1.5 Deniz tuzu parçacıklarının kabarcık patlaması mekanizmasıyla oluşması



Şekil 1.6 Okyanusta DMS üretimi ile iklim arasındaki ilişkinin şematik gösterimi

Deniz tuzu parçacıklarına benzer şekilde, toprak tozu parçacıklarının da atmosferde kalma süreleri büyük çaplarından dolayı kısadır.

Volkanlar atmosfere hem parçacık hem de gaz salınımında bulunurlar. Büyük parçacıklar atmosferde küçüklere göre daha kısa süreler kalabildiğinden zaman içerisinde volkanik emisyonlar küçük parçacıkları içecek şekilde bir değişime uğramaktadır. Volkanlardan kaynaklanan küçük parçacıkların çok büyük bir bölümü salınan SO₂'in oksitlenmesiyle oluşan SO₄²⁻ parçacıklarıdır. Kükürde ek olarak, Cl⁻, F⁻, NO₃⁻, K⁺, Ca²⁺, ve Mg²⁺ gibi çözülebilir iyonlar da volkanlardan salınmaktadır. Volkanlardan atılan parçacıklar da bulut yoğunlaştırma çekirdekleri (CCN) gibi davranarak dünyanın enerji dengesini değiştirdikleri için önemlidir (Mather vd., 2004).

Birincil doğal parçacıkların diğer bir kaynağı da orman yangınlarıdır. Küçük duman parçacıkları, özellikle organik bileşikler ve elementel karbon, doğrudan orman yangınlarından salınmaktadır. Orman yangınlarından salınan parçacıkların çapları 0.1 µm kadar küçüktür. Boyutlarının küçük olması sebebi ile orman yangınlarından ortaya çıkan bu parçacıklar tıpkı volkanlardan oluşan parçacıklar gibi bulut yoğunlaştırıcı çekirdekleri gibi davranmaktadır (Wallace ve Hobbs, 2006).

Doğal ikincil aerosoller:

Doğal kükürt emisyonları: Doğal ikincil aerosollerin büyük bir çoğunluğu kükürt gazı emisyonlarının reaksiyonları sonucunda oluşmaktadır. Şekil 1.7'de Kükürt döngüsü gösterilmiştir. Yukarıda kısaca tartışılan mekanizmalarla atmosfere atılan kükürdün oksitlenmesiyle oluşan SO_4^{2-} miktarları da şekilde gösterilmiştir.

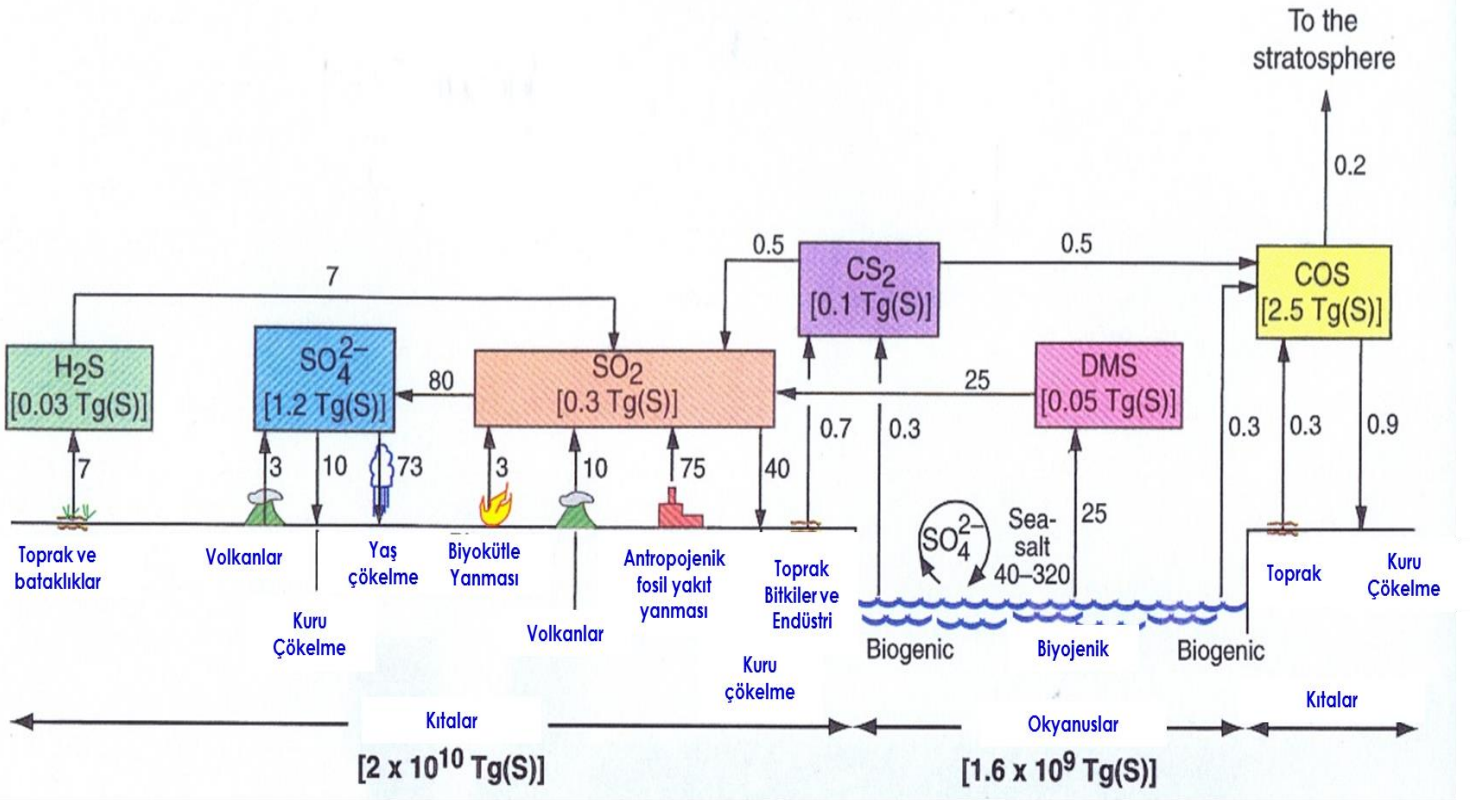
Doğal azot kaynakları: Atmosferde bulunan nitratin kaynağı NO_x emisyonudur. NO_x ' gazının doğal kaynakları biokütle yanması ve nitrifikasyon, denitrifikasyon ve gübrelere kaynaklanan toprak emisyonudur. Şekil 1.8'de atmosferdeki azot döngüsü verilmiştir (Wallace ve Hobbs, 2006). Şekilde okların yanındaki sayılar yıllık ortalama azot akısını $Tg(N)$ türünden göstermektedir.

Antropojenik birincil aerosoller:

Antropojenik birincil parçacıklar kaynaklardan doğrudan salınmaktadır. Birincil parçacıkların atmosferdeki ortalama konsantrasyonları salınım miktarlarıyla orantılıdır. Birincil parçacıklar ikincil parçacıkların oluşumunda önemli bir rol oynamaktadır. Örneğin, açık araziden, yollardan, tarımsal arazilerden ve inşaat alanlarından kaynaklanan tozlar birincil kirleticidir. Fakat amonyum nitrat gübresi buharlaşıp, atmosferde amonyak ve nitrik asit oluşturabilir ve bundan kaynaklanan tozlar ikincil aerosoller olarak tanımlanır.

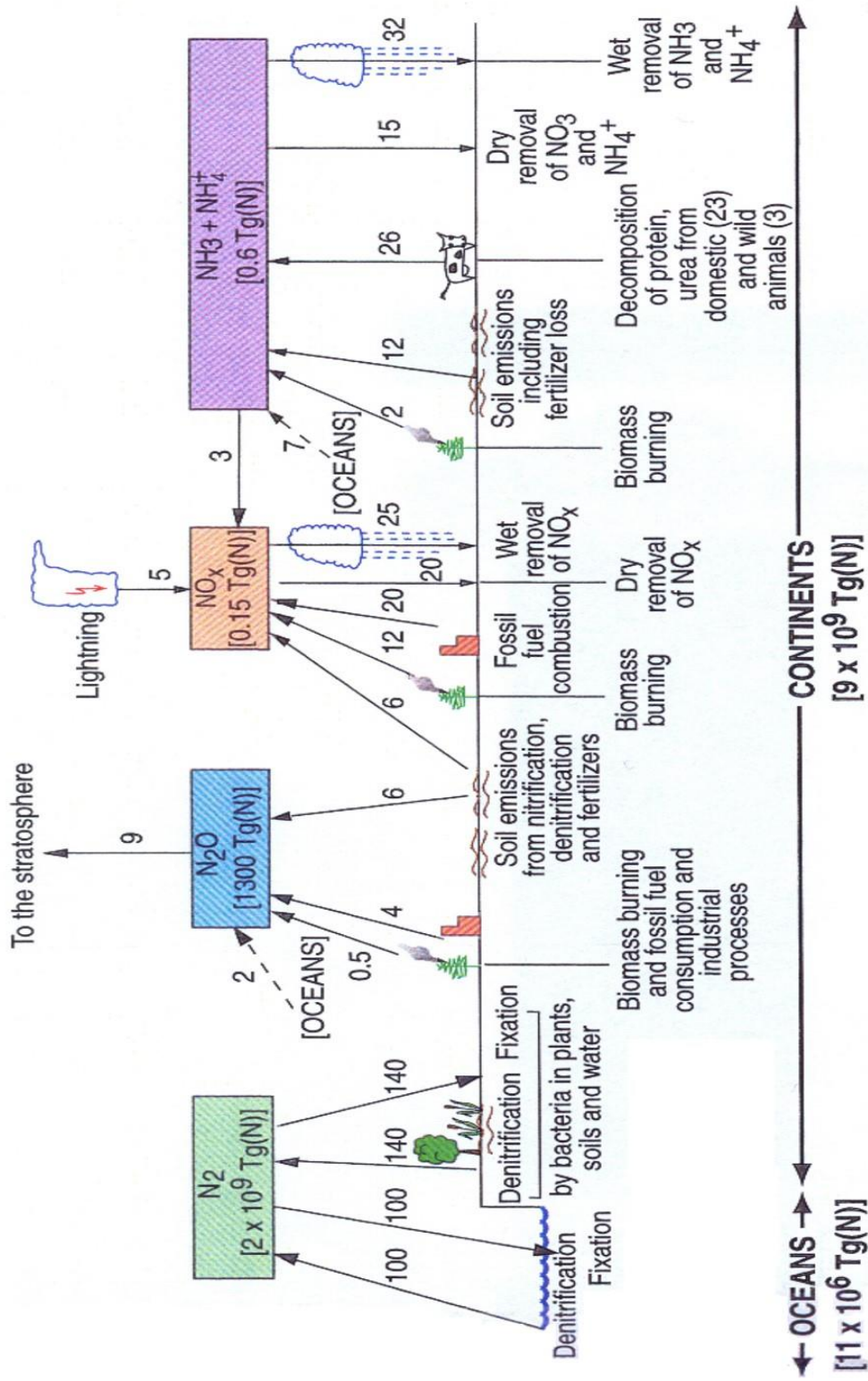
Antropojenik ikincil aerosoller:

Antropojenik birincil aerosoller temel olarak, homojen ve heterojen çekirdeklenme olarak bilinen iki mekanizma ile oluşmaktadır. Bu iki mekanizma daha önceki bölümlerde tartışıldığından burada tekrar tartışılmayacaktır.



Şekil 1.7. Atmosferdeki kükürt döngüsü. Okların yanındaki rakamlar Tg (10^{12} g) olarak akıları göstermektedir.

Kükürt ve azot içeren ikincil aerosoller temel olarak antropojenik SO_2 ve NO_x gazlarının fotokimyasal mekanizmalarla oksitlenmesi sonucu oluşmaktadır. Bunun tam tersi olarak, ikincil organik bileşikler biyojenik emisyonların göstergesidir. Pandis ve d. (1991), Zhang vd. (1992), ve Hoffmann ve. (1997) yaptıkları kabin (chamber) çalışmalarında biyojenik hidrokarbonların aerosol oluşturma potansiyellerini araştırmışlardır.



Şekil 1.8. Azot döngüsü

Bu çalışmalarda pinen grubuna giren organik bileşiklerin O_3 , NO_3^- , ve OH^\cdot la tepkime vererek ikincil parçacıkları oluşturdukları gösterilmiştir. Bu bulgu yüksek oranda vejetasyon içeren bölgeler için biyojenik emisyonlardan kaynaklanan ikincil aerosollerin önemli olduğunu göstermektedir. Ken atmosferinde ise ikincil aerosollerin temel kimyasal bileşenleri sülfürik asit, amonyum sülfat, amonyum ve diğer nitrat ve antropojenik kökenli organik bileşikleridir.

Şimdiye kadar yapılmış çalışmalar antropojenik aerosollerin iklim üzerindeki radyasyon etkisini göstermiştir. Bu etki küresel anlamda sera gazları ile benzer olup ancak işareti terstir. Aerosollerin iklim üzerindeki radyasyon etkisi ya doğrudan, aerosol partiküllerinin radyasyonu yansıtması veya absorplaması, ya da dolaylı olarak, aerosol partiküllerinin bulut çekirdeklerinin (CCN) oluşumuna katkı sağlayarak bulutların radyasyonu yansıtma daha etkin hale getirmesi şeklinde olmaktadır. Atmosferdeki aerosol kütlesinin artması ile bulutlardaki damla sayısı da artmaktadır. Damla sayısının artması bulutların gelen ışığı yansıtma potansiyelini de arttırdığından, bulutların iklimsel soğumaya sebep olması gibi bir durum ortaya çıkmaktadır. Bulutun içindeki yoğunlaşan nem aerosollerin artmasıyla değişse de damla yarıçapı düşmekte ve bu da yağmur verimliliğinin düşmesine sebep olmaktadır. Ayrıca, bu durum bulutun yaşam süresini arttırıp bulut miktarının da artmasına neden olmaktadır (Ramanathan v.d, 2001). Özetle, parçacıkların artması sonucu bulutlardaki damlacık sayısı artmakta, damlacık boyutu ve hacmi azalmakta bulutlar daha uzun süreler atmosferde kalmakta, gelen ışığı daha etkin bir şekilde yansıtma ancak bulutların yağmur üretme olasılığı azalmaktadır.

Akdeniz'de Lelieveld vd (2000) tarafından yapılan bir çalışmada yukarıda bahsedilen aerosoller yüzünden aerosollerin yağışı azalttığı iddiası teyit edilmiştir. Bu çalışmada ortalama, aylık maksimum ve aylık minimum Akdeniz deniz yüzeyi sıcaklığı (SST) kullanılan bir iklim modeli ile hesaplanmıştır. Çalışma sonucunda Akdeniz bölgesi, Orta Doğu ve Doğu Sahra'daki yağışlarının %10-50 düşmesi aerosol parçacıklarının yeryüzüne ulaşan solar radyasyonu azaltması ile açıklanmıştır.

Atmosferik aerosollerin iklim üzerindeki temel etkisi atmosferi soğutmalarıdır. Charlson vd. (1992) çalışmalarında aerosollerin direkt ve endirekt etkilerinin küresel akiya kuzey yarım kürede kabaca -1 Wm^{-2} katkıda bulunduğunu ortaya çıkarmışlardır. Hükümetler arası İklim Değişikliği Paneli'nde (IPCC)sülfatın radyasyon akısı üzerindeki direkt etkisinin $-0,21$ ve $-0,8 \text{ Wm}^{-2}$ değerleri arasında değiştiğini ve merkezi değerinin de $-0,5 \text{ Wm}^{-2}$ olduğu öngörülmüştür (Sharma vd., 1999).

Diğer yandan sera gazlarına benzer şekilde aerosoller de küresel ısınmaya sebep olabilmektedir. Yapılan çalışmalarda ışığı absorbe etme özelliği karbon parçacıklarının bölgesel sıcaklığın artmasında, absorbe edilen enerjiyi yeryüzüne transfer ederek ve yerel bulutlanmayı azaltarak CO₂'den daha etkili bir rol oynadığı gösterilmiştir. Yu ve d. (2001) yirminci yüzyılın ikinci yarısı süresince Çin'in doğusundaki sıcaklık değişim modellerin kullanarak enerji bütçesini incelemiştir. Bu çalışmaların sonucunda, elementel karbon (black carbon) dan oluşan ve yüksek absorbe kapasitesi olan aerosollerin yerel sıcaklık üzerinde, özellikle doğu Çin'de yerel bulutlanma örtüsünün azaldığı kış aylarında, bir ısınma etkisi olduğunu gösterilmiştir. Ancak global ölçekte, tek absorpsiyon özelliği olan parçacık türünün elementel karbon olması ve bu tür antropojenik parçacıkların kütesinin global ölçekte sınırlı olması nedeniyle aerosollerin ışığı absorblamaktan ziyade saçma özelliklerinin etkin olduğu görüşü hakimdir.

Latha ve Badarinath (2004) elementel karbon aerosoller ve troposferik ozon arasındaki eğimin -3,5 olduğunu göstermiştir. Bu eğim de elementel karbon aerosol kütlelesel konsantrasyonundaki her 1 µg m⁻³ kadar bir artışın, yüzey ozonunda 3.5 µg m⁻³'lük bir düşüşe sebep olduğunu göstermektedir. Bu azalmanın sebebi aerosol parçacıklarının geniş yüzey alanlarına sahip olmaları ve bunun da özellikle ozon gibi küçük gaz karışımları için heterojen reaksiyonlara olanak sağlamasıdır. Eğer bir ozon molekülü karbon örneğinin aktif yüzeyine çarparsa, bu molekül bir oksijen molekülü ve bir de oksijen atomu oluşturmaktadır. Oluşan oksijen molekülü parçacıktan uzaklaşırken oksijen atomu yüzeyde tutulmaktadır. Parçacık yüzeyinde tutulan oksijen atomu daha sonra başka bir adsorbe olmuş oksijen atomu ile birleşip oksijen molekülünü oluşturmaktadır. Bu katalitik heterojen reaksiyonun atmosferde önemli miktarda ozon kaybına sebep olduğu düşünülmektedir.

Aerosoller heterojen prosesler vasıtasıyla, gaz fazı kimyasını da etkilemektedirler. Çok düşük sıcaklıklarda polar stratosferik bulutlarından nitrik asit ve suyu çekerek Antarktika atmosferinde ozon azalmasında sebep olduğu bilinmektedir (Murphy vd., 1998).

Ozon azalmasındaki kimyasal reaksiyonlar serisinin ilk kritik adımı;



Bu reaksiyon katalitik olarak aktif olan Cl oluşumuna sebep olmaktadır. Bu reaksiyon sadece düşük sıcaklıklarda polar stratosferik bulutların yüzeyinde veya bu bulutların içindeki parçacıklarda gerçekleşmektedir. Salınan aktif Cl O₃ ile aşağıdaki reaksiyonla birleşir ve O₃ azalmasına sebep olur;



Buna ek olarak, aşağıdaki reaksiyon stratosferik sülfirik asit parçacıkları üzerinde gerçekleşen proses ile katalitik olarak aktif olan NO_x (NO+NO₂)'ların daha az aktif olan HNO₃'e dönüştüğünü göstermektedir;



Bunlara ek olarak Tabor ve d. (1994) çalışmalarında NO₂'nin NO'ya indirgenmesini temiz elementel karbon yüzeylerinde göstermişlerdir. Lary ve d. (1997) katalitik ozon döngüsünü aşağıdaki şekilde olduğunu göstermişlerdir;



Toz gibi çapı 1.0 µm 'den daha büyük aerosol parçacıkların kompozisyonları atmosferdeki taşınımları sırasında değişmektedir. Bu süreç içerisinde büyük parçacıklar çökelmekte küçük parçacıklar ise atmosferde kalmaktadır. Küçük (ince) ve büyük (kaba) parçacıkların kompozisyonları farkı olduğundan bu mekanizma ile parçacıkların kompozisyonu değişiyor gibi görünmektedir. Sonuç olarak, dünyanın çok temiz yörelerindeki aerosoller birçok kaynaktan gelen malzemenin bir karışımıdır. Chester vd. (1993) Akdeniz bölgesinde parçacıkların üç ana küresel kaynaktan atmosfere salındığını öngörmüştür. Bunlar sırasıyla (a)toz, (b) antropojenik prosesler ve (c) denizdir.

Dünya'nın kurak ve yarı-kurak bölgelerinden ortaya çıkan toz parçacıkları küresel aerosol emisyonlarının %45'ini oluşturmaktadır. Sahra Çölü yıllık yaklaşık 300-700 megatonluk emisyonla toprak kaynaklı tozun en önemli kaynağıdır (Chiapello vd., 1997). Çöl aerosollerinin en önemli karakteristik özelliği uzun mesafelere taşınabilmeleridir. Bunlar deniz, okyanus veya herhangi bir su kaynağı üzerine çökdiklerinde buldukları ortamdaki biyokimyasal döngüyü etkilemektedirler. Bu gerçek Zhuang vd. (1992)'nin çalışmasında gösterilmiştir. Yazarlar bu çalışmada kurak bölgelerden gelen toprak parçacıklarının okyanuslardaki biyolojik aktiviteyi etkilediğini göstermişlerdir.

1.8. Parçacıkların atmosfer yoluyla uzun mesafeli taşınımı

Atmosferik aerosollerin atmosferde uzun mesafeli taşınabildikleri ve bu taşınım sonucu ulaştıkları bölgelerde toprağın ve suyun asitlenmesi, görüntü bozulması gibi etkilerinin olduğu ortaya çıkınca, Avrupa'da yer alan ülkelerin bir birine

zarar vermesinin önüne geçebilmek için uluslararası bazı düzenlemelerin yapılması gereği ortaya çıkmıştır.

Bu konuda yapılan ilk toplantı 1979 yılında Cenova'da olmuştur. Yapılan hükümetler düzeyindeki toplantılar sonucunda LRTAP Uzun Mesafeli Sınırlar ötesi Kirletici Taşınımı (Long Range Transboundary Air Pollution) sözleşmesi imzaya açılmıştır. Zaman içerisinde bu sözleşmeye 47 Avrupa Ülkesiyle birlikte ABD ve Kanada'da taraf olmuştur.

Bu sözleşmeyi imzalayan ülkeler asit oluşturan iyonların, uçucu organik bileşiklerin ve bazı metallerin değişik ülkelere atmosfere salındıktan sonra ulusal sınırları aşarak başka ülkelere ve hatta ABD ve Kuzey kutup bölgesinde çökme akılarına katkıda bulduklarını kabul etmişlerdir. Bu bölgelerde insanların, diğer canlıların ve tarihi yapıların başka ülkelerdeki kaynaklardan atmosfere salınan kirleticilerden etkilendiği kabul edilmiş ve bu konuda her ülke elinden gelen önlemleri almayı kabul etmiştir.

Daha sonra 1986 ve 1994 yıllarında söz konusu protokole eklenen sözleşmelerle Avrupa ülkelerindeki SO₂ emisyonları sınırlandırılmıştır. Bu eklerin devreye girmesi sonucu bu gün Avrupa'nın farklı yerlerinde SO₄²⁻ düzeylerinin 1980 yılı konsantrasyonlarına göre %70 kadar azaldığı gösterilmiştir. SO₂ protokolünü takiben 1990'lı yıllarda NO_x protokolü, VOC protokolü ve NH₃ protokolü de devreye girmiştir.

Literatürde uzun mesafelerde atmosferik kirleticilerin taşınması göstermek için çok sayıda çalışma yapılmıştır. Bunlardan bazı örnekler bu kısımda yer verilmiştir. Kindap ve ark. (2006) Doğu Avrupa ülkelerinden Türkiye'ye olan PM₁₀ taşınımını araştırmıştır. Yaptıkları yörünge analizi İstanbul'da gözlenen PM₁₀ kütlelerinin Doğu Avrupa ülkelerinden kuzeybatı rüzgarları ile İstanbul'dan üzerinden Türkiye'ye taşındığını göstermektedir. Ayrıca yapılan hassaslık analizi de Doğu Avrupa'dan Kuzey ve Batı Türkiye'ye aerosol taşınımının sürekli olduğunu göstermiştir. Çalışmalarının bir sonucu olarak Kuzey ya da Batı Türkiye'de hava kalitesi değerlendirilirken Avrupa'nın katkısının göz ardı edilmemesi olmuştur.

Atmosferdeki toprak parçacıkları da uzak mesafelere taşınmaktadır. Bu şekilde bir taşınım ile parçacıkların atmosferde uzun süreler kalmaları, daha önceki bölümlerde de tartışıldığı gibi enerji dengesini doğrudan veya dolaylı olarak etkilemektedir. Havadaki toz parçacıkları da okyanusta birincil verimliliği arttırabilen demir (Fe), fosfor gibi besin değeri olan elementleri içerir. Bu tür mikro-besin maddelerinin uzun mesafeli taşınımı ile çok farklı bölgelerdeki ekosistem bileşenleri etkilenmektedir.

Toprak ve deniz tuzu parçacıkları hem sülfat bileşiklerin üretimi için yüzey olarak davranabilmekte, hem de içerdikleri besin maddeleri ve toksik bileşenler ile ulaştıkları noktalarda hava kalitesini olumsuz bir şekilde etkileyebilmektedir. Han, et al., (2007) PM_{2.5} parçacıklarının büyük oranda sülfattan oluştuğunu göstermiştir.

Akdeniz bölgesi atmosferi Orta Avrupa'dan gelen kirleticilerin alıcı ortamı konumundadır. Ganor ve ark. (2000), Luria et al. (1996), Sciare ve ark. (2003), Tsitouridou ve ark. (2003), Zerefos ve ark. (2000) ve Saliba, ve ark. (2007) tüm Avrupa kaynaklı hava kütlelerinin kükürt dioksit (SO₂) ile Akdeniz atmosferini kirlettiğini göstermişlerdir. Charron ve ark. (2007) ve Abdalmogith ve ark. (2006) İngiltere'de atmosfere salınan ikincil inorganik aerosollere Avrupa'da rastlandığını göstermiştir.

Erel ve ark. (2006) Akdeniz bölgesinin sadece Avrupa'dan değil, aynı zamanda Kuzey Afrika'dan da hava kütlelerini aldığını göstermiştir. Ayrıca, PTFE filtre üzerinde toplanan aerosol örneklerinin analizi örneklerin Pb, Cu, Zn ve Ni yönünden zenginleşmiş olduğunu göstermiştir ancak Na, Ca, Mg, Mn, Sr, U ve Th gibi elementlerin normal konsantrasyonlarda olduğu gözlenmiştir. Bu çalışmada insan kaynaklı elementlerin Kuzey Afrika'dan kirlilik taşıyan hava kütlelerince getirdiğini göstermektedir.

Tamamura ve ark. (2007) Japonya'da yürüttükleri çalışmada bir kırsal bölgede 1 yıl süresince aerosol parçacıkları toplamış ve toplanan örneklerde PAH (polisiklik aromatik hidrokarbon) analizi yapmışlardır. Ölçülen yüksek PAH konsantrasyonları geri yörünge analizi ile belirlenmeye çalışılmıştır. PAHın sanayileşmiş bölgelerden kırsal araziye toz parçacıkları ile taşındığı sonucuna varılmıştır. PAH'ların uzun menzilli taşınması Sehili ve Lämmel (2007)'in çok kompartımanlı modelinde de gösterilmiştir. Yazarlar da bir çok çalışmada olduğu gibi, Rusya ve Avrupa'dan yayılan PAH'ların kuzey kutup bölgelerine taşındığını göstermişlerdir.

Biyoaerosoller de uzun mesafeler boyunca taşınabilirler. Skjoth ve ark. (2007) Danimarka'ya hemen hemen her yıl Polonya ve Almanya'dan önemli miktarda alerjik şikayetlere sebep olan polenlerin taşındığını göstermiştir.

1.9 Hava kalitesi standartları

İlk kaydedilen hava kirliliği düzenlemesi Kömür tüketimi azaltmak için 14. yüzyılda İngiltere'de kraliyet kararname ile yapılmıştır. Bu dönemde insanlar siyah dumanlar çıkan bacalardan, düşük görüş seviyesinden, kıyafetlerine sinen siyah dumanlardan ve buna bağlı solunum rahatsızlıklarından şikayet

etmekteydi. Hava kirliliğinin sebebini belirleyebilecek cihazlar olmadığından, o dönemde yalnızca gözlem yapmak söz konusu olmuştur. Şikâyetlerin nedenin kükürt dioksit olduğu çok sonra anlaşılmıştır (Chow, 1995).

Son yıllarda yüksek teknoloji ürünü cihazlar ile, atmosferdeki kirleticileri ultra eser düzeylerde ölçebilmek mümkün hale geldiğinden insan sağlığını etkileyebilecek kirletici konsantrasyonlarının neler olduğunu daha doğru bir şekilde belirlemek ve belirlenen sağlık riski sınırlarını yönetmeliklere yansıtmak mümkün olabilmektedir. Kirleticilerin mevcut teknoloji ile ölçülebilen düzeyleri düştükçe, hava kalitesi standartlarının da gittikçe düşük değerlere doğru değiştiği de bir gerçektir.

Farklı ülkelerde açık havada PM₁₀ ve PM_{2.5} konsantrasyonları ile ilgili düzenlemeler yapılmıştır. Son yıllarda AB ve USEPA gibi merkezi kuruluşların oluşturduğu, Dünya Sağlık Örgütü'nce önerilen sınır değerler bütün dünyada kullanılabilir hale gelmiştir. Avrupa tarafından benimsenen değerler, ülkemiz açısından önemlidir. Çünkü Avrupa Birliği uyum çalışmaları çerçevesinde AB direktifleri ülkemizde de aynen uygulanır hale gelecektir.

1999/30/EC nolu Hava Kalitesi Direktifi PM₁₀ için 24 saatlik aşılması gereken sınır değeri 50 µg m⁻³ olarak belirlemiştir. Bu günlük ortalama değer en fazla yılda 35 kez aşılabileceği ifade edilmiştir. Bu güne kadar kullanılan bu değer direktifte 2010 yılında yapılan bir değişiklikle yılda 7'ye düşürülmüştür.

Aynı direktif çerçevesinde, 2005 ve 2010 yılları için yıllık ortalama sınır değeri 40 ve 20 µg m⁻³ olarak belirlenmiştir. Son olarak, Avrupa'da halen PM_{2.5} için 35 µg m⁻³ olan sınır değerinin 12-20 µg m⁻³ aralığına çekilmesi ve yıllık en fazla 35 aşımın olması önerilmiştir (Querol vd., 2004).

PM₁₀ için ABD Çevre Koruma Ajansı (USEPA) tarafından belirlenen Ulusal Hava Kalitesi Standardı (NAAQS) ortam konsantrasyonlarının 24 saatlik ortalamasının günlük 50 µg m⁻³ olmasını ve bu değer yılda 3'den fazla aşılmamasını gerektirmektedir (EPA/600/P-95/001aF, 1996).

İngiltere'de, PM₁₀ için 24 saatlik ortalama 50 µg m⁻³'tür. Finlandiya için bu değer 70 µg m⁻³'tür. Almanya PM₁₀ ve PM_{2.5} standartlarının yanı sıra PM₁ için de standart düzenlemiştir. Japonya halk sağlığını korumak için PM₁₀ standardını ilk olarak 1973 yılında uygulamaya koymuştur. Bugün PM₁₀ için mevcut standart 24 saatlik ortalama için 200 µg m⁻³, 1 saat için ise 100 µg m⁻³'tür (Sloss ve Smith, 2000).

Türkiye Hava Kirliliği ve Kalitesinin Kontrolü Yönetmeliğinde, kısa ve uzun vadeli sınır değerleri genel ve endüstriyel kaynaklar için ayrı ayrı tanımlanmıştır. PM₁₀

için kısa vadeli değerler sırasıyla genel ve sanayi bölgeleri için 300 ve 400 $\mu\text{g m}^{-3}$ olarak belirlenmiştir. Öte yandan, uzun vadeli PM_{10} sınır değerleri sanayi bölgelerinde 200 $\mu\text{g m}^{-3}$ genel kaynaklar için ise 150 $\mu\text{g m}^{-3}$ olarak belirlenmiştir (Türk Hava Kalitesi ve Kontrolü Yönetmeliği, 2004).

1.10 Aerosollerin Modellenmesi

Atmosferik modeller fiziksel ve matematiksel modeller olmak üzere ikiye ayrılmaktadır. Fiziksel modeller küçük ölçekli uygulamalarla sınırlıdır; bu nedenle daha büyük atmosferik ölçekler için matematiksel modeller tercih edilmektedir (Seinfeld ve Pandis, 2006). Matematiksel modeller de kendi içinde kimyasal taşıma modelleri (kaynak modellenmesi) ve alıcı ortam (reseptör modellenmesi) olmak üzere ikiye ayrılmaktadır. Kimyasal taşıma modelleri (CTMs) topografya, kaynak emisyonları ve meteoroloji bilgileri sağlandığında atmosferde olan taşımayı simüle ederek reseptördeki konsantrasyonlarını hesaplayan nümerik modellerdir. Bu tür modeller literatürde çok yaygın olarak kullanılmaktadır (örneğin; Christoudias, and Lelieveld, 2013; Garbe and Vihhrev, 2012; Liu ve d., 2011; Morbidelli ve d., 2011; Zhang ve d., 2011).

Diğer taraftan reseptör modellemelerinde, emisyon, topografya veya meteoroloji bilgilerinin kullanımına ihtiyaç duyulmamaktadır. Reseptör modellemesinde, reseptörde ölçülen kimyasal parametreler kaynakların doğal izleyicileri olarak kullanılmakta ve bu parmak izleri istatistiksel olarak çözümlenerek kaynaklar ve kaynakların payları belirlenmektedir. Birbirlerinin eksikliklerini gidermesi açısından hava kalitesi belirleme çalışmalarında iki tip modelin de kullanılması önerilmektedir (Watson ve d., 2002).

Bu çalışmada reseptör modellemesinin değişik türleri kullanıldığından bu bölümde nümerik dağılım modelleri tartışılmayacaktır. Reseptör modellemesi nümerik modellere alternatif olarak 1980'li yıllarda USEPA geliştirilmiş bir yaklaşımdır. Nümerik modeller, yer seviyesindeki kirletici konsantrasyonlarını kaynak bilgilerinden hareketle hesapladıklarından kaynak bazlı yöntemler olarak tanımlanmaktadır. Reseptör modelleri ise prensip olarak reseptörde ölçülen kirletici konsantrasyonlarına uygulanan istatistik araçlardan oluştuğundan, reseptör bazlı bir modelleme yöntemi olarak tanımlanmaktadır. Yöntem tamamen ölçülmüş olan kirletici konsantrasyonlarına istatistik araçların uygulanmasına dayandığından, istatistik bir model olarak düşünülebilir. Doğal olarak kullanılan istatistik aracın türüne bağlı olarak çok değişik türde reseptör modeli tanımlamak mümkündür. Bunlardan bazıları, kimyasal kütle dengesi (chemical mass balance – CMB), Zenginleşme faktörleri (EF_c) (Zielinski ve Falkowska, 1999), faktör analizi (FA) (Sun ve D., 2013), çoklu lineer regrasyon (MLR) (Chan ve d., 1999), temel bileşen analizi (PCA) (Huang ve d., 2013; Mayor

ve d., 2011), küme analizi (cluster analzi - CA) (Wagner ve d., 2012; Zibert ve Praznikar, 2012), multilinear engine (Tuomi ve d., 2003), nöral ağlar (Nejadkoorki ve d., 2012), ve Fourier dönüşümü zaman serileri (Yassine ve d., 2012) ve pozitif matris faktörizasyonu (PMF) (Osto ve d., 2013) bu günlerde en yaygın olarak kullanılmakta olan reseptör modellemesi teknikleridir. Yukarıda sıralanan reseptör modelleri arasında kimyasal kütle dengesi, faktör analizi ve PMF, diğer tekniklere nazaran çok daha sık kullanıldığından, bunlara ayrı bir yer ayırmak gerekmektedir.

Bu tekniklerden CMB, diğerlerine nazaran farklı bir yöntemdir. CMB'de herhangi bir reseptör noktasında ölçülen element konsantrasyonları aynı elementlerin değişik kaynaklardaki emisyonlarının lineer kombinasyonu olarak düşünülmekte ve uygulanan bir "least square fit" ile ölçülen konsantrasyonlar bileşenlerine (değişik kaynaklardan gelen miktarlara) ayrılmaktadır. CMB tekniğinin diğer uygulanan reseptör modellemesi tekniklerine nazaran bazı avantaj ve dezavantajları vardır. En önemli avantajı her bir örneğe ayrı ayrı uygulanmasıdır. Dolayısı ile CMB uygulamak için büyük veri setlerine gerek olmamaktadır. Buna karşılık en önemli dezavantajı, kaynak profillerine gerek duymasıdır. Kaynak profilleri, her kaynaktan atılan parçacıkların elementel kompozisyonudur. Yapılan çalışmalarda her kaynaktaki emisyonların kompozisyonlarının ölçülmesi pek mümkün olmadığından, CMB tekniğinin profillere gereksinimi bir dezavantaj olarak ortaya çıkmaktadır. Söz konusu dezavantajı aşmak için alınan en başarılı önlem, USEPA tarafından "SPECIATE" veri tabanının oluşturulması olmuştur (Subramoney ve d., 2013). SPECIATE, pek çok sayıda kaynak profilini içeren bir veri tabanıdır. Veri tabanında yüzlerce değişik endüstri türü için profiller mevcuttur. SPECIATE uçucu organik bileşikleri (UOB) ve eser elementleri içeren iki farklı veri tabanından oluşmaktadır (Subramoney ve d., 2013).

Diğer reseptör modellemesi yöntemleri olan FA, PCA, PMF, MLR gibi yöntemler kullanılan parametrelerin arasındaki varyans ilişkisine dayanmaktadır (Watson ve ark., 2002). FA ve CMB en eski reseptör modelleridir ve 80'lerin başlarından beri kullanılmaktadır (Gordon, 1982). PMF ise diğer reseptör modellerine nazaran daha yeni bir yöntemdir (Paatero ve Tapper, 1994). PMF Yakın zamanda geliştirilmiş olmasına rağmen, FA, PCA ya da CMB gibi geleneksel yöntemlere karşı sağladığı avantajlardan ötürü geniş bir kullanım alanı bulmuştur (Kim ve ark., 2003, Karanasiou ve ark., 2009, Liu ve ark., 2003, Reff ve ark., 2007, Viana ve ark., 2008a). PMF in varyans analizine dayanan diğer reseptör modellerine karşı en büyük avantajı kantitatif sonuç vermesi ve her verideki belirsizliğin teker teker değerlendirilmesidir. Bu son ifade geçekte çok önemli bir avantajı işaret etmektedir. Atmosferik parçacıklardaki element veya

organik bileşiklerin ölçülmesi sonucu oluşan veri setleri pek çok boşluklar içermektedir. Bu boşlukların bir bölümü, kirletici konsantrasyonlarının tayin sınırlarının altında olmasından oluşur. Diğer bir bölümü o parametrenin bazı örneklerde ölçülmemiş olması, ölçülen değerlerin kör örnek değerlerinin altında olması gibi farklı nedenlerden kaynaklanmaktadır. FA, PCA gibi çok değişkenli varyans analizi yöntemlerinde kullanılan istatistik yöntemler veri setinde boşluk kabul etmemektedir. O nedenle eğer ölçülmemiş değerler veya tayin sınırı altında değerler varsa, ki her veri setinde çokça bulunmaktadır, ya o örnek uygulanan analize dahil edilmemektedir ya da boşluk için bir yaklaştırma tekniği kullanılarak veri üretilmektedir (Wang ve d., 2012; Yendra ve d., 2013). Bu yöntemlerin he ikisi de istenen şeyler değildir. Boşluk olan verileri atmaya kalktığınızda bazen geriye FA veya PCA uygulamaya yetecek veri kalmamaktadır. Ayrıca o rakamların büyük bir emek ve para harcanarak oluşturulduğu da göz önüne alınırsa, verilerin atılması iyi bir yaklaşım gibi görünmemektedir. Bu gün pek çok veri yaklaştırma yöntemi olsa da (Yendra ve d., 2013; Wang ve d., 2012; Palmer ve Royall, 2010) üretilen hiç bir verinin gerçek bir veri olmadığı unutulmamalıdır. Bu nedenlerle veri setinde boşlukları daha iyi idare eden PMF oldukça önemli bir avantaja sahiptir. PMF uygulamasında verilerdeki boşluklara (tayin sınırı)/2 gibi bir değer girilmekte, bu verinin belirsizliği ise çok yüksek tutulmaktadır. Böyle olunca, model optimizasyonu sırasında bu verilerin optimizasyona katkıları, belirsizlikleri yüksek olduğundan, en az olmakta, ancak bütün bir örneğin atılmasına da gerek kalmamaktadır. PMF tekniğinin diğer bir avantajı da kantitatif sonuçlar vermesidir. FA ve PCA gibi çok değişkenli varyans analizlerinde konsantrasyon verileri ilk adımda normalize edildiğinden konsantrasyon bilgileri kaybolmakta ve sonuçlar ancak kalitatif olabilmektedir.

Reseptör modellemesinin değişik bir türü “geri yörünge istatistiği” olarak bilinen bir yöntemdir (backtrajectory statistics). Reseptör modellemesi bir aerosol kütlelerini oluşturan parçacık türlerinin ne olduğu konusunda çok kapsamlı bilgi verebilmesine rağmen bu kaynakların nerelerde olduğunu belirlemede çok işe yaramamaktadır. Böyle bir bilgiyi elde etmek için konsantrasyon bilgilerinin geri yörünge bilgileri ile birleştirilmesi gereklidir. Bu işlemin yapılarak kaynak yerlerinin yaklaşımı genel olarak geri yörünge istatistiği olarak bilinmektedir. Geri yörünge istatistiğinin bir türü olan “potansiyel katkı fonksiyonu” (Potential source contribution function (PSCF) literatürde yaygın olarak kullanılmaktadır (Lee ve Hopke, 2006, Zhao ve Hopke, 2006, Xie ve ark., 1999, Gildemeister ve ark., 2007).

1.11. Doğu Akdeniz bölgesi aerosollerinin kompozisyonu

Doğu Akdeniz'de gerçekleştirilen çalışmalar, bu bölgedeki aerosollerin kimyasal kompozisyonunu belirleyen şu üç önemli tür kaynağa işaret etmektedir. Bu üç kaynak türü: (i) bölgenin kuzey ve kuzeybatısında, diğer bir deyişle Avrupa'da yer alan antropojenik kaynakları; (ii) Kuzey Afrika'da bulunan toz (toprak) kaynağını ve (iii) Akdeniz denizinin kendisini (Gullu ve d., 1998; Tuncer ve d., 2001; Kouvarakis ve d., 2002; Ganor ve d., 2000) içermektedir. Antropojenik kaynaklar, özellikle Avrupa'da bulunanlar, diğer kaynaklara göre daha belirgindir. Kouvarakis vd. (2002), Doğu Akdeniz havzasına yılın en az %70'inde Merkezi ve Doğu Avrupa'daki insan faaliyetlerinden etkilenen hava kütlelerinin geldiğini tespit etmiştir. Luria vd. (1996) partikül halindeki sülfatın yıllık ortalamasının, bu bölge için bir küresel model aracılığıyla hesaplanan miktarın iki katı düzeyinde olduğunu ve ABD'nin en sanayileşmiş bölgeleri için kaydedilen miktarlara yakın düzeyde ve bazı zamanlarda daha yüksek düzeyde olduğunu ortaya çıkarmıştır. Benzer bir saptama Hacısalihoğlu vd. (1992) tarafından da yapılmıştır.

Doğu Akdeniz bölgesinde Kuzey'den gelen antropojenik kökenli emisyonların, bu bölgede ölçülen kirlenici konsantrasyonlarının önemli bir bölümünü oluşturduğu pek çok çalışmada gösterilmiştir (Lelieveld vd., 2002; Güllü vd., 1998; 2005). Bu konuda kantitatif veriler sınırlı olmakla Doğu Akdeniz bölgesinde ölçülen kirlenici düzeylerinin %60 - %80 kadarının kuzeydeki endüstriyel bölgelerden bölgeye ulaştığı öne sürülmektedir (Lelieveld vd., 2002). Doğu Akdeniz bölgesinde ölçülen kirlenici konsantrasyonlarının kaynakları ile ilgili olarak yapılan çalışmalar daha çok Balkan ülkelerini, Ukrayna'yı ve Rusya'yı işaret etmektedir (Hacısalihoğlu vd., 1992; Güllü vd., 1998; 2005; Luria vd., 1996)

Kirlenicilerin Avrupa'nın değişik bölgelerinden Doğu Akdeniz'e hangi mekanizmalar ve hangi yollarla taşındığı tam olarak bilinmemekle birlikte, aşağıdaki üç taşınım mekanizmasının varlığı öngörülmüştür: (i) Kuzeybatı Avrupa'da ve batı Akdeniz üzerinden; (ii) Doğu Avrupa'dan gelip, Türkiye'nin üzerinden geçerek; (iii) Kuzey Afrika ve Arap karalarının içlerinden gelen güneybatı ve güneydoğu yönündeki hava akımlarından (Herut vd., 2001). İlk iki mekanizma kirlenicilerin Doğu ve Batı Avrupa'dan Doğu Akdeniz bölgesine taşınmasına yöneliktir. Üçüncü mekanizma ise Güneyden taşınan kirlenicileri içermektedir. Güneyden Doğu Akdeniz bölgesine gelen hava kütlelerinin bazen yüksek kirlenici konsantrasyonları içermesine 1980'lerden başlayarak pek çok çalışmada değinilmiştir (Rodríguez vd., 2011; Pey vd., 2010; Güllü vd., 2005). Bu beklenen bir şey değildir. Afrika'da, batıdaki kaynak bölgeleri ile karşılaştırıldığında, önemli sayılabilecek antropojenik kaynak mevcut değildir. Böylelikle, güneyden gelen hava kütlelerinde yüksek kirlenici düzeyleri

gözlenmesi bazı araştırmacılar tarafından hava kütlelerinin Afrikadaki şehirlerin üzerinden geçerken kirletici alması ile açıklanırken (Mamane vd., 1980), bazı araştırmacılar da güneyden gelen kirleticilerin gerçekte Avrupa'dan bölgeye taşınan kirleticiler olduğu ve özel bir salınım mekanizmasıyla Afrika'dan tekrar Akdeniz bölgesine döndüğü görüşünü savunmaktadır (Lazardis vd., 2006)

Akdeniz bölgesi üzerinde, kirletici taşınımının ve dönüşümünün (transformasyon) boyutlarını ve bu mekanizma içerisindeki yolları bulmak için büyük çaplı çeşitli araştırma projeleri yürütülmüştür. Bu çalışmaların bazılarında modelleme araçları kullanılmıştır ve modellerden elde edilen çıktılar saha araştırmaları ile doğrulanmış ve geliştirilmiştir (Kallos ve d., 2007). Akdeniz bölgesine ilişkin kirletici taşınımı ve dönüşümü mekanizmasının içerisinde şu ana kadar tanımlanmış olan yollar ve boyutları Şekil 1.9'da gösterilmiştir.

Şekil 1.9'da yer alan mavi, gri ve yeşile renklerle gösterilen oklar antropojenik kaynaklı kirleticilerin Akdeniz bölgesi üzerindeki taşınım yolunu göstermektedir. Gri oklar üst tabaka taşınımını gösterirken, yeşile ve mavi renklerdeki oklar ise troposferin alt tabakalarındaki taşınımı göstermektedir. Çöl tozunun aşağı troposferdeki taşınımı kırmızı kahverengi oklarla gösterilmiştir. Şekil 1.9'dan şu sonuçlara varılmaktadır:

- Akdeniz, Kuzey Afrika ve Orta Doğu, güney Avrupa'dan tüm mevsimler boyunca ve özellikle de yazın hava kütleleri almaktadır
- Uzun mesafeli bileşenin de önemli olmasına rağmen, kıyı kesimlerindeki hava kalitesini tanımlayan temel unsur termal döngülerdir (Şekil 1.9'da M1, M2 ve M3)
- Kıyı bölgelerinden salınan antropojenik kirleticiler, serbest troposfere doğru (gün içerisinde) iletilmekte ve deniz sınır tabakasına (marine boundary layer, MBL) doğru ilerletilmektedir ve en sonunda yer yüzeyine geri dönene kadar burada tutularak uzun mesafeler kat ederler.
- Akdeniz denizinin üstündeki taşınım, antropojenik kirleticileri serbest troposfere enjekte eden kaynak olan MBL içerisinde gerçekleşmektedir. Adaların baca işlevine sahip olduğu ve serbest troposfere kirletici salımında rol aldığı düşünülmektedir.
- Karadeniz ve Doğu Akdeniz'de bulunan bazı bölgeler, kirleticilerin, devam eden yatay iletimlerinden (adveksiyon) önce bir süre boyunca tutulduğu ve biriktiği geçici rezervuarlar olarak işlev görmektedir.
- Doğu Akdeniz'de yatay taşınım baskın iken, Şekil 1.9'da M1 ile gösterilen

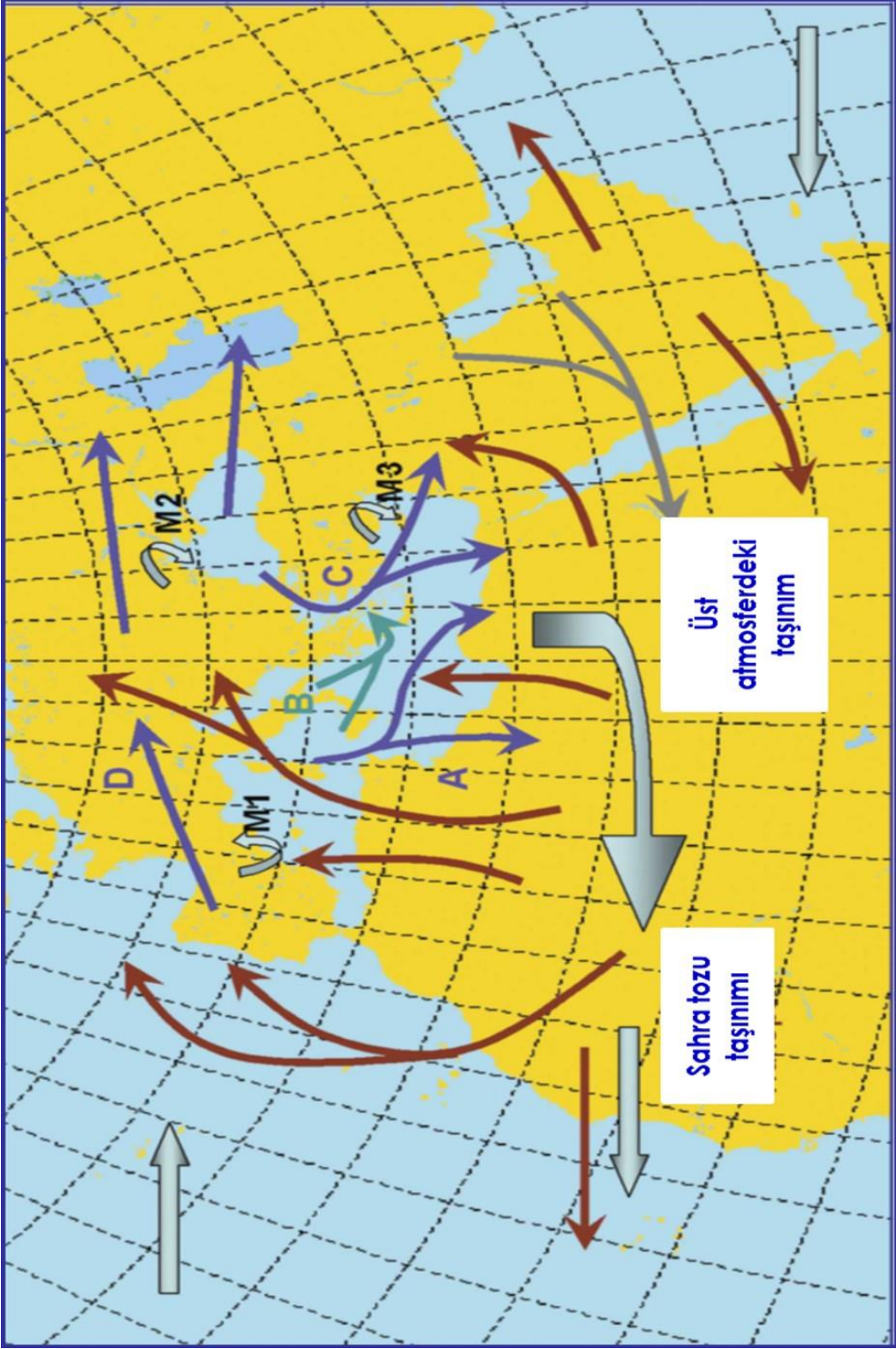
dikey taşınım ise, batı tarafında önemlidir ve atmosferde birden çok katmanın oluşumuna yol açtığı düşünülmektedir.

- Tropik bölgelerdeki hava karışım alanı (intertropical convergence zone, ITCZ), yaz döneminde, Afrika'nın üstünde, Akdeniz kıyı şeridinin güneyinde ve güney Libya ile Mısır'ın üstünde bulunmaktadır. Kirleticilerin yukarıya doğru kitlesel taşınımının gerçekleşebilmesi için, Avrupa'dan hava kütlelerinin ITCZ'ye 4-6 gün içerisinde ulaşması gereklidir.

Parçacıkların atmosferden uzaklaşması bir çok parametre ile birlikte , kimyasal kompozisyonlarına da bağlıdır. Daha önce de belirtildiği gibi, atmosferde aerosollere bağlı olarak bulunan eser element kaynakları, yeryüzünün aşınması (toprak kaynağı), çoğunluğu yüksek sıcaklık içeren antropojenik prosesler , ve deniz tuzu oluşumudur. Bunlara ek olarak; volkanlar da atmosfere eser metal salmaktadır.

Herut ve d. (2001) Cd, Cu, Pb ve Zn gibi elementler antropojenik faaliyetlerden kaynaklanırken Fe, Al, Mn ve Cr gibi elementlerin doğal kaynaklara sahip olduğunu bulmuştur. Aynı çalışmada, toprak kaynağı türevli elementlerin derişimlerinin, Doğu Akdeniz'de, Batı Akdeniz'de gözlemlenen miktarlardan 2 – 3 kat fazla olduğu bulunmuştur. Bunlara ilaveten, antropojenik faaliyetlerden kaynaklanan elementlerin derişimlerinin, Avrupa üzerinde gözlemlenen derişimlerden daha az olduğu bildirilmiştir. Bu bulgu, Avrupa'dan gelen hava kütlelerinin, Kuzey Afrika'dan ve Arap Yarımadası'ndan Doğu Akdeniz'e gelen hava kütleleri tarafından seyreltilmesi ile açıklanabilir.

Migon ve Caccia (1990) tarafından yapılan bir çalışmada Batı Akdeniz atmosferinde aerosollere antropojenik Cd katkısının doğal Cd düzeylerinden yaklaşık 100 kat fazla olduğunu göstermişlerdir. Yazarlar aynı zamanda Akdeniz atmosferinde ölçülen Cu konsantrasyonunun, lokal kaynağı olmadığını ve yalnızca uzun mesafeli taşınım ile açıklanabileceğini öngörmüştür.



Şekil 1.9 Doğu Akdeniz bölgesindeki tanımlanmış taşınım mekanizmaları

Akdeniz kuzey kıyısında, atmosfer için antropojenik kaynaklı kirleticileri sağlayan sanayi bölgeleri ile, güney ve doğu kıyılarında ise, toprak kaynaklı kirleticileri sağlayan kurak alanlar ve çöl alanları ile sınırlandığından atmosferik taşınım mekanizmalarının ve atmosfer deniz etkileşiminin araştırılması için önemli bir bölgedir. Ayrıca Akdeniz'de etkin olan gerek antropojenik ve gerekse doğal kaynaklı parçacıkların girdilerinde mevsimsel farklılıklara yol açmaktadır.

Kocak vd. (2004) Levantin Havzası üzerindeki aerosol kompozisyonunu araştırmıştır. Sahra tozu olayları sırasında Levantin Havzası üzerinde Al, Fe ve Mn'nin artmış derişimlerini tespit etmişlerdir. Ayrıca, Cu için Cr'den daha düşük değerlerde olmakla beraber, Cr ve Cu için de yüksek derişimler bildirmişlerdir. Cr ve Cu'nun bu yüksek derişimini yerel kaynaklardan doğan kirliliğe bağlamışlardır.

Kocak ve d. (2005) bazı antropojenik elementlerin Akdeniz atmosferden girdisinin, nehirlerden gelen girdilerine nazaran önemli ölçüde yüksek olduğunu ortaya çıkarmıştır. Örnek olarak; Pb, Cd ve Cu için nehir girdisi sırasıyla 0.2, 0.048 ve 5.7 ton/yıl iken atmosferden en düşük girdi değerleri ise 2120, 3.0 ve 450 ton/yıl miktarındadır.

Kubilay ve Saydam (1995) ise Akdeniz bölgesinin bütünü üzerindeki atmosferik partikül madde derişimlerinde önemli bir farklılık olmadığını bulmuştur. Ayrıca, hava kütleleri kuzeyden değil Kuzey Afrika'dan geldiğinde, toprak kaynaklı elementlerin (Al ve Fe) derişimlerinin on kat yüksek olduğunu ve antropojenik elementlerin (Cd ve Zn) derişimlerinin daha düşük olduğunu ortaya koymuşlardır. Doğu Akdeniz, batı tarafındaki karşılığında çok daha yüksek düzeyde çöl partiküllerinin etkisi altındadır.

Atmosferi su kütlelerindeki eser elementlerin kaynağı olduğu gibi, okyanuslar da atmosferin kimyasal kompozisyonunu etkilemektedir. Biyojenik kaynaklar gerek Akdeniz ve gerekse dünyanın diğer bölgelerinde, bazı elementler için önemli bir kaynaktır. Bu tür elementlerden bir tanesi Se'dur. Okyanuslardan salınan biyojenik Se miktarının, 5-8 10^9 g Se yıl⁻¹ olduğu ve bunun atmosferdeki Se miktarının %60'ını temsil edebileceği gösterilmiştir. (Amouroux ve Donard, 1996). Ancak Akdeniz'de önemli bir biyojenik SE kaynağının varlığı bu güne kadar gösterilememiştir.

Bu konuda üzerinde en çok çalışılan parametre SO_4^{2-} iyonudur. Global ölçekte atmosferde bulunan SO_4^{2-} 'in yarısının denizlerdeki biyojenik aktiviteden kaynaklandığı bilindiğinden (Andrea, 1985), Doğu Akdeniz atmosferinde ölçülen SO_4^{2-} konsantrasyonunun ne kadarının biyojenik olduğu konusu ilgi çekmiştir. Yapılan çalışmalar Akdeniz'de ölçülen yüksek SO_4^{2-}

konsantrasyonlarına biyojenik kaynakların katkısının %20'nin altında olduğunu göstermiştir. SO_4^{2-} 'in %20 kadarı deniz tuzundan kaynaklanmaktadır. Geri kalan %60 ise antropojenik kökenlidir (Kouvarakis vd., 2002; Kubilay vd., 2002; Ganor ve Foner, 2000)

Mateu ve d. (1996), Mayorka, İspanya üzerinde bulunan atmosfer aerosollerindeki metallerin parçacık boyutu dağılımı ve uzun mesafeli taşınımına ilişkin bir çalışma yürütmüştür. Antropojenik faaliyetlerden kaynaklı metallerin $0.5 \mu m$ 'den daha düşük çaplı ince (fine) partiküller ile ilişkili olduğu sonucuna varmışlardır. Bunun tersine, doğal metaller ağırlıklı olarak kaba (coarse) partiküllerde bulunmaktadır. Ayrıca kuzey İspanya, güney ve orta Fransa ve Sardinya'dan aerosollerin antropojenik kaynaklı metallerin (Cd, Zn, Ni) yüksek derişimlerini içerdiğini, güney İspanya ve kuzey Afrika'dan aerosollerin ise doğal kaynaklı metalleri (Ca, Mg, Mn, Fe, K, Cr) yüksek düzeyde içerdiğini göstermişlerdir.

Yatin ve d. (2000) Ankara, Türkiye'de toplanan aerosol örneklerinin atmosferik eser element kompozisyonunu incelemiştir. Yazarlar kent atmosferinde ölçülen antropojenik elementlerin konsantrasyonlarında gözlenen değişimin, hava kalitesini geliştirmeye yönelik olarak uygulamaya konulan düzenlemeler ile tutarlı olduğunu göstermiştir. Buna ilaveten, toprak kaynaklı elementlerin derişimlerinde bir azalma bildirmiş ve toprak kaynaklı elementlerin bu davranışını toprak örtüsü ile ilgili değişime yol açan şehirleşme artışı ile açıklamışlardır.

İlginç bir şekilde yukarıdaki çalışmadan 20 yıl sonra Akdeniz bölgesinde toprak kökenli elementlerin konsantrasyonlarında uzun dönemli bir düşüşün söz konusu olduğu değişik çalışmalarda ortaya konmuştur ((Koukouli vd., 2010; Papadimas vd., 2008; Ozturk vd., 2012). Gözlenen azalmanın nedenleri tam olarak bilinmese de, yıllık yağış bütçesini etkilemek gibi çok önemli sonuçlarının olduğu bir gerçektir.

Gerek Doğu Akdeniz ve gerekse Batı Akdeniz atmosferinde aerosol ve yağmur suyunun iyonik kompozisyonunu belirlemeye yönelik çalışmalar, eser elementlere nazaran çok daha fazladır. Kükürt ve azot içeren parçacıklar çeşitli antropojenik ve doğal kaynaklardan atmosfere salınmaktadır. Zaman içerisinde bu emisyonlar karışmakta, taşınmakta, tepkimelere girmekte ve sonunda havadan dünya yüzeyine geri dönmektedir.

Atmosferdeki SO_4^{2-} ve NO_3^- iyonları tartışılırken, bunların öncül (precursor) gazlarının da tartışmaya dahil edilmesi gerekir. Atmosferdeki en önemli öncül gazlar, SO_4^{2-} iyonunu oluşturan SO_2 ile NO_3^- iyonunu oluşturan NO_2 'dir. Esasında

NO₂'in kendisi de ikincil bir bileşiktir. Azot gazları atmosfere NO olarak atılmakta ve daha sonra atmosferde oksitlenerek NO₂'yi oluşturmaktadır. Kükürtdioksit (SO₂); atmosferde hidroksil radikalleri ile tepkimeye girmek suretiyle, daha sonra su buharı ile hızlı bir tepkimeye girerek sülfürik asidi üretecek olan SO₃'ü oluşturmaktadır. SO₂'nin gaz fazı reaksiyonu ile SO₄²⁻ iyonu oluşturması oldukça yavaş bir prosestir. Bunun aksine SO₂'nin likit fazda, diğer bir deyişle, bulut damlalarında, H₂O₂ veya O₃ tarafından oksitlenerek SO₄²⁻ oluşturması çok daha hızlı bir şekilde gerçekleşmektedir. SO₂ meteorolojik koşullara ve yükseltgeyici maddelerin bulunabilirliğine bağlı olarak, tamamen tüketilmeksizin atmosferde yüzlerce kilometre taşınabilmektedir. Benzer şekilde, NO ve NO₂; atmosferde taşınmakta, kuru çökelmeye uğramakta ve/veya tepkimeye girerek nitrik asit (HNO₃) üretmektedir. Atmosferdeki nitrik asit NO_x (NO+NO₂) için başlıca yutak ve ayrıca asit çökmesine katkıda bulunan başlıca maddedir (Johnson ve d., 1994). Nitrik asit ayrıca, görünürlük bozulmasına yol açan NH₄NO₃ parçacıklarını oluşturduğundan, yağmur suyunun asitliğine katkıda bulunduğundan da önemlidir. (Appel vd., 1988).

Sülfat iyonunun veya SO₂ nin antropojenik kaynakları iyi bilinmektedir. Sülfatın doğal kaynağı ise volkanlardan salınan SO₂'in ve deniz ortamında biyogenik faaliyetler ile üretilen dimetilsülfitin (DMS) yükseltgenmesidir. NO_x'un başlıca doğal kaynakları ise toprak terlemesi (transpirasyon) (Roelle ve d., 2001) ve şimşeklerdir (Preece ve d., 1997).

Atmosferde bulunan H₂SO₄ ve HNO₃ yağışın ve parçacıkların asitlenmesinin nedenleridir. Ancak gerek yağış ve gerekse aerosollerin asitlenmesi sadece atmosferde asitlerin varlığına değil aynı zamanda bunları nötrleyebilecek bazlarında var olup olmadığına bağlıdır. Atmosferde bu iki kuvvetli asidi nötrleyebilecek bazlar NH₃ ve CaCO₃ dür. CaCO₃ ün atmosferdeki kaynağı kalkerli topraktır. Türkiye'de dahil olmak üzere Akdeniz bölgesindeki ülkelerin hepsinde toprak kalkerlidir. Diğer bir deyişle topraktaki CaCO₃ düzeyi diğer Avrupa Ülkelerindeki düzeylerin çok üzerindedir. Zaten bu nedenle, Akdeniz bölgesinde ölçülen SO₄²⁻ seviyeleri Avrupa'da ölçülen düzeylerden çok daha yüksek iken bölgede asit yağmuru problemi görülmemiştir.

Atmosferdeki amonyağın ana kaynağı ise buharlaşma vasıtasıyla, tarımsal etkinliklerdir. Bu gün tarımda kullanılan sentetik gübrelerin büyük bir bölümü NH₄NO₃ veya (NH₄)₂SO₄ içermektedir. Bu gübreler uygulandıktan sonra, özellikle bahar ve yaz aylarında bozunmakta ve NH₃ oluşmaktadır. NH₃ bir gaz olduğundan toprakta durmamakta ve atmosfere salınmaktadır (Finlayson ve Pitts, 1986).

Erduran ve Tuncel (2001), gaz fazındaki ve partikül kirleticilerin düzeylerini

belirlemek amacıyla Kuzeydoğu Akdeniz üzerinde bir çalışma yürütmüştür. Gaz fazındaki nitrik asidin konsantrasyonunun düşük olduğu ve bunun sonucu olarak da bu maddenin Kuzeydoğu Akdeniz atmosferindeki asitliğe katkısının az olduğunu göstermişlerdir. Makaleye göre, amonyak düzeyleri önemli ölçüde mevsimsel nitelikli olan bir düzene sahiptir, ki bu durum bölgedeki gübreleme faaliyetlerinin çeşitliliği ile ilişkilendirilebilir. Makaledeki bir diğer bulgu, sülfatın çoğunlukla antropojenik kaynaklı olduğu şeklindedir. Yazarlar ayrıca, geri yörünge analizi gerçekleştirmiş ve gözlemlenen kimyasal kompozisyonu etkileyen dört ana kaynak bölgesi –Batı Akdeniz ülkeleri, Kuzeydoğu Avrupa, Rusya ve Anadolu- olduğunu tespit etmişlerdir.

Akdeniz kıyısındaki bir alan olan Patras, Yunanistan'da yaz döneminde daha yüksek nitrik asit, amonyak ve partikül madde derişimleri gözlemlenmiştir. Bu durum; daha yüksek sıcaklıklarda gerçekleşen daha yüksek miktardaki amonyak salımlarından ve daha yüksek hidroksil radikali derişimlerinden kaynaklı olarak yaz döneminde daha yüksek miktarda nitrik asit üretiliyor olmasına bağlanmıştır. Hava kütlesi geri yörüngesine ilişkin elde edilen sonuçlar Erduran ve Tuncel (2001) tarafından elde edilen sonuçlar ile oldukça uyumludur. Yazarlar, yüksek derişimli ve uzun ömürlü partikül sülfatın, kuzey yönlerinden uzun mesafeli taşınan partikül sülfattan kaynaklı olduğunu göstermişlerdir. Yaz döneminde 7-11 $\mu\text{g m}^{-3}$ düzeyinde yüksek sülfat derişimleri gözlemlenmiştir. Partikül sülfat, azot emisyonlarından daha yüksek düzeyli kükürt emisyonlarına işaret eder şekilde, partikül nitrattan eşdeğerlik bazında 5-15 kez daha yüksek düzeyde tespit edilmiştir (Danalatos ve Glavas, 1999).

Aynı bölgede gerçekleştirilen bir başka çalışmada Glavas ve d. (1995), nitrik asit konsantrasyonlarının, en yüksek değerler öğleden sonraları olacak şekilde, belirgin bir günlük deęişim gösterdiğini ortaya koymuştur. Aynı çalışmada, ayrıca, gaz fazındaki nitrik asitin inorganik nitratın baskın hali olduğu gösterilmiştir. Yazarlar Akdeniz bölgesinde bölgede Ca^{2+} 'nin (CaCO_3 olarak), nötralize edici madde olarak amonyaktan daha önemli olduğunu belirtmişlerdir.

Shaka ve Saliba (2004) tarafından gerçekleştirilen çalışma, Doęu Akdeniz aerosollerinin ince parçacıklardan oluşan bölümünde, SO_4^{2-} , NO_3^- , SiO_4^{2-} , CO_3^{2-} ve NH_4^+ gibi inorganik iyonların, kaba bölümdekine nazaran daha yüksek konsantrasyonlarda bulduklarını göstermiştir. İlaveten; aerosollerin ince bölümü, alifatik hidrokarbonlar ve uzun zincirli alkol ve karboksilik asitler gibi organik türler ile zenginleşmiş iken kaba bölümünde daha yüksek düzeyde su gözlemlenmiştir. Kuloęlu ve Tuncel (2005) Doęu Akdeniz aerosollerinde SO_4^{2-} ve NH_4^+ iyonlarının ince partikül bölümü ile ilişkili olduğunu ortaya çıkarmıştır. Kütle medyan çapını (mass median diameter, MMD) SO_4^{2-} ve NH_4^+ için sırasıyla 0.63

ve 0.45 µm olarak bildirmişlerdir.

Bardouki ve d. (2003), < 1 µm parçacıklarda başlıca iyonların SO₄²⁻ and NH₄⁺ olduğunu göstermiştir. Diğer taraftan; NO₃⁻, Cl⁻, Na⁺ ve Ca²⁺, > 1 µm parçacıkların ana bileşenleri olarak belirtilmiştir. Mikrometre üstü çaptaki partiküllerin ayrıca karboksilik, dikarboksilik ve keto asitler gibi iyonik organik bileşikler de içerdiği bildirilmiştir.

Kouyoumdjian ve Saliba (2005) Lübnan'da boyutlara göre ayrılmış aerosollerin iyonik kompozisyonunun mevsimsel değişimini araştırmıştır. Yaz aylarında aerosollerin kaba bölümünün NO₃⁻ açısından zenginleştiğini tespit etmişlerdir. Bu bulgu nitrik asidin aerosollerin kaba bölümünde bulunan CaCO₃ tarafından nötralize edilmesi ile açıklanmıştır. Toprak partiküllerinin topraktan havalanmasının daha kolay olması nedeniyle CaCO₃ konsantrasyonunun yazın daha yüksek olmasından dolayı, nötralizasyon işleminin yaz döneminde kış döneminde daha fazla olması beklenmektedir.

Danalatos ve Glavas (1999) ve Peleg ve d. (2002) İsrail üzerinde yaz döneminde, Doğu Akdeniz'in sinoptik özelliklerine bağlı olduğunu düşündükleri artmış kükürt konsantrasyonları gözlemlemiştir. Sinoptik analiz İsrail'de yaz dönemindeki koşulların rüzgara karşı yöndeki Avrupa kaynaklarından gelen kirlenici türlerinin Akdeniz havzası üzerinde birikmesini kolaylaştırdığını göstermiştir. Bu mevsim sıg bir karışım tabakasına sahip olduğu gibi bu sırada kaydedilen zayıf zonal akış da düşük ventilasyon değerlerine neden olmaktadır ve bu durum kirlenicilerin doğuya doğru taşınımaları sırasında etkin bir şekilde dağılmasını (dispersiyon) engellemektedir.

Türkiye'de Akdeniz kıyısında ölçülen SO₄ derişimleri, Akdeniz havzasında yapılan ölçülenlerin en yüksekleri arasındadır. Girit, İsrail ve Antalya'daki SO₄ derişimlerinin benzerliği, yüksek derişimlerin Akdeniz kıyısına özgü bir durum olmaktan ziyade bu bölge için genel bir nitelik olduğunu göstermektedir. Doğu Akdeniz için bildirilen SO₄ değerleri, daha sanayileşmiş olan Batı ülkelerine yakın konumundan dolayı daha yüksek değerlere sahip olması beklenen Batı Akdeniz bölümü için bildirilen değerlerden daha yüksektir. Doğu Akdeniz üzerinde yüksek NO₃ derişimlerinin de gözlemlenmesinin beklenmesine rağmen, bunun tam aksi durum söz konusudur. Bu bulgu durumu karmaşıklştırmaktadır, çünkü kirlenici hava kütleleri SO₄'ün yanısıra NO₃'ü de taşımaktadır (Uzun, 2000).

1.12 Bölgenin Klimatolojisi

Herhangi bir bölgede ölçülen aerosol kompozisyonu, bölgeye yapılan kirletici taşınımına önemli ölçüde bağlı olduğundan, ölçülen konsantrasyonların değerlendirilmesinden önce söz konusu taşınımını belirleyen faktörlerin iyi bilinmesi gerekmektedir. Taşınımı belirleyen en önemli parametrelerden birisi nl üst atmosfer hava akış klimatolojisidir. Bu nedenle, hava kütlelerinin üst atmosferde ne sıklıkla hangi sektörlerden geldiğinin bilinmesi (ki buna hava akış klimatolojisi denmektedir) taşınım prosesini anlamak açısından önemlidir.

Kallos ve d. (2007) Akdeniz bölgesindeki klimatolojik koşulların soğuk ve sıcak dönemler olmak üzere ikiye ayrılabilceğini göstermiştir. Yılın soğuk dönemi yoğun siklonik aktiviteler ile bağlantılı olan düşük indeks sirkülasyonu (low-index circulation) ile tanımlanmıştır. Bu dönem süresince Akdeniz bölgesinde meydana gelen antisiklonik aktivite orta Avrupa ve Balkanlar bölgesinde üretilen antisiklonlarla ilişkilendirilmiştir.

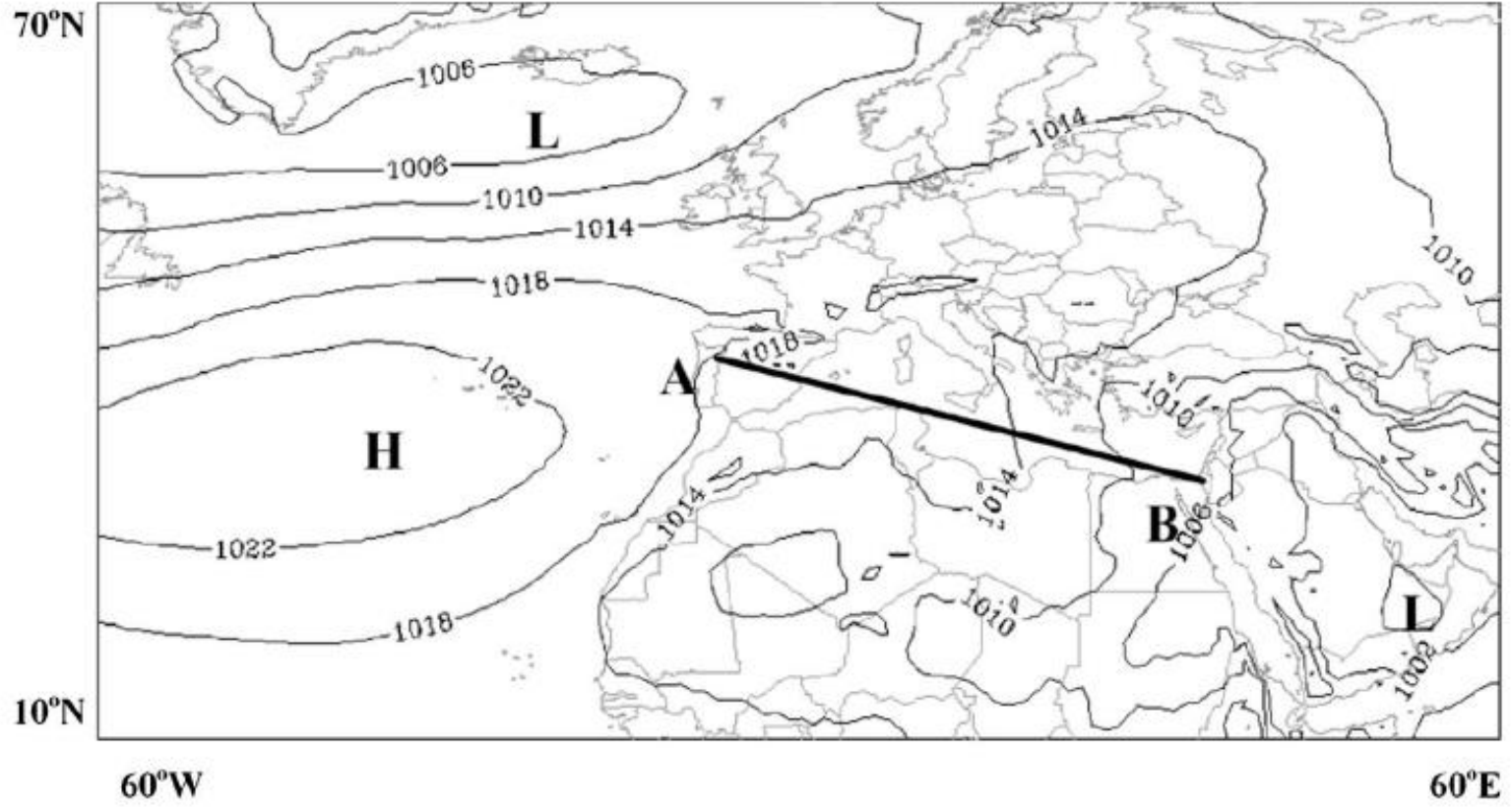
Sıcak dönem ise çoğunlukla Kuzey Atlantik Okyanusu üzerindeki alçak basınç merkezinin Avrupa yönünde hareket etmesi ve ön kısımların Akdeniz bölgesi ile temas etmesi sonucunda oluşmaktadır. Yılın bu sıcak döneminde, Kuzey Atlantik Okyanusu üzerindeki antisiklonik aktivite Avrupa ve Akdeniz bölgesine doğru genişlemekte ve bu hareket Hint Okyanusu ve Orta Doğu üzerinde oluşan muson aktivitesi ile dengelenmektedir. Bu denge, hava kütlelerinin değişik ölçeklerde taşınması ile sonuçlanmaktadır. Bu durumun 2001 yılı Ağustos ayı için Avrupa Orta Menzilli Hava Tahminleri Merkezi'nden (ECMWF)temin edilen aylık ortalama deniz seviyesi basınç alanı verileri kullanılarak oluşturulmuş bir örneği Şekil 1.10'da gösterilmiştir.

Şekil 1.10, Hint Okyanusu üzerindeki muson aktivitesi ve Kuzey Atlantik Okyanusu üzerindeki antisiklonik aktiviteyi açık bir şekilde göstermektedir. Bu iki aktivite arasındaki basınç farkı, batı ve doğu Akdeniz (ya da A ve B noktaları) arasında yaklaşık 10 – 20 hPa, Ege Denizi üzerinde ise etezyen rüzgârlarına benzer tek yönlü rüzgârların oluşumuna neden olacak kadar güçlüdür.

Kostopoulou ve Jones (2007) Doğu Akdeniz'de iklim değişkenliği üzerinde kapsamlı bir analiz yürütmüştür. Çalışmaları, Kallos ve d. (2007) çalışma sonuçları ile uyumludur. Yazarlar Avrupa'da bulunan geniş ölçekli meteorolojik özelliklerin kış ve ilkbahar süresince çalışma alanı üzerindeki sirkülasyonu etkilediği, ancak Atlantik (Azorlar) ve Asya Termal Alçak'ların ise yaz ve sonbahar süresince baskın olduğunu göstermişlerdir.

Akdeniz bölgesinde rüzgar yönü genellikle kuzeyden güneye olup sıcak ve soğuk dönemler süresince her alanda belirgin değişiklikler göstermektedir. Bu farklılıklar Akdeniz, Güney Avrupa ve Kuzey Afrika'nın farklı ısınma ve soğuma modelleri nedeniyle meydana gelmektedir. Topoğrafyadaki değişiklikler ve farklı ısınma modelleri birkaç yüz metre ile birkaç bin kilometre arasında değişen termal sirkülasyonlara neden olmaktadır (Millan ve d. 1997, 2005).

Kallos ve d. (2007) çalışmalarında Avrupa bölgesinde karışım yüksekliğinin yaz günlerinde 1-2 km, kış günlerinde ve geçiş dönemlerinde ise 100-1000 m olduğunu göstermiştir. Kuzey Afrika'da ise, karışım yüksekliği geceleri 20 -30 m ye kadar düşmekte, gündüzleri ise 2-4 km arasında değişmektedir. Yazarlar, Avrupa ve Kuzey Afrika'da görülen günlük değişikliklerin aksine, Akdeniz'in bu bağlamda durağan kabul edilebileceğini, karışım yüksekliğindeki değişimlerin bu kadar belirgin olmadığını ifade etmişlerdir.



Şekil 1.10 Doğu Atlantik ve Akdeniz'i içeren bölgedeki Ağustos 2001 ayı için hesaplanan deniz seviyei ortalama basınç haritası

Ancak Akdeniz bölgesinde karışım yüksekliği tartışılırken bölgede çok sayıda ada ve yarımada bulunması göz ardı edilmemelidir. Bu adaların varlığı sonucu karışım yüksekliğinde mekansal olarak kısa mesafelerde büyük değişimlerin olduğu gösterilmiştir. Ortaya çıkan bu yukarı yönlü hava akımları, kirlenmiş hava kütlelerini sınır katmandan serbest troposfere enjekte edebilir.

Karaca ve d.(2000) 15 yıl boyunca yüzey ve 500 hPa haritalarını analiz etmiş ve Türkiye'yi etkileyen dört tip siklon hattı olduğunu açığa çıkarmıştır. Sözü edilen siklon hatları Şekil 1.11'de gösterilmektedir. Şekil 1.11'deki hatlar başlangıç noktalarından kuzey – güney doğrultusunda numaralandırılmıştır.

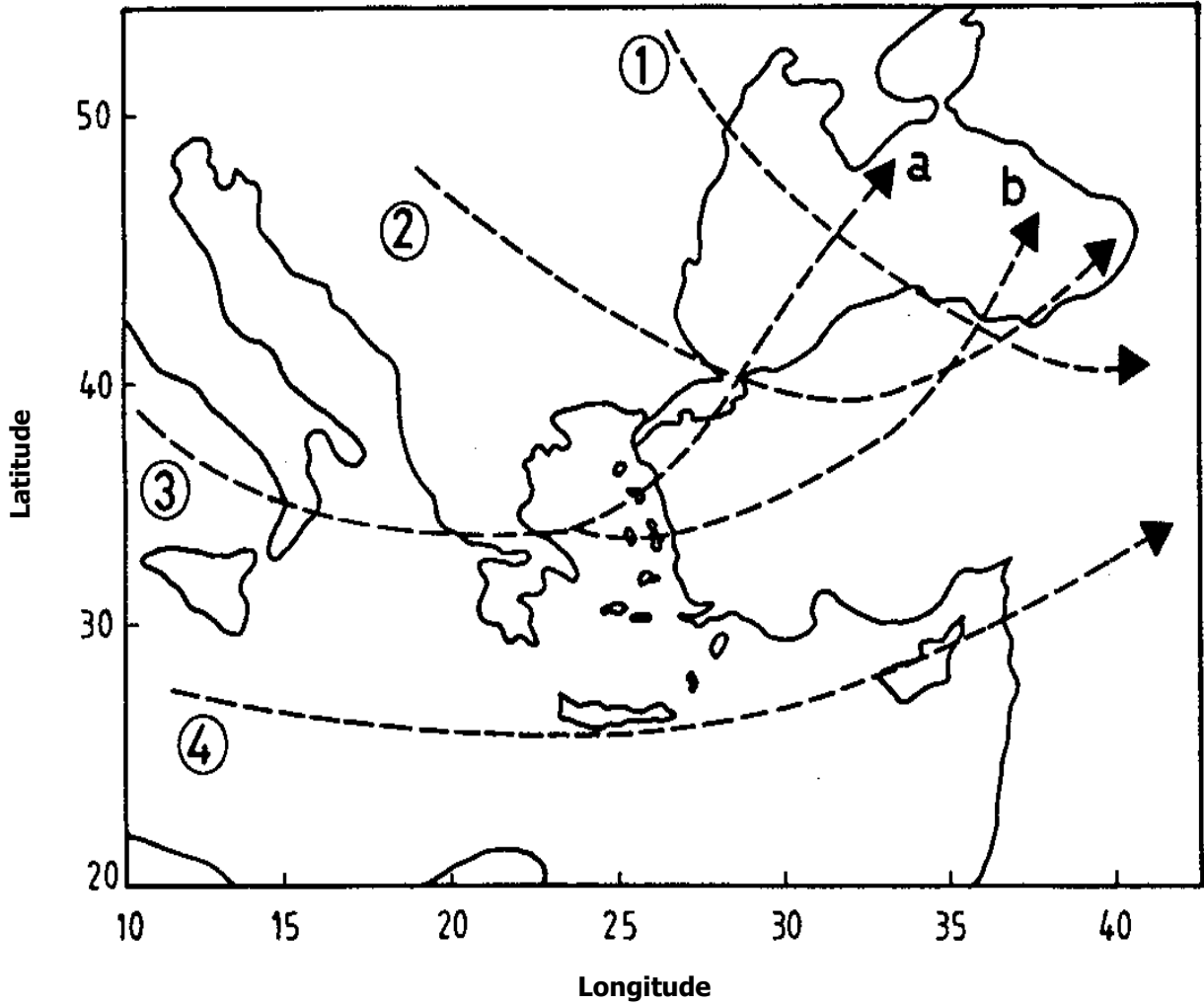
Şekil 1.11'de gösterilmekte olan hatlar şu şekilde tanımlanabilir:

1. Hat 1 Türkiye'nin kuzeyinde başlayıp, Karadeniz'i geçmekte ve Rusya'nın güneybatı kısımlarına doğru uzanmaktadır
2. Hat 2 Balkanlar'dan başlamakta ve Marmara ve Karadeniz bölgelerini ve Anadolu'nun iç kısımlarını kısmen etkilemektedir
3. Hat 3 Cenova Körfezi'nde başlamış ve Türkiye'yi etkilemektedir. Bu hat Ege Denizi'nin batı kısımlarında ikiye ayrılmaktadır:
 - a. Hat a kuzeydoğu yönünde devam etmekte ve Ege Denizi'nin kuzey kısımlarını, tüm Marmara bölgesini ve Karadeniz'in batı ve orta kısımlarını etkilemektedir
 - b. Hat b doğuya doğru hareket etmekte ve Türkiye'nin batısını ve Anadolu'nun orta kısımlarını etkiledikten sonra Karadeniz'in orta doğu bölgelerini etkilemektedir
4. Hat 4 orta ve ya batı Akdeniz'den, bazı durumlarda Cenova Körfezi'nden ve bazı durumlarda ise Sahra'dan, başlayıp Akdeniz'e doğru hareket etmektedir. Bu hat Türkiye, Kıbrıs ve Girit gibi Akdeniz ülkelerini ve Orta Doğu'yu etkilemektedir

Yukarıda kısaca belirtilen bu siklon yollarının bölgeye kirlenici taşınımını önemli ölçüde etkilediğini söylemek çok yanlış olmayacaktır.

Bölgede üst atmosfer hava akış klimatolojisi geçmişte değişik yazarlar tarafından etraflıca incelenmiştir (Güllü, 1996; Dogan, 2005; Genc, 2005). Bütün bu çalışmalardan çıkan ortak bir sonuç, bölgeye hava kütlelerinin zamanın büyük bir bölümünde Kuzeybatı ve kuzey sektörlerinden geldiğidir. Hava hareketleri Güney sektörlerinden çok sık değildir. Bu şekilde bir taşınım mekanizmasının önemli sonuçları olmaktadır. Türkiye'yi ve doğu Akdeniz'i

çevreleyen bölgeler göz önüne alındığında kuzeyde ve güneyde farklı tür kaynak bölgelerinin mevcut olduğu dikkat çekmektedir. Bölgenin güneyinde çok önemli toz kaynakları vardır. Kuzey Afrika'nın Sahra bölgesi, Arap yarımadası, Ortadoğu'daki çorak bölgeler Doğu Akdeniz bölgesini etkileyen önemli toz kaynaklarıdır.



Şekil 1.11 Türkiye çevresindeki siklon yolları

2. MATERYAL VE METOT

2.1. Örnekleme noktaları

2.1.1. İstasyon yer seçimi çalışmaları.

Proje teklifi verildiği dönemde istasyon yerleri, birisi hariç (Karadeniz) aşağı yukarı bilinmekteydi. Bu istasyon noktaları Kırklareli, Dereköy'de, Bolu dağı Sarıalan mevkiinde, Antalya Bük mevkiinde bulunmaktaydı. Projenin ilk altı ayı içerisinde Trabzon, Antalya ve Bolu çevrelerinde ikişer – üçer günlük teknik geziler yapılmıştır. Gezilerde Orman Araştırma veya Orman Genel Müdürlüğü tarafından çalıştırılan alt yapı tesisleri gezilmiş ve bu tesislerden gerek konumu, gerek altyapı olanakları (enerji, ulaşım olanakları gibi) ve gerekse orada çalışan ve örnekleri değiştirebilecek personelin olması gibi konular göz önüne alınarak istasyonların kurulacağı noktalar belirlenmiştir. Söz konusu istasyon noktaları Kırklareli, Dereköy'de, Bolu dağı Sarıalan mevkiinde, Antalya Bük mevkiinde ve Trabzon'da Sümela Manastırı noktasındadır. Daha önce bilinmeyen tek nokta Karadeniz bölgesinde istasyonun nereye kurulacağı idi. Karadeniz bölgesinde iki potansiyel nokta bulunmaktaydı. Bunlardan birincisi ODTU tarafından 1997 – 2000 yılları arasında çalıştırılmış bir istasyonun bulunduğu Amasra, Kurucaşile mevkiinde bulunan Orman Odun deposu ile, Trabzon dolayındaki Meryemana Kilisesinin bulunduğu bölgedeki bir araştırma ormanıdır. İkinci noktada Meteoroloji Genel Müdürlüğü Tarafından çalıştırılan bir yağmur örnekleme istasyonu mevcuttur. Her iki noktaya yapılan geziler sonucu, aerosol örnekleycilerinin Trabzon'da Sümela Manastırı yerleştirilmesine karar verilmiştir. Bunun üç nedeni vardır. (1) burada bir alt yapının zaten var olması ve (2) bu güne kadar doğu Karadeniz bölgesinde bu tür ölçümlerin hiç yapılmamış olması ve (3) daha önce grubumuz tarafından yapılan model çalışmalarının, o bölgede Rusya üzerinden gelen yüksek SO₄²⁻ konsantrasyonların olduğunu göstermesidir.

İlk aşmada teknik gezilerle belirlenen istasyon noktalarından Trabzon istasyonu daha kurulmadan, Bolu istasyonu ise kurulduktan sonra yerlerinde değişikliğe gitmek gerekmiştir. Trabzon istasyonunda örnekleri değiştirecek kişilerin 30 km uzaktan geliyor olması, bu istasyonun verimli bir şekilde çalıştırılıp çalıştırılmıyacağı konusunda bazı soru işaretlerini oluşmasına neden olmuştur. Daha sonra MGM genel müdürlüğü ile yapılan toplantılarda onların da yağmur örneklerini aynı nedenlerle düzenli bir şekilde alamadığı öğrenilince, Karadeniz istasyonunun Sümela Manastırı noktasına kurulması fikrinden vaz geçilmiş ve yapılan ikinci bir teknik gezi ile söz konusu istasyonun Zigana geçidinin 15 km Güneyindeki Torul kasabasının 4 km dışındaki OGM'ye ait bir odun deposuna

kurulması kararlaştırılmıştır. Torul'a kurulan istasyon bu güne kadar başarıyla çalıştırılmıştır.

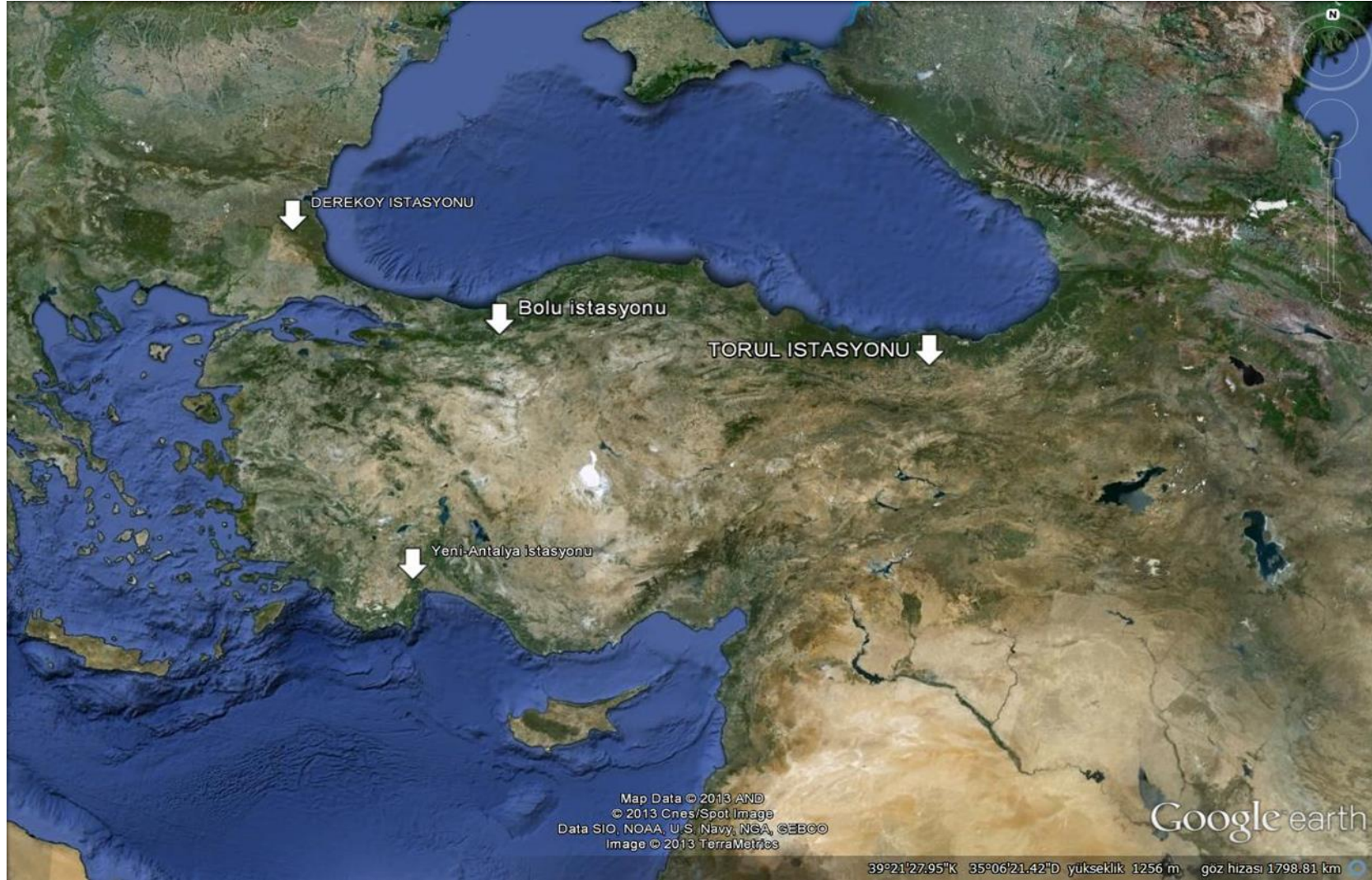
Bolu istasyonu, planlandığı gibi deniz seviyesinden yaklaşık olarak 1000 m yükseklikteki Sarıalan bölgesinde, yine OGM'ye ait bir alanda kurulmuştur. Ancak istasyonun çalışmaya başlamasından sonraki bir ay içerisinde Bolu istasyonunda örnekleri değiştirecek orman teknisyenlerinin bu konuda bizimle işbirliğinde çok hevesli olmadıkları gözlenmiş ve bu istasyonun en az iki yıl süre ile bu şekilde çalıştırılıp çalıştırılmayacağı konusunda bir belirsizlik oluşmuştur. Bunun üzerine Bolu bölgesine ikinci bir teknik gezi yapılmış ve istasyonun Bolu İzzet Baysal Üniversitesi'ne indirilmesine karar verilmiştir. Bu kararda Üniversite kampusunun Bolu'dan yeterince uzak olması, Yüzeyledeki hakim rüzgar yönünün Bolu iline ters yönde olması ve BIB Üniversitesinde bu işi yapabilecek yüksek lisans öğrencilerinin olması rol oynamıştır. Daha sonraki aşmalarda bu istasyonda toplanan örneklerden elde edilen sonuçlar BIB Üniversitesi Kimya Bölümünde iki Yüksek Lisans öğrencisinin tezi olmuştur. Öğrencilerden birisi 17.07.2013 tarihinde tez savunma jürisine girerek tezini bitirmiş olacaktır. Yer değişiminden sonra Bolu istasyonu en düzenli çalışan istasyonumuz olmuştur.

Bütün bu değişikliklerden sonra bu proje çerçevesinde çalıştırılan dört istasyonun yerleri Şekil 2.1 'de gösterilmiştir. Her istasyonla ilgili daha detaylı bilgi takip eden bölümlerde verilmiştir.

2.1.2. Kırklareli istasyonu (41°58'00"N 27°23'36"E):

Kırklareli istasyonu hava kütlelerinin, zamanın %70 kadarında, Türkiye'ye girdiği noktada olması nedeniyle bu çalışmadaki en önemli istasyondur. Diğer istasyonlarda üretilen veriler, bu istasyondaki verilerle karşılaştırılmıştır. Bu nedenle, aktif hale getirilen ilk istasyon Kırklareli istasyonu olmuştur. İstasyon, Kırklareli ne Bağlı Dereköy civarında olup Bulgar sınırına 4 km mesafededir. Kırklareline mesafesi ise 30 km kadardır Karadeniz'e uzaklığı ise yaklaşık olarak 45 km kadardır. Bölgede sıcaklık Aralık, Ocak aylarında ortalama 3.1°C ile Temmuz ağustos aylarında ortalama 23°C arasında değişmektedir. İstasyonun aldığı Yağış miktarı 538 kg m⁻² dolayında olmaktadır. İstasyon yerinin bir uydu fotoğrafı ile yakından görünüşü Şekil 2.2 de verilmiştir.

3 Haziran 2010 Tarihinde Kırklareli istasyonuna yapılan bir seyahat ile cihazlar kurulmuş ve istasyon çalışır hale getirilmiştir. Kırklareli istasyonu ODTÜ, Kimya bölümü tarafından çok önceden kurulmuş ve bizim de zaman - zaman kullanmış olduğumuz bir istasyon olduğundan, elektrik bağlantısı, platform gibi alt yapısı zaten mevcuttur.



Şekil 2.1 Çalışmada kullanılan dört istasyonun yerleri



Şekil 2.2. Kırklareli (Dereköy) istasyonunun uydu fotoğrafı ve yakından görünüşü

Dolayısı ile cihazların monte edilmesi ile istasyonun çalışır hale getirilmesi kolay olmuştur. İstasyonun çeşitli görüntüleri Şekil 2.3 'de gösterilmiştir.

2.1.3. Bolu istasyonu (40°35'57"N 31°36'43")

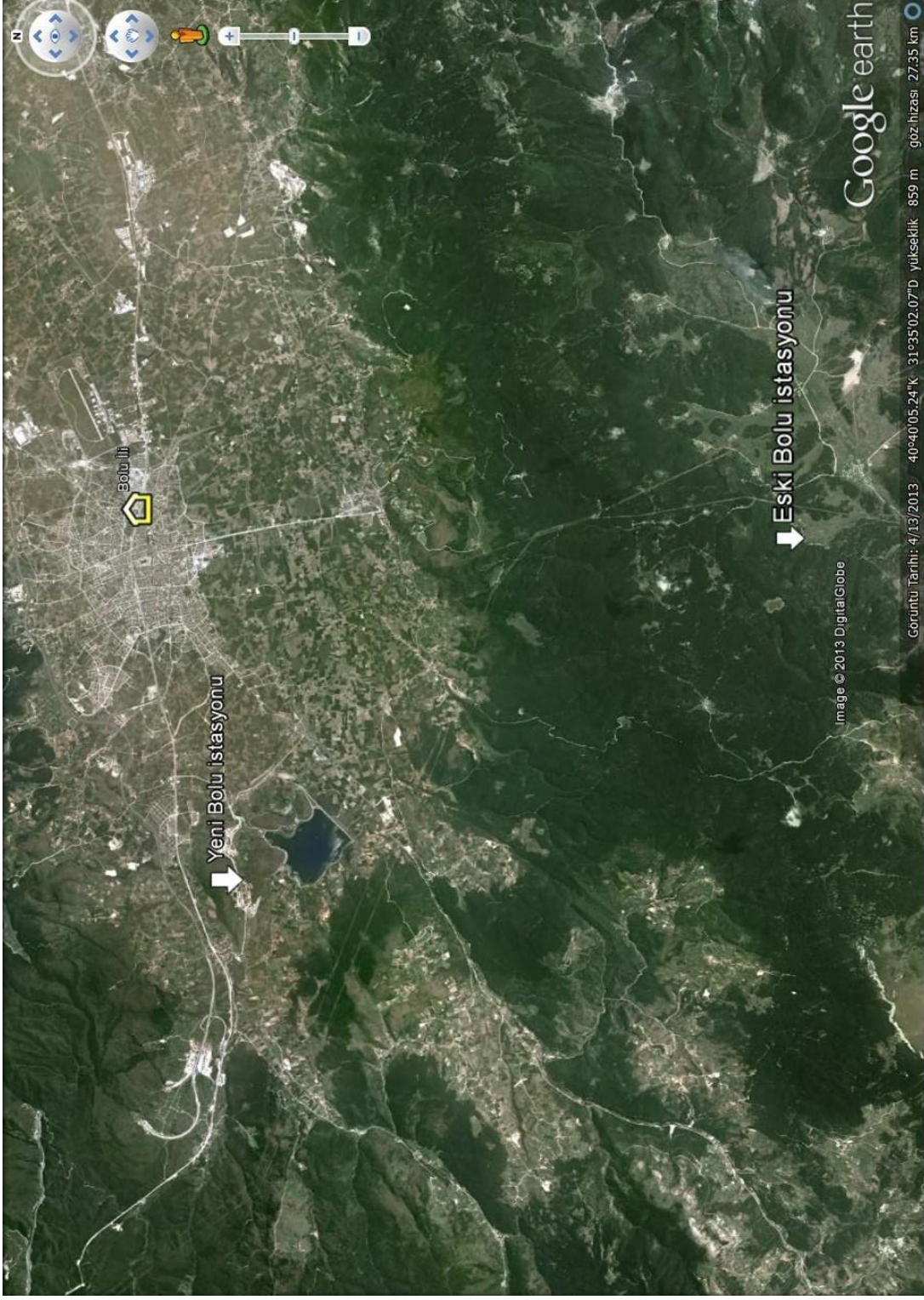
Bolu istasyonunun yeri bölgede Orman Genel Müdürlüğü Teknik elemanları ile birlikte yapılan bir teknik gezi sonunda belirlenmiş ve istasyon 12.07.2010 tarihinde Bolu'nun 14 km güneyinde Aladağ deneme ormanında kurulmuştur. Denizden yüksekliği 1342 m dir. Bölgede aylık ortalama sıcaklıklar kış mevsiminde 1 ile 19 kg m⁻² arasında değişmektedir. Yıllık yağış miktarı 543 kg m⁻² dir. Seçilen istasyon noktası böyle bir çalışmanın yapılması için ideal bir konumdadır. Ayrıca, seçilen noktanın önemli bir özelliği, Orman genel Müdürlüğü tarafından yürütülmekte olan ICP-Forests başlıklı, ormanların hava kirliliği açısından izlenmesine yönelik uluslararası bir proje çerçevesinde oluşturulan kapsamlı bir deneme alanının yanında olmasıdır. Dolayısı ile bu istasyonda oluşturulan veriler Çevre ve Şehircilik bakanlığı ile, Orman ve Su Bakanlığı'nın ilgili birimlerince kullanılacaktır. Seçilen noktanın uydu fotoğrafı Şekil 2. 4'de istasyondan bazı görüntüler ise Şekil 2. 5'de gösterilmiştir.

Kurulan istasyonun yeri ölçümler için ideal olmakla birlikte istasyonun çalıştırılmasında çok başarılı olunamamış ve yerinin değiştirilmesi gerekmiştir. Örneklemedeki sıkıntı istasyonun kurulduğu noktada altı ormancın dönüşümlü olarak görev yapmasından kaynaklanmıştır. Projede yer alan Y. Lisans ve Doktora Öğrencileri, diğer istasyonlarda olduğu gibi bu istasyonda da, orada çalışanlara gerekli eğitimi vermişlerdir. Ancak bir işte çok fazla sorumlu olunca hepsi topu birbirine atmış ve örnekleme istediğimiz verimlilikte yürümemiştir. Bazen bir hafta örnek toplanmadığı olmuş, ve çok değişik orman görevlisi gelip gittiğinden sorumluyu bulmak mümkün olamamıştır.

Bu sıkıntılara Şubat 2011 ayına kadar katlanılmıştır. Bu süre zarfında öğrencilerimizin Bolu istasyonunda geçirdikleri süre diğer üç istasyonda geçirdiklerinden fazla olmuştur. Bolu istasyonunun bu şekilde sürdürülebilir olamayacağına karar verince istasyonun yerini değiştirmek için araştırma yapılmış ve istasyonun İzzet Baysal Üniversitesi'nde kurulmasına karar verilmiştir. Şubat ayı içerisinde örnekleme sistemleri Üniversiteye alınmış ve örneklerin toplanmasına başlanmıştır. İstasyonun bulunduğu yerin koordinatları 40°42'50.93N, 31°31'04.94"E şeklindedir. Üniversitenin şehir merkezine uzaklığı 8.2 km dir. İstasyon Noktasının genel görünümü bir uydu fotoğrafı halinde Şekil 2.6'da gösterilmiştir. Aynı şekilde istasyon noktasındaki rüzgar gülü de görülmektedir. Bu noktadaki rüzgar bilgisi, yine Rektörlük binası üzerine Çevre mühendisliği bölümü tarafından kurulmuş olan meteoroloji istasyonundan alınmıştır. Veriler 2009 yılına aittir.



Şekil 2.3 Kırklareli (Dereköy) istasyonundan değişik görüntüler



Şekil 2.4 Eski Bolu İstasyonunu içeren uydu fotoğrafı



Şekil 2.5. Eski Bolu istasyonundan görüntüler



Şekil 2.6 Yeni Bolu İstasyonunu İçeren Uydü Fotoğrafı

Açıkça görüldüğü gibi, istasyonun bulunduğu noktada rüzgar zamanının %90 kadarında şehrin aksi istikametinden estiği için Bolu şehrindeki emisyonların toplanan örnekleri etkilemeyeceği düşünülmüştür. İstasyon yeni kurulduğu noktada 22.02.2011 tarihinden sonra herhangi bir sorun olmadan çalışmıştır. Hatta birçok açıdan Bolu istasyonu dört istasyon arasında en az sorunla çalışan istasyonumuz olmuştur. İstasyonda bulunan cihazların konumunu gösteren bir fotoğraf Şekil 2. 7'de görülmektedir.

2.1.4. Antalya istasyonu (36°58'12"N 30°26'02"E)

Antalya istasyonu, Antalya'nın 25 km (kuş uçuşu) kuzeybatısında Bük araştırma ormanında bulunan bir meteoroloji parkında kurulmuştur. Deniz seviyesinden yüksekliği 490 m dir. Burada şu an için kullanılmayan bir binanın boş bir odası bize tahsis edilmiştir. Pompalar odada çalışmaktadır. Filtre tutucular ve ön impaktör ise 6.3 mm çapında bir plastik boru ile binanın dışına uzatılmıştır.

Bu bölgede günlük ortalama sıcaklıklar kış aylarında 9.6°C dolayında olmakta, yaz aylarında ise 28 derecelerde olmaktadır. İstasyon bölgesindeki yıllık yağış miktarı 1100 kg m⁻² dolayındadır.

İstasyon 21.08.2010 tarihinde çalışmaya başlamış ve çok ciddi bir problem yaşamadan bu güne kadar çalışmıştır. İstasyonun konumunu gösteren bir uydu fotoğrafı ile örnekleme sistemlerini gösteren bazı fotoğraflar Şekil 2.8'de gösterilmiştir.

2.1.5. Trabzon (Torul) istasyonu (40°32'34"N 39°17'04")

Proje Çerçevesinde kurulan son istasyon Trabzon istasyonu olmuştur. İstasyonların yer seçimine yönelik ilk çalışmalar sırasında MGM'ne ait yağmur örnekleme istasyonunun Sümela Manastırı bölgesinde bulunması nedeniyle aerosol örneklemesinin de aynı noktada yapılması planlanmıştır. Ancak Diğer istasyonların kurulması sırasında örnekleme noktasında çalışan ve hem yağmur örneklerini hem de aerosol örneklerini değiştirecek olan orman teknisyeninin yeri değişmiş ve istasyona oldukça uzak bir mesafeden gidip gelmesini gerektirecek yani bir durum ortaya çıkmıştır. Yağmur her gün yağmadığından, ortaya çıkan durum yağmur örnekleri için kabul edilebilir olsa bile, aerosol örneklerinin her gün değişiyor olması gerektiği için örneklemenin sürdürülebilirliğini sağlamak zor hale gelmiş ve bu nedenle de aerosol örnekleri için yeni bir yer bulunması gerekmiştir.



Şekil 2.7 Yeni Bolu istasyonunu gösteren fotoğraflar



Şekil 2.8 Antalya istasyonunun konumunu gösteren bir uydu fotoğrafı ile teçhizatın fotoğrafları

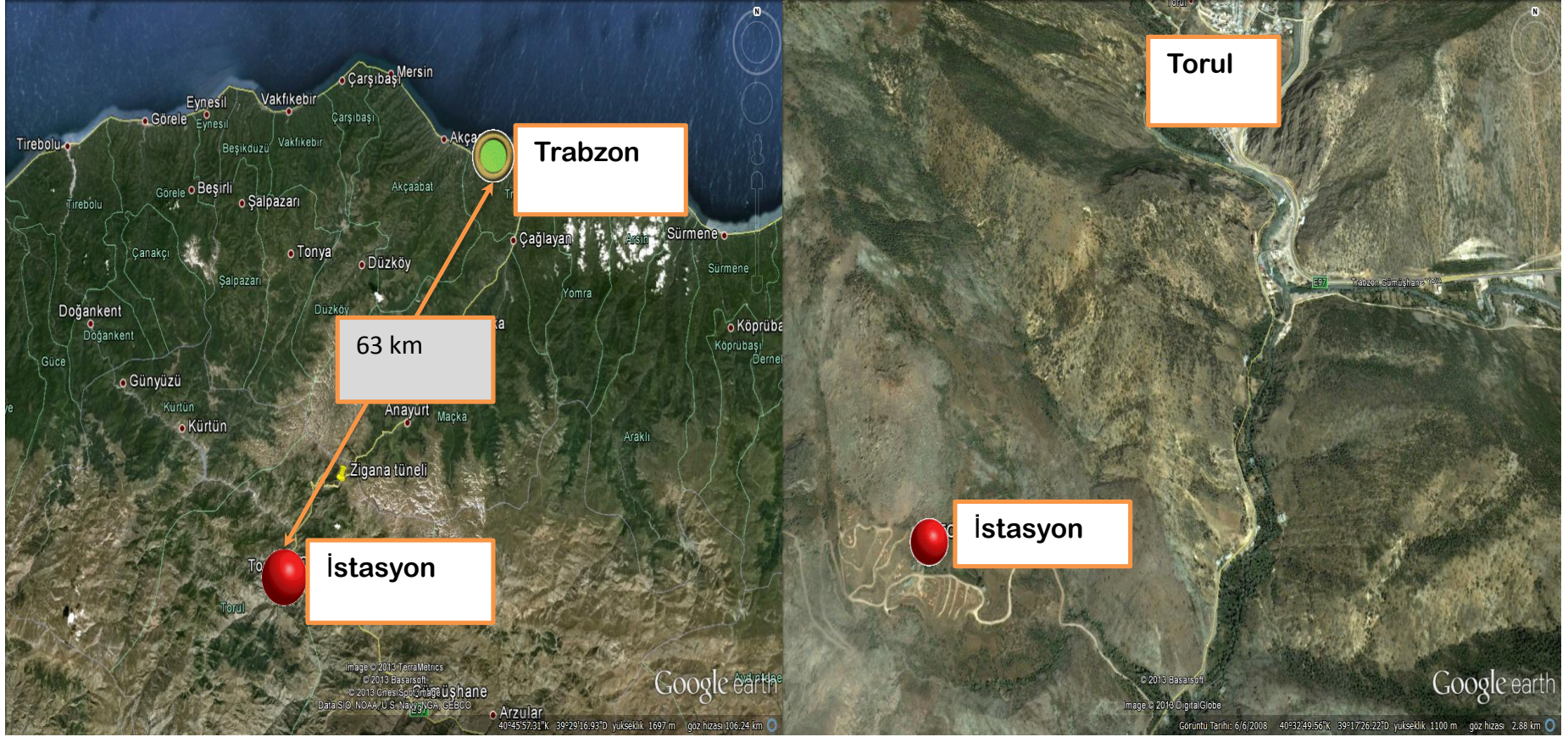
Orman Genel Müdürlüğü teknik elamanları ile bölge tekrar gezilmiş ve Gümüşhane'nin Torul ilçesinin yaklaşık 7 km Güneydoğusunda yer alan orman odun deposu örnekleme noktası olarak seçilmiştir. Odun deposu çevresinde en yakın partikül kaynağı 7 km uzaktaki Torul ilçesidir. 4300 nüfuslu küçük bir kasaba olan Torul'un önemli bir parçacık kontaminasyonuna neden olmayacağı düşünülmüştür. Bu güne kadar ele edilen sonuçlar bu öngörüü teyit etmektedir. Çevrede başka da kaynak bulunmamaktadır.

Torul bölgesinde aylık ortalama sıcaklıklar Ocak ayında 2.8°C ile Ağustos ayında 28.5°C arasında değişmektedir. Bölgede yıllık yağış miktarı 450 mm dolayındadır.

Cihazlar Torul orman deposuna 29 Eylül 2010 tarihinde kurularak istasyon çalışır hale getirilmiştir. Pompaların konacağı küçük bir kabin yapılmış ve SFU'ların örnekleme başlıkları kabinin dışına monte edilmiştir. Odun deposunda bir yağmur örnekleme başlığı bulunmamaktadır. Yağmur örnekleri, MGM tarafından Sümela Manastırında çalıştırılan bir istasyonda toplanmaktadır. Yağmur ve aerosol örnekleme yapılan iki nokta arasındaki mesafe yaklaşık olarak 20 km kadardır. Torul istasyonunun konumunu gösteren uydu fotoğrafları ile istasyonun kurulması sırasında çekilen bazı fotoğraflar Şekil 2.1 ve Şekil 2.2'de gösterilmiştir.

Torul istasyonunun çalışması başlangıçta biraz maceralı olmuştur. Aerosol örnekleri 2010 Eylül ve 2011 Mayıs ayları arasında ciddi bir sorun yaşanmadan toplanmıştır. Ancak Mayıs 2011 de pompalar çalışmamaya başlamıştır. Bunun durumun yaz aylarında bölgede bahçe sulama amacıyla çok sayıda su pompası çalışmaya başlayınca voltajın çok düşmesi sonucu pompaların kendilerini kapatması olduğu sonucuna varılmış ve istasyona bir UPS monte edilerek bu sorun aşılmıştır. Ancak sorunun nedeni anlaşılana ve çözüm üretilen kadar Torul istasyonundaki aerosol örnekleme 2 ay kadar kesintiye uğramıştır. UPS e bağladıktan sonra pompa problemi bir daha yaşanmamıştır.

Daha sonra Orman ve Su bakanlığı, Torul odun deposu da dahil olmak üzere, odun depolarını özel sektöre devretmeye karar vermiştir. Bunun sonucu olarak istasyondaki görevli personelini Torul'a çekmiştir. Önce görevlilerin örnekleri Torul'den her gün gidip gelerek değiştirmesi gibi bir yol denenmiş ancak başarılı olmamıştır. Daha sonra istasyona yakın köylerden birisinden bir kişi bulunarak eğitilmiş ve örnek değiştirme işlemleri bu kişi tarafından yapılmıştır. Şu anda örnekleme her hangi bir sıkıntı olmadan sürmektedir.



Şekil 2.9 Torul (Trabzon) istasyonunun konumu



Şekil 2.10 Torul (Trabzon) istasyonundan görüntüler

2.1.6. İstasyonlardaki Teçhizat

Her istasyonda bir adet SFU ve bir adet de PM₁₀ aerosol örnekleme sistemi kurulmuştur. SFU ile, polikarbonat filtreler kullanılarak eser element analizi için örnek toplamaktadır. PM-10 örnekleme sisteminde ise kuartz filtre kullanılarak OC-EC analizi için aerosol örneği toplanmıştır.

Projenin ara raporlarında defalarca tartışıldığı gibi, başta hedeflenen OC-EC analizörü bütçe yetersizliğinden alınamamış ve bütün örneklerde OC ve EC analizi yapmak mümkün olmamıştır. Sınırlı sayıda örnekte OC ve EC paralel ölçülmüş, toplanan örneklerin hepsinde ise atelometre yardımıyla sadece EC analizi yapılmıştır. EC analizi nucleopore filtreler üzerinde de ölçülebildiğinden, OC ölçümüne yetecek kadar örnek toplandıktan sonra istasyonlardaki PM₁₀ örnekleyciler sökülerek Ankara'ya getirilmiş ve istasyonlardaki örnekleme sadece SFU ile sürdürülmüştür.

Her istasyonda veya aerosol örneklerinin toplandığı noktanın yakınlarında bir noktada yağmur suyu örnekleycisi de bulunmaktadır. Bu çalışmada istasyonlar genellikle, DMİGM'nün yağmur örnekleme yaptığı noktalara kurulmuştur. Bu şekilde hem her istasyona yeni bir yağmur örnekleycisi koymak külfetinden kurtulunmuş, hem de DMİGM'nün bu konudaki analiz altyapısını proje çerçevesinde kullanabilme şansı doğmuştur. Ancak DMİGM'nün Kırklareli istasyonunda yağmur örnekleycisi mevcut değildir. Bu nedenle, Ankara'da Digifest firmasına yaptırılan, yağ ve kuru çökme örneklerini otomatik olarak ayrı-ayrı toplayabilecek, bir yağ-kuru yağmur örnekleycisi bu istasyona yerleştirilmiş ve çalıştırılmıştır. Örnekleyci genel hatları ile DMİGM'nün diğer istasyonlarda kullandığı yağmur örnekleycisinin aynıdır.

Bolu'da MGM tarafından çalıştırılan yağmur örnekleme istasyonu çok problemlili bir istasyondur. Buradan yeterince örnek toplanmamaktadır. Ayrıca, bu istasyonun bulunduğu nokta bizim ilk bolu istasyonunu kurduğumuz Sarıalan bölgesine çok yakın olmakla birlikte, aerosol örnekleycisini buradan IBÜ'ne taşıyınca çok uzakta kalmıştır. Bu nedenle Bolu'da MGM tarafından toplanan yağmur örneklerini toplamak yerine, IBU, Çevre Mühendisliği Bölümü tarafından bizim istasyonun hemen yanında çalıştırılan yağmur örnekleycisi tarafından toplanan örnekler kullanılmıştır.

2.1.7. İstasyonlarda uygulanan eğitim programı

Bütün istasyonlar çalışmaya başlayınca, o istasyonda örnekleme işlemini gerçekleştirecek teknisyenlere kısa bir eğitim vermek şart olmuştur. İstasyonlarda örnekleme işini yapan teknisyenler, kapasite ve eğitim olarak farklı

niteliklere sahiptir. Antalya ve Kırklareli istasyonlarında aerosol ve yağmur suyu örnekleri OGM personeli olan teknisyenler tarafından değiştirilmektedir. Torul istasyonunda ise örnekler önce OGM elemanları tarafından değiştirilmiş, daha sonra istasyonun bulunduğu odun deposu özel sektöre devredilince, o civardan bulunana bir köylü tarafından değiştirilmektedir. Trabzon istasyonundaki yağmur örnekleri ise yine OGM memurları ve teknisyenleri tarafından değiştirilmektedir. Bolu istasyonunda ise gerek aerosol ve gerekse yağmur örnekleri İzzet Baysal Üniversitesi'nde görevli Araştırma Görevlisi arkadaşlar tarafından değiştirilmektedir.

Örnekleri değiştirecek personelin farklı nitelikleri nedeniyle istasyonda verilen eğitimin süresi de değişmektedir. Prensip olarak istasyon kurulup çalışmaya başladıktan sonra grubumuzda yer alan Yüksek Lisans ve Doktora öğrencilerinden birisi istasyonda 3 – 7 gün arasında zaman geçirerek oradaki alan teknisyenlerini eğitmektedir. Bunun için önce pompanın ne şekilde çalıştırılacağı, durdurulacağı, kontrol panelindeki rakamların ne şekilde alınacağı, filtre tutucuların nasıl değiştirileceği, örnekleme formunun nasıl doldurulacağı gibi konularda teknisyenlere bilgi verilmekte ve bu işlemler oradaki eğitmen tarafından birkaç defa yapılmaktadır. Daha sonra alan teknisyenleri eğitmen gözetiminde örnek değiştirme işlemini tekrar tekrar yapmaktadır. Bu işlemler ertesi gün ve eğer gerekirse onu takip eden günde, alan teknisyenlerinin işlemleri öğrendiği konusunda ikna olana kadar tekrarlanmaktadır. Alan teknisyenlerinin örnek değiştirme işlemini doğru bir şekilde yaptıklarından emin olduktan sonra, öğrenci arkadaş Ankara'ya dönmektedir. Bir hafta sonra tekrar istasyona giderek işlemlerin doğru yapıp yapılmadığını denetlemekte ve her şey yolunda gidiyorsa Ankara'ya dönmektedir. İstasyonlar düzgün bir şekilde çalışmaya başlayınca asistan arkadaşların denetime gitme sıklıkları azalmıştır. Projenin sonuna gelindiğinde istasyonlara sadece bir problem rapor edildiğinde gidilmeye başlanmıştır.

Alan çalışmalarını başarıyla yürütülmesinin önemli bileşenlerinden birisi de geliştirilen alan manüeli olmuştur. Çalışmanın başlangıcında bu manüelin ne kadar başarılı olacağı konusunda kuşkularımız vardı; ancak, zaman içerisinde örneklemede yapılan hataları en aza indirgeyen çok önemli bir araç olduğu anlaşılmıştır. Bu gün her istasyonda teknisyenlerin örnek değiştirirken bu manüele adım-adım uyması sağlanmıştır. Eğer bunu yapmazlarsa kendileri uyarılmaktadır. Manüeli takip etmek alan teknisyenlerinin de kolayına geldiğinden, manüeli takip etmek konusunda önemli bir direnç görülmemiştir. Örnekleme konusunda dikkatle takip ettiğimiz kılavuz EK 1 'de verilmiştir.

2.2. Aerosol Örneklerinin toplanması

2.2.1. Filtrelerin hazırlanması

Aerosol örneklemede 47 mm çapında kaba ve ince gözenekli iki tip polikarbonat nükleopor membran filtre kullanılmıştır. Kaba gözenekli filtrelerin gözenek çapı 8.0 µm, ince gözenekli filtrelerin gözenek çapı ise 0,4 µm'dir.

Filtrelerin örnekleme hazırlanması ve örnekleme sonrası filtre tutuculardan boşaltılması işlemleri temiz odada yapılmıştır. Muhtemel kontaminasyonu minimize etmek için filtrelerin yüklenmesi ve boşaltılması aşamalarında pudrasız eldiven ve plastik forseptler kullanılmıştır. Kaba ve ince gözenekli filtreler farklı petri kaplarına yerleştirilerek 24 saat boyunca sabit sıcaklık ($25\pm 5^{\circ}\text{C}$) ve sabit nem ($\%26\pm 4$) kabininde şartlandırılmıştır.

Şartlandırma sonrası filtreler numaralandırılarak; 0.1 µg hassasiyete sahip mikroterazi (Sartorius A210P) kullanılarak tartılmış ve ağırlıkları kaydedilmiştir. Şartlandırılan ve ağırlıkları kaydedilen filtreler, üst bölmeye kaba gözenekli filtreler, alt bölmeye ise ince gözenekli filtreler yerleştirilerek filtre tutuculara yüklenmiştir. Filtre tutucular istasyonlara gönderilmeden önce polietilen poşetlere konulmuş ve poşetler ısı ile kapatılmıştır.

2.2.2. İstasyonlarda aerosol örnekleme

Aerosol örnekleri "stack filter unit" (SFU) olarak tanımlanan bir örnekleme cihazı kullanarak ince ($\text{PM}_{2.5}$) ve kaba ($\text{PM}_{2.5-10}$) fraksiyonlar olarak toplanmıştır. Bu cihaz aynı amaçla tasarlanmış olan ve "dichotomous örnekleme" olarak tanımlanan örnekleme sistemine nazaran daha ucuz bir cihazdır. Bu çalışmada cihazı dışarıdan getirmek yerine, parçalarını toplayıp montajını burada yapmak suretiyle daha da ucuza getirilmiştir.

Örnekleme sisteminin temeli arda rda konmuş delik boyutu farklı iki filtreden $16.7 \text{ L dakika}^{-1}$ hızla hava çekildiğinde, çapı 2.5 µm den büyük parçacıkların ön, $\text{PM}_{2.5}$ parçacıkların ise arka filtrede toplanması prensibine dayanmaktadır. Yalnız her filtre bu özelliği göstermemektedir. Her hangi bir membran filtre için delik boyutu 2.0 µm dendiği zaman esasında ortalama bir delik çapından bahsedilmektedir. Membran filtrelerde pek çok değişik çapta delik olmakta ancak bunların ortalama değerleri delik boyutu olarak ifade edilmektedir. Bu özellikleri nedeniyle membran filtrelerin, biri hariç hiç birinin parçacıkları $\text{PM}_{2.5}$ ve üstü olarak ayrılması beklenmez. Bu çalışmada kullanılan filtre "NUCLEOPORE" markasıyla bilinen polikarbonat yapısında bir filtredir. Bu tür filtreler polikarbonat tabakaların önce α parçacıkları ile inceltmesi ve daha sonra bu inceltilen yerlerin asitle aşındırılmasıyla oluşturulmaktadır. En büyük özellikleri üzerlerindeki

bütün deliklerin boyutlarının aynı olmasıdır. Ancak bu tür filtreler istenen boyut ayırımını sağlayabilmektedir.

“Stack filtre sistemi” ve bileşenleri Şekil 2.3, Şekil 2.4 ve Şekil 2.5’de gösterilmiştir. Şekilden de görülebileceği gibi, sistem bir filtre ünitesi ve bir de sabit akışlı pompadan oluşmaktadır. Filtre ünitesinde arka arkaya yerleştirilmiş, farklı gözenek boyutlarında, iki nuklepor filtre bulunmaktadır. Bu filtrelerden geçen havanın akış hızı 16.7 lpm olarak sabitlendiğinde aerodinamik çapı 2.5 µm den büyük olanlar ön filtre de, 2.5 µm den küçük olanlar da arka filtrede toplamaktadır. Bu sistem son yıllarda, fiyatının nispeten ucuz olmasından dolayı dünya literatüründe yaygın olarak kullanılmaktadır.

Bu bileşenlerden pompa önemlidir. Normal koşullarda bu sisteme bir de hava akış hızını 16.7 lpm değerinde sabitleyecek bir kütleli akış kontrol ünitesi (MFC) (mass flow controller) gerekmektedir. MFC çok pahalı bir cihaz olduğundan ve örnekleyicinin fiyatını çok arttıracığından, bunu almak yerine hava akışını iyi kontrol eden, F&J Speciality Products, Model DF-1E modeli, diğer pompalara nazaran biraz daha pahalı bir pompa kullanılmıştır. Söz konusu model kendi üzerinde bir hava akış kontrolörü ile hava akış hızını, çalışma süresini ve geçen toplam hava hacmini gösteren bir elektronik bir kontrol birimi de içermektedir. Bu çalışmada kullanılsa da bu bilgiler on-line olarak bilgisayara aktarılabilir.

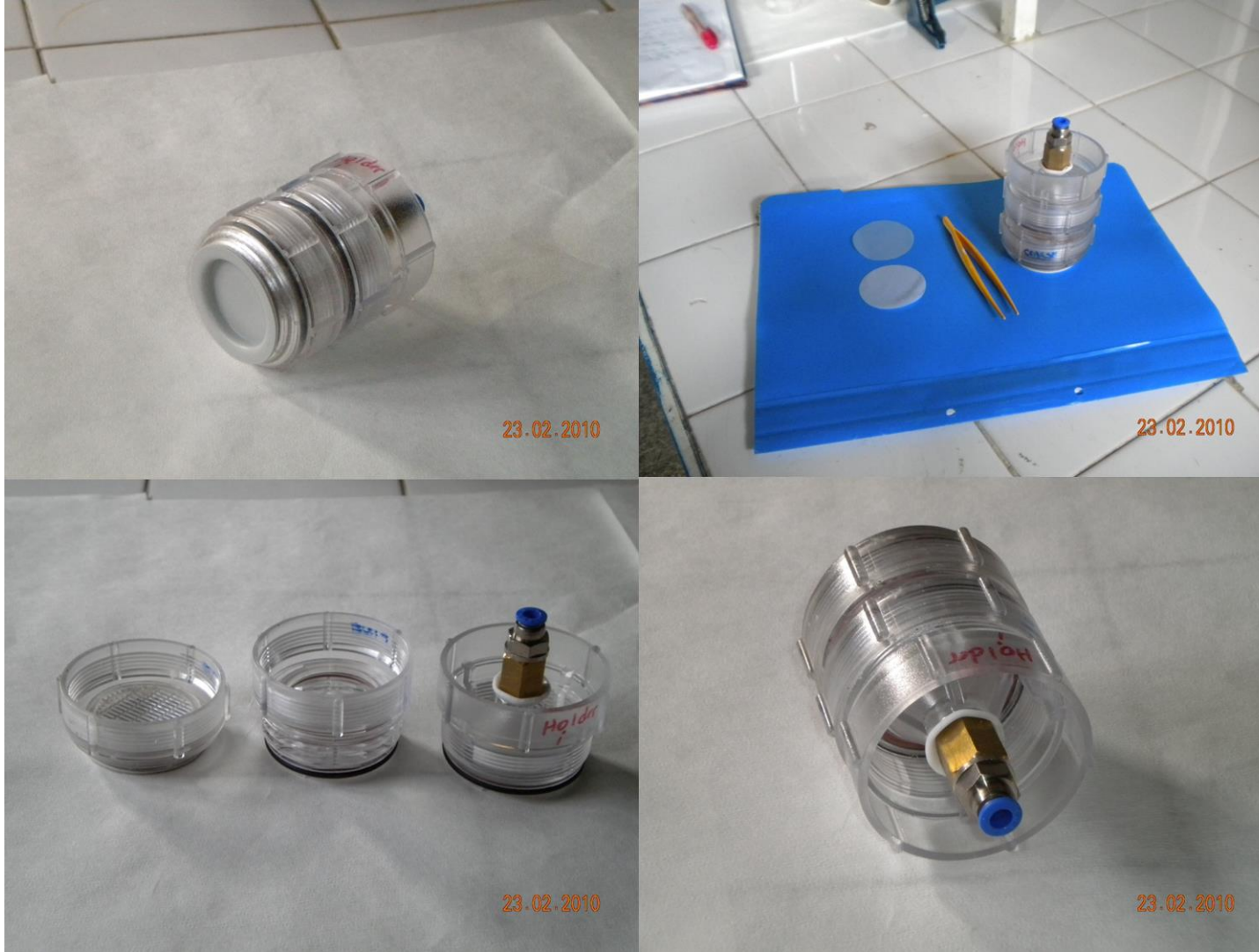
SFU nun diğer bir ünitesi olan ve iki filtrenin arka arkaya yerleştirilebilmesini sağlayan özel filtre tutucusu Norveç’de NILU’dan temin edilmiştir. Aerosol örnekleme sisteminin diğer bir parçası olan ön impactorlu giriş sistemi hiçbir yerde satılmamaktadır. Bu giriş Kocaeli’nde hassas tornalar yardımıyla imal ettirilmiştir.

Bütün örnekleme sistemleri, bir araya getirildikten sonra, istasyonlara gönderilmeden önce yan yan çalıştırılmıştır. Beş gün süren bu ön çalışmada toplanan 5 ince ve 5 kaba filtre örneğinde sadece kütleli konsantrasyon ölçümü yapılmıştır. Elde edilen sonuçlar bütün örnekleyiciler ile ölçülen kütleli konsantrasyonların %5 içersinde uyumlu olduğu görülmüştür.

Boyut dağılımlı partikül örnekleri istasyonlarda 24 saatlik periyotlar şeklinde toplanmıştır. Örnekleme her gün saat 10:00 da başlanılmış ve sonraki gün yine saat 10:00’da sonlandırılmıştır.



Şekil 2.11 Stack Filter Unit örnekleme sisteminde PM10 ön impactor ve filtre tutucusu



Şekil 2.12 Kaskat filtre tutucusu ve polikarbonat filtreler



Şekil 2.13 "Stack Filter Unitin" genel görünüşü

Örnekleyici durdurulduğunda; pompa üzerindeki bilgi ekranından okunan hacim, süre ve bitiş akış hızı değerleri ve 24 saatlik örnekleme sürecindeki gözlemlenen meteorolojik olaylar (yağış, rüzgar vb) ve filtre numaraları "Filtre Arazi Bilgi Formu" üzerinedeki ilgili yerlere işlenmiştir. Bu işlemden sonra filtre tutucu PM10 pre-impactor'dan çıkartılarak ilgili filtrelere ait "Filtre Arazi Bilgi Formu" ile birlikte polietilen poşetlere konulmuş ve filtrelerin taşıma sürecindeki muhtemel kontaminasyonu önlemek için yine ısı ile kapatılmıştır. Örnekleme için hazırlanmış olan yeni bir filtre tutucu; PM10 pre-impactor içine yerleştirilerek o gün için tekrar örnekleme başlanılmıştır. Toplanan örnekler her 7 günde bir Ankara'ya gönderilmiştir.

2.2.3. İstasyondan gelen örneklerin analize hazırlanması

Örnekleme işleminden sonra laboratuvarlarımıza gönderilen filtreler, şartlandırma haznesinde aynı şartlarda tekrar 24 saat şartlandırılmıştır. Şartlandırma işleminden sonra kaba ve ince filtreler tekrar hassas terazi ile tartılmıştır. İlgili filtrelerin son tartım sonucundan, ilk tartım sonucu çıkartılarak filtre üzerinde toplanan partikül madde kütlesi hesaplanmıştır.

Aerosol örneklerinin analizlerinin yapıldığı EDXRF cihazı herhangi bir ön işlem gerektirmediğinden, örneklere tartımın ardından petri kutularına konularak XRF analizi için Türkiye Atom Enerjisi Kurumu'na bağlı olan Ankara Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi'ne analiz edilmek üzere gönderilmiştir.

2.3. Yağmur örneklerinin toplanması

Bu çalışmada yağmur örnekleri Meteoroloji Genel Müdürlüğü'ne (MGM) ait istasyonların bazılarında toplanmıştır. Türkiyede MGM tarafından çalıştırılan yedi istasyon bulunmaktadır. Bu istasyonlar Amasra, Antalya, Balıkesir, Çatalca (İstanbul), Çamkoru, İzmir ve Marmaris'te bulunmaktadır. Bu çalışmada Antalya ve Trabzon istasyonları kullanılmıştır. Kırklareli ve Boluda ise kendi yağmur örnekleyicilerimiz kullanılmıştır. Esasında, kendi örnekleyicilerimiz ile MGM istasyonlarında bulunan yağmur örnekleyiciler farklı cihazlar değildir. Yağmur suyu örnekleme ve analizinde, yağmurdaki element konsantrasyonları çok düşük olduğundan, kontaminasyon olasılığına karşı çok dikkatli çalışılmıştır.

Yağmur örnekleri 3 – 4 farklı şekilde toplanabilmektedir. Bunlardan en basiti bir şişe ve huniden oluşan örnekleme sisteminin sürekli olarak atmosfere açık tutulması ve belli aralıklarla şişe ve huninin değiştirilmesini içeren bir sistemdir. Toplam (bulk) örnekleme olarak bilinen bu yöntemde yağ – kuru çökeltme ayırımı yapılmadan çökeltme örnekleri "yağ + kuru" şeklinde toplanmaktadır. Yağmur yağdığı sırada yağmurla çökeltme kirlenimler (yağ çökeltme) yağmadığı zaman da kuru çökeltme örnekleri toplanmaktadır. Örnekleyiciler 15 günlük sürelerle

değiştirildiğinden aynı bir şişede toplanmış olan hen kuru hem de yağ çökeltme örnekleri bulunmaktadır.

İkinci bir örnekleme şekli yağ çökeltme örneklemesidir. Bu tür örneklemede de örnekleycinin üzerinde yağmur algılayabilecek bir sensor bulunmaktadır. Bu sensorun yardımıyla örnekleycinin üzeri yağmur yağmadığı zamanlarda kapalıdır. Bu şekilde, yağmurun olmadığı sürelerde örnekleycinin içersine kuru çökeltmenin girmesine izin verilmemiş olur. Sensor yağmur yağdığını hissedince kapağı açmakta ve yağmurun (diğer bir deyişle yağ çökeltmenin) bir huniden geçerek örnekleme şişesinde toplanmasını sağlamaktadır. Bu tür örnekleycilere “yağ örnekleyci” (wet-only sampler) denmektedir.

Diğer bir örnekleme türü yağ çökeltme ve kuru çökeltme örneklerinin ayrı, ayrı kaplarda toplandığı “yağ ve kuru” örnekleme türüdür. Bu tür örneklemede kullanılan cihazlar iki farklı bölümden oluşmaktadır. Yine üzerindeki bir yağmur sensoru vasıtasıyla yağmurun yağdığı algılandığında kapak yağ çökeltme bölümünü açmakta, kuru çökeltme örnekleme bölümünü ise kapatmaktadır. Bu şekilde yağmur yağdığı süre zarfında yağmur yağ çökeltme bölümünde bulunan bir huniden geçerek, örnekleme şişesine yönlendirilmekte ve burada toplanmaktadır. Sensor yağmurun durduğu sinyali verince de, kuru çökeltme bölümünü kapatan kapak harekete geçerek kuru çökeltme bölümünü açmakta, yağ çökeltme bölümünü ise kapatmaktadır. Dolayısı ile yağmur yağmadığı sürece örnekleycideki yağ çökeltme bölümü kapalı olduğundan toz-toprağın yağ çökeltme bölümüne girmesi önlenmektedir.

Yağmur suyu örneklerini toplamakta kullanılan diğer bir sistem de ardışık yağmur suyu örnekleycileridir. Bu tür örnekleycilerde yağmurun başladığı bir sensor vasıtasıyla belirlendikten sonra yağmur belirli hacimlerde farklı örnekleme şişelerine toplanmaktadır. Örneğin ilk 50 mL bir şişeye toplanmakta, ikinci 50 mL farklı bir şişeye toplanmakta ve örnekleme işlemi bu şekilde sürmektedir. Yağış yoğunluğuna ve süresine bağlı olmak üzere bir yağmur 10 – 15 farklı bölümde toplanabilir. Bu tür örnekleme bulut içi ve bulut altı olayları birbirinden ayırmak için çok yararlı olmakla birlikte, örnek sayısını ve dolayısı ile analiz yükünü 10 – 15 kere arttırmak gibi bir dezavantajı da bulunmaktadır.

Bu çalışmada gerek MGM ve gerekse tarafımızdan yaptırılarak kullanılan örnekleyciler yağ ve kuru örnekleycilerdir. Ancak kuru çökeltme örnekleri tarafımızdan analiz edilmemiştir. Dolayısı örnekleyciler bu çalışma açısından yağ örnekleyciler olarak kullanılmıştır. MGM kuru çökeltme örneklerini rutin olarak iyonlar için analiz etmektedir ancak sonuçlar bu çalışmada kullanılmamıştır.

Yağmur suyunun örneklenmesi; örnek şişelerinin hazırlanması ve alana yollanması, alanda örneklerin toplanması ve toplanan örneklerin laboratuvara yollandıktan sonra analize hazırlanması olmak üzere üç bölümde tartışılabilir.

Çalışmanın başlangıcında MGM'ne ait örnekleyicilerde örnekler büyük polietilen torbalara, bizim örnekleyicilerimizde ise 1 L kapasiteli yüksek yoğunlukta polietilen şişelere toplanmaktaydı. Ancak polietilen torbalarda örnekleme çok pratik olmasına rağmen, kontaminasyona çok açık olduğundan çalışmanın başlangıcında MGM cihazları modifiye edilerek örnekleri, bizim örnekleyicilerimizde olduğu gibi, 1L kapasiteli şişelere toplar hale getirilmiştir. Bu nedenle örnek toplamaya hazırlık işlemleri temel olarak örnekleme şişelerinin temizlenmesini içermektedir.

Örnek şişelerinin hazırlanması iki farklı şekilde olmaktadır. Eser element analizi için toplanan örneklerde kullanılan örnekleme şişelerinin içersine %5 ultra saf HNO₃ çözeltisi konmakta ve bu şişeler yine %5 HNO₃ çözeltisi doldurulmuş kovalarda 24 saat süre ile bekletilmektedir. Bu süre sonunda şişelerdeki asit çözeltisi boşaltılmakta ve şişeler önce 5 kere destile edilmiş su ile ve daha sonra yine 5 kere destile – deiyonize edilmiş su ile çalkalanmakta ve temiz odada kurulumaktadır. Kurutulan şişelere 10 mL %5 ultra saf HNO₃ eklendikten sonra kapakları sıkıca kapatılmakta, kapağın üzerien şişe bilgileri yazıldıktan sonra şişe polietilen bir torba içersine konarak torbanın ağzı ısı ile kapatılmaktadır. Bundan sonra şişe ikinci bir polietilen torbaya konmakta, bu torbaya örnekleme formu da konulup, ağzı ısı ile kapatıldıktan sonra, örnekleme şişesi alana yollanmaya hazır hale gelmektedir.

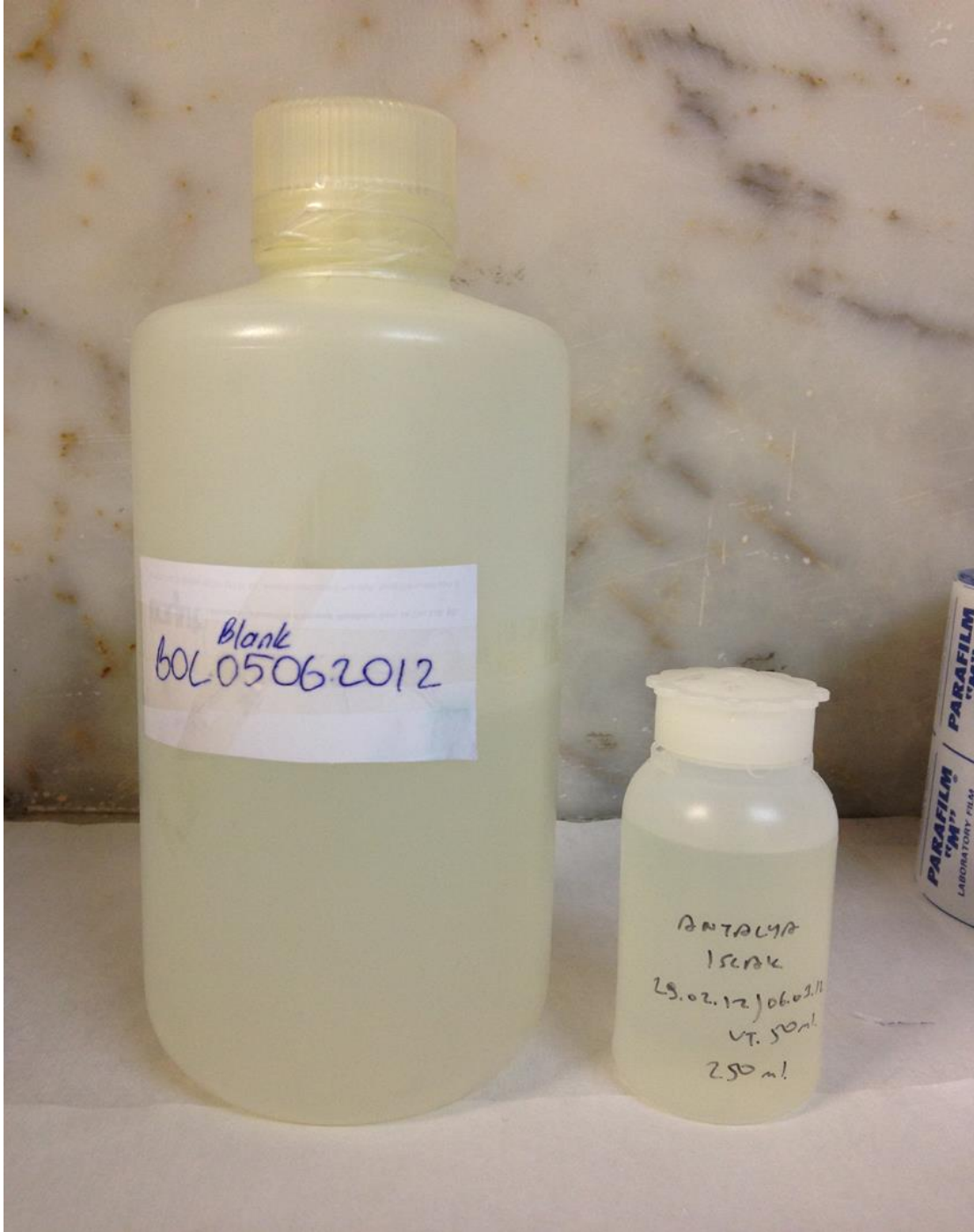
Hazırlanan şişeler bu proje çerçevesindeki istasyonlara tarafımızdan yollanmaktadır. MGM tarafından çalıştırılan istasyonlar için ise (Antalya ve Trabzon) ise şişeler MGM'ne yollanmakta ve istasyona MGM tarafından gönderilmektedir. Ancak bütün şişelerin temizlenme işlemleri ODTU laboratuvarlarında yapılmaktadır.

Çalışmada iki tür örnekleme şişesi kullanılmıştır. Bunlardan birincisi, yukarıda anlatılan, doğrudan doğruya istasyonlara yollanan 1L kapasiteli örnekleme şişeleridir. Diğeri ise MGM den bize örnek transferinde kullanılan 125 mL kapasiteli şişelerdir. MGM istasyonlardan gelen örneklerin bir bölümünü kendi iyon analizleri için saklamakta bir bölümünü de proje ekibine ICPMS analizleri için yollamaktadır. ICPMS analizleri için bize yollanan örnekler yaklaşık 50 mL hacminde olmaktadır. Bu örneklerin proje ekibine aktarılması 125 mL kapasiteli şişelerde yapılmaktadır. 125 mL kapasiteli bu transfer şişelerine de büyük şişelerle aynı temizleme prosedürü uygulanmaktadır. Çalışmada kullanılan örnekleme şişelerinin fotoğrafları Şekil 2.6'de gösterilmiştir.

Alana ulaşan örnekleme şişeleri zamanı geldiğinde alan teknisyeni tarafından torbalarından çıkartılmakta ve örnekleme cihazına yerleştirilmektedir. Şişeler örnekleme cihazında bir sonraki yağmura kadar kalmaktadır. Yağmurun durmasını takiben, yağmur örneğini içeren şişeler yeni bir örnekleme şişesi ile değiştirilmektedir. Örnekleyciden alınan ve içersinde yağmur örneği bulunan şişe ile ilgili örnekleme formu doldurulmakta ve şişe, aynen gönderilirken yapıldığı gibi, iç içe iki torbaya konularak torbaların ağızları ısı ile kapatılmaktadır. Doldurulmuş örnekleme formu örnekleme şişesi ile birlikte ikinci torbaya konmakta ve toplanan örnekler her onbeş günde bir Ankara'ya yollanmaktadır.

Gerek grubumuz tarafından ve gerekse MGM tarafından çalıştırılan istasyonlarda örnekler "yaş ve kuru" yağış örnekleycileri ile toplanmaktadır. Dereköy ve Antalya istasyonlarında kullanılan yağış örnekleycileri Şekil 2. 7 de gösterilmiştir. Dereköy istasyonundaki yağış örnekleycisi tarafımızdan yaptırılmış ve yine tarafımızdan çalıştırılmaktadır. Antalya'daki örnekleyci ise MGM tarafından yaptırılmış ve çalıştırılmaktadır. Şekilden de görülebileceği ikisi de temel olarak benzer örnekleycilerdir ancak aralarında ufak tefek farklar mevcuttur.

Örnekleme sistemi, yağ örnekleme bölmesi, kuru çökelme örnekleme bölmesi, bunları gerekli zamanlarda kapatan bir kapak ve yağmuru algılayabilen bir sensordan oluşmaktadır. Bu bileşenler Şekil 2.8'de Dereköy istasyonundaki örnekleyci üzerinde gösterilmiştir. Yağmurun başladığı sensor tarafından hissedilmekte ve kapak kuru çökelme örnekleme bölmesinin üzerine yönlendirilmektedir. Bu şekilde yağmur yağdığı sürede kuru çökelme örnekleme bölmesi kapalı durumda kalmaktadır. Yağmurun durduğu sensor tarafından algılanınca kapak yağ çökelme örnekleme bölmesi üzerine yönlendirilmektedir. Dolayısı ile yağ çökelme örnekleme bölmesi yağmur yağmadığı zamanlarda kapalı olmakta ve bu şekilde kuru çökelenin yağ çökelme örnekleme bölmesine girmesi engellenmektedir. Böyle bir mekanizma ile yağ ve kuru çökelme örnekleri ayrı ayrı toplanabilmektedir. Bu çalışmaya kuru çökelme örnekleri dahil edilmediğinden toplanan kuru çökelme örnekleri analiz edilmemiştir. MGM istasyonlarında toplanan kuru çökelme örnekleri rutin olarak anyon ve katyonlar için analiz edilmektedir. Ancak o sonuçlar da bu raporda tartışılmamıştır.



Şekil 2.14 Yağmur örneklemesinde kullanılan şişeler

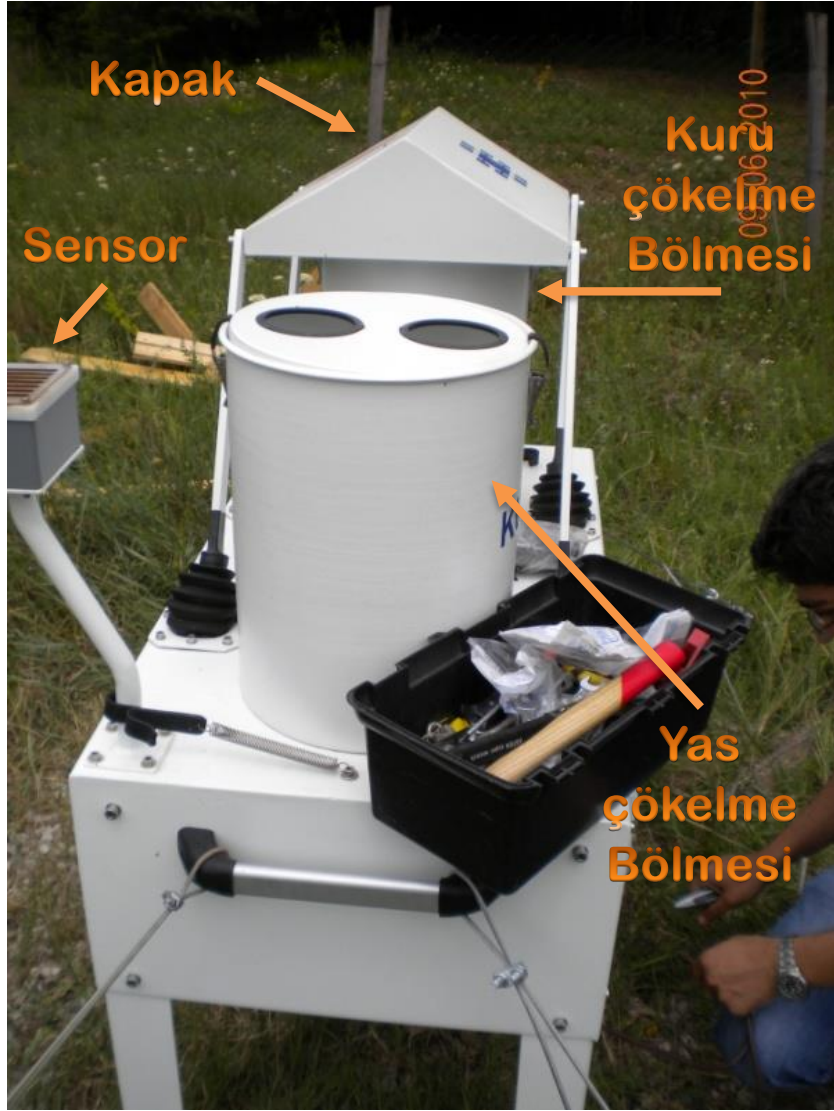
Antalya



Dereköy



Şekil 2.15 Antalya ve Dereköy istasyonlarında kullanılan yağmur suyu örnekleyicileri



Şekil 2.16 Yağış örnekleycisinin bölümleri

Bu çalışmada kullanılan yağış örnekleycileri Türkiyede imal edilmiştir. MGM tarafından bu çalışma dışında da kullanılan bütün örnkleyiciler yerli malıdır. Bu şekilde örnekleycilerin fiyatları yurt dışından getirlienlerin üçte biri kadar düşük olmaktadır. Ayrıca MGM'de bu konuda uzmanlaşmış personel sayesinde her hangi bir bozukluk olması durumunda cihazlara çok kısa bir sürede müdahale edilebildiğinden örneklemelemlerde kesintiler çok aza indirilmiştir. ODTÜ tarafından yaptırılan cihazlar Ankara'da bulunan DİGİTEST şirketi tarafından imal edilmiştir. MGM cihazlarının bir bölümü yine DİGİTEST tarafından yapılmış diğer bir bölümü de artık mevcut olmayan başka bir şirket tarafından üretilmiştir.

Daha önce de belirtildiği gibi, cihazlar çalışma prensibi olarak aynı olsa da tasarımları açısından ufak farklılıklar içermektedir. MGM cihazları gerek yağ ve gerek kuru çökeltme örnekleme bölümleri birer kovadan oluşmaktadır. Önceleri her ik bölme de büyük polietilen poşetler konmakta ve yağ ve kuru çökeltme örnekleri bu polietilen torbalar içerisinde toplanmaktaydı. Torbalar bir kullanımdan sonra atıldığından, kontaminasyonu en aza indirme adına akıllı bir teknik gibi görünen bu yöntemde, özellikle düşük yağ miktarlarında örneklerin kantitatif olarak transferi mümkün olmamaktadır. Zaman içerisinde MGM ufak tasarım değişiklikleri ile yağ çökeltme örneklerinin, yağ çökeltme bölümüne konan bir huniden geçirilerek yüksek yoğunluklu polietilen şişerde toplanmasını sağlamıştır. Bu şekilde bir örnekleme dünyadaki genel uygulama ile daha uyumlu olmuştur.

Eser element analizlerinde kullanılacak yağmur suyu örneklerine bir an önce, hatta mümkünse örnekler toplanmadan, seyreltik ultrasaf asit ilave edilmesi gerekmektedir. Aksi takdirde toplanan örneklerde düşük düzeylerde bulunan metallerin yüzeylere adsorpsiyonu söz konusu olmaktadır (Debruyne ve Rasmussen, 1999; McGuire ve d., 1992). Asitleme işlemi MGM tarafından toplanan örneklerde, örnekler alanda toplanıp Ankara'daki laboratuvara geldikten sonra yapılmaktadır. Bu literatürde sıklıkla görülen bir yöntemdir. Bizim kendi örnekleycilerimiz ile topladığımız örneklerde asit şişelere istasyona gönderilmeden önce eklenmektedir. Bu da literatürde görülen bir yöntemdir. Yalnız bizim uyguladığımız asitleme işleminin bir sakıncası asit ilave edilmiş şişelere toplanan örneklerde iyon analizi yapılamamasıdır. Şişelere HNO₃ ilave edildiğinden, bu örneklerde NO₃⁻ analiz yapılması anlamsız olmaktadır. Bu nedenle bizim örnekleycilerimiz biraz modifiye edilmiştir. Yağ çökeltme örneklerini toplandığı bölme de iki tane huni yerleştirilmiş ve bu şekilde örnekler iki farklı şişeye toplanmıştır. Şişelerden birisi daha önceden asitlenmiş bir şişedir. Bu şişeye toplanan örneklerde eser element analizi yapılmıştır. Diğer şişeye ise herhangi bir asit ilave edilmemiştir. Bu şişede toplanan örneklerde ise iyon analizleri yapılmıştır. Asit ilave edilmiş olan şişelerle ilave edilmemiş olan şişelerin istasyonlarda bir birine karışmaması için içersine seyreltik HNO₃ ilave edilmiş şişelerin kapaklarının üstü kırmızıya boyanmıştır. MGM tarafından çalıştırılan istasyonlarda, örnekler toplanıp Ankara'ya geldikten sonra ikiye bölünüp bir bölümü asitlenmektedir. Dolayısı ile MGM cihazlarına iki farklı şişeye gerek olmamaktadır.

Örnekler Ankara'ya geldikten sonra eser element analizleri için ODTÜ Çevre Mühendisliği Bölümü laboratuvarlarında, iyon analizleri için ise MGM laboratuvarlarında işlem görmüştür.

MGM'ne ulaşan örnekler ikiye bölünerek bir kısmı iyon analizi için ayrıldıktan sonra diğer bölümüne HNO₃ ilavesi yapılmış ve asit ilave edilen örneğin 50 mL kadarı ICPMS ile eser element analizi yapılmak üzere ODTÜ, Çevre mühendisliği Bölümüne gönderilmiştir.

Anyon ve katyon analizi için ayrılan bölüme, süzme dışında herhangi bir işlem yapılmamıştır. Ancak eser element analizi için MGM den ODTU'ye gelen örnekler, kendi çalıştırdığımız istasyonlardan gelen örneklerle birlikte çok kapsamlı bir hazırlık işleminden geçirilmiştir.

Gelen örnekler, süzme, çözünürleştirme ve tekrar süzme olmak üzere 3 adımlı bir işleminden geçirilmiştir. Örnekler önce delik çapı 0.47 mm olan bir membran filtreden süzölmüştür. Bu şekilde yağış örneklerindeki eser elementlerin partiküler ve çözünmüş fazları ayrılmış olmaktadır. Filtrenin altına geçen çözünmüş fraksiyon 125 mL kapasiteli polietilen bir örnekleme şişesine aktarılarak saklanmaktadır.

Süzme işlemi sonunda elementlerin çözünmeyen bölümleri filtrenin üzerinde kalmaktadır. Partiküler fazı içeren filtreler, ikinci aşamada, BERGHOF SW-2 modeli bir mikrodalga çözünürleştirme istemi kullanılarak, HNO₃ – HF karışımı ile çözünürleştirilmiştir. Kullanılan çözünürleştirme sistemi Şekil 2.9, de gösterilmiştir. Mikrodalga çözünürleştirme sisteminde kullanılan üç adımlı ısıtma programı Tablo 2.1 de verilmiştir.

Çözünürleştirme işlemi için Şekil 2.9'de görülen teflon kaplara 5 mL ultrasaf HNO₃ ve 1 mL MERC suprapure HF konmaktadır. Tablo 2.1 de gösterilen program ile örnekler 30 dakika kadar bir sürede çözünürleştirilebilmektedir. Ancak elde edilen çözelti HF içermektedir. HF ICPMS sisteminin cam ve quartzdan yapılmış optik sistemine zarar verebileceğinden, örnekler analize hazır hale gelmeden HF'in uçurulması gerekmektedir. Bunun için 12 tane teflon kap yaptırılmıştır. Örnekler bu teflon kaplara transfer edilmekte ve yaklaşık-kuruluğa kadar uçurulmaktadır. Daha sonra örnekleri içeren teflon kaplara 5 mL ultra saf HNO₃ eklenerek örnekler tekrar yaklaşık-kuruluğa kadar uçurulmaktadır. HNO₃ ilavesi ve uçurma işlemi bir kez daha tekrarlandıktan sonra bütün örnekler direnci >16 MΩ olan destile-deiyonize edilmiş su ile 50 mL'ye tamamlanmaktadır. Örneklerin uçurulduğu teflon kaplar Şekil 2.10 de gösterilmiştir.

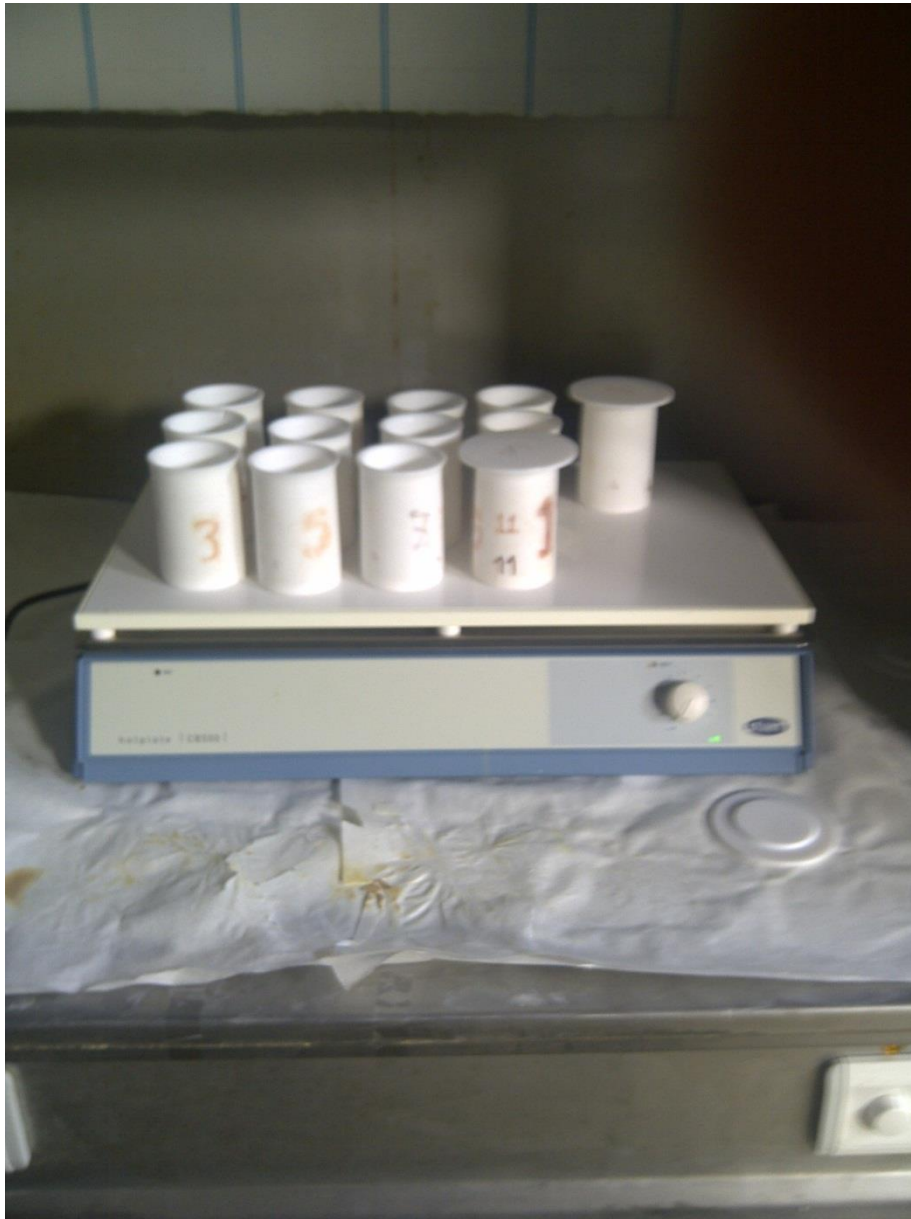
Şekil 2.9 de gösterilen mikrodalga taretinde 10 teflon kap mevcuttur. Bunların bir tanesine kör örnek konduğundan her seferde 9 örnek analizi mümkün olmaktadır. Çözünürleştirme işlemi 30 dakikada tamamlansa bile kapların oda sıcaklığına soğuması bir saat sürmektedir.



Sekil 2.17 Calismada kullanılan mikrodalga cözünürleştirme

Tablo 2.1 Mikrodalga çözünürleştirme programı

	Sıcaklık (°C)	Güç	Zaman Dak
Adım 1	100	40%	6
Adım 2	130	45%	6
Adım 3	180	90%	6



Şekil 2.18 Çalışmada kullanılan HF uçurma kapları

Bunu takiben HF in uçurulması ve her çözünürleştirme işleminden sonra taretin bir kez de, temizlemek amacıyla boş olarak aynı işlemlere tabi tutulması gibi işlemler göz önüne alındığında günde iki set örneğin çözünürleştirilmesi mümkün olmaktadır. Günde 18 örneğin çözünürleştirilmesi çok az olduğundan ikinci bir taret temine yoluna gidilmiştir. Bu şekilde günde 4 defa olmak üzere 36 kadar örneğin çözünürleştirilmesi mümkün hale gelmiştir.

Yağmur suyunda ölçülen eser element düzeyleri çok düşük olduğundan kullanılan asit ve suyun kontaminasyona neden olmaması için çok saf olması gerekmektedir. HF Merc firmasında suprapure seviyesinde temiz olarak alınmıştır. HNO₃ ise laboratuvarımızda AHF, Model SAP-902 kaynamadan destilasyon (sub-boiling distilasyon) tekniği kullanılarak hazırlanmaktadır. Bu amaçla kullanılan cihaz Şekil 2.1'de gösterilmiştir.

2.4. Aerosol Örneklerinin Analizi

Bu çalışmada örnekler beş değişik analitik teknik kullanılarak analiz edilmiştir. Aerosol örneklerinin eser element analizlerinde X-ışınları floresans (EDXRF) tekniği kullanılmıştır. Bu teknikle toplanan aerosol örneklerinde Na, Mg, Al, Si, S, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, As, Ba, Pb olmak üzere 18 element ölçülmüştür. Toplanan aerosol örneklerinin hepsinde bu eser elementlerin yanında Atelometre cihazı kullanılarak elementel karbon ölçümü de yapılmıştır. Yine aerosol örneklerinin bir bölümü Reno (Nevada, ABD) da bulunan Desert Resarch Institute a gönderilmiş ve orada termogravimetrik yöntem ile elementel ve organik karbon düzeyleri ölçülmüştür.

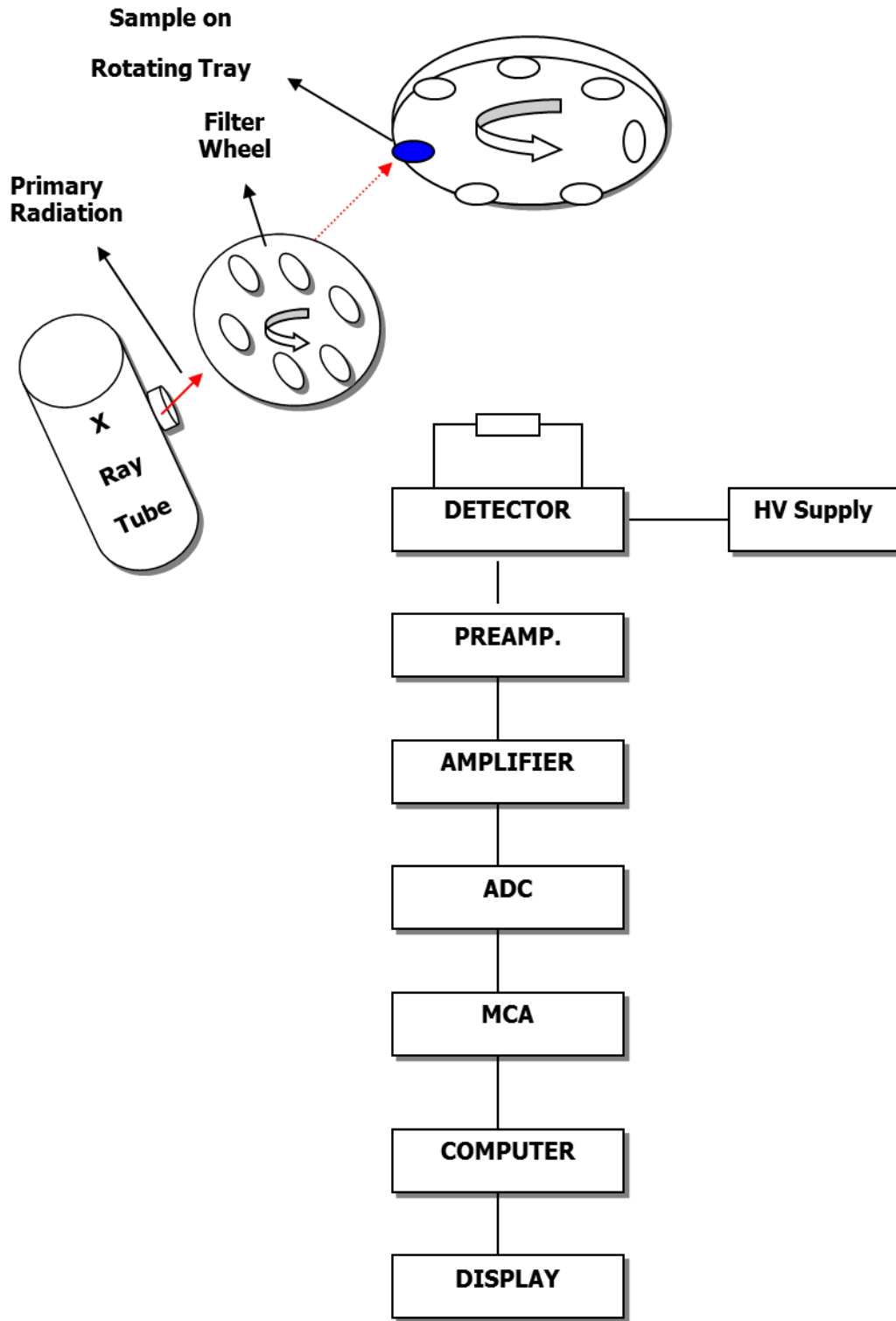
İstasyonlarda toplanan yağmur suyu örneklerinin tamamı ICP-MS tekniği kullanılarak Li, Na, Mg, Al, S, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ge, As, Se, Rb, Sr, Y, Mo, Cd, In, Sn, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Hf, Ta, W, Tl, Pb, Bi, Th, U olmak üzere 51 element için analiz edilmiştir. Yağmur suyu örneklerinde ayrıca iyon kromatografisi tekniği kullanılarak anyon ve katyonlar da ölçülmüştür. Ölçülen anyon ve katyonlar Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺ olmuştur.

X-ışınları Floresan Dağılımlı Spektrometre (EDXRF)

Toplanan aerosol örneklerinde Na, Mg, Al, Si, S, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, As, Ba, Pb düzeyleri Oxford ED-2000, dalgaboyu saçılımlı X-ışınları Floresan Spektrometresi (EDXRF) ile ölçülmüştür. Analizlerde kullanılan spektrometrenin bir şeması Şekil 2.2 de gösterilmiştir.



Şekil 2.19 Çalışmada kullanılan "sub-boiling destilasyon ünitesinin fotoğrafı



Şekil 2.20 XRF şematik gösterim

Cihazın temel bileşenleri radyasyon kaynağı, gümüş bir anot, x-ışınları tüpü, otomatik örnek değiştirme mekanizması (8li örnek tepsi), yükseltici (amplifier),

ile sıvı azot soğutmalı lityum katkılı silisyum katı-faz detektörü ve XperEase analiz programıyla yüklenmiş bir bilgisayardan oluşmaktadır. Cihaza ait teknik özellikler Tablo 2.1’te verilmektedir. Cihaza ve örnek tepsisine ait resimler sırasıyla Şekil 2.3 ve 2.4’da verilmektedir.

Tablo 2.2 Oxford ED–2000 XRF Cihaz Spesifikasyonları

Cihaz Bölümleri	Değerler
X-Işınları Tübü	
▪ En yüksek güç	50 W
▪ Enyüksek voltaj	50 kV
▪ Max. Akım	1000 mA
Si(Li) Katı hal detektörü	
▪ Çözünürlük	160 eV
▪ Soğutma şekli	Sıvı azot
Örnek tepsisi	
▪ İç çapı	47 mm
▪ Dış çapı	50.5 mm
▪ Kalınlık	1 mm



Şekil 2.21 The Oxford ED-2000 XRF cihaz



Figure 2.22 EDXRF cihazındaki sekiz pozisyonlu örnekleme tepsi

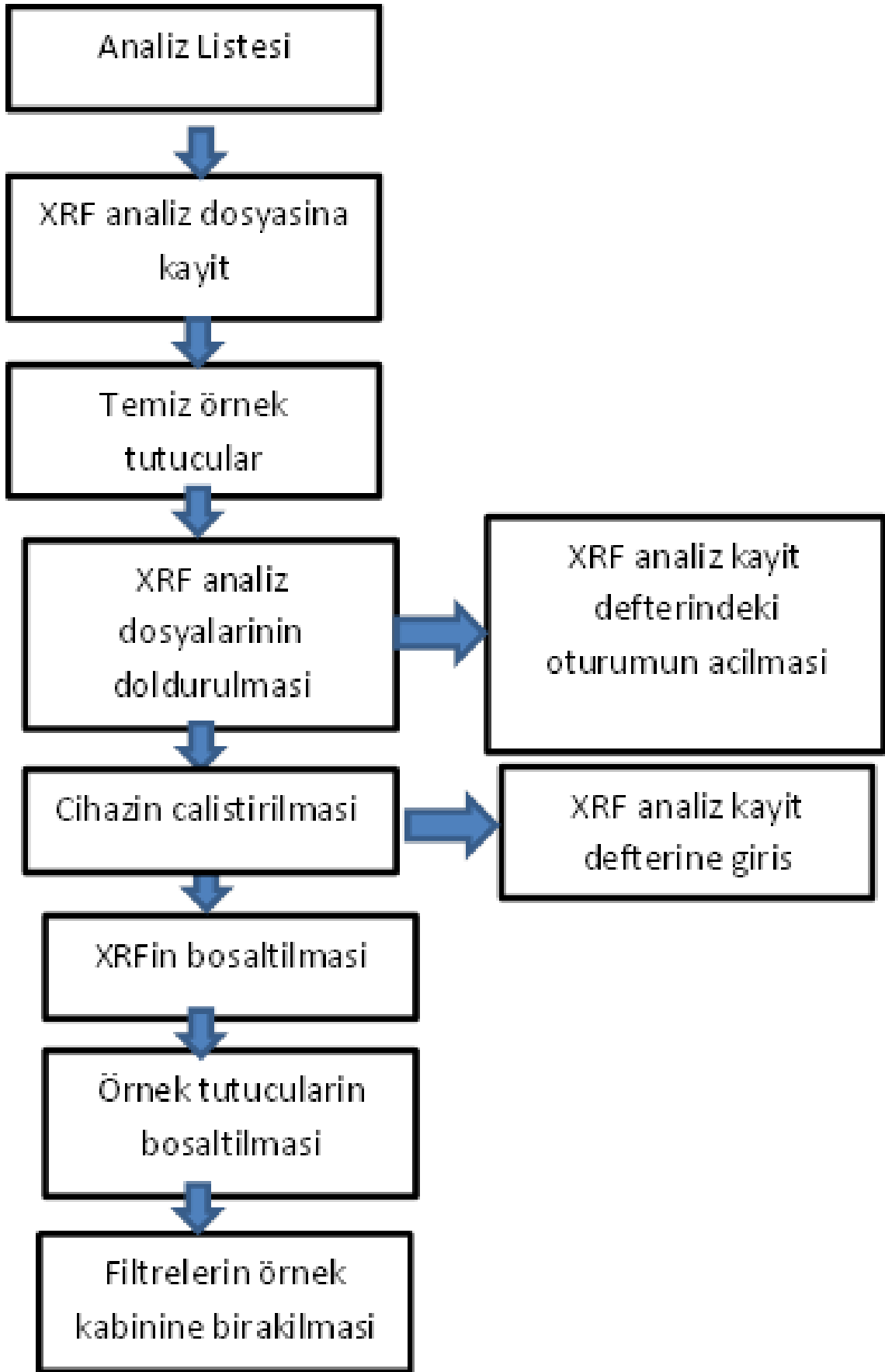
XRF analiz sürecinde uygulanan prosedür Şekil 2.5'de gösterilmektedir. Petri kaplarından alınan filtreler, örnekleme yüzeyleri aşağı bakacak şekilde polikarbonat filtre kasetlerine yerleştirilmektedir. Polikarbonat bir tutma halkası filtrenin kasetin dibinde düz kalmasını sağlamaktadır. Daha sonra bu kasetler X-ışınları odasında döner kaset tutucuya yerleştirilmektedir. Kaset tutucuya bir seferde sekiz filtre yüklenebilmektedir. Çok sayıda örneğin analizinde örneklerin birbirine karışması önemli bir sorun haline gelebildiğinden, filtrelerin etiketlerinin döner tutucudaki yerlerine uygun olacak şekilde tanımlanmasına ve bu şekilde kayıt altına alınmasına özen gösterilmektedir. Örnekleme odasının basıncı 10^{-3} tor düzeyine kadar düşürüldükten sonra örneklerin pozisyonları ve uyarılma şartları bilgisayar programı vasıtasıyla kontrol edilmekte ve örnekler doğrudan X-ışınları tüpünün olduğu birime doğru yönlendirilmektedir. Sekiz örneğin analizi için 140 dakika gerekmektedir. Dolayısı ile bu teknikte her bir örneğin 18 element için analizi 17 – 18 dakika kadar sürmektedir. Bir örnek setinin analizi tamamlandıktan sonra, örnek tutucular temizlenerek yeni örnek seti için sistem hazır hale getirilmektedir. Pratikte günde dört örnek seti analiz edilebilmekte bu şekilde bir gün içerisinde 32 örnek analiz edilebilmektedir.

Elementlerin X-ışınları ile uyarılmaları atom numaralarına bağlı olduğundan, farklı elementler için farklı uyarma koşullarının uygulanması gerekmektedir. Bu çalışmada kullanılan spektrometre de, her bir örnek için 17 dakika süren analiz süresince Değişik elementler için optimal şartları sağlayacak dört farklı ışınlama programı uygulanmaktadır. Dört ışınlama türünde kullanılan koşullar Tablo 2.2`te verilmiştir. Tablodan da görülebileceği gibi değişik ışınlamalarda farklı elementler sayılmakta ve konsantrasyonları hesaplanmaktadır.

Bu çalışmada, EDXRF ile Mg, Al, Si, P, S, Cl, K, Ca ve Ti`un K çizgileri, Cr, Fe, Mn, Ni ve Br`un K- α çizgileri ve Pb`nin L- β çizgisi kullanılmıştır. Şekil 2.6`de XRF`e ait örnek bir spektrum verilmektedir.

EDXRF Spektrometrenin Kalibrasyonu

Literatürde EDXRF`in kalibrasyonu için genellikle; elementlerin vakum-altında çökeltilmiş mikrometre kalınlığındaki ince filmleri (Marcazzan vd., 2004; Marcazzan, 1998; Bandhu vd., 1996; Lopes vd., 2006); NIST gibi enstitülerden temin edilen ince cam filmler (Lindgren vd., 2006; Chimidza vd., 2001; Henriksson vd., 2007; Lindgren vd., 1998; Holynska vd., 1997) ve filtrelerin üzerine standart çözeltilerin eklenmesi sonucu hazırlanan özel üretim standartlar (Shuvayeva vd., 1998; Braziewicz vd., 2004) olmak üzere üç çeşit yöntem kullanılmaktadır.



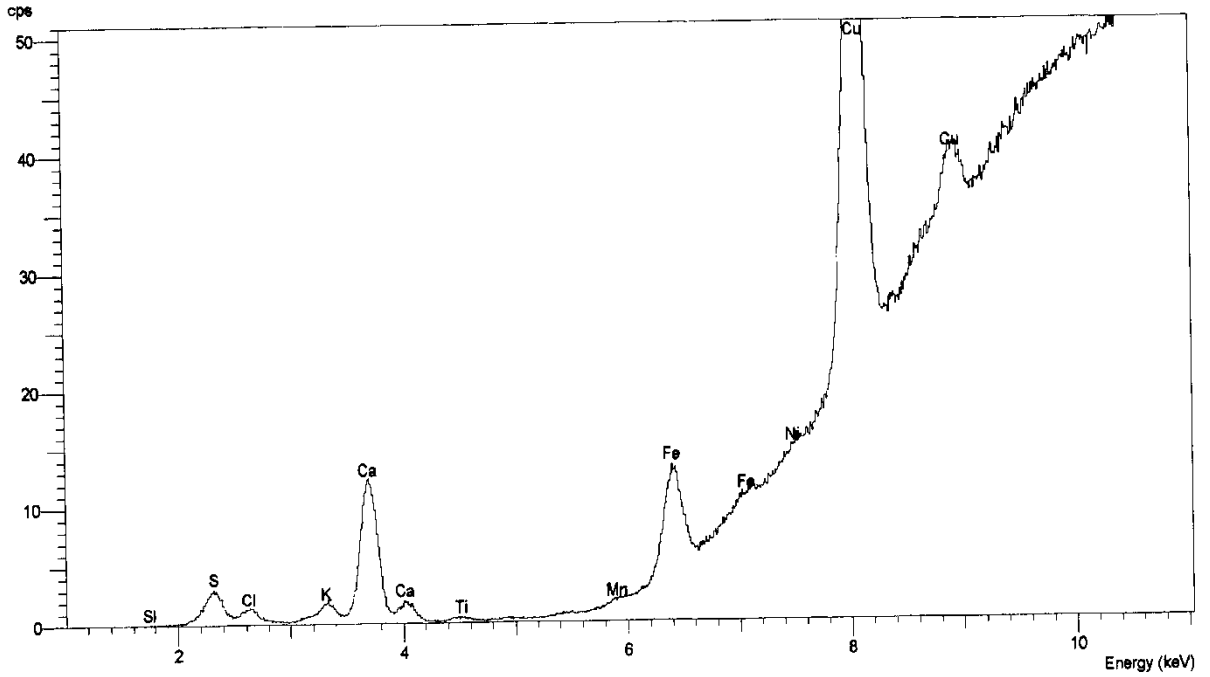
Şekil 2.23 Aerosollerin EDXRF analizi sırasında kullanılan prosedür

Tablo 2.3. OXFORD ED-2000 X-ray fluorescence spektrometresinde deęişik elementler için uygulanan uyarma koşulları

Parametre	Uyarma Türü			
	1 (VLE)	2 (S)	3 (St)	4 (ME)
Tüpteki voltaj (kEV)	2.5	10	15	22.6
Tüpteki akım (mA)	900	900	1000	494
Filtre Kalınlığı	Yok	ince Al	Kalın Al	ince Ag
Analiz Süresi (s)	150	100	100	100
Enerji aralığı	Na - K	K - Cr	Cr - Fe	Fe - Mo
Analiz edilen elementler	Mg, Al, Si, P, S, Cl	K, Ca	Ti, Cr, Mn	Fe, Ni, Cu, Zn, Br, Pb

Bu yöntemler arasında vakum altında çökeltilmiş standartlar çok sayıda elementi kapsadıklarından dolayı çoklu-element analizi için uygun olmalarına rağmen, her bir elementin kalibrasyonu için ayrı bir standart filmi de kullanılabilir. Bu yöntemler arasında vakum altında çökeltilmiş standartlar çok sayıda elementi kapsadıklarından dolayı çoklu-element analizi için uygun olmalarına rağmen, her bir elementin kalibrasyonu için ayrı bir standart filmi de kullanılabilir.

XRF teknięi yüzeye çok duyarlı bir yöntemdir. X-ışınlarının penetrasyon gücü çok sınırlı olduğundan kalın ve parçacıkların yüzeyden farklı uzaklıklarda olduğu (Whatman 41 gibi) bir filtrenin XRF analizi çok ciddi sıkıntılar içermektedir (Haupt ve d., 1995; Davis ve d., 1977; Öztürk ve d., 2011). Bu çalışmada örnekler Nucleopore filtreler üzerinde toplanmıştır.



Şekil 2.24 Tipik bir XRF spektrumu

Nucleopore filtreler 50 μm kalınlığında ve polikarbonat yapısındadır. 50 μm kalınlık bu filtreleri XRF analizi için çok uygun hale getirmektedir. Whatman 41 türü selüloz fiber yapısındaki filtrelerin 300 μm kalınlığında olduğu düşünülürse, 50 μm kalınlığındaki polikarbonat filtrelerin XRF analizine neden daha uygun olduğu anlaşılabilir. Bu tür filtrelerde parçacıklar filtrenin üzerinde bir tabaka oluşturduklarından ve derine penetre etmeleri söz konusu olmadığından, x-ışınları bütün parçacıklara herhangi bir intensite kaybı olmadan ulaşmakta ve elementleri uyarabilmektedir.

Filtre matriksinin yanısıra, aerosollerin kimyasal içerikleri ve boyut dağılımları da analiz süresince X-ışınlarının filtre içerisindeki davranışını etkilemektedir. Aerosollerin parçacık boyutları ve içeriklerine ait olan düzeltmeler literatürde bulunmaktadır (Lodge, 1989). Literatürdeki çalışmalara göre, kalsiyum, sodyum ve klor büyük parçacık boyutunda olmalarından dolayı gelen radyasyonu dağıtarak XRF analizlerinde düşük sinyal/gürültü oranlarına sebep olmaktadır. Bu yüzden bahsi geçen elementler XRF analizinde en büyük düzeltmeye ihtiyaç duyan elementlerdir. Dolayısı ile EDXRF cihazının kalibrasyonu için analizi yapılacak örneklerin partikül boyutuna, içeriğine ve örneklemede kullanılan filtrenin yapısına benzer standartlar seçilmesi önemli bir gereksinimdir. Ancak her şeyiyle örneklere bezeyen standartların bulunması her zaman da mümkün olmamaktadır.

Bu çalışmada EDXRF cihazının kalibrasyonunda NIST SRM 8785 kullanılmıştır. Bu standart Paralel siklonlar vasıtasıyla PTFE filtreler üzerine atmosferden toplanmış PM2.5 aerosollerden oluşmaktadır. Gerek toplanma şekli ve gerekse toplandığı matris olarak örneklerle çok uyumlu bir standart olduğundan kalibrasyon için kullanılmıştır. NIST standardı XRF analizleri hedeflenerek hazırlandığından bu çalışmada analiz edilen örneklerle birebir uyum göstermiştir. SRM 8785 onsekiz eser element için tanımlanmıştır (certify). Bu nedenle çalışmada da SRM 8785`de tanımlanan elementlerin analizi hedeflenmiştir.

Kalibrasyon işlemi sırasında filtrenin ortadaki 3.1 cmlik bölümünden elde edilen sayım hızı (count sec⁻¹) ölçülmüştür. Örnek filtrelerdeki sayım hızları, her element için standarttaki "cps ng⁻¹ sec⁻¹" değeri kullanılarak hesaplanmıştır.

2.5. Yağmur suyu örneklerinin ICP-MS tekniği kullanılarak analizi

Bu çalışmada toplanan yağmur suyu örnekleri Orta Doğu Teknik Üniversitesi, Merkezi Laboratuvarında ICP MS tekniği kullanılarak 50 dolayında eser element için analiz edilmiştir. Kullanılan cihaz Perkin Elmer DC-II modeli bir ICPMS`dir.

Laboratuvarda ICP ölçümleri için gerekli en uygun fiziksel koşullar oluşturulmuştur. Bu amaçla sıcaklığın 15 – 30°C arasında kalması ve saatlik maksimum sıcaklık değişiminin 2.8°C`yi geçmemesi sağlanmıştır. Laboratuvarda nemin %30 - %50 arasında olması ve bu sınırların dışına çıkmaması sağlanmıştır. ICPMS laboratuvarına giren hava filtre edilerek ortamdaki partikül madde düzeyleri minimuma indirilmiştir. Bu özellikle atmosferde bolca bulunan Fe, Ca, K, Na gibi toprak kökenli elementlerin sağlıklı bir şekilde tayin edilmesi, açısından önemlidir. Kullanılan soğutma suyunun pH değeri 6.5 – 8.5 arasında tutulmakta ve sudaki ağır metallerin 1 ppm`in altında olmasına özen gösterilmektedir. Soğutma suyunun basıncı 344 ± 13 kPa`dır.

Cihazın çalıştırılması sırasında önce vakum sistemi çalıştırılmakta ve plazma yakılmaktadır. Bu aşmada hangi izotopların analiz edileceği, hangi mod da analiz yapılacağı gibi enstrümantal koşullar belirlenmektedir. Enstrümantal parametreler bir tür analiz için bir kere oluşturulduktan sonra saklanmakta ve ne zaman yağmur suyu analizi yapılırsa bu dosya çağırılarak kullanılmaktadır.

Daha sonra 30 dakika kadar cihazın ısınması için beklendikten sonra 10 ppb Mg, Cu, Rh, Cd, In, Ba, Ce, Pb and U elementleri içeren ELAN 6100 DRC Setup/Stab/Masscal çözeltisi kullanılarak ICPMS cihazı ayarlanmaktadır. Bu ayarlama işlemi bir ön-optimizasyon olarak düşünülebilir. Burada amaç tek yüklü atomik iyonlardan gelen sinyalin maksimize edilmesi ve ölçümlerde girişime neden olan poliatomik iyonların oluşumunu en aza indirmektir.

Ayarlama, torç pozisyonunun optimizasyonu, güç ve gaz akışlarının optimizasyonu, kütle kalibrasyonu, iyon optiğinin optimizasyonu, elektron yükselticisi voltajının optimizasyonu gibi işlemleri içermektedir. Bu çözeltinin kullanılmasındaki diğer bir amaç da çözünürlüğün kontrol edilmesidir. EPA tarafından geliştirilen protokollerde iyi çözünürlük %5 pik yüksekliğinde pik genişliğinin 0.75 amu'yu geçmemesi olarak tanımlanmaktadır. Bu kriter düşük kütlelerde ^{24}Mg , ^{25}Mg ve ^{26}Mg izotopları kullanılarak yüksek kütlelerde ise ^{206}Pb , ^{207}Pb ve ^{208}Pb izotopları kullanılarak test edilmektedir (Landsberger and Creatchman, 1999). Bu çalışmada kullanılan yağmur suyu için optimize edilmiş ICPMS parametreleri Tablo 2.3'de gösterilmiştir.

Cihazın günlük optimizasyon işlemlerinin tamamlanmasını takiben kalibrasyon standartları, kör örnekler ve normal örnekler analiz edilmek üzere cihaza verilmiştir. Analiz edilecek elementlerin sinyallerinin örnek matrisinden etkilenmesinin önüne geçebilmek için analiz edilen örneklere standartlara ve kör örneklere internal standart eklenmiştir. Bu çalışmada internal standart olarak ^{103}Rh çözeltisi kullanılmıştır. Bu izotopun internal standart olarak seçilmesinin nedenleri (1) örneklerde bulunmaması (kalitatif analizler bunu göstermiştir), (2) örnek matrisi ve analiz edilen elementlerle herhangi bir girişim yapmaması ve (3) analiz edilen elementlerin önemli bir bölümü ile benzer iyonizasyon potansiyeline sahip olduğundan plazmadaki davranışının analiz edilen elementlerle aynı olmasıdır. ICPMS analizleri sırasında fiziksel ve kimyasal girişimlerin önüne geçebilmek için internal standart eklenmesinin yanında kullanılan analiz yazılımının (ELAN) içerisinde de fiziksel girişimleri hesaplayıp düzelterek bir mekanizma da bulunmaktadır. Analizler süresince internal standart geri kazanımları dikkatle izlenmiştir. Geri kazanım değerlerinin %70 ile %120 arasında tutulmasına çaba sarf edilmiştir. Geri kazanım değerleri bu sınırlar dışına çıktığında örnekler seyreltilerek tekrar analiz edilmiştir.

ICPMS analizlerinde önemli bir aşama da cihazın ölçülecek elementler için kalibrasyonudur. Bu amaçla farklı elementlerin karışımından oluşan üç kalibrasyon standardı kullanılmıştır. Analiz edilen elementler, kütleleri, kalibrasyon eğrindeki R^2 değerleri ve eğimleri Tablo 2.4'de gösterilmiştir.

Tablo 2.4. Bu çalışmada kullanılan ICP-MS parametreleri

Cihaz parametreleri	
RF güç düzeyi (kW)	1100 Watts
Argon akış hızı (L/dak)	
• Plazma	15
• Yedek (auxiliary)	1.2
• Nebulizör	0.97
Peristaltic pompa (rpm)M	18
Örnek çekme hızı (L/dak)	~1
Veri toplama ile ilgili parametreler	
Ölçüm modu	Scanning (Standart)
Her pik için yapılan ölçüm süresi	50 ms
Kütle aralığı (m/z)	5-270 amu
Entegrasyon süresi	1000 ms
TEkrar sayısı	3
Her örneğin analiz süresi	4 dak 22 s (40 s süren yıkama süresi de dahil)

Tablo 2.5. Analiz edilen elementlerin kütleleri, kalibrasyon eğrisindeki R² değerleri ve eğimleri

Element	Kütle	R ²	Eğim
Li	7	0.999796	0.007
Be	9	0.999979	0.002
B	10	0.999978	0.001
Na	23	0.999748	0.026
Mg	24	0.999912	0.017
Al	27	0.999948	0.026
P	31	0.999968	0.002
K	39	0.999782	0.037
Ca	44	0.999588	0.001
Sc	45	0.999939	0.055
Ti	48	0.999604	0.038
V	51	0.999979	0.054
Cr	52	0.999983	0.047
Fe	54	0.999361	0.004
Mn	55	0.999765	0.069
Ni	58	0.999957	0.035
Co	59	0.999992	0.065
Cu	63	0.999925	0.026
Zn	64	0.999703	0.016
Ge	74	0.999920	0.015
As	75	0.999969	0.006
Se	82	0.999845	0.001
Rb	85	0.999985	0.059

Sr	88	0.999996	0.078
Y	89	0.999989	0.093
Mo	98	0.999992	0.022
Cd	114	0.999822	0.029
In	115	0.999971	0.129
Sn	120	0.999953	0.040
Sb	121	0.999954	0.033
Cs	133	0.999924	0.132
Ba	138	0.999990	0.090
La	139	0.999977	0.122
Ce	140	0.999875	0.113
Pr	141	0.999904	0.142
Nd	144	0.999996	0.033
Eu	151	0.999948	0.061
Sm	152	0.999940	0.034
Gd	158	0.999952	0.029
Tb	159	0.999949	0.121
Dy	162	0.999884	0.031
Ho	165	0.999952	0.115
Er	166	0.999977	0.038
Lu	175	0.999931	0.107
Yb	174	0.999874	0.037
e	180	0.986870	0.032
Tm	169	0.999953	0.113
Ta	181	0.984751	0.006
W	184	0.999401	0.021

Pt	195	0.999848	0.018
Au	197	0.992332	0.001
Tl	203	0.999871	0.028
Pb	206	0.999876	0.026
Bi	209	0.995542	0.069
Th	232	0.998994	0.091
U	238	0.999921	0.124

2.6. Verilerin kalite kontrol çalıřmaları

2.6.1. Uygulanan QA-QC programının elemanları

Bu çalıřmada gerek aerosol ve yaęmur suyunun örneklemede ve gerekse kimyasal analizlerde karřılařılan deneysel hatalardan kaçınmak için çok sıkı bir kalite güvence ve kontrol protokolü (QA-QC) oluşturulmuřtur ve bu protokol bütün örneklerde (yaęmur suyu, aerosol ve kör örnekler) dikkatle uygulanmıřtır.

Gerek aerosollerin ve gerekse yaęmur suyu örneklerinin örnekleme ve analizleri için için geliřtirilen QA-QC protokolü ařaęıdaki ařamalardan oluřmaktadır.

- Dikkatli bir kayıt sistemi. Gelen giden bütün örnekleme kap ve filtrelerin takibini içeren bir izleme sistemi oluşturulmuřtur. Her örnek kabı ve filtre Alana yollanmadan kayıt altına alınmakta, alandan döndükten sonra da alan teknisyeninin doldurduęu örnekleme formu, tartımlar, çözünürleřtirme iřlemleri analize gidiř ve sonuçların dönüř tarihleri ve en sonunda da analiz sonuçları aynı örnek numarası altında kaydedilmektedir. Bu řekilde herhangi bir filtrenin veya yaęmur kabının geçmiři ile ilgili herhangi bir bilgiye ulařmak mümkün olmaktadır.
- Yaęmur suyu ve aerosol örneklerinde ölçülen bütün elementlerin tayin sınırlarının belirlenmesi.
- Standartların rutin kontrolü. Bu amaçla hem aerosol hem de yaęmur suyu örneklerinin analizi sırasında standart referans maddeler (SRM) gün içerisinde iki kez cihazlara okutulmuřtur. Eęer gün içerisinde yapılan SRM analizinin sonuçları ile o gün içerisinde veya bir önceki gün yapılan SRM analizleri arasındaki fark elementler bazında %5'i ařıyorsa o gün içerisinde yapılan bütün örnek analizleri tekrarlanmıřtır.
- Tekrar analizler. Her 100 örnek arasından rastgele seçilen 5 örnek, analizi yapanların bilgisi dışında, bir sonraki grupta tekrar analize yollanmıřtır.

Yine örneklerin %5 kadarı ikiye bölünerek iki farklı örnek gibi analiz için laboratuvarlara yollanmıştır.

- Oluşturulan QA-QC protokolünün son aşamasını kör örneklerin analizi oluşturmaktadır. Her 100 örnek ile birlikte 2 adet alan ve 2 adet laboratuvar kör örneği analiz edilmiştir.

Burada özetlenen QA-QC protokolünün tayin sınırları, kör örnek analizleri gibi bazı bölümleri ileriki bölümlerde daha kapsamlı olarak tartışılmıştır.

2.6.2. Elementlerin ICPMS tayin sınırları

Elementlerin tayin sınırlarını tartışmaya başlamadan önce iki noktaya değinmek yararlı olacaktır. Bunlardan birincisi yağmur suyunda ölçülen element konsantrasyonlarının çok düşük düzeylerde olduğudur. Elementlerin yağmur suyundaki konsantrasyonları göl suyu, deniz suyu gibi doğal sulardaki konsantrasyonlardan biraz daha düşüktür. Dolayısı ile analitik açıdan bu tür örnekler zorlayıcı olmaktadır. Değnilmesi gereken diğer bir nokta ICPMS tekniğinin gücü ve düşük tayin sınırlarıdır (yüksek hassaslığı). Elementleri çok düşük düzeylerde ölçebilecek hassaslıkta pek çok teknik mevcuttur. Ancak çok sayıda elementi aynı anda ve aynı hassaslıkta ölçebilecek analitik yöntem sayısı çok fazla değildir. Bir karşılaştırma yapmak için söylemek gerekirse, ICPMS tayin sınırları grafit fırınlı atomik absorpsiyon (GFAAS) ile karşılaştırılabilir düzeydedir. Ancak GFAAS ile bir seferde tek bir element ölçülebilirken ICMS ile aynı sürede >50 elementi ölçmek mümkün olabilir. Bu açıdan bakıldığında benzer şekilde çok sayıda elementi aynı anda ve bu düzeylerde ölçebilecek, nötron aktivasyon (INAA), proton induced x-ray emission (PIXE) ve belki bir de toplam yansımali x-ışınları emisyonu spektrometrisi (total reflection XRF) (TRXRF) dışında başka bir analitik teknik bulunmamaktadır. ICPMS dışındaki diğer bütün bu tekniklerin çok önemli altyapı gereksinimleri mevcuttur. Örneğin INAA tekniğinin uygulanabilmesi için her şeyden önce bir nükleer reaktör gerekmektedir. Ayrıca, herhangi bir reaktör değil, INAA yapmaya uygun bir şekilde termalize edilmiş bir reaktör gerekmektedir. PIXE gibi bir çekirdek hızlandırıcısı gerektirmektedir. Bütün bu avantaj ve dezavantajları bir araya getirildiğinde ICMS tekniğinin düşük seviyede element içeren örneklerin analizlerine en uygun cihaz olduğu ortaya çıkmaktadır. Bütün bu avantajlar ICPMS'in yukarıda bahsedilen diğer tekniklere nazaran çok daha yaygın olmasını da açıklamaktadır. Zaten bu nedenlerle bu çalışmada da yağmur suyu gibi çok düşük seviyelerde element içeren matrisin ICPMS tekniği ile analiz edilmesi tercih edilmiştir.

Elementlerin, yağmur suyu örneklerinin analiz edildiği ICPMS cihazında hesaplanan tayin sınırları Tablo 2.5'da gösterilmiştir. Aynı tabloda elementlerin tayin sınırlarının yanında Dereköy istasyonunda ölçülen medyan değerleriyle

dört istasyonda elementlerin tayin sınır altında kalan fraksiyonları da sunulmuştur. Dereköy istasyonunda ölçülen medyan değerler tayin sınırı değerleriyle gerçekte ölçülen element konsantrasyonlarını karşılaştırabilmek için verilmiştir. Tablodaki diğer kolonlarda ise her istasyonda elementlerin tayin sınırı altında kaldığı için ölçülememiş olan yüzdeleri verilmiştir. Bu kolonlar istasyonlarda hangi elementlerin tayin sınırı sıkıntısı nedeniyle güvenilir bir şekilde ölçülememiş olduğunu göstermektedir.

Tablo'daki tayin sınır değerleri kör örnek konsantrasyonlarından birisinin 10 kere cihaza enjekte edilmesi ve bu on ölçümün standart sapmasının üç katına karşı gelen konsantrasyonun bulunması ile oluşturulmuştur. Bu gerçekte bütün spektrometrik yöntemlerde yaygın olarak kullanılan bir tayin sınırı tanımıdır. Gerçekte böyle hesaplanan tayin sınırı değerleri tamamen cihazın ürettiği verilerin tekrarlanabilirliğini gösteren teorik bir kavramdır ve kullanılan cihaz çok saçma sapan sonuçlar üretmediği sürece, örneklerde gözlenen element konsantrasyonlarının çok altında olmaktadır. Hesaplanan parametrenin adı tayin sınır olsa da, örneklerde bulunan elementlerin gerçekte ölçülebilen düzeyleri tayin sınır olarak verilen değer >10 katı olmaktadır. Tabloda verilen tayin sınırlarına bu açıdan bakmak gerekmektedir.

Tabloda görülen elementlerin tayin sınırları $0.00097 \mu\text{g L}^{-1}$ (Pr) ve $5.1 \mu\text{g L}^{-1}$ (Ca) arasında değişmektedir. Elementlerin örneklerdeki düzeyleri de gözlem sıklığını belirlediğinden sadece tayin sınırlarına bakarak hangi elementlerin ICPMS tekniği ile görülebileceği hangilerinin ise güvenilir bir şekilde ölçülemeyeceğini söylemek mümkün değildir.

Tabloda elementlerin tayin sınırı/medyan oranları 0.8 (Ta) ile 1700 (K) arasında değişmektedir. Otuz kadar element için bu oran >50 olarak bulunmuştur. En azından bu elementlerin tayin sınırı altında kaldığı örnek sayısının çok olmayacağını söylemek çok yanlış olmayacaktır. Ancak bir o kadar elementin de Dereköy örneklerindeki medyan konsantrasyonlarının tayin sınırına oranı <50 'dir. Bu elementlerin bazılarının konsantrasyonlarının ICPMS tekniği ile ölçülmek için çok düşük olduğu söylenebilir. Bu konuda en gerçekçi tespit dört istasyonda elementlerin gözleme sıklığını incelemek olabilir. Elementlerin her istasyonda örneklerin yüzde kaçında tayin sınırının altında olduğu Tablo da gösterilmiştir. Bu değerlere bakıldığında Sc, B, P, Rh, Pt, Be ve Au örneklerinin %90 dan fazla bir bölümünde tayin sınırının altında kalmış ve dolayısı ile bu örneklerde ölçülememiştir. Tm, Sb, Eu, Th, In ve Dy ise örneklerin $>40\%$ kadar bir bölümünde aynı şekilde Tayin sınırlarının altında olduklarından ölçülememiştir. Se, Ge, As, Er, Tb, Hf, Tl ve Bi örneklerin $>20\%$ 'inde tayin sınırlarının altında olduklarından ölçülememiştir. Geri kalan elementlerin konsantrasyonları ise örneklerin tamamına yakın bir bölümünde tayin sınırının üzerinde olmuştur.

Bu deęerlendirmeden ıkan sonu; gerek bu alıřmada ve gerekse bařka yaęmur suyu alıřmalarında Sc, B, P, Rh, Pt, Be ve Au'un ICPMS teknięi ile llmesi hedeflenmektedir. Dięer elementler ise deęiřik istatistik gvenirlikle de olsa rneklerin nemli bir blmnde gzlemlenebilmektedir.

Tablo 2.6 Elementlerin ICMS tayin sınırları ve her istasyonda tayin sınırı altında kalan fraksiyonları

			ICPMS TAYIN Sinirlari ug L-1	Median kons Balikesir ug L-1	Antalya % TAL	Dereky % TAL	Bolu % TAL	Trabzon % TAL
1	3	Li	0,01431	0,83	5	6	0	0
2	4	Be	0,02885	0,14	98	77	97	88
4	5	B	0,864	967,50	100	85	100	83
5	11	Na	2,709	1262	2	6	2	0
6	12	Mg	3,269	510,20	2	6	2	0
7	13	Al	2,416	157,04	0	6	2	0
8	15	P	1,28	64,25	98	89	100	90
9	16	S		1419,20	12	6	2	2
10	19	K	3,12	5107,10	2	6	2	0
11	20	Ca	5,096	5040,50	10	6	2	2
12	21	Sc	0,01497		100	100	100	100
13	22	Ti	0,07957	17,10	0	0	0	0
14	23	V	0,11906	0,91	21	29	0	0
16	24	Cr	0,1306	22,70	19	29	0	0
17	25	Mn	0,11452	6,72	5	0	0	0
18	26	Fe	2,758	203,74	0	6	2	0
19	27	Co	0,00217	0,83	0	0	0	0
21	28	Ni	0,15204	15,40	0	0	0	0
24	29	Cu	2,132	8,47	0	0	0	0
26	30	Zn	0,11284	90,50	17	26	0	0
27	32	Ge	0,01517	0,19	14	39	29	0
28	33	As	0,02489	0,47	19	23	25	13
29	34	Se	0,17077	0,52	36	26	32	38
31	37	Rb	0,00562	0,69	0	0	0	0
32	38	Sr	0,11529	7,66	0	0	0	0
33	39	Y	0,00123	0,07	0	0	0	0
35	42	Mo	0,13283	0,97	0	0	0	0
38	48	Cd	0,01283	0,19	10	3	0	0
39	49	In	0,00496	0,01	24	65	42	38
40	50	Sn	0,00619	3,09	5	13	15	0
42	51	Sb	0,01078	0,27	90	68	51	88
44	55	Cs	0,00479	0,05	10	0	0	0
45	56	Ba	0,08656	14,55	10	3	2	3

47	57	La	0,00214	0,24	17	13	10	12
48	58	Ce	0,00545	0,29	17	10	11	8
49	59	Pr	0,00097	0,017	14	10	17	21
51	60	Nd	0,00351	0,079	0	0	0	0
53	62	Sm	0,00396	0,055	0	0	0	0
54	63	Eu	0,00131	0,018	19	26	49	32
55	64	Gd	0,00328	0,026	7	13	8	15
57	65	Tb	0,00157	0,00	14	19	22	63
59	66	Dy	0,00368	0,023	17	42	34	23
60	67	Ho	0,00185	0,006	10	15	17	12
61	68	Er	0,00314	0,017	17	23	23	18
62	69	Tm	0,00154	0,0040	36	45	56	25
64	70	Yb	0,00411	0,031	16	10	12	25
66	71	Lu	0,00163	0,0039	10	13	12	6
67	72	Hf	0,0146	0,054	27	23	17	38
69	73	Ta	0,01297	0,010	2	5	5	3
70	74	W	0,01585	0,084	10	6	0	0
72	78	Pt	0,01374	0,017	89	98	97	100
73	79	Au	0,07601	ERR	93	100	94	100
75	81	Tl	0,01662	0,033	21	26	17	25
77	82	Pb	0,18383	28,40	0	0	0	0
78	83	Bi	0,02529	0,15	19	24	14	38
79	90	Th	0,00351	0,050	52	35	43	38
80	92	U	0,00174	0,050	7	10	8	6

2.6.3. Aerosollerdeki kör örnek Blank değerleri

Herhangi bir element için oluşturulan aerosol verilerinin istatistik güvenliği tayin sınırları ve kör örnek çıkartılması olmak üzere iki parametreye sıkı, sıkıya bağlıdır. Elementlerin tayin sınırları ve bu sınırlardan kaynaklanan belirsizlikler daha önceki bölümlerde tartışılmıştır. Bu bölümde ise elementlerin kör örnek değerleri ve bu değerlerin oluşturduğu belirsizlik tartışılmıştır.

Kör örnekler örnekleme ve ölçümlerdeki belirsizliğe önemli etkilerde bulunduğundan, bu çalışmada elementlerin kör düzeyleri çok dikkatle izlenmiştir. Çalışma boyunca, prosedürleri optimize etmek için çok değişik kör örnek toplanmış ve analiz edilmiştir.

Bunlar temiz filtrelerde bulunan metal düzeylerinin belirlenmesi amacıyla yapılan kör örnek ölçümleri, kullanılan su asit gibi çözücü ve temizleyicilerde bulunan element düzeylerini belirlemeye yönelik olarak yapılan kör örnek ölçümleri ve alan kör örnek ölçümleridir. EDXRF analizlerinde örneğin çözünürleştirilmesi söz konusu olmadığından asit ve su kör örnekleme ve ölçümleri çok anlamlı olmamaktadır.

Gerek aerosol ve gerekse yağmur suyu örneklerinde üzerinde en çok durduğumuz kör türü alan kör örnek sonuçları olmaktadır. Çünkü alan kör değerleri, diğer bütün kör değerlerini de içermektedir.

Bu çalışmada alan kör örnekleri olan filtreler aynen örnek filtreleri gibi tartılmış, kayıt altına alınmış ve alana yollanmıştır. Alanda bu filtreler, örnek filtrelerinde olduğu gibi, örnekleme cihazına yerleştirilmiştir. Ancak örnekleme cihazı çalıştırılmadan cihazdan alınmış ve petri kutularına konmuştur. Alan kör örneklerinin bu aşamadan sonra geçirdiği işlemler aynen örnek filtrelerde olduğu gibidir.

Aerosol örneklerinde yapılan alan kör ölçümlerinin sonuçları Tablo 2.6'de verilmiştir. Çalışmada yer alan dört istasyonun her birisinde yaklaşık 20 kadar alan kör örneği toplanmıştır. Bunlar birleştirilmiş ve tek bir kör örnek dosyası oluşturulmuştur.

Tablo 2.7 Aerosol örneklerinde ölçülen element düzeylerinin kör örneklerde gözlenen konsantrasyonlarla karşılaştırılması

	Bolu					Kırkırelili				Trabzon			
	Ortalama Blk ng cm ⁻²	PM _{2.5-10}		PM _{2.5}		PM _{2.5-10}		PM _{2.5}		PM _{2.5-10}		PM _{2.5}	
		Ortalama Örnek Kons. ng cm ⁻²	% BLK	Ortalama Örnek Kons. ng cm ⁻²	% BLK	Ortalama Örnek Kons. ng cm ⁻²	% BLK	Ortalama Örnek Kons. ng cm ⁻²	% BLK	Ortalama Örnek Kons. ng cm ⁻²	% BLK	Ortalama Örnek Kons. ng cm ⁻²	% BLK
Na	86 ± 34	1315	7	1440	6	2036	4	838	10	801	11	405	21
Mg	16 ± 9	771	2	1085	1	3025	1	901	2	1432	1	690	2
Al	41 ± 9	2352	2	3337	1	5283	1	2302	2	3871	1	1719	2
Si	123 ± 117	5616	2	8360	1	12811	1	5346	2	11136	1	4404	3
S	246 ± 77	11100	2	9483	3	2187	11	11498	2	1138	22	5713	4
K	39 ± 16	2215	2	2213	2	1783	2	1773	2	1364	3	931	4
Ca	90 ± 71	9498	1	13926	1	8271	1	2333	4	8162	1	2759	3
Ti	17 ± 8	345	5	326	5	748	2	197	8	2072	1	197	8
V	5 ± 7	33	16	30	17	48	11	24	21	150	3	24	21
Cr	25 ± 9	167	15	155	16	174	14	154	16	183	14	145	17
Mn	9 ± 6	208	4	182	5	257	3	141	6	221	4	128	7
Fe	334 ± 98	7737	4	5835	6	11304	3	5771	6	7518	4	4629	7
Ni	BDL	44	0	31	0	46	0	28	0	19	0	32	0
Cu	23 ± 9	118	19	97	23	158	14	96	24	76	30	76	30
Zn	68 ± 69	351	19	338	20	387	18	286	24	203	33	220	31

As	0,84 ± 0,45	8	10	8	11	4	20	4	22	3	33	3	29
Ba	28 ± 11	70	41	107	27	255	11	103	28	64	44	59	48
Pb	46 ± 27	181	25	163	28	91	51	84	55	50	92	68	68

Her istasyonda ayrı kör hesaplamaları yerine bütün istasyonlarda toplanan kör örneklerden elde edilen sonuçların birleştirilmesi yoluna gidilmesinin iki nedeni vardır. Bunlardan birincisi istasyonlardaki kör değerlerin çok farklı olmamasıdır. İkinci neden ise bazı elementler için kör düzeylerinin çok düşük olması nedeniyle kör örneklerin büyük bir bölümünde tayin sınırlarının altında kalmalarıdır. Bu durumda her istasyondaki alan kör değerleri ayrı ayrı değerlendirilirse bazı elementler için bir, iki değer ile kör seviyesinin belirlenecek olması tehlikesi, istasyonlardaki kör değerlerin birleştirilmesinin diğer nedeni olmuştur. Aynı tabloda her istasyonda $PM_{2.5-10}$ ve $PM_{2.5}$ fraksiyonlarının ortalama değerleri ve kör örnek düzeylerinin $PM_{2.5-10}$ ve $PM_{2.5}$ fraksiyonlarında toplam konsantrasyonun yüzde kaçı olduğu da gösterilmiştir.

Tablodan da görülebileceği gibi, Elementler kör değerleri itibariyle iki gruba ayrılmaktadır. Birinci grupta Na, Mg, Al, Si, S, K, Ca, Ti, Mn, Fe, As yer almaktadır. Bu elementler için kör örnek değerleri ortalama konsantrasyonlarının %10'undan daha azdır. Elementler, kaynaklarına bağlı olarak kaba veya ince fraksiyonlarda bulunabildiklerinden, kör değerleri $PMPM_{2.5-10}$ ve $PM_{2.5}$ fraksiyonlarında farklı olabilmektedir. Buna tipik bir örnek S elementi olmuştur. S kör değerleri $PM_{2.5}$ fraksiyonunda ortalama S konsantrasyonunun %2 - %4 gibi çok ufak bir bölümüdür. Ancak, $PM_{2.5-10}$ fraksiyonunda S kör değerleri örneklerde ölçülen S düzeylerinin %22'sine kadar çıkabilmektedir. Bu farklılık S'ün tamamına yakın bir bölümünün $PM_{2.5}$ fraksiyonunda olmasıdır. Kükürt toplam konsantrasyonu açısından her hangi bir kör problemi çıkarmayacak kadar konsantrasyonu yüksek bir elementtir. Ancak bu yüksek konsantrasyonunun tamamının $PM_{2.5}$ fraksiyonunda olması ve $PM_{2.5-10}$ fraksiyonunda çok azının bulunması bu fraksiyondaki kör değerlerin göreceli olarak yüksek olmasına yol açmaktadır.

Yukarıda bahsedilen grubun dışında kalan elementlerin, ki bunlar V, Cr, Cu, Zn, Ba ve Pb dan oluşmaktadır, %16 ile %40 arasında değişen yüksek kör değerleri vardır. Bu grupta bulunan elementlerin istatistik çalışmalarındaki belirsizliklerinin yüksek olacağını söylemek çok yanlış olmayacaktır.

Dikkat edilirse bu tabloda Antalya istasyonunda ölçülen ortalama konsantrasyonların ve kör örnek düzeylerinin olmadığı görülebilir. İstasyonlardan birinin tabloya dahil edilmemesinin tek nedeni tablonun çok kalabalık olmasının önüne geçmektir. Antalya istasyonunda ölçülen kör örnek değerlerinin diğer istasyonlardan önemli bir farkı yoktur. Antalya kör değerleri

tabloda görülen ortalama kör ve standart sapma değerlerinin oluşturulmasına dahil edilmiştir.

2.6.4. Elementlerin yağmur suyu kör örneklerindeki düzeyleri

Yağmur suyunda elementlerin çok düşük düzeylerde olması örnekleme ve analizler sırasında kontaminasyon olasılığını arttırmaktadır. Bu nedenle elementlerin kör örneklerdeki seviyelerinin dikkatle izlenmesi şart olmuştur. Elementlerin kör örneklerdeki düzeyleri, tayin sınırları ile birlikte, verilerdeki belirsizliği etkileyen en önemli faktördür. Yağmur suyunda ölçülen elementlerin kör düzeyleri Tablo 2.7'de verilmiştir. Tabloda Elementlerin bütün istasyonlarda toplanan kör örneklerdeki konsantrasyonları, her elementin kör örnek seviyesinin örneklerdeki ortalama konsantrasyonların yüzde olarak ne kadarını oluşturduğu ve element konsantrasyonlarının örneklerin yüzde kaçında kör örnekteki konsantrasyonun altında kaldığı gösterilmiştir.

Yağış örneklerinde alan kör örnekleri, kullanılan ultra saf asitteki element düzeyleri ve kullanılan destile-deiyonize sudaki element düzeyleri rutin olarak ölçülmüştür. Asit ve sudaki seviyeler örnekler filtre edildikten sonra filtreler çözünürleştirilirken, mikrodalga çözünürleştirme sitesinde her tarette bir adet su bir adet de ultrasaf HNO₃ konularak belirlenmiştir. Asit ve su kör örnekleri mikrodalga taretinde de birer kap işgal ettiğinden her seferde çözünürleştirilen örnek sayısını azaltmakla birlikte, analizler sonucunda örneklerde kontaminasyon görülmesi halinde kirliliğin nereden (asitler, su, teknisyeler) geldiğinin anlaşılabilmesi için gerekli bir işlemdir. Bu bölümde asit ve sudaki seviyelerden ziyade alan kör örneklerinde elde edilen sonuçlar tartışılacaktır. Alan kör örnekleri elementlerin asit ve sudan gelen miktarlarını içermekte, bunun yanında, örnekleme ve analiz sırasında her türlü operasyondan gelen element konsantrasyonlarını da yansıtmaktadır.

Alan kör örnekleri her istasyonda ayda bir defa toplanmıştır. Kör örneklerin toplanması sırasında örnekseycilerde bulunan huniye 250 mL kadar destile-deiyonize saf su dökülmekte ve bu su örnekleme şişesinde örnekmış gibi toplanmaktadır. Kör örneğin bundan sonra geçirildiği işlemler örneklerin geçirdiği işlemlerin bire bir aynısıdır.

Aerosol örneklerinde olduğu gibi yağmur kör örneklerinde de bütün istasyonlarda toplanan kör örneklerden elde edilen sonuçlar birleştirildikten sonra ortalama ve standart sapma değerleri hesaplanmıştır. Bunda gerekçe

aerosollere aynıdır. Yağmurda zaten düşük olan element konsantrasyonları, kör örnkelerde iyice düşük olmaktadır. Bu nedenle, her ne kadar her istasyonda 30 dolayınd Bunu takiben HF in uçurulması ve her özünürleştirme işleminden sonra taretin bir kez de, temizlemek amacıyla boş olarak aynı işlemlere tabi tutulması gibi işlemler göz önüne alındığında günde iki set örneğin çözümlenmesi mümkün olmaktadır. Günde 18 örneğin çözünürleştirilmesi çok az olduğundan ikinci bir taret temine yoluna gidilmiştir. Bu şekilde günde 4 defa olmak üzere 36 kadar örneğin çözünürleştirilmesi mümkün hale gelmiştir.

Yağmur suyunda ölçülen eser element düzeyleri çok düşük olduğundan kullanılan asit ve suyun kontaminasyona neden olmaması için çok saf olması gerekmektedir. HF Merc firmasında suprapure seviyesinde temiz olarak alınmıştır. HNO₃ ise laboratuvarımızda AHF, Model SAP-902 kaynamadan destilasyon (sub-boiling distilasyon) tekniği kullanılarak hazırlanmaktadır. Bu amaçla kullanılan cihaz Şekil 2.7'de gösterilmiştir.

2.4. Aerosol Örneklerinin Analizi

Bu çalışmada örnekler beş değişik analitik teknik kullanılarak analiz edilmiştir. Aerosol örneklerinin eser element analizlerinde X-ışınları floresans (EDXRF) tekniği kullanılmıştır. Bu tekniikle toplanan aerosol örneklerinde Na, Mg, Al, Si, S, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, As, Ba, Pb olmak üzere 18 element ölçülmüştür. Toplanan aerosol örneklerinin hepsinde bu eser elementlerin yanında Atelometre cihazı kullanılarak elementel karbon ölçümü de yapılmıştır. Yine aerosol örneklerinin bir bölümü Reno (Nevada, ABD) da bulunan Desert Resarch Institute a gönderilmiş ve orada termogravimetrik yöntem ile elementel ve organik karbon düzeyleri ölçülmüştür.

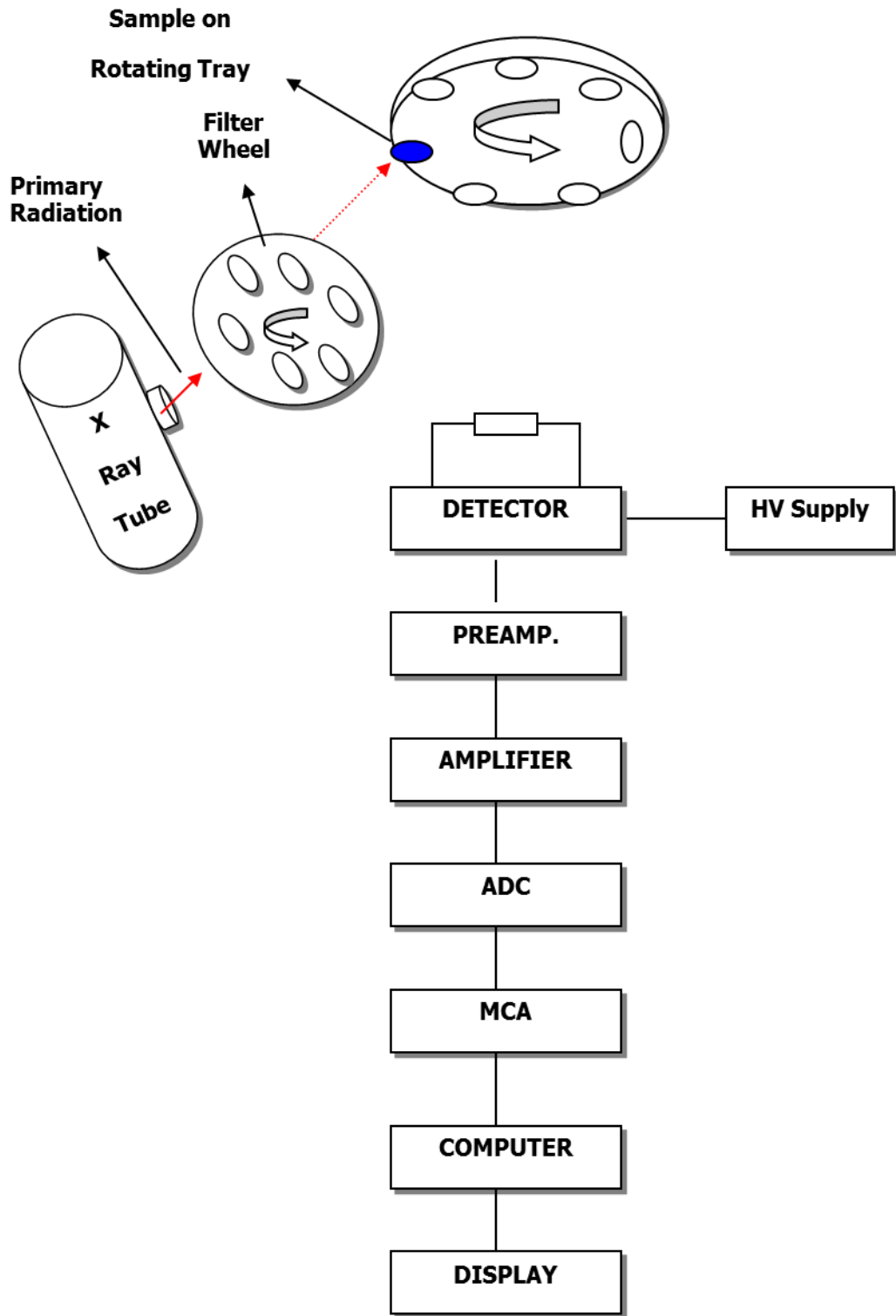
İstasyonlarda toplanan yağmur suyu örneklerinin tamamı ICP-MS tekniği kullanılarak Li, Na, Mg, Al, S, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ge, As, Se, Rb, Sr, Y, Mo, Cd, In, Sn, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Hf, Ta, W, Tl, Pb, Bi, Th, U olmak üzere 51 element için analiz edilmiştir. Yağmur suyu örneklerinde ayrıca iyon kromatografisi tekniği kullanılarak anyon ve katyonlar da ölçülmüştür. Ölçülen anyon ve katyonlar Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺ olmuştur.

X-ışınları Floresan Dağılımlı Spektrometre (EDXRF)

Toplanan aerosol örneklerinde Na, Mg, Al, Si, S, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, As, Ba, Pb düzeyleri Oxford ED-2000, dalgaboyu saçılımlı X-ışınları Floresan Spektrometresi (EDXRF) ile ölçülmüştür. Analizlerde kullanılan spektrometrenin bir şeması Şekil 2.8 de gösterilmiştir.



Şekil 2.19 Çalışmada kullanılan "sub-boiling destilasyon ünitesinin fotoğrafı



Şekil 2.20 XRF şematik gösterim

Cihazın temel bileşenleri radyasyon kaynağı, gümüş bir anot, x-ışınları tüpü, otomatik örnek değiştirme mekanizması (8li örnek tepsisi), yükseltici (amplifier), ile sıvı azot soğutmalı lityum katkılı silisyum katı-faz dedektörü ve XperEase analiz programıyla yüklenmiş bir bilgisayardan oluşmaktadır. Cihaza ait teknik özellikler Tablo 2.8’te verilmektedir. Cihaza ve örnek tepsisine ait resimler sırasıyla Şekil 2.9 ve 2.10’da verilmektedir.

Tablo 2.2 Oxford ED–2000 XRF Cihaz Spesifikasyonları

Cihaz Bölümleri	Değerler
X-ışınları Tüpü	
▪ En yüksek güç	50 W
▪ Enyüksek voltaj	50 kV
▪ Max. Akım	1000 mA
Si(Li) Katı hal detektörü	
▪ Çözünürlük	160 eV
▪ Soğutma şekli	Sıvı azot
Örnek tepsisi	
▪ İç çapı	47 mm
▪ Dış çapı	50.5 mm
▪ Kalınlık	1 mm



Şekil 2.21 The Oxford ED-2000 XRF cihaz



Figure 2.22 EDXRF cihazındaki sekiz pozisyonlu örnekleme tepsi

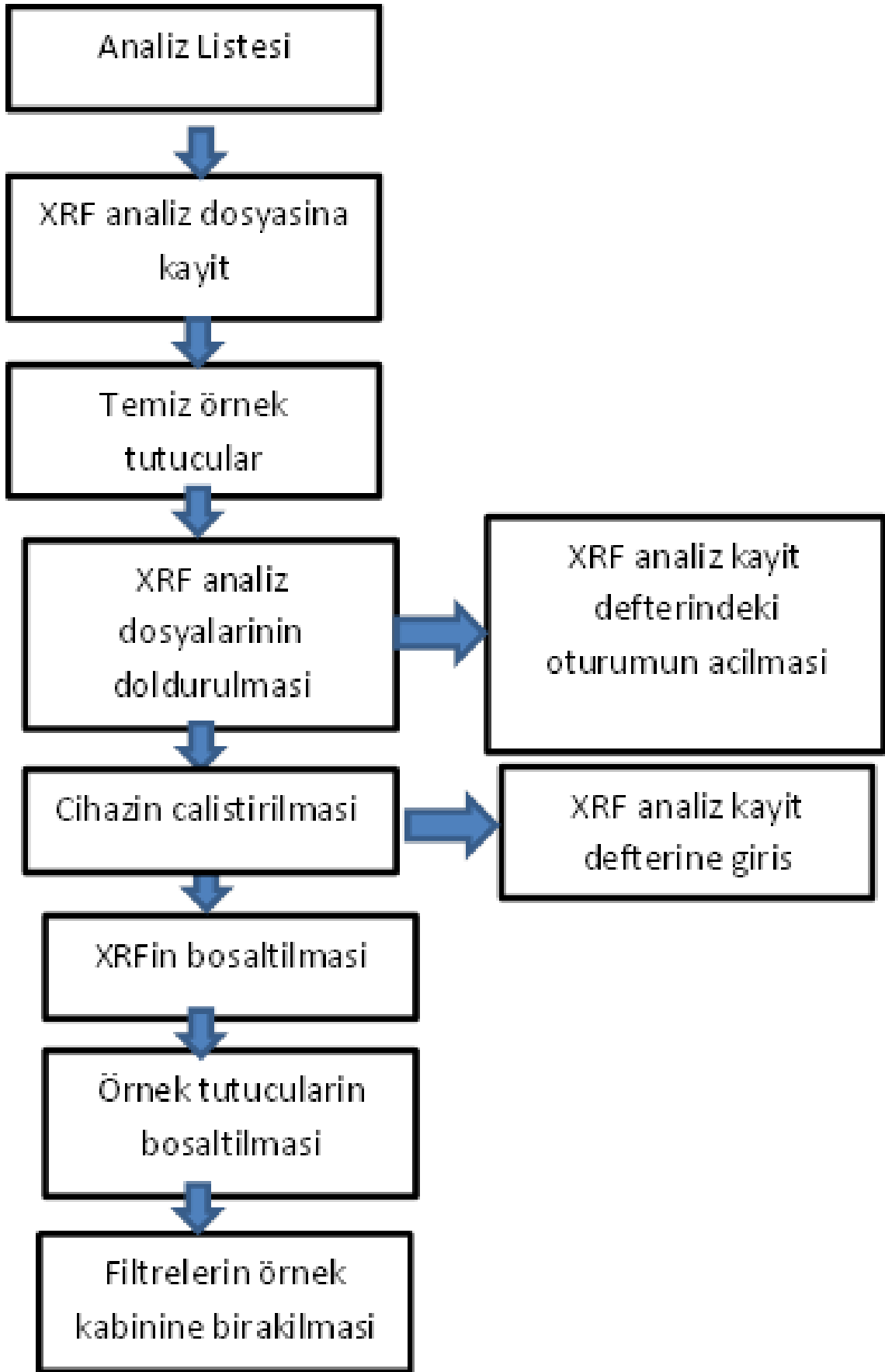
XRF analiz sürecinde uygulanan prosedür Şekil 2.11'de gösterilmektedir. Petri kaplarından alınan filtreler, örnekleme yüzeyleri aşağı bakacak şekilde polikarbonat filtre kasetlerine yerleştirilmektedir. Polikarbonat bir tutma halkası filtrenin kasetin dibinde düz kalmasını sağlamaktadır. Daha sonra bu kasetler X-ışınları odasında döner kaset tutucuya yerleştirilmektedir. Kaset tutucuya bir seferde sekiz filtre yüklenebilmektedir. Çok sayıda örneğin analizinde örneklerin birbirine karışması önemli bir sorun haline gelebildiğinden, filtrelerin etiketlerinin döner tutucudaki yerlerine uygun olacak şekilde tanımlanmasına ve bu şekilde kayıt altına alınmasına özen gösterilmektedir. Örnekleme odasının basıncı 10^{-3} tor düzeyine kadar düşürüldükten sonra örneklerin pozisyonları ve uyarılma şartları bilgisayar programı vasıtasıyla kontrol edilmekte ve örnekler doğrudan X-ışınları tüpününün olduğu birime doğru yönlendirilmektedir. Sekiz örneğin analizi için 140 dakika gerekmektedir. Dolayısı ile bu teknikte her bir örneğin 18 element için analizi 17 – 18 dakika kadar sürmektedir. Bir örnek setinin analizi tamamlandıktan sonra, örnek tutucular temizlenerek yeni örnek seti için sistem hazır hale getirilmektedir. Pratikte günde dört örnek seti analiz edilebilmekte bu şekilde bir gün içerisinde 32 örnek analiz edilebilmektedir.

Elementlerin X-ışınları ile uyarılmaları atom numaralarına bağlı olduğundan, farklı elementler için farklı uyarma koşullarının uygulanması gerekmektedir. Bu çalışmada kullanılan spektrometre de, her bir örnek için 17 dakika süren analiz süresince Değişik elementler için optimal şartları sağlayacak dört farklı ışınlama programı uygulanmaktadır. Dört ışınlama türünde kullanılan koşullar Tablo 2.9`te verilmiştir. Tablodan da görülebileceği gibi değişik ışınlamalarda farklı elementler sayılmakta ve konsantrasyonları hesaplanmaktadır.

Bu çalışmada, EDXRF ile Mg, Al, Si, P, S, Cl, K, Ca ve Ti`un K çizgileri, Cr, Fe, Mn, Ni ve Br`un K- α çizgileri ve Pb`nin L- β çizgisi kullanılmıştır. Şekil 2.12`de XRF`e ait örnek bir spektrum verilmektedir.

EDXRF Spektrometrenin Kalibrasyonu

Literatürde EDXRF`in kalibrasyonu için genellikle; elementlerin vakum-altında çökeltilmiş mikrometre kalınlığındaki ince filmleri (Marcazzan vd., 2004; Marcazzan, 1998; Bandhu vd., 1996; Lopes vd., 2006); NIST gibi enstitülerden temin edilen ince cam filmler (Lindgren vd., 2006; Chimidza vd., 2001; Henriksson vd., 2007; Lindgren vd., 1998; Holynska vd., 1997) ve filtrelerin üzerine standart çözeltilerin eklenmesi sonucu hazırlanan özel üretim standartlar (Shuvayeva vd., 1998; Braziewicz vd., 2004) olmak üzere üç çeşit yöntem kullanılmaktadır.



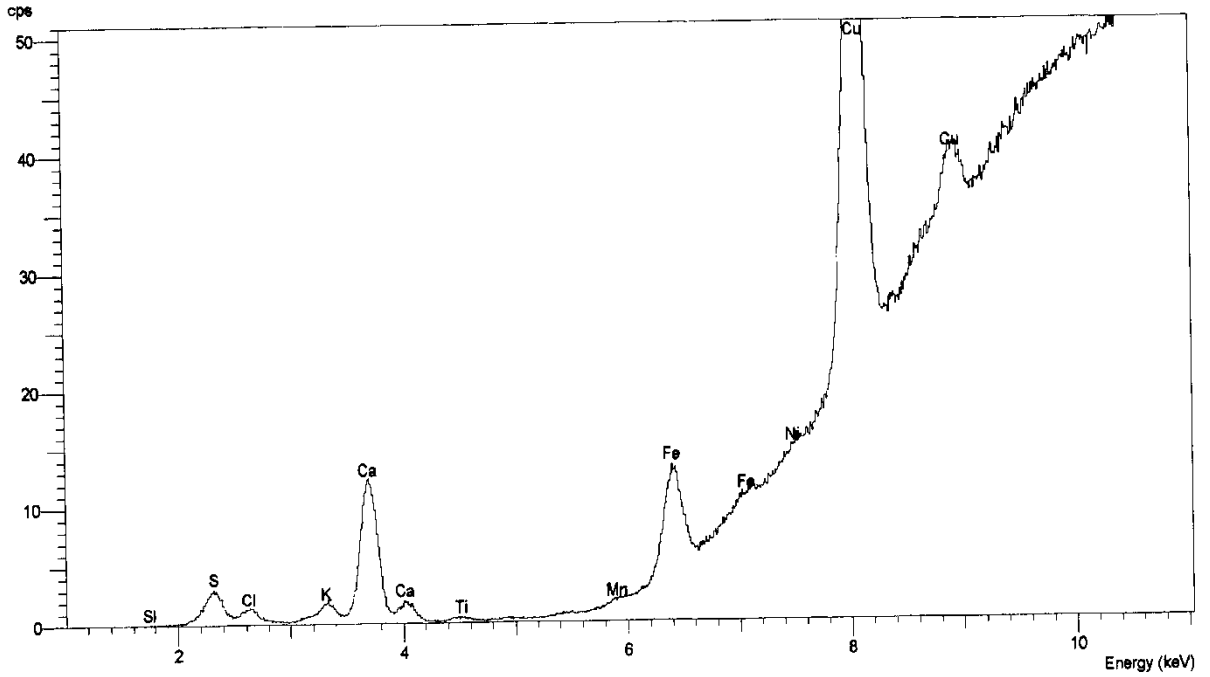
Şekil 2.23 Aerosollerin EDXRF analizi sırasında kullanılan prosedür

Tablo 2.3. OXFORD ED-2000 X-ray fluorescence spektrometresinde deęişik elementler için uygulanan uyarma koşulları

Parametre	Uyarma Türü				
	1	2	3	4	
	(VLE)	(S)	(St)	(ME)	
Tüpteki voltaj (KEV)	2.5	10	15	22.6	
Tübtteki akım (mA)	900	900	1000	494	
Filtre Kalınlığı	Yok	ince Al	Kalın Al	ince Ag	
Analiz Süresi (s)	150	100	100	100	
Enerji aralığı	Na - K	K - Cr	Cr - Fe	Fe - Mo	
Analiz edilen elementler	Mg, Al, Si, P, S, Cl	K, Ca	Ti, Cr, Mn	Fe, Ni, Cu, Zn, Br, Pb	

Bu yöntemler arasında vakum altında çökeltilmiş standartlar çok sayıda elementi kapsadıklarından dolayı çoklu-element analizi için uygun olmalarına rağmen, her bir elementin kalibrasyonu için ayrı bir standart filmi de kullanılabilir. Bu yöntemler arasında vakum altında çökeltilmiş standartlar çok sayıda elementi kapsadıklarından dolayı çoklu-element analizi için uygun olmalarına rağmen, her bir elementin kalibrasyonu için ayrı bir standart filmi de kullanılabilir.

XRF teknięi yüzeye çok duyarlı bir yöntemdir. X-ışınlarının penetrasyon gücü çok sınırlı olduğundan kalın ve parçacıkların yüzeyden farklı uzaklıklarda olduğu (Whatman 41 gibi) bir filtrenin XRF analizi çok ciddi sıkıntılar içermektedir (Haupt ve d., 1995; Davis ve d., 1977; Öztürk ve d., 2011). Bu çalışmada örnekler Nucleopore filtreler üzerinde toplanmıştır.



Şekil 2.24 Tipik bir XRF spektrumu

Nucleopore filtreler 50 μm kalınlığında ve polikarbonat yapısındadır. 50 μm kalınlık bu filtreleri XRF analizi için çok uygun hale getirmektedir. Whatman 41 türü selüloz fiber yapısındaki filtrelerin 300 μm kalınlığında olduğu düşünülürse, 50 μm kalınlığındaki polikarbonat filtrelerin XRF analizine neden daha uygun olduğu anlaşılabilir. Bu tür filtrelerde parçacıklar filtrenin üzerinde bir tabaka oluşturduklarından ve derine penetre etmeleri söz konusu olmadığından, x-ışınları bütün parçacıklara herhangi bir intensite kaybı olmadan ulaşmakta ve elementleri uyarabilmektedir.

Filtre matriksinin yanısıra, aerosollerin kimyasal içerikleri ve boyut dağılımları da analiz süresince X-ışınlarının filtre içerisindeki davranışını etkilemektedir. Aerosollerin parçacık boyutları ve içeriklerine ait olan düzeltmeler literatürde bulunmaktadır (Lodge, 1989). Literatürdeki çalışmalara göre, kalsiyum, sodyum ve klor büyük parçacık boyutunda olmalarından dolayı gelen radyasyonu dağıtarak XRF analizlerinde düşük sinyal/gürültü oranlarına sebep olmaktadır. Bu yüzden bahsi geçen elementler XRF analizinde en büyük düzeltmeye ihtiyaç duyan elementlerdir. Dolayısı ile EDXRF cihazının kalibrasyonu için analizi yapılacak örneklerin partikül boyutuna, içeriğine ve örneklemede kullanılan filtrenin yapısına benzer standartlar seçilmesi önemli bir gereksinimdir. Ancak her şeyiyle örneklere bezeyen standartların bulunması her zaman da mümkün olmamaktadır.

Bu çalışmada EDXRF cihazının kalibrasyonunda NIST SRM 8785 kullanılmıştır. Bu standart Paralel siklonlar vasıtasıyla PTFE filtreler üzerine atmosferden toplanmış PM2.5 aerosollerden oluşmaktadır. Gerek toplanma şekli ve gerekse toplandığı matris olarak örneklerle çok uyumlu bir standart olduğundan kalibrasyon için kullanılmıştır. NIST standardı XRF analizleri hedeflenerek hazırlandığından bu çalışmada analiz edilen örneklerle birebir uyum göstermiştir. SRM 8785 onsekiz eser element için tanımlanmıştır (certify). Bu nedenle çalışmada da SRM 8785`de tanımlanan elementlerin analizi hedeflenmiştir.

Kalibrasyon işlemi sırasında filtrenin ortadaki 3.1 cmlik bölümünden elde edilen sayım hızı (count sec^{-1}) ölçülmüştür. Örnek filtrelerdeki sayım hızları, her element için standarttaki " $\text{cps ng}^{-1} \text{sec}^{-1}$ " değeri kullanılarak hesaplanmıştır.

2.5. Yağmur suyu örneklerinin ICP-MS tekniği kullanılarak analizi

Bu çalışmada toplanan yağmur suyu örnekleri Orta Doğu Teknik Üniversitesi, Merkezi Laboratuvarında ICP MS tekniği kullanılarak 50 dolayında eser element için analiz edilmiştir. Kullanılan cihaz Perkin Elmer DC-II modeli bir ICPMS`dir.

Laboratuvarda ICP ölçümleri için gerekli en uygun fiziksel koşullar oluşturulmuştur. Bu amaçla sıcaklığın 15 – 30°C arasında kalması ve saatlik maksimum sıcaklık değişiminin 2.8°C`yi geçmemesi sağlanmıştır. Laboratuvarda nemin %30 - %50 arasında olması ve bu sınırların dışına çıkmaması sağlanmıştır. ICPMS laboratuvarına giren hava filtre edilerek ortamdaki partikül madde düzeyleri minimuma indirilmiştir. Bu özellikle atmosferde bolca bulunan Fe, Ca, K, Na gibi toprak kökenli elementlerin sağlıklı bir şekilde tayin edilmesi, açısından önemlidir. Kullanılan soğutma suyunun pH değeri 6.5 – 8.5 arasında tutulmakta ve sudaki ağır metallerin 1 ppm`in altında olmasına özen gösterilmektedir. Soğutma suyunun basıncı $344 \pm 13 \text{ kPa}$ `dır.

Cihazın çalıştırılması sırasında önce vakum sistemi çalıştırılmakta ve plazma yakılmaktadır. Bu aşmada hangi izotopların analiz edileceği, hangi mod da analiz yapılacağı gibi enstrümantal koşullar belirlenmektedir. Enstrümantal parametreler bir tür analiz için bir kere oluşturulduktan sonra saklanmakta ve ne zaman yağmur suyu analizi yapılırsa bu dosya çağırılarak kullanılmaktadır.

Daha sonra 30 dakika kadar cihazın ısınması için beklendikten sonra 10 ppb Mg, Cu, Rh, Cd, In, Ba, Ce, Pb and U elementleri içeren ELAN 6100 DRC Setup/Stab/Masscal çözeltisi kullanılarak ICPMS cihazı ayarlanmaktadır. Bu ayarlama işlemi bir ön-optimizasyon olarak düşünülebilir. Burada amaç tek yüklü atomik iyonlardan gelen sinyalin maksimize edilmesi ve ölçümlerde

girişime neden olan poliatomik iyonların oluşumunu en aza indirmektir. Ayarlama, torç pozisyonunun optimizasyonu, güç ve gaz akışlarının optimizasyonu, kütle kalibrasyonu, iyon optiğinin optimizasyonu, elektron yükselticisi voltajının optimizasyonu gibi işlemleri içermektedir. Bu çözeltinin kullanılmasındaki diğer bir amaç da çözünürlüğün kontrol edilmesidir. EPA tarafından geliştirilen protokollerde iyi çözünürlük %5 pik yüksekliğinde pik genişliğinin 0.75 amu'yu geçmemesi olarak tanımlanmaktadır. Bu kriter düşük kütlelerde ^{24}Mg , ^{25}Mg ve ^{26}Mg izotopları kullanılarak yüksek kütlelerde ise ^{206}Pb , ^{207}Pb ve ^{208}Pb izotopları kullanılarak test edilmektedir (Landsberger and Creachman, 1999). Bu çalışmada kullanılan yağmur suyu için optimize edilmiş ICPMS parametreleri Tablo 2.10'de gösterilmiştir.

Cihazın günlük optimizasyon işlemlerinin tamamlanmasını takiben kalibrasyon standartları, kör örnekler ve normal örnekler analiz edilmek üzere cihaza verilmiştir. Analiz edilecek elementlerin sinyallerinin örnek matrisinden etkilenmesinin önüne geçebilmek için analiz edilen örnekler standartlara ve kör örnekler internal standart eklenmiştir. Bu çalışmada internal standart olarak ^{103}Rh çözeltisi kullanılmıştır. Bu izotopun internal standart olarak seçilmesinin nedenleri (1) örneklerde bulunmaması (kalitatif analizler bunu göstermiştir), (2) örnek matrisi ve analiz edilen elementlerle herhangi bir girişim yapmaması ve (3) analiz edilen elementlerin önemli bir bölümü ile benzer iyonizasyon potansiyeline sahip olduğundan plazmadaki davranışının analiz edilen elementlerle aynı olmasıdır. ICPMS analizleri sırasında fiziksel ve kimyasal girişimlerin önüne geçebilmek için internal standart eklenmesinin yanında kullanılan analiz yazılımının (ELAN) içerisinde de fiziksel girişimleri hesaplayıp düzeltecek bir mekanizma da bulunmaktadır. Analizler süresince internal standart geri kazanımları dikkatle izlenmiştir. Geri kazanım değerlerinin %70 ile %120 arasında tutulmasına çaba sarf edilmiştir. Geri kazanım değerleri bu sınırlar dışına çıktığında örnekler seyreltilerek tekrar analiz edilmiştir.

ICPMS analizlerinde önemli bir aşama da cihazın ölçülecek elementler için kalibrasyonudur. Bu amaçla farklı elementlerin karışımından oluşan üç kalibrasyon standardı kullanılmıştır. Analiz edilen elementler, kütleleri, kalibrasyon eğrindeki R^2 değerleri ve eğimleri Tablo 2.11'de gösterilmiştir.

Tablo 2.4. Bu çalışmada kullanılan ICP-MS parametreleri

Cihaz parametreleri	
RF güç düzeyi (kW)	1100 Watts
Argon akış hızı (L/dak)	
• Plazma	15
• Yedek (auxiliary)	1.2
• Nebulizör	0.97
Peristaltic pompa (rpm)M	18
Örnek çekme hızı (L/dak)	~1
Veri toplama ile ilgili parametreler	
Ölçüm modu	Scanning (Standart)
Her pik için yapılan ölçüm süresi	50 ms
Kütle aralığı (m/z)	5-270 amu
Entegrasyon süresi	1000 ms
TEkrar sayısı	3
Her örneğin analiz süresi	4 dak 22 s (40 s süren yıkama süresi de dahil)

Tablo 2.5. Analiz edilen elementlerin kütleleri, kalibrasyon eğrisindeki R² değerleri ve eğimleri

Element	Kütle	R²	Eğim
Li	7	0.999796	0.007
Be	9	0.999979	0.002
B	10	0.999978	0.001
Na	23	0.999748	0.026
Mg	24	0.999912	0.017
Al	27	0.999948	0.026
P	31	0.999968	0.002
K	39	0.999782	0.037
Ca	44	0.999588	0.001
Sc	45	0.999939	0.055
Ti	48	0.999604	0.038
V	51	0.999979	0.054
Cr	52	0.999983	0.047
Fe	54	0.999361	0.004
Mn	55	0.999765	0.069
Ni	58	0.999957	0.035
Co	59	0.999992	0.065
Cu	63	0.999925	0.026
Zn	64	0.999703	0.016
Ge	74	0.999920	0.015
As	75	0.999969	0.006
Se	82	0.999845	0.001
Rb	85	0.999985	0.059

Sr	88	0.999996	0.078
Y	89	0.999989	0.093
Mo	98	0.999992	0.022
Cd	114	0.999822	0.029
In	115	0.999971	0.129
Sn	120	0.999953	0.040
Sb	121	0.999954	0.033
Cs	133	0.999924	0.132
Ba	138	0.999990	0.090
La	139	0.999977	0.122
Ce	140	0.999875	0.113
Pr	141	0.999904	0.142
Nd	144	0.999996	0.033
Eu	151	0.999948	0.061
Sm	152	0.999940	0.034
Gd	158	0.999952	0.029
Tb	159	0.999949	0.121
Dy	162	0.999884	0.031
Ho	165	0.999952	0.115
Er	166	0.999977	0.038
Lu	175	0.999931	0.107
Yb	174	0.999874	0.037
e	180	0.986870	0.032
Tm	169	0.999953	0.113

Ta	181	0.984751	0.006
W	184	0.999401	0.021
Pt	195	0.999848	0.018
Au	197	0.992332	0.001
Tl	203	0.999871	0.028
Pb	206	0.999876	0.026
Bi	209	0.995542	0.069
Th	232	0.998994	0.091
U	238	0.999921	0.124

2.6. Verilerin kalite kontrol çalışmaları

2.6.1. Uygulanan QA-QC programının elemanları

Bu çalışmada gerek aerosol ve yağmur suyunun örneklemesinde ve gerekse kimyasal analizlerde karşılaşılan deneysel hatalardan kaçınmak için çok sıkı bir kalite güvence ve kontrol protokolü (QA-QC) oluşturulmuştur ve bu protokol bütün örneklerde (yağmur suyu, aerosol ve kör örnekler) dikkatle uygulanmıştır.

Gerek aerosollerin ve gerekse yağmur suyu örneklerinin örnekleme ve analizleri için geliştirilen QA-QC protokolü aşağıdaki aşamalardan oluşmaktadır.

- Dikkatli bir kayıt sistemi. Gelen giden bütün örnekleme kap ve filtrelerin takibini içeren bir izleme sistemi oluşturulmuştur. Her örnek kabı ve filtre Alana yollanmadan kayıt altına alınmakta, alandan döndükten sonra da alan teknisyeninin doldurduğu örnekleme formu, tartımlar, çözünürleştirme işlemleri analize gidiş ve sonuçların dönüş tarihleri ve en sonunda da analiz sonuçları aynı örnek numarası altında kaydedilmektedir. Bu şekilde herhangi bir filtrenin veya yağmur kabının geçmişi ile ilgili herhangi bir bilgiye ulaşmak mümkün olmaktadır.
- Yağmur suyu ve aerosol örneklerinde ölçülen bütün elementlerin tayin sınırlarının belirlenmesi.

- Standartların rutin kontrolü. Bu amaçla hem erosol hem de yağmur suyu örneklerinin analizi sırasında standard referans maddeler (SRM) gün içerisinde iki kez cihazlara okutulmuştur. Eğer gün içerisinde yapılan SRM analizinin sonuçları ile o gün içerisinde veya bir önceki gün yapılan SRM analizleri arasındaki fark elementler bazında %5'i aşıyorsa o gün içerisinde yapılan bütün örnek analizleri tekrarlanmıştır.
- Tekrar analizler. Her 100 örnek arasından rastgele seçilen 5 örnek, analizi yapanların bilgisi dışında, bir sonraki grupta tekrar analize yollanmıştır. Yine örneklerin %5 kadarı ikiye bölünerek iki farklı örnek gibi analiz için laboratuvarlara yollanmıştır.
- Oluşturulan QA-QC protokolünün son aşamasını kör örneklerin analizi oluşturmaktadır. Her 100 örnek ile birlikte 2 adet alan ve 2 adet laboratuvar kör örneği analiz edilmiştir.

Burada özetlenen QA-QC protokolünün tayin sınırları, kör örnek analizleri gibi bazı bölümleri ileriki bölümlerde daha kapsamlı olarak tartışılmıştır.

2.6.2. Elementlerin ICPMS tayin sınırları

Elementlerin tayin sınırlarını tartışmaya başlamadan önce iki noktaya değinmek yararlı olacaktır. Bunlardan birincisi yağmur suyunda ölçülen element konsantrasyonlarının çok düşük düzeylerde olduğudur. Elementlerin yağmur suyundaki konsantrasyonları göl suyu, deniz suyu gibi doğal sulardaki konsantrasyonlardan biraz daha düşüktür. Dolayısı ile analitik açıdan bu tür örnekler zorlayıcı olmaktadır. Değnilmesi gereken diğer bir nokta ICPMS tekniğinin gücü ve düşük tayin sınırlarıdır (yüksek hassaslığı). Elementleri çok düşük düzeylerde ölçebilecek hassaslıkta pek çok teknik mevcuttur. Ancak çok sayıda elementi aynı anda ve aynı hassaslıkta ölçebilecek analitik yöntem sayısı çok fazla değildir. Bir karşılaştırma yapmak için söylemek gerekirse, ICPMS tayin sınırları grafit fırınlı atomik absorpsiyon (GFAAS) ile karşılaştırılabilir düzeydedir. Ancak GFAAS ile bir seferde tek bir element ölçülebilirken ICMS ile aynı sürede >50 elementi ölçmek mümkün olabilir. Bu açıdan bakıldığında benzer şekilde çok sayıda elementi aynı anda ve bu düzeylerde ölçebilecek, nötron aktivasyon (INAA), proton induced x-ray emission (PIXE) ve belki bir de toplam yansımali x-ışınları emisyonu spektrometrisi (total reflection XRF) (TRXRF) dışında başka bir analitik teknik bulunmamaktadır. ICPMS dışındaki diğer bütün bu tekniklerin çok önemli altyapı gereksinimleri mevcuttur. Örneğin INAA tekniğinin uygulanabilmesi için her şeyden önce bir nükleer reaktör gerekmektedir. Ayrıca, herhangi bir reaktör değil, INAA yapmaya uygun bir şekilde termalize edilmiş bir reaktör gerekmektedir. PIXE benzer şekilde bir

çekirdek hızlandırıcısı gerektirmektedir. Bütün bu avantaj ve dezavantajları bir araya getirildiğinde ICMS tekniğinin düşük seviyede element içeren örneklerin analizlerine en uygun cihaz olduğu ortaya çıkmaktadır. Bütün bu avantajlar ICPMS'in yukarıda bahsedilen diğer tekniklere nazaran çok daha yaygın olmasını da açıklamaktadır. Zaten bu nedenlerle bu çalışmada da yağmur suyu gibi çok düşük seviyelerde element içeren matrisin ICPMS tekniği ile analiz edilmesi tercih edilmiştir.

Elementlerin, yağmur suyu örneklerinin analiz edildiği ICPMS cihazında hesaplanan tayin sınırları Tablo 2.12'de gösterilmiştir. Aynı tabloda elementlerin tayin sınırlarının yanında Dereköy istasyonunda ölçülen medyan değerleriyle dört istasyonda elementlerin tayin sınır altında kalan fraksiyonları da sunulmuştur. Dereköy istasyonunda ölçülen medyan değerler tayin sınırı değerleriyle gerçekte ölçülen element konsantrasyonlarını karşılaştırabilmek için verilmiştir. Tablodaki diğer kolonlarda ise her istasyonda elementlerin tayin sınırı altında kaldığı için ölçülememiş olan yüzdeleri verilmiştir. Bu kolonlar istasyonlarda hangi elementlerin tayin sınırı sıkıntısı nedeniyle güvenilir bir şekilde ölçülememiş olduğunu göstermektedir.

Tablo'daki tayin sınır değerleri kör örnek konsantrasyonlarından birisinin 10 kere cihaza enjekte edilmesi ve bu on ölçümün standart sapmasının üç katına karşı gelen konsantrasyonun bulunması ile oluşturulmuştur. Bu gerçekte bütün spektrometrik yöntemlerde yaygın olarak kullanılan bir tayin sınırı tanımıdır. Gerçekte böyle hesaplanan tayin sınırı değerleri tamamen cihazın ürettiği verilerin tekrarlanabilirliğini gösteren teorik bir kavramdır ve kullanılan cihaz çok saçma sapan sonuçlar üretmediği sürece, örneklerde gözlenen element konsantrasyonlarının çok altında olmaktadır. Hesaplanan parametrenin adı tayin sınır olsa da, örneklerde bulunan elementlerin gerçekte ölçülebilen düzeyleri tayin sınır olarak verilen değer >10 katı olmaktadır. Tabloda verilen tayin sınırlarına bu açıdan bakmak gerekmektedir.

Tabloda görülen elementlerin tayin sınırları $0.00097 \mu\text{g L}^{-1}$ (Pr) ve $5.1 \mu\text{g L}^{-1}$ (Ca) arasında değişmektedir. Elementlerin örneklerdeki düzeyleri de gözlem sıklığını belirlediğinden sadece tayin sınırlarına bakarak hangi elementlerin ICPMS tekniği ile görülebileceği hangilerinin ise güvenilir bir şekilde ölçülemeyeceğini söylemek mümkün değildir.

Tabloda elementlerin tayin sınırı/medyan oranları 0.8 (Ta) ile 1700 (K) arasında değişmektedir. Otuz kadar element için bu oran >50 olarak bulunmuştur. En azından bu elementlerin tayin sınırı altında kaldığı örnek sayısının çok olmayacağını söylemek çok yanlış olmayacaktır. Ancak bir o kadar elementin de Dereköy örneklerindeki medyan konsantrasyonlarının tayin sınırına oranı

<50'dir. Bu elementlerin bazılarının konsantrasyonlarının ICPMS tekniği ile ölçülmek için çok düşük olduğu söylenebilir. Bu konuda en gerçekçi tespit dört istasyonda elementlerin gözleme sıklığını incelemek olabilir. Elementlerin her istasyonda örneklerin yüzde kaçında tayin sınırının altında olduğu Tablo da gösterilmiştir. Bu değerlere bakıldığında Sc, B, P, Rh, Pt, Be ve Au örneklerinin %90 dan fazla bir bölümünde tayin sınırının altında kalmış ve dolayısı ile bu örneklerde ölçülemezdir. Tm, Sb, Eu, Th, In ve Dy ise örneklerin >40% kadar bir bölümünde aynı şekilde Tayin sınırlarının altında olduklarından ölçülemezdir. Se, Ge, As, Er, Tb, Hf, Tl ve Bi örnklerin >%20'sinde tayin sınırlarının altında olduklarından ölçülemezdir. Geri kalan elementlerin konsantrasyonları ise örneklerin tamamına yakın bir bölümünde tayin sınırının üzerinde olmuştur.

Bu değerlendirmeden çıkan sonuç; gerek bu çalışmada ve gerekse başka yağmur suyu çalışmalarında Sc, B, P, Rh, Pt, Be ve Au'un ICPMS tekniği ile ölçülmesi hedeflenmemelidir. Diğer elementler ise değişik istatistik güvenirlikle de olsa örneklerin önemli bir bölümünde gözlemlenebilmektedir.

Tablo 2.6 Elementlerin ICMS tayin sınırları ve her istasyonda tayin sınırı altında kalan fraksiyonları

			ICPMS	Median				
			TAYIN	kons				
			Sinirlari	Balikesir	Antalya	Dereköy	Bolu	Trabzon
			ug L-1	ug L-1	% TAL	% TAL	% TAL	% TAL
1	3	Li	0,01431	0,83	5	6	0	0
2	4	Be	0,02885	0,14	98	77	97	88
4	5	B	0,864	967,50	100	85	100	83
5	11	Na	2,709	1262	2	6	2	0
6	12	Mg	3,269	510,20	2	6	2	0
7	13	Al	2,416	157,04	0	6	2	0
8	15	P	1,28	64,25	98	89	100	90

9	16	S		1419,20	12	6	2	2
10	19	K	3,12	5107,10	2	6	2	0
11	20	Ca	5,096	5040,50	10	6	2	2
12	21	Sc	0,01497		100	100	100	100
13	22	Ti	0,07957	17,10	0	0	0	0
14	23	V	0,11906	0,91	21	29	0	0
16	24	Cr	0,1306	22,70	19	29	0	0
17	25	Mn	0,11452	6,72	5	0	0	0
18	26	Fe	2,758	203,74	0	6	2	0
19	27	Co	0,00217	0,83	0	0	0	0
21	28	Ni	0,15204	15,40	0	0	0	0
24	29	Cu	2,132	8,47	0	0	0	0
26	30	Zn	0,11284	90,50	17	26	0	0
27	32	Ge	0,01517	0,19	14	39	29	0
28	33	As	0,02489	0,47	19	23	25	13
29	34	Se	0,17077	0,52	36	26	32	38
31	37	Rb	0,00562	0,69	0	0	0	0
32	38	Sr	0,11529	7,66	0	0	0	0
33	39	Y	0,00123	0,07	0	0	0	0
35	42	Mo	0,13283	0,97	0	0	0	0
<hr/>								
38	48	Cd	0,01283	0,19	10	3	0	0
39	49	In	0,00496	0,01	24	65	42	38
40	50	Sn	0,00619	3,09	5	13	15	0
42	51	Sb	0,01078	0,27	90	68	51	88

44	55	Cs	0,00479	0,05	10	0	0	0
45	56	Ba	0,08656	14,55	10	3	2	3
47	57	La	0,00214	0,24	17	13	10	12
48	58	Ce	0,00545	0,29	17	10	11	8
49	59	Pr	0,00097	0,017	14	10	17	21
51	60	Nd	0,00351	0,079	0	0	0	0
53	62	Sm	0,00396	0,055	0	0	0	0
54	63	Eu	0,00131	0,018	19	26	49	32
55	64	Gd	0,00328	0,026	7	13	8	15
57	65	Tb	0,00157	0,00	14	19	22	63
59	66	Dy	0,00368	0,023	17	42	34	23
60	67	Ho	0,00185	0,006	10	15	17	12
61	68	Er	0,00314	0,017	17	23	23	18
62	69	Tm	0,00154	0,0040	36	45	56	25
64	70	Yb	0,00411	0,031	16	10	12	25
66	71	Lu	0,00163	0,0039	10	13	12	6
67	72	Hf	0,0146	0,054	27	23	17	38
69	73	Ta	0,01297	0,010	2	5	5	3
70	74	W	0,01585	0,084	10	6	0	0
72	78	Pt	0,01374	0,017	89	98	97	100
73	79	Au	0,07601	ERR	93	100	94	100
75	81	Tl	0,01662	0,033	21	26	17	25
77	82	Pb	0,18383	28,40	0	0	0	0
78	83	Bi	0,02529	0,15	19	24	14	38

79	90	Th	0,00351	0,050	52	35	43	38
80	92	U	0,00174	0,050	7	10	8	6

2.6.3. Aerosollerdeki kör örnek Blank değerleri

Herhangi bir element için oluşturulan aerosol verilerinin istatistik güvenliği tayin sınırları ve kör örnek çıkartılması olmak üzere iki parametreye sıkı, sıkıya bağlıdır. Elementlerin tayin sınırları ve bu sınırlardan kaynaklanan belirsizlikler daha önceki bölümlerde tartışılmıştır. Bu bölümde ise elementlerin kör örnek değerleri ve bu değerlerin oluşturduğu belirsizlik tartışılmıştır.

Kör örnekler örnekleme ve ölçümlerdeki belirsizliğe önemli etkilerde bulunduğundan, bu çalışmada elementlerin kör düzeyleri çok dikkatle izlenmiştir. Çalışma boyunca, prosedürleri optimize etmek için çok değişik kör örnek toplanmış ve analiz etmiştir.

Bunlar temiz filtrelerde bulunan metal düzeylerinin belirlenmesi amacıyla yapılan kör örnek ölçümleri, kullanılan su asit gibi çözücü ve temizleyicilerde bulunan element düzeylerini belirlemeye yönelik olarak yapılan kör örnek ölçümleri ve alan kör örnek ölçümleridir. EDXRF analizlerinde örneğin çözünürleştirilmesi söz konusu olmadığından asit ve su kör örnekleme ve ölçümleri çok anlamlı olmamaktadır.

Gerek aerosol ve gerekse yağmur suyu örneklerinde üzerinde en çok durduğumuz kör türü alan kör örnek sonuçları olmaktadır. Çünkü alan kör değerleri, diğer bütün kör değerlerini de içermektedir.

Bu çalışmada alan kör örnekleri olan filtreler aynen örnek filtrlere gibi tartılmış, kayıt altına alınmış ve alana yollanmıştır. Alanda bu filtreler, örnek filtrelerinde olduğu gibi, örnekleme cihazına yerleştirilmiştir. Ancak örnekleme cihazı çalıştırılmadan cihazdan alınmış ve petri kutularına konmuştur. Alan kör örneklerinin bu aşamadan sonra geçirdiği işlemler aynen örnek filtrelerde olduğu gibidir.

Aerosol örneklerinde yapılan alan kör ölçümlerinin sonuçları Tablo 2.13'de verilmiştir. Çalışmada yer alan dört istasyonun her birisinde yaklaşık 20 kadar alan kör örneği toplanmıştır. Bunlar birleştirilmiş ve tek bir kör örnek dosyası oluşturulmuştur.

Tablo 2.7 Aerosol örneklerinde ölçülen element düzeylerinin kör örneklerde gözlenen konsantrasyonlarla karşılaştırılması

	Bolu				Kırklareli				Trabzon				
	PM _{2.5-10}		PM _{2.5}		PM _{2.5-10}		PM _{2.5}		PM _{2.5-10}		PM _{2.5}		
	Ortalama Örnek Kons. ng cm ⁻²	% BLK	Ortalama Örnek Kons. ng cm ⁻²	% BLK	Ortalama Örnek Kons. ng cm ⁻²	% BLK	Ortalama Örnek Kons. ng cm ⁻²	% BLK	Ortalama Örnek Kons. ng cm ⁻²	% BLK	Ortalama Örnek Kons. ng cm ⁻²	% BLK	
Na	86 ± 34	1315	7	1440	6	2036	4	838	10	801	11	405	21
Mg	16 ± 9	771	2	1085	1	3025	1	901	2	1432	1	690	2
Al	41 ± 9	2352	2	3337	1	5283	1	2302	2	3871	1	1719	2
Si	123 ± 117	5616	2	8360	1	12811	1	5346	2	11136	1	4404	3
S	246 ± 77	11100	2	9483	3	2187	11	11498	2	1138	22	5713	4
K	39 ± 16	2215	2	2213	2	1783	2	1773	2	1364	3	931	4
Ca	90 ± 71	9498	1	13926	1	8271	1	2333	4	8162	1	2759	3

Ti	17 ± 8	345	5	326	5	748	2	197	8	2072	1	197	8
V	5 ± 7	33	16	30	17	48	11	24	21	150	3	24	21
Cr	25 ± 9	167	15	155	16	174	14	154	16	183	14	145	17
Mn	9 ± 6	208	4	182	5	257	3	141	6	221	4	128	7
Fe	334 ± 98	7737	4	5835	6	11304	3	5771	6	7518	4	4629	7
Ni	BDL	44	0	31	0	46	0	28	0	19	0	32	0
Cu	23 ± 9	118	19	97	23	158	14	96	24	76	30	76	30
Zn	68 ± 69	351	19	338	20	387	18	286	24	203	33	220	31
As	0,84 ± 0,45	8	10	8	11	4	20	4	22	3	33	3	29
Ba	28 ± 11	70	41	107	27	255	11	103	28	64	44	59	48
Pb	46 ± 27	181	25	163	28	91	51	84	55	50	92	68	68

Her istasyonda ayrı kör hesaplamaları yerine bütün istasyonlarda toplanan kör örneklerden elde edilen sonuçların birleştirilmesi yoluna gidilmesinin iki nedeni vardır. Bunlardan birincisi istasyonlardaki kör değerlerin çok farklı olmamasıdır. İkinci neden ise bazı elementler için kör düzeylerinin çok düşük olması nedeniyle kör örneklerin büyük bir bölümünde tayin sınırlarının altında kalmalarıdır. Bu durumda her istasyondaki alan kör değerleri ayrı ayrı değerlendirilirse bazı elementler için bir, iki değer ile kör seviyesinin belirlenecek olması tehlikesi, istasyonlardaki kör değerlerin birleştirilmesinin diğer nedeni olmuştur. Aynı tabloda her istasyonda $PM_{2.5-10}$ ve $PM_{2.5}$ fraksiyonlarının ortalama değerleri ve kör örnek düzeylerinin $PM_{2.5-10}$ ve $PM_{2.5}$ fraksiyonlarında toplam konsantrasyonun yüzde kaç olduğu da gösterilmiştir.

Tablodan da görülebileceği gibi, Elementler kör değerleri itibariyle iki gruba ayrılmaktadır. Birinci grupta Na, Mg, Al, Si, S, K, Ca, Ti, Mn, Fe, As yer almaktadır. Bu elementler için kör örnek değerleri ortalama konsantrasyonlarının %10'undan daha azdır. Elementler, kaynaklarına bağlı olarak kaba veya ince fraksiyonlarda bulunabildiklerinden, kör değerleri $PMPM_{2.5-10}$ ve $PM_{2.5}$ fraksiyonlarında farklı olabilmektedir. Buna tipik bir örnek S elementi olmuştur. S kör değerleri $PM_{2.5}$ fraksiyonunda ortalama S konsantrasyonunun %2 - %4 gibi çok ufak bir bölümüdür. Ancak, $PM_{2.5-10}$ fraksiyonunda S kör değerleri örneklerde ölçülen S düzeylerinin %22'sine kadar çıkabilmektedir. Bu farklılık S'ün tamamına yakın bir bölümünün $PM_{2.5}$ fraksiyonunda olmasıdır. Kükürt toplam konsantrasyonu açısından her hangi bir kör problemi çıkarmayacak kadar konsantrasyonu yüksek bir elementtir. Ancak bu yüksek konsantrasyonun tamamının $PM_{2.5}$ fraksiyonunda olması ve $PM_{2.5-10}$ fraksiyonunda çok azının bulunması bu fraksiyondaki kör değerlerin göreceli olarak yüksek olmasına yol açmaktadır.

Yukarıda bahsedilen grubun dışında kalan elementlerin, ki bunlar V, Cr, Cu, Zn, Ba ve Pb dan oluşmaktadır, %16 ile %40 arasında değişen yüksek kör değerleri vardır. Bu grupta bulunan elementlerin istatistik çalışmalarda belirsizliklerinin yüksek olacağını söylemek çok yanlış olmayacaktır.

Dikkat edilirse bu tabloda Antalya istasyonunda ölçülen ortalama konsantrasyonların ve kör örnek düzeylerinin olmadığı görülebilir. İstasyonlardan birinin tabloya dahil edilmemesinin tek nedeni tablonun çok kalabalık olmasının önüne geçmektir. Antalya istasyonunda ölçülen kör örnek değerlerinin diğer istasyonlardan önemli bir farkı yoktur. Antalya kör değerleri tabloda görülen ortalama kör ve standart sapma değerlerinin oluşturulmasına dahil edilmiştir.

2.6.4. Elementlerin yağmur suyu kör örneklerindeki düzeyleri

Yağmur suyunda elementlerin çok düşük düzeylerde olması örnekleme ve analizler sırasında kontaminasyon olasılığını arttırmaktadır. Bu nedenle elementlerin kör örneklerdeki seviyelerinin dikkatle izlenmesi şart olmuştur. Elementlerin kör örneklerdeki düzeyleri, tayin sınırları ile birlikte, verilerdeki belirsizliği etkileyen en önemli faktördür. Yağmur suyunda ölçülen elementlerin kör düzeyleri Tablo 2.14'de verilmiştir. Tabloda Elementlerin bütün istasyonlarda toplanan kör örneklerdeki konsantrasyonları, her elementin kör örnek seviyesinin örneklerdeki ortalama konsantrasyonların yüzde olarak ne kadarını oluşturduğu ve element konsantrasyonlarının örneklerin yüzde kaçında kör örnekteki konsantrasyonun altında kaldığı gösterilmiştir.

Yağış örneklerinde alan kör örnekleri, kullanılan ultra saf asitteki element düzeyleri ve kullanılan destile-deiyonize sudaki element düzeyleri rutin olarak ölçülmüştür. Asit ve sudaki seviyeler örnekler filtre edildikten sonra filtreler çözünürleştirilirken, mikrodalga çözünürleştirme sisteminde her tarette bir adet su bir adet de ultrasaf HNO₃ konularak belirlenmiştir. Asit ve su kör örnekleri mikrodalga taretinde de birer kap işgal ettiğinden her seferde çözünürleştirilen örnek sayısını azaltmakla birlikte, analizler sonucunda örneklerde kontaminasyon görülmesi halinde kirliliğin nereden (asitler, su, teknisyeler) geldiğinin anlaşılabilmesi için gerekli bir işlemdir. Bu bölümde asit ve sudaki seviyelerden ziyade alan kör örneklerinde elde edilen sonuçlar tartışılacaktır. Alan kör örnekleri elementlerin asit ve sudan gelen miktarlarını içermekte, bunun yanında, örnekleme ve analiz sırasında her türlü operasyondan gelen element konsantrasyonlarını da yansıtmaktadır.

Alan kör örnekleri her istasyonda ayda bir defa toplanmıştır. Kör örneklerin toplanması sırasında örnekleycilerde bulunan huniye 250 mL kadar destile-deiyonize saf su dökülmekte ve bu su örnekleme şişesinde örnekmış gibi toplanmaktadır. Kör örneğin bundan sonra geçirdiği işlemler örneklerin geçirdiği işlemlerin bire bir aynısıdır.

Aerosol örneklerinde olduğu gibi yağmur kör örneklerinde de bütün istasyonlarda toplanan kör örneklerden elde edilen sonuçlar birleştirildikten sonra ortalama ve standart sapma değerleri hesaplanmıştır. Bunda gerekçe aerosollerle aynıdır. Yağmurda zaten düşük olan element konsantrasyonları, kör örnekte iyice düşük olmaktadır. Bu nedenle, her ne kadar her istasyonda 30 dolayında kör örnek toplandıysa da bazı elementlerin kör örnekteki

konsantrasyonları tayin sınırının altında olmakta ve bu nedenle istasyonlardaki kör örnek düzeyleri bir iki örnekten elde edilen değerler olmaktadır.

Tablo 2.8 Yağmur suyu örneklerinde kör örnek düzeyleri ve çıkarılan kör seviyeleri

Bolu			Antalya			Dereköy			TRABZON			Ortalama kör örnek konsantrasyonu $\mu\text{g L}^{-1}$	
Örnek ortalama	% çıkartılan n kör Ö.	< kör Ö. Örnek sayısı	Örnek ortalama	% çıkartılan n kör Ö.	< kör Ö. Örnek sayısı	Örnek ortalama	% çıkartılan n kör Ö.	< kör Ö. Örnek sayısı	Örnek ortalama	% çıkartılan n kör Ö.	< kör Ö. Örnek sayısı		
$\mu\text{g L}^{-1}$	%		$\mu\text{g L}^{-1}$	%		$\mu\text{g L}^{-1}$	%		$\mu\text{g L}^{-1}$	%	$\mu\text{g L}^{-1}$		
Li	0,742	73,0	75,6	0,312	173,3	85	1,33	40,9	52,4	1,03	52,4	50	0,54 ± 0,27
N	400		0	300,2	0	2	580	0	0	2356			
M	180		0	111	0	2	129	0	0	1280			
Al	200	41,9	20,0	139	60,4	54	783	10,7	25,0	2264	3,7		84 ± 38
S	833		0	630	0	12	1522	0	0	2872			
K	150		0	350	0	2	114	0	0	8131			

C 1500 a		0	1644	0	10	1334	0	0	13305				
Ti 34	49,4	80,5	17	101	88	31	53,3	48,4	51	33,1	12,5		17 ± 6,80
V 0,300		0	0,34	0	0	1,04	0	0	1,77				
Cr 20,0		0	18,62	0	20	25,5	0	0	35				
M 8,7 n	7,8	0	4,82	14,1	12	9,2	7,4	0	17	4,0			0,68 ± 0,23
Fe 237	4,7	0	311	3,6	22	226	4,9	13,8	2416	4,6			112 ± 32
C 0,99 o	95,9	63,4	1,15	82,8	49	3,4	28,5	81,0	2,12	45,1			0,95 ± 0,20
Ni 24	38,1	0	21	44,6	39	20	45,8	32,1	43	21,7			9,3 ± 3,02
C 8,7 u	42,2	4,9	74	5,0	24	24	15,5	12,9	145	2,5			3,7 ± 1,64
Zn 108	86,2	65,9	58	161,4	93	107	87,4	52,2	153	60,9	25		93 ± 71
G 0,20 e	48,9	37,9	0,16	59,3	24	0,20	47,7	42,1	0,50	19,2	25		0,10 ± 0,05
As 0,88		0	0,15	0	0	0,75	0	0	0,35				

Se	10,2	98,9	47,5	3,57	283,0	90	4,4	228,4	73,9	0,19	100,0	100	10 ± 2,37
R b	0,40	50,3	34,1	0,26	77,6	68	0,78	25,7	0	1,03	19,6		0,20 ± 0,06
Sr	8,4	40,4	31,7	4,55	74,5	41	6,3	53,4	25,0	25	13,6		3,4 ± 0,73
Y	0,12	29,7	0	0,05	64,5	46	0,13	26,8	14,3	0,23	14,9		0,034 ± 0,01
M o	0,62	77,5	58,5	0,43	110,9	83	2,2	21,4	31,8	1,02	46,9	12,5	0,48 ± 0,24
C d	0,068	60,8	70,7	0,17	24,3	27	0,33	12,8	13,3	0,62	6,7		0,042 ± 0,02
In	0,040	26,6	5,0	0,01	210,7	90	0,029	36,3	63,6	0,00	100,0	100	0,011 ± 0,01
Sn	3,21	6,5	5,7	2,44	8,6	20	3,1	6,7	12,5	5,9	3,6		0,21 ± 0,15
Sb	0,11	88,1	46,3	0,065	149,5	100	1,5	6,4	22,2	0,42	22,8		0,10 ± 0,05
C s	0,032	59,5	48,8	0,015	130,5	83	0,056	34,2	25,8	0,04	48,9	12,5	0,019 ± 0,01
B a	1,93	48,2	26,8	8,40	11,1	20	9,4	9,9	0	68	1,4		0,93 ± 0,59

La	0,034		0	0,10	0	17	0,26	0,0	0	0,52			
Ce	0,36	59,1	34,1	0,19	113,2	85	0,77	27,8	50,0	0,95	22,4	12,5	0,21 ± 0,19
Pr	0,033	9,6	2,4	0,018	17,7	15	0,029	10,7	3,6	0,10	3,3		0,003 ± 0,00
Nd	0,07	61,6	39,0	0,057	75,3	73	0,10	42,6	38,7	0,35	12,2		0,043 ± 0,02
Sm	0,04	72,5	26,8	0,023	134,1	80	0,035	89,8	60,0	0,088	35,5	25	0,031 ± 0,01
Eu	0,004		0	0,006	0	0	0,006	0	0	0,022			
Gd	0,031	73	35,0	0,020	111,4	78	0,039	56,7	40,7	0,054	41,2	37,5	0,022 ± 0,01
Tb	0,009	83	46,9	0,003	292,0	100	0,004	194,4	92,0	0,011	69,8	67	0,008 ± 0,00
Dy	0,037	80	48,1	0,010	280,9	98	0,027	110,6	72,2	0,032	92,7	75	0,029 ± 0,02
Ho	0,010	37	17,6	0,003	133,0	85	0,006	57,9	40,0	0,006	58,4	62,5	0,004 ± 0,00
Er	0,003		0	0,008	0,0	17	0,020	0	0	0,033			

T	0,01	56	44,4	0,001	424,8	98	0,004	128,1	64,7	0,002	98,0	83	0,006 ± 0,00
m													
Y	0,04	83	41,7	0,017	190,1	83	0,032	100,1	50,0	0,028	116,6	67	0,032 ± 0,02
b													
Lu	0,01	82	41,7	0,002	274,4	95	0,005	130,0	59,3	0,004	164,1	75	0,007 ± 0,00
Hf	0,03	76	64,7	0,023	101,0	88	0,019	125,5	76,9	0,050	46,9	60	0,024 ± 0,01
Ta	0,01	77	59,0	0,019	60,7	41	0,023	51,2	52,9	0,022	53,9	50	0,012 ± 0,00
W	0,14	73	46,3	0,096	111,0	76	0,091	116,2	72,4	0,39	27,0	25	0,11 ± 0,06
Tl	0,05	79	48,8	0,012	334,5	100	0,042	95,9	56,5	0,032	126,8	67	0,041 ± 0,01
P	26,07	4,1	0	13,9	7,7	2	27	4,0	15,0	36	3,0		1,1 ± 1,01
b													
Bi	0,50		0	0,12	0	0	0,55	0	0	0,87			
Th	0,08	78	42,9	0,04	170	95	0,060	105,3	55,0	0,076	83,2	80	0,063 ± 3,01
U	0,08	22,4	17,1	0,04	41,9	39	0,076	24,5	17,9	0,048	38,4	12,5	0,019 ± 4,01

Tablodan da görülebileceği gibi, istasyonlarda toplanan kör örneklerin analiz sonuçlarını birleştirek bile bazı elementlerin bütün kör örneklerdeki konsantrasyonları tayin sınırlarının altında kalmıştır. Bütün kör örnekleri birleştirerek kör değerlerinin daha güvenilir olmasını sağladığımızı düşünüyoruz.

Tablodan da görüleceği gibi, S, Mg, K, Ca, V, Cr, As, La, Eu, Er ve Bi için ölçülen kör örnek düzeyleri cihazın tayin sınırının altındadır. Bu nedenle bu elementler için kör değeri olarak önce Tayin sınırı/2 kullanılması düşünülmüş ancak Tayin sınırı/2 olarak hesaplanan konsantrasyonların örneklerde gözlenen konsantrasyon düzeylerinin çok altında olduğu görülünce, bu yaklaşımdan vaz geçilerek bu gruba giren elementler için kör örnek değerlerinin "0" olduğu kabul edilmiştir.

Kör örnek çıkartması yapmayan 11 elementin dışında kalan 38 element, konsantrasyon değerlerinden çıkartılan kör seviyeleri açısından üç gruba ayrılabilir. Kör örneklerde ölçülen konsantrasyonların toplam konsantrasyonların %50'sinden fazla olan 18 element vardır. Li, Ti, Zn, Se, Sr, In, Gd, Tb, Dy, Tm, Yb, Lu, Hf, Ta, W, Tl, Th bu gruptaki elementlerdir. Tabloda her element için örneklerin yüzde kaçında ölçülen konsantrasyonların kör örneklerde o element için belirlenen ortalama konsantrasyonların altında kaldığı da gösterilmektedir. Tabii ki bu veri, her element için, verilerin yüzde ne kadarının boşluk olacağı anlamına da gelmektedir. Doğal olarak birinci grupta bulunan 18 element veri setinde boşlukların en çok olduğu elementlerdir. Bu grupta elementlerin kör seviyelerinden düşük olan sayıları, toplam örnek sayısının 30'u ile %>90' arasında değişmektedir.

İkinci grup elementler kör örnek düzeylerinin o elementin örneklerdeki ortalama konsantrasyonunun %20 - %50'si arasında olan elementlerdir. Co, Ni, Ge, Rb, Y, Mo, Sb, Cs, Ce, Nd ve U bu gruba girmektedir. Bu grupta olan elementlerden ortalama kör örnek konsantrasyonları çıkartıldığında verilerin yaklaşık %30 ile %40 arasında kalanlar boşluk olarak ortaya çıkmaktadır.

Son grupta yer alan elementler ise kör seviyelerinin örneklerde gözlenen ortalama konsantrasyonların %20'sinden az olan elementlerdir. Al, Mn, Fe, Cu, Cd, Sn, Ba, Pr ve Pb bu gruba girmektedir. Bu grupta yer alan elementler için kör örnek konsantrasyonları örneklerde ölçülen konsantrasyonlardan çıkartılınca veri setinde oluşan boşluklar toplam örnek sayısının yüzde onundan az olmaktadır.

2.6.5. Aerosol ve Yağmur suyu ölçümlerinde belirsizliğin değerlendirilmesi

Bir analizdeki toplam ölçüm belirsizliği (σ_t), analizi etkileyen tüm kaynaklardan gelen belirsizliklerin karelerinin toplamı olarak hesaplanır (Bevington, 1996). Bu çalışmada da belirsizlikler aşağıda verilen eşitlik kullanılarak hesaplanmıştır. XRF analizlerindeki toplam belirsizlik hesaplarında örnek alımı, örnek hazırlanması, ölçümler, kalibrasyon işlemi, kullanılan kimyasal maddelerin saflığı, ölçüm koşulları, insan hataları ve rast gele hatalardan kaynaklanan belirsizlikler dikkate alınmıştır. Aşağıdaki eşitlikte; XRF analizindeki analitik işlemlerden kaynaklanan belirsizlik σ_a , XRF kalibrasyonundan kaynaklanan belirsizlik σ_c , aerosol örnekleme sırasında filtreden geçen hava hacmindeki farklılıklardan kaynaklanan belirsizlik σ_{vol} , filtrelerin tartımından kaynaklanan belirsizlik ise σ_w ile gösterilmiştir.

$$\sigma_t^2 = \sigma_a^2 + \sigma_c^2 + \sigma_{vol}^2 + \sigma_w^2$$

Bazı çalışmalarda XRF cihazından kaynaklanan analitik belirsizlik değeri olarak $\pm 4\%$ kullanılmıştır (Braziewicz vd, 2004). Bu çalışmada ise XRF cihazından kaynaklanan analitik belirsizlik değerinin hesaplanması için sayım sonucunun standard sapma değerinin ortalama sayım değerine oranı kullanılmıştır. Bu işlem her örnek ve her kirletici için yapılmış ve sonuç olarak her kirleticiye ait analitik belirsizlik tek tek hesaplanabilmiştir. Örneklenen hava hacminden ve gravimetrik tartımlardan kaynaklanan belirsizlikler %5 olarak kabul edilmiştir.

Yapılan çalışmada aerosol örneklerinin EDXRF cihazı ile analizleri için hesaplanan belirsizlik değerleri ile elementlerin gözlem sıklıkları Tablo 2.15'da gösterilmiştir. Tablodan da görülebileceği gibi, elementlerin belirsizliği arttıkça gözlem sıklığı azalmaktadır. Bu EDXRF tekniğinin çok gündeme getirilmeyen önemli özelliklerinden birisidir.

2.6.6. SRM analizi sonuçları

Bu tür çalışmalarda yapılan analizlerin doğruluğunu göstermek amacıyla genellikle uygulanan yöntem içerisindeki eser element düzeyleri bilinen örneklerin analiz edilerek elde edilen sonuçların bilinen konsantrasyonlarla karşılaştırılması olmaktadır. Esasında yapılan çalışmadaki toplam hatadan ziyade laboratuvarında cihazın kalibrasyonundan kaynaklanan hataları değerlendirmeye yaran bu yaklaşım, daha iyi bir yol mevcut olmadığından bu çalışmada da kullanılmıştır.

Bu çalışmada XRF analiz sonuçlarının doğruluğunu belirlemek için NIST SRM 2783 numaralı partikül madde referans filtresi kullanılmıştır. Bu referans filtre örneklerle birlikte okutulmuştur.

Table 2.9 XRF analizlerinde ölçülen elementler için hesaplanan belirsizlik düzeyleri ve bu düzeylere karşı gelen gözlem sıklıkları

	Gözlem sıklığı	Hesaplanan belirsizlik
	%	%
Mg	79.19	8.97
Al	99.62	7.86
Si	37.19	7.54
S	99.96	19.37
Ba	23.88	8.66
K	99.96	13.61
Ca	99.13	13.08
Ti	99.77	17.51
Cr	19.03	20.44
Fe	98.94	9.43
Mn	95.03	9.50
Ni	76.69	52.74
Zn	49.81	10.41
Cu	96.85	8.66
Pb	77.26	13.82

Elementlerin SRM'deki doğrulanmış değerleri, ölçen değerlerin ortalama ve standart sapmaları ve her element için hesaplanan yüzde hata değerleri Tablo 2.16 verilmiştir.

Tabloya bakıldığında Si, Al, Mn, Na, Pb için hata oranının %5'den düşük olduğu görülmektedir. Potasyum, As, Ca, Fe, Mn, Na, Ni, Ti, Zn ve Cr için hesaplanan hata ise %5 ile %10 arasındadır. S, Ba, Mg ve V için hata yüzdesi 10 ile 15 arasında bulunmuştur. Bu değerler EDXRF analizi için makul sayılabilecek değerlerdir. XRF analizinin atom numarası düşük elementler için çok başarılı olmadığı da göz alınırsa EDXRF analizleri için bulunan hata değerlerinin cihazın kalibrasyonunda çalışma süresince önemli bir hata olmadığını gösterdiği söylenebilmektedir.

Tablo 2.10 NIST 2783 standart referans maddesinin (SRM) (filtre üzerinde tutulmuş parçacıklar) EDXRF analiz sonuçlarının doğrulanmış sonuçlarla karşılaştırılması

	doğrulanmış	measured	Hata
	ng/filter	ng/filter	%
S	1050 ± 260	915 ± 165	12
Si	58600 ± 600	59186 ± 720	1
Al	23210 ± 30	24138 ± 483	4
As	11.8 ± 1.2	12,4 ± 1,5	5,6
Ba	335 ± 50	294 ± 32	12,1
Ca	13200 ± 1700	12400 ± 372	6
Cr	135 ± 25	147 ± 17	9
Cu	404 ± 42	355 ± 25	12
Fe	26500 ± 1600	28100 ± 1680	6
K	5280 ± 520	4900 ± 590	7
Mg	8620 ± 520	9800 ± 1170	14
Mn	320 ± 12	330 ± 13	4
Na	1860 ± 100	1760 ± 70	5

Ni	68 ± 12	73 ± 17	8
Pb	317 ± 54	325 ± 23	3
Ti	1490 ± 240	1400 ± 98	6
V	48.5 ± 6	53,8 ± 7	11
Zn	1790 ± 130	1660 ± 232	7

Elementlerin ICP-MS ile analizindeki doğruluğu belirleyebilmek için NIST sertifikalı bir SRM olan SRM 1648 (Urban particulate) kullanılmıştır. Bu referans maddeye örnek filtrelelere uygulanan çürütme (digestion) işleminin aynısı uygulanmış ve aynı şartlar altında ICP-MS'de analiz edilmiştir. SRM 1648'in ICP-MS ile ölçümünden elde edilen sonuçlar Tablo 2.17'de, seçilen bazı elementler için, sertifika değerleri ile birlikte verilmiştir. Tablodaki tüm elementler için hata yüzdesi 10'dan düşüktür. Bu da ICP-MS ölçümleri sırasında cihazın kalibrasyonunun doğru bir şekilde yapılmış olduğunu göstermektedir.

Tablo 2.11 NIST SRM 1648'da (Urban Particulate) Seçilmiş bazı elementlerin ölçülen ve doğrulanmış konsantrasyonlarının karşılaştırılması

		Doğrulanmış	Ölçülen	
		Konsantrasyonlar	Konsantrasyonlar	
Al	%	3.22±0.16	3.49±0.05	8
Ca	%	5.83±0.33	6.38±0.03	9
Fe	%	3.92±0.24	3.63±0.05	8
Cd	µg g ⁻¹	72±2	74±1.87	2
Ce	µg g ⁻¹	55±4	58±0.37	5
Cs	µg g ⁻¹	3.5±0.2	3.6±0.04	2
K	µg g ⁻¹	1.03±0.5	1.06±0.03	3

La	$\mu\text{g g}^{-1}$	39 \pm 3	39 \pm 0.04	0
Mn	$\mu\text{g g}^{-1}$	822 \pm 45	769 \pm 20	7
Na	$\mu\text{g g}^{-1}$	4230 \pm 230	4565 \pm 63	7
Sb	$\mu\text{g g}^{-1}$	44 \pm 2	42 \pm 0.4	5
Se	$\mu\text{g g}^{-1}$	24 \pm 2	22 \pm 2.2	8
Sr	$\mu\text{g g}^{-1}$	207 \pm 15	214 \pm 4.1	4

2.6.7. ICPMS ölçümlerinde analitik belirsizliğin değerlendirilmesi, ve kullanılacak izotopların seçimi

Bu çalışmada ICP-MS tekniği kullanılarak 58 elementin yağmur suyundaki konsantrasyonları ölçülmeye çalışılmıştır. Bazı elementlerin tek bir izotopu mevcutken yaklaşık yirmi kadar elementin birden fazla izotopu kullanılmıştır. Bir element için farklı izotopların ICPMS tekniğindeki duyarlılıkları farklı olduğundan farklı izotoplarla elde edilen sonuçların ortalamasını almak yerine en güvenilir izotopu belirleyip ondan elde edilen sonuçları kullanmak daha doğru bir yaklaşım olmaktadır.

Bu bölümde, 100 dolayında örneğin ölçüm sonuçları baz alınarak ICPMS ölçümlerindeki sayım istatistikleri (counting statistics) değerlendirilmiştir. Bu değerlendirme sonucunda hem hangi izotopların veri değerlendirmelerinde kullanılacağı bulunmuş, hem de verilerdeki istatistik belirsizlikler değerlendirilmiştir.

Her bir örnekte ölçülen "cps" değeri, bu değerlerin standart sapması ve göreceli standart sapması (relative standart deviaton) (RSD) Tablo 2.18 de verilmektedir. Bu değerlerden cps değeri (count per second) iyonların detektöre bir saniyedeki vuruş sayısını göstermektedir. Standart sapma değeri poisson istatistiğine göre cihaz tarafından, cps değeri baz alınarak hesaplanmaktadır. Göreceli standart sapma değeri ise (relative standart deviation) standart sapma değerinin yüz ile çarpılıp cps değerine bölünmesiyle bulunan bir rakamdır. Burada dikkat edilmesi gereken nokta standart sapma ve göreceli standart sapma değerleri, veri setinin (konsantrasyonların) sigma ve RSD değerleri değil, sayım istatistiğinin standart sapma ve göreceli standart sapma değerleri olduğudur.

Tablo 2.12 ICPMS ölçümlerinde sayım istatistiği ve gözlem sıklığı

		Cps ortalama $\pm \sigma$	RSD	Gözlem Sıklığı %
5	B10			
5	B11			
24	Cr53	12,11 \pm 0,39	3,2	7,4
24	Cr52	88,52 \pm 8,75	9,9	7,4
28	Ni62	8,10 \pm 2,41	29,8	59,3
28	Ni58	646,22 \pm 57,37	8,9	100,0
28	Ni60	64,75 \pm 7,81	12,1	100,0
29	Cu65	557,17 \pm 21,61	3,9	100,0
29	Cu63	1175,93 \pm 60,18	5,1	96,3
30	Zn66	477,88 \pm 29,12	6,1	29,6
30	Zn68	311,21 \pm 10,49	3,4	25,9
34	Se82	9,50 \pm 6,68	70,3	100,0
34	Se77			0,0
42	Mo98	20,43 \pm 4,78	23,4	100,0
42	Mo95	10,18 \pm 3,28	32,2	85,2
48	Cd114	4,76 \pm 2,17	45,5	70,4
48	Cd111	2,00 \pm 1,02	51,3	51,9
50	Sn120	21,30 \pm 4,32	20,3	29,6

50	Sn118	18,98 ± 6,67	35,2	74,1
51	Sb121	359,36 ± 9,84	2,7	77,8
51	Sb123	269,77 ± 6,86	2,5	77,8
56	Ba137	191,09 ± 15,82	8,3	81,5
56	Ba138	1160,26 ± 38,36	3,3	63,0
60	Nd144	10,37 ± 1,81	17,5	85,2
60	Nd145	3,29 ± 1,51	46,0	63,0
62	Sm147	1,33 ± 1,10	82,6	74,1
62	Sm152	2,77 ± 1,51	54,4	96,3
64	Gd158	1,80 ± 1,07	59,4	77,8
64	Gd160	0,78 ± 0,39	49,5	14,8
66	Dy162	0,84 ± 0,57	68,4	29,6
66	Dy161	0,57 ± 0,31	53,6	11,1
70	Yb172	0,89 ± 1,12	125,5	81,5
70	Yb174	0,54 ± 0,57	105,2	40,7
70	Yb171	0,38 ± 0,22	57,5	18,5
72	Hf180	0,85 ± 0,62	72,8	25,9
72	Hf178	0,69 ± 0,71	103,7	55,6
74	W182	1,16 ± 1,19	102,1	66,7
74	W184	1,91 ± 1,54	80,4	74,1
81	Tl203	0,83 ± 0,81	98,4	59,3
81	Tl205	0,52 ± 0,30	57,2	11,1
82	Pb207	282,73 ± 12,56	4,4	88,9
82	Pb208	712,14 ± 16,23	2,3	100,0

Se-77, Rh-103, Sc-45, Au-197, P-31, B-10, B-11 izotopları hiç bir örnekte gözlenememiştir. Bu nedenle bu izotoplar değerlendirmede göz önüne alınmamıştır. Örneklerdeki S, Fe, Ca, K, Mg, Na ve Al konsantrasyonları yüksek olduğundan bu elementler ICP-OES ile analiz edilmiş ve sayım istatistikleri verilmemiştir. Bu elementler her ne kadar bütün örneklerde görülmüş ise de, sayım istatistikleri olmadığından bu duyarlılık değerlendirmesine dahil edilmemiştir. Geriye kırkbeş element kalmaktadır. ICPMS tekniğinin bu elementler için yağmur suyundaki duyarlılığı aşağıda kısaca tartışılmıştır.

Elementler göreceli standart sapma (RSD) değerlerine göre üç gruba ayrılabilir. İlk grup oldukça yüksek bir duyarlılıkla ölçülebilen elementleri içermektedir. Bu grupta bulunan 16 elementin "cps" değerlerinin göreceli standart sapması % 2 ile % 18 arasında değişmektedir. Birinci grup, Pb, Sr, Co, Cu, Rb, Ti, Mn, Nd, Ba, Sb, Pr, Ce, La, Zn, V ve Th elementlerini içermektedir. Yalnız burada dikkat edilmesi gereken nokta, Th, V, Cr gibi bazı elementlerin örneklerin sadece %4 ünde görülmüş olmasıdır. Bu üç element için sayım istatistiği değerleri çok az örnekten çıktığı için güvenilirlikleri çok yüksek değildir. Ancak diğer elementler için böyle bir sakınca mevcut değildir.

Ölçüm güvenirliliği açısından ikinci grup elementler Sn, Eu, Mo, Y, Ni, As, Bi, U ve Gd'dan oluşmaktadır. Bu elementlerin göreceli standart sapma değerleri %20 ile %49 arasındadır. Birinci grupta olduğu gibi, bu grupta da, Eu, As ve Bi gibi elementler örneklerin sadece %7 - 8 kadarında ölçüldüğünden, onlar için yapılan yorumların istatistik belirsizliği, diğer elementlerle karşılaştırıldığında, biraz daha yüksektir.

Üçüncü grupta ise Er, Cd, Li, Dy, Sm, Tl, Yb, Se, Hf, Tb, W, Pt, Ta, Ge, Lu, Be ve In bulunmaktadır. Söz konusu 17 element için göreceli standart sapma değerleri %50'nin üzerindedir. Dolayısı ile bu elementlerin ölçülen konsantrasyonlarındaki analitik belirsizlik daha önceki gruplarda sıralanan elementlerden yüksektir.

Böyle bir değerlendirme yapmanın esas amacı, analitik belirsizliğin tartışılmasından ziyade birden fazla izotopu olan elementlerde hangi izotopun kullanılacağıdır. Tablo 2.22'den görüleceği gibi B, Cr, Ni, Cu, Zn, Se, Mo, Cd, Sn, Sb, Ba, Nd, Sm, Gd, Yb, Hf, W, Tl ve Pb'un birden fazla izotopu mevcuttur. Tabloda her bir izotopun görüldüğü örnek sayısı ve RSD değerleri baz alınarak kullanılacak tek bir izotop seçilmiştir. Burada örnek sayısı önemli bir parametredir. Genellikle RSD değerleri düşük olan elementlerde gözlem sayısı yüksek olsa da, bazı elementler için istisnai durumlar görülmektedir. Örneğin Hf-180 izotopunun RSD değeri %72 iken Hf-178 izotopunun RSD değeri %103'dür.

Ancak örneklerin %25 kadarında RSD değeri daha düşük olan Hf-180 izotopundan hesaplanmış konsantrasyon değeri bulunmuşken, Hf 178 izotopundan hesaplanan konsantrasyon değeri örneklerin %56 sında görülmüştür. Bu durumda kullanılacak izotopa karar verirken öncelik ölçüm sayısına verilmiştir.

Bu şekilde bir yaklaşımla B-11, Cr-53, Ni-58, Cu-65, Zn-68, Se-82, Mo-98, Cd-114, Sn-118, Sb-121, Ba-137, Nd-144, Sm-152, Gd-158, Dy-162, Yb-172, Hf-178, W-184, Tl-203 ve Pb-208 izotoplarının sonuçların değerlendirilmesinde kullanılmasına karar verilmiş ve çalışmanın bundan sonraki aşamalarında bu izotoplar kullanılmıştır.

2.7. Geri yörünge modellemesi

Atmosfere salınan kirleticiler hava hareketleri ile atmosferde taşınarak başka bir yerin hava kalitesini etkileyebilmektedir. Hava hareketlerine bağlı olarak taşınım süresi birkaç günden bir kaç haftaya kadar değişebilmektedir (Hegde ve diğerleri, 2007; Savoie ve diğerleri, 1987). Yani bir ülkedeki hava kirliliği sadece o ülkedeki hava kirliliği kaynaklarından etkilenmemekte, başka bir ülkenin hava kirliliği kaynaklarından da etkilenebilmektedir. Kirleticilerin atmosferde bir yerden başka bir yere taşınımına uzun mesafeli taşınım denmektedir.

Ortam hava kalitesini, emisyon miktarı ve meteorolojik koşullar belirlemektedir. Fakat bu iki faktör arasındaki ilişki oldukça karmaşıktır. Bir kirletici atmosferde kaldığı sürece dağılır, seyrelir, çökelir ve kimyasal ve/veya fotokimyasal reaksiyonlara maruz kalır (Mayer, 1999). Bu nedenle atmosferde bir kirleticinin emisyonu ile konsantrasyonu arasındaki ilişkinin kurulması bir hayli güçtür (Fenger, 1999). Hava kirliliği çalışmalarında yerel kirleticilerin etkisini belirlemede yüzey rüzgarları kullanılırken, uzak mesafedeki kirletici kaynaklarının etkisini belirlemede sinoptik ölçekteki hava hareketleri (üst atmosfer hava hareketleri) kullanılmaktadır. Sinoptik ölçekteki hava hareketlerinin uzun mesafeli taşınımı etkilediği bilinmektedir. Geri yörünge analizi, sinoptik ölçekteki hava hareketlerinin belirlenmesinde kullanılan yaygın bir tekniktir (Dorling vd, 1992; Brankov v.d., 1998; Katsoulis, 1999; Stohl v.d., 2002; Pongkiatkul ve Oanh, 2007). Geri yörünge bir hava kütesinin atmosferde izlediği yörüngeyi enlem, boylam ve yükseklik olarak gösteren bir vektörler kümesidir. Geri yörünge hareketlerini hesaplayan birçok bilgisayar programı bulunmaktadır. Bunlar arasında en yaygın kullanılanlar FLEXTRA (Stohl vd, 1995), ECMWF (Molteni vd, 1996) ve HYSPLIT (Draxier ve Hess, 1998) programlarıdır.

Bu çalışmada hava kütlelerinin 5 gün (120 saat) geriye giden geri yörünge hareketleri Ulusal Okyanus ve Atmosfer Dairesi'nin (NOAA) geliştirdiği "The

Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model Version 4 (HYSPLIT4 modeli)" ile hesaplanmıştır. Geri yörüngeler günlük olarak hesaplanmıştır. Hava kütlelerinin başlangıç yüksekliği olarak 100 m, 500 m ve 1500 m olmak üzere üç farklı yükseklik kullanılmıştır. Hesaplanan geri yörünge süresi 5 gündür. Bu süre hava kütlelerinin Avrupanın Batı ucundan Akdeniz bölgesine gelmesi için yeterli bir süre olduğu gibi hesaplanan geri yörüngelerdeki yatay belirsizliğin de kabul edilebilir düzeylerde olduğu bir süredir. HYSPLIT modeli geri yörüngeyi hesapladıktan sonra hava kütlelerinin her saat başındaki koordinatını vermektedir. Bu koordinatlar tarafımızdan bir GIS yazılımı olan MAPINFO'ya girilmekte ve geri yörünge bilgilerini içeren sorgulama ve hesaplar MAPINFO yazılımı üzerinden yapılmaktadır. Geri yörüngeler her istasyonda 2010 – 2012 arasındaki her gün için hesaplanmış ve depolanmıştır.

2.8. Zenginleşme Faktörünün (ZF) Hesaplanması

Zenginleşme faktörü kirlenici kaynakları hakkında bir ön fikir oluşturmak için yaygın olarak kullanılan bir yöntemdir. Bu çalışmada da gerek aerosol ve yağmur suyu örneklerinde ZF değerleri hesaplanmış ve değerlendirilmiştir. Pek çok değişik kaynak için ZF hesaplamak teorik olarak mümkün olmakla birlikte ZF hesapları daha çok toprak kaynağı için yapılmaktadır. Bunun nedeni toprağın bütün örnekleme noktadaki en güçlü kaynak olması ve toprak kompozisyonunun bir yerden diğerine çok değişmemesidir. Dolayısı ile ZF hesabı daha çok bir noktadaki aerosol kütlelerine toprak parçacıklarının katkıları hakkında bir ön fikir elde etmek için kullanılmaktadır

Bu çalışmada zenginleşme Faktörü her element için aşağıdaki eşitlik kullanılarak (Chester ve Stoner, 1973; Zoller ve diğerleri, 1974) hesaplanmıştır.

$$ZF_x = (C_{Al}/C_x)_{\text{örnek}} / (C_{Al}/C_x)_{\text{toprak}}$$

Bu eşitlikte ZF_x x elementinin zenginleşme faktörünü, $(C_{Al}/C_x)_{\text{örnek}}$ örnekteki Al konsantrasyonunun x elementinin konsantrasyonuna oranını, $(C_{Al}/C_x)_{\text{toprak}}$ ise topraktaki Al konsantrasyonunun, yine topraktaki x elementinin konsantrasyonuna oranını ifade etmektedir. Burada Al toprak için referans element olarak kullanılmaktadır. Bunun nedeni Al'un toprakta bolca bulunması, topraktan başka önemli kaynağının olmaması, pek çok analitik teknikte kolayca ve doğru olarak analiz edilebilmesidir. Al dışında benzer özelliklere sahip Sc, Fe, Li, Sc, Zr, Mn veya Ti gibi litofilik elementler de referans element olarak kullanılabilir. Bu elementlerin topraktan başka kaynaklarının olmadığı varsayılmaktadır (Reimann ve de Caritat, 2005). Hesaplar genellikle toprak kaynağının varlığını değerlendirmek için yapılırsa da deniz kıyılarında

yapılan çalışmalarda Al yerine Na'un referans element olarak kullanılmasıyla deniz aerosollerinin katkısını belirlemeye yönelik ZF hesaplamak da mümkündür.

ZF sıfırdan başlayarak değerler alan bir parametredir. Eğer bir elementin tek kaynağı toprak ise o element için hesaplanan ZF değeri 1.0 olacaktır. >1.0 değerler elementlere toprak dışındaki kaynakların da katkıda bulunduğunu göstermektedir.

2.9. Pozitif Matriks Faktörizasyonu (PMF)

Pozitif Matriks Faktörizasyonu (PMF) Paatero ve Tapper (1993,1994) ve Paatero (1997) tarafından geliştirilmiştir. PMF diğer çok değişkenli reseptör modellerine kıyasla yeni bir teknik olmasına rağmen, aerosol kaynak belirleme, diğer çok-değişkenli reseptör modelleri gibi, bir alıcı ortamda zamana bağımlı olarak aynı değişimi gösteren kirleticilerin aynı kaynaktan geldiği varsayımına dayanmaktadır. Çok değişkenli varyans analizlerinde aynı değişimi gösteren parametreler veri setinin değişkenliğini açıklayan minimum sayıda faktör altında (kaynaklar) altında gruplandırılmakta ve her bir faktör bir kaynak veya kaynak tipi ile ilişkilendirilmektedir (Chueinta vd., 2000).

PMF kısıtlı, ağırlıklı en küçük kareler minimizasyon düzenini kullanarak genel reseptör modelleme problemlerini çözmekte kullanılmaktadır. PMF modelinde p tane kaynak, kaynak türü veya kaynak bölgesinin (faktörler) bir reseptörü etkilediğini ve ölçülen parametrelerin gözlenen konsantrasyonlarında değişime p adet faktörden kaynaklanan emisyonların doğrusal kombinasyonlarının neden olduğu varsayılmaktadır.

PMF modeli matematiksel olarak denklem 3.5.2'de verilmektedir. Bu eşitlikte X_{ij} ; bir alıcı ortamda i gündeki j kirleticisinin konsantrasyonunu; g_{ik} ; k faktörün i gündeki reseptöre olan katkısını; f_{kj} ; kirletici j nin k faktördeki katkısını; e_{ij} ; ise i gündeki j kirleticilerin açıklanamayan kısmını göstermektedir

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \quad 2.1$$

PMF tekniğinde, sadece x_{ij} lerin bilindiği farz edilmekte ve kaynak katkılarının (g_{ik}) ve profillerin (f_{kj}) bulunmasına çalışılmaktadır. Kaynak katkıları (g_{ik}) ve kaynak profilleri (f_{kj}) negatif değerler alamaz. Böylece hem kaynaklar negatif kimyasal konsantrasyonu içermemekte hem de örneklerde negatif kaynak katkısı gözlenmemektedir. Bu PMF'in geleneksel FA'ne kıyaslan önemli üstünlüklerinden birisidir. FA'da kaynak katkıları negatif olabilmektedir. Doğal olarak negatif kaynak katkılarının fiziksel bir anlamı bulunmamaktadır.

PMF'in ağırlıklandırılmış kısmında ise yüksek belirsizliğe sahip verilerin (eksik değerler, tayin sınırının altındaki değerler veya negatif değerler) ağırlıkları kaynak belirlemeye olan etkilerini azaltmak için düşürülmektedir. Bu PMF'in FA ve PCA'ya kıyaslan en önemli avantajlarından birisidir. Geleneksel FA'da, eksik verilere (tayin sınırının altında veya ölçülmemiş değerler) izin verilmemektedir. Ancak atmosferik eser element veri setlerinde bazı elementler düşük konsantrasyonlara sahip olduğundan, FA çalışmalarında ya büyük sayıda element ve örnekler veri setinden çıkarılır yada eksik verilerin yerine yeni değerler atanır. Ancak her iki yaklaşım da tam olarak doğru değildir. Çünkü eksik verilerin yerine yenisini koyarak doğru konsantrasyonların elde edilmesini sağlayan uygun bir yöntem yoktur. Ayrıca örneklerin veri setinden çıkarılması ise verilerle ilgili bilgilerde kayıplara yol açacaktır. Diğer taraftan PMF analizinde de kimi örnekler veya elementler veri setinden çıkarılır. Ancak PMF analizinde eksik verilerin yerine atanan değerlere yüksek belirsizlikler yüklenerek bu değerlerin modeldeki ağırlıkları da düşürülmektedir.

PMF'in en küçük kareler kısmında, PMF`te nesne fonksiyonu (objective function) olan Q , denklem 3.5.3`te verilen en küçük kareler çözümüne göre minimize edilmektedir. Bu denklemde s_{ij} i kimyasalın j gündeki belirsizliğini ifade etmektedir.

Eğer model veri seti için uygunsuzsa ve eğer modeldeki belirsizlikler veri setinin içerisindeki belirsizlikleri tam olarak yansıtıyorsa; teorik Q değeri yaklaşık olarak konsantrasyon veri setindeki veri sayısına eşit olacaktır (EPA, 2008).

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left(\frac{X_{ij} - \sum_{k=1}^r g_{ik} f_{kj}}{s_{ij}} \right)^2 \quad 2.2$$

Bu çalışmada diğer PMF programlarına kıyasla daha fazla kullanıcı dostu olan EPA PMF 3.0.2.2. versiyonu kullanılmıştır. Hedef kirleticilerin her bir örnek için konsantrasyonları ve bunlara karşılık gelen belirsizlikleri PMF programında giriş verisi olarak kullanılmaktadır. Yani PMF programının çalışabilmesi için konsantrasyonların ve belirsizliklerin olduğu dosyaların hazırlanmış olması gerekir. PMF analizi için veri setinde eksik kirletici olmamalıdır. Bu eksiklikleri gidermek için literatürde çeşitli yöntemler kullanılmaktadır (Reff et al., 2007); 1) eksik kirleticilere sahip olan örnekler veri setinden tamamen çıkarılır, 2) eksik ölçümlere ait kirleticiler veri setinden çıkarılır, 3) eksik ölçümlere ait her bir kirletici için bir değer atanır ve bu ölçümlerin belirsizlikleri arttırılır. Eksik ölçümler için genellikle aritmetik ortalama, medyan veya geometrik ortalama kullanılır.

Konsantrasyonları tayin sınırının (TS) altında olan kirleticiler tayin sınırının yarısı ile değiştirilirken (TS/2), belirsizlikleri ise tayin sınırının beş bölü altısı oranında (5/6*TS) arttırılır. Böylece tayin sınırının altında kalan değerlerin belirsizlikleri arttırılmış olur. Eğer bir kirleticinin örnek sayısının %95'i tayin sınırının altındaysa bu kirletici veri setinden çıkarılır.

EPA PMF kullanıcı dostu bir ara-yüze sahiptir. Analiz veri girişi kısmında dört adet alt kategori mevcuttur. Konsantrasyon/Belirsizlik ekranında giriş verisine ait istatistikler (25. Pörsentil, 50. Pörsentil, 75. Pörsentil ve maksimum konsantrasyon değerleri) ve her bir kirletici için sinyal/gürültü oranları (S/N) otomatik olarak hesaplanır ve sergilenir. Sinyalin gürültüye olan oranı aşağıdaki denklem kullanılarak hesaplanmaktadır:

$$\left(\frac{S}{N}\right)_j = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n \mu_{ij}^2 - \sigma_{ij}^2}{\sum_{i=1}^n \sigma_{ij}^2}} \quad 2.3$$

Kullanıcı bu istatistiki sonuçları inceleyerek kirleticilerin kategorilerini güçlü, zayıf veya kötü olarak atamaktadır. Paatero and Hopke (2003) S/N değerleri 0.2'nin altında olan kirleticileri kötü, S/N değeri 2 veya 2'den daha fazla olan kirleticileri güçlü ve S/N değeri 0.2 ile 2 arasında olanları ise zayıf olarak tanımlamıştır. PMF'te eğer kirleticiler kötü olarak tanımlanmışlarsa bu kirleticiler analize dahil edilmezler, zayıf olarak kategorilendirilmiş kirleticilerin ise belirsizlikleri üç kat arttırılır. Ancak bir kirleticinin analizde kalması isteniyorsa kirleticinin veri dosyasındaki belirsizlikleri beş ile 10 kat arasında arttırılarak kirletici analize dahil edilir (Paatero and Hopke, 2003). PMF te hedef nesne fonksiyonu Q değerinin minize edilmesidir. Dolayısı ile Q değerini model performansını gösteren en önemli indikatör olduğunu söylemek çok yanlış olmayacaktır. Çeşitli tekrarların arasındaki en küçük Q değeri seçilmekte ve bu değer problemdeki lokal minimum mu yoksa küresel minimum mu olduğu araştırılmaktadır. PMF analizi sonucunda "robust" ve "gerçek" olmak üzere iki tane Q değeri elde edilir. Robust Q değeri veri setinde oldukça farklılık gösteren örneklerin (outlier) çıkarılması sonucu hesaplanan bir Q değeri iken, gerçek Q ise tüm verinin kullanılması sonucu elde edilen Q değeridir. PMF'in ürettiği Q değerleri teoretik Q değerine (yaklaşık olarak başlangıç konsantrasyon dosyasındaki örnek sayısına eşit olan) yakın veya eşit olmalıdır.

Birbirinden ayrılmış faktörleri uygun olarak kullanmak için, PMF'te temel çözüme F_{peak} seçeneği uygulanmakta ve bu şekilde seçilen temel çözüm F_{peak} seçeneği yardımıyla ile gerçek çözüme geri döndürülmektedir.

Veri setinden (ölçüm hataları veya tesadüfi örnek hataları gibi) ve PMF modelini kendisinden (çözümdeki belirsizlikler gibi) olmak üzere PMF analizinde bir takım belirsizlikler oluşmaktadır (Hemann et al., 2009). Bu yüzden oluşan bu hataları en aza indirmek için temel çözüme (kabul edilen çözüm de denilebilir) bootstrap metodu uygulanabilmektedir (Wehrens et al., 2000).

Bu çalışmada PMF'in EPA versiyonu istasyonlardaki aerosol verilerine uygulanmıştır. PMF uygulamalarında, yukarıda anlatılan optimizasyon işlemleri yapılmış ve oluşan değişik çıktılar arasında Faktörlerdeki elementlerin konsantrasyonları (factor loadings), her faktörün elementlerin varyanslarının ne kadarını açıkladığı, her faktörün her örnekteki ağırlığının bir ölçütü olan faktör skorlarının zaman içerisindeki değişimleri, faktörlerin kaynak türleri ile ilişkilendirilmesinde kullanılmıştır. Son olarakta faktörlerin temsil ettiği kaynakların ölçülen aerosol kütlesine katkıları hesaplanmış ve değerlendirilmiştir.

a kör örnek toplandıysa da bazı elementlerin kör örnklerdeki konsantrasyonları tayin sınırının altında olmakta ve bu nedenle istasyonlardaki kör örnek düzeyleri bir iki örnekten elde edilen değerler olmaktadır.

S	0,04	72,5	26,8	0,023	134,1	80	0,035	89,8	60,0	0,088	35,5	25	0,031 ± 0,01
m													
Eu	0,004		0	0,006	0	0	0,006	0	0	0,022			
G	0,031	73	35,0	0,020	111,4	78	0,039	56,7	40,7	0,054	41,2	37,5	0,022 ± 0,01
d													
Tb	0,009	83	46,9	0,003	292,0	100	0,004	194,4	92,0	0,011	69,8	67	0,008 ± 0,00
D	0,037	80	48,1	0,010	280,9	98	0,027	110,6	72,2	0,032	92,7	75	0,029 ± 0,02
y													
H	0,010	37	17,6	0,003	133,0	85	0,006	57,9	40,0	0,006	58,4	62,5	0,004 ± 0,00
o													
Er	0,003		0	0,008	0,0	17	0,020	0	0	0,033			
T	0,01	56	44,4	0,001	424,8	98	0,004	128,1	64,7	0,002	98,0	83	0,006 ± 0,00
m													
Y	0,04	83	41,7	0,017	190,1	83	0,032	100,1	50,0	0,028	116,6	67	0,032 ± 0,02
b													
Lu	0,01	82	41,7	0,002	274,4	95	0,005	130,0	59,3	0,004	164,1	75	0,007 ± 0,00
Hf	0,03	76	64,7	0,023	101,0	88	0,019	125,5	76,9	0,050	46,9	60	0,024 ± 0,01
Ta	0,01	77	59,0	0,019	60,7	41	0,023	51,2	52,9	0,022	53,9	50	0,012 ± 0,00
W	0,14	73	46,3	0,096	111,0	76	0,091	116,2	72,4	0,39	27,0	25	0,11 ± 0,06
Tl	0,05	79	48,8	0,012	334,5	100	0,042	95,9	56,5	0,032	126,8	67	0,041 ± 0,01
P	26,07	4,1	0	13,9	7,7	2	27	4,0	15,0	36	3,0		1,1 ± 1,01
b													
Bi	0,50		0	0,12	0	0	0,55	0	0	0,87			
Th	0,08	78	42,9	0,04	170	95	0,060	105,3	55,0	0,076	83,2	80	0,063 ± 3,01
U	0,08	22,4	17,1	0,04	41,9	39	0,076	24,5	17,9	0,048	38,4	12,5	0,019 ± 4,01

Tablodan da görülebileceği gibi, istasyonlarda toplanan kör örneklerin analiz sonuçlarını birleştirek bile bazı elementlerin bütün kör örneklerdeki konsantrasyonları tayin sınırlarının altında kalmıştır. Bütün kör örnekleri birleştirerek kör değerlerinin daha güvenilir olmasını sağladığımızı düşünüyoruz.

Tablodan da görüleceği gibi, S, Mg, K, Ca, V, Cr, As, La, Eu, Er ve Bi için ölçülen kör örnek düzeyleri cihazın tayin sınırının altındadır. Bu nedenle bu elementler için kör değeri olarak önce Tayin sınırı/2 kullanılması düşünülmüş ancak Tayin sınırı/2 olarak hesaplanan konsantrasyonların örneklerde gözlenen konsantrasyon düzeylerinin çok altında olduğu görülünce, bu yaklaşımdan vaz geçilerek bu gruba giren elementler için kör örnek değerlerinin "0" olduğu kabul edilmiştir.

Kör örnek çıkartması yapmayan 11 elementin dışında kalan 38 element, konsantrasyon değerlerinden çıkartılan kör seviyeleri açısından üç gruba ayrılabilir. Kör örneklerde ölçülen konsantrasyonların toplam konsantrasyonların %50'sinden fazla olan 18 element vardır. Li, Ti, Zn, Se, Sr, In, Gd, Tb, Dy, Tm, Yb, Lu, Hf, Ta, W, Tl, Th bu gruptaki elementlerdir. Tabloda her element için örneklerin yüzde kaçında ölçülen konsantrasyonların kör örneklerde o element için belirlenen ortalama konsantrasyonların altında kaldığı da gösterilmektedir. Tabii ki bu veri, her element için, verilerin yüzde ne kadarının boşluk olacağı anlamına da gelmektedir. Doğal olarak birinci grupta bulunan 18 element veri setinde boşlukların en çok olduğu elementlerdir. Bu grupta elementlerin kör seviyelerinden düşük olan sayıları, toplam örnek sayısının 30'u ile %>90' arasında değişmektedir.

İkinci grup elementler kör örnek düzeylerinin o elementin örneklerdeki ortalama konsantrasyonunun %20 - %50'si arasında olan elementlerdir. Co, Ni, Ge, Rb, Y, Mo, Sb, Cs, Ce, Nd ve U bu gruba girmektedir. Bu grupta olan elementlerden ortalama kör örnek konsantrasyonları çıkartıldığında verilerin yaklaşık %30 ile %40 arasında kalanlar boşluk olarak ortaya çıkmaktadır.

Son grupta yer alan elementler ise kör seviyelerinin örneklerde gözlenen ortalama konsantrasyonların %20'sinden az olan elementlerdir. Al, Mn, Fe, Cu, Cd, Sn, Ba, Pr ve Pb bu gruba girmektedir. Bu grupta yer alan elementler için kör örnek konsantrasyonları örneklerde ölçülen konsantrasyonlardan çıkartılınca veri setinde oluşan boşluklar toplam örnek sayısının yüzde onundan az olmaktadır.

2.6.5. Aerosol ve Yağmur suyu ölçümlerinde belirsizliğin değerlendirilmesi

Bir analizdeki toplam ölçüm belirsizliği (σ_t), analizi etkileyen tüm kaynaklardan gelen belirsizliklerin karelerinin toplamı olarak hesaplanır (Bevington, 1996). Bu çalışmada da belirsizlikler aşağıda verilen eşitlik kullanılarak hesaplanmıştır. XRF analizlerindeki toplam belirsizlik hesaplarında örnek alımı, örnek hazırlanması, ölçümler, kalibrasyon işlemi, kullanılan kimyasal maddelerin saflığı, ölçüm koşulları, insan hataları ve rast gele hatalardan kaynaklanan belirsizlikler dikkate alınmıştır. Aşağıdaki eşitlikte; XRF analizindeki analitik işlemlerden kaynaklanan belirsizlik σ_a , XRF kalibrasyonundan kaynaklanan belirsizlik σ_c , aerosol örnekleme sırasında filtreden geçen hava hacmindeki farklılıklardan kaynaklanan belirsizlik σ_{vol} , filtrelerin tartımından kaynaklanan belirsizlik ise σ_w ile gösterilmiştir.

$$\sigma_t^2 = \sigma_a^2 + \sigma_c^2 + \sigma_{vol}^2 + \sigma_w^2$$

Bazı çalışmalarda XRF cihazından kaynaklanan analitik belirsizlik değeri olarak $\pm 4\%$ kullanılmıştır (Braziewicz vd, 2004). Bu çalışmada ise XRF cihazından kaynaklanan analitik belirsizlik değerinin hesaplanması için sayım sonucunun standard sapma değerinin ortalama sayım değerine oranı kullanılmıştır. Bu işlem her örnek ve her kirletici için yapılmış ve sonuç olarak her kirleticiye ait analitik belirsizlik tek tek hesaplanabilmektedir. Örneklenen hava hacminden ve gravimetrik tartımlardan kaynaklanan belirsizlikler %5 olarak kabul edilmiştir.

Yapılan çalışmada aerosol örneklerinin EDXRF cihazı ile analizleri için hesaplanan belirsizlik değerleri ile elementlerin gözlem sıklıkları Tablo 2.19'da gösterilmiştir. Tablodan da görülebileceği gibi, elementlerin belirsizliği arttıkça gözlem sıklığı azalmaktadır. Bu EDXRF tekniğinin çok gündeme getirilmeyen önemli özelliklerinden birisidir.

2.6.6. SRM analizi sonuçları

Bu tür çalışmalarda yapılan analizlerin doğruluğunu göstermek amacıyla genellikle uygulanan yöntem içerisindeki eser element düzeyleri bilinen örneklerin analiz edilerek elde edilen sonuçların bilinen konsantrasyonlarla karşılaştırılması olmaktadır. Esasında yapılan çalışmadaki toplam hatadan ziyade laboratuvarında cihazın kalibrasyonundan kaynaklanan hataları değerlendirmeye yarayan bu yaklaşım, daha iyi bir yol mevcut olmadığından bu çalışmada da kullanılmıştır.

Bu çalışmada XRF analiz sonuçlarının doğruluğunu belirlemek için NIST SRM 2783 numaralı partikül madde referans filtresi kullanılmıştır. Bu referans filtre örneklerle birlikte okutulmuştur.

Table 2.9 XRF analizlerinde ölçülen elementler için hesaplanan belirsizlik düzeyleri ve bu düzeylere karşı gelen gözlem sıklıkları

	Gözlem sıklığı	Hesaplanan belirsizlik
	%	%
Mg	79.19	8.97
Al	99.62	7.86
Si	37.19	7.54
S	99.96	19.37
Ba	23.88	8.66
K	99.96	13.61
Ca	99.13	13.08
Ti	99.77	17.51
Cr	19.03	20.44
Fe	98.94	9.43
Mn	95.03	9.50
Ni	76.69	52.74
Zn	49.81	10.41
Cu	96.85	8.66
Pb	77.26	13.82

Elementlerin SRM'deki doğrulanmış değerleri, ölçen değerlerin ortalama ve standart sapmaları ve her element için hesaplanan yüzde hata değerleri Tablo 2.20 verilmiştir.

Tabloya bakıldığında Si, Al, Mn, Na, Pb için hata oranının %5'den düşük olduğu görülmektedir. Potasyum, As, Ca, Fe, Mn, Na, Ni, Ti, Zn ve Cr için hesaplanan

hata ise %5 ile %10 arasındadır. S, Ba, Mg ve V için hata yüzdesi 10 ile 15 arasında bulunmuştur. Bu değerler EDXRF analizi için makul sayılabilecek değerlerdir. XRF analizinin atom numarası düşük elementler için çok başarılı olmadığı da göz alınırsa EDXRF analizleri için bulunan hata değerlerinin cihazın kalibrasyonunda çalışma süresince önemli bir hata olmadığını gösterdiği söylenebilmektedir.

Tablo 2.10 NIST 2783 standart referans maddesinin (SRM) (filtre üzerinde tutulmuş parçacıklar) EDXRF analiz sonuçlarının doğrulanmış sonuçlarla karşılaştırılması

	doğrulanmış ng/filter	measured ng/filter	Hata %
S	1050 ± 260	915 ± 165	12
Si	58600 ± 600	59186 ± 720	1
Al	23210 ± 30	24138 ± 483	4
As	11.8 ± 1.2	12,4 ± 1,5	5,6
Ba	335 ± 50	294 ± 32	12,1
Ca	13200 ± 1700	12400 ± 372	6
Cr	135 ± 25	147 ± 17	9
Cu	404 ± 42	355 ± 25	12
Fe	26500 ± 1600	28100 ± 1680	6
K	5280 ± 520	4900 ± 590	7
Mg	8620 ± 520	9800 ± 1170	14
Mn	320 ± 12	330 ± 13	4
Na	1860 ± 100	1760 ± 70	5
Ni	68 ± 12	73 ± 17	8
Pb	317 ± 54	325 ± 23	3
Ti	1490 ± 240	1400 ± 98	6
V	48.5 ± 6	53,8 ± 7	11
Zn	1790 ± 130	1660 ± 232	7

Elementlerin ICP-MS ile analizindeki doğruluğu belirleyebilmek için NIST sertifikalı bir SRM olan SRM 1648 (Urban particulate) kullanılmıştır. Bu referans maddeye örnek filtrelemlere uygulanan çürütme (digestion) işleminin aynısı uygulanmış ve aynı şartlar altında ICP-MS'de analiz edilmiştir. SRM 1648'in ICP-MS ile ölçümünden elde edilen sonuçlar Tablo 2.21'de, seçilen bazı elementler için, sertifika değerleri ile birlikte verilmiştir. Tablodaki tüm elementler için hata yüzdesi 10'dan düşüktür. Bu da ICP-MS ölçümleri sırasında cihazın kalibrasyonunun doğru bir şekilde yapılmış olduğunu göstermektedir.

Tablo 2.11 NIST SRM 1648'da (Urban Particulate) Seçilmiş bazı elementlerin ölçülen ve doğrulanmış konsantrasyonlarının karşılaştırılması

		Doğrulanmış Konsantrasyonlar	Ölçülen Konsantrasyonlar	
Al	%	3.22±0.16	3.49±0.05	8
Ca	%	5.83±0.33	6.38±0.03	9
Fe	%	3.92±0.24	3.63±0.05	8
Cd	µg g ⁻¹	72±2	74±1.87	2
Ce	µg g ⁻¹	55±4	58±0.37	5
Cs	µg g ⁻¹	3.5±0.2	3.6±0.04	2
K	µg g ⁻¹	1.03±0.5	1.06±0.03	3
La	µg g ⁻¹	39±3	39±0.04	0
Mn	µg g ⁻¹	822±45	769±20	7
Na	µg g ⁻¹	4230±230	4565±63	7
Sb	µg g ⁻¹	44±2	42±0.4	5
Se	µg g ⁻¹	24±2	22±2.2	8
Sr	µg g ⁻¹	207±15	214±4.1	4

2.6.7. ICPMS ölçümlerinde analitik belirsizliğin değerlendirilmesi, ve kullanılacak izotopların seçimi

Bu çalışmada ICP-MS tekniği kullanılarak 58 elementin yağmur suyundaki konsantrasyonları ölçülmeye çalışılmıştır. Bazı elementlerin tek bir izotopu mevcutken yaklaşık yirmi kadar elementin birden fazla izotopu kullanılmıştır. Bir element için farklı izotopların ICPMS tekniğindeki duyarlılıkları farklı olduğundan farklı izotoplarla elde edilen sonuçların ortalamasını almak yerine en güvenilir izotopu belirleyip ondan elde edilen sonuçları kullanmak daha doğru bir yaklaşım olmaktadır.

Bu bölümde, 100 dolayında örneğin ölçüm sonuçları baz alınarak ICPMS ölçümlerindeki sayım istatistikleri (counting statistics) değerlendirilmiştir. Bu

değerlendirme sonucunda hem hangi izotopların veri değerlendirmelerinde kullanılacağı bulunmuş, hem de verilerdeki istatistik belirsizlikler değerlendirilmiştir.

Her bir örnekte ölçülen "cps" değeri, bu değer in standart sapması ve göreceli standart sapması (relative standart deviaton) (RSD) Tablo 2.22 de verilmektedir. Bu değerlerden cps değeri (count per second) iyonların detektöre bir saniyedeki vuruş sayısını göstermektedir. Standart sapma değeri poisson istatistiğine göre cihaz tarafından, cps değeri baz alınarak hesaplanmaktadır. Göreceli standart sapma değeri ise (relative standart deviation) standart sapma değerinin yüz ile çarpılıp cps değerine bölünmesiyle bulunan bir rakamdır. Burada dikkat edilmesi gereken nokta standart sapma ve göreceli standart sapma değerleri, veri setinin (konsantrasyonların) sigma ve RSD değerleri değil, sayın istatistiğinin standart sapma ve göreceli standart sapma değerleri olduğudur.

Tablo 2.12 ICPMS ölçümlerinde sayım istatistiği ve gözlem sıklığı

	Cps ortalama $\pm \sigma$	RSD	Gözlem Sıklığı %
5 B10			
5 B11			
24 Cr53	12,11 \pm 0,39	3,2	7,4
24 Cr52	88,52 \pm 8,75	9,9	7,4
28 Ni62	8,10 \pm 2,41	29,8	59,3
28 Ni58	646,22 \pm 57,37	8,9	100,0
28 Ni60	64,75 \pm 7,81	12,1	100,0
29 Cu65	557,17 \pm 21,61	3,9	100,0
29 Cu63	1175,93 \pm 60,18	5,1	96,3
30 Zn66	477,88 \pm 29,12	6,1	29,6
30 Zn68	311,21 \pm 10,49	3,4	25,9
34 Se82	9,50 \pm 6,68	70,3	100,0
34 Se77			0,0
42 Mo98	20,43 \pm 4,78	23,4	100,0
42 Mo95	10,18 \pm 3,28	32,2	85,2
48 Cd114	4,76 \pm 2,17	45,5	70,4
48 Cd111	2,00 \pm 1,02	51,3	51,9
50 Sn120	21,30 \pm 4,32	20,3	29,6
50 Sn118	18,98 \pm 6,67	35,2	74,1

51	Sb121	359,36 ± 9,84	2,7	77,8
51	Sb123	269,77 ± 6,86	2,5	77,8
56	Ba137	191,09 ± 15,82	8,3	81,5
56	Ba138	1160,26 ± 38,36	3,3	63,0
60	Nd144	10,37 ± 1,81	17,5	85,2
60	Nd145	3,29 ± 1,51	46,0	63,0
62	Sm147	1,33 ± 1,10	82,6	74,1
62	Sm152	2,77 ± 1,51	54,4	96,3
64	Gd158	1,80 ± 1,07	59,4	77,8
64	Gd160	0,78 ± 0,39	49,5	14,8
66	Dy162	0,84 ± 0,57	68,4	29,6
66	Dy161	0,57 ± 0,31	53,6	11,1
70	Yb172	0,89 ± 1,12	125,5	81,5
70	Yb174	0,54 ± 0,57	105,2	40,7
70	Yb171	0,38 ± 0,22	57,5	18,5
72	Hf180	0,85 ± 0,62	72,8	25,9
72	Hf178	0,69 ± 0,71	103,7	55,6
74	W182	1,16 ± 1,19	102,1	66,7
74	W184	1,91 ± 1,54	80,4	74,1
81	Ti203	0,83 ± 0,81	98,4	59,3
81	Ti205	0,52 ± 0,30	57,2	11,1
82	Pb207	282,73 ± 12,56	4,4	88,9
82	Pb208	712,14 ± 16,23	2,3	100,0

Se-77, Rh-103, Sc-45, Au-197, P-31, B-10, B-11 izotopları hiç bir örnekte gözlenememiştir. Bu nedenle bu izotoplar değerlendirmede göz önüne alınmamıştır. Örneklerdeki S, Fe, Ca, K, Mg, Na ve Al konsantrasyonları yüksek olduğundan bu elementler ICP-OES ile analiz edilmiş ve sayım istatistikleri verilmemiştir. Bu elementler her ne kadar bütün örneklerde görülmüş ise de, sayım istatistikleri olmadığından bu duyarlılık değerlendirmesine dahil edilmemiştir. Geriye kırkbeş element kalmaktadır. ICPMS tekniğinin bu elementler için yağmur suyundaki duyarlılığı aşağıda kısaca tartışılmıştır.

Elementler göreceli standart sapma (RSD) değerlerine göre üç gruba ayrılabilir. İlk grup oldukça yüksek bir duyarlılıkla ölçülebilen elementleri içermektedir. Bu grupta bulunan 16 elementin "cps" değerlerinin göreceli standart sapması % 2 ile % 18 arasında değişmektedir. Birinci grup, Pb, Sr, Co, Cu, Rb, Ti, Mn, Nd, Ba, Sb, Pr, Ce, La, Zn, V ve Th elementlerini içermektedir. Yalnız burada dikkat

edilmesi gereken nokta, Th, V, Cr gibi bazı elementlerin örneklerin sadece %4 ünde görülmüş olmasıdır. Bu üç element için sayım istatistiği değerleri çok az örnekten çıktığı için güvenilirlikleri çok yüksek değildir. Ancak diğer elementler için böyle bir sakınca mevcut değildir.

Ölçüm güvenirliliği açısından ikinci grup elementler Sn, Eu, Mo, Y, Ni, As, Bi, U ve Gd'dan oluşmaktadır. Bu elementlerin göreceli standart sapma değerleri %20 ile %49 arasındadır. Birinci grupta olduğu gibi, bu grupta da, Eu, As ve Bi gibi elementler örneklerin sadece %7 - 8 kadarında ölçüldüğünden, onlar için yapılan yorumların istatistik belirsizliği, diğer elementlerle karşılaştırıldığında, biraz daha yüksektir.

Üçüncü grupta ise Er, Cd, Li, Dy, Sm, Tl, Yb, Se, Hf, Tb, W, Pt, Ta, Ge, Lu, Be ve In bulunmaktadır. Söz konusu 17 element için göreceli standart sapma değerleri %50'nin üzerindedir. Dolayısı ile bu elementlerin ölçülen konsantrasyonlarındaki analitik belirsizlik daha önceki gruplarda sıralanan elementlerden yüksektir.

Böyle bir değerlendirme yapmanın esas amacı, analitik belirsizliğin tartışılmasından ziyade birden fazla izotopu olan elementlerde hangi izotopun kullanılacağıdır. Tablo 2.22'den görüleceği gibi B, Cr, Ni, Cu, Zn, Se, Mo, Cd, Sn, Sb, Ba, Nd, Sm, Gd, Yb, Hf, W, Tl ve Pb'un birden fazla izotopu mevcuttur. Tabloda her bir izotopun görüldüğü örnek sayısı ve RSD değerleri baz alınarak kullanılacak tek bir izotop seçilmiştir. Burada örnek sayısı önemli bir parametredir. Genellikle RSD değerleri düşük olan elementlerde gözlem sayısı yüksek olsa da, bazı elementler için istisnai durumlar görülmektedir. Örneğin Hf-180 izotopunun RSD değeri %72 iken Hf-178 izotopunun RSD değeri %103'dür. Ancak örneklerin %25 kadarında RSD değeri daha düşük olan Hf-180 izotopundan hesaplanmış konsantrasyon değeri bulunmuşken, Hf 178 izotopundan hesaplanan konsantrasyon değeri örneklerin %56 sında görülmüştür. Bu durumda kullanılacak izotopa karar verirken öncelik ölçüm sayısına verilmiştir.

Bu şekilde bir yaklaşımla B-11, Cr-53, Ni-58, Cu-65, Zn-68, Se-82, Mo-98, Cd-114, Sn-118, Sb-121, Ba-137, Nd-144, Sm-152, Gd-158, Dy-162, Yb-172, Hf-178, W-184, Tl-203 ve Pb-208 izotoplarının sonuçların değerlendirilmesinde kullanılmasına karar verilmiş ve çalışmanın bundan sonraki aşamalarında bu izotoplar kullanılmıştır.

2.7. Geri yörünge modellemesi

Atmosfere salınan kirleticiler hava hareketleri ile atmosferde taşınarak başka bir yerin hava kalitesini etkileyebilmektedir. Hava hareketlerine bağlı olarak taşınım

süresi birkaç günden bir kaç haftaya kadar değişebilmektedir (Hegde ve diğerleri, 2007; Savoie ve diğerleri, 1987). Yani bir ülkedeki hava kirliliği sadece o ülkedeki hava kirliliği kaynaklarından etkilenmemekte, başka bir ülkenin hava kirliliği kaynaklarından da etkilenebilmektedir. Kirleticilerin atmosferde bir yerden başka bir yere taşınımına uzun mesafeli taşınım denmektedir.

Ortam hava kalitesini, emisyon miktarı ve meteorolojik koşullar belirlemektedir. Fakat bu iki faktör arasındaki ilişki oldukça karmaşıktır. Bir kirleticisi atmosferde kaldığı sürece dağılır, seyrelir, çöker ve kimyasal ve/veya fotokimyasal reaksiyonlara maruz kalır (Mayer, 1999). Bu nedenle atmosferde bir kirleticinin emisyonu ile konsantrasyonu arasındaki ilişkinin kurulması bir hayli güçtür (Fenger, 1999). Hava kirliliği çalışmalarında yerel kirleticilerin etkisini belirlemede yüzey rüzgarları kullanılırken, uzak mesafedeki kirleticisi kaynaklarının etkisini belirlemede sinoptik ölçekteki hava hareketleri (üst atmosfer hava hareketleri) kullanılmaktadır. Sinoptik ölçekteki hava hareketlerinin uzun mesafeli taşınımı etkilediği bilinmektedir. Geri yörünge analizi, sinoptik ölçekteki hava hareketlerinin belirlenmesinde kullanılan yaygın bir tekniktir (Dorling vd, 1992; Brankov v.d., 1998; Katsoulis, 1999; Stohl v.d., 2002; Pongkiatkul ve Oanh, 2007). Geri yörünge bir hava kütesinin atmosferde izlediği yörüngeyi enlem, boylam ve yükseklik olarak gösteren bir vektörler kümesidir. Geri yörünge hareketlerini hesaplayan birçok bilgisayar programı bulunmaktadır. Bunlar arasında en yaygın kullanılanlar FLEXTRA (Stohl vd, 1995), ECMWF (Molteni vd, 1996) ve HYSPLIT (Draxler ve Hess, 1998) programlarıdır.

Bu çalışmada hava kütlelerinin 5 gün (120 saat) geriye giden geri yörünge hareketleri Ulusal Okyanus ve Atmosfer Dairesi'nin (NOAA) geliştirdiği "The Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model Version 4 (HYSPLIT4 modeli)" ile hesaplanmıştır. Geri yörüngeler günlük olarak hesaplanmıştır. Hava kütlelerinin başlangıç yüksekliği olarak 100 m, 500 m ve 1500 m olmak üzere üç farklı yükseklik kullanılmıştır. Hesaplanan geri yörünge süresi 5 gündür. Bu süre hava kütlelerinin Avrupanın Batı ucundan Akdeniz bölgesine gelmesi için yeterli bir süre olduğu gibi hesaplanan geri yörüngelerdeki yatay belirsizliğin de kabul edilebilir düzeylerde olduğu bir süredir. HYSPLIT modeli geri yörüngeyi hesapladıktan sonra hava kütesinin her saat başındaki koordinatını vermektedir. Bu koordinatlar tarafımızdan bir GIS yazılımı olan MAPINFO'ya girilmekte ve geri yörünge bilgilerini içeren sorgulama ve hesaplar MAPINFO yazılımı üzerinden yapılmaktadır. Geri yörüngeler her istasyonda 2010 – 2012 arasındaki her gün için hesaplanmış ve depolanmıştır.

2.8. Zenginleşme Faktörünün (ZF) Hesaplanması

Zenginleşme faktörü kirlenici kaynakları hakkında bir ön fikir oluşturmak için yaygın olarak kullanılan bir yöntemdir. Bu çalışmada da gerek aerosol ve yağmur suyu örneklerinde ZF değerleri hesaplanmış ve değerlendirilmiştir. Pek çok değişik kaynak için ZF hesaplamak teorik olarak mümkün olmakla birlikte ZF hesapları daha çok toprak kaynağı için yapılmaktadır. Bunun nedeni toprağın bütün örnekleme noktalarındaki en güçlü kaynak olması ve toprak kompozisyonunun bir yerden diğerine çok değişmemesidir. Dolayısı ile ZF hesabı daha çok bir noktadaki aerosol kütlesine toprak parçacıklarının katkıları hakkında bir ön fikir elde etmek için kullanılmaktadır.

Bu çalışmada zenginleşme Faktörü her element için aşağıdaki eşitlik kullanılarak (Chester ve Stoner, 1973; Zoller ve diğerleri, 1974) hesaplanmıştır.

$$ZF_x = (C_{Al}/C_x)_{\text{örnek}} / (C_{Al}/C_x)_{\text{toprak}}$$

Bu eşitlikte ZF_x x elementinin zenginleşme faktörünü, $(C_{Al}/C_x)_{\text{örnek}}$ örnekteki Al konsantrasyonunun x elementinin konsantrasyonuna oranını, $(C_{Al}/C_x)_{\text{toprak}}$ ise topraktaki Al konsantrasyonunun, yine topraktaki x elementinin konsantrasyonuna oranını ifade etmektedir. Burada Al toprak için referans element olarak kullanılmaktadır. Bunun nedeni Al'un toprakta bolca bulunması, topraktan başka önemli kaynağının olmaması, pek çok analitik teknikte kolayca ve doğru olarak analiz edilebilmesidir. Al dışında benzer özelliklere sahip Sc, Fe, Li, Sr, Zr, Mn veya Ti gibi litofilik elementler de referans element olarak kullanılabilir. Bu elementlerin topraktan başka kaynaklarının olmadığı varsayılmaktadır (Reimann ve de Caritat, 2005). Hesaplar genellikle toprak kaynağının varlığını değerlendirmek için yapılsa da deniz kıyılarında yapılan çalışmalarda Al yerine Na'un referans element olarak kullanılmasıyla deniz aerosollerinin katkısını belirlemeye yönelik ZF hesaplamak da mümkündür.

ZF sıfırdan başlayarak değerler alan bir parametredir. Eğer bir elementin tek kaynağı toprak ise o element için hesaplanan ZF değeri 1.0 olacaktır. >1.0 değerler elementlere toprak dışındaki kaynakların da katkıda bulunduğunu göstermektedir.

2.10. Pozitif Matriks Faktörizasyonu (PMF)

Pozitif Matriks Faktörizasyonu (PMF) Paatero ve Tapper (1993,1994) ve Paatero (1997) tarafından geliştirilmiştir. PMF diğer çok değişkenli reseptör modellerine kıyasla yeni bir teknik olmasına rağmen, aerosol kaynak belirleme, diğer çok-değişkenli reseptör modelleri gibi, bir alıcı ortamda zamana bağımlı olarak aynı değişimi gösteren kirlenicilerin aynı kaynaktan geldiği varsayımına dayanmaktadır. Çok değişkenli varyans analizlerinde aynı değişimi gösteren

parametreler veri setinin deęişkenlięini açıklayan minimum sayıda faktör altında (kaynaklar) altında gruplandırılmakta ve her bir faktör bir kaynak veya kaynak tipi ile ilişkilendirilmektedir (Chueinta vd., 2000).

PMF kısıtlı, aęırlıklı en küçük kareler minimizasyon düzenini kullanarak genel reseptör modelleme problemlerini çözmekte kullanılmaktadır. PMF modelinde p tane kaynak, kaynak türü veya kaynak bölgesinin (faktörler) bir reseptörü etkiledięini ve ölçülen parametrelerin gözlenen konsantrasyonlarında deęişime p adet faktörden kaynaklanan emisyonların doğrusal kombinasyonlarının neden olduęu varsayılmaktadır.

PMF modeli matematiksel olarak denklem 3.5.2'de verilmektedir. Bu eşitlikte X_{ij} bir alıcı ortamda i gündeki j kirleticisinin konsantrasyonunu; g_{ik} : k faktörün i gündeki reseptöre olan katkısını; f_{kj} : kirletici j nin k faktördeki katkısını; e_{ij} : ise i gündeki j kirleticilerin açıklanamayan kısmını göstermektedir

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \quad 2.4$$

PMF teknięinde, sadece x_{ij} lerin bilindięi farz edilmekte ve kaynak katkılarının (g_{ik}) ve profillerin (f_{kj}) bulunmasına çalışılmaktadır. Kaynak katkıları (g_{ik}) ve kaynak profilleri (f_{kj}) negatif deęerler alamaz. Böylece hem kaynaklar negatif kimyasal konsantrasyonu içermemekte hem de örneklerde negatif kaynak katkısı gözlenmemektedir. Bu PMF'in geleneksel FA'ne kıyaslan önemli üstünlüklerinden birisidir. FA'da kaynak katkıları negatif olabilmektedir. Doğal olarak negatif kaynak katkılarının fiziksel bir anlamı bulunmamaktadır.

PMF'in aęırlıklandırılmış kısmında ise yüksek belirsizlięe sahip verilerin (eksik deęerler, tayin sınırının altındaki deęerler veya negatif deęerler) aęırlıkları kaynak belirlemeye olan etkilerini azaltmak için düşürölmektedir. Bu PMF'in FA ve PCA'ya kıyaslan en önemli avantajlarından birisidir. Geleneksel FA'da, eksik verilere (tayin sınırının altında veya ölçölmemiş deęerler) izin verilmemektedir. Ancak atmosferik eser element veri setlerinde bazı elementler düşük konsantrasyonlara sahip olduęundan, FA çalışmalarında ya büyük sayıda element ve örnekler veri setinden çıkarılır yada eksik verilerin yerine yeni deęerler atanır. Ancak her iki yaklaşıma da tam olarak doğru deęildir. Çünkü eksik verilerin yerine yenisini koyarak doğru konsantrasyonların elde edilmesini saęlayan uygun bir yöntem yoktur. Ayrıca örneklerin veri setinden çıkarılması ise verilerle ilgili bilgilerde kayıplara yol açacaktır. Dięer taraftan PMF analizinde de kimi örnekler veya elementler veri setinden çıkarılır. Ancak PMF analizinde eksik verilerin yerine atanan deęerlere yüksek belirsizlikler yüklenerek bu deęerlerin modeldeki aęırlıkları da düşürölmektedir.

PMF'in en küçük kareler kısmında, PMF`te nesne fonksiyonu (objective function) olan Q, denklem 3.5.3`te verilen en küçük kareler çözümüne göre minimize edilmektedir. Bu denklemde s_{ij} i kimyasalın j gündeki belirsizliğini ifade etmektedir.

Eğer model veri seti için uygunsuzsa ve eğer modeldeki belirsizlikler veri setinin içerisindeki belirsizlikleri tam olarak yansıtıyorsa; teorik Q değeri yaklaşık olarak konsantrasyon veri setindeki veri sayısına eşit olacaktır (EPA, 2008).

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left(\frac{X_{ij} - \sum_{k=1}^r g_{ik} f_{kj}}{s_{ij}} \right)^2 \quad 2.5$$

Bu çalışmada diğer PMF programlarına kıyasla daha fazla kullanıcı dostu olan EPA PMF 3.0.2.2. versiyonu kullanılmıştır. Hedef kirleticilerin her bir örnek için konsantrasyonları ve bunlara karşılık gelen belirsizlikleri PMF programında giriş verisi olarak kullanılmaktadır. Yani PMF programının çalışabilmesi için konsantrasyonların ve belirsizliklerin olduğu dosyaların hazırlanmış olması gerekir. PMF analizi için veri setinde eksik kirletici olmamalıdır. Bu eksiklikleri gidermek için literatürde çeşitli yöntemler kullanılmaktadır (Reff et al., 2007); 1) eksik kirleticilere sahip olan örnekler veri setinden tamamen çıkarılır, 2) eksik ölçümlere ait kirleticiler veri setinden çıkarılır, 3) eksik ölçümlere ait her bir kirletici için bir değer atanır ve bu ölçümlerin belirsizlikleri artırılır. Eksik ölçümler için genellikle aritmetik ortalama, medyan veya geometrik ortalama kullanılır. Konsantrasyonları tayin sınırının (TS) altında olan kirleticiler tayin sınırının yarısı ile değiştirilirken (TS/2), belirsizlikleri ise tayin sınırının beş bölü altısı oranında (5/6*TS) artırılır. Böylece tayin sınırının altında kalan değerlerin belirsizlikleri artırılmış olur. Eğer bir kirleticinin örnek sayısının %95`i tayin sınırının altındaysa bu kirletici veri setinden çıkarılır.

EPA PMF kullanıcı dostu bir ara-yüze sahiptir. Analiz veri girişi kısmında dört adet alt kategori mevcuttur. Konsantrasyon/Belirsizlik ekranında giriş verisine ait istatistikler (25. Pörsentil, 50. Pörsentil, 75. Pörsentil ve maksimum konsantrasyon değerleri) ve her bir kirletici için sinyal/gürültü oranları (S/N) otomatik olarak hesaplanır ve sergilenir. Sinyalin gürültüye olan oranı aşağıdaki denklem kullanılarak hesaplanmaktadır:

$$\left(\frac{S}{N} \right)_j = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (X_{ij} - \mu_{ij})^2}{\sum_{i=1}^n s_{ij}^2}} \quad 2.6$$

Kullanıcı bu istatistiki sonuçları inceleyerek kirleticilerin kategorilerini güçlü, zayıf veya kötü olarak atamaktadır. Paatero and Hopke (2003) S/N değerleri 0.2'nin altında olan kirleticileri kötü, S/N değeri 2 veya 2'den daha fazla olan kirleticileri güçlü ve S/N değeri 0.2 ile 2 arasında olanları ise zayıf olarak tanımlamıştır. PMF'te eğer kirleticiler kötü olarak tanımlanmışlarsa bu kirleticiler analize dahil edilmezler, zayıf olarak kategorilendirilmiş kirleticilerin ise belirsizlikleri üç kat arttırılır. Ancak bir kirleticinin analizde kalması isteniyorsa kirleticinin veri dosyasındaki belirsizlikleri beş ile 10 kat arasında arttırılarak kirletici analize dahil edilir (Paatero and Hopke, 2003). PMF te hedef nesne fonksiyonu Q değerinin minize edilmesidir. Dolayısı ile Q değerini model performansını gösteren en önemli indikatör olduğunu söylemek çok yanlış olmayacaktır. Çeşitli tekrarların arasındaki en küçük Q değeri seçilmekte ve bu değer problemdeki lokal minimum mu yoksa küresel minimum mu olduğu araştırılmaktadır. PMF analizi sonucunda "robust" ve "gerçek" olmak üzere iki tane Q değeri elde edilir. Robust Q değeri veri setinde oldukça farklılık gösteren örneklerin (outlier) çıkarılması sonucu hesaplanan bir Q değeri iken, gerçek Q ise tüm verinin kullanılması sonucu elde edilen Q değeridir. PMF'in ürettiği Q değerleri teoretik Q değerine (yaklaşık olarak başlangıç konsantrasyon dosyasındaki örnek sayısına eşit olan) yakın veya eşit olmalıdır.

Birbirinden ayrılmış faktörleri uygun olarak kullanmak için, PMF'te temel çözüme F_{peak} seçeneği uygulanmakta ve bu şekilde seçilen temel çözüm F_{peak} seçeneği yardımıyla ile gerçek çözüme geri döndürülmektedir.

Veri setinden (ölçüm hataları veya tesadüfi örnek hataları gibi) ve PMF modelini kendisinden (çözümdeki belirsizlikler gibi) olmak üzere PMF analizinde bir takım belirsizlikler oluşmaktadır (Hemann et al., 2009). Bu yüzden oluşan bu hataları en aza indirmek için temel çözüme (kabul edilen çözüm de denilebilir) bootstrap metodu uygulanabilmektedir (Wehrens et al., 2000).

Bu çalışmada PMF'in EPA versiyonu istasyonlardaki aerosol verilerine uygulanmıştır. PMF uygulamalarında, yukarıda anlatılan optimizasyon işlemleri yapılmış ve oluşan değişik çıktılar arasında Faktörlerdeki elementlerin konsantrasyonları (factor loadings), her faktörün elementlerin varyanslarının ne kadarını açıkladığı, her faktörün her örnekteki ağırlığının bir ölçütü olan faktör skorlarının zaman içerisindeki değişimleri, faktörlerin kaynak türleri ile ilişkilendirilmesinde kullanılmıştır. Son olarakta faktörlerin temsil ettiği kaynakların ölçülen aerosol kütlesine katkıları hesaplanmış ve değerlendirilmiştir.

3. SONUÇLAR ve TARTIŞMA

3.1. Veri setlerinin istatistik özellikleri

Bu çalışmada, ikinci bölümde de etraflıca tartışıldığı gibi, 4 istasyonda sekiz veri seti oluşturulmuştur. Oluşturulan veri setlerinden dört tanesi bu istasyonlarda toplanan aerosol örneklerinin analiziyle meydana gelmiş diğer dört tanesi de yağmur suyu örneklerinin analizi ile oluşturulmuştur. Her istasyonda oluşturulan aerosol veri setlerinin istatistik özellikleri, Antalya, Bolu, Kırklareli ve Trabzon istasyonları için, sırasıyla Tablo 3.1, Tablo 3.2, Tablo 3.3 ve Tablo 3.4 de verilmiştir.

Bu istasyonlarda üretilen yağmur suyu veri setlerinin kısa istatistik özetleri de benzer şekilde Antalya yağmur suyu verileri için Tablo 3.5'de, Bolu yağmur suyu için Tablo 3.6'de, Kırklareli yağmur suyu için Tablo 3.7'de ve Trabzon yağmur verileri için de Tablo 3.8'de gösterilmiştir.

Her tabloda o istasyonda ölçülen elementlerin ortalama ve standart sapmaları, medyan değerleri, aralıkları (maksimum ve minimum olarak) ve her element ve iyon için o istasyonda kaç veri olduğu gösterilmiştir.

Aerosol ve yağmur suyu farklı cihazlarla analiz edildiğinden bu iki matriste ölçülen element sayıları farklı olmuştur. Aerosoller EDXRF tekniği ile analiz edildiğinden Na, Mg, Al, Si, SO₄²⁻, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Ni, Cu, Zn, As, Ba, Pb, ölçümleri gerçekleştirilmiştir. Bunlara iyon kromatografisi ile analiz edilen Cl ve NO₃⁻ ile eklenerek her istasyonda 19 iyon ve element ölçülmüştür. Esasında iyon kromatografisi ile sadece Cl ve NO₃⁻ değil, bunlarla birlikte K, Ca, Na ve S de ölçülmüştür. Ancak bu iyonlar aynı zamanda XRF ile de ölçüldüklerinden ayrıca listede gösterilmemiştir.

Yağmur örnekleri ise çok daha hassas bir analitik cihaz olan ICPMS ile analiz edilmiştir. Bu teknikle yağmur suyunda 51 elementi tayin etmek mümkün olmuştur. Yağmur suyunda da iyon kromatografisi ile SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺, Cl⁻, Ca²⁺, K⁺, Na⁺, Mg²⁺ iyonları da ölçülmüştür. Bu iyonların büyük bir bölümü ICP ile de ölçüldüğünden tablolarda ayrıca gösterilmemiştir.

Bu tür ölçümlerde unutulmaması gereken bir nokta iyon kromatografisi ile suda çözünebilen iyonların ölçüldüğü, buna karşılık ICPMS ve XRF ile ise elementlerin toplam konsantrasyonlarının ölçüldüğüdür. Bu nedenle bu çalışmada eğer bir element veya iyon hem iyon kromatografisi, hem de XRF (veya ICPMS) ile ölçülüyorsa XRF veya ICPMS sonuçları kullanılmıştır. SO₄²⁻, Ca, K, Mg ve K hem iyon kromatografisi hem de diğer analitik tekniklerle (XRF ve ICPMS) ölçülmektedir. Bu çalışmada hepsi için ICPMS veya XRF sonuçları kullanılmıştır

Tablo 3. 1 Aerosol örneklerinin istatistik değerleri: Antalya istasyonu (konsantrasyonlar ng m⁻³ cinsinden verilmiştir)

	PM2.5-10					PM2.5					PM10				
	X ± σ	MED	MAX	MIN	N	X ± σ	MED	MAX	MIN	N	X ± σ	MED	MAX	MIN	N
Na	920 ± 1044	607	15	7293	461	450 ± 537	260	17	4208	461	1370 ± 1456	906	75	10785	461
Mg	366 ± 461	248	47	5558	381	136 ± 169	82	11	1419	381	502 ± 596	347	94	6967	381
Al	310 ± 462	183	6,24	6361	459	141 ± 252	74	4	2961	459	451 ± 660	273	18	7917	459
Si	1053 ± 1665	608	32	19497	459	481 ± 723	265	7,44	7422	459	1533 ± 2242	929	62	26919	459
SO4	612 ± 744	364	0,00	7323	461	2983 ± 1985	2445	0,00	16054	461	3595 ± 2251	2986	0	17567	461
K	135 ± 157	93	11	1856	461	125 ± 133	88	6,45	1453	461	260 ± 267	193	30	3310	461
Ca	1058 ± 1205	781	8,85	14005	456	295 ± 362	199	2,33	4541	456	1353 ± 1513	1017	11	18546	456
Ti	16 ± 25	10	0,20	282	461	7,01 ± 11	3,81	0,10	132	461	23 ± 34	15	0,56	414	461
V	1,94 ± 2,00	1,34	0,06	17	461	1,08 ± 1,19	0,66	0,02	14	461	3,02 ± 2,91	2,09	0,12	31	461
Cr	3,11 ± 10	1,51	0,01	111	433	2,73 ± 13	1,25	0,01	257	433	5,84 ± 21,17	3,09	0,02	366	433
Mn	3,99 ± 4,98	2,73	0,07	49	438	2,75 ± 3,25	1,84	0,08	28	438	6,75 ± 7,61	5,17	0,15	73	438
Mn	153 ± 263	92	2,07	3263	456	94 ± 124	60	3,29	1760	456	247 ± 355	169	5,36	4402	456
Ni	1,21 ± 2	0,73	0,00	12	380	1,37 ± 2,17	0,91	0,02	27	380	2,59 ± 3,26	1,72	0,03	39	380
Cu	10 ± 18	4,42	0,03	135	173	7,10 ± 12	3,66	0,02	94	160	13 ± 25	5,30	0,15	213	221
Zn	5,50 ± 5,07	4,32	0,37	60	460	5,04 ± 4,37	3,92	0,32	44	460	11 ± 8,18	8,65	1,03	104	460
As	0,23 ± 0,21	0,19	0,01	2	461	0,33 ± 0,25	0,26	0,02	2,98	461	1 ± 0,40	0,48	0,04	5,08	461
Ba	4,25 ± 5,04	3,02	0,03	67	459	3,15 ± 3,29	2,15	0,03	36	459	7 ± 7,45	5,53	0,06	88	459

Pb	5,20 ± 4,89	4,46	0,23	71	301	6,88 ± 5,54	5,73	2,06	83	301	12 ± 10	10	6,03	154	301
Cl	1179 ± 1197	866	23	9703	423	616 ± 739	401	10	6132	423	1795 ± 1732	1410	33	13117	423
SO4	613 ± 744	364	6,95	7323	460	2990 ± 1982	2462	45	16054	460	3603 ± 2247	2989	51	17567	460
NO3	228 ± 260	134	4,35	1489	367	1261 ± 1162	897	45	9974	367	1489 ± 1283	1113	123	10508	367

Tablo 3.2. Aerosol örneklerinin istatistik değerleri: Bolu istasyonu

	PM_{2.5-10}					PM_{2.5}					PM₁₀				
	X ± σ	Median	Min	Max	N	X ± σ	Median	Min	Max	N	X ± σ	Median	Min	Max	N
MASS	17340 ± 28423	10986	212,29	295033,26	202	19042 ± 14920	16806	92	158712	246	36790 ± 31900	30154	3699	279354	190
BC	238 ± 179	199	3,10	911,00	197	1049 ± 623	1002	29	3175	207	1277 ± 759	1240	10	3476	191
Na	125 ± 144	92	1,00	984,41	237	147 ± 192	87	0,26	1689	245	277 ± 278	176	6,71	2003	214
Mg	78 ± 89	50	0,61	709,81	202	119 ± 152	82	1,91	1570	209	205 ± 216	160	3,72	2118	156
Al	254 ± 258	181	0,82	1924,12	174	384 ± 463	241	3,93	4349	181	638 ± 692	478	23	6215	128
Si	565 ± 594	386	2,49	4538,05	217	890 ± 1121	517	22	10228	212	1453 ± 1517	1046	86	14637	184
SO ₄	3600 ± 3893	2577	10,35	28323,76	272	3026 ± 4115	1561	4,34	30054	261	6682 ± 5929	4999	221	46777	253
K	231 ± 181	191	3,91	1361,11	259	232 ± 233	180	2,15	2483	277	490 ± 351	412	18	3087	237
Ca	994 ± 1072	555	8,00	5548,12	263	1595 ± 2140	766	11	13523	249	2691 ± 2402	2118	134	19019	232
Ti	34,78 ± 42,06	22,43	1,40	339,43	202	33,41 ± 37,31	22,47	0,09	351	221	72 ± 63	56	3,84	484	167
V	2,92 ± 3,67	1,83	0,51	27,58	80	1,88 ± 1,81	1,43	0,01	12	110	6 ± 6	4	1,18	32	46
Cr	11 ± 11	8	0,53	82	103	8,53 ± 9,43	5,44	0,27	69	107	21 ± 20	15	1,08	152	80
Mn	20,01 ± 16,85	12,63	3,38	78,81	122	18 ± 18	13	2,57	167	126	39 ± 23	36	9,01	104	80
Fe	752,68 ± 1122,10	330,77	14,12	6023,82	118	583 ± 571	412	0,11	3431	126	1741 ± 1732	1010	147	7688	76

Ni	3,48 ± 3,07	2,75	0,27	14,39	66	2,47 ± 1,21	2,52	0,09	4,97	49	7,76 ± 4,56	6,68	1,07	18	27
Cu	9,71 ± 13,85	5,04	0,03	82,91	123	6,79 ± 7,00	4,61	0,03	41	115	20 ± 21	13	2,20	100	80
Zn	33,16 ± 38,35	20,68	0,01	328,38	222	30 ± 30	23	0,01	265	229	65 ± 59	48	2,56	458	186
As	0,79 ± 0,74	0,57	0,02	4,86	125	0,78 ± 0,78	0,55	0,01	5	111	1,83 ± 1,39	1,30	0,18	7	66
Ba	4,39 ± 3,28	3,66	0,06	9,16	28	10,30 ± 11,35	5,10	1,21	43	18	18 ± 12	14	2,94	45	14
Pb	15,48 ± 14,12	10,90	0,16	77,09	183	14,53 ± 14,71	8,93	0,08	115	178	32 ± 24	25	1,15	122	117
Cl	258,22 ± 390,96	131,24	0,38	2675,32	232	292 ± 551	143	0,83	6120	241	568 ± 846	328	2,80	8795	214
NO3	1743,85 ± 2584,28	993,91	4,26	27298,04	259	1336 ± 2315	619	3,06	17785	261	3201 ± 4191	1988	60	45083	253

Tablo 3.3 Aerosol örneklerinin istatistik değerleri: Kırklareli istasyonu (konsantrasyonlar ng m⁻³ cinsinden verilmiştir)

	PM_{2.5-10}					PM_{2.5}					PM₁₀				
	X ± σ	Median	Min	Max	N	X ± σ	Median	Min	Max	N	X ± σ	Median	Min	Max	N
mass	9210 ± 10038	6923	170	86212	442	10301 ± 7036	8923	84	51694	392	18878 ± 13589	15745	1229	137906	334
BC-IR	1837 ± 21997	72	0,01	315597	306	2946 ± 22878	91	0,04	240963	126	4306 ± 32590	219	0,30	315641	93
Na	170 ± 238	84	1,59	2091	450	65 ± 85	41	0,25	879	355	233 ± 273	142	5,53	2388	313
Mg	261 ± 852	94	4,94	11337	426	75 ± 122	30	0,07	1141	297	356 ± 973	144	5,26	11353	266
Al	459 ± 1389	179	1,36	17842	390	192 ± 339	82	0,01	3566	258	569 ± 1352	301	3,27	18285	229
Si	1107 ± 3037	438	0,25	37852	400	460 ± 905	159	0,43	10318	291	1294 ± 2771	666	2,63	38502	265

						2915 ±					3416 ±					
SO4	500 ± 530	354	2,48	5705	480	1999	2593	3,51	12938	413	2272	3007	58	15257	379	
K	149 ± 144	101	6,73	1204	463	149 ± 132	108	0,26	1097	388	285 ± 218	228	30	1627	344	
Ca	700 ± 1382	322	3,36	16531	471	198 ± 353	78,42	0,19	3501	311	930 ± 1694	448	9,42	17534	284	
Ti	69 ± 443	16	0,04	7806	434	19 ± 34	8,20	0,04	365	264	97 ± 529	29	1,27	7884	230	
V	5,63 ± 23	1,48	0,06	233	208	1,58 ± 1,60	1,07	0,02	8	85	11 ± 33	3,39	0,49	240	50	
Cr	9,16 ± 11	6,42	0,08	139	360	6,91 ± 6,79	5,00	0,06	53	288	17 ± 15	15	0,17	148	242	
Mn	22 ± 35	13	0,23	331	330	12 ± 12	8,35	0,04	130	248	31 ± 38	22	0,49	361	230	
	1000 ±										1872 ±					
Fe	2459	311	0,29	19971	323	514 ± 504	357	2,41	2578	190	3199	856	19	20442	152	
Ni	4,17 ± 7,19	1,90	0,02	48	204	1,84 ± 1,30	1,60	0,02	7,05	171	6,27 ± 6,92	4,08	0,38	36	75	
											25,37 ±					
Cu	15 ± 34	5	0,03	278	174	5,44 ± 5,44	3,64	0,03	31	199	43,01	11,04	0,63	279	115	
Zn	39 ± 85	25	0,09	957	234	23 ± 24	14	0,01	196	277	71 ± 101	52	0,64	976	180	
As	0,34 ± 0,82	0,19	0,00	9	173	0,26 ± 0,15	0,23	0,01	0,79	204	0,55 ± 0,80	0,42	0,00	9,25	173	
Ba	27 ± 89	5,66	0,03	984	141	7,71 ± 8,76	4,67	0,05	47	219	41 ± 104	14	1,12	1031	114	
	7,16 ±															
Pb	12,27	4,35	0,06	84	144	5,46 ± 4,52	4,59	0,07	32	180	10 ± 14	6,54	0,05	82	123	
Cl	303 ± 576	128	0,31	4518	450	113 ± 232	58	0,15	3364	355	385 ± 571	209	1,06	5472	313	
						1186 ±					1490 ±					
NO3	201 ± 265	118	0,99	2655	480	1987	797	1,39	35314	413	2286	983	23	37970	379	

Tablo 3. 4 Aerosol örneklerinin istatistik değerleri: Trabzon istasyonu (konsantrasyonlar ng m⁻³ cinsinden verilmiştir)

	PM _{2.5-10}					PM _{2.5}					PM ₁₀				
	X ± σ	Median	Min	Max	N	X ± σ	Median	Min	Max	N	X ± σ	Median	Min	Max	N
mass	11858 ± 24099	7041	211,2	297952	353	10409 ± 21385	7795	250,3	303832	361	22477 ± 44695	15595	2602,1	601784	351
BC	123 ± 291	86	3,9	4327	346	294 ± 755	222	0,88	10313	286	1093 ± 423	320	36,9	14640	276
Na	67 ± 96	42	1,0	795	331	31 ± 39	25	1,17	474	295	107 ± 132	80	5,9	1257	284
Mg	139 ± 351	70	8,8	3295	228	69 ± 144	39	0,87	1771	176	236 ± 506	126	15,1	4645	168
Al	376 ± 867	210	14,0	8706	227	178 ± 355	111	0,51	4457	196	586 ± 1202	375	19,0	11426	189
Si	1078 ± 3125	518	36,0	33039	239	445 ± 855	300	2,97	11523	228	1573 ± 3821	872	43,3	36249	223
SO4	308 ± 699	210	4,1	10153	234	1763 ± 4858	1263	31,5	78790	267	2216 ± 5831	1744	56,7	88943	233
K	141 ± 375	94	12,6	5504	242	90 ± 147	69	0,92	2138	241	235 ± 529	162	19,3	7642	229
Ca	804 ± 1697	482	35,3	20760	256	272 ± 526	153	0,52	5601	216	1182 ± 2339	687	63,90	26361	211
Ti	196 ± 2455	13	0,3	36252	217	22 ± 59	8	0,04	466	154	210 ± 2487	19	-0,37	36719	217
V	39 ± 194	1	0,0	1084	30	3,89 ± 4,49	0,98	0,12	12	17	135 ± 340	20	0,24	1095	9
Cr	11 ± 40	6	0,0	537	186	7,06 ± 8,92	4,71	0,03	99	184	19 ± 45	13	0,49	556	167
Mn	21 ± 71	10	0,5	909	185	11,74 ± 15,99	8,11	0,21	171	184	33 ± 83	21	0,70	986	179
Fe	733 ± 3224	147	4,3	36224	142	502 ± 1103	159	2,99	6430	86	1966 ± 5569	509	43,1	42654	69

Ni	1,91 ± 3,60	0,88	0,0	19,8	178	3,70 ± 15,93	1,99	0,04	185,9	134	4,98 ± 5,91	3,55	0,86	32,3	159
Cu	9,16 ± 19,72	3,27	0,0	112,9	174	6,92 ± 14,21	2,56	0,12	78,2	72	24,75 ± 41,24	8,58	0,87	177,1	36
Zn	31 ± 44	22	0,0	326,7	98	29 ± 29	20	0,01	169,4	103	69 ± 80	43	2,25	452,1	51
As	0,23 ± 0,69	0,16	0,0	8,92	166	0,23 ± 0,38	0,18	0,00	4,8	162	0,44 ± 1,11	0,33	0,03	13,7	148
Ba	3,49 ± 2,02	3,27	0,2	9,32	81	3,90 ± 2,72	3,17	0,85	11,9	29	7,59 ± 3,09	7,58	2,45	13,1	16
Pb	3,77 ± 5,81	2,35	0,1	45,2	79	4,10 ± 5,25	2,99	0,15	43,1	118	9,18 ± 12,82	6,12	1,27	79,2	38
Cl	136 ± 227	75	1,6	2378,9	331	63 ± 114	39	0,47	1438,4	295	212 ± 341	137	2,10	3817,3	284
NO3	157 ± 312	92	0,9	3592,2	334	792 ± 1870	463	5,86	27876,6	367	1075 ± 2266	694	12,0	31468,8	333

Tablo 3. 5 Yağmur Suyu örneklerinin istatistik değerleri: Antalya istasyonu

	$X \pm \sigma$ $\mu\text{g L}^{-1}$	Median $\mu\text{g L}^{-1}$	Max $\mu\text{g L}^{-1}$	Min $\mu\text{g L}^{-1}$	N
Ph	6,10 ± 0,56	6,28	7,03	4,15	51
H+	3,01 ± 10,83	0,52	70,79	0,09	51
NH4	489 ± 507	340	2440	10	50
SO4	1398 ± 1470	790	6530	100	51
NO3	1037 ± 1080	620	4350	90	50
Cl	539 ± 492	360	2040	100	49
Li	0,19 ± 0,21	0,11	0,64	0,03	6
Na	300 ± 269	220	1410	40	51
Mg	111 ± 111	80	530	10	51
Al	160 ± 198	93	917	0,46	20
S	630 ± 269	570	1330	220	37
K	350 ± 749	100	4690	10	41
Ca	1644 ± 1717	955	7130	90	38
Ti	53 ± 48	36	152	14	6
V	0,34 ± 0,35	0,27	1,74	0,00	33
Cr	19 ± 17	17	105	4,50	34
Mn	4,49 ± 3,25	3,81	16,52	0,87	37
Fe	265 ± 324	177	1568	4,21	33
Co	0,95 ± 0,91	0,56	3,74	0,06	22
Ni	20 ± 20	12	104	0,21	26
Cu	92 ± 99	105	449	0,13	32
Zn	45 ± 39	35	107	1,75	4
Ge	0,076 ± 0,079	0,053	0,396	0,005	32
As	0,15 ± 0,09	0,13	0,49	0,03	34
Se	3,94 ± 2,21	4,30	6,30	0,20	5
Rb	0,28 ± 0,36	0,15	1,40	0,00	14
Sr	2,70 ± 3,94	1,23	19,01	0,03	25
Y	0,041 ± 0,071	0,015	0,341	0,000	23
Mo	0,67 ± 0,89	0,29	2,91	0,06	8
Cd	0,16 ± 0,19	0,15	0,97	0,01	31
In	0,0077 ± 0,0086	0,0021	0,0228	0,0001	5
Sn	2,64 ± 1,85	2,19	6,68	0,40	34
Sb	0,019 ± 0,000	0,019	0,019	0,019	1
Cs	0,014 ± 0,015	0,008	0,053	0,002	8

Ba	8,39 ± 9,90	7,59	58,97	0,06	34
La	0,10 ± 0,11	0,07	0,65	0,03	35
Ce	0,25 ± 0,33	0,16	1,06	0,01	7
Pr	0,0146 ± 0,0241	0,0078	0,1469	0,0017	36
Nd	0,0884 ± 0,1424	0,0330	0,5269	0,0020	12
Sm	0,0202 ± 0,0276	0,0129	0,0957	0,0012	9
Eu	0,0062 ± 0,0056	0,0046	0,0309	0,0009	34
Gd	0,0207 ± 0,0320	0,0052	0,1126	0,0034	10
Tb	0,0089 ± 0,0000	0,0089	0,0089	0,0089	1
Dy	0,0380 ± 0,0270	0,0380	0,0650	0,0110	2
Ho	0,0046 ± 0,0037	0,0035	0,0125	0,0003	7
Er	0,0082 ± 0,0090	0,0065	0,0555	0,0015	35
Tm	0,0007 ± 0,0007	0,0007	0,0014	0,0000	2
Yb	0,0146 ± 0,0206	0,0084	0,0651	0,0002	8
Lu	0,0032 ± 0,0035	0,0008	0,0082	0,0008	3
Hf	0,0361 ± 0,0274	0,0282	0,0854	0,0089	6
Ta	0,0143 ± 0,0197	0,0063	0,0794	0,0001	25
W	z0,0762 ± 0,0414	0,0598	0,1498	0,0168	11
Tl					
Pb	13 ± 19	11	114	0	51
Bi	0,118 ± 0,143	0,064	0,605	0,005	34
Th	0,086 ± 0,055	0,106	0,140	0,010	3
U	0,041 ± 0,039	0,028	0,150	0,000	26

Tablo 3. 6 Yağmur Suyu örneklerinin istatistik değerleri: Bolu istasyonu

	$X \pm \sigma$	Median	min	max	N
	$\mu\text{g L}^{-1}$	$\mu\text{g L}^{-1}$	$\mu\text{g L}^{-1}$	$\mu\text{g L}^{-1}$	
pH	6,13 ± 0,76	6,14	4,44	7,44	41
Li	1,63 ± 3,83	0,35	0,01	13,08	10
Na	439 ± 540	302	26	2979	41
Mg	177 ± 306	99	11	2020	41
Al	258 ± 216	214	6	974	32
S	833 ± 586	765	72	3334	40
K	154 ± 183	106	12	1148	41
Ca	1525 ± 1329	1048	120	5771	41
Ti	134 ± 48	136	57	220	8
V	0,32 ± 0,22	0,24	0,03	0,81	41

Cr	21 ± 9	20	15	78	41
Mn	8,11 ± 7,70	5,66	1,88	38,99	41
Fe	125 ± 100	103	2	438	40
Co	0,77 ± 0,73	0,49	0,03	2,56	15
Ni	15 ± 13	13	3	71	41
Cu	5,27 ± 4,15	4,23	0,03	14,58	39
Zn	127 ± 177	69	1	664	14
Ge	0,19 ± 0,12	0,21	0,02	0,45	18
As	0,88 ± 1,38	0,49	0,11	9,07	41
Se	4,18 ± 3,07	3,06	0,24	10,93	21
Rb	0,34 ± 0,44	0,20	0,00	2,18	27
Sr	7,94 ± 12,85	3,71	0,19	65,93	28
Y	0,08 ± 0,06	0,06	0,01	0,26	41
Mo	0,56 ± 0,81	0,26	0,04	2,93	17
Cd	0,14 ± 0,19	0,06	0,00	0,59	12
In	0,03 ± 0,03	0,03	0,00	0,10	38
Sn	3,19 ± 1,90	3,35	0,44	6,92	33
Sb	0,05 ± 0,05	0,04	0,00	0,21	22
Cs	0,03 ± 0,04	0,02	0,00	0,14	21
Ba	1,47 ± 2,41	0,64	0,03	12,78	30
La	0,034 ± 0,033	0,028	0,007	0,22	41
Ce	0,26 ± 0,50	0,11	0,01	2,76	27
Pr	0,030 ± 0,021	0,027	0,001	0,094	40
Nd	0,051 ± 0,041	0,049	0,003	0,167	25
Sm	0,022 ± 0,024	0,016	0,001	0,125	30
	0,0038 ±				
Eu	0,0035	0,0024	0,0012	0,017	21
Gd	0,018 ± 0,019	0,014	0,002	0,084	26
	0,0057 ±				
Tb	0,0056	0,0026	0,0006	0,021	17
Dy	0,023 ± 0,015	0,021	0,0080	0,046	14
	0,0078 ±				
Ho	0,0059	0,0057	0,0017	0,023	28
	0,0027 ±				
Er	0,0013	0,0021	0,0011	0,005	15
	0,0094 ±				
Tm	0,0050	0,0082	0,0023	0,018	10
Yb	0,018 ± 0,011	0,016	0,006	0,045	21
	0,0046 ±				
Lu	0,0019	0,0039	0,0017	0,0081	21

Hf	0,075 ± 0,160	0,017	0,000	0,589	12
Ta	0,016 ± 0,015	0,014	0,001	0,050	16
W	0,098 ± 0,068	0,080	0,001	0,251	22
Tl	0,038 ± 0,043	0,023	0,002	0,197	21
Pb	25,24 ± 18,76	21,05	5,61	111,41	41
Bi	0,52 ± 0,61	0,16	0,03	1,91	41
Th	0,059 ± 0,034	0,044	0,031	0,12	4
U	0,079 ± 0,182	0,021	0,002	1,05	34

Tablo 3. 7 Yağmur Suyu örneklerinin istatistik değerleri: Kırklareli istasyonu

	$X \pm \sigma$	Median	Max	Min	N
	$\mu\text{g L}^{-1}$	$\mu\text{g L}^{-1}$	$\mu\text{g L}^{-1}$	$\mu\text{g L}^{-1}$	
Ph	5,55 ± 0,84	5,67	6,88	3,99	50
H	14 ± 25	2	102	0	50
NH4	602 ± 700	380	3310	10	49
S04	4303 ± 4967	2650	19250	390	55
N03	2355 ± 2750	1550	13170	200	55
Cl	2360 ± 4367	910	23510	140	52
Li	1,86 ± 3,32	0,33	11,46	0,02	10
Na	580 ± 600	375	2570	60	53
Mg	129 ± 135	95	590	10	51
Al	940 ± 1221	156	3301	6	18
K	114 ± 129	55	530	10	45
Ca	1334 ± 1553	785	6480	70	51
Ti	34 ± 25	32	86	0,3	16
V	1,04 ± 0,47	0,91	2,23	0,56	22
Cr	25 ± 7	23	48	15	22
Mn	8,52 ± 7,10	6,04	31,62	2,06	44
Fe	137 ± 121	104	474	2,6	25
Co	14 ± 15	10	35	0,0	4
Ni	17 ± 13	20	43	0,5	19
Cu	23 ± 43	5	186	0,1	27
Zn	61 ± 43	44	156	0,8	11
Ge	0,22 ± 0,13	0,22	0,57	0,05	11
As	0,75 ± 0,72	0,47	3,25	0,04	24
Se	3,03 ± 2,94	2,40	9,20	0,20	6
Rb	0,58 ± 0,44	0,48	1,56	0,05	56
Sr	4,13 ± 3,54	3,29	12,91	0,14	15

Y	0,11 ± 0,13	0,04	0,46	0,00	51
Mo	2,65 ± 4,50	0,35	12,52	0,01	15
Cd	0,33 ± 0,30	0,26	1,05	0,00	26
In	0,06 ± 0,07	0,03	0,19	0,00	4
Sn	3,37 ± 2,94	2,88	10,09	0,21	21
Sb	1,81 ± 4,08	0,20	11,80	0,01	7
Cs	0,05 ± 0,04	0,04	0,17	0,00	23
Ba	8,50 ± 9,57	6,62	43,57	0,22	17
La	0,26 ± 0,17	0,24	0,66	0,016	48
Ce	1,22 ± 1,08	1,38	3,71	0,021	12
Pr	0,027 ± 0,028	0,014	0,12	0,002	46
Nd	0,11 ± 0,10	0,06	0,40	0,001	19
Sm	0,033 ± 0,027	0,029	0,079	0,002	8
Eu	0,0059 ± 0,0048	0,0050	0,018	0,000	12
Gd	0,038 ± 0,033	0,026	0,121	0,004	16
Tb	0,006 ± 0,003	0,006	0,008	0,003	2
Dy	0,028 ± 0,019	0,022	0,065	0,007	5
Ho	0,006 ± 0,003	0,005	0,013	0,002	12
Er	0,020 ± 0,017	0,017	0,056	0,000	48
Tm	0,002 ± 0,001	0,002	0,003	0,001	6
Yb	0,022 ± 0,018	0,019	0,065	0,000	14
Lu	0,003 ± 0,002	0,002	0,007	0,000	11
Hf	0,022 ± 0,014	0,019	0,041	0,006	3
Ta	0,032 ± 0,028	0,019	0,099	0,005	8
W	0,074 ± 0,092	0,043	0,292	0,002	8
Tl	0,035 ± 0,024	0,033	0,087	0,005	10
Pb	30,51 ± 51,84	23,93	228,93	0,016	17
Bi	0,55 ± 0,87	0,15	2,76	0,039	8
Th	0,039 ± 0,029	0,023	0,098	0,009	9
U	0,071 ± 0,063	0,069	0,231	0,001	42

Tablo 3. 8 Yağmur Suyu örneklerinin istatistik değerleri: Trabzon istasyonu

	$X \pm \sigma$ $\mu\text{g L}^{-1}$	Median $\mu\text{g L}^{-1}$	Max $\mu\text{g L}^{-1}$	Min $\mu\text{g L}^{-1}$	N
Ph	6,10 ± 0,56	6,28	7,03	4,15	51
H+	3,01 ± 10,83	0,52	70,79	0,09	51
NH4	489 ± 507	340	2440	10	50
SO4	1398 ± 1470	790	6530	100	51

NO3	1037 ± 1080	620	4350	90	50
Cl	539 ± 492	360	2040	100	49
Li	0,19 ± 0,21	0,11	0,64	0,03	6
Na	300 ± 269	220	1410	40	51
Mg	111 ± 111	80	530	10	51
Al	160 ± 198	93	917	0,46	20
S	630 ± 269	570	1330	220	37
K	350 ± 749	100	4690	10	41
Ca	1644 ± 1717	955	7130	90	38
Ti	53 ± 48	36	152	14	6
V	0,34 ± 0,35	0,27	1,74	0,00	33
Cr	19 ± 17	17	105	4,50	34
Mn	4,49 ± 3,25	3,81	16,52	0,87	37
Fe	265 ± 324	177	1568	4,21	33
Co	0,95 ± 0,91	0,56	3,74	0,06	22
Ni	20 ± 20	12	104	0,21	26
Cu	92 ± 99	105	449	0,13	32
Zn	45 ± 39	35	107	1,75	4
Ge	0,076 ± 0,079	0,053	0,396	0,005	32
As	0,15 ± 0,09	0,13	0,49	0,03	34
Se	3,94 ± 2,21	4,30	6,30	0,20	5
Rb	0,28 ± 0,36	0,15	1,40	0,00	14
Sr	2,70 ± 3,94	1,23	19,01	0,03	25
Y	0,041 ± 0,071	0,015	0,341	0,000	23
Mo	0,67 ± 0,89	0,29	2,91	0,06	8
Cd	0,16 ± 0,19	0,15	0,97	0,01	31
In	0,0077 ± 0,0086	0,0021	0,0228	0,0001	5
Sn	2,64 ± 1,85	2,19	6,68	0,40	34
Sb	0,019 ± 0,000	0,019	0,019	0,019	1
Cs	0,014 ± 0,015	0,008	0,053	0,002	8
Ba	8,39 ± 9,90	7,59	58,97	0,06	34
La	0,10 ± 0,11	0,07	0,65	0,03	35
Ce	0,25 ± 0,33	0,16	1,06	0,01	7
Pr	0,0146 ± 0,0241	0,0078	0,1469	0,0017	36
Nd	0,0884 ± 0,1424	0,0330	0,5269	0,0020	12
Sm	0,0202 ± 0,0276	0,0129	0,0957	0,0012	9
Eu	0,0062 ± 0,0056	0,0046	0,0309	0,0009	34
Gd	0,0207 ± 0,0320	0,0052	0,1126	0,0034	10
Tb	0,0089 ± 0,0000	0,0089	0,0089	0,0089	1

Dy	0,0380 ± 0,0270	0,0380	0,0650	0,0110	2
Ho	0,0046 ± 0,0037	0,0035	0,0125	0,0003	7
Er	0,0082 ± 0,0090	0,0065	0,0555	0,0015	35
Tm	0,0007 ± 0,0007	0,0007	0,0014	0,0000	2
Yb	0,0146 ± 0,0206	0,0084	0,0651	0,0002	8
Lu	0,0032 ± 0,0035	0,0008	0,0082	0,0008	3
Hf	0,0361 ± 0,0274	0,0282	0,0854	0,0089	6
Ta	0,0143 ± 0,0197	0,0063	0,0794	0,0001	25
W	z0,0762 ± 0,0414	0,0598	0,1498	0,0168	11
Tl					
Pb	13 ± 19	11	114	0	51
Bi	0,118 ± 0,143	0,064	0,605	0,005	34
Th	0,086 ± 0,055	0,106	0,140	0,010	3
U	0,041 ± 0,039	0,028	0,150	0,000	26

ICPMS tekniđi ile >50 XRF tekniđi ile ise 20 dolayında parametrenin tayin edilmiş olması bütün elementlerin her örnekte ölçülebildiđi anlamına gelmemektedir. Hem aerosollerde hem de yağmur suyu örneklerinde element konsantrasyonları çok düşük olduğundan elementlerin önemli bir bölümü çok az sayıda örnekte gözlenebilmiştir. Bu şekilde az sayıda örnekte görülebilen elementler ortalama konsantrasyonları ile bir fikir vermekle birlikte, daha ileriki bölümlerde tartışılan istatistik değerlendirmelerde bazı sorunlara neden olmuştur.

Gerek Aerosol ve gerekse yağmur suyu örneklerinde elementlerin tamamı log-normal dağılım göstermektedir. Dağılımları lognormal olmayanlarda simetrik olmayan dağılımlar göstermektedir. Bu, tablolarda elementlerin tamamına yakın bir bölümünde ortalama konsantrasyonların medyan değerinin iki katına yakın olmasıyla görülebilmektedir. Bu durumda elementlerin ortalama konsantrasyonlarını kullanırken dikkatli olmak gerekmektedir. Bu çalışmada mümkün olduğunda ortalama konsantrasyonlar yerine medyan konsantrasyonlar kullanılmıştır. Verilerin simetrik bir Gaus dağılımı göstermemesi, bu çalışmaya özgü olmayıp, çevresel çalışmaların hepsinde görülen bir gerçektir.

3.2. Verilerin literatür değerleri ile karşılaştırılması

Verilerin literatürdeki başka veri setleri ile karşılaştırılması değerleri bir perspektife oturtmak açısından önemlidir. Yalnız ölçülen konsantrasyonlar kaynaklara olan mesafelere çok bađlı olduğundan bu tür karşılaştırmalara geređinden fazla bir anlam yüklenmemelidir. Verilerin karşılaştırılmasını etkileyen çok önemli diđer bir faktör de örneklerin ne zaman toplandıđıdır. Akdeniz bölgesinde element ve

iyon konsantrasyonlarının zaman içerisinde azalmakta olduğu bilinmektedir. Bu nedenle, karşılaştırılan veri setleri arasındaki zaman aralığı açıldıkça iki veri setinin karşılaştırılabilirliği de azalmaktadır. Bu çalışmada dört istasyonda aerosollerde ölçülen element konsantrasyonları Akdeniz bölgesinde yapılmış başka çalışmalarla karşılaştırılmıştır. Karşılaştırmada kullanılan istasyonlar aşağıda kısaca tartışılmıştır.

1. Capo Carbonara İstasyonu, Sardinya (Enlem: 39° N, Boylam: 9° E) (Rossini et al., 1999)

İstasyon Sardinya adasının güney doğusunda yer almaktadır. Örnekler Hi-Vol bir örnekleyici kullanılarak toplanmış ve GFAAS ile analiz edilmiştir. Veriler 1990 – 1992 arasında toplanmış 55 örnekten elde edilen sonuçlara dayanmaktadır

2. Tarragona istasyonu, İspanya (Enlem: 01° 14' 52" E , Boylam: 41° 07' 29" N) (Mareno et al., 2006)

Taragona istasyonu İspanya'nın Akdeniz sahilinde, Barselona'ya yaklaşık 100 km mesafededir. İstasyonun kentsel emisyonların etkisinden tamamen uzak olduğunu söylemek pek mümkün değildir. Bu istasyonda 2001 yılında Hi Vol örnekleyiciler kullanılarak PM10 örnekleri toplanmıştır. Toplanan örnekler ICPMS ve ICPOES ile analiz edilmiştir.

3. Vignola istasyonu, Korsika (Sandroni and Migon, 1997)

Örnekleme noktası Korsika'nın kuzeyinde yer almaktadır Bu istasyonda örnekler iki aşamada toplanmıştır. Önce 26 Ocak 1994 ile 16 Mayıs, 1994 ayları arasında, daha sonra da 9 Eylül – 28 Kasım 1994 tarihleri arasında örnekleme yapılmıştır. İstasyon lokal antropojenik etkilerden iyi bir şekilde korunmuştur. Bu aralıklarda toplam 48 aerosol örneği toplanmış ve toplanan örnekler GFAAS ile analiz edilmiştir.

4. Erdemli İstasyonu, Türkiye (Enlem: 36° 33' 54" N, Boylam: 34° 15' 18" E) (Koçak et al., 2007; Kubilay and Saydam, 1995)

Erdemli istasyonu ODTÜ Deniz Bilimleri Enstitüsü bünyesinde 1995 yılından bu yana çalışmaktadır. Bu istasyonda değişik zamanlarda toplanan örnekler değişik yayınlarda yer almıştır. Bu çalışmada üretilen verilerle karşılaştırılan eser element konsantrasyonları Nisan 2001 ile Nisan 2002 arasında toplanan örneklerin IC, PIXE ve ICPMS gibi tekniklerle analizi sonucu ortaya çıkmıştır.

5. Monagrega İstasyonu, İspanya (Enlem: 40.5° N, Boylam: 0.2° W) (Rodriguez et al., 2004)

İstasyon İber yarımadasının güneydoğusunda yer almaktadır. Akdeniz sahiline uzaklığı yaklaşık olarak 85 km'dir. Örnekler Mart 1999 ile Temmuz 2000 arasında Hi Vol örnekleyicileri kullanarak toplanmış ve toplanan örnekler ICP MS ile analiz edilmiştir.

6. Sde Boker İstasyonu, İsrail (Formenti et al., 2001)

Sde Broker istasyonu da bu listede yer alan diğer bazı istasyonlar gibi İsrail'deki NEGEV çölünde uzun zamandır çalıştırılmaktadır. Bu çalışmada kullanılan veri seti 20 Haziran – 19 Temmuz 1996 arasında toplanıp analiz edilmiştir.

7. Güney Doğu İtalya (Pirrone et al., 2006)

Karşılaştırma amacıyla kullanılan veriler, 2003 yılında bir yıl süresince toplanan PM10 örneklerinin ICPMS tekniği ile analizi sonucu oluşturulmuştur

8. Tour du Valat and Blanes İstasyonları (Guieu et al., 1997)

Tour du Valat 1990'lı yıllarda çok popüler bir örnekleme istasyonudur. 1995 yılında toplanan örneklerin analiziyle oluşan element konsantrasyonları bu çalışmada toplanan örneklerden elde edilen sonuçlarla karşılaştırılmıştır

9. Alfabia Station (Mateu et al., 1996)

Alfabia istasyonu da 1990'lı yıllarda çok aktif olan istasyonlardan birisidir. İstasyon Mayorka adasında bulunmaktadır. Deniz seviyesinden yüksekliği 1100 m kadardır. Aerosol örnekleri 1994 yılında toplanmış ve GFAAS tekniği ile analiz edilmiştir.

10. Semaphore İstasyonu (Chester et al., 1999)

Bu istasyon Cap Ferrat olarak bilinen Fransa'nın Akdeniz sahilindeki bir bölgede bulunmaktadır. 1997 yılında, Sekiz ay süren çalışmada 10 kadar örnek toplanıp elementler için analiz edilmiştir.

11. Finokalia İstasyonu Girit (35°19' N, 25° 40' E). (Simolik et al., 2003)

İstasyon Girit adasında yer almaktadır. Halen çalışır durumdadır. Bu istasyonda 10 -31 Temmuz 2000 ve 7-14 Ocak 2001 yıllarında bir dizi PM10 örneği toplanarak PIXIE tekniği ile analiz edilmiştir.

İstasyonların Akdeniz bölgesindeki konumları Şekil 3.1 gösterilmektedir

Gerek yukarıda sıralanan istasyonlarda ve gerekse bu çalışmada yer alan dört istasyonda ölçülen element konsantrasyonları Tablo 3.9'da verilmiştir. Tabloda bu çalışmada ölçülen elementlerin tamamı yer almamıştır. Bunun nedeni Si gibi bazı elementlerin yapılan çalışmalarda yer almamasıdır. Bu tür elementler ancak XRF gibi örneklerin çözünürleştirilmesi gerekmeyen analitik tekniklerde ölçülebilmektedir.

Tablodaki elementleri 3 farklı grupta değerlendirmek mümkündür. Birinci grubu Al, Fe gibi torak kökenli elementler oluşturmaktadır. Tablodaki Al ve Fe konsantrasyonlarından da görülebileceği gibi bu tür elementlerin konsantrasyonları Türkiye'deki istasyonlarda, çok fazla olmamakla birlikte, daha yüksektir. Bunun nedeni Doğu Akdeniz'de Sahra Tozunun etkisinin daha fazla olmasıdır. Bu bulgu, daha önce, Doğu ve Batı Akdeniz bölgelerinin karşılaştırıldığı bazı çalışmalarda da görülmüştür. Sadece bu çalışmada kullanılan istasyonlarda değil, Doğu Akdeniz bölgesindeki diğer istasyonlarda da (Girit adasındaki bir istasyonda, İsrail sahilinde yapılan çalışmalarda) toprak kökenli elementlerin konsantrasyonları batı Akdeniz bölgesindeki istasyonlardan daha yüksek bulunmaktadır.

İkinci grup elementler, Na, Mg, Cl gibi, Deniz tuzu elementleridir. Bu elementler, bölge tanımsızın, bir istasyondan diğerine büyük farklılıklar gösterebilmektedir. Deniz tuzu parçacıkları deniz yüzeyinde köpük patlaması (bubble bursting) olarak bilinen bir mekanizmayla oluştuğundan, istasyonlar arasında görülen farklar tamamen istasyonların ne kadar rüzgarlı ve denize yakın bölgelerde kurulmuş olduğuna bağlıdır.

Hava kirliliği açısından en önemli olan üçüncü grubu antropojenik kökenli elementler oluşturmaktadır. Tabloda antropojenik kökenli olduğu şüphe götürmeyecek kesinlikle bilinen element ve iyonlar; SO_4^{2-} , As, NO_3^- , Pb, Zn dur.



Şekil 3.1. Bu çalışmada elde edilen sonuçlarla karşılaştırılan Akdeniz istasyonlarının konumları

Bakır da benzer şekilde tamamen antropojenik kökenli bir element ise de, Akdeniz bölgesinde çok fazla veri bulunamadığından bu karşılaştırmaya dahil edilmemiştir.

Bu çalışmada ölçülen antropojenik kökenli element konsantrasyonlarının Batı Akdeniz bölgesindeki diğer istasyonlarda ölçülenlerden çok farklı değildir. SO_4^{2-} konsantrasyonlarının Türkiye'nin çok farklı bölgelerinde bir birine oldukça yakın olduğu görülmektedir. Dört istasyonda ölçülen SO_4^{2-} konsantrasyonlarının hepsi 2000 – 4000 ng m⁻³ mertebesinde. Bu değerler Tablodaki diğer değerlerden biraz düşüktür. Bunun nedeni tabloda yer alan verilerin farklı yıllarda üretilmiş olmasıdır. SO_4^{2-} düzeyleri, Avrupa'da ve özellikle bölge ülkelerinde alınan önlemler sonucu, Akdeniz bölgesinde hızla düşmektedir. Dolayısı ile Daha önceki çalışmalarda ölçülen SO_4^{2-} konsantrasyonlarının son iki yılda ölçülen değerlerden yüksek olması çok şaşırtıcı değildir.

Bu çalışmada ölçülen Kurşun, As ve Zn konsantrasyonları diğer ölçüm noktalarında ölçülen değerlerle aynı mertebededir. Bu elementlerin konsantrasyonları zaten bütün istasyonlar arasında büyük farklılıklar göstermektedir. Bu çalışmada ölçülen Pb, Zn ve As değerleri de mevcut aralığın üst taraflarında yer alsa da aralığın içerisinde bulunmaktadır.

Tablo 3.9 Bu çalışmada ölçülen element ve iyon konsantrasyonlarının Akdenizin farklı bölgelerinde ölçülen değerlerle karşılaştırılması

Element	Antalya	Bolu	Kırklareli	Trabzon	Fin,	Erdemli	Vig,	Tar,	Sem,	T,Val,	Bla,	Alf,	C,Car,	Mon,	S,Bok,	SE, Italy
Al	450	638	569	580	496	655	109,4		442,2	380	400		210	400	1880	169
As	0,56	1,8	0,55	0,44				0,8								
Ca		2690	930	1180	1093	1888						969	629	930	7080	486
Cd						0,19	0,11	0,3		0,5	0,6	0,14	0,17			
Cl	1794	567	385	211	155	5492								349	1130	509
Co						0,4			0,24	0,26	0,02					
Cr	5,9	21	17	19	1	5,7		2,9	2,73		1,8	1,09	0,5	<1		4,4
Fe	247	1740	1870	1970	800	351,3	119,5		325,9	275	316	317	84	222	1320	181
K	260	489	285	230	455	360						246	280	203	600	
Mg	501	204	356	230								252	615	117	980	
Mn	6,8	39	31	33	16	7,6	1,7	9,2	12,2	13	10	7,96		5	30	3,9
Na	1370	277	233	106		1900						966	4084	294	1330	
NH ₄ ⁺						850								1284	1110	1444
Ni	2,59	7,6	6,3	4,75	3	3,7	0,97	4,2	3,36	2,3	5,5	6,01		5	5	
NO ₃ ⁻		3200	1500	1100		1857								2177	3300	4118
Pb	12,1	32	10	9,1	16	30	8,8	25,5	67,3	55,8	50	5,6	11,7	10	10	8,4
SO ₄ ²⁻	3600	6600	3400	2200	8739	4953								3803	10470	3884
Ti	23,45	71	97	210	79	27,1		22,5						20		9,7
V	3,02	5,8	11	130	11	8,7		7,7				4,32		2	8	5,9

Zn	10,54	64	71	68	15	9,7	11,8	35	51,8	60	50	29,9	30	30	14,5
-----------	--------------	-----------	-----------	-----------	----	-----	------	----	------	----	----	------	----	----	------

Bu çalışmada ölçülen diğer bir grup element de ham antropojenik hem de doğal kaynaklardan atmosfere atıldığı bilinen elementlerdir. Bunlar Cr, Mg, Mn, Ni, Ti ve V'dur. Bu elementlerin davranışı genellikle toprak kökenli elementlerde görülen farklılıklara benzemektedir. Belki Mn, Ti ve Cr bu söylemin biraz dışında tutulabilir, çünkü bu üç elementin bu çalışmada ölçülen konsantrasyonları Akdeniz'deki diğer istasyonlarda ölçülenlerden daha yüksektir.

3.3. Element ve iyon konsantrasyonlarının mevsimsel değişimi

Doğu Akdeniz bölgesinde element konsantrasyonlarının geçirdiği mevsimsel değişimler bu güne kadar çok çalışılmıştır. Bu çalışmada da ölçülen element ve iyonların mevsimsel değişimlerinin incelenmesi, her şeyden önce bu güne kadar ortaya konmuş mevsimsel etkilere aykırı bir durumun olup olmadığının irdelenmesi amacını taşımaktadır. Mevsimsel değişimler genellikle uzun mesafeli taşınım mekanizmalarıyla ilişkilendirildiğinden, daha önce gerek grubumuzda yapılan çalışmalar ve gerekse farklı yerlerde yapılmış çalışmalardan farklı bir değişim gözlenmesi, bu güne kadar üzerinde pek durmadığımız bir mekanizmayı işaret ediyor olabileceğinden, mevsimsel değişimler bu çalışmanın kapsamında değerlendirilmiştir.

Yılın iki mevsimden oluştuğu var sayılmıştır. Kış mevsimi Ocak, Şubat, Mart, Ekim, Kasım ve Aralık aylarından oluşmaktadır. Yaz mevsimi ise, arada kalan Nisan, Mayıs, Haziran Temmuz, Ağustos ve Eylül aylarından oluşmaktadır. Yılın bu şekilde iki mevsime bölünmesi, daha önce Akdeniz bölgesinde yaptığımız çalışmalara dayanmaktadır. Akdeniz bölgesinde yıl bu şekilde bölündüğü zaman Yaz mevsimi yıllık yağışın <math>< 20\%</math>'sinin, kış mevsimi ise yıllık yağışın $> 80\%$'inin görüldüğü dönemler olmaktadır. Yıllık yağış dağılımları istasyonlarda yapılan ölçümlerde konsantrasyonlardaki değişimleri belirlediğinden bu şekilde bir ayırım mantıklı olmaktadır. 1990'lı yılların başında yıl bu şekilde ayrılmış ve sonra Türkiye'nin bir çok bölgesinde yapılan çalışmalarda mevsimler bu şekilde tanımlanmaya devam edilmiştir. Grubumuzda yapılan pek çok çalışmada yılın bu şekilde bölünmesi mantıklı sonuçlar vermiştir. Bu çalışmada da uzun bir deneyimin sonucunda iyi sonuç verdiğini düşündüğümüz bu sistem değiştirilmemiştir.

Dört istasyondaki aerosol örneklerinde ölçülen elementlerin yaz ve kış mevsimi medyan değerleri Tablo 3.10'da verilmiştir. Daha önceki bölümlerde de ifade edildiği gibi, Bu çalışmada gerek tablo ve gerekse şekillerde ortalama konsantrasyonlar yerine medyan konsantrasyon değerleri kullanılmıştır. Bunun nedeni, verilerin daha çok lognormal bir dağılım göstermesi ve dolayısı ile medyan değerinin veri popülasyonunu daha iyi temsil edeceğinin düşünülmesidir. Elementlerin mevsimsel medyan değerleri görsel olarak da

istasyonlar bazında oluşturulmuştur. Bu bölümde daha çok bu şekiller tartışılmıştır.

Tablo 3.10 Antalya, Bolu, Trabzon ve Kırklareli istasyonlarında toplanan aerosol örneklerinde ölçülen elementlerin yaz ve kış mevsimi medyan değerleri. Konsantrasyonlar $\mu\text{g m}^{-3}$ olarak verilmiştir

	Antalya		Bolu		Kırklareli		Trabzon	
	Coarse Summ er	Fine Wint er	coarse Sume r	fine Sumer Winter	coarse Summ er,	fine Wint er	coarse Summ er	fine Wint er
MAS			8233,42	12372,66	14861,78	19622,89	6929,1	6898,9
BC			182,00	237,15	1018,70	956,90	89,00	72,70
Na	433,29	207,51	93,08	86,96	95,48	71,34	48,10	27,70
Mg	229,35	79,20	51,76	47,47	88,23	85,52	72,10	58,00
Al	104,72	34,16	186,90	153,19	234,60	259,90	239,50	165,70
Si	321,54	123,17	437,96	325,66	535,15	496,47	566,30	458,00
SO ₄	304,09	2006,32	2854,43	1935,89	2025,67	1408,41	228,50	190,20
K	199,70	62,39	113,75	180,57	201,92	175,58	98,10	77,30
Ca	696,05	174,02	670,32	489,14	928,28	750,09	498,10	433,30
Ti	828,65	2,11	25,06	17,28	24,21	20,81	13,50	11,60
V	12,45	0,46	1,73	1,92	1,35	1,57	0,90	1,70

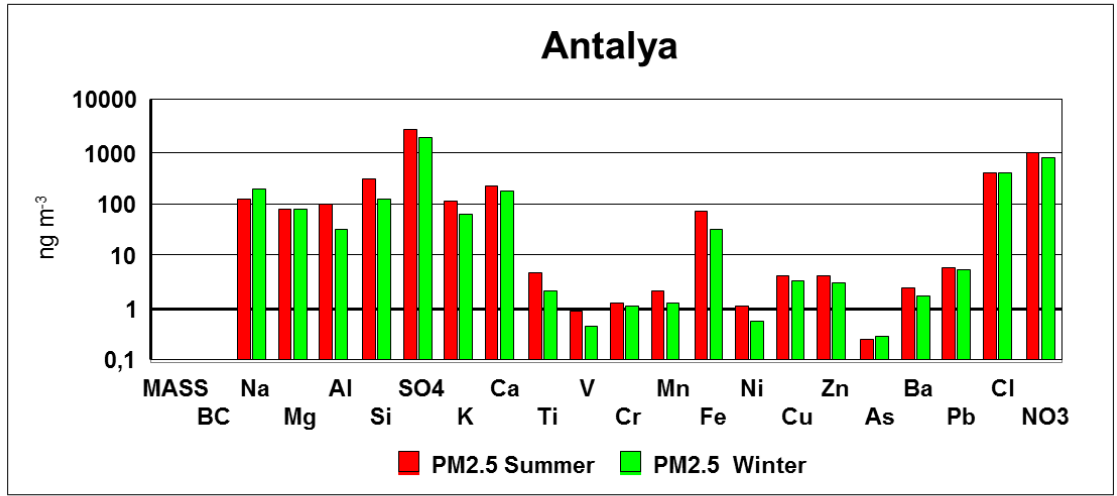
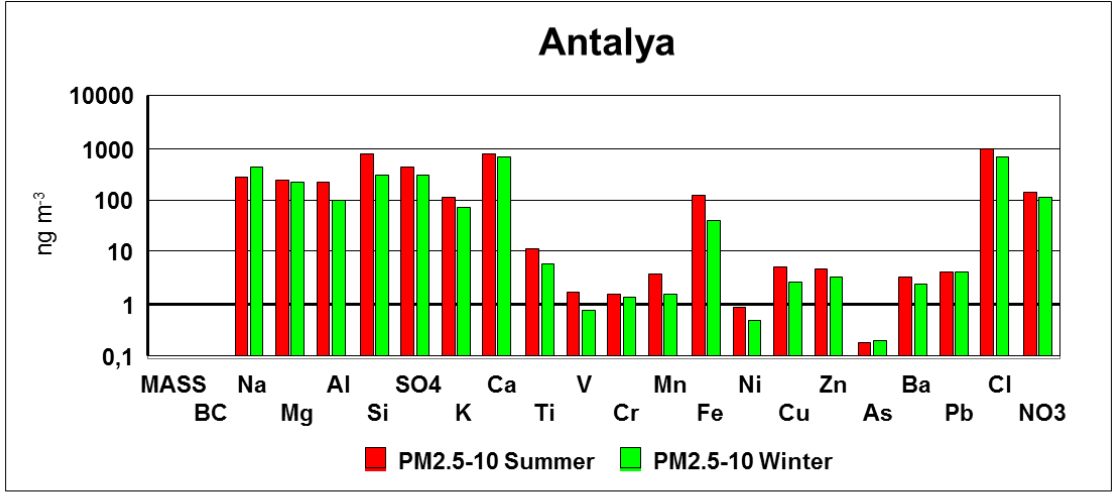
Cr	1,60	1,44	1,30	1,17	10,63	5,19	10,05	4,74	6,1	6,6	4,8	5,4	6,4	5,8	4,8	4,6
Mn	3,73	1,61	2,23	1,26	17,69	13,61	13,24	12,74	15,6	10,5	9,3	7,5	11,1	9,3	9,2	5,9
Fe	126,31	43,56	76,24	32,93	298,3	373,84	277,75	554,43	322	300	324	387	156,6	135,4	138,6	266,5
Ni	0,93	0,52	1,12	0,61	3,96	3,03	3,00	2,68	1,4	2,4	1,9	1,5	1,0	0,5	2,3	1,4
Cu	5,36	2,73	4,23	3,51	4,33	5,98	3,93	6,32	4,3	5,8	3,5	4,0	3,9	2,7	2,2	2,9
Zn	4,85	3,51	4,36	3,17	25,84	16,41	31,56	12,88	18	32	11	17	21,9	20,8	25,1	8,6
As	0,19	0,21	0,25	0,28	0,71	0,57	0,81	0,42	0,19	0,18	0,22	0,25	0,2	0,2	0,2	0,2
Ba	3,39	2,51	2,49	1,69	ERR	3,93	ERR	7,77	5,7	5,7	4,7	4,6	2,7	4,3	2,7	4,6
Pb	4,38	4,53	5,96	5,40	13,74	10,05	14,74	7,04	4,4	4,2	5,2	4,1	3,0	2,1	3,8	2,1
Cl	940,99	3	403,76	5	163,9	99,75	168,26	82,41	101	141	70	44	104,9	24,0	55,4	22,9
NO₃	145,52	7	972,52	9	1262,	671,71	700,34	433,93	105	146	890	662	95,0	67,9	577,0	308,7

Antalya istasyonu için hazırlanan elementlerin mevsimsel medyan değerleri $PM_{2.5-10}$ ve $PM_{2.5}$ fraksiyonları için Şekil 3.2'de gösterilmiştir. Şekilden de görülebileceği gibi, Gerek ince fraksiyonda ve gerekse kaba fraksiyonda elementlerin büyük bir bölümü için yaz konsantrasyonlarının kış konsantrasyonlarından yüksektir. Y skalası logaritmik olduğundan farklar küçük gibi görünse de lineer bir Y skalasında daha büyük farkların olduğu görülebilir. Farkları daha belirgin hale getirebilmek için Elementlerin aylık ortalama medyan değerleri hazırlanmış ve Şekil 3.3'de gösterilmiştir.

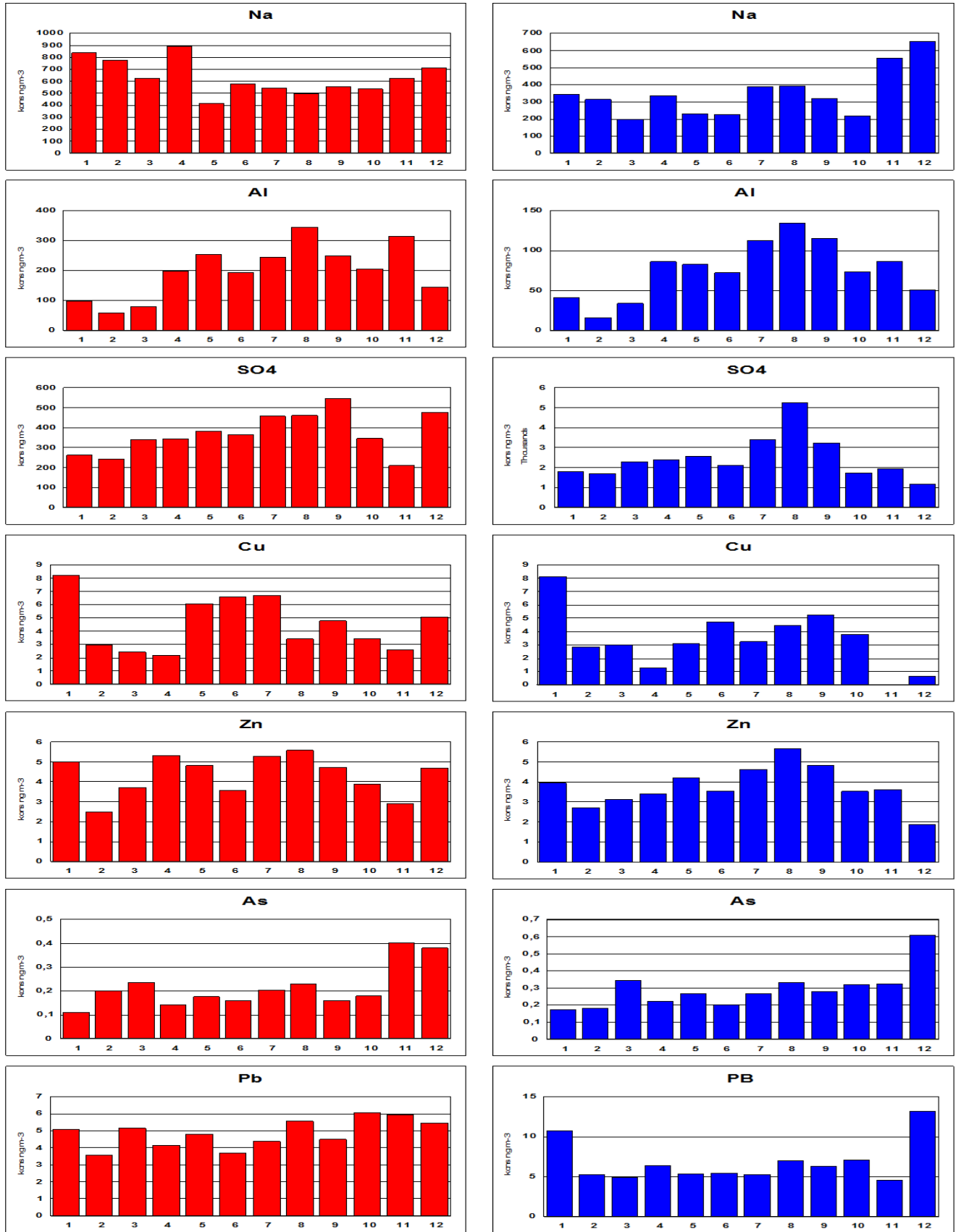
Şekilden de görülebileceği gibi, Na ve As dışında bütün elementlerin yaz ayı konsantrasyonları daha yüksektir. Bu şekiller birkaç noktaya dikkat çekmektedir. Al, SO_4^{2-} , Cu ve Zn için yaz mevsimi konsantrasyonları kış mevsimine nazaran yaklaşık iki kat yüksektir. Pb, Cu gibi bazı elementlerin kış ve yaz mevsimi konsantrasyonları birbirinden çok farklı değildir. Sadece As, Na ve Cl (şekli çok kalabalık yapmamak için buraya dahil edilmemiştir) kış mevsimi konsantrasyonları daha yüksektir. İşin ilginç yanı bu gözlemler 1990'ların başında Akdeniz bölgesinde grubumuz tarafından yapılan çalışmalarda bulunan sonuçlarla bire bir aynıdır (Güllü vd., 1998).

Deniz tuzu elementlerinin konsantrasyonlarının kış mevsiminde yüksek olması bunların oluşum mekanizmalarından kaynaklanmaktadır. Deniz tuzu ve ona bağlı olan ve deniz tuzu kökenli elementler olarak tanımlanan Na, Mg, Cl gibi elementler, deniz yüzeyinde kabarcık patlaması (bubble Bursting) olarak bilinen bir mekanizmayla üretilmektedir. Bu mekanizma rüzgâr hızına bağlıdır. Dolayısı ile rüzgar hızının düşük olduğu yaz mevsiminde deniz tuzu oluşumu az, rüzgarın hızlı ve sık estiği kış mevsimindeyse deniz tuzu oluşumu fazla olmaktadır. Deniz tuzu kökenli elementler de buna paralel bir döngü izlemektedir.

Şekillerden de görülebileceği gibi toprak kökenli Al, Si, Fe gibi elementlerin yaz mevsimi konsantrasyonları kışa nazaran 2 – 2.5 kat yüksektir. Bu da toprak parçacıklarının oluşumundaki mevsimsel değişimleri işaret etmektedir. Atmosferdeki toprak parçacıkları, yerdeki tozun rüzgar etkisiyle havalanmasıyla oluşmaktadır. Kışın yer yüzeyi sürekli olarak çamur ve bazı yerlerde (Kırlareli, Torul gibi) buz ve/veya karla kaplı olduğundan rüzgar fazla olsa da parçacık üretimi çok zor olmakta ve bu nedenle kış mevsiminde litofilik elementlerin konsantrasyonları düşük olmaktadır. Yaz mevsiminde ise rüzgar kışa nazaran daha yavaş olsa da, yer yüzeyi kuru olduğundan paracık üretimi nispeten kolaydır. Bu oluşum mekanizmalarının sonucu torak kökenli elementlerin yaz mevsimi konsantrasyonları yüksek kış mevsimi konsantrasyonları düşük olmaktadır. Toprak kökenli elementlerde yaz – kış farkı farklı yerlerde farklı olmakla birlikte, Akdeniz bölgesinde bu oranın 2 – 2.5 gibi olduğu söylenebilir.



Şekil 3.2 Antalya aerosol örneklerinde ölçülen element konsantrasyonlarının yaz-kış değişimi



Şekil 3.3 Antalya istasyonunda aerosollerde ölçülen bazı elementlerin konsantrasyonlarının mevsimsel değişimi

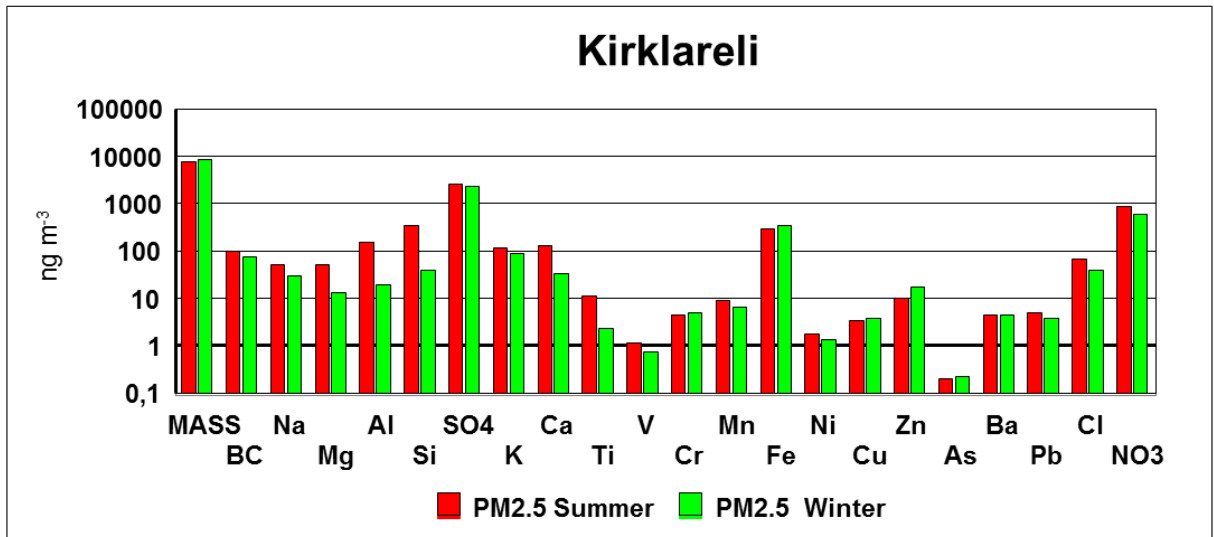
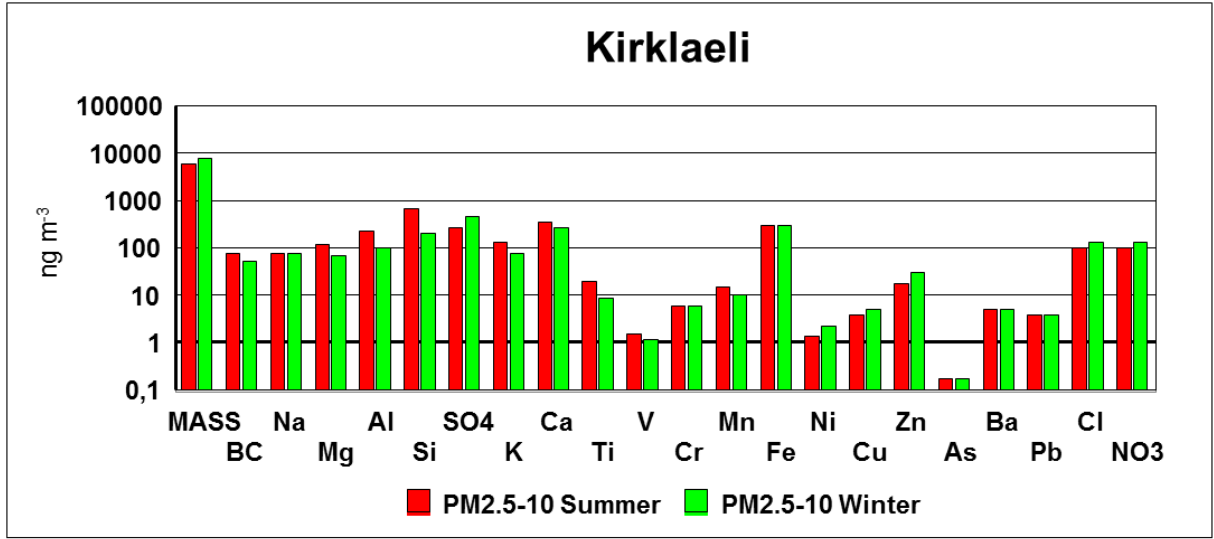
Şekilden de görülebileceği gibi antropojenik kökenli elementler farklı mevsimsel değişimler göstermektedir. Antropojenik kökenli elementler istasyonlara uzun mesafeli taşınım ile ulaşmaktadır. Bunların yerel kaynakları mevcut değildir. Dolayısı ile bu elementlerin yaz mevsimi konsantrasyonlarının yüksek olması yazın taşınımın daha etkin olmasından kaynaklanmaktadır. Kış mevsiminde antropojenik parçacıklar hava kütleleri tarafından taşınırken pek çok yağış olayına maruz kalmakta ve etkin bir şekilde yıkanmaktadır. Bu nedenle de kış konsantrasyonları düşük olmaktadır. Yazın ise yağış daha az bir olasılık olduğundan, antropojenik elementlerin yaz mevsimi konsantrasyonları yüksektir. Bu sadece Antalya istasyonu için değil bütün örnekleme noktaları için geçerli bir mekanizmadır. Toprak kökenli elementler ile karşılaştırıldığında antropojenik elementlerin gösterdiği yaz kış farklılığı daha azdır. Bir çok durumda da yaz ve kış mevsimi konsantrasyonları birbirine yakın olmaktadır. Bu mekanizmanın etkileri Cu, Zn ve Pb konsantrasyonlarının aylık medyan değerlerinde görülebilir.

SO₄²⁻ iyonunun diğer antropojenik elementlere nazaran daha belirgin bir mevsimsel farklılık göstermesinin nedeni SO₂'nin SO₄²⁻'a oksitlenmesini en azından bir bölümünün fotokimyasal bir mekanizmayla olması ve bu mekanizmanın yaz aylarında artan güneş akışı ile hızlanmasıdır.

As, sadece Antalya istasyonunda değil, birçok yerde beklenen tersi bir mevsimsel değişim göstermektedir. Bunun nedeni çok iyi bilinmemektedir. Ancak antropojenik kökenli bir elementin kış mevsimi konsantrasyonunun yüksek olması ancak yerel kaynaklarının olması ve bu nedenle, diğer antropojenik elementlerin aksine, kış mevsiminde de etkin bir yıkanmaya maruz kalmadan taşınabilmeleridir.

Elementlerin Kırklareli istasyonundaki yaz kış medyan değerleri Şekil 3.4'de aynı istasyondaki aylık medyan değerleri ise Şekil 3.5'de gösterilmiştir. Şekillerden de görülebileceği gibi elementlerin Kırklareli istasyonunda gösterdiği mevsimsel değişimler Antalya'dakinden bazı farklılıklar içermektedir. Toprak kökenli elementlerin Kırklareli istasyonunda ölçülen konsantrasyonları (bu şekilde Al toprak kökenli elementlerin indikatörü olarak gösterilmiştir), Antalya istasyonunda olduğu gibi, yaz aylarında yüksektir. Kırklareli ile Antalya arasındaki bariz bir fark, Kırklareli istasyonunda ölçülen deniz tuzu kökenli elementlerin indikatörü olan Na konsantrasyonlarının Antalya'nın aksine yaz mevsiminde yüksek olmasıdır. Bunun nedeni Kırklareli istasyonunun denizden daha uzak olmasıdır. Denizden uzak mesafelerde ölçülen Na konsantrasyonunun deniz tuzundan değil topraktan geldiği literatürde gösterilmiştir.

İki istasyon arasında diğerk bir fark Kırklareli'nde ölçülen antropojenik element konsantrasyonlarında gözlenen yaz-kış farkının Antalya istasyonunda ölçülen yaz-kış farkından daha olmasıdır.

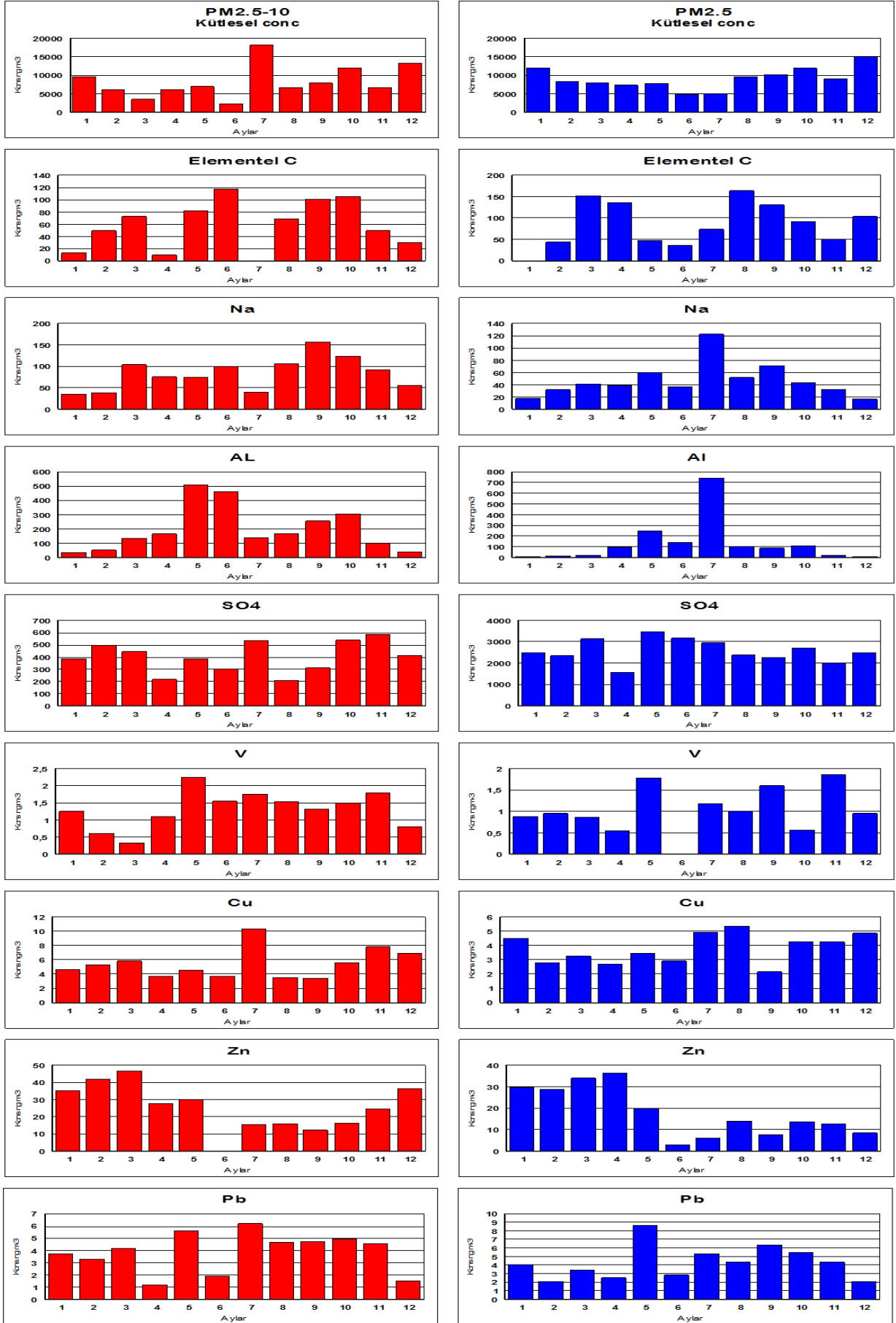


Şekil 3.4 Kırklareli aerosol örneklerinde ölçülen element konsantrasyonlarının yaz-kış değişimi

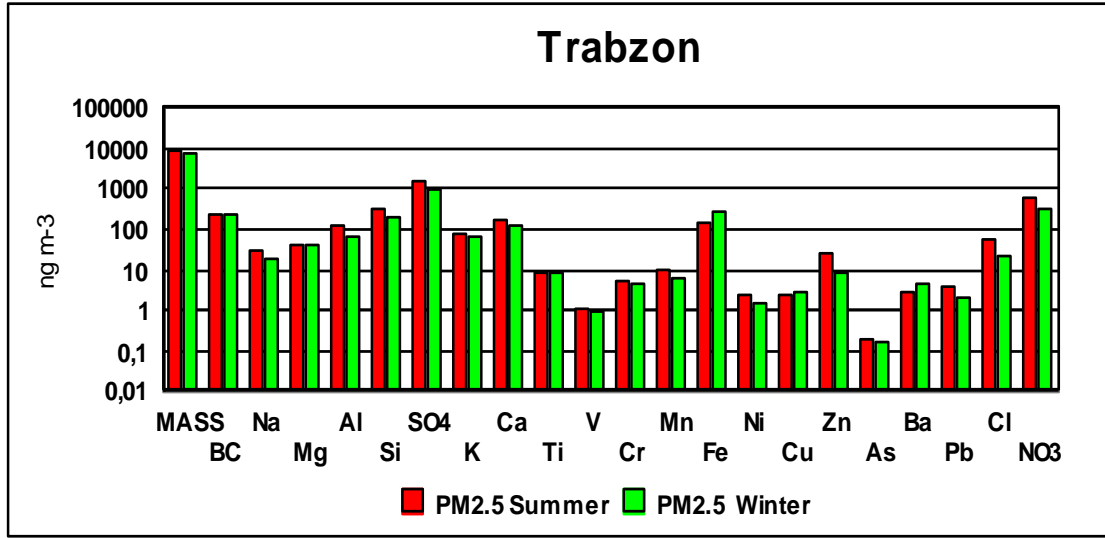
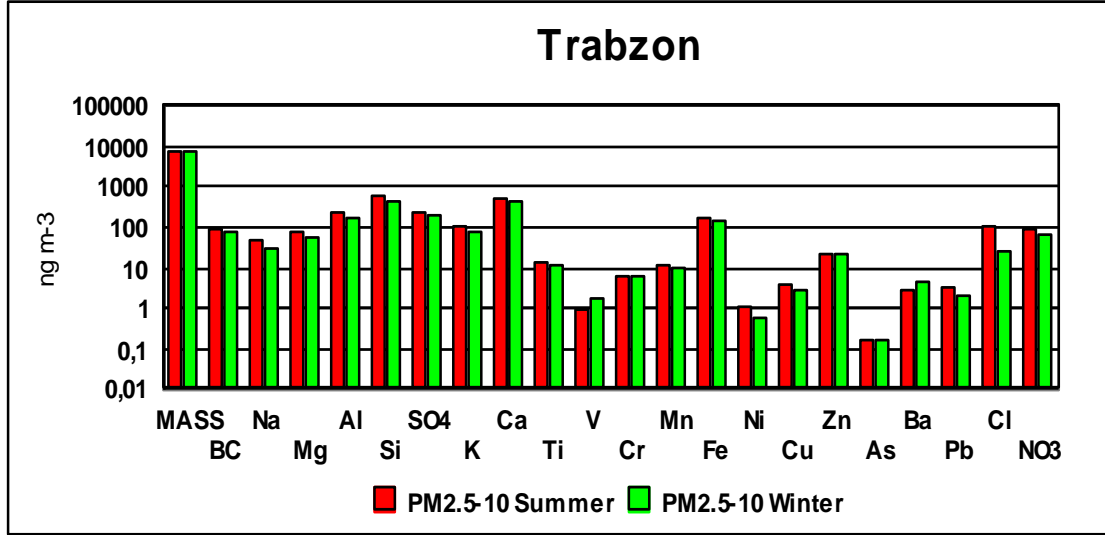
Daha önce de ifade edildiği gibi, kış mevsimi konsantrasyonlarının yüksek olması istasyona yakın kaynakların bir göstergesidir. Kırklareli istasyonunda ölçülen antropojenik kökenli elementlerin konsantrasyonlarında yaz – kış farkının diğerk istasyonlara nazaran az olması da Bulgaristan'da istasyona yakın kaynakların olduğunu göstermektedir.

Elementlerin Trabzon istasyonundaki yaz ve kış medyan değerleri Şekil 3.6'da aylık medyan değerleri de Şekil 3.7'de gösterilmiştir. Elementlerin Trabzon istasyonundaki mevsimsel değişimleri Diğerk istasyonlarda mevsimsel paternlere

benzemektedir. Tek önemli fark Cu ın konsantrasyonlarının As de olduđu gibi kış mevsiminde yüksek olmasıdır. Bu da, daha önceki bölümde tartışıldığı gibi, lokal bir Cu kaynağının olabileceğini göstermektedir. Sodyum konsantrasyonu Kırklareli istasyonunda olduđu gibi yaz aylarında yüksektir. Torul'daki istasyonun kıyıda 70 km içerde olması ve kıyı ile arasında yüksek dağların bulunması sodyumun bu istasyonda tipik bir toprak elementi gibi davranmasını açıklamaktadır.



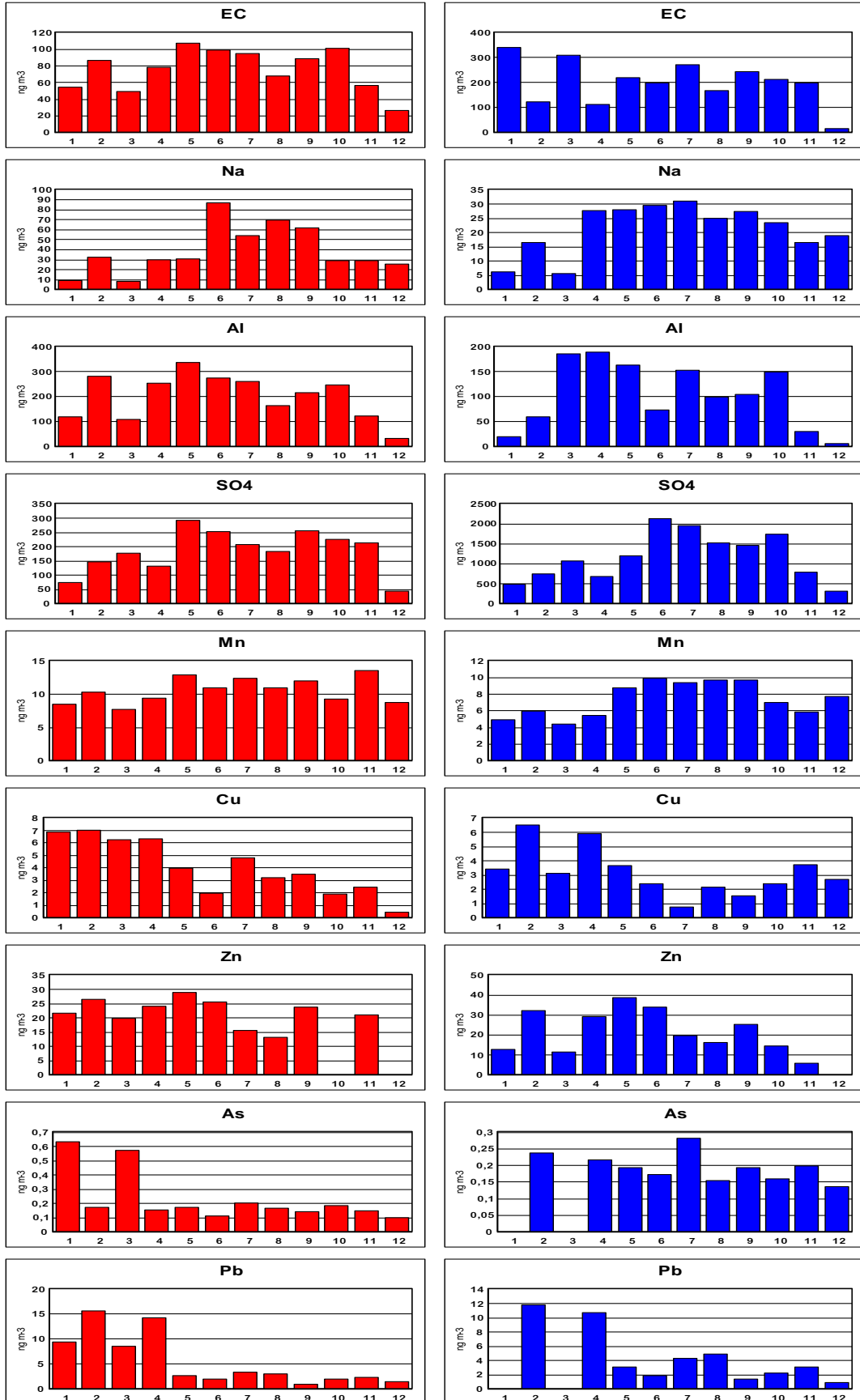
Şekil 3.5. Kırklareli istasyonunda aerosollerde ölçülen bazı elementlerin konsantrasyonlarının mevsimsel değişimi



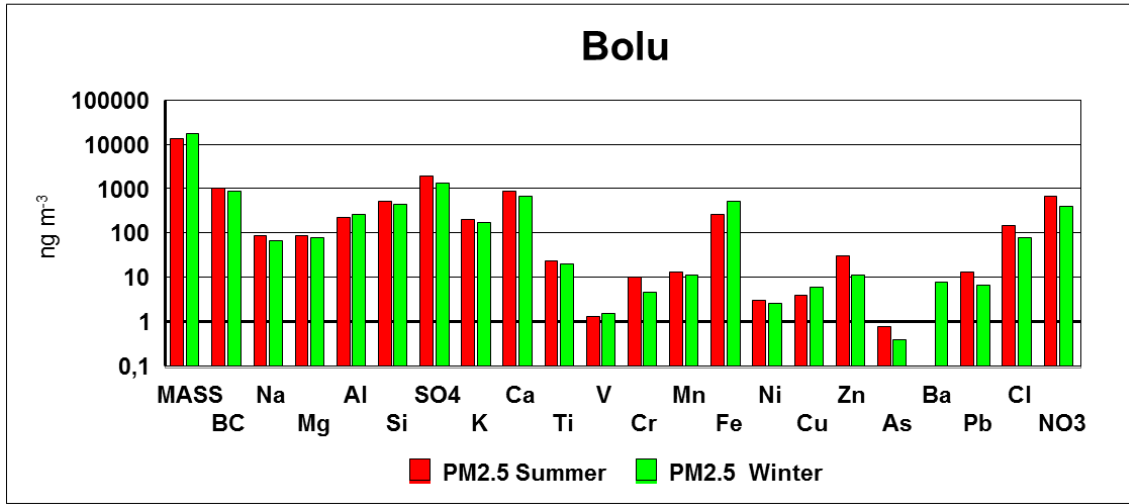
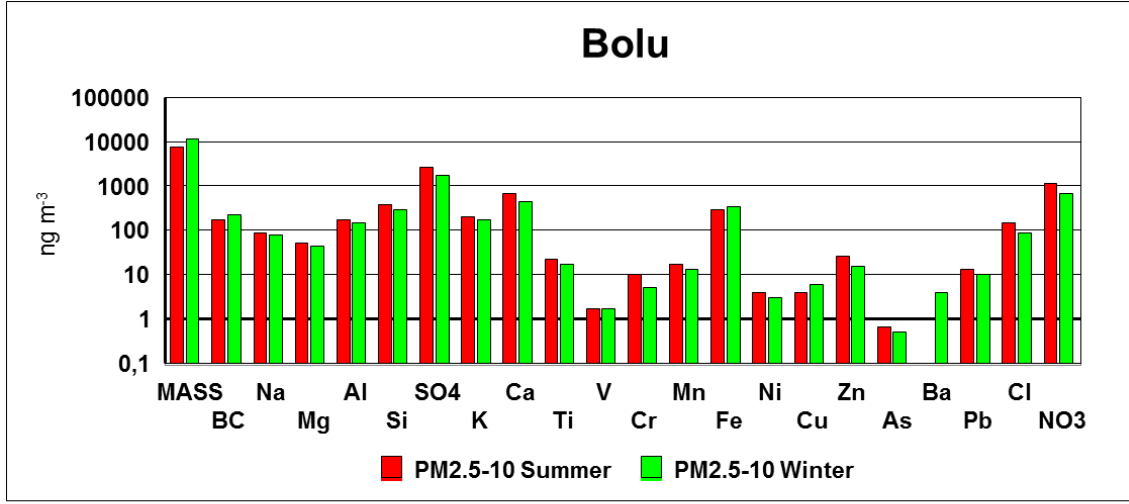
Şekil 3.6 Trabzon aerosol örneklerinde ölçülen element konsantrasyonlarının yaz-kış değişimi

Elementlerin Bolu istasyonundaki yaz ve kış medyan değerleri Şekil 3.8'de aylık ortalama medyan değerleri ise Şekil 3.9'da verilmiştir. Diğer istasyonlarda olduğu gibi elementlerin büyük bir çoğunluğunun yaz mevsiminde ölçülen konsantrasyonları kış mevsiminde ölçülen konsantrasyonlarından fazladır. Aylık ortalama medyan değerlerine bakıldığında ise Bolu istasyonunda ölçülen antropojenik kökenli elementlerdeki mevsimsel değişimin diğer istasyonlarda görülenlerden daha az olduğu dikkat çekmektedir. V, Cu, As kış konsantrasyonları yazdan yüksektir. Pb da ise yaz konsantrasyonunun yüksek olduğu görülmektedir. Bu davranışın önemli bir nedeni Bolu'ya oldukça yakında İstanbul gibi devasa bir kaynağın olmasıdır. Daha önce de ifade edildiği gibi kışın yüksek konsantrasyon değerleri lokal kaynakları işaret etmektedir. Dolayısı ile Bolu'da da antropojenik elementlerin yaz-kış konsantrasyonlarının birbirine yakın olması, hatta bazıları için kış

konsantrasyonlarının yüksek olması, İstanbul'un Bolu'daki istasyon için önemli bir kaynak olmasındandır.



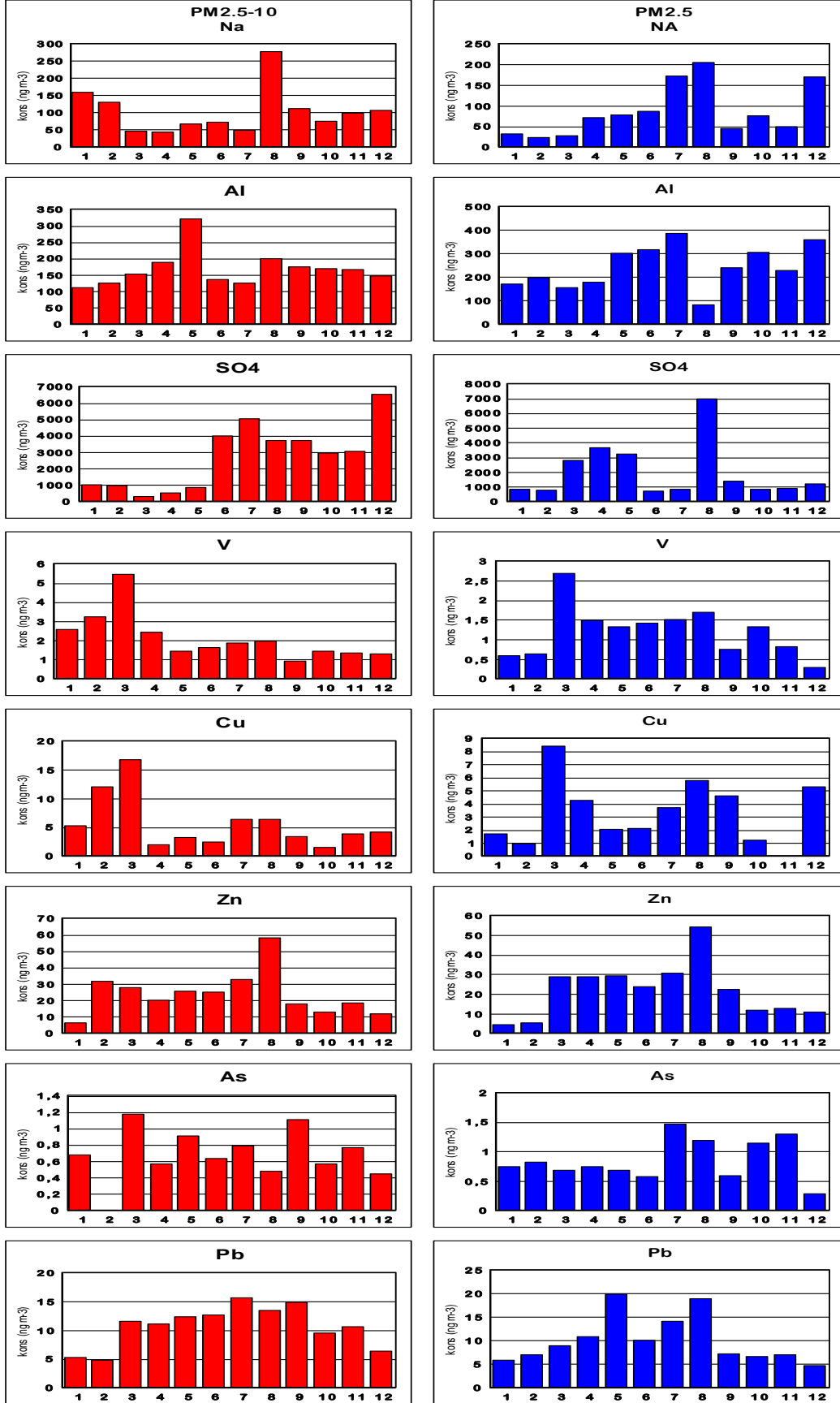
Şekil 3.7 Trabzon istasyonunda aerosollerde ölçülen bazı elementlerin konsantrasyonlarının mevsimsel değişimi



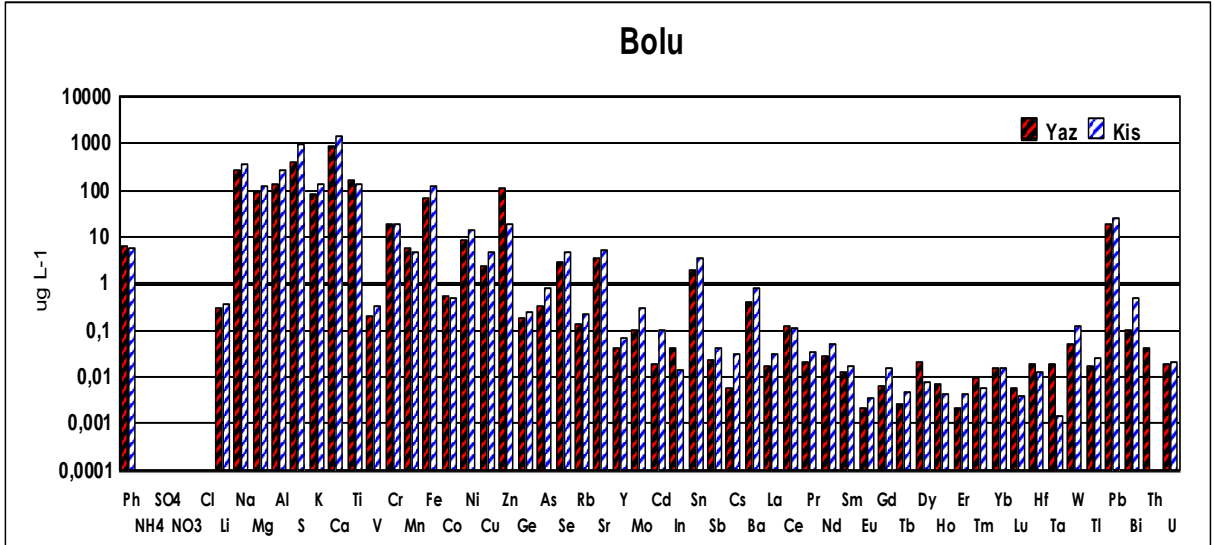
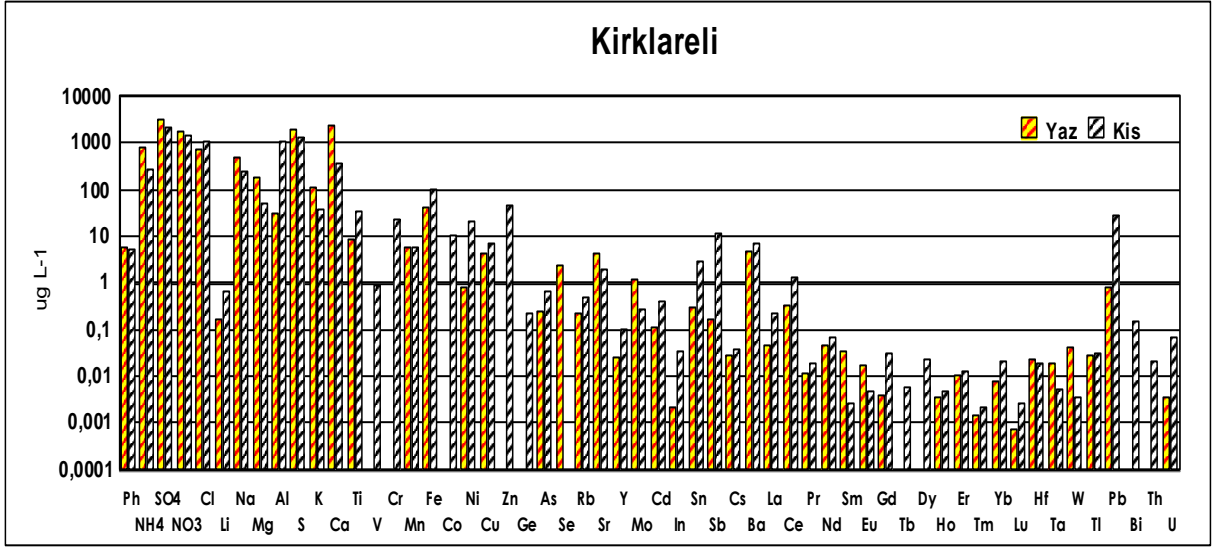
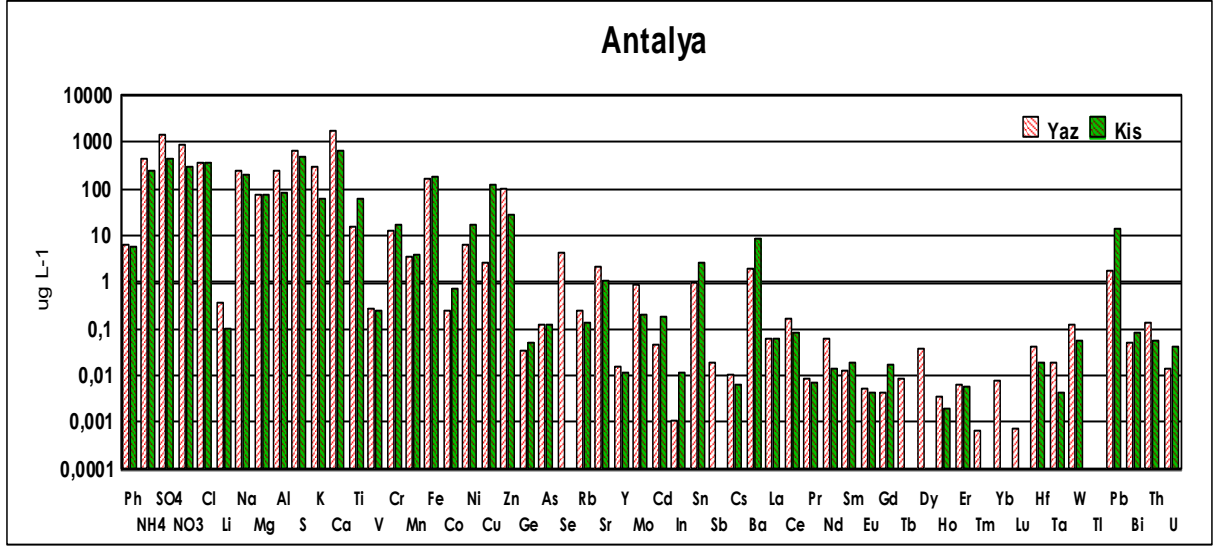
Şekil 3.8 Bolu aerosol örneklerinde ölçülen element konsantrasyonlarının yaz-kış değişimi

Yağmur suyu veri setlerinde güvenilir bir mevsimsel değerlendirme yapmak, veri sayısının az olması nedeniyle, mümkün olmamıştır. Aerosol veri setlerinde her istasyonda 400 – 500 dolayında örnekle çalışırken bu sayı yağış örneklerinde 100 ve altında olmaktadır. Dolayısı ile bu kadar az sayıda verinin aylara bölünmesi anlamsız olduğu gibi yaz kış medyan değerlerindeki belirsizlik bile yüksektir. Yine de bir fikir edinmek için her istasyonda toplanan yağmur örnekleri kullanılarak yaz ve kış medyan değerleri hesaplanmış ve Şekil 3.10'da gösterilmiştir.

Yağmur suyunda hem ölçülen elementler farklı hem de yaz ve kış farkını oluşturan prosesler daha karmaşıktır. Şekillerde de görüldüğü gibi aerosollerde tartışılan basit düzen yağmurda mevcut değildir.



Şekil 3.9 Bolu istasyonunda aerosollerde ölçülen bazı elementlerin konsantrasyonlarının mevsimsel değişimi



Şekil 3.10 İstasyonlarda toplanan yağmur sularında ölçülen elementlerin yaz ve kış mevsimi medyan değerleri

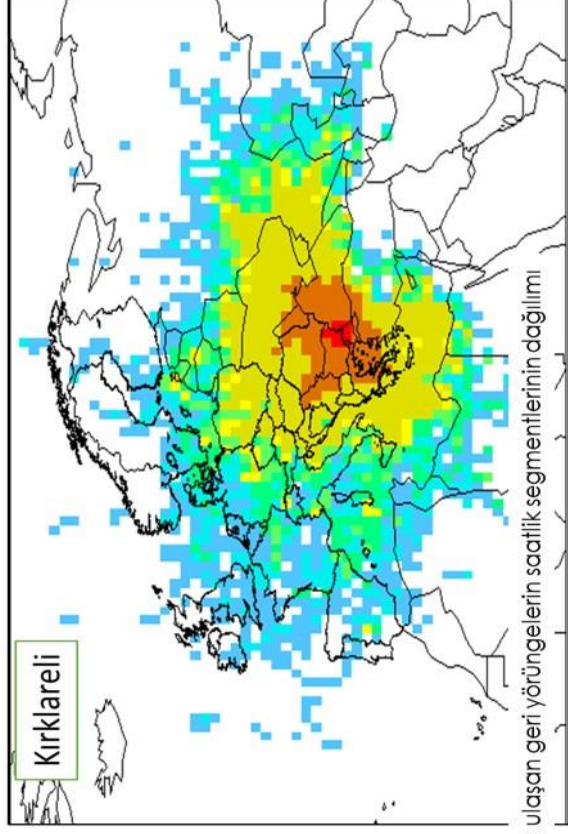
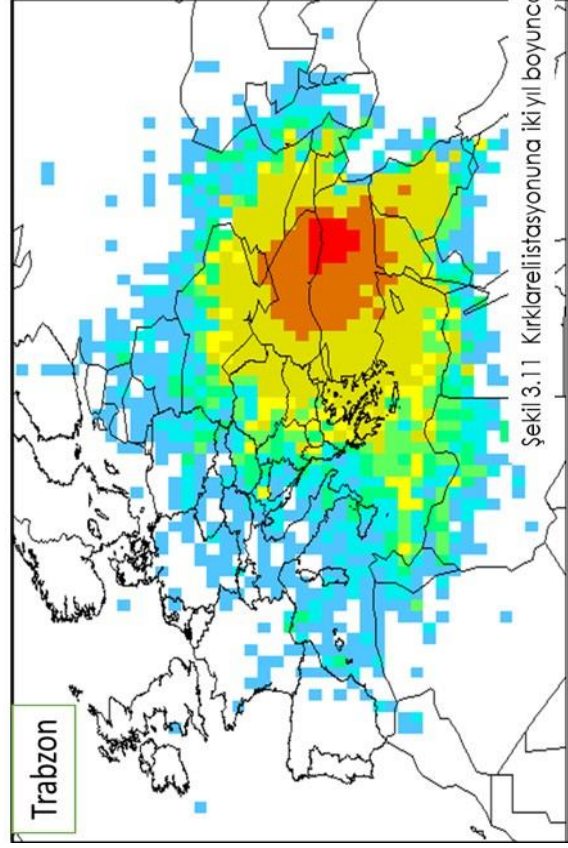
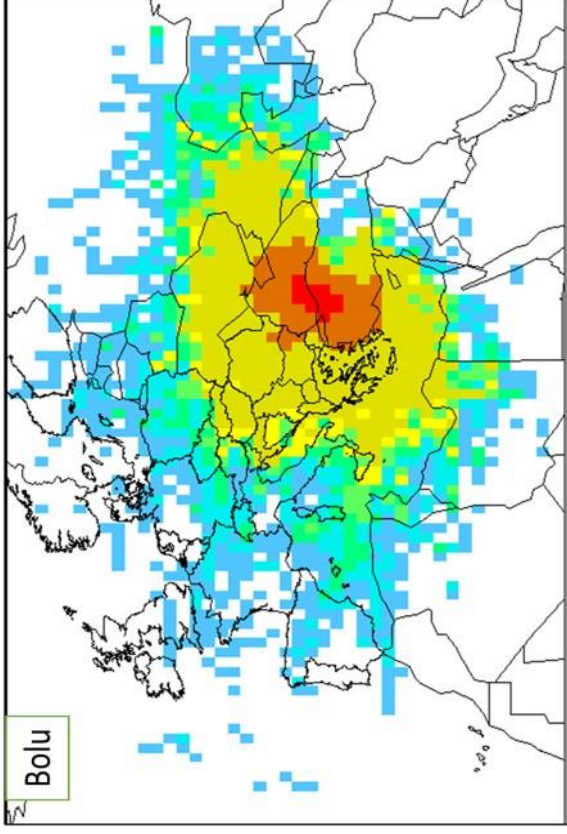
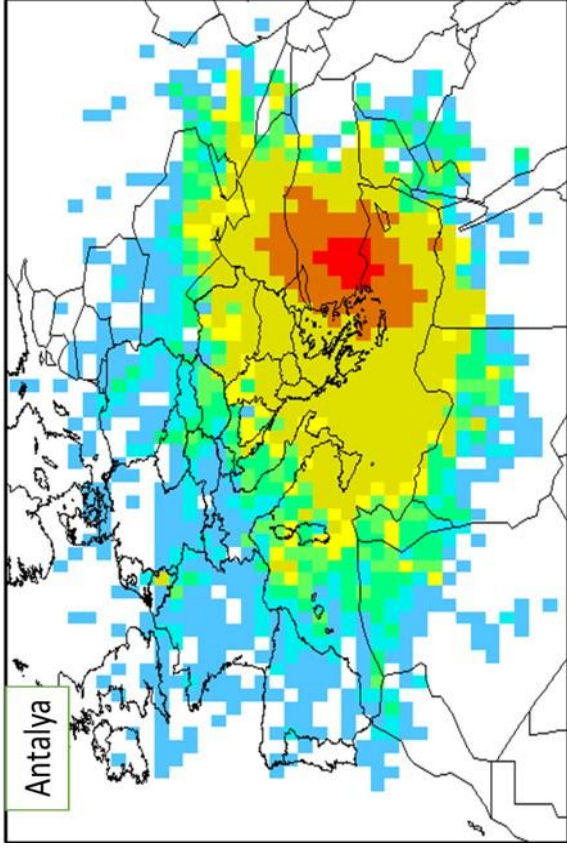
Pek çok antropojenik elementin kış mevsimi konsantrasyonları yaz mevsiminden fazladır. Bunun nedeni kışın özellikle kent atmosferlerinde yağışa karışabilecek antropojenik element düzeylerinin yüksek olması olabilir. Yine de özellikle kış ayındaki yağış örneği sayısının azlığı istatistik olarak anlamlı bir değerlendirme yapmayı imkansız kılmaktadır.

3.4. İstasyon noktalarında üst atmosfer klimatolojisi

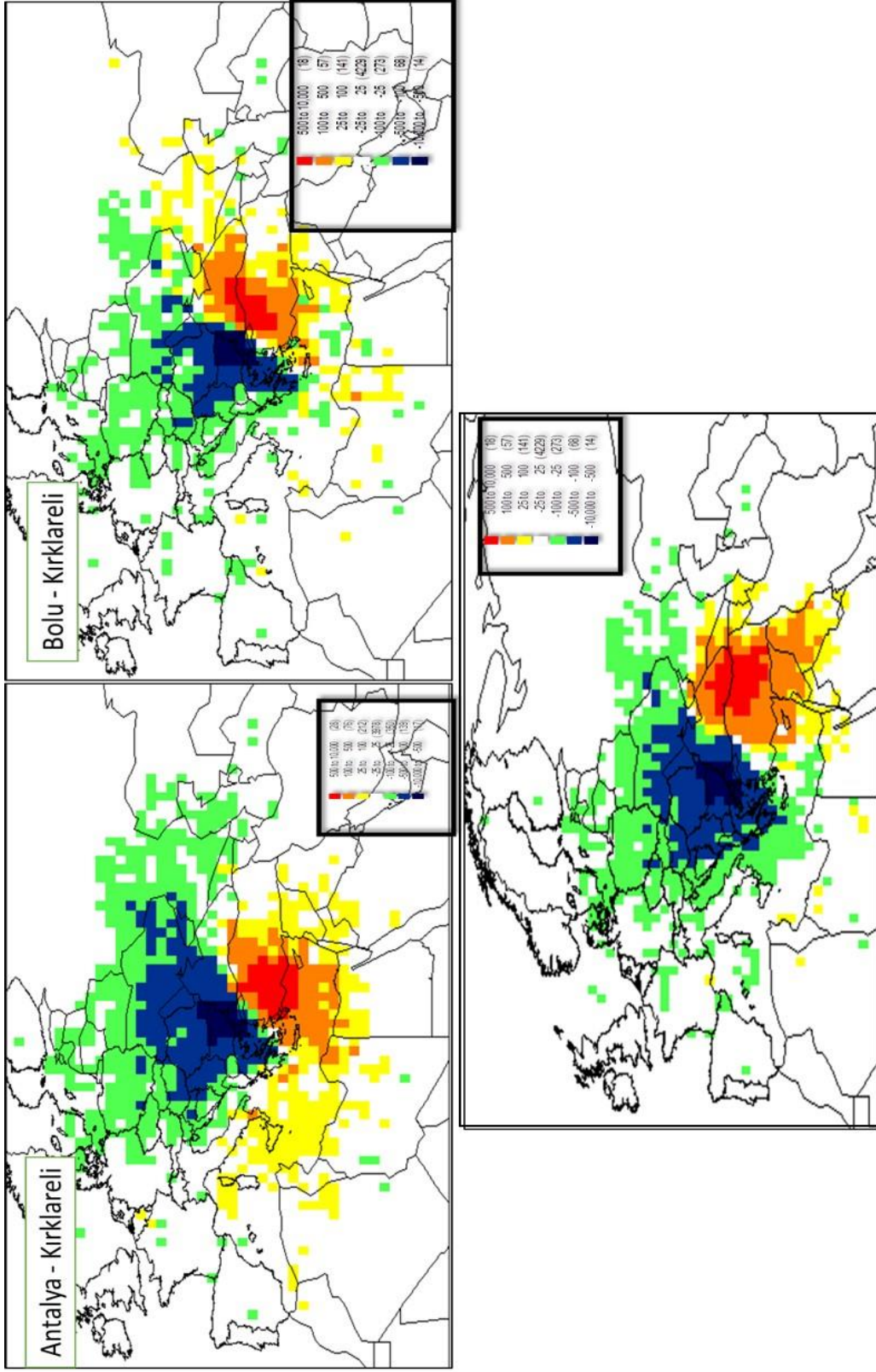
Akış klimatolojisi (flow climatology) bir bölgeye kirleticilerin nerelerden geldiği konusunda bir ön bilgi verdiği için her çalışmada yer alan bir bölümdür. Bu çalışmada da çalışmanın yürütüldüğü dört istasyona hava kütlelerinin nerelerden geldiği irdelenmiştir. Dört istasyona ulaşan geri yörünge segmentlerinin dağılımı Şekil 3.1'de gösterilmiştir.

Bu çalışmada örneklerin toplandığı her gün için her istasyonda değişik seviyelerde 3 geri yörünge hesabı yapılmıştır. Geri yörüngelerin ne şekilde hesaplandığı önceki bölümlerde tartışıldığından burada tekrar tartışılmayacaktır. Her geri yörünge 120 saat geriye doğru hesaplanmış saatlik segmentlerden oluşmaktadır. Her segmentin yüksekliği ve koordinatları bellidir. Bu bölümde kalış süreleri hesaplanırken segmentler hazırladığımız bir grid sisteminde dağıtılmış ve her girdede kaç segment olduğu sayılarak gridler buna göre renklendirilmiştir. Doğal olarak hava kütlelerinin kalış süreleri (residence time) istasyonların yakınılarında daha fazladır. Burada önemli olan oluşan paternin ağırlığının ne yönlere doğru olduğudur çünkü bu dağılım nerelerdeki kirletici kaynaklarının önemli olacağı konusunda bir fikir vermektedir. Bir kirletici kaynağının etkisi değerlendirilirken sadece emisyonları düşünmek doğru değildir, o kaynaktan reseptör noktasına olan hava hareketlerinin sıklığı da en az emisyonlar kadar önemlidir. Bir kaynak çok büyük miktarlarda emisyon yapabilir ancak eğer emisyonun yapıldığı noktadan reseptör bölgesine (bu durumda bizim istasyonlarımıza) hiç taşınım yoksa o emisyonların bir kirlilik potansiyeli de olmaz. Şekildeki dağılımlar istasyonlara, hangi yönlerden hangi sıklıkla taşınım olduğunu gösterdiğinden önemlidir.

Şekillerde istasyonları etkileyen kaynak bölgeleri arasında bazı farklılıkların olduğu kalitatif olarak görülebilmektedir. Ancak bu farkları ha iyi görebilmek için gird sistemini oluşturan gridlerin her birisinde iki istasyonu ait geri yörünge segmentleri birbirinden çıkartılarak haritalar tekrar çizilmiştir. Bu şekilde oluşan fark haritaları Şekil 3.2'de gösterilmiştir.



Şekil 3.11 Kırklareli istasyonuna iki yıl boyunca ulaşan geri yürümlerin saatlik segmentlerinin dağılımı



Şekil 3.12. Farklı istasyonlar için gridlerdeki segment sayısı farklarının grid sistemindeki dağılımı

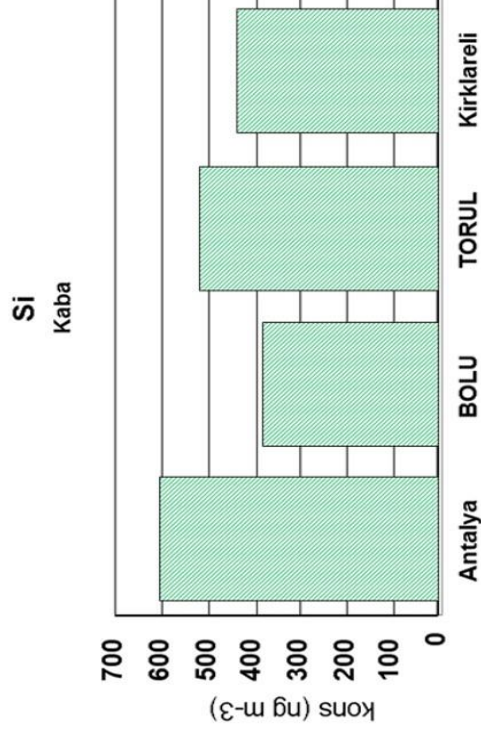
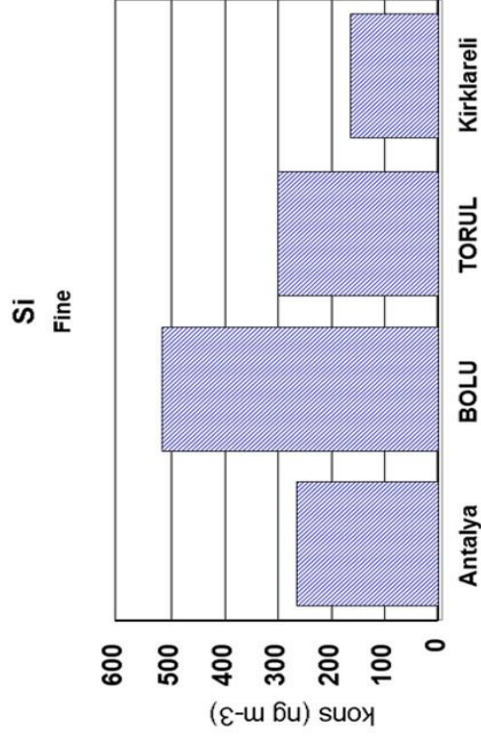
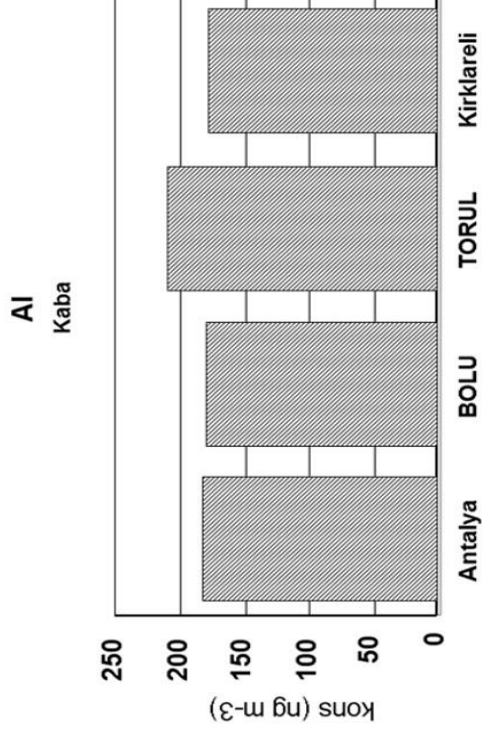
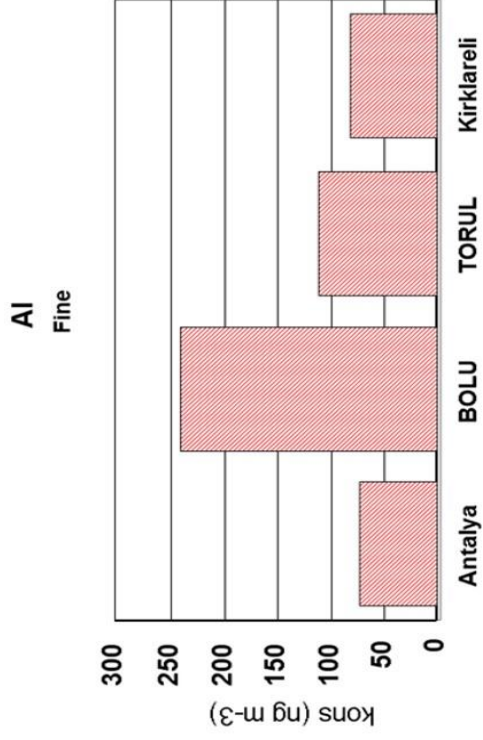
Şekilden de görüldüğü gibi Kırklareli istasyonu Avrupa'daki kirletici kaynaklarından diğer istasyonlardan daha fazla etkilenirken, Trabzon istasyonu Türkiye'nin Dođusu, Kafkaslar ve Ortadođu bölgelerinden daha fazla etkilenmektedir. Antalya istasyonu ise Türkiye'nin güneydođusu ile Orta Dođu bölgelerindeki kaynaklardan diğer iki istasyona göre daha fazla etkilenmektedir. Sekil, ayrıca, Bolu istasyonu için İstanbul'un çok önemli bir kaynak olduğunu da göstermektedir. Bu tartışmada dikkat edilmesi gereken nokta, istasyonlardan birisinin bir bölgeden, diğer istasyonlara nazaran daha çok etkilenmesi, diğer istasyonların o coğrafik bölgedeki kaynaklardan etkilenmiyor anlamına gelmemektedir. Örneğin, yukardaki tartışmada, Kırklareli istasyonunun Avrupa'daki kaynaklardan diğer bölgelere nazaran daha çok etkilendiđi belirtilmiştir. Varılan bu sonuç, Antalya istasyonunun Avrupadaki kaynaklardan etkilenmemesi anlamına gelmemektedir. Sadece Avrupa'daki kaynaklar Antalya'da ölçülen element konsantrasyonlarını Kırklareli'nde olduğu kadar fazla etkilemektedir.

3.5. Aerosol verilerinin kullanılarak, element ve iyonların istasyonlarda ölçülen miktarlarına yurt içindeki ve yurt dışındaki katkılarının bulunması

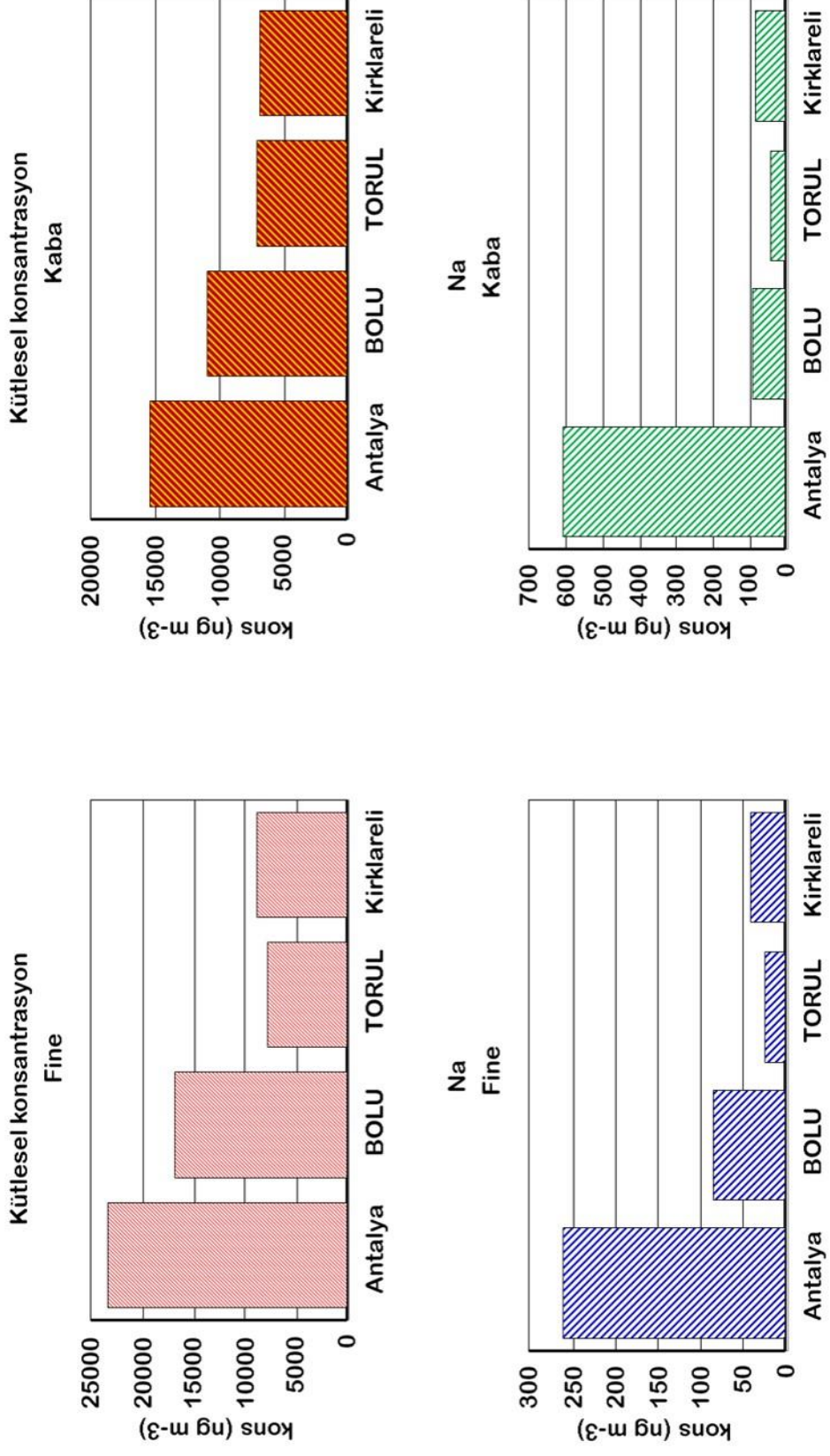
Bu çalışmanın yapılmasının temel nedenlerinden birisi Türkiye'nin deđişik bölgelerinde ölçülen kirletici düzeylerinin ne kadarından ülkemizdeki kaynakların ne kadarından da yurt dışındaki kaynakların sorumlu olduğunu ortaya çıkarmaktır. Üretilen aerosol verileri bu konuda en azından kalitatif bir fikir vermek açısından çok yararlı olmuştur. Yağmur suyu verileri her istasyondaki örnek sayısının sınırlı olması nedeniyle, bu soruyu yanıtlamakta, aerosoller kadar etkili olmamıştır.

İstasyonlarda ölçülen element konsantrasyonlarına yurt içi ve yurt dışı katkıların boyutları hakkında bir fikir sahibi olabilmek için iki farklı yaklaşım uygulanmıştır. Birincisi seküler bir yaklaşımdır. Burada basit olarak element gruplarının Trabzon, Bolu ve Antalya istasyonlarındaki ölçülen konsantrasyonları Kırklareli istasyonunda ölçülen konsantrasyonlar ile karşılaştırılmıştır. Kırklareli istasyonu Bulgar sınırına 4 km mesafede olduğundan ve Türkiye'ye hava kütleleri zamanın %70 kadarında kuzey batı sektöründen geldiğinden, Kırklareli istasyonunda ölçülen konsantrasyonlar, hava kütlelerinin Türkiye'ye girdiklerinde sahip oldukları kirletici yükleri olarak kabul edilmiş ve bu mantıkla diğer istasyonlarda ölçülen elementlerin medyan konsantrasyonları Dereköy istasyonu ile karşılaştırılmıştır. Bu tartışmada, "eđer, hava kütleleri kirleticileri Türkiye üzerinde alıyorsa diğer istasyonlarda ölçülen kirletici konsantrasyonlarının Kırklareli'nde ölçülen konsantrasyonlardan daha yüksek olması gerekir" şeklinde bir mantık yürütülmüştür.

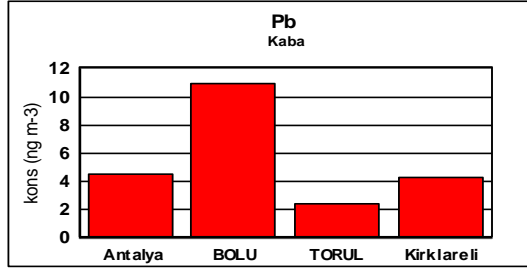
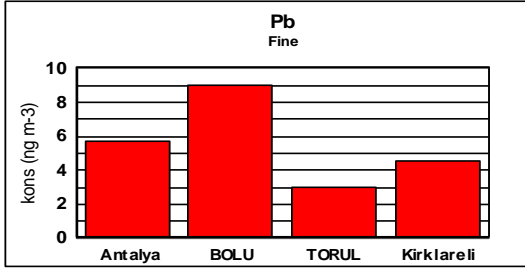
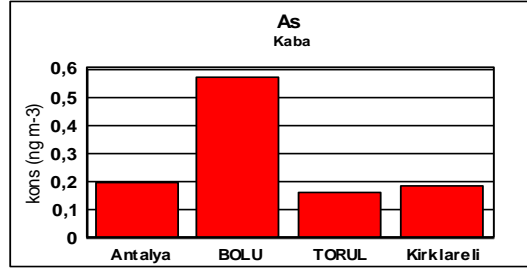
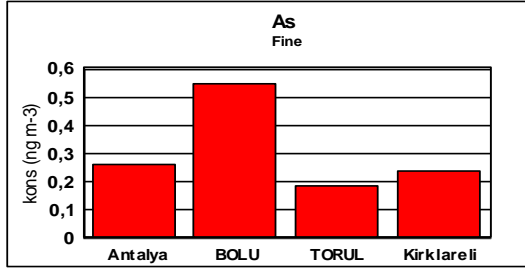
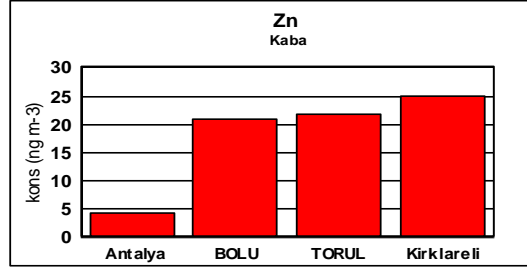
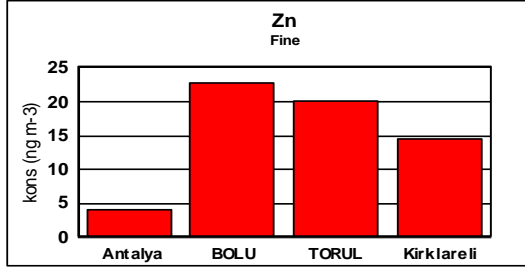
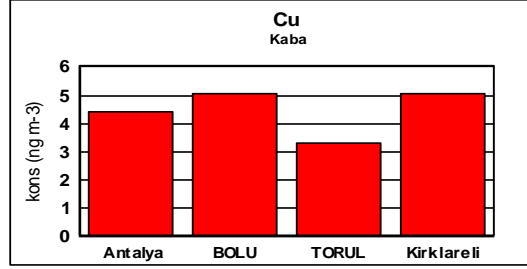
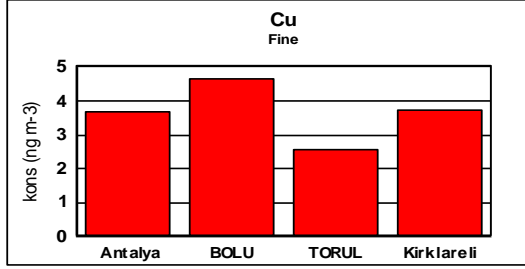
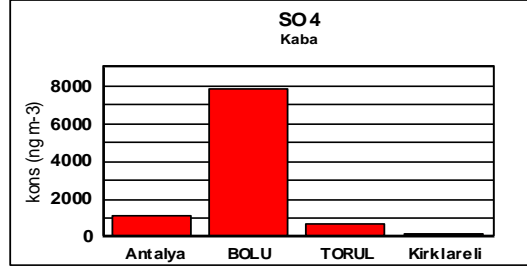
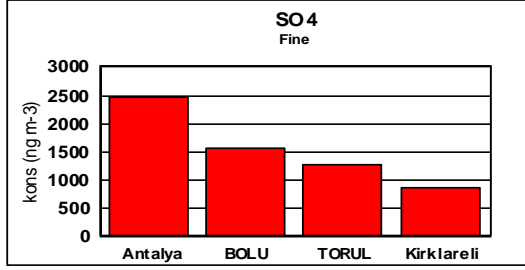
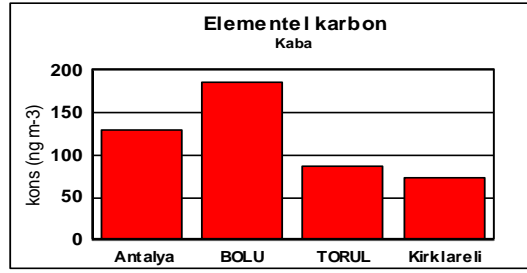
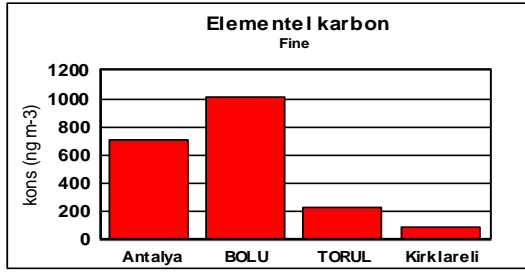
İstasyonlarda ölçülmüş toprak kökenli, deniz tuzu kökenli, antropojenik kökenli elementlerle, hem toprak hem de antropojenik kaynakları olan elementler sırasıyla Şekil 3.3, 3.4, 3.5 ve 3.6'da gösterilmiştir. Toprak kökenli elementlere bakıldığında istasyonlar arasında önemli farklar görünmemektedir. Çalışmanın başında Sahra tozuna daha çok maruz kalan Antalya istasyonunda toprak kökenli elementlerin konsantrasyonlarının daha yüksek olması beklenmiştir. Ancak sonuçlarda beklendiği şekilde bir farklılık gözlenmemiştir. Bunun nedeni istasyonlarda ölçülen litofilik element konsantrasyonlarının Sahra tozu tarafından değil, lokal olarak havalanan toprak parçacıkları tarafından belirlenmesidir. Sahra tozu Antalya istasyonunu yılda yaklaşık olarak 20 kere etkilemektedir. Bu günlerde toprak kökenli elementlerin konsantrasyonları çok yükselmektedir. Ancak, geri kalan 340 günde istasyon noktasındaki litofilik element konsantrasyonları lokal toprak parçacıkları tarafından belirlenmektedir. Yıllık ortama element konsantrasyonlarında, ne kadar yüksek olursa olsun, 20 Sahra episoduna değil geri kalan 340 gün ölçülen lokal toprak emisyonları belirleyici olmaktadır. Sahra tozu Akdeniz bölgesinde yapılan çalışmalarda çok tartışılan bir konudur. Ancak, şekilden de görüldüğü gibi istasyonlardaki yıllık ortalama toz konsantrasyonlarında belirleyici değildir. Ancak bu ifadede Sahra tozunun önemsiz bir olay olduğu gibi bir sonuç çıkarmak doğru değildir. Yirmi gün de olsa, Sahra tozunun neden olduğu çok yüksek toz konsantrasyonları bölgedeki bütün biyojeokimyasal döngüleri alt üst etmektedir. Ayrıca Sahra tozu taşınımının görüntü bozunması, besin elementlerinin şok yüklemesi gibi ekosistemi değişik şekillerde etkileyecek sonuçları da pek çok çalışmada gösterilmiştir. Gözardı edilmemesi gereken bir diğer nokta da lokal tozun ancak karalarda ve kıyı çizgisi yakınlarında etkin olduğudur. Toz parçacıkları kaba parçacık sınıfında olduğundan, hızla çökelmekte ve bunun sonucu olarak da atmosferdeki konsantrasyonları karadan uzaklaştıkça hızla azalmaktadır. Bu nedenle, Akdeniz'in kıyılardan uzak bölgelerinde Sahra tozu sedimantasyonunun en önemli kaynağıdır. Bütün bu nedenlerle Sahra tozu içerisinde bulunduğumuz bölgenin çok önemli bir olayıdır. İstasyonlarda ölçülen yıllık ortalama konsantrasyonların lokal toprak parçacıkları tarafından belirlenmesi Sahra tozunun önemini azaltmamaktadır.



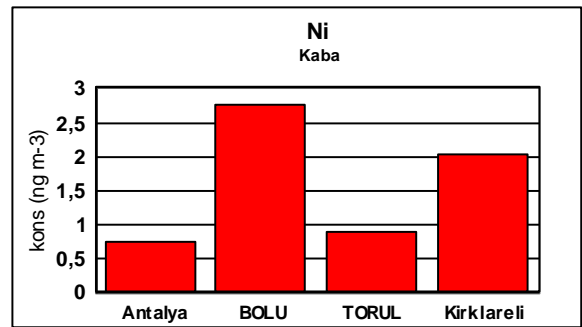
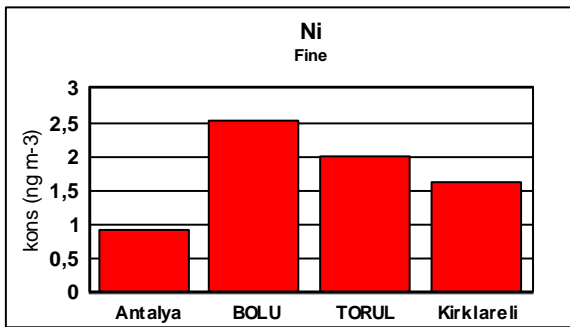
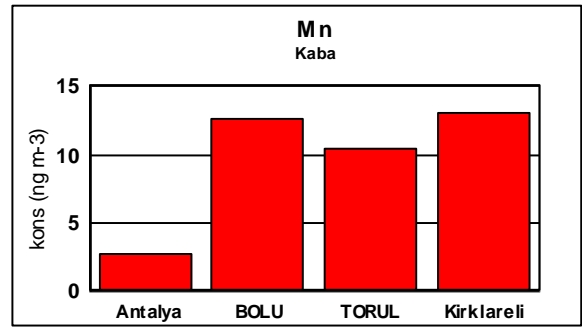
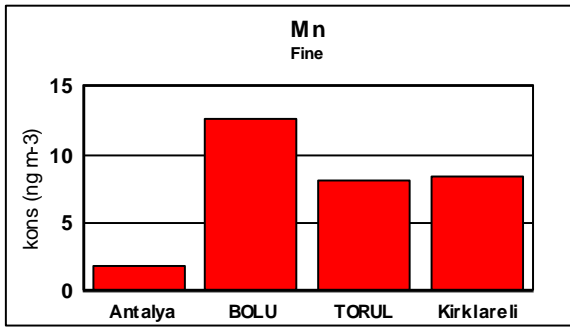
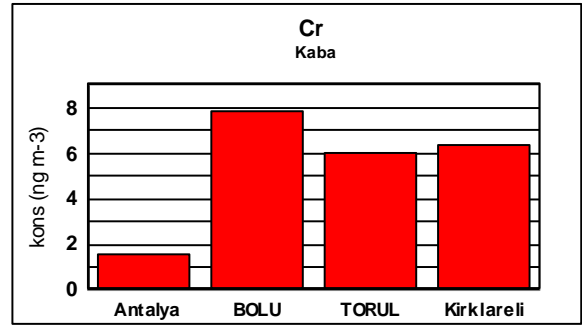
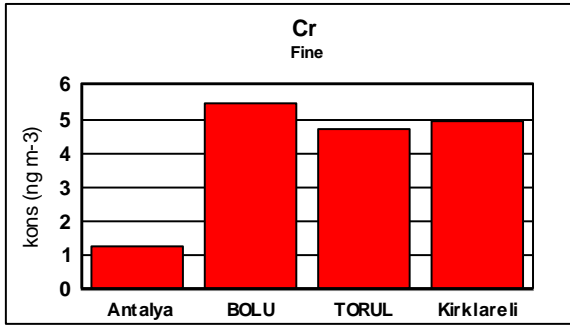
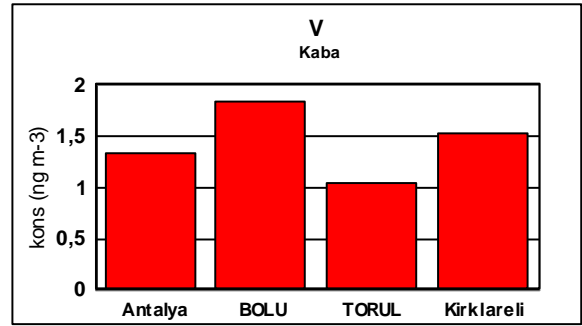
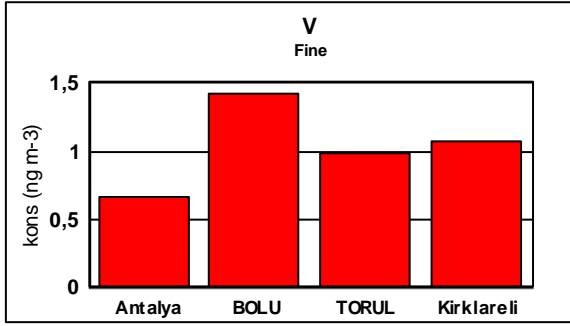
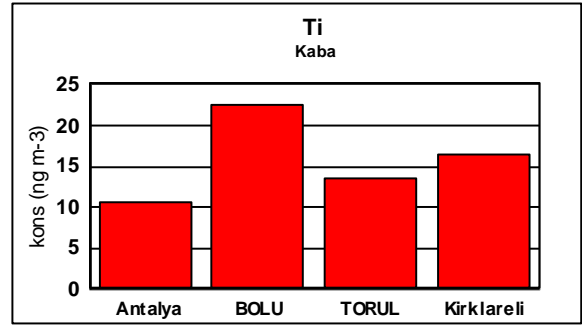
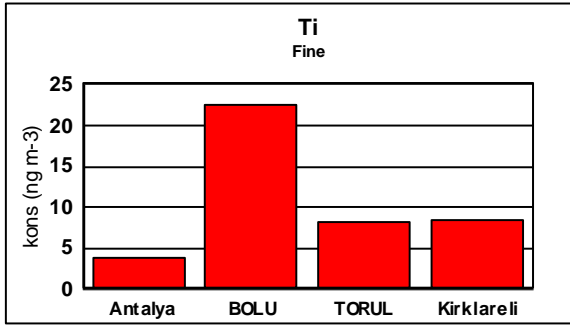
Şekil 3.13 İstasyonlarda ölçülen toprak kökenli elementlerin medyan konsantrasyonları



Şekil 3.14 İstasyonlarda ölçülen kütlesel konsantrasyonların ve deniz tuzundan kaynaklanan elementlerin medyan konsantrasyonları



Şekil 3.15 İstasyonlarda ölçülen antropojenik kökenli elementlerin medyan konsantrasyonları



Şekil 3.16 İstasyonlarda ölçülen karışık kökenli elementlerin medyan konsantrasyonları

Deniz tuzu kökenli elementler Antalya istasyonunda diğerlerinden çok daha yüksektir. Bunun nedeni Antalya istasyonunun denize sıfır olması diğer istasyonların ise denizden 50 – 200 km uzakta olmalarıdır.

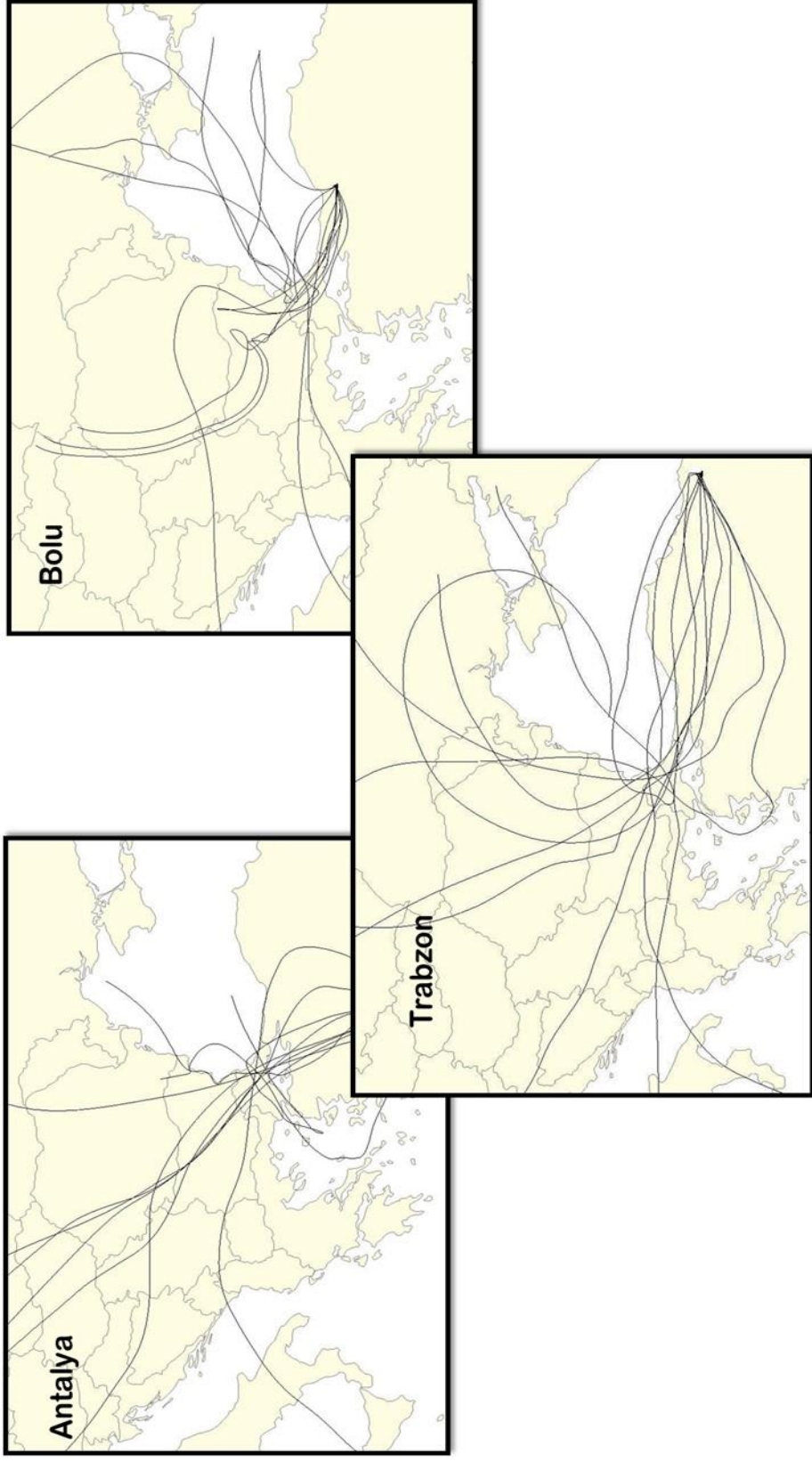
Elementel karbon (EC) konsantrasyonu Kırklareli ve Trabzon istasyonlarında Antalya ve Boludan çok düşüktür. Aynı şekilde SO_4^{2-} iyonu konsantrasyonun da Kırklareli'nde diğer istasyonlara göre düşük olduğu görülmektedir. EC ve SO_4^{2-} dışındaki elementlerin Kırklareli istasyonunda ölçülen ortalama konsantrasyonları, Bolu dışında kalan istasyonlarda ölçülen konsantrasyonlardan farklı değildir. Kırklareli istasyonu ile diğer istasyonlar arasındaki konsantrasyon farklılıklarını, veya benzerliklerini, Türkiye'ye giren hava kütlelerinin kompozisyonunun Türkiye üzerinde ne şekilde değiştiği penceresinden değerlendirildiğinde ilginç bir manzara ortaya çıkmaktadır. EC ve SO_4^{2-} 'in Kırklareli istasyonunda diğer istasyonlara göre düşük olması bu iki parametrenin Türkiye'de önemli kaynakları olduğuna işaret etmektedir. Diğer elementler için ise tam tersi bir durum söz konusudur. Bu parametrelerin Kırklareli istasyonunda ölçülen konsantrasyonları, Bolu hariç diğer istasyonlarda ölçülenlerle aynıdır. Bu da hava kütleleri Türkiye üzerinde hareket ederken söz konusu elementleri bir yerlerden almadığını göstermekte ve bu şekilde ölçülen elementlerin kaynaklarının önemli bir bölümünün Türkiye dışında olduğunu göstermektedir.

Ortalama konsantrasyonlara bakıldığında Bolu istasyonunda ölçülen konsantrasyonlar diğer istasyonlarda ölçülenlerden çok daha yüksektir. Bunun nedeni Bolu'ya çok yakın İstanbul gibi çok önemli bir kirletici kaynağının olmasıdır. Bolu'da örneklenen hava kütlelerinin büyük bir bölümü, İstanbuldan geçerek Bolu'ya ulaşmaktadır. Bu nedenle de Bolu'daki antropojenik element düzeyleri bu istasyonda diğerlerinden çok yüksektir.

Bu şekilde ortalama değerlerden hareket eden seküler bir yaklaşım genel bir fikir verme açısından çok yararlı olsa da kantitatif bir bilgi vermemektedir. Yurt içi ve yurt dışı kaynakların katkılarını biraz daha yüksek çözünürlükte inceleyebilmek için ikinci olarak ortalama konsantrasyonlar yerine geri yörüngelerde teker teker ölçülen konsantrasyon değerleri kullanılmıştır.

Bu yaklaşımda Dereköy istasyonunun etrafında 50 km X 50 km boyutlarında bir grid tanımlanmış ve iki yıl boyunca istasyonlara gelen geri yörüngelerden, istasyonlara gelmeden önce bu grid üzerinden geçenler belirlenmiştir. Bu geri yörüngenin hangi tarihte başlangıç istasyonunda, hangi tarihte de Dereköy üzerinde olduğu çıkarıldıktan sonra bu tarihlerde Dereköy ve başlangıç istasyonunda ölçülmüş olan element konsantrasyonları karşılaştırılmıştır.

Bu şekilde her iki istasyondan da geen geri yörünge örnekleri Şekil 3.7'de gösterilmiştir. Esasında iki istasyondan geen geri yörünge sayısı şekillerde gösterilenlerden fazladır. Ancak şekli çok karışık hale getirmemek için birkaç geri yörünge şekli gösterilmiştir.



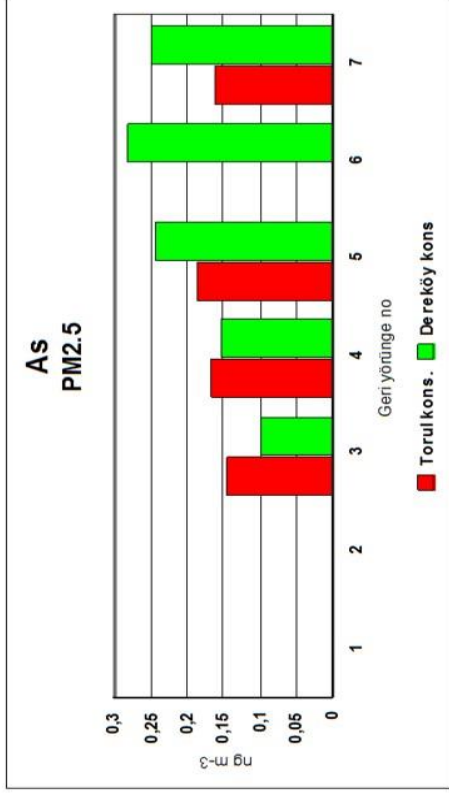
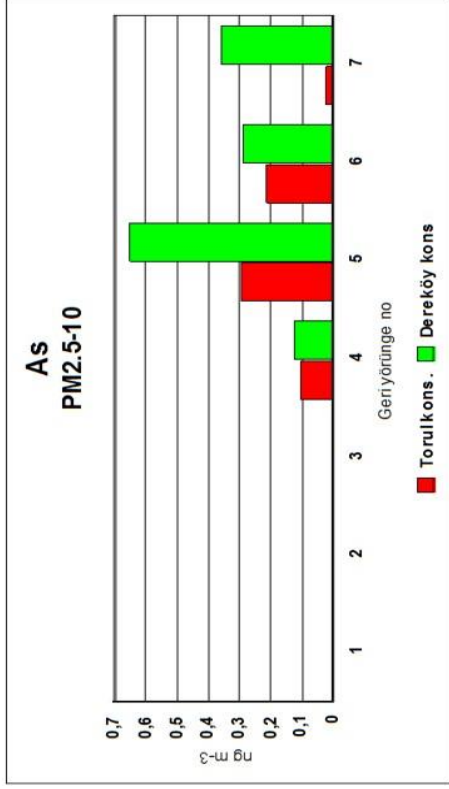
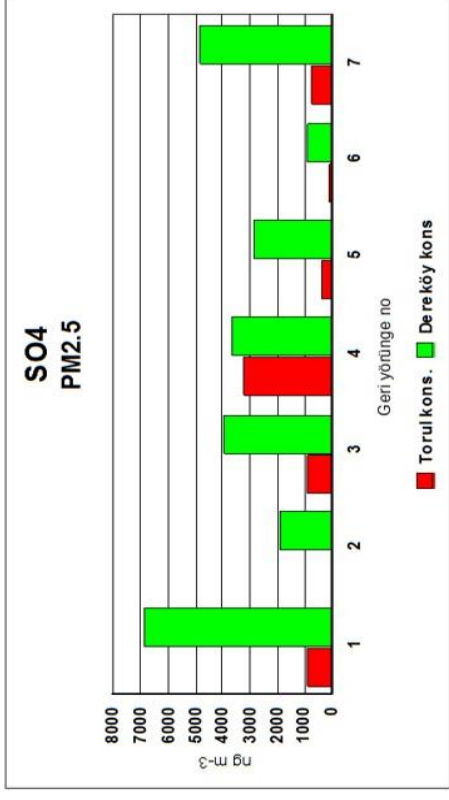
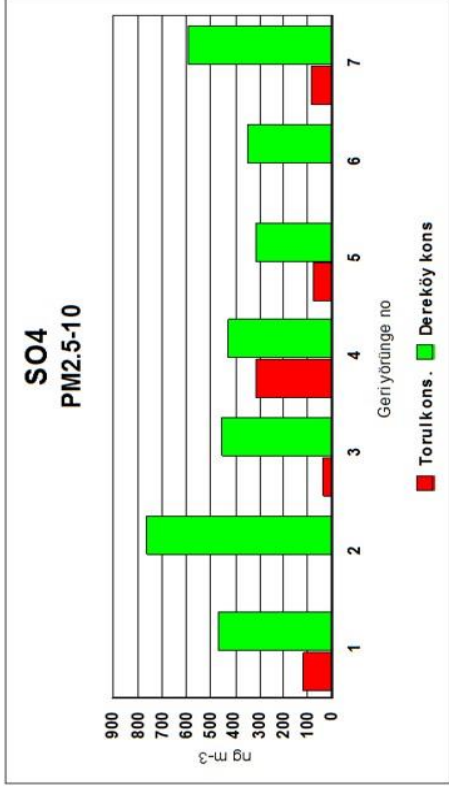
Şekil 3.17 İki istasyondan aynı anda geçen geri yöringe örnekleri

Trabzon istasyonundan başlayarak Dereköy üzerinden de geçen seçilmiş 7 geri yörüngede yörüngeyi Trabzon ve Dereköy'de bulunduğu tarihlerde bu istasyonlarda ölçülen SO_4^{2-} ve As düzeyleri Şekil 3.8 de görülmektedir. Şekilden de görülebileceği gibi bütün geri yörüngelerde Kırklareli istasyonunda ölçülen sülfat ve As düzeyleri daha yüksektir. Bu şekilde bakarak, hava kütlelerinin Türkiye üzerinde seyahatleri sırasında, Türkiye'ye girdiklerinde sahip oldukları sülfat düzeylerine herhangi bir ekleme olmadığı gibi, hava kütlelerinde bulunan sülfat çökerek konsantrasyon düşmektedir. Aynı durum As için de geçerlidir.

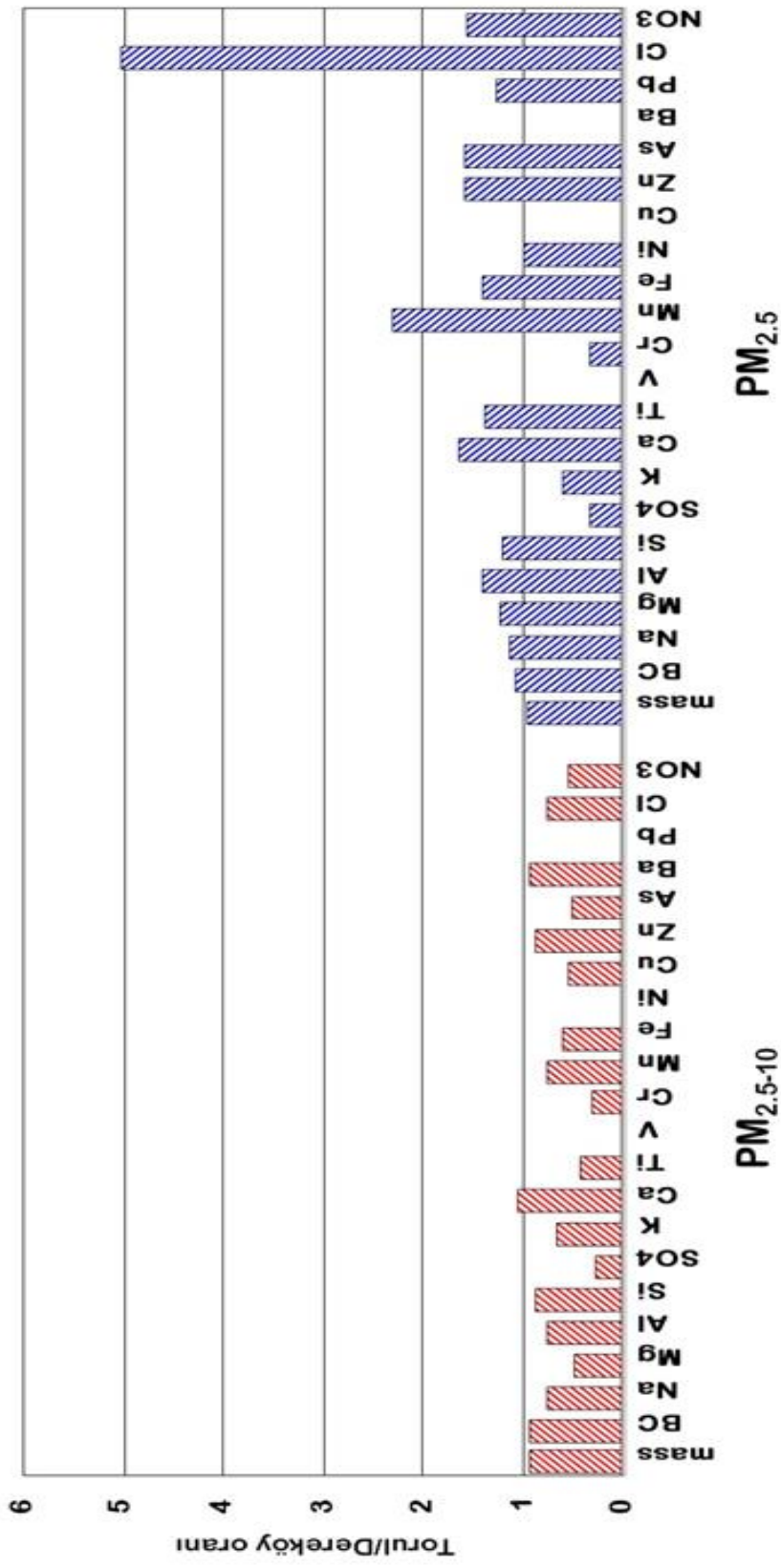
Bu şekilde iki istasyondan birden geçen geri yörünge için hesaplanan Torul/Dereköy konsantrasyon oranlarının ortalama değerleri Şekil 3.9 de görülmektedir. Şekilden de görüleceği gibi $PM_{2.5-10}$ fraksiyonunda birin ütüde hiç bir değerin olmaması bu fraksiyonda hava kütlelerindeki kirlenmelerin yurt dışından taşındığını göstermektedir. $PM_{2.5}$ fraksiyonunda ise Türkiye'nin katkısının biraz daha fazla olduğu görülmektedir. Yine de Torul/Dereköy oranı 1.5 dan küçüktür. Bu da Torul istasyonunu etkileyen kaynakların Türkiye'nin dışında olduğunu göstermektedir. Sadece Mn konsantrasyonu hava kütleleri Dereköy'den Torul'a gelene kadar 2.5 kat artmıştır. Bu da Dereköy'den geçtikten sonra Torul'a ulaşan hava kütlelerinin Ereğli, Karabük gibi demir, çelik tesislerini içeren bir yöreden geçmiş olmasından kaynaklanabilir.

Antalya istasyonu için de Trabzon'dakine benzer bir durum söz konusudur. $PM_{2.5-10}$ fraksiyonunda Na, Mg ve Cl dışındaki elementlerin aşağı yukarı tamamı için oran birin altında ve 1.0 a çok yakındır (Şekil 3.10). Na Cl ve Mg da, istasyonun denize yakın olması nedeniyle Antalya da yüksektir. $PM_{2.5}$ fraksiyona bakınca durumun biraz farklı olduğu görülmektedir. antropojenik element ve iyonlardan SO_4^{2-} , Mn ve Pb için Antalya/Dereköy oranı 5.0 ve üzerindedir. Bu hava kütleleri Türkiye'ye Dereköy'den Girdikten sonra Antalya'ya ulaşana kadar içerdikleri SO_4^{2-} , Mn ve Pb konsantrasyonlarının en az 5 katı arttığını göstermektedir. Torul istasyonunda böyle bir şey görülmezken Antalya'da gözlenmesi hava kütlelerinin farklı yollarından olabilir. Dereköy'den Türkiye'ye giren bir hava kütlesi Antalya sahiline ulaşabilmek için mutlaka İzmir civarındaki endüstri bölgesinden geçmek zorundadır. Konsantrasyonlardaki bu artış bir ihtimal İzmir'deki endüstriyel emisyonların bu hava kütlelerine dahil olmasından olabilir. Ne olursa olsun, gerek Seküler ve gerekse geriyörüngeler bazında yapılan değerlendirmeler. Bazı önemli noktaları ortaya çıkarmıştır. Bunlardan birincisi, "Türkiye'de ölçülen kirlenmelerin kaynaklarının Türkiye'de mi, yoksa yurtdışında mı olduğu sorusunun yanıtının Türkiye'nin farklı bölgelerinde farklı olabileceğidir. Ayrıca, böyle bir sorunun yanıtının her kirlenici parametre için aynı olmadığı görülmektedir. Örneğin, Türkiye'nin bir çok bölgesinde ölçülen SO_4^{2-} konsantrasyonlarına yurt dışı kaynakların katkısı çok yüksek iken Antalya bölgesinde ulusal kaynakların katkısının dah önemli olduğu görülmüştür. Pek

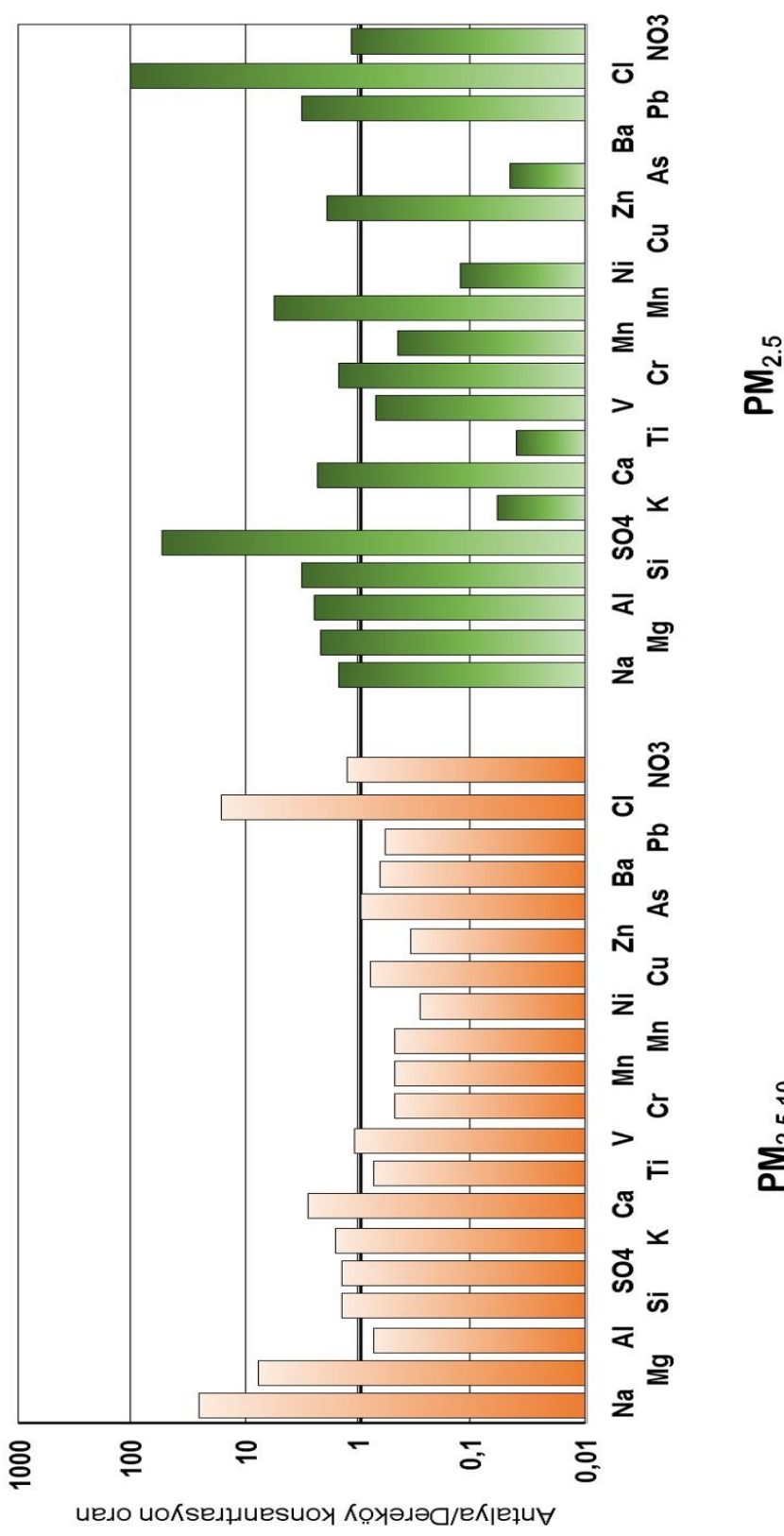
çok element için hava kütleleri Türkiye'ye girdiğinde görülen konsantrasyonlar diğer bölgelerde de görüldüğünden antropojenik elementlerin Türkiye'de ölçülen konsantrasyonlarına ulusal kaynakların katkılarının çok fazla olmadığı görülmektedir.



Şekil 3.18 Torul istasyonundan başlayan geri yörüngelerde Torul ve Dereköy istasyonlarında ölçülen SO4-2 ve As konsantrasyonlarının düzeyleri



Şekil 3.19 Torul istasyonundan başlayıp Dereköy istasyonundan geçen geri yörüngeler için hesaplanan ortalama TORUL/DEREKÖY oranları. Toruldan başlayıp Dereköyden geçen her geri yörünge için bir oran hesaplanmıştır. Hesaplanan değer o yörünge için başlangıç tarihinde Torul'da toplanan örneklerdeki element konsantrasyonlarının aynı geri yörünge Dereköyden geçtiği sırada Dereköy istasyonunda toplanan aerosol örneğinde ölçülen element konsantrasyonlarına oranı alınarak bulunmuştur. Şekilde gösterilen değerler her iki istasyondan da geçen bütün geri yörüngeler için hesaplanan oranların ortalamasıdır.



Şekil 3.20 Antalya istasyonundan başlayıp Dereköy istasyonundan geçen geri yörüngeler için hesaplanan ortalama Antalya/DEREKÖY oranları. Antalya'dan başlayıp Dereköyden geçen her geri yörüğe için bir oran hesaplanmıştır. Hesaplanan değer o yörüngenin başlangıç tarihinde Antalya istasyonunda toplanan örnekteki element konsantrasyonlarının aynı geri yörüğe Dereköyden geçtiği sırada Dereköy istasyonunda toplanan aerosol örneğinde ölçülen element konsantrasyonlarına oranı alınarak bulunmuştur. Şekilde gösterilen değerler her iki istasyondan da geçen bütün geri yörüngeler için hesaplanan oranların ortalamasıdır.

3.6. Aerosol ve Yağmur suyu örneklerinde ölçülen element ve iyonların kaynaklarının belirlenmesi (PMF)

Projede veri değerlendirmesi aşamasında yapılan çalışmalardan diğer birisi de istasyonlarda ölçülen aerosol ve yağmur suyu kompozisyonunu etkileyen kaynakların, diğer bir deyişle istasyonlardaki aerosol popülasyonunu oluşturan bileşenlerin, neler olduğudur. Bu amaçla, yapılan ölçümlerle uyumlu bir teknik olan Pozitif matris faktörlemesi (PMF) kullanılmıştır. PMF tekniğinin, avantaj ve dezavantajları İkinci bölümde (Deneysel) tartışıldığından burada tekrar metoda yönelik bir tartışma veya açıklama yapılmamıştır.

Antalya istasyonu aerosol verilerine uygulanan PMF uygulamasında beş faktörlü bir çözüm benimsenmiştir. PMF uygulanırken önce birkaç adımlı bir optimizasyon çalışması yapılmıştır. Bu çerçevede herkes tarafından da bilinen kriterler irdelenmiştir. Bunlar, g-score değerlerinin bir birleriyle istatistik olarak ilişkili (körele) olmaması, Hesaplanan ve teorik Q değerlerinin birbirinden çok farklı çıkmaması, "scaled residuals" olarak bilinen parametrenin dağılımının simetrik olması ve değerlerinin ± 2 içerisinde kalması ve kabul edilen faktörlerin fiziksel olarak anlamlı olmasıdır.

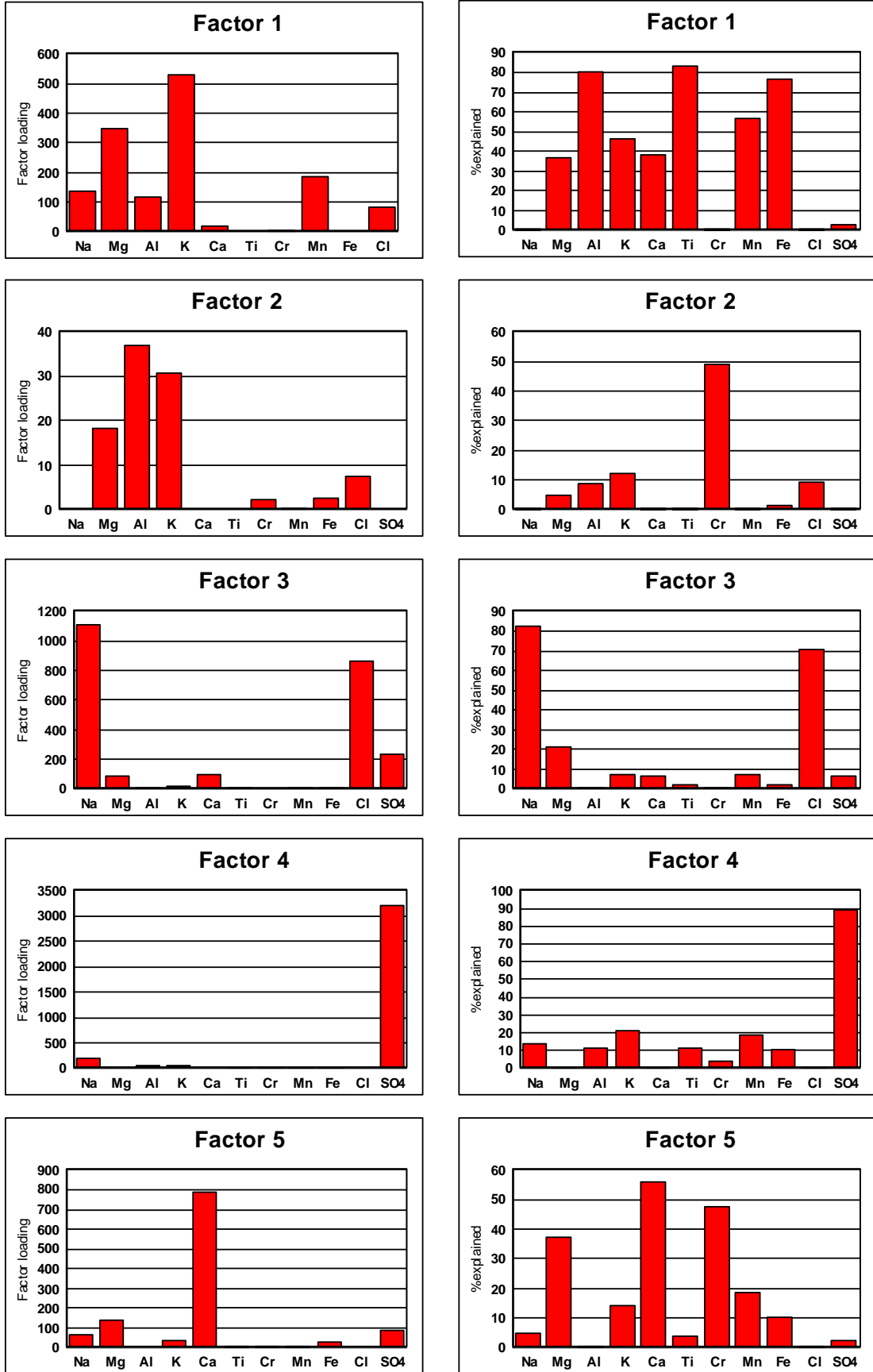
Antalya aerosol verilerine uygulanan PMF'de bulunan faktör kompozisyonları (factor loading) ve her elementin faktörlerce ne kadarının açıklandığı Şekil 3.11'de gösterilmiştir. Aynı faktörler için hesaplanan G-skor değerlerinin aylık ortalamaları ve zenginleşme faktörleri ise Şekil 3.12'de gösterilmiştir.

Faktör 1 tipik bir toprak faktörüdür. Bu faktör litofilik elementlerin varyanslarının büyük bir bölümünü açıklamakta ve bütün bu elementlerin zenginleşme faktörünün 1.0 dolayında olduğu görülmektedir. Ayrıca G skor değerlerinin aylık ortalamasının dağılımı daha önceki bölümlerde Al gibi toprak elementlerinin mevsimsel değişimleri ile birebir uyumludur.

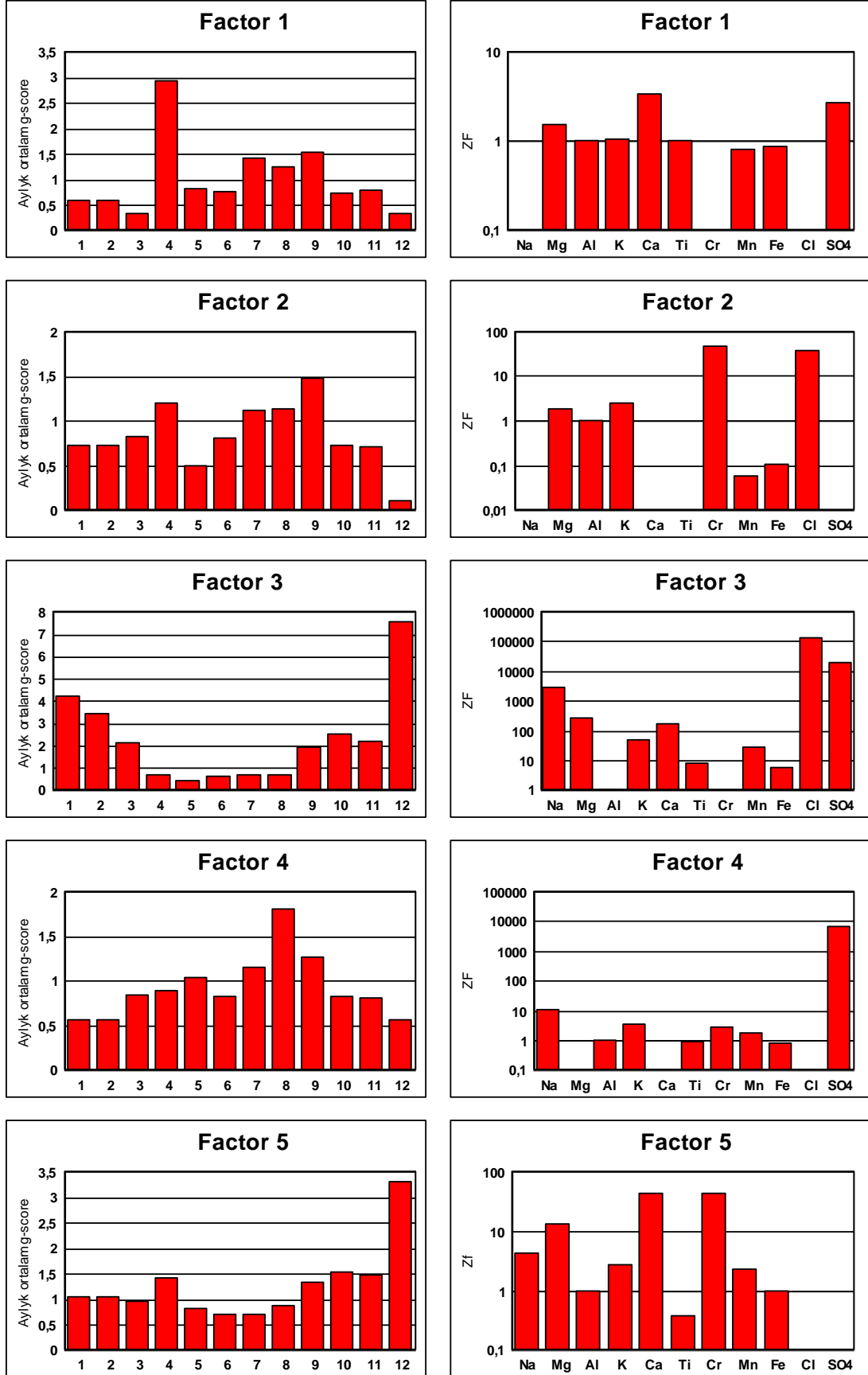
Faktör 2, birinci kadar bariz olmasa da ikinci bir toprak faktörüdür. Bu faktörde Al, Mg ve K konsantrasyonunun yüksek olduğu görülmektedir. Ancak Faktör 2 bu elementlerin varyanslarının büyük bir bölümünü açıklayan bir faktör değildir. Bu faktörde ilginç olan bir nokta da Cr varyansının büyük bir bölümünün açıklamasıdır. Akdeniz sahilindeki toprakta Cr'un çok zenginleşmiş olduğu bilindiğinden bu lokal torağın bir göstergesi olmaktadır.

Faktör 3 Na ve Cl elementlerini içeren bir deniz tuzu faktörüdür.

Faktör 4 çok yüksek SO_4^{2-} içerdiğinden antropojenik bir yanma faktörüdür. G skorların aylık ortalama değerlerinin yıl içerisinde değişimi SO_4^{2-} iyonu için daha önce tartışılan değişimin tamamen aynıdır.



Şekil 3.21 Antalya aerosol veri setine uygulanan PMF ile hesaplanan faktörlerin kompozisyonu ve her elementin açıklanan yüzdeleri



Şekil 3.22 Antalya aerosol veri setine uygulanan PMF ile hesaplanan G-score değerlerinin aylık ortalamaları ve faktörlerin kompozisyonu kullanılarak hesaplanan zenginleşme faktörleri

Faktör 5, kesin bir yargıya varmak zor olsa da üçüncü bir torak faktörünü andırmaktadır. Buradan çıkan sonuç Antalya'daki aerosol popülasyonunun üç farklı toprak parçacıkları, antropojenik parçacıklar ve deniz tuzu aerosolu olmak üzere 5 farklı bileşenden oluşmuş olduğudur.

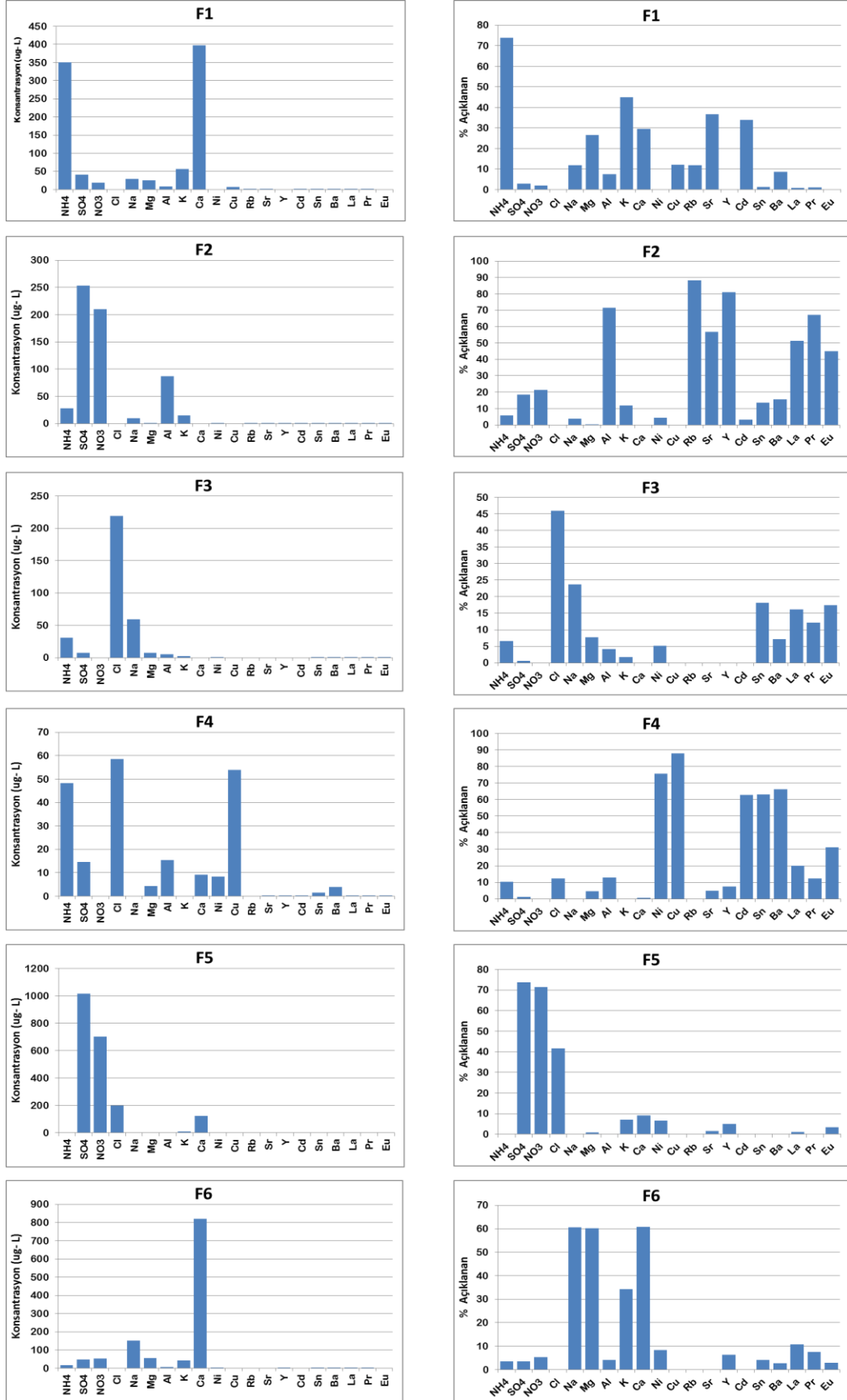
PMF tekniği aynı şekilde Antalya'da toplanan yağmur suyu örneklerine de uygulanmıştır. Yapılan optimizasyon çalışması sonucunda altı faktörlü bir modelin optimal olduğu sonucuna varılmıştır. Bu altı faktörün kompozisyonları ve elementlerin varyanslarının faktörlerce açıklanan fraksiyonları Şekil 3.13'de gösterilmiştir. Aynı faktörlerin g-skorlarının aylık ortalamaları ve faktör kompozisyonlarından hesaplanan zenginleşme faktörleri ise Şekil 3.14'de verilmiştir. Birinci faktör tarımsal aktiviteyi temsil eden bir faktördür. NH_4^+ ve Ca gibi bazı elementlerin varyanslarının önemli bir bölümü bu faktör tarafından açıklanmaktadır. Akdeniz bölgesinde NH_4^+ iyonu büyük ölçüde gübrelerde bulunan N bileşiklerinin zaman içerisinde NH_3 halinde buharlanmasından kaynaklandığı uzun süredir bilinmektedir. Faktör skorların yüksek olduğu ilkbahar ayları Akdeniz bölgesinde gübre kullanımının en çok olduğu dönemlerdir. Bu faktör için hesaplanan zenginleşme faktörleri bu faktörde bulunan elementlerin toprağa göre zenginleşmiş olduğunu göstermektedir.

Faktör 3 yüksek Cl ve Na içeriği ile tipik bir deniz tuzu faktörüdür.

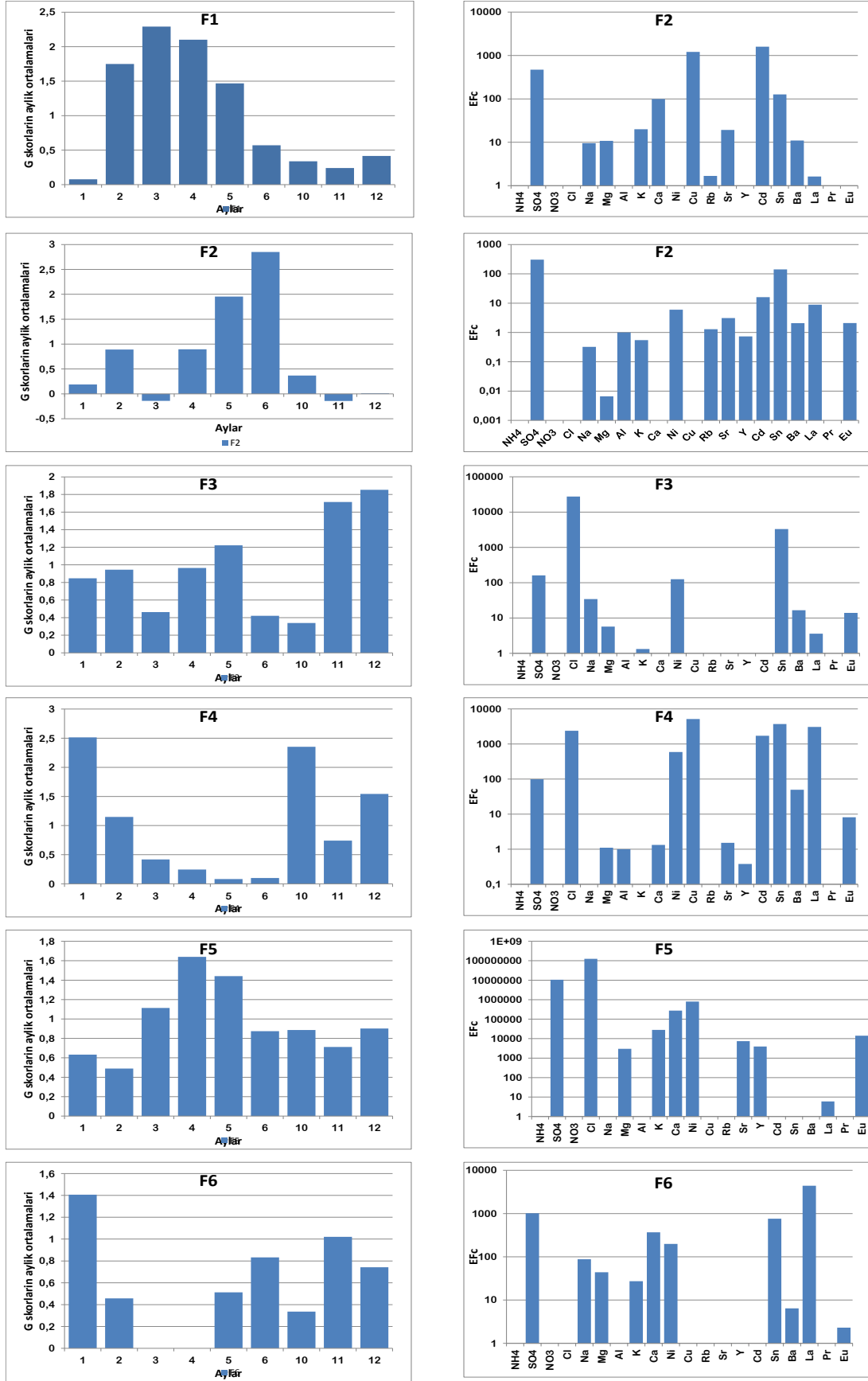
Faktör 4 Ni, Cu, Cd, Sn, Ba elementlerinin varyanslarının çok büyük bir bölümünü açıklamaktadır. Bunların hepsi antropojenik kaynakları olan elementlerdir. Özellikle Ni'nin yüksek olması sıvı yakıtların bu faktörün kaynağı olabileceğini göstermektedir. İlginç olan bu faktörün faktör skorlarına bakıldığında kışın yüksek, yazın ise düşük değerleri olduğu görülmektedir. Bu da biz aerosollere yağmur suyunu farklı düşünmek gerektiğini işaret etmektedir.

Faktör 5 yüksek SO_4^{2-} ve NO_3^- içeriği ile tipik bir yanma faktörüdür ve Termik santral emisyonların temsil etmektedir. Faktör 6'nın neyi temsil ettiği tam olarak anlaşılamamıştır.

Antalya da olduğu gibi PMF farklı istasyonlarda hem aerosol hem de yağış verilerine uygulanmıştır. Kırklareli aerosol verilerine uygulandığında dört faktörlü bir model bulunmuş ve Kırklareli'nde aerosol bileşenleri Endüstriyel kaynaklı parçacıklar, kontamine olmuş toprak, Toprak ve termik santral emisyonları olarak saptanmıştır.



Şekil 3.23 Antalya yağmur suyu veri setine uygulanan PMF ile hesaplanan Faktörlerin kompozisyonu (F-loading) ve elementlerin faktörler tarafından açıklanan yüzdeleri



Şekil 3.24. Antalya Yağmur suyu veri setine uygulanan PMF ile hesaplanan G-score değerlerinin aylık ortalamaları ve faktörlerin kompozisyonu kullanılarak hesaplanan zenginleşme faktörleri

Kirklareli'ndeki yađmur suyuna uygulana PMF 6 faktörü bir sonuç vermiştir. Belirlenen faktörler yanma veya termik santral faktörü, 2 tane farklı toprak faktörü, deniz tuzu faktörü, endüstriyel emisyonları temsil eden bir faktör, ve nadir toprak elementlerinin ađırlıkta olduđu bir faktörü olarak tanımlanmıştır.

SONUÇLAR

Bu çalışmada Türkiye'nin farklı bölgelerinde kurulan dört izleme istasyonu yardımıyla, atmosferik aerosollerin kimyasal kompozisyonu iki yıl süre ile izlenmiştir. Çalışmanın başlangıç noktası Türkiye'nin değişik bölgelerinde ölçülen parçacık konsantrasyonlarına yurt içi ve yurt dışı kaynakların katkıları konusunda bilgi üretmektir. Oluşturulan oldukça büyük veri setleri cevaplamaya çalıştığımız bu temel sorunun yanında daha başka konularda da bilgi birikimimizi arttırmıştır. Çalışmaların yürütüldüğü istasyonlardan birincisi Kırklareli'nin 40 km kuzey batısında, Bulgar sınırına 4 km mesafededir. Bu istasyon, bütün karşılaştırmaların yapıldığı ana istasyonumuz olmuştur. Bu güne kadar yapılan çalışmalar hava kütlelerinin Türkiye'ye, zamanın %70'inde kuzeybatıdan geldiğini göstermiştir. Bu açıdan bakıldığında, Kırklareli istasyonu hava kütlelerinin Türkiye'ye girdiği noktada bulunmaktadır. Dolayısı ile burada toplanan örneklerin analizi ile elde edilen sonuçlar, hava kütlelerinin ülkemize girdiği anda, daha Türkiye'deki kirlenici kaynaklarından etkilenmeden önceki kompozisyonunu temsil etmektedir. Diğer üç istasyon ise Doğu Karadeniz bölgesinde (Torul'da), Antalya'nın 30 km kadar kuzeybatısında ve Marmara Bölgesinde (Bolu ilinin 8 km kadar batısında) konuşlandırılmıştır. Bu istasyonlarda aerosol örnekleri, SFU kullanılarak ince (PM_{2.5}) ve (PM_{2.5-10}) fraksiyonlar olarak ayrı, ayrı toplanmış ve toplanan örnekler XRF tekniği ile 18 element için analiz edilmiştir. Aynı istasyonlarda veya istasyonlara çok yakın bölgelerde sadece yağ çekmeyi örnekleyebilen yağmur toplayıcılar kullanılarak yağmur örnekleri de toplanmıştır. Yağmur örnekleri Kırklareli istasyonunda bu proje çerçevesinde yaptırılan bir örnekleyici kullanılarak, Bolu'da İzzet Baysal Üniversitesi tarafından yaptırılan bir örnekleyici yardımıyla, diğer iki istasyonda ise MGM'ne ait örnekleyiciler kullanılarak toplanmıştır. Gerek aerosol ve gerekse yağmur örnekleri günlük olarak toplanmıştır. Ancak yağmur örneklemede yağmur sıklığı önemli olduğundan yağışlar da büyük ölçüde kış mevsiminde olduğundan örnek sayısı, özellikle yaz ayları için, istendiği kadar fazla olmamış bu da yağmur ile ilgili değerlendirmelerdeki belirsizliği arttırmıştır. Aerosol ve yağmur suyu örnekleri farklı cihazlarla analiz edildiğinden konsantrasyonları belirlenen elementler de farklı olmuştur. Aerosoller EDXRF tekniği ile analiz edildiğinden Na, Mg, Al, Si, SO₄²⁻, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Ni, Cu, Zn, As, Ba, Pb, ölçümleri gerçekleştirilmiştir. Bunlara iyon kromatografisi ile analiz edilen Cl ve NO₃⁻ da eklenerek her istasyonda 19 iyon ve element ölçülmüştür. Yağmur örnekleri ise çok daha hassas bir analitik cihaz olan ICPMS ile analiz edilmiştir. Bu teknikle yağmur suyunda 51 elementi tayin etmek mümkün olmuştur.

Bütün istasyonlarda ölçülen element ve iyonlar log-normal bir dağılım göstermiştir. Bu nedenle oluşturulan veri setlerinde her element veya iyon için veri popülasyonunu en iyi temsil eden parametrenin medyan değeri olduğu

düşünülmüş ve tablo ve şekillerde ortalama yerine elementlerin medyan değerleri kullanılmıştır.

Verilerin literatürdeki başka veri setleri ile karşılaştırılması değerleri bir perspektife oturtmak açısından önemlidir. Özellikle kırsal çalışmalarda ölçülen konsantrasyon değerleri mevcut standartlar ile karşılaştırılmayacak kadar düşük olduğundan, herhangi bir bölgenin kirletici kaynakların ne derece etkisi altında olduğunu anlamamanın tek yolu, ölçülen değerlerin literatürde benzer bölgeler için rapor edilmiş değerler ile karşılaştırmak olmaktadır. Bu çalışmada da ölçülen değerler Akdeniz bölgesinde daha önce ölçülen değerlerle karşılaştırılmıştır. Yapılan karşılaştırmada, bu çalışmada ölçülen antropojenik element ve iyon konsantrasyonlarının Akdeniz'in diğer bölgelerinde ölçülen konsantrasyonlardan çok farklı olmadığı görülmüştür. SO₄²⁻ iyonu bir istisna gibi görünmektedir. Bu çalışmada ölçülen SO₄²⁻ konsantrasyonları 2000 – 4000 ng m⁻³ mertebesinde dir. Bu değerler doğu Akdeniz bölgesinde ölçülen diğer SO₄²⁻ konsantrasyonlarından düşüktür. Ancak bu fark bizim ölçtüğümüz yerlerde SO₄²⁻ düzeylerinin düşük olmasından değil, diğer verilerin eski yıllara ait olmasındandır.

Doğu Akdeniz bölgesinde element konsantrasyonlarının geçirdiği mevsimsel değişimler bu güne kadar çok çalışılmıştır. Bu çalışmada da ölçülen element ve iyonların mevsimsel değişimlerinin incelenmesi, her şeyden önce bu güne kadar ortaya konmuş mevsimsel etkilere aykırı bir durumun olup olmadığının irdelenmesi amacını taşımaktadır. Çalışmada . Kış mevsimi Ocak, Şubat, Mart, Ekim, Kasım ve Aralık aylarından oluşmaktadır. Yaz mevsimi ise, arada kalan Nisan, Mayıs, Haziran Temmuz, Ağustos ve Eylül aylarından oluşmaktadır. Bu Akdeniz bölgesinde daha önce yaptığımız çalışmalardan gelen bir uygulamadır. Kış ayları yıllık yağışın %80 kadarının düştüğü aylar olarak tanımlanmıştır. Türkiye'nin her tarafında yıllık yağışın dağılımı aynı olmasa da eski çalışmalarla karşılaştırabilmek için aynı dağılım bu çalışmada da kullanılmıştır. Element ve iyonların istasyonlardaki mevsimsel değişimleri benzerlikler göstermektedir. Toprak kökenli elementlerin yaz mevsimi konsantrasyonları, bütün istasyonlarda, aynı elementlerin kış mevsimi konsantrasyonlardan iki kat kadar yüksektir. Bütün istasyonlarda görülen bu ortak davranış, toprak aerosollerinin yaz mevsiminde toprağın kuru olması nedeniyle daha kolay oluşmasına bağlanmıştır.

Deniz tuzu kökenli elementler olan Na, Mg gibi elementler farklı istasyonlarda farklı mevsimsel değişimler göstermektedir. Bunun nedeni çalışmada kullanılan istasyonların denize farklı uzaklıklarda olmasıdır.

Antropojenik kökenli elementler iki farklı mevsimsel davranış sergilemektedir. Bu gruba giren elementlerin büyük bir bölümünün yaz mevsimi konsantrasyonları,

litofilik elementler kadar olmasa da, kış mevsimi konsantrasyonlarından yüksektir. Bu elementler bölgeye uzun mesafeli taşınım ile ulaşan parçacıklardan kaynaklanmaktadır. Az sayıda bazı elementlerin ise (As gibi) kış mevsimi konsantrasyonları ya yaz mevsimi konsantrasyonları ile karşılaştırılabilir düzeydedir ya da daha düşüktür. Yüksek kış mevsimi konsantrasyonları bu elementlerin lokal kaynakları ile açıklanmıştır.

Yağmur suyu verisinin sayıca sınırlı olması nedeniyle elementlerin mevsimsel değişimlerine yönelik değerlendirmenin belirsizliğinin yüksektir. Genel olarak yağmur suyu verilerinde gözlenen mevsimsel değişimin aerosollerde gözlenenden farklı olduğu görülmüştür. Antropojenik kökenli bir çok elementin kış mevsimi konsantrasyonları yaz mevsimi konsantrasyonlarından yüksektir. Bu değişim, aerosollerin aksine yerleşim birimlerinde kışın daha yüksek olan emisyonların bulut – altı mekanizmalarla yağmura girmesi ile açıklanmıştır.

Akış klimatolojisi (flow climatology) bir bölgeye kirleticilerin nerelerden geldiği konusunda bir ön bilgi verdiğiinden her çalışmada yer alan bir bölümdür. Bu çalışmada da çalışmanın yürütüldüğü dört istasyona hava kütlelerinin nerelerden geldiği irdelenmiştir. Geri yörünge segmentleri baz alınarak yapılan değerlendirmede istasyonlara ait üst atmosfer akış klimatolojisinde bazı farklılıklar olduğu görülmüş ve her istasyon için hava kütlelerinin en çok vakit geçirdiği bölgeler bir GIS yazılımı yardımıyla sorgulanmış ve irdelenmiştir.

Türkiye'nin değişik bölgelerinde ölçülen kirletici düzeylerinin ne kadarından ülkemizdeki kaynakların ne kadarından da yurt dışındaki kaynakların sorumlu olduğunu ortaya çıkarmak olduğundan veriler bu açıdan da değerlendirilmiştir. İstasyonlarda ölçülen element konsantrasyonlarına yurt içi ve yurt dışı katkıların boyutları hakkında bir fikir sahibi olabilmek için iki farklı yaklaşım uygulanmıştır. Birincisi seküler bir yaklaşımdır. Diğeri ise teker teker geri yörüngelere karşı gelen konsantrasyonların karşılaştırıldığı bir yaklaşımdır. Birinci yaklaşımda elementlerin istasyonlarda ölçülen medyan konsantrasyonları karşılaştırılmıştır. İkinci yaklaşımda ise her istasyon için o istasyon ile Kırklareli istasyonu üzerinden geri yörüngeler belirlenmiş ve o geri yörüngenin Kırklareli istasyonu üzerinde olduğu gün, Kırklareli istasyonunda toplanan aerosol örneğinin analizi ile ölçülen element konsantrasyonları ile geri yörünge diğeri istasyona ulaştığı gün o istasyonda toplanan aerosol örneğinin analizi ile ölçülen element konsantrasyonları karşılaştırılmıştır. Her iki yaklaşımda da ortaya çıkan sonuç; yurtiçi ve yurtdışı kaynakların istasyonlara olan etkileri bölgelere ve ölçülen parametrelere bağlı olarak değişmektedir. Örneğin; SO₂- iyonuna ulusal kaynakların katkısı Trabzon istasyonunda Yurtdışındaki kaynakların katkılarından azdır. Buna karşılık Antalya istasyonu ile Kırklareli istasyonu karşılaştırıldığında ulusal kaynakların katkılarının daha fazla olduğu görülmektedir. Bu bölgesel

farklılık, hava kütleleri Türkiye'ye girdikten sonra izledikleri rota ve bu rotada bulunan emisyon bölgeleri ile açıklanmıştır. Her iki yaklaşımda da elementlerin büyük bir bölümüne uluslararası kaynakların katkısı, ulusal kaynakların katkılarından fazladır. Bu çalışmada elde edilen önemli bir bulgudur.

Çalışmada, her istasyonda aerosol popülasyonunu oluşturan bileşenler PMF tekniği kullanılarak incelenmiştir. Bütün istasyonlarda ortak olan bileşenler Toprak, ikincil SO₄²⁻ faktörü (aynı faktör farklı çalışmalarda uzun mesafeli taşınım faktörü olarak da tanımlanmıştır) faktörleri olmuştur. Antalya istasyonunda yapılan PMF çalışmasında deniz tuzunun aerosollerin önemli bir bileşeni olarak ortaya çıkmasına rağmen, diğer istasyonlarda, istasyonun denizden uzak olmasından dolayı, ayrı bir faktör olarak görülmemiştir.

PMF çalışması aerosollere olduğu gibi yağmur suyu örneklerine de uygulanmıştır. Yağmur suyunda çok daha fazla sayıda element ölçüldüğünden PMF in çözünürlüğü çok daha yüksek olmuştur. Aerosol örneklerine PMF uygulandığında 4-5 faktör bulunurken, yağmur suyunda ortaya çıkan faktör sayısı 6 – 7 olmuştur. Yağmur suyunda ölçülen element sayısının fazlalığı önemli bir avantaj iken örnek sayısının azlığı da, varılan sonuçlardaki belirsizliği arttırdığından bir dezavantaj olmuştur.

İLERİYE DÖNÜK ÖNERİLER

Akdeniz bölgesinde bu güne kadar yapılmış pek çok çalışma mevcuttur. Bu çalışmanın özelliği Türkiye'de bu güne kadar yapılan çalışmalarda ölçülen element düzeylerinin ve parçacık kütleli konsantrasyonlarının ne kadarının yurt içi kaynaklardan ne kadarının da ulusal kaynaklardan geldiğini anlamaya yönelik ilk çalışmaya olmasıdır. Bu konuda istenen bilgiler elde edilmiştir. Daha bu ve benzer konularda yapılması gereken pek çok çalışma bulunmaktadır. Bunların bir bölümü maddeler halinde aşağıda verilmiştir.

- Karadeniz bölgesindeki veri tabanı geliştirilmelidir. Akdeniz bölgesinde yapılmış pek çok çalışma mevcutken Karadeniz bölgesinde yapılan çalışmalar çok sınırlıdır. Oluşmaya başlayan veri tabanının geliştirilmesi gerekmektedir.
- Türkiye'de yapılan çalışmaların çoğu kısa süreli olmuştur. Bu tür kısa zaman aralığını kapsayan verilerle kirleticilerin zaman içerisindeki değişimlerini değerlendirmek mümkün değildir. Avrupa'nın pek çok yerinde kirletici konsantrasyonlarının zaman içerisinde ne şekilde değiştiği bilinmektedir. Ülkemizde bu tür "trend" analizine uygun uzun zaman serileri yoktur. Ama oluşturulması gerekir
- Ölçülen parametreler genellikle eser element ve iyonlarla sınırlıdır. Diğer parametrelerinde bilinmesi gerekmektedir. Gaz fazı kirleticilere (NH_3 , HNO_3 , O_3 , VOC'ler gibi) yönelik izleme programları bir gereksinimdir.
- Bu çalışmada Türkiye'nin değişik yerlerinde aerosol düzeyleri ve kompozisyonu belirlenmiştir. Ancak bu parçacıkların taşınım mekanizmaları ile ilgili bir çalışma yapılmamıştır. Zaten sadece ölçümlerle taşınım mekanizmalarını ortaya çıkarmak pek olası değildir. Taşınım mekanizmalarını anlayabilmek için ölçümlerin yanında taşınım modellemesinin de yapılması gerekmektedir. Ancak Türkiye'de model ve ölçüm çalışmalarının birlikte içerildiği bir çalışma bu güne kadar yapılmış değildir.
- Bu güne kadar Karadeniz bölgesinde aerosollerin boyut dağılımı gibi fiziksel özelliklerine yönelik bir çalışma yapılmamıştır.

Teşekkürler

Bu çalışma çok değişik kurumdan pek çok insanın özverili çalışması ile sonuçlanabilmiştir. Örnekleme istasyonlarının kurulması sırasında bize çok yardımcı olan Orman Genel Müdürlüğü'ne, Orman Araştırma Dairesi Başkanlığı'na çok şey borçluyuz. Bizimle her talep ettiğimiz konuda işbirliğinden hiçbir zaman kaçınmayan Meteoroloji Genel Müdürlüğü'ne ve Araştırma Dairesi Başkanlığı'na benzer bir teşekkür borcumuz vardır. Aynı şekilde bu projenin finansal desteğini sağlayan TÜBİTAK'na da teşekkür ederiz. TÜBİTAK'nca sağlanan mali destek olmaksızın bu projenin gerçekleşmesi mümkün olamazdı.

Bize yine her türlü desteği esirgemeyen, OGM Md. Yrd. Sayın Nurettin Doğan'a, Zamanın Araştırma Daire Başkanı Dr. Ahmet Şenyaz'a, Torul Orman Şefliği'ne Şef Aşkın Ozan Aydın ve orada görevli Selami Karahan ve Sefer Şaş'a, Dereköy Orman Şefliğinde görevli olan ve örneklerin değiştirilmesinde çalışan Şenol Meriç ve Suat Berdan'a, Batı Akdeniz Orman Araştırma Müdürü Neşet Erkan'a, ODTÜ – MGM işbirliğinin lojistiğini oluşturan Ali İhsan İlhan'a Üniversiteye gelen örneklerin hazırlanmasında, elementel karbon ölçümlerinde enerjilerini esirgemeyen asistan arkadaşlarımız Gül Ayaklı, İlker Balcılar, Zeynep Malkaz ve Mert Aytaç'a. ANAEM'de analizleri geciktirmeden yapan Dr. Abdullah Zararsız ve Ridvan Kırmaz'a ve ODTÜ Merkezi Laboratuvarda ICPMS analizlerini yapan Serap Tekin Kaya'ya teşekkürü bir borç biliriz. Bu bölümde yer alan kurum ve kişiler olmasaydı bu çalışmanın başarıyla sonuçlanması mümkün olmazdı.

Kaynakça

Abdalmogith, S.S., Harrison, R.M., Zlatev, Z., 2006. "Intercomparison of secondary inorganic aerosol concentrations in the UK with predictions of the unified Danish Eulerian model". *Journal of Atmospheric Chemistry* 54, 43–66.

Adler, K. B., Fisher, B. M., Wright, D. T., Cohn, L. A. & Becker, S. 1994 Interactions between respiratory epithelial-cells and cytokines - relationships to lung inflammation. In: CHIGNARD, M., PRETOLANI, M., RENESTO, P. & VARGAFTIG, B. B. (eds.) *Cells and Cytokines in Lung Inflammation*.

Amouroux, D., and Donard, O.F.X., 1996. "Maritime emission of selenium to the atmosphere in eastern Mediterranean Seas". *Geophysical Research Letters* 23 (14), 1777–1780

Anderson, H.R., 2000. "Differential Epidemiology of Ambient Aerosols". *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* 358, 2771–2785

Andreae, M. O. & Crutzen, P. J. 1997. Atmospheric aerosols: Biogeochemical sources and role in atmospheric chemistry. *Science*, 276, 1052-1058. Andres ve Kasgnoc, 1998,

Appel, B.R., Tokiwa, Y., Konthly E.L., Povard, V., 1988. "Evaluation of procedures for measuring atmospheric nitric acid and ammonia", *Atmospheric Environment*, 22, 1565-1573.

Bandhu, H.K., Puri, S., Shahi, J.S., Mehta, D., Garg, M.L., Singh, N., Mangal, P.C., Suri, C.R., Swietlicki, E., Trehan, P.N., 1996. "An Evaluation of the sources of air pollution in the city of Chandigarh, India: A study using EDXRF technique". *NIMB Beam Interactions with Materials and Atoms*, 114, 341–344

Bardouki, H., Liakakou, H., Ecobomou, C., Sciare, J., Smolik, J., Zdimal, V., Eleftheriadis, K., Lazaridis, M., Dye, C., Mihalopolos, N., 2003. "Chemical Composition of size resolved aerosols in the eastern Mediterranean during summer and winter". *Atmospheric Environment* 37, 195–208

Bergin, M. H., Greenwald, R., XU, J., Berta, Y. & Chameides, W. L. 2001. Influence of aerosol drydeposition on photosynthetically active radiation available to plants: A case study in the Yangtze delta region of China. *Geophysical Research Letters*, 28, 3605-3608.

Berresheim, H. & Jaeschke, W. 1983. The contribution of volcanoes to the global atmospheric sulfur budget. *Journal of Geophysical Research-Oceans and Atmospheres*, 88, 3732-3740.

Brankov, E., Rao, S.T., Porter, P.S., 1998. "A Trajectory Clustering Correlation Methodology for Examining the Long Range Transport of Air Pollutants". *Atmospheric Environment* 32(9), 1525-1534

Braziewicz, J., Kownacka, L., Majewska, U., Korman, A., 2004. "Elemental Concentrations in the Tropospheric and Lower Stratospheric Air in Northeastern Region Of Poland". *Atmospheric Environment* 38, 1989–1996

Carslaw, N., Carpenter, L. J., Plane, J. M. C., Allan, B. J., Burgess, R. A., Clemitshaw, K. C., COE, H. & Penkett, S. A. 1997. Simultaneous observations of nitrate and peroxy radicals in the marine boundary layer. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 102, 18917-18933.

Charlson R. J., Lovelock J. E., Andreae, M. O . & Warren, S. G. 1987 Oceanic phytoplankton, atmospheric sulphur, cloud albedo and climate. *Nature*, Lond. 326, 655–661.

Charlson, R.J., Schwartz, S.E., Hales, J.M., Cess, R.D., Coakley, J.A., Hansen ,J.E., Hofmann, D.J., 1992. "Climate Forcing by Anthropogenic Aerosols", *Science*, 255, 423-430.

Charron, A., Harrison, R.M., Quincey, P. , 2007. "What are the sources and conditions responsible for exceedences of the 24 h PM10 limit value (50 µgm-3) at a heavily trafficked London site?". *Atmospheric Environment* 41, 1960–1975

Chester, R. & Stoner, J. H. 1973. Pb in particulates from the lower atmosphere of the eastern Atlantic. *Nature* 245, 27–28.

Chimidza, S., Viksna, A., Lindgren, E.S., 2001. "EDXRF and TXRF analysis of aerosol particles and the mobile fraction of soil in Botswana". *X Ray Spectrometry* 30:301-307

Chow, J.C., 1995. "Measurement Methods to Determine Compliance with Ambient Air Quality Standards for Suspended Particles". *Journal of Air & Waste Management Association* 45: 320–382

Danalatos, D. And Glavas, S., 1999. Gas phase nitric acid, ammonia and related particulate matter at a Mediterranean coastal site, Patras, Greece,. *Atmospheric Environment* 33, 3417–3425

Danalatos, D. And Glavas, S., 1999. Gas phase nitric acid, ammonia and related particulate matter at a Mediterranean coastal site, Patras, Greece,. *Atmospheric Environment* 33, 3417–3425

Dentener, F., Carmichael, F., Zhang, Y., Lelieveld, J., and Crutzen, P., 1996. "Role of mineral aerosol as a reactive surface in the global troposphere". *Journal of Geophysical Research* 101, 22869–22889.

Dockery, D.W., and Pope, C.A., 1994. "Acute Respiratory Effects of Particulate Air Pollution", *Annual Review of Public Health*, 15, 107-132.

Dorling, S.R., Davies, T.D., and Pierce, C.E., 1992. "Cluster analysis: a technique for estimating the synoptic meteorological controls on air and precipitation chemistry-method and applications". *Atmospheric Environment* 26A (14), 2575-2581

Englert, N., 2004. "Fine particles and human health- a review of epidemiological studies", *Toxicology Letters* , 149, 235-242.

EPA 2008. EPA Positive Matrix Factorization (PMF) 3.0 Fundamentals & User Guide. U.S. Environmental Protection Agency Office of Research and Development Washington, DC 20460, EPA 600/R-08/108.

Finlayson, P.B., and Pitts, J.N., 1986. "Atmospheric Chemistry: Fundamentals and Experimental Techniques". New York: Wiley- Interscience

Ganor, E., Foner, H. A., Bingemer, H. G., Udisti, R., and I. Setter, 2000. "Biogenic sulfate generation in the Mediterranean Sea and its contribution to the sulfate anomaly in the aerosol over Israel and the Eastern Mediterranean". *Atmospheric Environment*, 34, 3453–3462

Ghio, A. J., Stonehuerner, J., Dailey, L. A. & Carter, J. D. 1999. Metals associated with both the water-soluble and insoluble fractions of an ambient air pollution particle catalyze an oxidative stress. *Inhalation Toxicology*, 11, 37-49.

Gildemeister, A. E., Hopke, P. K. & Kim, E. 2007. Sources of fine urban particulate matter in Detroit, MI. *Chemosphere*, 69, 1064-1074. Glavas, S., Kambezidis, H., and Danalatos, D., 1995. "Atmospheric Nitric Acid Concentrations in a Mediterranean Site, Patras, Greece", *Atmospheric Environment*, 29, 1849-1852.

Gleason, J. F., Sinha, A. & Howard, C. J. 1987. Kinetics of the gas-phase reaction $\text{HOSO}_2 + \text{O}_2 \rightarrow \text{HO}_2 + \text{SO}_3$. *Journal of Physical Chemistry*, 91, 719-724.

Gong, S. L., Barrie, L. A. & Blanchet, J. P. 1997. Modeling sea-salt aerosols in the atmosphere .1. Model development. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 102, 3805-3818.

Graf, H. F., Feichter, J. & Langmann, B. 1997. Volcanic sulfur emissions: Estimates of source strength and its contribution to the global sulfate distribution. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 102, 10727-10738.

Grossi, C. M. & Brimblecombe, P. 2002. The effect of atmospheric pollution on building materials. *Journal De Physique Iv*, 12, 197-210.

Güllü, H.G., Olmez, I., Aygun, S., Tuncel, G., 1998. "Atmospheric trace element concentrations over the eastern Mediterranean Sea: factors affecting temporal variability". *Journal of Geophysical Research*, 103, 21943-21954.

Han, L., Zhuang, G. , Cheng, S. , Li, J., 2007. "The mineral aerosol and its impact on urban pollution aerosols over Beijing, China". *Atmospheric Environment* 41, 7533–7546

Haywood, J. & Boucher, O. 2000. Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review. *Reviews of Geophysics*, 38, 513-543.

Herut, B., Nimmo, M., Medway, A., Chester, R., Krom, M.D., 2001. "Dry atmospheric inputs of trace metals at the Mediterranean coast of Israel (SE Mediterranean):sources and fluxes", *Atmospheric Environment*, 35, 803-813.

Hlavay, J., Polyak, K. & Wesemann, G. 1992. Particle-size distribution of mineral phases and metals in dusts collected at different workplaces. *Fresenius Journal of Analytical Chemistry*, 344, 319-321.

Hoffmann, T., Odum, J.R., Bowman, F., Collins, D., Klockow, D., Flagan, R.C., and Seinfeld, J.H., 1997. "Formation of organic aerosols from the oxidation of biogenic hydrocarbons". *Journal of Atmospheric Chemistry* 26, 189–222

Holynska, B., Ptasiński, J., Maenhaut, W., Anegarn, H.J., 1997. "Energy Dispersive X-Ray Fluorescence Spectrometer with Capillary Optics for the Chemical Analysis of Atmospheric Aerosols with High Time Resolution". *Journal of Aerosol Science*, 28 (4), 1455–1463

Intergovernmental Panel on Climate Change (2001), *Climate Change 2001: The Scientific Basis*, edited by J. T. Houghton et al., Cambridge Univ. Press, New York

Jacob, D.J., 2000. "Heterogeneous chemistry and tropospheric ozone", *Atmospheric Environment*, 34, 2131-2159.

Japar, S. M., Brachaczek, W. W., Gorse, R. A., Norbeck, J. M. & Pierson, W. R. 1986. The contribution of elemental carbon to the optical-properties of rural atmospheric aerosols. *Atmospheric Environment*, 20, 1281-1289.

Johnson, B.J., Huang, S.C., Lecave, M., Porterfield, M., 1994. "Seasonal trends for nitric acid, particulate nitrate and particulate sulfate concentrations at a southwestern US mountain site", *Atmospheric Environment*, 31, 1657-1666.

Kallos, G., Astitha, M., Katsafados, P., and Spyrou, C., 2007. Long-Range Transport of Anthropogenically and Naturally Produced Particulate Matter in the Mediterranean and North Atlantic: Current State of Knowledge, *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 46: 1230-1251

Karaca, M., Deniz, A., and Tayanç, M., 2000. "Cyclone Track Variability Over Turkey In Association With Regional Climate". *International Journal of Climatology* 20, 1225–1236

Karanasiou, A. A., Siskos, P. A. & Eleftheriadis, K. 2009. Assessment of source apportionment by Positive Matrix Factorization analysis on fine and coarse urban aerosol size fractions. *Atmospheric Environment*, 43, 3385-3395.

Karthikeyan, S., Joshi, U. M. & Balasubramanian, R. 2006. Microwave assisted sample preparation for determining water-soluble fraction of trace elements in urban airborne particulate matter: Evaluation of bioavailability. *Analytica Chimica Acta*, 576, 23-30.

Kiehl, J. T. & Rodhe, H. 1995. Modeling geographical and seasonal forcing due to aerosols.

Kim, E., Hopke, P. K. & Edgerton, E. S. 2003. Source identification of Atlanta aerosol by positive matrix factorization. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 53, 731-739.

Kindap, T. , Unal, A. , Chen, S.-H. , Hu, Y. , Odman, M.T. , Karaca, M., 2006 . "Long-range aerosol transport from Europe to Istanbul, Turkey". *Atmospheric Environment* 40, 3536–3547

Kocak, M. , Nimmo, M. , Kubilay, N. , Herut, B., 2004. "Spatio-temporal aerosol trace metal concentrations and sources in the Levantine Basin of the Eastern Mediterranean". *Atmospheric Environment* 38: 2133–2144

Koçak, M., Mihalopoulos, N., Kubilay, N., 2007. "Chemical composition of the fine and coarse fraction of aerosols in the northeastern Mediterranean". *Atmospheric Environment*, doi:10.1016/j.atmosenv.2007.05.011

Kostopoulou ve Jones (2007)

Kouvarakis, A., and Mihalopoulos, N., 2002. "Seasonal variation of dimethylsulfide in the gas phase and of methanesulfonate and non-sea salt sulfate in the aerosol phase in the Eastern Mediterranean Atmosphere". *Atmospheric Environment* 36, 929–938

Kouyoumdjian, H. and Saliba, N.A. 2005. "Ion concentrations of PM_{10-2.5} and PM_{2.5} aerosols over the Eastern Mediterranean region: seasonal variation and

source identification". *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 5, 13053 – 13073

Kouvarakis G, Bardouki H, Mihalopoulos N Sulfur budget above the Eastern Mediterranean: relative contribution of anthropogenic and biogenic sources *TELLUS B* 54 (3): 201-212 JUL 2002

Krug, E. C. & Frink, C. R. 1983. Acid-rain on acid soil - a new perspective. *Science*, 221, 520-525.

Kubilay, N., and Saydam, A.C., 1995. "Trace Elements in Atmospheric Particulates Over the Eastern Mediterranean; Concentrations, Sources and Temporal Variability". *Atmospheric Environment* 29(17), 2289-2300

Kuloglu, E. and Tuncel, G., 2005. "Size Distribution of Trace Elements and Major Ions in the Eastern Mediterranean Atmosphere". *Water, Air and Soil Pollution* 167, 221–241

Lambert, G., Cloarec, M. F. & Pennisi, M. 1988. Volcanic output of SO₂ and trace metals: A new approach. *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 52, 39-42.

Landsberger, S. and Creatchman, M., 1999. "Elemental Analysis of Airborne Particles". *Advances in Environmental, Industrial and Process Control Technologies*, Volume 1, Gordon and Breach Science Publishers, ISBN 90-5699-627-4

Latha, K.M., and Badarinath, K.V.S., 2004. "Correlation between black carbon aerosols, carbon monoxide and tropospheric ozone over a tropical urban site", *Atmospheric Research*

Lazardis M., K. Eleftheriadis, J. Smolik, I. Colbeck, G. Kallos, Y. Drossinos, V. Zdimas, Z. Vecera, N. Mihalopoulos, P. Mikuska C. Bryant, C. Housiadas, A. Spyridaki, Marina Astitha and V. Havranek., Dynamics of fine particles and photo-oxidants in the Eastern Mediterranean (SUB-AERO). *Atmospheric Environment*, 40 (32), 6214-6228 (2006)

Lee, J. H. & Hopke, P. K. 2006. Apportioning sources of PM_{2.5} in St. Louis, MO using speciation trends network data. *Atmospheric Environment*, 40, S360-S377.

Lelieveld, J., Berresheim, H., Borrmann, S., Crutzen, P.J., Dentener, F.J., Fischer, H., Feichter, J., Flatau, P.J., Heland, J., Holzinger, R., Kormann, R., Lawrence, M.G., Levin, Z., Markowicz, K.M., Mihalopoulos, N., Minikin, A., Ramanathan, V., Reus, M.D., Roelofs, G.J., Scheeren, H.A., Sciare, J., Schlager, H., Schultz, M., Siegmund, P., Steil, B., Stephanou, E.G., Stier, P., Traub, M., Warneke, C.,

Williams, J., and Ziereis, H., 2002. "Global Air Pollution Crossroads over the Mediterranean". *Science*, 298, 794–798.

Lelieveld, J., et al., 2002. "Global air pollution crossroads over the Mediterranean". *Science*, 298, 794–799.

Liao, H., Adams, P. J., Chung, S. H., Seinfeld, J. H., Mickley, L. J. & Jacob, D. J. 2003. Interactions between tropospheric chemistry and aerosols in a unified general circulation model. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 108.

Likens, G. E., Driscoll, C. T. & Buso, D. C. 1996. Long-term effects of acid rain: Response and recovery of a forest ecosystem. *Science*, 272, 244-246.

Lindgren vd., 1998;

Lindgren, E.S., Henriksson, D., Therning, P., Laursen, J., and Pind, N., 2006. "Possible Indicators for biomass burning in a small Swedish city studied by energy dispersive X-ray Fluorescence (EDXRF) spectrometry". *X-Ray Spectrometry*, 35, 19–26

Liu, W., Hopke, P. K. & Vancuren, R. A. 2003. Origins of fine aerosol mass in the western United States using positive matrix factorization. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 108.

Lopes, F., Appoloni, C.R., Nascimento, V.F, Melquides, F.L., Almeida, L.C., 2006. "Chemical Characterization of particulate matter suspended in the atmosphere by energy dispersive X-ray Fluorescence (EDXRF)". *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 270 (1), 43–46

Luria, M., Peleg, M., Sharf, G., Alper, D.S.T., Spitz, N., Ami, Y.B., Gawii, Z., Lifschitz, B., Yitzchaki, A., Seter, I., 1996. "Atmospheric sulfur over the east Mediterranean region". *Journal of Geophysical Research*, 101(D20), 25,917–25,930

Mamane, Y., Ganor, E., Donagi, A.E. Aerosol composition of urban and desert origin in the eastern Mediterranean. I. Individual particle analysis *Water, Air, and Soil Pollution VOL.14*, pp. 29-43 (1980)

Marcazzan, G.M., Ceriani, M., Vali, G., and Vecchi, R., 2004. "Composition, components and sources of fine aerosol fractions using multielemental EDXRF analysis". *X-Ray Spectrometry*, 33, 267–272

Marcazzan, G.M.B., 1998. "Application of X-Ray Analysis to the Study of Air Particle Pollution in Northern Italy" *X-Ray Spectrometry*, 27, 247-256

Margitan, j. J. 1984. Mechanism of the atmospheric oxidation of sulfur-dioxide - catalysis by hydroxyl radicals. *Journal of physical chemistry*, 88, 3314-3318.

Mateu, J., Forteza, R., Cerda, V., and Colomates, M., 1996. "Particle-Size Distribution and Long-Range Transport of Metals in Atmospheric Aerosols from the Alfabia Station (Majorca, Spain)", *Journal of Environmental Science and Health Part A-Environmental Science and Engineering & Toxic And Hazardous Substance Control*, 31 (1), 31-54

Mather, T.A., Oppenheimer, C., Allen, A.G., McGonigle, A.J.S., 2004. "Aerosol chemistry of emissions from three contrasting volcanoes in Italy". *Atmospheric Environment* 38, 5637-5649

Meng, Z., Dabdub, D. & Seinfeld, J. H. 1997. Chemical coupling between atmospheric ozone and particulate matter. *Science*, 277, 116-119.

Migon, C., and Caccia, J. L., 1990. "Separation of Anthropogenic and Natural Emissions of Particulate Heavy Metals in the Western Mediterranean Atmosphere", *Atmospheric Environment*, 24, 399

Molteni, F., Buizza, R., Palmer, T. N. & Petrolia, T. 1996. The ECMWF ensemble prediction system: Methodology and validation. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 122, 73-119.

Murphy, D.M., Thomson, D.S., and Mahoney, M.J., 1998. "In Situ Measurement of Organics, Meteoritic Material, Mercury, and Other Elements in Aerosols at 5 to 19 Kilometers", *Science*, 282, 1664-1669.

Natusch, D. F. S., Wallace, J. R. & Evans, C. A. 1974. Toxic trace-elements - preferential concentration in respirable particles. *Science*, 183, 202-204.

Nenes, A., Pandis, S. N. & Pilinis, C. 1999. Continued development and testing of a new thermodynamic aerosol module for urban and regional air quality models. *Atmospheric Environment*, 33, 1553-1560.

Paatero P., 1997. "Least squares formulation of robust non-negative factor analysis". *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems* 37 (1), 23-35

Paatero, P. & Tapper, U. 1993. Analysis of different modes of factor analysis as least squares fit problems. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 18, 183-194.

Paatero, P., and Hopke, P.K., 2003. "Discarding or downweighting High-Noise Variables in Factor Analytic Models". *Analytica Chimica Acta* 490, 277-289

Paatero, P., and Tapper, U., 1994. "Positive Matrix Factorization: A non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values". *Environmetrics*, 5, 111-126

Pandis, S. N. & Seinfeld, J. H. 1989. Sensitivity analysis of a chemical mechanism for aqueous-phase atmospheric chemistry. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 94, 1105-1126.

Pandis, S.N., Paulson, S.E., Seinfeld, J.H., and Flagan, R.C., 1991. "Aerosol formation in the photooxidation of isoprene and β -pinene". *Atmospheric Environment*, 21, 2275-2283

Pey, J., Querol X., Andrés Alastuey, Discriminating the regional and urban contributions in the North-Western Mediterranean: PM levels and composition, *Atmospheric Environment*, Volume 44, Issue 13, April 2010, Pages 1587-1596 (2010)

Pope, C. A. & Dockery, D. W. 2006. Health effects of fine particulate air pollution: Lines that connect. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 56, 709-742.

Pope, C. A. 2000. Review: Epidemiological basis for particulate air pollution health standards. *Aerosol Science and Technology*, 32, 4-14.

Pope, C. A., Bates, D. V. & Raizenne, M. E. 1995. Health-effects of particulate air-pollution - time for reassessment. *Environmental Health Perspectives*, 103, 472-480.

Pope, C. A., Schwartz, J. & Ransom, M. R. 1992. Daily mortality and PM10 pollution in Utah Valley. *Archives Environmental Health*, 47, 211-217.

Pöschl, U., 2005. "Atmospheric Aerosols: Composition, Transformation, Climate and Health Effects". *Atmospheric Chemistry International Edition* 44: 7520-7540

Priee, C., Panner, J., and Prather, M., 1997. "NO_x from lightning: 1. Global distribution based on lightning physics". *Journal of Geophysical Research* 102, 5929-5241

Querol, X., Alastruey, A., Ruiz, C.R., Artinano, B., Hansson, H.C., Harrison, R.M., Buringh, E., ten Brink, H.M., Lutz, M., Bruckmann, P., Straehl, P., Schneider, J., 2004. "Speciation and origin of PM10 and PM2.5 in selected European cities". *Atmospheric Environment* 38, 6,547-6,555

Ramanathan, V., Crutzen, P.J., Kiehl, J.T., Rosenfeld, D., 2001. "Aerosols, Climate, and Hydrological Cycle". *Science* 294, 2119-2124

Reff, A., Elberly, S., and Bhave, P.V., 2007. "Receptor Modelling of Ambient Particulate Matter Data Using Positive Matrix Factorization: Review of Existing Methods". *Journal of Air and Waste Management Association* 57, 146-154

Reimann, C. & DE Caritat, P. 2005. Distinguishing between natural and anthropogenic sources for elements in the environment: regional geochemical surveys versus enrichment factors. *Science of the Total Environment*, 337, 91-107.

Rodríguez, S., Alastuey, A., Alonso-Préz, S., Querol, X., Cuevas, E., Abreu-Afonso, J., Viana, M., Pandolfi, M., De La Rosa, J. Transport of desert dust mixed with north african industrial pollutants in the subtropical saharan air layer. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 11 (3), pp. 8841-8892 (2011)

Russell, A. G., Cass, G. R. & Seinfeld, J. H. 1986. On some aspects of nighttime atmospheric chemistry. *Environmental Science & Technology*, 20, 1167-1172.

Russell, L.M., Singh, E.G., 2006. "Submicron salt particle production in bubble bursting". *Aerosol Science and Technology* 40 (9), 664–671.

Saliba, N.A., Kouyoumdjiana, H., Roumie, M., 2007. "Effect of local and long-range transport emissions on the elemental composition of PM10–2.5 and PM2.5 in Beirut". *Atmospheric Environment* 41, 6497–6509

Samet J. M., Dominici F., Curriero, F. C., Coursac, I. & Zeger, S. L. 2000. Fine particulate air pollution and mortality in 20 US Cities, 1987-1994. *New England Journal of Medicine*, 343, 1742-1749.

Schwartz, J., Dockery, D. W. & Neas, L. M. 1996. Is daily mortality associated specifically with fine particles? *Journal of the Air and Waste Management Association* 46, 927–939.

Sciare, J., Bardouki, H., Moulin, C., Mihalopoulos, N., 2003. "Aerosol sources and their contribution to the chemical composition of aerosols in the Eastern Mediterranean Sea during summertime". *Atmospheric Chemistry and Physics* 3, 291–302.

Seinfeld, J. H. & Pandis, S. N. 2006. *Atmospheric Chemistry and Physics - From Air Pollution to Climate Change* (2nd Edition). John Wiley & Sons.

Shaka, H., and Saliba, N.A., 2004. "Concentration measurements and chemical composition of PM10-2.5 and PM2.5 at a coastal site in Beirut, Lebanon". *Atmospheric Environment* 38, 523–531

Sharma, S., Barrie, L.A., Plummer, D., McConnel, J.C., Brickell, P.C., Levasseur, M., Gosselin, M., and Bates, T.S., 1999. "Flux Estimation of Oceanic Dimethyl Sulphide around North America". *Journal of Geophysical Research* 104 (17), 21,327–21,342

Shuvayeva, O.V., Koutzenogii, K.P., Baryshev, V.B., Rezchikov, V.I., Smirnova, A.I., Ivanova, L.D., Sukchorukov, F.V., 1998. "Multi-elemental characterization of the atmospheric aerosols in frames of interlaboratory experiment". *Atmospheric Research* 46, 349–359

Singh, M., Jaques, P. A. & Siotas, C. 2002. Size distribution and diurnal characteristics of particle-bound metals in source and receptor sites of the Los Angeles Basin. *Atmospheric Environment*, 36, 1675-1689.

Skjoth, C.A., Sommer, J., Stach, A., Smith, M., and Brandt, J., 2007. "The long-range transport of birch (*Betula*) pollen from Poland and Germany causes significant pre-season concentrations in Denmark". *Clinical and Experimental Allergy*, 37, 1204–1212

Sloss, L.L., and Smith, I.M., 2000. "PM10 and PM2.5: International perspective". *Fuel Processing Technology* 65–66, 127–141

Song, C. H. & Carmichael, G. R. 1999. The aging process of naturally emitted aerosol (sea-salt and mineral aerosol) during long range transport. *Atmospheric Environment*, 33, 2203-2218.

Stockwell, W.R., and Calvert, J.G., 1983. "The mechanism of HO-SO₂ reaction". *Atmospheric Environment* 17, 2231-2235

Stoiber, R. E., Williams, S. N. & Heubert, B. 1987. Annual contribution of sulfur dioxide to the atmosphere by volcanoes. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 33, 1-8.

Tabor, K., Gutzwiller, L., Rossi, M.J., 1994. "Heterogenous chemical kinetics of NO₂ on amorphous-carbon at ambient temperature". *Journal of Physical Chemistry* 98(24), 6172-6186

Tamamura, S., Sato, T. , Ota, Y. , Wang, X., Tang, N. , Hayakawa, K., 2007. "Long-range transport of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) from the eastern Asian continent to Kanazawa, Japan with Asian dust". *Atmospheric Environment* 41, 2580–2593

Tidblad, J. & Kucera, V. 1998. Materials damage. In: Fenger, J., Hertel, O., Palmgren, F. (Eds.), *Urban Air Pollution, European Aspects*. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 343-361.

Todd, M. C., Karam, D. B., Cavazos, C., Bouet, C., Heinold, B., Baldasano, J. M., Cautenet, G., Koren, I., Perez, C., Solmon, F., Tegen, I., Tulet, P., Washington, R. & Zakey A. 2008. Quantifying uncertainty in estimates of mineral dust flux: An

intercomparison of model performance over the Bodele Depression, northern Chad. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 113.

Tsitouridou, R., Voutsas, D., Kouimtzis, T., 2003. Ionic composition of PM10 in the area of Thessaloniki, Greece. *Chemosphere* 52, 883–891.

Tuncer, B., Bayar, B., Yesilyurt, C., Tuncel, G., 2001. "Ionic Composition of Precipitation at the Central Anatolia". *Atmospheric Environment* 35, 5,989–6,002

Uzun, B., 2000. "Investigation of Biogenic Sulfur in East Mediterranean Basin". M.Sc. Thesis, Middle East Technical University, Environmental Engineering Department, Ankara, Turkey

Viana, M., Kullbusch, T. A. J., Querol, X., Alastuey, A., Harrison, R. M., Hopke, P. K., Winiwarter, W., Vallius, A., Szidat, S., Prevot, A. S. H., Heuglin, C., Bloemen, H., Wahlin, P., Vecchi, R., Miranda, A. I., Kasper-Giebl, A., Maenhaut, W. & Hitznerberger, R. 2008a. Source apportionment of particulate matter in Europe: A review of methods and results. *Journal of Aerosol Science*, 39, 827-849.

Wallace, J.M., and Hobbs, P.V., 2006. "Atmospheric Science: An Introductory Survey". 2nd Edition, Elsevier Inc., California, USA

Wang, Y., Zhuang, G., Zhang, X., et al., 2006. "The ion chemistry, seasonal cycle, and sources of PM2.5 and TSP aerosol in Shanghai". *Atmospheric Environment* 40 (16), 2935-2952

Watson, J.G., Chen, L.W.A., Chow, J.C., Doraiswamy, P., Lowenthal, D.H., 2002. "Source Apportionment: Findings from the U.S. Supersites Program". *Journal of Air & Waste Management Association* 58, 265–288

Wehrens, R., Putter, H., Buydens, L.M.C, 2000. The bootstrap: a tutorial. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 54, 35-52

Xie, Y. L., Hopke, P. K., Paatero, P., Barrie, L. A. & Li, S. M. 1999. Identification of source nature and seasonal variations of arctic aerosol by positive matrix factorization. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 56, 249-260

Yatin, M., Tuncel, S., Aras, N.K., Olmez, I., Aygun, S., Tuncel, G., 2000. "Atmospheric trace elements in Ankara, Turkey:1. factors affecting chemical composition of fine particles". *Atmospheric Environment* 34, 1305–1318

Yu, S., Saxena, V.K., and Zhao, Z., 2001. "A comparison of signals of regional aerosol-induced forcing in eastern China and the southeastern United States". *Geophysical Research Letters* 28, 713–716
Zender v.d., 2004

Zerefos, C., Ganev, K., Kourtidis, K., Tzortsiou, M., Vasaras, A., Syrakov, E., 2000. "On the origin of SO₂ above Northern Greece". *Geophysical Research Letters* 27, 365–368. Zhang vd. 1992

Zhao, W., and Hopke, P.K., 2006. "Source Investigation for PM_{2.5} in Indianapolis". In. *Aerosol Science and Technology* 40, 898–909

Zhuang, G., Yi, Z., Duce, R., and Brown, P.R., 1992. "Link between Iron and Sulphur Cycles Suggested by Detection of Fe (II) in Remote Marine Aerosols". *Nature* 355, 537–539

Zoller, W. H., Gladney, E. S. & Duce, R. A. 1974 Atmospheric concentrations and source

EK - 1. Bütün istasyonlarda aerosol örneklerinin toplanmasında kullanılan kılavuz

FİLTRE DEĞİŞTİRME İÇİN YAPILACAKLAR		Yaptığının karşısına işaret koy ve sırayla git
1	Eline eldiveni giy.	
2	Pompanın ekranında sayıyı oku ve Filtre değiştirme formunda 4 numaranın karşısına yaz.	
3	B tuşuna bas pompayı durdur.	
4	A düğmesine bas ve TIME değerini oku, Filtre değiştirme formunda 5 numaranın karşısına yaz.	
5	B düğmesine bas ekrandaki sayıyı sıfırla ve hepsinin sıfır olduğundan emin ol.	
6	A düğmesine bas TOTAL VOLUME değerini oku ve Filtre değiştirme formunda 6 numaranın karşısına yaz.	
7	B düğmesine bas ekrandaki sayıyı sıfırla ve hepsinin sıfır olduğundan emin ol.	
8	A düğmesine bas tekrar bas ve FLOW un yanındaki ışığın yandığından emin ol.	
9	Filtre değiştirme formunda 7 numaranın karşısına bugünün tarihini yaz	
10	Saatine bak ve Filtre değiştirme formunda 8 numaranın karşısına yaz.	
11	Hava bulutlu ise Filtre değiştirme formunda 9 numaranın karşısına yaz.	
12	Hava yağmurlu ise Filtre değiştirme formunda 10 numaranın karşısına yaz.	
13	Hava rüzgârlı ise Filtre değiştirme formunda 11 numaranın karşısına yaz.	
14	Siyah boruyu yerinden çıkar kulübenin içine getir.	
15	Siyah borudan filtre tutucuyu çıkart.	
16	Filtreleri, filtre tutucudan çıkart	
17	Filtreleri Siyah olanı kap numarası F ile bitene. Beyaz olanı kap numarası C ile bitene olacak şekilde kaplarına koy. Sonra Strech film ile filtreleri sar.	
18	Az önce doldurduğun Filtre değiştirme formunu ve filtre kaplarını poşete koy ve gönderilecek filtrelerin yanına koy.	
19	Yeni bir filtre ve yeni bir filtre değiştirme formu al.	
20	Yeni filtrenin üzerindeki sayıyı yeni Filtre değiştirme formunda yerine yaz.	
21	Filtreleri kaplarından çıkar ve sırayla alttaki yere SİYAH kenarlı filtreyi, BEYAZ kenarlı filtreyi üstteki yere gelecek şekilde yerlerine koy. Unutma her iki filtrenin de parlak tarafı üstte olacak.	
22	Filtre tutucuyu siyah borunun içine koy	
23	Siyah borunun kapağını kapat.	
24	Beyaz hortumu filtre tutucuya tak.	
25	B düğmesine bas, pompayı çalıştır.	
26	Elinle siyah borunun altındaki deliği kapat ve ekranda sıfırı görene kadar bekle.	
27	Siyah boruyu kulübenin dışındaki yerine tak.	
28	Pompanın ekrandaki sayıyı 16,7 e ayarla.	
29	Yeni Filtre değiştirme formunda 1 numaranın karşısına bugünün tarihini yaz.	
30	Saatine bak ve Filtre değiştirme formunda 2 numaranın karşısına saati yaz.	
31	Filtre değiştirme formunda 3 numaranın karşısına 16,7 yaz	
32	Artık işin bitti.	

Ek 1. Antalya gnlk Aerosol Konsantrasyonları
(konsantrasyon deęerleri ng m⁻³ cinsindedir)

Blm 1 PM_{2.5-10} fraksiyonu

			Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Mn	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	SO4	NO3			
	1	201	1622,3														14,4	0,6								
1	0 8 0		7	634,39	519,20	1717,01	184,02	290,08	1689,75	30,59	0,69	2,20	6,73	212,74	1,98	31,51	6	2	7,35	8,51	887,77	184,02	124,15			
	1	201	2805,3														18,3	0,4	11,1		1005,3					
2	1 8 0		9	149,01	515,70	1792,99	733,53	223,32	1512,19	22,34	6,32	2,41	9,50	262,50	1,63	4,03	4	1	4	5,94	2	733,53	315,82			
	1	201	1631,6																		1021,6					
3	2 8 0		6	453,21	371,04	1865,16	767,48	343,92	2021,65	27,20	2,25	0,55	6,45	314,53	1,48	15,37	4,22	6	5,79	7,36	7	767,48	477,09			
	1	201	1319,2																		1244,4					
4	4 8 0		4	688,49	489,01	1555,36	162,30	467,05	2215,06	22,71	4,61	1,28	5,49	185,67	1,89		4,45	7	8,95	6,44	7	162,30	215,88			
	1	201	1512,2																		1131,0					
5	5 8 0		0	572,84	594,86	1984,42	249,86	269,29	1698,19	30,72	1,12	2,55	7,04	189,13	1,88	9,46	7,95	5	4,18	6,09	3	249,86	189,38			
	2	201	2156,8																		18,6	0,0				
6	3 8 0		0	401,42	494,81	1437,97	425,59	241,80	1164,43	21,12	5,15	1,10	9,95	197,47	2,45		8	6	8,77	7,94	625,92	425,59	250,39			
	2	201																			12,4	0,0	17,0	11,5		
7	4 8 0		469,74	241,29	615,51	1951,81	829,27	373,21	2326,35	31,58	7,13	3,45	5,65	162,81	3,13	1,72	9	3	3	3	133,88	829,27	355,21			
	2	201	1328,1																		0,4					
8	5 8 0		5	265,83	423,55	1075,47	343,62	346,83	1429,51	26,67	9,74	2,90	5,57	184,55	4,62		9,04	0	3,62		472,87	343,62	153,61			
	2	201	1176,9				3292,5														27,4	0,4	12,3	3292,5		
9	6 8 0		6	420,12	895,31	2992,29	7	346,42	2327,61	41,09	9,58	3,76	7,67	424,36	5,11	0,62	3	3	7,05	2	444,76	7	919,33			
	2	201	1357,0				1512,3														17,2	0,3	14,5	14,6	1512,3	
10	8 8 0		0	406,82	827,11	3162,72	0	302,26	2954,62	34,55	8,72	6,11	0	254,98	4,23		0	5	8	3	297,79	0	319,01			
	2	201	1217,3				7322,6														15,1	0,5	10,8	7322,6	1488,7	
11	9 8 0		7	300,15	557,61	1948,27	5	319,70	1383,05	19,41	5,53	2,75	7,62	152,30	2,06	0,52	9	8	7,19	2	334,08	5	2			
	201		1950,7																		0,0	13,1	1722,4			
12	4 9 0		8	603,82	523,52	1393,27	720,01	337,51	2525,51	32,81	2,04	4,03	5,90	289,78	1,31	26,52	5,11	2	0	8,50	2	720,01	487,11			
	201		2002,5	1003,1	1324,9																0,2	17,3	13,2	1987,9		
13	5 9 0		2	6	0	3056,40	551,05	627,87	3839,29	66,35	2,70	7,16	3	546,79	1,77		9,34	9	7	2	4	551,05	272,68			
	201		2759,8		1117,3		1803,0														21,3	0,3	23,3	1698,8	1803,0	1483,4
14	6 9 0		8	931,09	4	3869,32	1	348,86	2244,86	47,39	5,71	2,88	8,63	458,37	2,10		1	4	4		7	1	8			
	201		1895,0		1020,8																15,2	0,3				
15	7 9 0		0	502,43	8	3010,77	845,08	456,95	2843,31	59,84	2,89	5,30	1	441,37	1,89	4,78	8,84	3	9,85	8,64	569,71	845,08	382,34			
	201		1606,7	1054,3	1315,2		1349,9														18,5	0,0	36,7	1349,9		
16	8 9 0		1	4	0	5491,60	4	524,93	4178,20	82,59	7,35	8,85	2	776,34	2,20	9,59	5	3	9	9,84	484,09	4	460,74			
	1	201	2145,8		1087,8																10,4	0,6	23,7	16,2	1144,6	
17	0 9 0		5	947,38	7	5336,46	768,52	429,03	3436,22	71,09	7,46	5,20	9,16	403,83	3,38	19,01	2	1	5	4	9	768,52	493,90			
18	1 9 201		1569,7	672,35	1030,8	2383,13	832,58	335,05	2803,33	47,86	4,50	3,09	9,14	490,46	2,66	20,21	15,7	0,0	19,0	12,6	879,05	832,58	517,65			

		0	0	0															6	6						
		1	1	201																0,2	11,8					
41		1	0	0	239,11	136,39	237,12	575,60	61,12	92,47	2009,81	10,33	1,66	5,41	6,62	106,25	1,18	7,04	4,09	0	0			61,12		
		1	1	201	1714,8															0,2						
42		2	0	0	8	444,70	250,59	1200,11	167,54	182,60	2222,35	16,95	1,99	4,90	6,62	208,31	0,54	5,16	3,81	1	7,59	3,24		167,54		
		1	1	201	2626,1															0,1				1229,1		
43		3	0	0	9	968,51	645,40	1188,13	7	276,55	1906,84	31,80	2,87	4,98	9,96	297,37	0,68	0,16	6,95	2	9,09			7		
		1	1	201	1820,6															0,0						
44		4	0	0	7	196,28	298,04	1145,54	139,89	212,76	1405,49	22,13	2,07	3,13	3,85	217,95	0,98	0,16	3,81	1	5,64	0,66		139,89		
		1	1	201	1329,8															15,8	0,0					
45		5	0	0	323,07	8	613,99	1718,68	307,00	446,05	852,16	6,14	1,95	59,56	4,33	42,97		1,00	5	5	9,00			307,00		
		1	1	201	1223,9															0,1						
46		6	0	0	6	191,05	66,97	197,57	100,77	52,26	412,99	4,56	0,30	0,32		33,54	0,21		2,13	1	3,51			100,77		
		1	1	201																0,2						
47		7	0	0	299,71		82,90	218,54	519,85	70,30	363,49	6,24	0,70	0,45	1,76	78,98	0,62	0,93	0,54	4	5,48			519,85		
		1	1	201					1955,6											0,1	10,3				1955,6	
48		8	0	0	80,99	182,46	226,11	567,56	2	175,52	1573,14	12,63	0,77	2,82	3,07	165,60	1,53		4,70	4	5	1,48		2		
		1	1	201																0,1						
49		9	0	0	237,99		135,97	399,46	176,66	99,24	884,93	7,60	0,23	0,44	3,30	89,58	0,67	1,04	3,41	4	3,21	5,47		176,66		
		2	1	201																0,1						
50		0	0	0	336,14	90,00	114,09	83,11	342,33	76,70	670,36	8,38	0,67	0,43	1,57	96,03	1,10		3,45	9	5,45	7,47		342,33		
		2	1	201	2753,4															0,0						
51		7	0	0	0	361,35	255,06	834,80	297,52	107,22	844,47	12,42	0,51	1,09	1,21	139,17	0,61		0,68	8	2,06	6,32		297,52		
		2	1	201																0,0						
52		8	0	0	656,21	168,36	126,41	576,48	235,18	32,34	204,13	4,08	0,33	0,55	1,37	58,79	0,11	1,57	2,61	3	2,08			235,18		
		1	1	201																0,2						
53		1	2	0	289,35	723,38	765,83	2069,50	31,93	334,25		6,37	0,55	35,63	4,89			9,66	1,97	1	2,79			31,93		
		1	1	201																0,4						
54		2	2	0	121,51		94,63	328,58	370,73	50,89	839,01	5,62	0,08	0,74	0,26	81,33	0,14		5,21	7	1,00	0,61		370,73		
		1	1	201																1,5						
55		3	2	0	142,72	155,49	195,20	607,81	583,70	86,87	1189,59	12,02	1,77	1,88	6,48	154,61	0,42		6,93	8	2,01			583,70		
		1	1	201					2279,3											0,3		10,2			2279,3	
56		4	2	0	840,72		86,09	329,72	7	33,48	442,35	6,04	1,53		1,01	54,59	0,42	0,53	4,21	0	3,84	7		7		
		1	1	201																0,0			1443,3			
57		3	2	1	897,57	141,04	147,30	650,95	208,10	23,17	716,33	7,80	0,36		1,22	91,32	0,52	3,29	5,03	4	1,84	3,02	2	208,10	204,82	
		1	1	201																0,0						
58		4	2	1	951,44	195,44	69,98	164,15	206,57	34,31	489,63	2,42	0,35	0,50	0,72	33,55	0,11	2,65	9,15	5	2,33	1,13	853,50	206,57	129,96	
		1	1	201																0,0						
59		5	2	1	509,21	207,21	52,36	202,30	163,75	29,47	930,24	3,24	0,31	0,45	1,64	41,70			0,37	3	2,96	3,79	845,22	163,75	178,61	
		1	1	201																0,1			1007,0			
60		6	2	1	625,66		57,77	206,85	133,39	38,85	685,38	2,73	0,72	1,37		24,02	0,11	0,34	3,06	1	0,62	4,53	9	133,39	116,49	
		1	1	201	4226,4															0,0						
61		7	2	1	8	177,18	105,09	310,60	370,81	60,85	369,32	5,37	0,19		0,42	27,56			1,43	3	0,73		569,17	370,81	82,91	
62		1	2	201	542,11	131,02	36,61	135,20	249,18	25,95	285,38	1,63	0,34	0,45	1,19	12,57			1,86	0,1	2,69		454,54	249,18	67,79	

	8	1																0							
	2	201	1109,3															0,0		1418,1					
63	2	2	1	7	76,38	73,86	235,14	291,42	63,87	1070,92	3,82	0,46	1,20	2,60	30,59	0,38	0,77	0,73	8	1,10	5,33	5	291,42	113,96	
	2	201	3929,4															0,0		9703,4					
64	3	2	1	2	89,49	151,63	565,76	20,91	67,91	562,39	5,74	0,16		0,23	38,25	0,20		2,31	3	0,96	1,74	5	20,91	4,35	
	2	201	2406,6															0,0		3430,5					
65	4	2	1	8	422,25	45,06	143,01	130,33	63,04	336,03	1,49	0,31		0,88	2,48			5,85	1,33	4	0,49	2	130,33	18,66	
	2	201																0,0							
66	5	2	1	367,16	64,85	25,19	86,21	82,62	17,13	493,54	2,41	0,19	0,48	0,68	4,70	0,15		1,86	5	0,57		864,31	82,62	96,89	
	2	201																0,7							
67	7	2	1	156,36		45,39	158,17	391,72	27,81	460,33	2,52	0,83	0,23	1,74	23,21			3,81	4	1,84		716,56	391,72	145,30	
	2	201																0,2							
68	8	2	1	15,20	87,29	89,26	282,31	112,59	23,38	1036,61	5,95	0,24	2,09	0,79	28,04			1,61	1,70	6	2,05	3,75	90,53	112,59	51,67
	201																	0,1							
69	1	3	1	170,65	97,19	79,12	302,39	155,82	25,63	1233,76	1,08	0,69	1,44	1,20	43,55	0,64		3,15	6	3,52		363,76	155,82	137,36	
	201																	0,6							
70	3	3	1	385,11		140,56	556,80	467,46	54,28	770,03	10,20	1,61		1,52	39,31	0,74		7,37	0	3,05	5,46	7	467,46	70,40	
	201																	0,3		10,6	12,6				
71	4	3	1	120,25	320,09	194,19	657,47	527,02	35,19	1411,90	12,33	2,05	1,90	0,48	35,49			0,83	3,48	7	6	7	133,44	527,02	144,53
	201																	10,9		0,3	15,7				
72	5	3	1	71,98	139,26	204,78	570,06	221,97	70,51	1913,36	12,34	2,09	1,04	4,22	120,61	1,58		7,01	2	7	6,45	2	385,30	221,97	97,51
	201																	0,3							
73	6	3	1	156,10	566,08	425,28	1534,44	620,49	70,79	2598,89	28,13	2,03	6,10	3,83	115,57	0,55		6,90	8	1,27	7,78	167,67	620,49	242,72	
	201																	0,2							
74	7	3	1	115,34	484,24	757,43	1975,88	286,01	111,39	2962,49	47,40	1,29	3,40	3,62	66,73	0,58		2,58	4	6,33	0,50	206,99	286,01	134,51	
	201							1422,5										0,3							
75	0	3	1	326,78	327,91	202,72	905,78	2	161,55	1338,41	12,20	0,88	1,63	1,19	136,00	1,05		3,51	6	1,11	5,15	102,80	2	181,92	
	201					1384,4	1324,6								11,0			0,3							
76	1	3	1	68,97	423,16	3	825,44	8	176,72	1498,28	59,14	1,16	4,16	6	149,06	0,27		6,72	2	3,13	9,81	113,09	8	105,12	
	201																	0,1							
77	2	3	1	216,37	156,42	115,44	492,78	274,45	56,48	714,67	4,44	1,28	1,79	0,58	78,41			3,46	6,18	0	1,53	0,23	498,18	274,45	101,49
	201																	0,2							
78	3	3	1	27,36	212,75	145,10	459,08	461,15	58,43	1051,26	6,99	1,09	3,61	0,09	67,27	0,31		2,45	7,23	3	3,66		62,75	461,15	174,12
	201																	0,3							
79	4	3	1	518,41	309,41	102,02	441,57	340,46	96,11	361,11	3,99	1,24	0,37	0,97	25,65	0,27		4,08	8	2,33	1,40	8	340,46	83,46	
	201																	0,0							
80	5	3	1	149,89		78,58	247,16	252,05	69,67	558,59	4,97	0,97		1,49	8,02	0,60	0,84	4,55	6	1,50	4,15	282,96	252,05	63,43	
	201																	0,2							
81	6	3	1	462,72	179,59	95,59	331,93	669,12	85,11	701,99	5,35	0,70	0,79	1,51	69,47			2,80	3,04	0	2,88		857,68	669,12	312,09
	201			1613,8														0,0		27,9	1879,4				
82	4	4	1	7		74,87	306,62	52,61	72,63	397,72	2,45	1,41						7,58	9	0,52	5	9	52,61	40,68	
	201			3286,2														0,1							
83	0	4	1	5	408,61	227,04	655,24	775,88	115,79	1115,08	11,71	1,80	2,51	1,81	102,61	0,56	3,29	2,60	5	4,83	3,42	2	775,88	470,46	
84	2	4	201	928,23	278,07	144,82	513,01	306,70	84,54	707,68	8,80	1,60	0,44	1,34	70,72	0,06		3,22	0,0	1,94		1718,7	306,70	145,72	

	1	1															7	3						
	2	201															0,3							
85	4	4	1	119,80		168,59	660,84	535,40	71,86	595,38	10,59	2,97	0,66	2,51	70,14	0,75	1,86	7,99	6	1,20	130,40	535,40	277,09	
	2	201																	0,1					
86	5	4	1	62,91		197,12	791,02	43,09	52,51	977,71	14,00	1,00	1,64	4,19	54,31			3,86	4	1,66	6,93	113,40	43,09	26,57
	2	201																	0,0					
87	7	4	1	169,44	580,59	606,47	1931,89	524,52	208,89	673,80	32,13	1,48	2,72	6,52	242,83	0,90	1,60	2,16	6	4,68	5,86	405,04	524,52	590,46
	2	201																	0,1		1214,0			
88	8	4	1	734,28	180,20	198,17	657,99	188,78	100,56	648,19	12,34	0,23	0,66	2,42	77,54	0,17		2,93	3	0,92	4,64	8	188,78	72,90
		201				1201,1		2381,7											0,2				2381,7	1111,6
89	3	5	1	151,56	674,94	2	3761,37	4	189,73	1955,47	71,60	0,74	1,66	6,30	426,92	0,78		2,12	2	6,14	7,04	241,17	4	2
		201												13,2				10,5	0,2					
90	4	5	1	608,67	491,48	830,33	2653,27	448,20	315,58	2620,37	42,94	2,34	5,05	1	125,54	1,48		8	4	5,06	8,07	994,32	448,20	495,90
		201																	0,0					
91	7	5	1	303,89	424,38	458,99	1391,67	693,54	123,67	1293,14	27,14	1,72	0,82	5,86	153,60	0,96	5,83	2,78	9	8,26	4,27	615,67	693,54	276,90
	1	201																	0,4					
92	0	5	1	454,50	526,74	261,79	946,07	869,45	177,02	1310,42	11,18	1,70	5,30	6,59	76,58	0,87		3,99	9	1,31	4,98	824,21	869,45	450,97
		201						1130,5											0,2				1130,5	
93	1	5	1	431,26	417,40	356,87	1308,86	8	122,63	680,85	18,86	2,77	1,66	5,87	70,49	1,26		4,82	2	2,17	6,88	855,74	8	481,38
	1	201																	0,2					
94	2	5	1	360,11	440,01	321,76	764,51	400,68	169,20	1504,90	15,47	4,31	3,67	3,58	101,72	0,01	0,17	4,67	0	3,54	6,75	788,31	400,68	191,78
	1	201						1013,5											0,3				1013,5	
95	3	5	1	381,92	301,74	289,83	992,75	9	147,71	1097,46	11,05	2,55	1,82	7,43	114,88	0,30	7,30	2,34	2	3,66	4,00	526,04	9	288,26
	1	201		1352,8				5076,4											0,0			1806,3	5076,4	
96	4	5	1	4		180,72	712,44	6	123,46	553,97	12,65	4,46	0,86	1,92	57,43	0,46	0,68	1,42	7	2,23	6,50	1	6	753,72
	1	201																	0,1					
97	7	5	1	479,21	196,78	286,15	806,72	526,80	107,09	741,62	14,77	6,39	1,28	0,62	129,93	0,41		1,10	6	3,09	3,33	759,48	526,80	96,02
	1	201																	0,1					
98	8	5	1	470,81	139,85	275,00	757,80	384,44	77,30	770,46	12,20	2,99	0,60	2,20	59,70	0,81		7,23	8	3,67	4,89	987,62	384,44	73,57
	1	201																	0,2			2119,7		
99	9	5	1	981,09	619,33	312,36	1625,50	252,20	151,03	1867,28	22,72	1,50	2,54	7,25	93,08	1,76		6,66	4	3,49	6,59	2	252,20	86,61
10	2	201		1153,0															0,1			1306,1		
0	0	5	1	1	415,83	272,38	1013,22	137,82	73,44	1448,23	17,05	1,38	0,76	3,73	122,92	0,19	1,41	2,65	8	6,12	4,74	6	137,82	105,76
10	2	201																	0,1			1178,7		
1	1	5	1	363,10	212,49	262,11	1018,52	310,60	81,00	1017,38	15,50	1,51	0,52	2,25	79,07	0,11		1,59	2	1,66		3	310,60	277,15
10	2	201																	0,3			1632,7		
2	2	5	1	751,73	489,20	299,31	1222,70	258,15	125,54	1876,67	21,84	2,72	2,20	4,16	147,71	0,18	1,96	1,63	5	7,82	3,63	0	258,15	274,93
10	2	201																	0,3					
3	3	5	1	284,64	460,62	535,15	1031,01	107,91	181,86	2037,14	40,14	2,97	2,06	6,58	178,25	0,86	0,40	5,05	1	3,68	6,80	383,97	107,91	98,65
10		201																	0,1			2192,1		
4	3	6	1	692,29	120,85	121,81	636,52	364,41	45,71	692,75	10,80	0,83	6,44	2,05	87,67	0,13	1,83	2,70	0	2,11	4,63	1	364,41	123,94
10		201																	0,2					
5	4	6	1	399,79	339,78	204,85	827,06	132,68	80,39	1313,49	15,40	1,06	7,92	4,62	151,08	1,06		3,07	1	2,57		972,96	132,68	80,19
10	5	6	201	697,29	174,86	278,68	1442,44	1981,7	70,11	749,36	15,07	1,54	2,23	5,41	194,51	0,69	2,73	2,51	0,1	1,45	2,59	2090,9	1981,7	1075,9

6		1					9												8		5		9		6
10		201	1137,8																0,1		1700,2				
7	6	6	1	5	400,61	701,08	3616,03	77,52	187,79	1160,77	50,47	3,60	1,89	5,65	405,80	0,51		0,73	3	7,26	2,52	3	77,52	29,64	
10		201						1760,1											0,3		1159,5	1760,1			
8	7	6	1	471,08	244,40	101,40	1907,76	8	151,69	876,85	34,16	2,41	0,65	7,06	246,94	1,72	4,87	5,87	5	5,25		9	8	726,37	
10		201																	0,2		1512,0				
9	8	6	1	268,26		131,61	795,49	161,17	64,42	868,63	3,34	0,86	0,68	2,57	159,48	0,19	4,97	5,78	5	2,82	3,83	7	161,17	57,83	
11		201																	0,1		1136,1				
0	9	6	1	301,59	67,80	160,59	733,38	453,78	60,46	568,03	11,54	0,87	1,17	4,65	40,92	2,19		7,18	9	2,49	2,23	5	453,78	139,08	
11	1	201						1622,0											0,2		1773,8	1622,0			
1	0	6	1	542,37	272,33	149,21	578,31	5	65,06	580,74	10,39	0,76	0,12	3,75	118,43	0,47	8,42	3,60	4	0,61		7	5	416,30	
11	1	201																	0,0		1675,0				
2	1	6	1	502,85		49,85	515,67	53,28	49,46	745,07	10,20	0,28	0,97	4,54	120,83		5,30	1,06	7	1,06		6	53,28	12,76	
11	1	201																	0,0		1254,5				
3	2	6	1	327,75	271,72	231,01	989,47	171,59	87,09	835,07	21,68	0,57	3,03	4,36	198,66	1,08		6,57	4	3,77		8	171,59	60,36	
11	1	201																	0,1						
4	4	6	1	438,04		156,60	602,82	253,83	52,40	345,51	12,21	0,94	0,44	2,96	103,91		2,59	3,63	4	2,51	1,92	959,54	253,83	87,73	
11	1	201																	0,1						
5	5	6	1	437,49		171,82	585,99	214,24	88,27	438,35	9,06	0,81	0,40	2,40	99,54	0,24	11,14	6,07	9	1,83	2,18	585,87	214,24	50,86	
11	1	201																	0,2						
6	6	6	1	306,43	123,61	195,31	812,83	449,74	96,05	1191,77	12,77	1,34	1,94	1,49	57,62	0,92		3,57	8	4,96	0,78	427,67	449,74	288,57	
11	1	201																	0,1						
7	7	6	1	584,39	352,99	313,75	917,20	847,96	102,79	990,03	19,92	0,23	4,72	2,27	168,39			7,29	6	4,44		938,75	847,96	232,72	
11	1	201																	0,2						
8	8	6	1	794,18	222,40	321,40	1310,20	859,16	98,30	620,17	17,97	4,42	1,36	3,24	197,43	0,30		7,89	6	4,19	3,21	486,75	859,16	319,09	
11	1	201																	0,2	12,1					
9	9	6	1	268,88	354,25	459,06	1412,23	700,17	108,21	981,18	23,79	2,89	0,65	2,96	199,67	0,32		2,55	0	6	5,36	711,99	700,17	313,28	
12	2	201																	0,2						
0	1	6	1	595,17	240,45	254,76	866,71	239,28	111,95	673,76	14,53	1,96	3,58	3,75	98,48	0,33	2,47	4,34	1	2,62	5,81	957,07	239,28	95,11	
12	2	201		1004,6															0,1		1773,2				
1	2	6	1	3	418,54	216,90	768,36	503,54	78,69	631,59	11,24	2,40	0,54	0,76	75,93	0,80		3,60	1	2,06	2,81	9	503,54	322,06	
12	2	201		1644,8															0,0		3499,3				
2	3	6	1	6	697,01	213,49	728,06	123,74	86,21	697,86	5,57	1,55	0,82	0,32	25,42			2,62	3	0,13	3,69	7	123,74	69,88	
12	2	201																	0,0		1555,7				
3	4	6	1	898,76	444,65	130,54	456,84	38,28	76,41	635,85	8,30	0,46	0,44	0,34	93,13		12,93	2,69	9	1,11	3,11	9	38,28	28,56	
12	2	201																	0,0						
4	5	6	1	579,63	310,41	97,98	277,67	307,40	34,33	459,51	6,01	0,40	0,67	1,85	58,84		6,61	2,23	9	2,50	3,59	517,81	307,40	87,99	
12	2	201		1141,7															0,1		1269,2				
5	6	6	1	0	214,15	72,90	257,94	138,26	40,73	494,22	4,40	0,50	0,37	3,60	43,10		7,13	1,79	1	1,57	2,86	2	138,26	63,18	
12	2	201																	0,2		1670,6				
6	8	6	1	738,80	495,42	113,90	480,16	104,70	98,34	2848,65	5,59	0,48	2,48	5,62	115,20	4,93	7,72	4,26	9	4,19	5,04	9	104,70	59,25	
12	2	201																	0,1		1973,3				
7	9	6	1	998,18		131,06	484,66	195,29	56,68	558,20	5,10	0,28	0,20	9,52	71,94	0,43	3,90	1,56	2	0,97		4	195,29	86,49	
12	3	6	201	736,49	147,46	89,82	383,26	1574,3	49,23	762,36	7,47	1,63	3,39	1,39	70,71	0,60		5,10	0,2	2,31	4,73	743,08	1574,3	798,61	

8	0	1					6													6				
12		201					2443,2													0,1			2443,2	
9	1	7	1	589,49	109,73	206,37	753,90	6	98,42	856,13	9,26	3,95	0,75	2,22	126,37	0,71	3,07	7,54	3	0,82	6,62	828,58	6	865,65
13		201																		0,1		1936,6		
0	2	7	1	637,96	144,51	145,53	450,86	150,33	47,87	574,24	7,00	1,94	1,72	1,20	75,64	0,18	6,56	1,73	1	4,44	4,99	8	150,33	53,19
13		201																		0,4				1129,2
1	3	7	1	705,82		124,22	423,62	552,76	75,84	402,02	6,31	1,93			75,35	0,12	6,87	7,01	1	1,06		754,26	552,76	9
13		201																		0,2		2260,7		
2	4	7	1	491,56		231,68	920,20	5	57,36	660,87	10,87	3,43	0,77	2,70	66,65	0,42	11,68	6,70	6	1,22	6,21	153,96	5	411,16
13		201																		0,0		1048,5		
3	5	7	1	878,22	144,87	205,12	813,84	5	65,82	681,47	8,64	2,92	1,43	4,39	136,52	0,25	6,86	4,15	9	3,74	5,94	7	5	372,92
13		201																		0,2		1096,0		
4	6	7	1	8	264,74	134,38	519,93	248,96	79,85	749,94	6,73	1,90	0,95	2,38	64,75		10,20	4,79	4	2,28	5,08	8	248,96	84,03
13		201																		0,2				1555,6
5	7	7	1	712,55	211,64	140,67	693,36	172,02	97,05	1187,62	12,17	1,07	3,88	4,62	121,04	0,13	3,04	3,57	0	2,81	4,23	0	172,02	71,44
13		201																		0,0		1084,5		
6	8	7	1	5	212,11	227,02	790,03	254,36	102,49	752,78	7,62	3,89	0,89	2,76	138,99		4,85	8,66	2	2,05	2,53	1	254,36	109,10
13		201																		10,1				0,4
7	9	7	1	368,81	220,31	183,21	479,92	254,55	113,48	636,34	7,94	4,44	2,06	2,30	147,37	2,24	3,73	6	0	3,22	2,99	695,46	254,55	126,78
13		201																		0,3				1431,9
8	0	7	1	745,88	109,74	139,08	626,82	150,87	112,78	831,06	11,87	3,74	2,61	3,67	120,62	2,11	10,36	4,86	6	2,14		9	150,87	47,09
13		201																		0,1				1993,1
9	2	7	1	921,35	227,21	262,21	897,59	254,99	139,61	1390,97	4,95	2,21	4,06	3,76	158,57	1,17	5,16	5,22	1	3,20	7,29	3	254,99	146,02
14		201																		0,1		1449,6		
0	3	7	1	5	425,57	298,24	788,25	219,32	153,25	1388,77	11,57	2,46	1,69	1,61	134,39	1,18	8,31	4,94	7	1,53		7	219,32	129,19
14		201																		0,2				
1	4	7	1	699,87	435,02	257,93	958,10	232,40	148,26	1199,30	19,47	1,34	0,82	3,79	240,81	1,32	7,81	5,87	1	2,95	4,87	848,55	232,40	120,27
14		201																		14,7				1085,9
2	5	7	1	994,05	325,27	213,25	834,58	354,23	200,41	800,75	15,95	4,06	1,27	2,14	51,89	1,85	33,55	8	8	5,38	6,12	2	354,23	341,40
14		201																		0,1				1094,1
3	6	7	1	762,91	81,62	159,00	738,90	238,30	115,59	581,06	13,65	2,17	0,46	0,42	143,99	0,85	3,68	7,29	9	1,70		4	238,30	91,88
14		201																		0,0		1808,7		
4	7	7	1	7	373,94	494,42	1352,74	139,59	204,53	1291,96	23,91	3,59	1,11	0,98	240,85	1,64	0,25	4,01	7	2,70	5,17	4	139,59	67,52
14		201																		0,2		1723,2		
5	8	7	1	2	352,28	552,91	1258,97	266,34	81,39	1049,47	23,43	3,69	1,64	2,43	286,50	1,48	9,16	5,83	0	3,08	2,40	9	266,34	160,01
14		201																		0,1				1218,0
6	9	7	1	510,24	370,74	310,96	168,73	153,55	100,38	1136,28	15,30	1,59	1,84	3,40	126,25		8,93	5,31	1	3,01	2,73	7	153,55	86,78
14		201																		0,1				1777,9
7	0	7	1	709,85	46,79	173,97	482,80	331,15	66,15	848,49	10,67	0,81	0,48	3,94	137,82	0,63	2,84	2,82	5	2,36		9	331,15	157,41
14		201																		16,5		0,0		1958,2
8	1	7	1	693,54		3	4584,13	72,03	77,63	800,90	14,59	0,70	0,68	2,99	110,62	0,67	6,23	4	4	2,97		0	72,03	44,44
14		201																		0,2				
9	1	8	1	374,36	72,36	161,72	609,37	879,81	94,79	653,40	9,99	2,62	1,98	4,71	102,64	0,93	0,37	3,51	3	3,05	5,39	927,74	879,81	250,79
15	2	8	201	970,80	139,62	155,16	214,59	642,23	73,65	623,17	10,49	4,25	2,91	2,63	120,18	0,95	6,71	4,42	0,1	1,82	2,99	1222,8	642,23	170,92

0	1																7	3					
15	201																0,1	1170,6					
1	3 8 1	798,27		168,10	418,88	318,47	93,58	418,03	11,15	0,57	0,53	2,19	135,37	1,07	1,54	5,30	8	4,86	1,48	0	318,47	72,58	
15	201	1490,3															0,3	1335,0					
2	4 8 1	3	129,61	116,72	752,81	141,14	62,99	690,06	9,64	0,91	0,76	4,95	149,40	1,47		8,17	6	3,38	6,22	8	141,14	50,70	
15	201																0,1	2266,5					
3	5 8 1	691,99	89,40	156,97	801,95	653,90	171,40	765,39	12,18	0,57	1,77	5,65	146,69		3,30	3,50	4	3,50	8,75	7	653,90	241,44	
15	201																0,1	1588,1					
4	6 8 1	609,80	136,35	134,55	802,29	354,19	175,79	809,55	13,23	2,34	2,43	2,93	127,37		7,26	2,61	1	1,78	2,16	2	354,19	157,64	
15	201																0,1	1267,5					
5	7 8 1	846,92	129,05	180,57	709,08	429,59	114,40	721,09	11,68	1,90	1,33	4,56	129,57	6,13	1,39	4,01	3	2,52	5,16	0	429,59	178,49	
15	201	1207,9															0,0	1871,3					
6	9 8 1	8	274,83	181,06	597,46	165,69	173,80	958,52	11,29	1,79	3,94	5,38	117,47	2,45		4,60	9	4,25	3,62	2	165,69	81,83	
15	201																0,2						
7	2 8 1	381,85	208,57	113,43	895,15	562,69	59,87	987,06	14,63	1,99	0,64	5,44	140,82	1,97		3,68	8	4,21	5,47	790,89	562,69	223,33	
15	201																0,3						
8	3 8 1	587,48	114,26	345,29	1143,92	457,70	196,24	650,65	16,24	1,93	2,69	2,45	151,91	1,16		8,14	2	2,06		710,96	457,70	145,52	
15	201																0,2						
9	4 8 1	485,38	371,24	685,60	2349,71	289,70	113,45	1324,17	27,83	6,10	4,46	3,69	112,93	3,36	3,52	8,19	9	3,76	2,49	637,06	289,70	143,31	
16	201																0,2						
0	5 8 1	745,92	345,14	579,24	2400,66	98,13	220,06	1214,44	34,19	7,21	4,28	6,71	274,67	2,66		5,01	7	4,52	6,46	856,13	98,13	53,70	
16	201	1278,7															0,0	1647,3					
1	6 8 1	8	235,32	392,81	1474,10	601,57	169,83	825,67	18,18	3,18	0,99	5,19	198,60	2,53		5,54	5	3,22	0,99	3	601,57	246,95	
16	201	1701,6				2747,8										11,8	0,5				2018,6	2747,8	1151,2
2	7 8 1	8	167,52	521,88	1903,83	5	166,51	878,22	18,43	7,94	0,94	6,20	211,05	3,44		5	2	2,21	3,18	4	5	7	
16	201					1020,6											0,1	1298,8	1020,6				
3	8 8 1	242,72	239,27	530,25	1787,85	8	108,22	783,84	25,20	0,39	1,04	1,19	187,00	0,36		4,67	6	1,41	5,86	2	8	359,07	
16	201	1277,6															0,1	9509,7			1145,5		
4	9 8 1	2	336,93	378,27	1036,82	693,21	72,20	1277,11	19,78	3,76	3,83	2,41	159,65	1,59		1,24	7	1,82	5,44	7	693,21	7	
16	201	1263,7															0,3	1252,9					
5	0 8 1	9	160,65	310,08	1262,07	700,89	81,37	809,26	12,56	7,19	1,35	2,73	149,52	2,82		7,06	4	2,94	1,69	6	700,89	224,58	
16	201																0,1	2333,8					
6	1 8 1	858,57	185,97	377,72	1149,50	462,05	69,12	739,11	12,16	4,36	1,69	5,61	220,83	1,59		5,58	9	2,57	8,77	3	462,05	112,37	
16	201																0,2	1394,3					
7	2 8 1	604,29	207,69	310,94	1132,80	557,93	119,26	867,04	11,94	4,41	1,97	4,53	166,47	0,86		4,81	5	3,34	5,87	7	557,93	160,13	
16	201																0,2	1452,7					
8	3 8 1	724,30		343,81	1272,42	121,53	23,05	468,48	16,86	4,79	0,46		102,49	2,36		8,20	1	5,92		7	121,53	29,50	
16	201																0,2	1913,7					
9	5 8 1	782,56	205,35	110,44	350,43	239,92	25,69	307,63	7,22	0,43	0,34	1,61	76,69	1,71		3,33	0	1,51		8	239,92	95,62	
17	201																0,1	1000,8					
0	6 8 1	300,76		70,34	232,73	27,75	22,15	437,71	4,42	0,32		4,57	54,13			2,51	4	1,28		9	27,75	16,78	
17	201																0,0	1963,8					
1	7 8 1	585,27	217,32	127,71	449,63	304,07	63,98	262,62	7,57	0,52	0,74	2,75	69,40	0,39		5,71	4	1,99	0,37	4	304,07	71,20	
17	2 8 201	597,70	101,99	92,17	317,63	123,37	40,50	616,04	4,66	1,45	0,79	2,67	63,32	0,99		7,85	0,1	8,88	6,57	916,90	123,37	74,49	

4	5 0 1																	3	1							
19	1 1 201																	0,0		1079,3						
5	6 0 1	368,55	138,35	99,65	128,25	0	27,87	359,74	5,12	2,33	1,49	0,34	51,26	0,57				1,55	7	0,50	5,69	791,23	0	253,06		
19	1 1 201																	0,1								
6	9 0 1	153,03	115,04	120,26	383,92	966,03	85,08	451,46	3,64	1,39	2,14	0,88	53,94	1,05				0,43	8	2,87	2,01	491,12	966,03	451,24		
19	2 1 201																	0,0						1195,9		
7	0 0 1	151,84		129,59	422,27	1	70,10	514,77	8,21	1,58	3,33	0,71	88,25	0,26				1,89	9	2,71	6,04	699,12	1	408,58		
19	2 1 201																	0,1						1159,1	1845,9	1446,5
8	2 0 1	617,39	549,65	2	3493,67	7	57,59	1908,47	51,53	3,03	7,21	9	589,64	1,41				7,08	9	3,10	6,78	7	7	7		
19	2 1 201																	26,6	0,0					1707,5		
9	3 0 1	754,69	406,60	753,32	2082,00	389,67	261,73	876,35	32,34	1,38	1,26	1,41	240,81	1,40				2	3	5,74	3,47	5	389,67	236,76		
20	2 1 201																	0,2	10,5							
0	4 0 1	410,86	334,94	468,77	1449,74	321,75	90,43	712,83	26,08	2,71	0,23	0,61	25,75				5,06	5	1				274,52	321,75	294,95	
20	2 1 201																	0,2						1277,3	1453,9	
1	5 0 1	234,02	251,12	297,11	1085,28	7	130,41	578,40	14,53	1,14	1,83	0,52	60,62				5,29	1	1,05				7	7	222,04	
20	2 1 201																	0,1								
2	6 0 1	235,52	119,72	187,19	623,72	287,74	91,16	1056,55	11,71	1,19	9,89	1,20	75,21	1,01				8,30	5	3,98	9,35	865,48	287,74	58,56		
20	2 1 201																	0,8						1112,6		
3	7 0 1	185,49	194,18	193,75	577,50	307,95	119,88	1101,82	11,23	1,90	7,92	2,41	128,25	0,87				7,57	8	2,88		7	307,95	130,93		
20	3 1 201	1303,2																17,7	0,3					1377,1		
4	0 0 1	1		92,88	297,55	180,07	41,82	528,98	6,99	3,48	0,50	0,59	73,73	1,24				6	4	3,23	6,85	1	180,07	70,99		
20	3 1 201																	0,5						1735,8		
5	1 0 1	626,14	122,75	125,37	386,55	832,46	69,16	877,08	9,57	2,88	2,17	1,32	107,08	6,61				6,45	2	2,91	7,46	6	832,46	362,93		
20	1 201																	0,4								
6	1 1 1	185,07	179,28	161,41	491,18	65,53	137,81	1248,57	8,86	1,44	8,82	2,48	74,26	1,24				1,35	6	4,42	5,96	457,96	65,53	39,91		
20	1 201																	0,1								
7	2 1 1	193,79		52,92	235,03	181,84	50,22	350,60	2,56	0,62	0,82	0,89	25,88	0,35				2,73	9	2,87		619,78	181,84	134,16		
20	1 201																	0,1						1139,2		
8	3 1 1	418,24	125,67	109,82	379,21	164,39	68,81	694,32	5,51	1,21	1,11	1,23	38,01	0,28				0,95	6	0,64	5,72	2	164,39	84,83		
20	1 201																	0,1								
9	4 1 1	203,22	256,01	190,37	689,03	675,85	161,65	1306,62	13,29	1,27	1,17	0,95	138,06	0,17				1,35	2	3,16	6,93	717,25	675,85	274,34		
21	1 201	1991,7																0,3						2452,9		
0	5 1 1	5	630,87	608,01	1875,53	44,21	156,11	1570,95	36,38	1,95	2,67	1,00	382,77	0,34	4,42	3,09	4	1,84	6,19	5	44,21	24,54				
21	1 201	1032,6																0,7						1657,4		
1	6 1 1	5	479,99	439,51	830,40	238,73	117,20	1071,26	21,85	1,67	2,31	2,83	28,31	1,06				9,55	6	3,43	3,98	6	238,73	116,27		
21	1 201																	0,5								
2	7 1 1	433,29	249,96	543,28	1745,06	999,77	92,99	1181,92	27,25	1,98	1,91	1,55	237,31	0,79	4,36	4,36	8	3,25	7,76	464,12	999,77	517,42				
21	1 201																	0,4	10,6					1932,3		
3	8 1 1	432,17	447,95	545,84	1529,49	0	194,05	1315,80	28,84	2,12	0,37	2,75	243,34				5,62	9	6	5,29	238,34	0	657,73			
21	201																	0,2								
4	2 2 2	96,20		62,44	151,67	407,19	54,33	395,18	2,59	0,15	0,58		44,81				3,16	5	2,03	7,39	152,81	407,19	65,04			
21	201																	0,9								
5	3 2 2	760,79		30,80	111,36	469,05	59,41	273,77	3,16	0,55	2,47	1,41	22,43				2,33	1	4,56	3,93	704,75	469,05	127,48			
21	4 2 201	475,30	104,14	23,98	75,01	130,06	42,50	223,78	1,96	0,50	0,67	1,33	11,95	0,53				1,81	0,3	1,80	3,56	858,87	130,06	33,11		

6	2																				6	
21	201																				0,0	
7	5 2 2	259,87	18,58	64,93	115,91	17,02	137,86	1,67	0,10				14,64	0,03	1,76	4	0,17		757,79	115,91	164,57	
21	201																				0,2	
8	7 2 2	201,45	14,93	94,65	696,17	40,91	368,24	2,24	0,56	0,34	2,73	15,28	0,46	3,73	4	0,97		165,20	696,17	230,14		
21	201																				0,3	
9	8 2 2	363,01	280,45	298,99	983,76	725,22	116,83	774,78	15,30	0,90	2,44	3,99	161,39	7,44	6,70	3	1,04	454,45	725,22	212,25		
22	201																				0,3	
0	9 2 2	276,32	68,87	223,73	5	55,65	591,72	3,06	0,98	0,89	0,23	39,68	0,50	6,14	4,27	5	1,01	163,42	5	537,90		
22	1 201	1945,0																			1,1	
1	0 2 2	4	14,28	52,89	349,67	28,10	190,46	0,96	2,46	0,28	1,97	16,42	0,38	3,37	6,48	1	3,39	3,09	268,25	349,67	98,31	
22	1 201																				0,3	
2	1 2 2	336,83	186,20	73,47	249,94	303,57	59,78	660,85	3,78	2,03	1,78	1,81	18,25	0,55	14,58	4,54	4	1,56	4,04	380,10	303,57	92,76
22	1 201																				0,3	
3	2 2 2	167,73	495,98	59,31	312,69	233,32	75,33	400,06	2,95	1,87	0,10	2,68	18,93	0,96	8,96	5	1,18	338,05	233,32	130,38		
22	1 201																				0,5	
4	3 2 2	366,74	225,01	96,97	368,68	151,62	26,51	664,18	8,50	1,04	1,42	1,05	65,19	1,00	0,19	2,80	7	1,43	539,72	151,62	23,39	
22	1 201																				0,1	
5	4 2 2	128,36	19,16	61,20	70,26	20,60	109,25	1,56	0,32		1,48	13,83	0,03	4,23	1,56	8	0,42	2	70,26	16,55		
22	1 201	2211,7																			0,2	
6	5 2 2	8	103,01	381,76	5	104,53	8,85	1,94	0,35		7	2,07		1,78		1	2,81	3	5			
22	1 201																				0,4	
7	6 2 2	176,92	26,49	99,81	288,65	35,69	262,71	2,70	0,61	0,57	2,60	17,60	0,34	0,38	1,98	8	0,29	2,19	186,46	288,65		
22	1 201																				0,6	
8	7 2 2	338,40	41,32	116,84	106,17	14,80	200,97	1,96	0,89	0,02		20,67	0,19	3,93	3	0,63	285,59	106,17	14,10			
22	1 201	2539,9																			0,1	
9	8 2 2	3	934,35	137,80	546,90	443,95	123,64	634,86	4,82	0,72		0,18	43,94	0,32	1,93	6	1,79	7	443,95	22,39		
23	1 201																				0,1	
0	9 2 2	690,42	226,16	28,93	107,05	113,77	55,30	414,82	1,61	0,43	0,75	0,43	17,11	0,21	2,39	4	0,93	1	113,77	45,08		
23	2 201	1248,8																			0,2	
1	0 2 2	2	250,15	42,20	141,32	0	58,32	280,03	0,96	0,45	0,54		15,61	0,01	5,82	2,47	0	0,93	1,27	1	0	617,12
23	2 201	2852,4																			0,2	
2	1 2 2	8	407,57	49,16	189,84	163,78	84,02	742,69	3,25	0,54	2,09	0,46	19,48	0,07	2,93	7	1,44	1,43	0	163,78	84,23	
23	2 201																				0,1	
3	2 2 2	859,40	252,97	6,24	79,18	95,65	46,17	115,42	0,66	0,21		1,35	5,95	0,06	0,65	0,58	9	0,03	803,30	95,65	5,50	
23	2 201																				0,2	
4	3 2 2	700,91	150,47	33,53	111,83	319,65	51,18	251,07	0,73	0,32	0,18	1,09	8,85	0,04	3,24	8	0,50	898,24	319,65			
23	2 201																				0,2	
5	4 2 2	254,70	31,89	132,00	291,04	59,62	249,48	1,48	0,41	0,03	1,67	13,33	0,12	4,35	7	1,68	548,85	291,04	186,03			
23	2 201																				0,7	
6	6 2 2	262,77	37,91	156,39	242,45	63,60	419,82	1,02	0,75	0,36	0,17	39,23	0,31	1,63	3	0,63	3,58	286,98	242,45	11,18		
23	2 201	1553,3																			0,1	
7	7 2 2	8	232,06	31,01	132,03	159,95	62,06	319,47	2,86	0,35	0,15	1,30	10,55	0,04	2,50	2	1,81	2,85	4	159,95	32,14	
23	2 2 201	1144,7	229,48	54,80	176,90	126,45	65,77	367,60	1,81	0,24	0,40	0,34	11,67	0,04	2,39	0,1	1,85	3,00	1449,2	126,45	29,57	

0	3	2																		2	2				
26	2	201																		0,3					
1	4	3	2	677,29	359,77	32,27	543,14	112,78	109,61	857,03	8,85	0,70	0,74	1,54	25,66	0,05	4,46	4,46	1	4,85	2,93	634,94	112,78	26,41	
26	2	201						1811,0												0,1		1811,0			
2	5	3	2	185,51	102,46	154,86	512,69	7	61,07	616,90	9,24	0,81	1,05	3,04	31,01				2,71	4	3,07	2,82	245,10	7	531,96
26	2	201																		0,2					
3	6	3	2	507,19	213,92	159,08	536,89	180,78	50,89	669,96	8,12	1,47	1,44	1,61	69,23	0,66			3,83	2	2,52	717,63	180,78	58,18	
26	2	201						1312,1												0,1		1031,8	1312,1		
4	7	3	2	272,71	198,21	195,03	609,31	1	89,69	581,11	4,51	1,92	3,94	1,14	53,94	0,89			7,38	5	0,78	6	1	538,97	
26	2	201																		0,2					
5	8	3	2	367,43	389,21	181,75	80,41	343,95	83,64	1033,98	8,71	2,31	1,06	3,73	89,41	0,75			7,26	7	3,36	6,54	918,57	343,95	155,87
26	2	201																		0,2					
6	9	3	2	383,70	486,24	636,72	1681,59	171,08	129,99	1389,90	29,79	3,07	3,00	2,07	204,20	0,44			0,92	9	4,69	3,66	324,35	171,08	52,10
26	3	201																		0,1					
7	1	3	2	216,12	275,26	415,67	1483,36	473,66	117,43	1267,49	8,30	1,53	3,68	2,09	166,83	0,27	0,16	5,43	8	1,65	4,19	133,95	473,66	105,07	
26	1	201					1158,1													0,3					
8	1	4	2	520,01	520,67	8	1739,05	716,49	158,77	2435,75	46,02	4,22	3,21	8,24	359,38			9,34	0	9,92	3,29	589,95	716,49	573,71	
26	1	201												17,8					0,0			2587,4			
9	2	4	2	8	3	2	4832,94	413,77	303,68	5213,17	37,88	4,01	5,19	1	989,88	0,64			7,79	2	7,78	9,65	7	413,77	345,15
27	1	201												30,3	1000,7				26,6	0,3		4872,1			
0	3	4	2	6	8	5696,41	785,31	326,12	4887,58	72,53	5,33			4	7	0,31	0,53	9	2	8,19	1	785,31	681,77		
27	1	201												20,2	1634,1				16,2	0,3	11,3	4015,5	1241,7		
1	4	4	2	9	2	5	8583,75	5	679,80	6889,60	7	8,72	5,87	1	5	1,51			5	1	0	3,02	0	5	960,07
27	1	201												49,1	2641,6				21,9	0,3	67,4	1322,0	1557,1	1467,3	
2	5	4	2	9	7	8	6	5	725,47	3	0	0	10,36	5	8	0,48			3	4	3	7,05	6	5	2
27	1	201												15,1					0,2	12,0		3984,5			
3	6	4	2	4	6	7	6454,33	487,78	214,49	4467,11	90,45	5,86	2,79	2	768,84	1,42			7,23	6	0	4,81	1	487,78	401,64
27	1	201																	0,0			2943,4			
4	7	4	2	3	519,61	113,93	340,42	347,11	96,73	597,23	6,54	1,54	0,10	0,99	61,75	0,75			1,96	3	1,03	7	347,11	215,64	
27	1	201																	0,0			1609,8			
5	8	4	2	270,38		77,29	467,19	148,96	118,07	457,14	12,42	0,85	0,91	3,15	139,19	0,69			3,83	8	2,67	4	148,96		
27	1	201																	0,1			1039,8			
6	9	4	2	294,59		62,20	389,85	343,73	85,73	490,17	5,63	0,53	1,32	3,76	86,46	0,35			5,06	1	1,15	8	343,73	25,27	
27	1	201						1944,3											0,3			1944,3			
7	0	4	2	628,45	302,99	77,77	36,73	3	65,39	682,88	3,39	0,17	2,36	1,74	65,54		2,18	5,71	1	3,05	5,63	573,99	3	649,74	
27	1	201						1034,1											0,2			1039,2	1034,1		
8	6	4	2	7	514,29	707,57	1783,95	4	221,66	1756,54	27,59	0,48	2,25	5,55	395,14	0,53			3,42	4	6,18	0,81	1	4	365,76
27	1	201												11,4	0,1				11,4	0,1		1049,0			
9	7	4	2	260,23	634,25	537,82	2634,63	323,75	221,65	2364,37	32,65	1,29	4,35	4,20	312,82	0,93			3	7	5,02	3,05	8	323,75	217,15
28	1	201												46,6	3263,2				0,3	25,0		2013,0			
0	8	4	2	1	3	7	0	189,71	8	4	7	1	7,58	7	7	6,42			7,73	9	5	6,53	7	189,71	131,95
28	1	201												183,3	2109,5				0,3	15,5		2477,9			
1	9	4	2	1	5	0	7	71,86	683,03	9867,33	2	4,20	4,45	4	7	3,68			9,27	6	6	1	71,86	60,11	
28	2	4	201	1835,4		122,08	244,20	150,18	44,81	365,56	6,96	0,94	1,09		67,70	0,80			2,54	0,0	0,94	0,77	1930,3	150,18	51,35

2	0	2	0																	6	1					
28	2	201	2315,1																	0,0	3065,8					
3	1	4	2	9	153,81	159,86	474,58	349,35	89,36	423,78	7,90	1,27	1,19		63,80	0,47			0,52	8	1,46	4,92	3	349,35	122,30	
28	2	201	1049,1																	0,0						
4	2	4	2	3		127,82	439,68	123,62	44,61	98,34	6,79	0,67	0,75	0,19	88,31	0,56			1,62	8	2,16	3,55	620,41	123,62	50,97	
28	2	201																		0,0						
5	3	4	2	452,29		108,70	430,37	150,34	50,90	217,47	5,03	0,93	1,27	1,88	57,69				2,87	8	1,25		774,67	150,34	44,13	
28	2	201																		0,1						
6	4	4	2	631,31			6,95	72,85	252,41	9,12	1,36	1,31	0,79	84,83	0,50				3,24	2	6,86	0,36	782,05	6,95	83,43	
28	2	201																		0,2						
7	5	4	2	828,47	196,18	345,81	1706,08	731,90	101,07	561,45	20,85	2,35	0,67	3,96	135,17				1,28	2	4,54	6,40	521,41	731,90	81,36	
28	2	201																		0,2						
8	6	4	2	622,93	127,51	542,26	1996,22	432,33	189,18	616,53	6,67	3,57	1,71	3,14	209,35	1,14			6,47	3	4,04	0,39	413,20	432,33	184,16	
28	2	201																		0,2						
9	7	4	2	811,47	138,30	392,25	1203,01	450,33	49,27	735,92	18,19	3,21	0,83	4,55	95,49		3,99		5,55	6	2,95		329,32	450,33	162,31	
29	2	201																		0,1						
0	9	4	2	861,81	95,52	77,84	239,98	335,47	49,51	441,22	3,12	1,48	1,66	0,81	35,64				5,34	1	2,55	3,41	57,75	335,47	32,23	
29	3	201						2439,7												16,9	0,1			2439,7	1130,7	
1	0	4	2	793,67	102,44	92,00	249,79	9	56,45	329,17	5,54	2,85	1,97	1,79	43,84	8,74			4	6	2,95	4,19	556,71	9	6	
29		201																		12,3	0,1					
2	1	5	2	592,01		149,29	430,80	313,36	44,18	439,88	7,55	4,20	0,01	4,09	17,37				4	5	7,06	1,44	79,59	313,36	65,29	
29		201																		0,2						
3	2	5	2	553,28	90,08	199,83	728,19	612,90	66,55	569,13	11,26	4,57	3,50	1,40	21,75	4,72			6,31	2	3,61	3,04	22,69	612,90	101,98	
29		201																		0,0						
4	4	5	2	212,82	251,04	686,64	2912,04	62,76	151,06	895,20	28,87	0,97	0,84	2,14	163,11	0,82			5,15	6	3,64	3,54	374,44	62,76	27,49	
29		201																		0,2				1435,9		
5	5	5	2	407,98		100,46	353,22	129,50	40,26	188,06	6,09	0,30	1,28	3,86	25,04				0,85	0	0,78		2	129,50	16,68	
29		201						1122,3												0,3				1122,3		
6	6	5	2	346,37		52,66	216,71	8	31,69	70,15	3,64	0,65	0,36	0,52	33,02	1,03			4,30	0	2,26		556,49	8	609,68	
29		201																		0,1						
7	7	5	2	306,14		110,93	521,64	286,16	76,37	435,83	9,14	0,66	0,51	0,89	36,38	1,24	44,03	5,01	6	0,92			328,32	286,16	311,02	
29		201																		0,2						
8	8	5	2	505,66		197,23	495,82	513,03	69,36	635,26	10,36	0,87	1,76	2,67	47,35	1,47	7,47	8,74	4	4,68	2,85	900,72	513,03	98,36		
29	1	201																		0,1						
9	0	5	2	194,14	351,57	153,62	692,68	221,83	92,39	1004,45	13,93	1,09	1,28	4,86	144,68	0,58	6,13	1,68	7	2,51	6,46	478,31	221,83	81,15		
30	1	201																		0,3						
0	1	5	2	226,51	202,25	253,89	1016,26	108,85	101,92	1066,84	15,35	1,08	2,91	1,35	89,92		5,99	6,07	7	5,31	4,95	441,35	108,85	70,81		
30	1	201																		0,5						
1	2	5	2	284,03	196,00	514,54	1384,40	469,71	207,80	946,40	18,15	0,84	0,23	4,86	44,07	1,39	52,84	5,78	2	3,97		320,77	469,71	320,23		
30	1	201																		0,2	10,1					
2	4	5	2	367,63	300,98	521,73	2023,92	309,37	195,84	815,74	6,96	1,56	2,69	5,42	233,65	1,07			4,05	7	9	4,81	278,09	309,37	228,09	
30	1	201																		13,7	0,4					
3	5	5	2	98,39	116,02	607,11	755,20	346,62	105,95	868,17	41,77	7,28	5,34	4,99	88,22	2,75			2	3	4,98	5,10	663,72	346,62	401,65	
30	1	5	201	490,79		284,41	987,52	387,63	112,21	198,24	17,59	1,58	0,78	4,98	150,66	0,30	4,26	7,86	0,1	3,95	3,33	668,16	387,63	62,02		

4	6	2																						7	
30	1	201																						0,0	
5	7	5	2	119,53		121,67	507,64	115,14	37,49	242,26	4,65	0,49		1,45	68,36			2,41	1	2,87		344,88	115,14	27,95	
30	1	201																						0,0	
6	8	5	2	345,21	162,47	123,84	420,51	100,64	51,59	488,74	7,75	0,12	0,42	3,83	33,83			5,37	2	3,23	8,49	686,03	100,64	55,28	
30	1	201																						0,1	
7	9	5	2	887,88	177,58	159,78	420,61	126,14	94,63	567,73	8,50	1,81	2,66	2,10	11,51	0,53	9,27	4,94	7	2,42		911,58	126,14	87,36	
30	2	201																						0,1	
8	0	5	2	439,04	194,86	136,87	727,68	836,77	122,26	629,01	11,85	4,28	4,71	5,73	115,93	0,48	3,98	5,49	3	3,52	0,47	232,65	836,77	237,67	
30	2	201																						0,1	
9	1	5	2	309,51	98,45	244,66	593,00	287,94	90,12	474,58	7,92	4,99	1,14	1,50	20,84	1,69	60,06	4,79	5	2,70	4,75	51,89	287,94	90,92	
31	2	201																						0,1	
0	2	5	2	351,98		216,65	654,68	277,17	85,88	621,17	12,19	3,41	1,15	4,99	112,37	0,74		3,06	8	4,42	4,90	103,60	277,17	69,39	
31	2	201																						0,0	
1	3	5	2	735,43		179,43	214,43	1392,4	1	94,18	425,72	8,39	4,45	0,45	3,05	91,14	0,96	16,6	2	1	4,80	0,34	351,40	1	162,26
31	2	201																						0,0	
2	4	5	2	630,57		218,83	574,58	128,14	67,51	451,26	11,51	2,56	0,04	0,78	71,58	0,75		7,66	8	2,97	7,11	346,70	128,14	31,61	
31	2	201																						0,1	
3	5	5	2	415,64		94,20	320,35	264,85	50,40	412,58	5,27	0,63	0,29		29,74	0,53		4,85	2	2,42		911,33	264,85	44,57	
31	2	201																						0,1	
4	6	5	2	548,14	133,69	153,04	567,34	203,65	74,01	562,29	11,24	0,80	1,27	3,42	117,96	0,59		6,65	6	1,65	4,03	774,48	203,65	41,25	
31	2	201																						0,0	
5	7	5	2	215,65	220,65	72,74	574,49	386,16	90,43	1489,39	11,50	0,61	0,99	2,24	96,10	0,90		3,89	1	7,65	3,93	414,22	386,16	109,03	
31	2	201																						0,1	
6	8	5	2	702,56	50,83	183,23	714,86	742,03	51,98	490,81	10,66	0,29	1,64	2,92	93,82		0,59	3,40	7	5,41		635,44	742,03	145,18	
31	2	201																						0,0	
7	9	5	2	582,85	253,74	188,59	603,59	922,04	59,88	889,15	10,72	2,46	3,45	2,17	44,58		14,03	5,51	2	4,73	4,12	313,19	922,04	288,69	
31	3	201																						0,3	
8	0	5	2	221,38	182,26	358,46	939,23	510,95	107,17	195,42	19,72	1,86	1,20	1,03	131,21	0,73	118,7	2	4,08	1	6,20		333,15	510,95	77,56
31	3	201																						0,2	
9	1	5	2	542,73	223,87	366,86	1038,03	806,90	143,16	847,37	1,44	1,82	3,42	1,96	96,59	1,23	7,32	4,24	3	7,35	5,02	482,57	806,90	94,01	
32	1	6	2	477,28	71,77	176,89	1145,42	666,80	102,65	675,90	17,37	2,80	0,78	6,45	67,54	1,92		8,78	3	4,99	6,17		1826,3	666,80	99,61
32	2	6	2	521,60	70,75	27,78	152,66	420,85	35,63	143,84	3,18	0,76		4,82	21,05			5,88	7	0,17		742,72	420,85	33,67	
32	3	6	2	149,06		18,92	61,26	142,70	14,45	175,83	2,54	0,21			17,02	4,84	20,78	1,45	6	0,19		280,72	142,70	33,86	
32	4	6	2	394,08		73,17	260,10	352,76	32,95	549,69	3,12	0,70	1,75	1,75	33,45	1,11		7,18	8	1,38		693,13	352,76	41,40	
32	5	6	2	313,59	139,23	145,93	444,88	263,13	128,52	815,10	10,34	0,66	1,12	0,36	98,92	0,72		3,62	8	0,83	4,83	710,83	263,13	65,56	
32	6	6	2	1241,3																				0,3	
5	6	6	2	3	139,92	178,47	704,64	664,41	73,36	454,63	12,47	3,20	1,50	4,08	56,14	1,62	135,4	7	3,57	7	2,56	4,31	479,67	664,41	81,58
32	7	6	201	757,82	155,88	90,58	215,83	84,83	65,16	487,96	6,00	1,72	0,86	1,04	21,69	0,23		4,50	0,1	1,41	4,08	488,51	84,83	31,09	

6	2																	1						
32	201					2624,2												0,2		2624,2				
7	8 6 2	642,03	172,06	347,18	880,10	5	95,79	818,24	20,05	2,71	1,26	5,15	150,92	0,60	7,90	3,42	5	3,07	449,08	5	529,68			
32	201																	0,2		1568,9				
8	9 6 2	322,26	109,49	268,95	1181,25	312,30	99,47	995,87	25,42	1,12	0,38	7,34	138,27				7,16	5	5,43	5,10	8	312,30	61,77	
32	1 201																	0,1						
9	0 6 2	239,42	259,42	171,22	585,53	253,42	134,79	857,54	1,29	1,62	1,22	3,80	92,27	0,25	2,49	4,34	9	7,26	437,39	253,42			42,94	
33	1 201																	0,1						
0	2 6 2	337,17	97,84	131,89	538,16	134,65	94,04	803,66	11,60	0,30	0,21	1,38	69,80				1,87	0	1,03			580,32	134,65	41,87
33	1 201																	0,0						
1	3 6 2	470,26		205,16	557,99	94,23	48,60	778,85	4,81	0,99	1,37	5,60	96,92	1,70	5,36	1,52	7	7,96	762,93	94,23			23,71	
33	1 201																	0,2						
2	4 6 2	362,04	81,29	208,98	710,80	386,08	35,48	783,05	8,00	1,06	1,89	1,50	137,20	0,37			1,76	6	3,83			529,40	386,08	56,85
33	1 201																	0,1						
3	5 6 2	631,86	138,48	191,86	560,82	317,16	29,77	624,83	10,45	0,33	28,58	2,18	131,18				8,93	0,72	0	0,31	3,55	127,50	317,16	26,12
33	1 201	7275,1																0,2						
4	6 6 2	0	248,42	409,71	1104,17	434,85	191,82	964,20	19,07	1,56	0,53	2,60	146,25				6,34	2	4,16			945,23	434,85	78,00
33	1 201																	20,6	0,1					
5	7 6 2	648,91	157,84	266,36	1074,05	454,89	451,19	1058,70	15,00	5,35	0,09	3,91	151,16	1,88			2	2	3,43			451,36	454,89	174,79
33	1 201																	0,1						
6	8 6 2	561,54	108,74	251,00	952,34	426,25	185,29	1146,09	13,90	1,18	0,11	0,98	152,83	0,75	83,51	2,80	2	0,70	3,66			915,53	426,25	57,94
33	1 201	1327,4																0,1		71,2				
7	9 6 2	4			18,26	80,19	978,99	3,96	0,63			4	19,12				2,83	7	2	757,13	18,26		194,58	
33	2 201																	0,1						
8	1 6 2	467,36	404,44	191,71	440,61	466,87	239,61	1481,48	4,54	0,72	3,58	2,22	140,52	2,47			1,09	3	3,53	4,35	650,79	466,87	232,00	
33	2 201																	0,1						
9	2 6 2	555,18	115,00	361,32	1462,14	386,19	237,62	1356,37	19,27	1,06	1,40	4,07	212,10	1,00			4,17	9	4,48	4,17	890,44	386,19	76,42	
34	2 201																	0,2						
0	3 6 2	670,68		321,95	1139,74	343,77	62,43	714,32	20,88	0,17	0,32	2,25	206,51	0,53			2,77	3	5,04			607,42	343,77	57,87
34	2 201																	0,1				1758,5		
1	4 6 2	373,32	272,41	448,88	1140,05	490,84	262,90	2336,30	26,84	0,35	8,85	2,31	287,49	1,01			4,33	6	8,62	4,14	5	490,84	115,35	
34	2 201																	0,1	10,5					
2	5 6 2	757,12	62,99	264,74	890,49	307,21	119,32	1787,05	16,93	1,26	5,20	3,87	223,69	1,02			2,68	9	3	3,42	990,78	307,21	110,72	
34	2 201	1039,7																0,0				1110,1		
3	6 6 2	5	251,83	250,66	659,25	625,80	204,37	936,39	11,27	1,96	1,75	2,99	58,72	1,74			0,94	2	1,74	3,97	1	625,80	132,21	
34	2 201	2104,2				1888,1												0,0				1398,7	1888,1	
4	7 6 2	7	279,66	300,33	1172,21	4	124,71	631,03	16,87	4,93	2,35	2,70	152,79	3,18			5,06	4	3,27	2,97	0	4	310,87	
34	2 201	1131,4				1379,2												0,2				1913,3	1379,2	
5	8 6 2	8	217,16	201,20	557,14	8	78,76	672,32	12,56	4,40	0,77	3,97	156,85	0,67			9,42	6	0,73	2,62	8	8	294,67	
34	2 201	1484,5				1457,7												23,1	0,7			2438,9	1457,7	
6	9 6 2	4	115,61	43,71	886,16	4	141,78	634,46	13,16	5,25	2,95	1,40	148,09	0,32			5	5	3,44		9	4	140,13	
34	3 201					1041,9												0,0					1041,9	
7	0 6 2	162,27		25,72	99,25	3	10,88	102,03	1,85	0,39	0,10	0,38	11,14				3,37	4			41,36	3	125,58	
34	1 7 201	1173,5	151,40	229,82	782,90	2170,0	61,24	785,18	10,26	5,72	1,10	2,23	117,44	2,15			2,61	0,2	4,52	2,75	1695,8	2170,0	302,28	

8			5							2							6		2	2			
34		201								1324,2							0,2		1358,0	1324,2			
9	2	7	2	589,36	316,30	347,80	1167,82	3	92,17	1363,97	16,48	2,62	0,91	3,77	53,72	1,58	6,63	0	3,89	2,14	7	3	210,16
35		201															0,2						
0	3	7	2	440,46	421,02	387,17	1272,42	457,82	141,78	1589,24	4,98	0,92	0,66	7,52	273,35	0,52	5,63	0	5,40	0,65	600,01	457,82	116,18
35		201					1170,9										0,0						
1	4	7	2	125,00	57,03	3	5161,32	0,00	344,39	2412,44	51,89	1,00	0,65	7,45	701,73	0,32	3,61	5	5,04		362,57		43,49
35		201					1766,7							11,9			16,6	0,2					
2	5	7	2	187,64	773,71	5	5566,65	550,40	449,55	3580,39	66,38	2,09	5,25	0	829,51	0,56	2	5	7,72	7,72	689,02	550,40	211,75
35		201												14,7			0,3	10,2					
3	6	7	2	387,56	666,93	739,64	3285,86	512,90	279,93	1799,38	65,91	2,69	2,13	6	531,73	1,04	7,12	8	0	4,01	695,08	512,90	210,24
35		201												14,3			0,3						
4	8	7	2	498,18	557,87	694,86	3312,39	689,93	226,46	2268,89	55,28	3,42	9,47	6	647,93	1,24	5,57	4	6,22	4,47	757,37	689,93	172,31
35		201															0,1						
5	9	7	2	817,60	391,57	644,15	2241,27	655,12	235,59	805,06	26,53	3,16	3,62	9,12	391,60	0,89	3,45	4	3,41	4,37	605,68	655,12	192,05
35		201					3167,0										0,4					3167,0	
6	0	7	2	615,57	437,63	651,88	2415,22	3	234,21	1167,76	35,49	5,69	3,47	7,30	411,55	2,09	7,92	2	2,77	4,80	222,52	3	746,89
35		201					1230,4										0,4					1230,4	
7	1	7	2	137,29	520,59	718,26	1602,28	5	240,03	1445,48	39,26	6,40	2,21	4,99	392,02	1,78	6,27	2	4,63	3,24	45,25	5	295,24
35		201															0,1						
8	2	7	2	704,17	291,34	480,42	2546,73	356,77	200,98	1787,32	46,43	1,22	0,82	3,79	500,21	0,11	2,66	6	4,39	4,43	521,30	356,77	147,14
35		201															0,2					1377,8	
9	3	7	2	871,06	691,14	777,91	2720,75	920,63	287,47	1593,65	29,74	2,58	3,06	7,23	219,47		5,28	2	4,89	5,11	9	920,63	226,64
36	1	201	2349,2														0,2					1791,1	
0	4	7	2	9	897,28	783,82	1969,13	570,98	218,45	1501,09	35,90	3,97	3,40	6,94	476,27	1,06	5,07	1	4,07	3,93	7	570,98	136,56
36		201	3128,8				2307,1										0,2					2804,0	2307,1
1	5	7	2	1	534,95	301,89	428,71	3	327,46	905,04	19,58	2,61	1,56	1,61	109,04	1,26	5,77	7	3,25		3	3	766,68
36		201	2066,3														0,1					1647,5	
2	6	7	2	7	416,06	199,50	550,54	403,87	175,16	827,89	12,34	3,17	2,97	2,99	107,60	0,83	3,78	6	0,70		2	403,87	120,52
36		201	1129,4				1168,9										0,0					1168,9	
3	7	7	2	5	260,22	106,13	247,32	8	65,84	499,62	4,07	1,71	0,84	0,29	65,45	0,52	1,32	6	1,06	3,82	246,32	8	158,16
36		201	1005,1														0,1					1051,2	
4	8	7	2	0	224,47	231,16	760,74	487,38	148,94	971,46	12,43	0,87	0,76	1,12	157,75	0,88	2,83	4	2,63		2	487,38	211,20
36		201	3129,7				1611,2										0,2					2010,6	1611,2
5	9	7	2	5	367,15	222,09	852,97	4	126,75	681,57	11,81	2,88	1,08	0,74	116,76	1,91	8,03	7	3,46	3,69	1	4	344,86
36		201	2303,4				3092,2										0,2					3092,2	
6	0	7	2	5	453,24	238,84	612,67	8	141,30	705,19	13,76	2,45	0,11	0,64	134,11	1,62	3,81	8	3,70	4,01	647,88	8	444,83
36		201	1005,7				1537,8										0,2					1537,8	
7	1	7	2	1	163,13	228,76	779,14	8	114,64	615,83	8,18	1,77	0,84	3,99	84,81	2,21	4,79	2	1,93		650,70	8	317,79
36		201	1015,5														0,2						
8	2	7	2	5	262,91	366,19	1287,23	962,22	151,57	769,85	19,13	3,95	0,40	1,32	231,79	0,01	9,13	4	2,67	6,11	80,64	962,22	67,57
36		201															0,3						
9	3	7	2	812,30	388,60	244,91	606,94	424,20	151,53	867,69	11,92	0,32	0,87	2,13	45,67		4,80	3	1,20	4,58	742,57	424,20	39,81
37		201	298,84	196,19	192,91	932,07	277,99	124,92	608,73	1,99	1,14	1,94	6,16	184,19			6,33	0,1	4,61		355,17	277,99	52,98

2	1	2																			8		3			
39	1	201	6172,6	1260,2	1069,8		5842,3														10,5	0,3	6347,4	5842,3	1430,2	
3	2	9	9	5	2	3025,04	3	702,94	2624,36	76,55	4,06	1,36	9,48	693,75	0,61					4	4	6,00	4,81	4	3	1
39	1	201	5673,3								10,0										26,2	0,9	14,6	1410,3		
4	3	9	7	413,99	216,91	730,49	820,33	213,99	757,34	17,94	0	1,96	3,98	161,74						0	9	4	5,68	5	820,33	284,14
39	1	201					1419,5														0,1			1419,5		
5	5	9	831,75	228,55	343,95	569,99	3	134,48	829,41	18,13	3,94	1,94	4,67	119,94	0,51	3,68	8,88	3	2,40	0,75	196,26	3	202,63			
39	1	201																			0,1		1154,1			
6	6	9	643,12	169,44	124,47	563,13	195,86	63,85	571,75	10,33	1,35	0,10	3,48	91,81	0,13		2,59	6	1,94	2,27	5	195,86	18,82			
39	1	201																			0,2					
7	7	9	616,59	211,33	113,80	539,19	172,43	99,42	748,95	8,81	1,61	6,03	1,71	89,88	0,61		3,93	9	2,78		621,66	172,43	32,31			
39	1	201					1635,7														0,2		1635,7			
8	8	9	130,73		239,07	851,24	8	34,20	588,88	13,81	3,06	0,23	1,74	87,98	0,23		8,62	8	3,28	4,06		8	56,94			
39	1	201																			0,2		1329,3			
9	9	9	462,41	410,99	354,77	1841,85	342,89	265,59	1684,25	32,24	2,32	1,52	6,00	245,48	0,28	14,55	9,78	4	1,62	1,12	1	342,89	64,67			
40	2	201			1398,1					105,2											0,1	13,8	1246,8			
0	1	9	372,74	866,55	8	4486,64	219,04	665,29	3440,16	6	2,87	1,63	4	839,18	1,60		0,50	6	6		9	219,04	64,76			
40	2	201																			0,1	15,2				
1	2	9	345,88	928,12	847,56	3377,98	365,49	182,57	3344,03	60,53	2,39	1,33	9,20	579,62	0,98		3,50	3	7		732,37	365,49	104,63			
40	2	201			1720,3		2400,9							13,2							0,2		2007,2	2400,9		
2	3	9	505,24	987,78	3	3403,02	2	446,16	3349,76	84,13	4,12	9,00	4	590,27	2,39		4,45	4	4,86	4,22	7	2	928,93			
40	2	201	1160,8				1773,3														0,0		1747,8	1773,3		
3	4	9	3	775,23	783,82	2688,24	5	127,82	1103,99	19,87	0,56	3,26	4,22	211,77	0,63		3,59	9	8,04		0	5	469,53			
40	2	201					2430,9														0,2		2430,9			
4	5	9	738,40	199,12	572,65	1339,60	7	161,74	1152,94	18,25	0,43	2,51	5,31	335,11	0,35	2,24	3,39	6	3,28		616,18	7	373,33			
40	2	201																			0,2					
5	6	9	246,70	136,52	263,69	811,43	530,20	94,97	629,88	10,69	0,46	0,71	3,03	108,46		0,04	3,67	3	2,42		376,08	530,20	66,25			
40	2	201																			0,1		1242,2			
6	7	9	528,64	157,33	182,35	472,73	505,93	56,53	217,16	4,03	0,57	1,22	3,52	88,78	0,31	0,93	1,47	3	1,80		8	505,93	100,38			
40	2	201																			0,2		1217,6			
7	9	9	704,92	412,77	217,27	343,93	174,36	99,88	118,60	11,41	0,46	0,93	2,52	92,21	0,13	3,56	1,36	3	3,96		4	174,36	34,46			
40	3	201																			0,5					
8	0	9	507,23	71,54	171,71	702,13	97,04	128,32	966,45	11,02	1,57	1,92	3,39	93,69	0,38		5,40	9	3,36	4,26	589,59	97,04	26,77			
40	1	201																			0,1					
9	7	1	268,12	106,88	141,32	546,17	151,58	98,84	920,90	6,53	0,63	1,32	4,30	83,96	0,06	7,27	5,89	4	7,28	1,68		151,58				
41	1	201																			0,1					
0	9	1	267,84	439,12	181,23	916,68	280,34	130,62	1155,26	22,80	0,60	0,39	2,20	78,85	1,01	8,02	1,26	3	3,28	2,81		280,34				
41	2	201			1310,5																0,3					
1	0	1	225,02	3	750,77	1467,69	164,89	198,25	2863,92	12,71	1,74	1,81	4,90	313,24	2,18		6,65	4	7,12	7,37		164,89				
41	2	201																			0,0					
2	4	1	628,74	458,49	551,90	1685,65	364,33	149,49	1537,40	28,23	2,61	1,28	5,71	284,86	1,71		5,22	9	8,31	6,29	604,23	364,33				
41	2	201																			0,0					
3	5	1	127,01	84,32	91,45	295,20	242,18	52,84	402,86	3,46	0,43		1,52	13,02	3,02	10,17	6,83	4	1,13	3,86	670,48	242,18				
41	2	1	937,62	228,45	53,05	183,74	389,10	45,66	466,51	3,07	0,66	0,12	0,34	42,90			1,58	0,0	0,72		728,82	389,10				

4	6	3																	5				
41	2	201																	0,4		1146,5		
5	7	1	3	410,24	233,27	41,90	209,09	311,22	36,92	588,15	4,07	0,83	2,37	1,47	41,69	0,46		3,52	4	6,19	8	311,22	
41	2	201		2140,3															0,0		1604,9		
6	8	1	3	1	265,28	23,08	99,36	44,18	53,65	288,56	1,87	0,30	1,05	1,21	21,74	0,21	8,25	0,49	4	1,74	7	44,18	
41	2	201		1266,1															0,0				
7	9	1	3	4		17,41	80,85	232,04	47,53	487,59	3,23	1,49	2,01	0,49	11,78	0,61	11,83	6,17	9	8,54	272,40	232,04	
41	3	201																	0,3		2619,0		
8	1	1	3	176,69	217,23	104,99	107,25	322,42	134,68	631,53	6,88	0,53	2,10	3,64	73,13	0,54		4,81	3	2,47	8,23	6	322,42
41		201																	0,1				
9	2	2	3	642,28	251,26	185,86	715,39	49,78	83,14	439,21	6,59	0,41	1,30	2,71	38,83	1,28		4,92	0	2,07	3,56	865,56	49,78
42		201																	0,1				
0	3	2	3	901,60	240,07	197,85	705,33	86,84	76,25	300,43	9,63	0,66	1,72	4,17	85,96	0,73	5,04	1,03	8	2,77		886,44	86,84
42		201																	0,1				
1	6	2	3	609,41	209,33	89,56	301,30	359,61	73,93	574,91	6,20	0,59	1,09	0,78	55,96	0,54	0,34	1,60	4	5,13	2,20	447,69	359,61
42		201																	0,2				
2	7	2	3	539,73	255,68	124,82	209,40	460,88	44,63	597,60	7,95	0,42	1,12	1,33	64,89	0,49	1,26	4,52	9	1,62	4,54	591,48	460,88
42	1	201																	0,2				
3	7	2	3	467,28	159,75	30,45	140,80	11,93	29,61	441,59	2,71	0,48	0,40	1,78	24,93	0,65	14,10	1,86	0	0,42	6,40	648,11	11,93
42	1	201																	0,0				
4	9	2	3	54,37	58,48	42,07	68,10	37,03	38,73	358,01	3,34	0,19	0,46	1,57	39,72	0,36		1,02	7	0,36	3,96	714,95	37,03
42	2	201																	0,2				
5	0	2	3	441,14	50,57	72,81	112,41	247,51	36,67	728,66	4,56	0,70	3,46	2,16	68,58	0,29		5,08	7	1,05	0,38	451,70	247,51
42	2	201						1075,5											0,2				1075,5
6	1	2	3	752,75	175,15	105,35	355,15	8	29,20	840,41	5,67	1,27	2,45	2,52	63,53	0,74		7,92	6	4,63	5,33	712,38	8
42	2	201																	0,2				
7	2	2	3	256,04		141,03	321,54	165,41	85,07	785,02	9,36	0,32	1,44	2,76	11,41	0,75	0,40	5,17	0	6,45		265,26	165,41
42	2	201																	0,1				
8	3	2	3	208,59	152,66	167,06	594,98	51,60	112,51	1302,54	12,25	0,61	3,24	1,60	42,63	1,46		9,81	3	3,02		474,42	51,60
42	2	201																	0,2				
9	4	2	3	281,84	308,06	534,90	1083,25	434,50	174,62	1262,35	23,75	1,89	0,69	6,82	162,88	2,65	4,74	6,09	4	2,45	6,57	218,98	434,50
43	2	201																	11,0	0,4			
0	5	2	3	333,19	506,65	507,78	1749,01	181,14	223,25	2245,29	14,73	1,48	4,20	3,62	299,78	5,39		8	9	3,74	2,44	559,99	181,14
43	2	201																	0,1				
1	6	2	3	309,75	189,40	281,71	463,04	563,24	147,37	971,80	11,55	1,57	2,21	3,68	178,32	1,34	3,41	1,25	9	3,20	3,86	266,68	563,24
43	2	201																	0,1				
2	7	2	3	231,76	320,61	192,69	139,69	299,21	100,21	1001,71	11,23	0,16	4,15	5,82	154,06	5,21		0,53	1	1,77	4,46	283,59	299,21
43	2	201																	0,4				
3	8	2	3	326,36		232,48	113,14	504,88	85,63	1158,55	8,51	1,58	0,95	2,45	86,13	1,81		1,02	3	4,79		202,80	504,88
43		201																	0,2				
4	1	3	3	420,77		191,72	292,74	242,48	121,80	662,32	9,98	1,64	0,50	2,18	54,48	0,62		2,50	7	2,64		235,06	242,48
43		201		1212,7															0,0				
5	3	3	3	5		70,67	201,91	145,11	60,72	376,35	3,09	0,64	1,82		16,34	0,42	2,22	3,38	1	1,53	3,86	984,18	145,11
43	4	3	201	2012,3	101,75	20,39	83,22	232,10	56,92	395,01	1,22	0,40	0,61		12,75		4,29	0,52	0,0	0,29		2837,5	232,10

6		3	7																7		9							
43		201	7293,3																0,0		6777,3							
7	5	3	3	6	164,18	48,69	186,14	10,03	138,42	374,68	1,41	0,15	0,64	0,41	24,78	0,73	1,74	3,36	2	0,16	3	10,03						
43		201	1187,7																	0,0	2691,3	1426,1						
8	6	3	3	3	653,59	278,14	895,06	2	153,80	700,52	10,48	0,48	0,07	3,94	18,75	0,48	2,38	1,02	3	1,31	2	2						
43		201																		12,3	15,4	0,3						
9	8	3	3		97,60	414,84	232,01	677,76	761,31	134,54	1667,46	17,65	1,43	5,20	1,98	151,46	9	3	3	8,05	6,09	132,92	761,31					
44		201																				0,2						
0	9	3	3		138,07		179,89	581,93	397,15	45,52	615,13	6,88	1,12	1,79	1,83	90,15	0,60	1,95	6	7,36	5,53	33,71	397,15					
44	1	201																				12,2	11,5	0,6				
1	0	3	3		113,72	245,50	111,12	461,68	455,18	95,54	993,89	11,31	0,89	2,59	1,72	100,69	1	1	3	6,82	5,09	121,18	455,18					
44	1	201																					0,5					
2	1	3	3		153,46		138,86	396,42	945,37	102,32	830,57	7,49	0,22	1,53	0,28	51,39		2,39	2,21	5	4,47	364,15	945,37					
44	1	201																					0,1					
3	2	3	3		176,82	131,79	158,49	277,45	459,97	71,57	1012,98	8,45	1,57	4,13	5,37	53,03			7,15	5	7,09	5,12	297,49	459,97				
44	1	201																					0,4					
4	3	3	3		223,70		108,85	394,25	56,83	105,05	800,60	8,28	2,26	1,70	2,16	73,05	1,54	1,62	9	9,28	6,94	151,91	56,83					
44	1	201																					0,5	10,8	1656,6			
5	4	3	3		433,65	170,55	104,72	414,07	6	110,24	1377,41	8,12	3,79	8,89	4,60	43,20	0,64	2,06	5	5	6,01	410,51	6					
44	1	201																						0,7	1941,6	1176,0		
6	5	3	3		795,68	280,73	27,29	130,26	8	65,14	458,34	2,89	0,34	0,62	1,36	31,29	0,68	2,50	7,77	4	2,00	5,70	4	8				
44	1	201																						0,0				
7	7	3	3		720,80	121,37	27,27	96,02	127,34	29,50	177,56	0,41	0,35		0,27	16,11	0,14	3,64	5	1,44		874,17	127,34					
44	1	201																						0,9				
8	9	3	3		130,95	157,08	134,11	324,67	320,27	106,39	684,99	7,35	1,18	3,98	3,84	90,81	0,82	9,53	9	4,45	5,16	224,49	320,27					
44	2	201																						0,1	1048,5			
9	1	3	3		462,39		14,30	48,74	116,78	38,51	265,61	1,28	0,43		6,90			6,53	9	1,28		4	116,78					
45	2	201																						0,4	12,0			
0	3	3	3		158,61	184,44	86,59	250,12	203,73	82,71	728,04	7,54	0,94	2,78	2,28	43,57	0,71	5,10	5	2,51	4	220,77	203,73					
45	2	201																						0,2	3181,9			
1	5	3	3		5	234,55	29,34	115,01	245,11	136,71	509,82	2,35	0,64	1,40	0,10	25,06	0,25	5,85	0,68	4	3,68	8	245,11					
45	2	201																						0,0	3380,0			
2	6	3	3		9	343,92	56,50	255,83	871,45	102,04	347,56	2,66	0,33	0,15	1,42	30,55		0,70	7	3,46		6	871,45					
45	3	201																						0,0	1308,3			
3	0	3	3		442,85	91,94	24,89	100,92	1	19,34	172,46	1,12	0,42	1,44		10,42	0,37	0,36	9,16	8	2,42		429,72	1				
45	3	201																						0,0	2579,9			
4	1	3	3		1	577,75	45,61	174,79	495,63	127,17	407,38	5,86	1,73	3,08	1,73	50,21	0,18	4,44	9	1,88	4,45	1	495,63					
45		201																						0,0	5722,6			
5	3	4	3		1	289,73	415,42	1737,34	293,90	237,79	1148,69	20,85	1,60		5,03	182,05	1,12	8,54	6	3,61		3	293,90					
45		201																						0,0	8512,6			
6	4	4	3		0	456,92	123,63	629,84	485,39	66,75	578,69	8,72	0,25	1,53	0,97	74,12	3,24	6,78	3,73	3	0,60		8	485,39				
45		201																						0,4	1675,0			
7	5	4	3		441,09	763,43	521,61	2650,99	239,86	198,92	1581,55	38,05	1,76	0,14	8,64	417,18		5,32	5	1,83		5	239,86					
45	7	4	201																					0,2	8,82	4,16	323,86	393,86

Bölüm 2 PM_{2.5} fraksiyonu
(konsantrasyon değerleri ng m⁻³ cinsindedir)

			Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Mn	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	SO4	NO3
10	8	2010	2268,43	257,00	195,14	711,74	7798,72	261,94	485,97	4,20	4,02	1,96	5,83	190,56	0,73		1,93	0,19	7,77	8,96	1241,30	7798,72	5261,60
11	8	2010	986,88	254,32	98,18	294,20	7203,06	243,35	246,84	12,24	1,06	0,86	3,15	101,14	1,42	0,02	8,14	0,39	3,45	10,01	353,65	7203,06	3101,23
12	8	2010	857,82	140,17	330,53	520,18	2744,95	401,78	670,77	13,16	1,16	0,47	5,49	134,15	1,26		7,50	0,33	5,33	8,66	537,13	2744,95	1706,37
14	8	2010	1273,47	256,59	88,18	407,07	2128,26	250,59	474,50	7,09	1,20	1,17	5,52	154,95	1,32		5,21	0,22	7,28	7,57	1201,29	2128,26	2830,92
15	8	2010	733,50	274,14	151,57	553,44	3597,72	313,91	604,18	7,15	1,79	1,78	4,77	277,92	1,14	6,44	5,03	0,41	10,22	7,16	548,61	3597,72	2726,97
23	8	2010	502,94	66,60	46,07	401,04	6877,08	249,07	372,99	6,71	2,69	0,64	1,84	165,98	1,50	0,17	8,83	0,80	6,12	8,92	145,96	6877,08	4046,03
24	8	2010	1929,24	270,02	205,57	839,87	8946,75	274,74	413,57	8,58	2,72	5,28	8,52	289,64	1,23		7,72	0,82	2,35	7,86	549,86	8946,75	3832,22
25	8	2010	149,27	62,98	161,04	912,15	8087,42	113,57	297,48	2,67	2,45	5,60	9,88	128,23	1,14		11,58	0,48	4,79		53,15	8087,42	3615,36
26	8	2010	159,48	127,03	82,67	332,81	11018,74	324,96	355,09	5,77	3,34	2,18	4,67	79,93	1,58	4,29	10,83	0,68	8,51	14,49	60,27	11018,74	3076,58
28	8	2010	518,45	174,05	237,61	457,33	16054,27	483,43	564,48	18,75	3,32	1,50	5,75	335,86	1,52	0,63	9,82	0,53	9,38	17,73	113,77	16054,27	3386,55
29	8	2010	277,31	35,91	160,19	492,27	5917,20	205,91	252,86	14,14	3,91	0,72	5,10	242,56	2,77	1,24	30,36	0,54	3,62	10,88	76,10	5917,20	1202,99
4	9	2010	337,06	183,14	234,94	1185,53	3184,47	274,94	561,02	11,46	0,62	2,58	2,31	173,08	0,96	12,14	5,90	0,80	6,03	5,85	297,60	3184,47	2154,38
5	9	2010	1003,49	302,29	192,93	2104,23	6065,69	297,62	660,08	20,36	1,60	2,47	14,46	369,93	2,29	0,98	8,92	1,02	11,92	8,20	996,19	6065,69	3001,50
6	9	2010	1239,77	214,95	215,21	661,35	6590,87	285,73	559,67	12,88	1,23	6,52	1,92	176,19	1,33	3,48	5,07	1,00	9,09		763,15	6590,87	5422,80
7	9	2010	535,06	186,21	291,61	1451,69	7898,41	154,11	302,91	6,86	4,25	1,48	5,05	286,85	0,78	4,78	9,19	0,47	11,46	8,53	160,86	7898,41	3573,50
8	9	2010	699,79	280,99	883,57	1984,19	10620,66	349,71	896,71	22,44	1,65	3,30	9,77	298,11	2,34	9,30	7,23	0,94	10,08	13,13	210,84	10620,66	3624,84
10	9	2010	561,64	224,44	711,55	781,57	7213,69	335,54	515,94	19,32	1,85	2,03	10,67	507,86	0,85	7,14	16,05	0,77	9,05	13,91	299,61	7213,69	4635,98
11	9	2010	1509,14	215,23	125,26	1547,64	5729,71	258,39	406,52	13,01	2,23	3,56	2,83	122,13	1,18	7,04	5,76	0,92	9,89	8,74	845,12	5729,71	3562,43
12	9	2010	330,06	115,63	358,07	432,21	5689,34	191,60	385,30	9,18	1,17	1,41	1,92	102,35	1,14	6,75	2,06	0,31	9,56	10,11	154,73	5689,34	3584,09
13	9	2010	926,65	87,18	118,55	671,81	5905,38	226,95	171,51	10,67	2,08	0,88	7,52	173,28	0,59		8,38	0,41	4,78	9,54	387,30	5905,38	3605,85
14	9	2010	690,30	188,39	394,02	1376,89	6304,41	233,23	240,96	6,71	0,42	2,75	6,40	186,05	1,35	5,34	5,51	0,27	2,49		507,52	6304,41	2533,84
16	9	2010	1218,35	167,75	54,51	177,48	2810,82	95,11	230,77	4,56	0,56	2,06	3,26	79,76	0,18		4,26	0,19	2,09	2,06	1223,12	2810,82	1648,46
17	9	2010	137,53	74,99	11,29	100,52	2887,07	23,45	77,97	2,70	0,64	1,27	0,70	22,80	0,45	13,52	2,38	0,51	2,46	6,52		2887,07	
19	9	2010	941,74	103,43	39,51	128,27	1161,07	120,10	172,86	1,57	0,83	2,26	1,92	82,05	0,11	16,38	5,27	0,24	3,42			1161,07	
20	9	2010	581,02	242,01	39,63	236,00	3580,57	161,52	184,83	5,22	1,73	1,36	1,63	56,47	0,70		4,60	0,26	1,89			3580,57	
21	9	2010	800,19	227,14	70,67	234,44	4130,22	96,67	180,19	4,36	1,26	3,05	2,75	20,40	0,57	3,01	2,70	0,15	2,50	5,94		4130,22	
23	9	2010	249,52	25,75	44,15	97,53	2233,51	60,14	119,83	3,26	0,40	0,39	2,74	60,24	0,36	7,82	2,00	0,18	4,04			2233,51	
24	9	2010	107,60	287,28	43,73	136,92	371,94	284,27		0,83	0,07	22,97	1,87			2,62	1,09	0,07	1,41			371,94	
25	9	2010	303,96	819,30	1868,00	3464,78	1109,97	1453,33		1,23	0,93	256,97	8,62				6,15	0,34	10,58			1109,97	
26	9	2010	149,27	15,96	97,00	103,21	2384,92	189,07	889,61	6,21	0,42	1,32	0,87	78,06	1,13	1,71	9,15	0,31	4,25			2384,92	
28	9	2010	197,99	64,32	127,84	299,22	2306,85	120,60	1008,69	7,57	0,54	3,87	1,55	75,32	0,49	1,74	2,23	0,27	5,26			2306,85	
29	9	2010	368,96	154,32	171,07	804,26	4669,23	89,11	231,72	2,24	1,86	0,76	3,86	138,35	0,58	12,56	1,53	0,30	2,44			4669,23	
30	9	2010	533,17	140,47	48,10	199,93	3032,57	114,65	161,29	10,67	0,35	1,00	2,72	71,74	0,66	12,89	5,74	0,17	3,17	8,23		3032,57	
1	10	2010	86,52	410,64	813,87	2121,60	1207,26	876,98		1,70	0,95	55,61	3,02			10,28	5,34	0,35	5,16			1207,26	
2	10	2010	268,86		75,05	60,15	2547,06	58,88	240,87	6,97	2,83	2,69	0,83	102,04	1,24		5,42	0,31	4,69	8,73		2547,06	

4	10	2010	474,47	198,44	463,56	1293,68	1352,49	592,24		0,76	0,72	15,36	1,84		14,48	1,75	0,21	2,17			1352,49		
5	10	2010	225,52		132,70	183,27	2824,58	70,66	83,58	2,23	0,79		1,00	68,86	0,95	13,53	2,23	0,19	1,26			2824,58	
8	10	2010	108,78	129,86	119,89	389,86	1594,27	92,01	326,42	5,06	0,31	0,35	2,45	85,10	0,58	9,30	1,30	0,34	2,72			1594,27	
9	10	2010	469,06	40,67	70,27	304,67	435,42	46,91	197,94	1,48	0,09	0,15	0,49	61,81		19,19	2,67	0,14	0,97			435,42	
10	10	2010	550,00	71,52	193,81	551,86	776,80	144,40	1082,65	5,73	0,38	3,50	3,49	79,56	0,98	10,72	1,11	0,36	4,34			776,80	
11	10	2010	124,27	185,82	102,64	579,59	664,85	109,97	484,42	9,59	0,42	1,22	2,97	112,55	0,51	2,10	2,53	0,42	1,52			664,85	
12	10	2010	365,39	200,15	170,27	230,80	1224,48	126,47	456,67	6,00	0,60	2,82	0,72	51,43	1,21	4,29	2,35	0,43	4,96	9,04		1224,48	
13	10	2010	606,32	167,80	88,55	1307,29	1242,85	131,49	1017,37	9,96	2,69	0,54	3,85	136,53	2,49	3,78	3,04	0,20	2,32			1242,85	
14	10	2010	970,88	333,93	176,37	467,48	2386,94	60,12	553,20	3,78	1,22	1,80	0,93	48,67	0,85		1,85	0,24	3,62	7,70		2386,94	
15	10	2010	96,19	260,15	197,37	1039,95	1276,70	334,13	124,88	2,55	1,43	13,40	4,54	28,63		3,11	2,10	0,77	1,21			1276,70	
16	10	2010	178,36	101,50	17,77	90,53	1188,38	16,76	78,77	0,91	0,12	0,18		20,79	0,20	3,70	0,50	0,08	0,30			1188,38	
17	10	2010	191,66		26,77	154,36	487,46	24,65	655,23	2,54	0,27	2,80	3,12	22,49	0,23	1,35	2,26	0,08	1,58			487,46	
18	10	2010	516,99	80,81	43,42	348,84	431,79	47,01	600,74	4,54	0,29	1,41	3,58	33,45	0,54	1,30	3,76	0,31	1,71	10,55		431,79	
19	10	2010	191,13		52,44	241,12	1599,27	55,08	181,66	2,36	0,72	0,81	2,33	19,26	0,29	4,17	1,73	0,28	3,15	4,68		1599,27	
20	10	2010	219,82	67,38	71,30	547,23	1757,97	71,54	679,46	3,02	0,94	0,75	2,65	21,68	0,52	2,37	2,58	0,23	2,90	6,46		1757,97	
27	10	2010	1657,34	138,28	122,21	447,93	1491,08	99,25	149,52	3,02	0,51	0,77	2,61	13,22	0,25		3,80	0,05	3,85	6,32		1491,08	
28	10	2010	1034,84	31,72	90,43	160,78	897,14	88,06	146,58	4,93	0,33	0,32	1,46	25,08	0,53		0,96	0,09	2,26			897,14	
1	12	2010	46,05	870,19	325,05	1639,50	80,80	803,99		3,64	0,21	80,30	1,98			1,42	1,01	0,17	1,85			80,80	
2	12	2010	53,50		17,90	54,00	2850,98	102,73	156,48	1,95	0,63	3,39	0,11	10,45	1,18	0,65	3,52	0,47	7,40	14,33		2850,98	
3	12	2010	50,20	542,12	56,08	246,51	1209,59	145,61	1182,65	8,90	0,48	1,93	2,41	15,50	2,78	0,18	1,16	1,26	3,50			1209,59	
4	12	2010	141,59		46,44	120,88	1200,32	174,54	85,15	1,60	0,25		0,53	27,39	0,95		2,60	0,74	10,52	12,08		1200,32	
13	2	2011	336,66	129,69	74,10	101,82	511,53	72,18	195,95	2,93	0,23		2,52	8,39	0,33	0,31	2,07	0,05	1,70	3,55	541,36	511,53	503,46
14	2	2011	748,00	102,75	7,28	98,52	644,46	55,15	182,53	1,28	0,15	0,29	0,32	11,44	0,26	2,97	3,18	0,05	0,88	7,96	671,00	644,46	405,44
15	2	2011	179,13	45,30	15,04	26,89	877,28	44,10	191,38	1,42	0,14	0,05	0,49	9,02			1,70	0,06	0,84	7,46	297,33	877,28	956,89
16	2	2011	281,51		39,08	122,43	1269,11	38,64	162,87	2,02	0,56	0,61		30,56	0,29		1,42	0,09	2,86	7,89	453,13	1269,11	1108,32
17	2	2011	1486,79	552,36	13,66	93,15	1311,87	91,77	92,57	0,69	0,15		0,77	17,61		1,37	0,88	0,09	0,24		200,22	1311,87	293,30
18	2	2011	1643,48	113,58	13,32	34,54	1270,63	45,55	30,58	1,10	0,24	0,10	0,53	18,74			0,83	0,09	1,26		1378,00	1270,63	345,71
22	2	2011	747,41	123,94	15,14	67,44	2151,50	53,50	125,37	0,83	0,46	0,98	1,17	34,55	0,24	4,79	2,16	0,17	3,29	5,43	955,44	2151,50	841,33
23	2	2011	1382,29	205,84	43,56	97,89	1572,35	103,31	86,88	1,61	0,92		0,22	28,10	0,06		0,75	0,05	0,51	5,76	3413,47	1572,35	326,80
24	2	2011	4207,90	430,64	6,87	33,56	1703,26	98,73	196,22	0,43	0,05		0,62	13,03			2,38	0,04	0,40		5998,02	1703,26	243,85
25	2	2011	129,16	55,40	7,24	24,04	627,83	25,94	105,43	0,61	0,10	0,31	2,10	27,84	0,16		2,64	0,07	2,18		304,05	627,83	736,27
27	2	2011	88,81		9,48	28,41	1640,03	53,01	117,04	0,99	0,22	1,78	1,67	38,60		0,88	1,37	0,68	0,95		407,00	1640,03	608,34
28	2	2011	64,97	74,04	16,11	75,95	1618,88	74,38	265,72	1,98	0,39	2,22	1,27	59,17		1,19	1,54	0,21	2,05	5,52	386,97	1618,88	742,96
1	3	2011	60,03	58,40	21,59	40,03	1645,00	88,21	149,95	5,33	0,36	2,98	2,94	44,87	0,15	6,56	2,01	0,42	1,81		127,96	1645,00	1450,19
3	3	2011	269,22		45,39	75,45	3978,04	101,47	213,83	2,38	0,62		3,87	107,49	0,33		4,17	0,60	1,69	13,09	882,34	3978,04	599,13
4	3	2011	177,26	49,31	36,11	125,55	4146,06	152,91	435,48	1,57	0,52	1,25	0,54	129,96			7,05	0,62	2,15	15,76	196,69	4146,06	1137,02
5	3	2011	168,60	79,00	71,65	369,82	5102,47	123,54	476,16	2,48	0,73	5,60	2,86	52,95	13,94	4,58	6,74	0,96	0,88	7,14	902,48	5102,47	2241,56

6	3	2011	140,40	133,59	151,89	427,94	4048,48	185,53	512,31	5,65	0,77	1,75	1,79	210,13	1,43		8,40	0,94	5,56	9,15	150,81	4048,48	1583,66
7	3	2011	40,57	266,57	208,53	1308,37	2951,64	206,43	676,13	11,14	0,91	1,44	6,12	454,44	0,46	7,23	3,12	0,29	3,20	9,83	72,81	2951,64	1388,20
10	3	2011	82,14	51,38	114,32	172,17	5303,34	108,28	211,25	4,65	0,27	4,15	3,58	62,50	0,38		0,82	0,20	5,88	4,66	25,84	5303,34	678,21
11	3	2011	238,68	270,60	185,25	4511,48	8025,29	487,75	759,20	16,07	0,69	3,73	4,66	578,74	0,93	3,51	2,07	0,46	1,58	11,54	391,35	8025,29	636,82
12	3	2011	70,60	56,25	53,73	82,40	2940,30	56,65	279,63	3,40	0,28	0,51	1,34	25,39		2,55	1,31	0,36	2,83	9,54	162,55	2940,30	1087,33
13	3	2011	268,02	42,73	24,56	117,78	3988,72	71,05	146,80	0,64	1,60	1,28	0,38	36,04	1,11		4,60	0,52	0,79		614,66	3988,72	1506,02
14	3	2011	225,67	60,84	46,63	63,87	4055,66	31,98	258,49	2,88	0,28	0,16	0,75	61,53	0,53		3,53	0,10	1,53	9,58	439,87	4055,66	994,22
15	3	2011	590,68		17,28	78,78	2391,20	30,11	105,65	2,11	0,24		2,15	79,37	1,28	1,88	4,43	0,67	0,63	4,82	1115,11	2391,20	601,79
16	3	2011	162,77	45,54	17,95	54,10	2227,55	40,52	243,73	1,43	0,35	1,54	1,39	26,32		1,36	1,88	0,34	0,97		301,71	2227,55	1038,97
14	4	2011	1707,91		30,66	52,19	2564,55	49,73	79,42	0,77	0,35			54,50			9,82	0,11	0,61	32,46	1989,00	2564,55	1983,11
20	4	2011	713,53	171,38	46,23	273,90	2632,78	74,34	490,08	1,47	0,69	1,02	1,81	43,76	0,58		1,95	0,14	4,83	3,97	618,64	2632,78	1596,41
21	4	2011	393,97	30,93	36,82	104,56	2226,05	49,33	171,76	2,39	0,21	1,40	0,46	42,21	0,84		0,73	0,22	2,15		729,49	2226,05	1057,65
24	4	2011	457,49		48,43	77,03	2521,51	42,15	135,42	2,88	1,13	1,69	1,02	54,05	1,31		3,39	0,18	3,97		497,94	2521,51	1305,01
25	4	2011	131,21		86,19	172,23	2249,84	67,45	155,75	2,30	0,38	1,18	1,55	113,25			3,90	0,19	3,72	5,03	236,51	2249,84	1386,95
27	4	2011	682,51	116,03	120,20	538,79	1981,97	76,79	2072,08	4,57	0,56	5,13	3,11	123,29	0,32	1,35	4,51	0,26	5,25	4,32	1631,52	1981,97	2231,13
28	4	2011	126,16	16,47	71,84	260,03	2762,27	36,27	203,86	1,69	1,58	0,18	1,02	74,31	0,68	1,01	0,59	0,09	2,98	3,49	208,60	2762,27	1066,67
3	5	2011	870,54	161,68	280,23	1275,23	748,51	234,49	266,41	7,18	3,86	0,37	4,16	305,63	1,59	1,80	6,00	0,37	7,62	5,36	1385,26	748,51	349,35
4	5	2011	550,37	314,92	167,69	739,98	2198,28	113,62	436,90	9,51	2,84	0,86	2,10	373,49	1,42	1,69	7,19	0,56	7,98	6,20	899,09	2198,28	2432,23
7	5	2011	631,85	87,50	110,28	543,85	2213,14	94,23	477,63	4,18	0,36	2,47	1,36	156,03	0,48		2,89	0,23	4,25	3,30	1280,11	2213,14	883,61
10	5	2011	824,30	68,34	114,44	333,11	3081,85	30,06	269,00	8,15	1,45	1,02	1,58	123,68	0,57		4,21	0,13	5,19	3,87	1494,81	3081,85	1598,49
11	5	2011	633,87	38,92	102,52	253,09	3710,54	91,86	323,85	2,16	1,05	0,82	0,86	170,48	0,58		8,79	0,47	4,21	5,36	1257,76	3710,54	1579,89
12	5	2011	576,17	172,72	46,91	488,98	3564,66	25,83	322,73	4,20	1,90	1,93	1,79	111,32	2,62		8,90	0,50	2,94	5,39	1261,28	3564,66	1706,22
13	5	2011	1008,97	133,82	71,96	237,35	5988,28	52,23	208,72	8,52	4,36	2,87	1,48	77,16	2,38		7,95	0,36	1,53	3,24	1389,72	5988,28	1703,07
14	5	2011	475,90		55,37	90,25	1511,01	54,24	89,98	3,24	1,70	0,89	1,57	94,74	1,76		5,36	0,33	1,44	5,26	635,42	1511,01	224,34
17	5	2011	378,58	46,62	54,68	352,11	4626,94	62,94	104,08	4,55	2,48	0,95	0,28	56,55	2,69	2,96	5,14	0,20	2,71	2,95	600,00	4626,94	843,33
18	5	2011	387,26	48,61	73,53	427,20	5034,66	88,03	158,16	6,99	3,36	0,66	0,60	129,15	1,86		1,84	0,18	3,67	4,47	812,35	5034,66	963,42
19	5	2011	207,22	68,13	299,07	453,34	2260,58	153,88	256,65	16,75	0,57	2,30	1,31	302,79	1,10		0,89	0,29	7,24	6,29	447,71	2260,58	776,36
20	5	2011	871,38	144,32	147,12	413,09	2153,31	161,96	192,55	3,73	0,61	1,29	3,62	105,53	1,22		5,60	0,36	1,40	4,64	987,12	2153,31	1652,38
21	5	2011	537,57	50,34	75,30	128,66	1572,66	75,37	106,38	1,51	0,66	0,76	1,12	104,14	1,09	0,63	8,29	0,15	3,18		1745,09	1572,66	1403,25
22	5	2011	162,88	115,90	197,02	464,84	2180,07	112,45	385,23	5,94	0,73	6,02	0,51	136,08	2,29		6,33	0,60	3,64	3,98	353,76	2180,07	2321,80
23	5	2011	320,48	82,30	273,69	1719,05	2571,98	128,35	650,87	4,32	1,13	5,62	3,67	246,39	1,44	4,82	7,04	0,22	6,37	7,94	432,32	2571,98	2351,11
3	6	2011	208,75	28,63	91,12	87,46	1913,52	79,79	142,21	1,30	0,21	2,93	1,16	84,40	3,30		3,25	0,36	1,71	5,75	661,01	1913,52	650,82
4	6	2011	674,88	68,85	106,25	230,66	1932,25	223,39	269,63	1,96	0,32	6,84	1,98	54,04	0,42	4,74	4,77	0,27	3,19		1642,44	1932,25	1167,76
5	6	2011	383,42	26,23	220,67	255,35	839,77	164,48	153,82	12,65	1,44	1,55	1,74	66,43	0,85		3,74	0,17	7,15	4,69	1149,74	839,77	455,93
6	6	2011	343,97	98,53	517,25	526,29	3925,35	205,81	181,13	12,07	2,11	0,23	1,34	176,11	1,68		6,82	0,23	3,75	4,65	513,98	3925,35	1500,68
7	6	2011	480,45	53,00	607,26	501,68	1903,01	119,89	141,67	3,96	1,77	0,40	0,87	122,03	0,90		10,21	0,27	1,86		1182,65	1903,01	785,31
8	6	2011	134,63		167,61	221,86	2421,57	128,47	98,66	16,70	0,36	1,56	5,55	68,43	1,05	0,76	3,57	0,12	3,13	7,88	758,83	2421,57	868,90

9	6	2011	229,52	52,36	107,17	177,03	1938,75	73,27	86,55	4,16	0,33	0,53	0,92	156,55	12,12	2,66	0,36	1,27	6,45	864,65	1938,75	594,19	
10	6	2011	127,33	74,10	69,63	165,75	1028,96	64,28	119,21	2,82	0,29	0,05	1,17	37,63	0,74	2,43	0,29	3,57		416,45	1028,96	264,08	
11	6	2011	124,84		150,59	165,82	3048,94	95,99	91,01	3,39	0,84	0,91	0,60	35,41		7,45	0,34	3,72		415,87	3048,94	730,13	
12	6	2011	433,40	136,43	231,78	584,03	2625,40	116,63	106,65	4,44	0,81	0,44	4,92	84,73	0,42	4,54	0,48	3,26		1658,97	2625,40	923,55	
14	6	2011	73,40		70,15	168,12	1983,46	100,77	70,93	1,78	0,94	1,67	0,81	39,20		2,24	0,18	1,73	7,56	160,77	1983,46	685,51	
15	6	2011	259,99		49,36	166,01	2690,93	63,12	89,98	2,26	0,81	0,10	0,86	24,01	0,63	0,22	2,89	0,19	2,53	9,21	348,17	2690,93	638,84
16	6	2011	328,76	29,28	71,29	93,63	1997,62	188,70	244,64	4,82	0,51	2,12	0,44	132,53	0,56	0,88	2,26	0,12	1,62	14,15	458,84	1997,62	1281,78
17	6	2011	264,36	55,46	55,02	336,61	2106,63	179,27	313,08	2,03	1,90	5,08	2,90	71,82		1,18	1,33	0,15	2,29		424,66	2106,63	578,16
18	6	2011	638,47	58,82	138,64	253,95	3002,43	118,91	193,24	7,17	1,19	1,52	4,61	34,33	2,01	4,37	0,25	0,46	3,38	391,32	3002,43	1115,09	
19	6	2011	96,52	48,05	72,15	393,86	4244,67	156,77	201,41	8,51	0,47	3,49	2,96	80,86	1,80	2,91	0,23	2,50	9,03	255,57	4244,67	1899,20	
21	6	2011	418,41	38,31	82,78	280,93	3710,30	127,84	305,75	1,50	1,24	1,85	3,26	70,56	1,16	2,88	2,52	0,25	2,92	6,84	672,83	3710,30	1474,81
22	6	2011	2457,82	104,89	56,37	160,75	2774,72	93,17	129,65	2,39	1,03	0,16	0,14	47,41	2,32	0,64	1,97	0,08	1,04	3,30	4338,33	2774,72	1774,68
23	6	2011	1447,73	144,50	46,34	155,35	3492,60	143,44	156,67	7,84	0,69	0,48	2,38	113,88		3,93	0,13	2,76	4,34	3079,99	3492,60	1972,44	
24	6	2011	291,91	81,09	41,29	127,41	2278,99	57,23	130,53	2,26	0,36	0,25	2,18	21,23		5,07	2,04	0,05	1,59	3,49	505,30	2278,99	1700,59
25	6	2011	423,07	27,28	28,15	151,17	1865,12	59,95	52,93	1,63	0,31	0,39	0,38	26,39		20,26	1,35	0,11	1,97	2,44	377,96	1865,12	533,87
26	6	2011	150,65	63,79	17,13	48,19	1421,56	37,20	101,45	0,82	0,36	1,28	0,50	24,81		7,63	1,88	0,16	1,57	3,36	167,48	1421,56	649,64
28	6	2011	103,57	68,00	72,28	152,85	1723,52	87,53	291,14	6,65	0,48	3,49	4,17	73,77	2,38	33,14	5,24	0,14	1,43	5,93	234,20	1723,52	975,40
29	6	2011	181,80		39,74	96,05	2240,38	82,37	62,12	1,65	1,63	0,49	2,80	10,28	0,57	6,39	1,72	0,22	0,46		359,41	2240,38	992,25
30	6	2011	189,35	25,02	44,74	74,25	487,75	78,81	77,75	2,03	0,27	1,95	0,79	22,90	0,65	2,37	7,17	0,23	1,05	4,75	191,04	487,75	247,42
1	7	2011	550,70	17,33	64,07	165,59	3790,14	113,88	111,54	4,51	2,04	2,80	3,86	21,63	1,61	7,25	6,95	0,65	3,35	4,56	774,06	3790,14	1342,85
2	7	2011	224,42	38,07	33,09	156,46	3841,43	85,25	61,64	3,22	0,51	1,21	1,92	35,54	1,19	3,34	3,56	0,15	1,97	3,10	681,28	3841,43	1359,13
3	7	2011	248,29		35,12	118,15	3841,25	49,72	63,72	3,39	3,09			22,25	1,29	4,47	8,03	0,26	0,23		265,33	3841,25	7847,70
4	7	2011	389,47		76,67	128,19	4364,24	129,95	135,66	4,75	1,79	1,83	0,97	109,80	1,64	2,69	6,58	0,42	2,79	6,13	121,98	4364,24	793,71
5	7	2011	92,05	18,72	80,40	156,96	4539,07	128,96	146,01	6,50	1,11	0,82	1,11	26,95	1,39		4,68	0,27	0,80	7,93	209,58	4539,07	1614,35
6	7	2011	115,42	53,59	47,64	98,93	2971,20	85,59	247,12	4,86	0,48	0,98	0,56	64,75		4,89	5,53	0,22	2,28	4,36	220,78	2971,20	1002,79
7	7	2011	121,31	49,51	84,13	70,94	2376,53	120,79	243,79	3,31	0,37	3,40	2,36	51,62	2,01	2,92	4,49	0,26	2,52	2,92	264,84	2376,53	986,97
8	7	2011	162,49	39,59	67,27	210,56	4268,21	89,41	138,19	7,92	1,48	1,18	2,22	34,36		4,85	12,99	0,60	2,17	6,91	355,27	4268,21	1830,77
9	7	2011	774,40	41,24	85,70	434,39	4017,40	66,00	130,63	7,36	3,13	4,17	1,99	17,52	1,53	2,55	4,79	0,25	1,00	7,23	1460,26	4017,40	2000,87
10	7	2011	621,29	67,24	139,08	318,94	4854,55	80,89	170,60	3,81	1,14	1,31	2,29	57,73	0,78	3,17	13,14	0,28	1,97		1192,79	4854,55	1515,31
12	7	2011	272,34	65,68	75,41	250,33	3411,64	77,36	285,53	13,77	1,31	0,91	5,75	67,63	1,01		3,80	0,42	2,61	2,38	589,15	3411,64	1953,67
13	7	2011	429,96	100,82	93,14	542,43	2532,17	116,35	189,11	13,48	0,53	0,61	2,89	144,90	1,00	12,29	3,87	0,40	3,74		930,42	2532,17	1491,55
14	7	2011	1588,73	172,85	165,46	481,44	3199,75	123,83	339,91	4,21	1,96	1,82	2,84	22,34	0,92	1,10	5,16	0,34	2,06	3,49	1926,24	3199,75	1655,83
15	7	2011	2093,23	135,96	199,87	570,01	2548,41	57,51	124,55	4,34	0,91	0,73	1,48	164,84	1,12	27,05	10,12	0,35	0,74	5,26	2286,68	2548,41	2456,12
16	7	2011	659,91	62,45	159,00	342,30	3428,99	86,71	62,85	1,94	0,54	0,61	0,21	40,40	0,52	8,94	4,50	0,22	2,26		946,43	3428,99	1322,03
17	7	2011	436,03	181,59	189,68	973,20	5787,84	119,59	265,21	6,50	1,78	2,74	3,82	79,10	0,65	2,39	4,35	0,32	3,27	9,16	570,05	5787,84	2799,55
18	7	2011	638,01	217,91	78,34	887,29	4313,33	225,08	334,53	8,50	0,92	2,42	4,37	29,45	0,37	13,02	4,73	0,19	1,98	4,78	1993,62	4313,33	2591,33
19	7	2011	795,78	264,12	70,06	1126,75	2661,02	120,48	233,25	4,02	0,61	0,74	2,26	86,32		2,44	2,02	0,20	1,52	6,73	1899,72	2661,02	1503,84

20	7	2011	254,82	302,24	114,44	497,82	1681,92	81,27	187,59	1,96	0,11	0,13	0,91	43,44	0,23	1,75	3,50	0,13	1,09	638,25	1681,92	799,49	
21	7	2011	243,97		776,37	2781,61	1464,76	56,18	164,41	3,93	0,26	0,48	3,31	206,12	0,90		12,02	0,22	2,04	688,86	1464,76	903,69	
1	8	2011	463,74	45,58	90,76	249,05	6895,77	193,27	89,77	2,64	1,00	1,14	1,27	43,78	0,68	10,42	2,17	0,12	1,19	6,78	1149,22	6895,77	1965,65
2	8	2011	392,80	57,94	87,20	609,45	7225,42	208,78	98,82	5,76	1,62	1,80	1,51	28,31	1,23	15,82	5,69	0,35	2,12	3,67	494,78	7225,42	1922,93
3	8	2011	561,18		74,27	405,18	7555,59	170,90	103,93	2,42	3,85	0,25	0,88	16,89	0,68	7,73	4,69	0,22	1,33	5,40	822,93	7555,59	1721,81
4	8	2011	271,69	98,71	196,12	310,86	6687,51	232,26	141,65	6,14	4,76	1,66	1,12	24,64	0,61	3,58	5,92	0,25	1,29	4,04	243,39	6687,51	2402,12
5	8	2011	209,84	34,50	144,68	223,66	5939,46	158,41	157,12	3,57	0,70	1,99	0,75	32,32		4,65	2,16	0,15	1,81	5,80	687,32	5939,46	2193,00
6	8	2011	214,52	32,30	186,48	289,21	4555,26	123,57	109,25	4,20	0,49	1,03	1,10	54,03		6,73	6,00	0,36	1,75	10,41	558,67	4555,26	2027,48
7	8	2011	499,42	49,37	86,37	198,49	4506,03	196,53	129,28	3,07	1,63	1,99	3,83	40,09	2,71	0,45	6,80	0,37	1,20	8,46	747,43	4506,03	1872,19
9	8	2011	479,43	25,70	90,18	324,73	4851,00	113,21	165,23	3,56	0,68	2,27	2,75	50,10	1,47	7,32	4,85	0,32	1,53	3,68	742,69	4851,00	2395,90
12	8	2011	343,89	31,13	223,28	249,65	6351,97	267,19	117,64	5,16	0,88	3,27	1,39	60,06	0,47		5,30	0,29	1,13	6,80	712,27	6351,97	2521,09
13	8	2011	424,20	27,07	97,62	361,95	5311,52	91,64	305,44	4,40	3,30	0,46	2,08	64,79	1,09	7,24	4,54	0,18	3,08		513,37	5311,52	1688,77
14	8	2011	577,21	101,54	189,70	626,33	4574,96	257,25	253,55	16,53	2,33	2,56	4,51	316,80	0,44		11,14	0,46	5,40	6,95	757,58	4574,96	2263,21
15	8	2011	811,37	81,27	269,65	485,56	5271,39	139,67	249,30	7,36	2,80	0,81	1,96	122,23	1,83		7,76	0,43	6,09	5,36	931,25	5271,39	2884,53
16	8	2011	625,57	37,99	170,64	441,61	6555,16	141,39	212,97	10,25	3,57	3,44	2,66	97,65	0,26		9,79	0,45	2,41	11,58	805,86	6555,16	2690,96
17	8	2011	636,31	45,59	194,23	530,97	4283,66	188,11	191,71	18,43	3,03	0,94	0,78	140,49	2,45		8,14	0,40	6,71	7,85	754,83	4283,66	1794,73
18	8	2011	141,98	56,69	116,42	410,81	6860,22	220,49	247,64	5,45	0,17	1,62	3,77	127,40	0,39		2,88	0,16	1,62	6,74	759,74	6860,22	2413,41
19	8	2011	188,57	59,26	108,67	618,77	5665,36	253,52	314,41	6,49	1,64	2,96	3,62	105,62	0,72		12,68	0,27	2,78	5,73	1403,55	5665,36	9362,29
20	8	2011	366,90	102,61	162,24	343,83	6888,27	215,96	366,49	10,78	1,92	0,94	0,63	90,33	1,05		7,97	0,42	1,71	12,10	363,76	6888,27	2207,15
21	8	2011	184,39	77,37	111,48	513,78	7881,44	194,48	345,53	13,98	1,66	1,69	6,05	49,25	1,25		3,45	0,19	3,18	7,52	501,21	7881,44	1916,81
22	8	2011	269,41	86,23	121,43	337,26	7155,55	129,16	177,98	11,94	1,12	2,24	1,32	60,66	1,88		2,97	0,08	1,70	5,08	621,64	7155,55	2053,70
23	8	2011	365,35		119,11	301,50	9178,73	237,27	250,83	5,34	1,44	0,64		116,61	1,19		8,20	0,12	5,54		732,81	9178,73	2228,07
25	8	2011	163,71	42,58	21,33	97,59	1803,18	67,91	137,44	0,90	0,40	0,38	0,88	32,01	1,62		3,33	0,15	0,43		400,36	1803,18	718,62
26	8	2011	180,15		19,46	72,58	1253,48	63,32	90,94	1,09	0,19		2,05	20,79			4,25	0,14	0,50		599,51	1253,48	758,14
27	8	2011	250,69	71,38	54,01	168,20	3230,65	83,33	555,82	4,03	0,38	0,16	1,08	81,13	1,16		3,53	0,72	1,28	8,64	841,19	3230,65	756,44
29	8	2011	284,62	29,19	30,38	99,04	1428,09	109,88	309,28	2,62	0,60	2,14	0,64	33,93	0,97		1,63	0,22	5,59	5,31	436,61	1428,09	862,23
30	8	2011	95,52	35,29	89,82	206,68	1586,41	171,41	177,25	3,47	0,37	2,49	0,52	42,25	1,41		0,81	0,17	0,85	6,54	190,77	1586,41	1190,81
31	8	2011	271,60	62,02	45,63	142,79	3692,70	82,41	140,33	3,95	0,88	1,30	1,20	48,36	1,07		8,20	0,23	0,36	4,55	483,72	3692,70	1716,85
1	9	2011	280,57	43,20	50,06	159,79	3277,58	49,30	37,16	1,98	2,54	0,19	0,35	37,41	0,85		5,69	0,12	0,55	5,80	397,84	3277,58	1532,81
2	9	2011	852,80	67,64	37,13	168,22	2194,40	85,94	37,39	3,14	0,71	0,71	0,22	34,29	0,15		1,65	0,10	0,39		1029,03	2194,40	681,54
3	9	2011	234,30	53,66	30,52	104,19	2958,19	74,95	75,77	5,27	1,07	5,73	1,75	9,62	8,63		2,83	0,10	0,99		294,06	2958,19	4144,12
5	9	2011	133,11	26,27	50,73	127,53	4778,95	105,91	77,74	2,68	1,39	0,91	1,64	41,47	0,45		5,40	0,16	0,61	4,21	276,99	4778,95	1775,99
6	9	2011	249,35	77,60	55,57	333,67	3603,46	133,33	112,44	3,64	0,47	1,09	2,21	75,29	1,02		3,00	0,21	1,71	6,21	566,71	3603,46	1795,71
7	9	2011	294,64	91,01	100,20	472,45	2401,64	41,41	133,01	7,77	1,92	1,09	1,05	92,73	1,90		8,62	0,65	0,62	7,77	752,94	2401,64	1065,57
8	9	2011	160,41	64,29	36,42	499,89	1504,20	78,84	157,38	9,94	0,51	1,11	2,52	103,65	0,83		5,75	0,22	0,67	6,75	484,68	1504,20	684,88
9	9	2011	166,84	153,52	58,36	288,73	3580,09	49,96	136,43	3,94	0,35	1,03	2,89	89,95			1,19	0,43	1,15	4,74	482,86	3580,09	1709,70
2	10	2011	207,51	123,65	66,82	165,06	4414,89	170,84	136,84	2,85	3,44	5,64	4,82	165,84	1,92		8,81	0,26	0,88	9,78	387,50	4414,89	2620,86

3	10	2011	180,44	38,72	161,53	305,42	5494,50	248,18	547,02	8,77	2,21	4,08	3,03	145,10	3,81	0,99	13,56	0,26	2,73	13,59	385,56	5494,50	2197,64
4	10	2011	118,02	40,80	56,16	621,15	5942,83	231,02	327,99	8,45	2,81	5,17	0,91	77,75	1,85		12,60	0,39	1,87	9,90	339,07	5942,83	2047,77
5	10	2011	170,54	82,08	72,59	506,08	4332,02	202,51	303,84	5,42	2,56	2,20	2,14	199,56	0,69		5,47	0,17	4,07	8,49	381,33	4332,02	1346,06
6	10	2011	236,29	85,30	166,24	620,67	7207,38	255,82	235,32	6,13	2,42	0,99	2,74	42,56	0,76		4,63	0,31	3,17	10,33	1053,44	7207,38	2464,55
7	10	2011	219,11	142,14	88,96	753,95	6329,98	238,24	208,15	11,39	2,49	4,09	3,91	86,20	0,73		2,74	0,36	2,29	8,64	335,70	6329,98	2371,19
9	10	2011	195,59	223,82	130,33	615,21	3270,52	193,51	266,58	6,99	1,28	4,75	3,97	113,03	1,88		3,32	0,32	5,26	2,90	491,92	3270,52	1760,93
11	10	2011	112,84	72,25	27,55	384,03	2080,66	110,73	174,61	3,73	0,46	0,24	0,30	119,28	0,66		1,19	0,19	2,43	4,56	591,33	2080,66	576,87
12	10	2011	91,22		15,64	270,24	630,87	100,93	407,39	2,59	0,14	2,40	0,93	40,15	1,34		1,09	0,69	4,76		402,60	630,87	500,37
13	10	2011	175,58	80,34	22,66	217,43	1072,89	83,45	175,41	2,40	0,52	2,23	1,45	66,91	0,89		3,92	0,66	3,96	4,00	557,40	1072,89	905,87
14	10	2011	184,67	134,07	27,90	157,12	992,30	132,07	263,96	1,40	0,45	0,73	1,54	34,47	0,80		2,51	0,51	1,54	5,26	587,64	992,30	1227,88
15	10	2011	568,34	100,88	51,36	261,42	4427,51	131,58	144,08	3,96	2,32	1,94	5,81	54,97	0,64		4,02	0,44	1,42		577,91	4427,51	1707,53
16	10	2011	600,09	49,41	12,69	253,69	3542,25	137,29	137,85	1,49	1,22	0,83	0,15	30,05	1,39		11,20	0,57	2,31	3,01	1288,30	3542,25	830,53
19	10	2011	603,88	156,86	22,23	100,57	3140,97	107,63	451,46	4,28	0,53	1,63	0,39	48,04	1,05		15,72	0,84	0,93	13,80	1938,00	3140,97	1467,18
20	10	2011	286,91		31,17	124,31	3480,89	138,97	122,26	2,23	0,40	1,70	2,81	8,16	0,72		8,35	0,44	1,28	7,02	1321,02	3480,89	1189,22
22	10	2011	315,67	99,32	284,98	1464,56	1721,93	397,86	335,26	18,59	1,06	3,01	5,45	53,66	1,41		6,13	0,63	9,28	7,87	592,68	1721,93	1349,36
23	10	2011	788,44	113,37	115,61	872,38	2380,51	122,75	525,03	12,54	0,52	2,63	5,43	163,65	0,92		21,27	0,20	3,03	4,03	1783,90	2380,51	1446,36
24	10	2011	1296,57	113,45	89,96	449,95	1923,59	100,48	481,03	5,30	1,91	0,15	1,06	278,32			21,72	0,96	8,43		866,31	1923,59	1763,34
25	10	2011	298,71	59,49	83,99	210,44	4959,81	40,53	578,40	5,90	0,35	0,50	2,40	166,65			1,43	1,28	4,02		1630,45	4959,81	757,42
26	10	2011	131,63	19,76	47,41	173,95	4055,44	74,44	273,07	3,21	0,70	1,61	5,03	73,77	0,64		5,77	0,76	2,05	5,07	483,70	4055,44	825,35
27	10	2011	91,84	46,00	55,66	270,52	2864,10	101,10	226,18	5,31	0,41	5,13	3,98	25,52	0,91		5,91	0,52	2,88		550,89	2864,10	1217,71
30	10	2011	162,25		16,12	73,06	1225,50	57,75	61,25	1,22	5,10	0,11	0,95	9,82	2,52		29,40	0,28	1,66	5,05	171,45	1225,50	483,14
31	10	2011	109,18	27,22	29,02	138,38	779,81	81,59	346,50	1,61	0,65	1,31	2,59	16,32	12,83	3,69	5,03	0,22	1,61	5,62	302,69	779,81	339,98
1	11	2011	133,43	61,77	28,41	154,20	1207,62	89,88	496,88	2,99	0,36	4,94	1,11	58,77	0,29		8,99	0,39	0,89	4,54	330,17	1207,62	735,57
2	11	2011	133,76		27,76	39,27	1119,06	38,01	145,46	0,69	0,31	0,39	0,58	32,80	0,16		1,63	0,16	0,39		427,80	1119,06	825,62
3	11	2011	137,63	15,29	31,55	101,47	1518,87	106,76	277,59	2,47	0,30	0,64	1,15	74,34	0,70		4,82	0,10	2,81	4,42	374,87	1518,87	783,77
4	11	2011	117,73	39,98	91,13	268,07	1038,62	121,09	376,65	2,32	0,48	1,64	5,50	52,98	1,51		3,65	0,10	1,60	5,38	415,52	1038,62	421,59
5	11	2011	700,66	225,08	123,21	610,63	2379,09	168,52	841,17	6,11	0,26	0,96	7,95	52,90	0,88		2,41	0,28	9,75	4,82	862,90	2379,09	1320,36
6	11	2011	171,29	154,32	86,81	959,09	2643,58	140,01	403,55	3,93	0,64	0,82	1,84	255,40	0,85		3,62	0,51	1,73	3,18	274,93	2643,58	1287,47
7	11	2011	208,37	289,05	113,12	486,69	3603,88	242,60	401,83	7,41	0,75	0,80	5,93	113,25			3,56	0,37	6,02	6,29	223,20	3603,88	1865,13
8	11	2011	299,30	106,12	85,96	618,65	2932,63	137,07	340,07	3,54	0,81	2,64	1,68	75,62			7,03	0,41	2,31	4,29	165,07	2932,63	998,23
2	2	2012	72,88		6,58	83,02	2271,79	46,57	127,22	1,24	1,03	1,21		16,96			2,47	0,22	1,33	6,56	115,76	2271,79	362,88
3	2	2012	290,10		13,05	37,72	2587,69	54,96	196,39	0,30	2,87	2,08	0,92	23,84			10,88	0,73	1,91	3,60	268,73	2587,69	703,29
4	2	2012	255,48	23,72	6,61	28,97	2129,78	43,64	41,26	0,34	0,61	0,39	1,46	13,68	1,04		4,37	0,18	0,60	3,40	461,66	2129,78	542,11
5	2	2012	85,18		5,34	16,41	697,49	12,75	14,02	0,42	0,02			5,97	0,07		0,91	0,06	0,20		248,37	697,49	990,32
7	2	2012	137,25		25,67	43,40	819,31	40,57	123,09	0,47	0,48	0,82	1,07	20,59	0,71		2,22	0,23	0,97		112,56	819,31	270,85
8	2	2012	61,39	137,10	30,26	135,72	3459,43	57,29	204,20	3,58	0,34	5,49	1,82	44,11	3,33	5,97	2,57	0,47	1,16		76,85	3459,43	1012,49
9	2	2012	87,30		9,80	43,74	1235,28	62,39	79,13	0,83	0,43	3,80	0,08	17,57	0,52	7,81	1,04	0,16	3,35		51,63	1235,28	578,07

10	2	2012	865,60		4,10	9,59	1352,35	18,71	39,10	0,26	4,21	0,11	0,99	4,33	5,30	2,77	13,60	0,56	7,60	3,84	119,38	1352,35	380,22
11	2	2012	61,51	34,32	28,10	95,39	2762,51	40,73	135,66	2,19	0,78	1,12	1,31	52,23	0,97	2,01	3,54	0,29	1,75	7,04	69,41	2762,51	844,16
12	2	2012	198,75	146,69	43,04	35,29	2960,88	70,96	115,55	0,80	0,73	0,24	2,75	25,33	1,79	2,10	18,10	0,18	3,80		400,57	2960,88	1654,55
13	2	2012	366,74	23,81	33,49	74,90	3428,26	105,78	118,77	1,29	1,17	0,48	1,26	28,86	0,36		4,93	0,49	1,78		539,72	3428,26	528,88
14	2	2012	39,16		5,50	22,65	1881,98	14,15	22,01	0,20	0,12		0,66	5,59	0,10	20,98	0,33	0,16	0,67		691,27	1881,98	443,26
15	2	2012	714,88		29,59	69,10	5425,45	67,35	2,33	0,33	0,15		14,33	3,29				0,17	1,45		783,58	5425,45	
16	2	2012	433,53		10,46	25,81	2486,06	23,52	34,83	0,29	0,26	0,15	1,66	15,32	0,33		3,13	0,31	1,14	6,34	456,91	2486,06	
17	2	2012	171,44		3,77	36,49	3207,47	47,14	34,62	0,53	0,24	0,19		18,51	0,10		4,14	0,40	1,22		144,68	3207,47	426,06
18	2	2012	2539,93	118,74	39,59	56,20	2131,37	97,59	146,06	0,95	0,27		0,42	16,93	0,21		1,75	0,25	1,49		6131,57	2131,37	107,48
19	2	2012	391,97	20,49	7,88	18,11	1545,35	14,79	74,31	0,23	0,11	1,53	0,38	7,30	0,10		2,81	0,14	0,39		631,43	1545,35	612,27
20	2	2012	163,50	38,01	6,40	23,92	441,26	43,68	205,92	0,10	0,14	0,70		13,03	1,07		5,05	0,10	0,60	4,99	337,82	441,26	129,22
21	2	2012	548,41	33,64	22,25	52,95	1297,79	46,05	152,46	0,94	0,51	3,41	0,39	28,62	0,54		1,66	0,14	1,26	6,05	761,33	1297,79	667,46
22	2	2012	661,09	59,93	19,49	8,28	2050,23	6,45	29,39	0,66	0,12		0,57	5,00	0,22	3,88	0,45	0,19	0,03		617,94	2050,23	117,91
23	2	2012	214,61	12,51	4,91	18,87	2006,32	8,61	58,70	0,96	0,24	0,49	0,51	15,75	0,29		2,46	0,29	1,04		275,03	2006,32	
24	2	2012	244,46		14,63	26,15	2759,52	10,32	38,37	0,73	0,17	0,14	1,07	9,26	0,29		3,39	0,10	0,38		526,79	2759,52	1763,86
26	2	2012	133,60		18,33	34,84	3254,71	27,91	116,82	2,48	0,29	0,55	0,40	7,39	0,19		4,52	0,41	1,20	6,03	145,91	3254,71	150,12
27	2	2012	1057,18	44,29	12,61	16,28	1030,14	19,33	58,95	1,07	0,13	0,14	0,65	13,89	0,23		0,33	0,12	0,84	3,35	1147,46	1030,14	207,01
28	2	2012	908,03	54,37	8,23	37,41	1612,59	28,40	92,79	0,73	0,72	0,24	0,16	18,58	0,34		1,06	0,17	3,20	3,53	1149,59	1612,59	377,14
29	2	2012	1156,51	81,91	6,81	20,44	1688,51	37,97	67,09	0,36	0,49	0,29	0,66	5,08	1,08		5,12	0,21	0,20		2269,87	1688,51	119,92
1	3	2012	784,18	43,39	6,51	24,32	2176,75	33,91	59,79	0,91	0,44	0,16		9,27	0,19		2,87	0,46	0,82	6,09	332,68	2176,75	1028,41
2	3	2012	259,95	36,56	34,03	37,91	1924,11	20,10	81,55	0,90	1,14	1,23	0,30	13,84	1,05		1,92	0,44	2,89	3,99	232,19	1924,11	656,15
3	3	2012	1158,42	57,25	12,15	27,35	1707,44	37,33	62,42	0,40	0,15	0,10	1,19	4,88	0,07		0,46	0,06	0,60	4,28	1569,96	1707,44	254,20
4	3	2012	351,63	30,12	8,90	42,42	1140,48	32,10	148,66	0,71	0,51	1,76		11,94	0,21		1,65	0,14	0,77	4,66	701,41	1140,48	833,53
5	3	2012	375,37	30,96	6,52	68,39	2432,28	38,10	62,68	1,35	0,10	2,66	0,43	18,48	0,25		2,43	0,08	2,84	3,68	497,10	2432,28	1336,00
6	3	2012	121,31		7,87	37,68	1504,06	15,65	40,70	0,63	0,09	0,12	0,53	7,13	0,33		1,87	0,17	0,32		175,39	1504,06	181,48
8	3	2012	166,05	97,51	18,24	24,51	1318,31	20,04	100,56	0,76	0,37	1,36		13,56	1,08		3,17	0,23	5,03		141,76	1318,31	637,04
9	3	2012	261,04	71,15	39,90	32,30	1433,33	45,80	89,66	1,23	0,31	1,04	0,20	20,37	0,58		2,36	0,20	1,76	3,80	716,22	1433,33	472,85
10	3	2012	504,20	117,23	11,08	34,78	2555,68	51,52	100,88	0,80	0,74	0,50		22,69	0,65		4,67	0,32	1,03	3,40	543,02	2555,68	999,07
11	3	2012	192,94		10,81	140,92	2092,79	30,76	121,20	1,05	0,58	0,76	1,09	20,50	0,19		2,94	0,18	1,93	13,51	372,76	2092,79	1124,14
12	3	2012	185,05	46,62	75,18	37,44	2309,06	45,09	233,54	2,43	0,55	2,36	2,10	19,79	0,21		1,93	0,28	1,90		378,53	2309,06	1505,43
13	3	2012	185,61	10,87	52,09	97,19	3366,90	55,47	132,81	1,00	0,61	0,64	2,87	79,19			3,62	0,20	1,83	5,56	115,22	3366,90	1174,95
14	3	2012	80,70		38,95	101,18	2931,92	23,18	99,92	2,20	0,61	0,49	1,97	39,92	0,46		2,07	0,25	1,55	3,44	143,95	2931,92	234,41
15	3	2012	157,22	18,41	20,23	68,70	3798,61	46,58	146,15	0,92	1,26	1,59	0,10	11,92		7,13	3,72	0,29	0,20	8,05	466,45	3798,61	902,88
17	3	2012	863,44	36,99	90,34	129,92	2360,81	72,86	125,13	3,55	0,19	3,71	2,40	78,06	0,17		1,41	0,07	0,13	14,01	1848,26	2360,81	
18	3	2012	158,31	94,80	9,95	108,64	1056,04	33,05	166,51	0,86	0,33	2,90		25,80	0,51		0,67	0,24	1,72	5,02	196,01	1056,04	207,71
19	3	2012	206,46	44,48	8,78	7,44	1959,05	23,14	38,23	0,38	0,28		1,25	11,38	0,58		2,00	0,38	1,65		370,99	1959,05	
20	3	2012	140,55	11,39	17,39	39,41	2376,53	47,30	64,93	1,63	0,48	0,53	0,80	12,77			6,28	0,25	1,70	7,20	86,03	2376,53	239,21

21	3	2012	206,94		10,70	88,00	3459,83	68,63	132,37	2,15	0,43	4,49	2,69	25,97				4,93	0,40	3,43	4,81	268,05	3459,83	651,12
22	3	2012	590,48	34,07	9,16	72,32	2261,37	42,53	18,72	0,82	0,12	0,05	1,17	20,72	0,02			0,81	0,13	0,43		172,56	2261,37	493,36
23	3	2012	398,11	42,09	34,38	148,70	3209,50	38,29	34,41	3,54	0,17		3,88	34,92		1,01		4,02	0,36	0,84	3,67	635,31	3209,50	
24	3	2012	406,91	30,62	172,03	151,48	2396,08	24,65	175,93	4,75	0,24	2,54	0,59	96,55	0,31			2,33	0,38	1,65	5,18	381,46	2396,08	561,06
25	3	2012	52,50	22,10	37,99	142,98	360,49	51,28	126,63	3,23	0,31	0,35	0,46	77,68				3,52	0,29	1,45	5,62	69,37	360,49	105,89
26	3	2012	349,67	87,81	58,63	203,31	3842,67	75,54	137,53	3,07	1,04	0,86	0,62	46,85	0,32			2,84	0,44	1,14		494,74	3842,67	1236,58
27	3	2012	233,40	46,96	34,16	169,93	3256,58	52,12	442,86	8,46	0,58	0,97	3,01	69,93	1,17			2,23	0,28	3,18		883,14	3256,58	1337,71
28	3	2012	190,82	81,38	67,57	767,29	3535,38	71,68	228,20	6,37	1,37	4,76	0,68	57,42	0,82			6,33	0,38	1,49	2,67	477,04	3535,38	1602,18
29	3	2012	53,87	113,24	278,38	1429,73	4121,59	179,09	285,31	17,84	0,66	0,97	6,78	227,88	0,99			6,89	0,50	1,01	4,60	45,54	4121,59	1255,30
31	3	2012	77,44	65,21	108,05	297,28	3971,00	121,68	260,19	16,70	2,24	1,42	0,61	70,37	1,79			3,81	0,37	3,78	5,15	47,99	3971,00	880,87
1	4	2012	253,81	123,35	229,90	2980,43	2351,49	281,59	500,00	35,10	0,95	1,73	2,11	380,70				2,01	0,27	2,12	11,98	287,95	2351,49	1882,91
2	4	2012	315,52	192,49	594,91	2678,09	2616,07	374,09	635,22	83,03	0,99	3,97	7,44	244,39	2,51			5,49	0,33	7,78	6,27	619,57	2616,07	2182,18
3	4	2012	377,56		935,24	2898,18	2959,08	436,61	1003,30	61,70	2,63		27,09	459,48	1,70			16,49	0,52	7,36		914,17	2959,08	2568,95
4	4	2012	233,59	1098,97	529,94	5590,45	5354,87	321,43	1414,27	51,99	2,19	4,02	15,67	364,94	4,76	4,72		12,61	0,21	11,96	14,58	609,08	5354,87	4140,19
5	4	2012	767,81	1409,29	1556,10	7421,60	4381,45	1258,41	4540,85	132,32	4,69	5,64	24,25	1760,18	7,72	4,23		4,61	0,58	20,86	11,55	537,17	4381,45	4128,68
6	4	2012	814,06	970,91	633,80	1910,93	4248,49	453,66	916,99	34,07	0,77	1,78	2,75	476,48	2,28			4,47	0,23	11,05	4,89	1139,22	4248,49	3498,26
7	4	2012	1119,85	174,45	25,79	134,64	3212,29	57,91	122,60	2,11	0,59	0,50	0,77	17,58	0,52			1,21	0,15	0,84		809,76	3212,29	1995,60
8	4	2012	56,09		139,37	269,44	1263,03	65,72	640,65	5,10	0,33	0,39	3,22	28,12	0,25			4,36	0,15	6,53		333,98	1263,03	
9	4	2012	70,39		72,05	66,63	3268,18	59,86	100,62	1,86	0,20	0,25	3,19	18,59	0,30			1,42	0,24	0,80		248,48	3268,18	240,31
10	4	2012	217,33	62,01	30,46	331,27	1069,47	56,01	140,18	3,77	1,13	0,63	1,37	14,80				3,52	0,31	0,42	4,68	198,50	1069,47	357,39
16	4	2012	406,50	212,75	287,00	1597,59	4378,84	120,88	188,74	18,37	2,51	0,66	2,79	37,54	0,37			2,11	0,22	8,18	9,53	365,57	4378,84	1548,71
17	4	2012	91,54	123,06	347,43	375,22	3685,42	83,26	415,00	11,70	1,57	0,79	4,13	133,42	0,56			4,99	0,18	6,06	7,54	369,04	3685,42	2471,94
18	4	2012	357,68	1418,73	2960,90	2022,64	2341,80	331,50	3736,28	53,15	2,22	3,51	10,16	404,53	3,94			3,76	0,53	16,11	7,51	487,50	2341,80	1628,75
19	4	2012	556,17	677,91	2382,43	2352,05	1062,69	730,13	2025,53	66,13	3,60	1,07	15,30	271,12	1,44			1,23	0,38	7,84		859,56	1062,69	888,91
20	4	2012	460,32		44,10	320,79	1163,89	62,17	98,59	0,95	0,36	0,66		6,78	0,20	1,20		0,60	0,16	0,43	5,49	484,12	1163,89	397,97
21	4	2012	570,83	97,05	58,92	269,27	2445,44	76,69	86,99	3,20	0,56	0,75		32,01	0,14			2,20	0,08	1,00	4,22	755,90	2445,44	856,08
22	4	2012	161,96		70,18	233,51	1526,42	62,84	181,48	2,46	1,14	0,30	0,40	8,11	0,20			1,30	0,08	0,84	3,07	95,77	1526,42	629,33
23	4	2012	145,66		52,15	116,52	2184,16	44,97	47,00	2,46	0,36	2,26	0,66	19,68				1,45	0,09	1,45		249,48	2184,16	641,15
24	4	2012	216,10			44,54	41,69	51,81	2,24	0,53	0,85	1,48	18,35	0,36				2,42	0,28	1,88	8,01	267,70	44,54	534,92
25	4	2012	89,27	42,97	290,95	458,92	7076,93	192,70	115,25	11,38	2,64	0,62	4,49	171,98				7,11	0,22	1,73	6,40	56,18	7076,93	786,74
26	4	2012	219,13	44,84	199,85	526,95	6933,14	127,28	99,98	29,36	1,36	0,24	2,88	133,76	0,72			2,38	0,25	2,09	9,14	145,36	6933,14	2953,29
27	4	2012	121,43	36,92	51,13	304,48	4963,56	161,54	115,23	6,08	1,42	0,41	0,88	142,42				2,85	0,23	2,90		49,28	4963,56	1788,99
29	4	2012	219,28	33,59	29,28	124,23	4882,58	37,08	88,18	4,36	0,64	1,67	0,57	40,26				3,61	0,21	1,22	4,01	14,69	4882,58	469,16
30	4	2012	231,75	54,13	49,28	230,55	2439,79	42,40	102,77	2,84	0,76	0,95	0,86	32,22	2,20			2,83	0,32	1,06	4,93	162,56	2439,79	1130,76
1	5	2012	529,46		68,46	309,54	4772,64	53,64	87,50	2,69	1,60	0,01	1,61	91,22				7,62	0,29	1,89	10,12	71,18	4772,64	994,39
2	5	2012	248,14	26,73	73,65	201,62	5160,29	63,09	133,60	2,10	1,16	2,71	4,45	128,93	2,84			2,60	0,40	5,41	5,99	10,18	5160,29	858,61
4	5	2012	23,78	72,74	253,05	282,91	1178,09	97,28	248,41	19,86	0,29	1,83	3,30	271,19	0,19			1,79	0,13	5,24	6,16	41,85	1178,09	516,11

5	5	2012	74,25		44,70	140,34	1722,36	57,22	128,48	3,06	0,28	0,93	2,06	52,83			3,98	0,09	1,05				261,35	1722,36	221,82
6	5	2012	63,63		36,99	88,10	1122,38	32,59	247,09	0,97	0,38	0,19	1,29	34,02	0,13		1,99	0,33	1,69				102,24	1122,38	609,68
7	5	2012	84,98		75,28	111,46	1748,33	36,33	77,87	1,91	0,48	0,66	0,53	99,48	0,85	14,45	3,10	0,37	2,80				91,14	1748,33	1900,21
8	5	2012	87,18		92,65	489,75	2921,88	134,25	178,26	10,69	0,36	0,27	1,41	173,40	0,15	3,27	3,92	0,25	5,39	9,43			155,29	2921,88	560,18
10	5	2012	128,71	35,83	129,67	270,49	1932,95	80,19	388,59	5,66	0,42	4,12	1,37	63,53	0,41	4,20	5,00	0,24	3,83	5,68			317,09	1932,95	707,08
11	5	2012	154,55	90,91	159,47	389,15	2037,70	91,51	460,17	10,39	0,41	0,56	4,62	163,50		0,72	1,96	0,11	3,09	6,05			301,13	2037,70	1325,54
12	5	2012	269,06	58,04	124,51	788,37	2521,93	47,29	504,04	13,83	2,56	5,71	2,99	300,11	0,64	13,29	10,36	0,50	4,90				303,87	2521,93	1719,36
14	5	2012	99,31	105,85	145,37	244,20	3448,07	44,85	571,62	26,78	2,19	0,55	4,30	107,37	0,40		5,74	0,36	5,20	7,08			75,12	3448,07	2542,19
15	5	2012	697,26	41,85	365,56	2551,88	8607,58	194,74	274,38	8,69	7,28	1,57	2,85	342,54	2,16		4,93	0,57	4,67	10,77			4703,76	8607,58	9974,30
16	5	2012	217,40		118,19	381,33	3595,54	57,76	373,34	4,01	1,58	1,60	1,22	48,78	0,65	1,21	7,13	0,21	1,13	7,97			295,97	3595,54	575,28
17	5	2012	16,52		56,63	98,60	1703,03	42,95	75,58	4,50	0,19		0,48	36,63			1,53	0,15	1,13				47,66	1703,03	413,43
18	5	2012	121,44	15,78	77,69	264,67	1378,79	44,00	191,15	4,68	0,99	0,60	2,96	81,17		2,27	3,04	0,40	2,08	3,85			241,33	1378,79	757,40
19	5	2012	194,96	63,88	50,46	294,20	2428,02	24,57	211,37	3,90	0,49	0,33	2,12	114,01	0,37	4,60	10,00	0,20	1,52				200,16	2428,02	1681,54
20	5	2012	445,82	45,60	169,84	315,13	5612,09	47,60	207,39	5,46	0,70	0,81	0,56	43,93	1,41		3,39	0,21	1,07	9,33			236,24	5612,09	1594,04
21	5	2012	555,71	55,91	42,75	384,18	4417,79	46,17	219,36	6,38	3,16	3,27	3,35	120,65	1,65	38,98	5,83	0,23	0,44	4,29			93,17	4417,79	1394,89
22	5	2012	123,82		76,33	341,46	5289,94	64,33	167,11	4,27	1,47	4,01	0,92	47,93	1,25		3,70	0,17	1,24	5,76			36,45	5289,94	1324,29
23	5	2012	189,57		111,84	775,88	3826,82	52,82	100,40	7,97	1,99	1,30	1,69	54,40	2,47		3,91	0,52	0,62	14,21			90,58	3826,82	445,94
24	5	2012	255,64		48,95	335,86	4102,79	57,84	61,34	2,65	1,99	0,51	2,00	55,16	0,85		2,36	0,29	1,94	3,76			140,56	4102,79	1012,23
25	5	2012	168,08		36,97	125,66	2704,95	41,94	242,58	2,07	0,49	0,19		62,01	0,36		1,03	0,35	0,62				368,54	2704,95	455,21
26	5	2012	88,01	61,13	81,28	229,35	3056,33	54,64	149,51	3,33	0,57	0,32	1,50	59,89	0,97		4,23	0,22	1,06	4,68			124,35	3056,33	619,13
27	5	2012	45,43	49,46	187,47	310,23	2432,40	62,60	369,21	4,66	0,61	7,57	1,30	92,10	0,39	89,66	3,37	0,27	1,03	4,56			87,27	2432,40	686,78
28	5	2012	230,00	129,35	82,96	190,19	2250,98	63,40	136,40	3,54	1,68	1,78	0,67	67,17			3,31	0,22	0,47				208,03	2250,98	440,41
29	5	2012	88,79	109,23	58,25	235,70	1444,81	81,71	353,37	5,76	0,41	0,99	1,05	132,61		1,30	3,40	0,39	1,37	4,78			47,71	1444,81	452,37
30	5	2012	159,93	60,92	132,11	728,71	3485,72	72,93	687,86	8,63	0,96	1,35	2,62	133,29	0,63	93,80	5,29	0,22	1,02				240,67	3485,72	529,10
31	5	2012	453,28	114,12	56,61	401,79	4180,96	32,55	386,97	23,90	0,47	3,91	1,85	156,00	1,71	1,35	3,18	0,25	7,21	2,72			403,04	4180,96	487,11
1	6	2012	346,30	68,53	226,61	226,51	6782,92	93,07	244,01	9,14	4,49	3,77	1,10	163,35	1,89		1,98	0,39	2,65	4,48			1325,17	6782,92	1013,30
2	6	2012	122,16	31,75	46,66	100,41	2256,45	25,72	64,11	1,05	0,40		0,97	23,04			2,49	0,09	0,32				173,95	2256,45	180,52
3	6	2012	167,09		6,71	25,86	735,66	17,93	37,81	0,43	0,08			11,43	1,71	4,73	1,47	0,09	0,20				314,69	735,66	174,57
4	6	2012	225,21		25,41	75,05	2087,47	52,32	127,00	3,62	0,18	0,19	1,58	55,18	0,48		15,03	0,13	0,91				396,12	2087,47	244,95
5	6	2012	112,58	48,06	43,94	200,66	2212,77	21,05	402,11	2,35	0,23	1,96	0,15	43,06	0,34		0,73	0,13	6,13	3,71			255,20	2212,77	551,34
6	6	2012	280,58	74,44	109,90	275,78	3053,78	147,53	260,04	3,24	1,22	0,58	0,80	121,45	0,66	58,62	10,12	0,44	4,46	3,33			108,42	3053,78	374,94
7	6	2012	132,39	44,36	50,23	262,93	2295,16	53,64	146,18	1,72	1,21	2,50	1,86	70,54	1,13		3,05	0,14	3,88	3,17			85,34	2295,16	841,06
8	6	2012	475,82	68,66	93,58	618,46	1494,42	123,04	223,29	4,69	0,83	0,15	4,68	129,56	1,13		3,56	0,21	2,84				332,82	1494,42	301,63
9	6	2012	72,35	64,52	229,08	512,07	3284,50	114,21	307,49	2,56	0,66	0,43	2,91	182,12			7,56	0,34	2,05	4,08			352,24	3284,50	649,66
10	6	2012	139,53	168,10	63,10	211,18	3096,54	77,89	384,16	14,01	0,35	2,43	2,64	85,00	1,67	33,35	7,92	0,49	2,05				254,90	3096,54	524,65
12	6	2012	283,19	27,29	87,82	208,84	790,16	38,51	230,60	4,23	0,44	1,13	0,56	96,47			3,57	0,18	4,76				487,42	790,16	245,69
13	6	2012	116,07		57,18	333,94	1040,53	95,48	108,06	12,41	0,22	0,32	3,19	93,31	1,08		5,15	0,14	2,59				188,30	1040,53	261,84

14	6	2012	143,65	143,87	72,01	244,57	2187,32	150,89	424,14	9,74	0,26	3,58	2,98	49,08	0,92	6,62	0,19	1,81		210,05	2187,32	322,09	
15	6	2012	250,70	102,82	44,83	243,95	2577,10	98,26	100,31	1,04	0,16	7,02	1,18	44,80		0,68	3,36	0,20	0,93	3,38	50,59	2577,10	212,21
16	6	2012	928,19	49,42	56,72	481,70	1965,53	57,19	167,51	3,26	0,39	1,40	3,75	63,47			1,61	0,17	2,20		120,60	1965,53	352,58
17	6	2012	257,47	162,52	113,90	218,82	3475,51	337,98	476,28	5,47	2,04	7,45	1,51	74,70	1,88		2,75	0,61	2,75		179,09	3475,51	1335,46
18	6	2012	188,21	56,38	104,40	256,02	1944,30	83,69	166,09	7,14	0,15	0,66	5,70	65,57	0,49	35,06	5,94	0,19	2,66	4,01	306,85	1944,30	264,27
19	6	2012	526,69				143,21	61,03	159,90	2,74	0,24		23,40	73,14			14,71	0,19		83,14	300,41	143,21	1525,90
21	6	2012	448,93	140,96	70,66	451,44	807,84	127,92	244,57	12,35	0,28	2,02	2,41	44,65	0,75		4,21	0,11	3,53	5,41	625,12	807,84	401,44
22	6	2012	220,28	133,17	107,89	133,18	1798,01	97,18	134,29	6,78	0,40	0,20	0,85	62,15	0,63		5,81	0,26	2,30	7,26	353,30	1798,01	355,81
23	6	2012	168,06		120,82	365,70	2131,64	120,69	393,15	7,36	1,13	1,29	2,68	88,08	0,56		3,34	0,47	2,78		152,21	2131,64	358,84
24	6	2012	93,79	60,14	109,01	756,79	2747,29	196,94	254,77	9,45	1,82	4,01	6,06	108,45	2,06		6,72	0,33	1,74	7,65	441,82	2747,29	645,61
25	6	2012	136,61	350,47	97,57	341,35	1504,56	219,57	461,83	8,95	1,53	3,04	2,30	53,95	1,98		4,00	0,32	1,43	6,64	178,78	1504,56	542,28
26	6	2012	468,61	39,94	31,25	299,24	2026,24	55,11	241,99	7,47	0,41	1,53	2,81	135,07	0,41		8,75	0,42	7,63	8,15	500,32	2026,24	428,07
27	6	2012	608,52	278,11	121,00	260,31	5421,72	202,79	453,66	3,81	4,22	1,62	2,70	65,17	1,40		8,81	0,58	1,65	8,60	404,48	5421,72	892,65
28	6	2012	147,67	83,93	136,67	591,60	4843,73	166,69	161,93	4,10	1,68	1,85	0,88	27,27	1,71		5,82	0,19	3,88	8,15	249,71	4843,73	1034,81
29	6	2012	154,39	48,97	349,32	450,14	7452,99	134,36	314,01	7,70	2,32	1,61	4,08	59,98	2,82		8,56	0,24	1,74		253,65	7452,99	716,43
30	6	2012	117,03		11,91	28,71	377,01	19,30	23,71	0,85	0,66	0,18	1,22	7,99			2,27	0,08			29,83	377,01	45,44
1	7	2012	236,80	34,51	84,70	286,44	4499,99	135,21	202,92	7,69	2,18	1,96	5,53	73,33	1,72		18,29	0,52	0,98	10,83	342,19	4499,99	626,85
2	7	2012	233,84	119,74	129,80	456,04	4016,27	183,08	269,24	11,57	1,02	1,88	4,97	240,72	0,57		4,58	0,25	2,55	9,06	538,84	4016,27	637,40
3	7	2012	174,76	63,51	54,24	228,38	2101,84	159,48	410,71	26,38	1,03	1,80	1,36	62,32	1,80		3,47	0,13	2,26	11,84	238,07	2101,84	533,38
4	7	2012	112,01	510,14	643,89	1009,07	0,00	224,84	325,24	51,89	0,38	0,63	8,36	314,74	0,88		1,72	0,14	1,69		324,92		337,95
5	7	2012	93,60	316,32	580,76	2414,90	1452,28	393,79	537,07	66,53	0,93	3,50	11,90	477,53	1,98		10,50	0,20	9,02	8,13	343,71	1452,28	558,72
6	7	2012	153,77	185,03	974,91	2543,63	1918,38	331,09	749,17	25,68	1,17	0,58	4,87	340,53	2,04		1,30	0,38	10,20	6,77	275,79	1918,38	786,37
8	7	2012	205,55	187,57	566,27	975,43	2948,63	299,04	493,72	15,77	0,91	2,87	6,73	92,63	2,63		3,09	0,27	6,90	5,26	312,50	2948,63	736,42
9	7	2012	305,18	153,74	272,46	875,22	2482,75	173,63	1205,64	24,89	1,21	2,15	3,11	126,81	1,40		3,94	0,36	11,29	5,13	226,08	2482,75	727,84
10	7	2012	308,50	86,57	335,88	943,15	1297,80	162,82	308,13	14,10	1,45	1,72	3,34	70,43	0,93		4,60	0,44	6,22	5,65	111,52	1297,80	306,07
11	7	2012	1125,22	140,31	494,56	2521,31	3310,48	247,38	271,35	21,76	1,93	2,00	4,13	184,19	1,86		3,43	0,37	5,19	3,64	370,85	3310,48	794,32
12	7	2012	260,35	230,19	591,85	1098,99	930,60	215,87	467,24	18,07	1,14	0,89	7,56	147,71	1,56		3,98	0,28	14,17	3,02	192,74	930,60	383,81
13	7	2012	824,16	155,77	286,69	898,90	2694,39	187,79	546,52	27,14	1,52	0,56	4,54	361,55			4,01	0,18	6,08	6,01	1303,69	2694,39	663,30
14	7	2012	883,50	101,93	501,04	2399,38	7647,75	364,93	427,18	24,85	2,91	2,74	2,85	94,03	1,98		3,06	0,53	6,42	4,62	673,60	7647,75	1829,14
15	7	2012	660,75	188,12	111,26	976,01	2361,86	199,83	86,35	1,92	1,08	1,79	3,94	109,04	0,45		6,06	0,25	1,67		592,16	2361,86	784,87
16	7	2012	1209,04	157,53	70,43	367,24	4234,99	129,52	171,83	1,44	1,21	2,82	0,52	45,89	3,23		4,65	0,33	2,77		963,97	4234,99	1263,79
17	7	2012	452,66	133,56	35,77	235,16	5232,36	103,58	128,02	3,11	0,65	0,15	0,26	16,18	1,07		1,46	0,09	2,06	2,63	98,72	5232,36	707,93
18	7	2012	812,70	240,01	79,96	297,07	4090,96	103,86	192,62	2,40	2,66	1,15	4,12	18,75	0,85		3,98	0,14	2,19		849,98	4090,96	1772,79
19	7	2012	1080,32	219,37	124,40	325,08	5239,16	131,80	180,72	5,19	4,06	0,59	6,86	55,88	0,96		7,41	0,40	1,44	3,29	694,02	5239,16	1121,34
20	7	2012	1136,29	184,22	112,56	582,10	3431,58	94,90	146,26	2,96	2,45	1,13	3,91	57,20	1,07		7,85	0,26	2,38	3,96	319,60	3431,58	493,64
21	7	2012	530,25	343,85	89,88	304,26	3943,21	138,62	200,93	7,45	1,77	0,83	5,21	91,44	1,02		5,48	0,18	1,69		343,08	3943,21	814,84
22	7	2012	815,30	186,58	135,48	418,42	7577,61	146,25	264,53	4,16	1,51	0,87	5,63	21,50	2,78	0,45	8,97	0,65	2,67	5,23	64,74	7577,61	532,10

23	7	2012	748,41	168,51	37,59	353,56	4902,45	54,30	114,22	3,71	2,62	1,25	0,65	145,07		5,42	0,33	2,48	3,16	684,16	4902,45	460,04	
24	7	2012	140,79	22,10	138,14	193,48	2436,73	86,20	839,79	19,93	0,31	1,35	1,17	51,67		7,30	0,16	1,05		167,33	2436,73	464,41	
25	7	2012	349,40	233,66	185,42	743,80	1520,76	196,55	584,28	9,14	0,34	5,21	5,89	77,61	2,35	4,95	1,11	4,68	10,36	278,27	1520,76	495,14	
26	7	2012	159,43	81,00	81,95	215,23	867,73	112,20	221,11	4,84	0,44	1,07		10,34		2,10	0,16	0,57		222,94	867,73	390,11	
22	8	2012	1470,78	628,36	498,95	497,12	9662,01	179,61	1146,81	27,64	2,96	13,64	27,96	378,68	3,19	8,95	0,73	24,10	6,38	1219,81	9662,01	3203,89	
23	8	2012	626,52	85,79	440,59	323,07	4169,56	74,25	106,87	2,15	1,57	0,60	5,94	70,70	1,89	12,91	0,24	3,34	6,41	311,68	4169,56	1079,41	
24	8	2012	4016,14	93,46	157,29	762,58	3442,36	297,95	417,05	15,86	13,53	0,42	10,87	243,00	15,59	43,63	2,98	36,24		456,93	3442,36	824,95	
25	8	2012	829,76	196,48	145,24	601,06	2482,97	181,77	564,69	8,60	0,65	3,85	7,08	113,50	2,26	2,00	0,32	10,08		1783,65	2482,97	705,45	
26	8	2012	552,88	192,98	298,32	466,53	2882,84	113,51	295,16	16,07	0,80	0,90	0,96	47,89	0,86	3,38	0,37	2,41	4,07	1026,06	2882,84	457,54	
27	8	2012	155,34	90,19	134,10	456,86	2593,81	102,40	206,83	4,94	0,86	0,69	1,78	34,55	1,23	3,58	0,21	1,61		357,04	2593,81	334,77	
28	8	2012	107,18	45,51	105,84	288,36	1966,31	68,83	503,25	2,25	0,95	0,51	1,25	30,03	0,44	5,06	0,88	3,23		104,38	1966,31	190,50	
29	8	2012	640,94	127,97	209,23	208,58	2247,08	132,79	218,68	8,47	0,29	2,30	3,21	49,24	1,14	6,53	0,71	3,62	7,37	867,41	2247,08	480,13	
30	8	2012	343,07	33,71	102,85	482,16	1765,09	79,37	185,23	5,81	0,47	1,75	0,75	62,14		3,58	4,71	0,33	3,45	391,70	1765,09	265,86	
31	8	2012	205,47		225,73	285,40	1329,69	124,35	124,10	3,72	0,20	0,54	1,19	42,68			1,54	0,23	3,01	2,13	215,54	1329,69	180,45
1	9	2012	575,57	324,98	170,93	301,16	1692,50	117,63	341,68	4,02	0,98	2,82	2,78	70,11	2,04	12,38	0,67	5,58	5,53	657,45	1692,50	568,71	
2	9	2012	630,99	153,43	123,54	383,60	2876,11	117,26	156,98	4,86	0,99	1,97	6,65	61,88	2,26	8,03	0,30	4,78	5,06	582,24	2876,11	551,02	
3	9	2012	273,98	68,37	532,06	1671,59	3851,43	155,63	210,85	7,08	0,91	0,06	2,25	93,37		1,39	0,13	4,82		356,01	3851,43	972,52	
4	9	2012	263,06	145,57	261,99	978,79	4402,95	243,38	250,58	3,95	0,87	2,30	3,71	304,81	1,68	3,92	0,29	2,22		161,47	4402,95	896,87	
5	9	2012	788,82	105,73	182,70	867,92	4269,90	127,07	117,47	4,23	1,46	2,86	1,60	94,60	0,71	5,26	4,07	0,31	3,87	3,02	242,14	4269,90	1008,30
6	9	2012	1568,44	413,68	54,24	872,07	3540,76	141,34	221,61	6,71	0,97	0,86	0,68	60,10	0,40	3,97	0,23	0,38		1686,53	3540,76	861,10	
7	9	2012	172,97	161,33	24,40	101,77	2157,88	24,34	138,24	2,79	0,35	0,98	1,26	35,45	0,96	1,24	0,10	0,46		344,32	2157,88	847,91	
8	9	2012	528,95	255,75	24,23	165,33	2386,87	78,05	104,57	1,65	0,27	0,39	0,51	28,47	0,40	3,82	0,10	1,35		533,38	2386,87	544,19	
9	9	2012	831,34	1095,99	264,35	871,59	10013,22	315,04	861,41	12,24	3,16	14,54	4,51	272,48	3,82	14,07	0,23	5,37		475,73	10013,22	2456,49	
11	9	2012	168,10	213,63	153,65	891,61	3406,27	189,75	441,93	7,01	0,37	4,60	0,98	133,35	13,13	5,78	0,58	9,62	6,50	257,41	3406,27	848,17	
12	9	2012	1315,65	475,50	800,94	3335,55	4778,02	64,36	1494,56	8,78	5,96	3,90	8,07	154,71	3,47	15,18	0,86	8,61	13,44	1352,90	4778,02	1169,66	
13	9	2012	2047,99	57,62	200,65	689,23	2803,66	32,51	385,10	4,88	2,25	1,96	4,00	58,93		14,61	1,15	11,58	4,71	509,11	2803,66	971,11	
15	9	2012	613,95	138,23	131,10	1045,19	4857,23	131,46	298,68	4,93	0,98	0,21	3,16	136,45	1,48	0,46	12,08	0,60	2,40	8,83	144,87	4857,23	693,34
16	9	2012	257,82	69,19	87,75	158,42	3248,91	93,07	163,39	2,81	0,67	1,80	0,64	38,32	0,90	4,01	0,20	0,66	5,61	462,69	3248,91	312,17	
17	9	2012	192,49	53,88	84,26	134,23	3082,96	59,67	215,29	2,40	0,40	1,55	2,58	34,52	0,97	6,94	0,28	1,32		194,07	3082,96	577,68	
18	9	2012	373,48		105,89	321,65	6781,36	186,68	104,76	3,75	1,17	0,78	3,09	102,85	1,54	1,66	5,92	0,35	1,49	4,27	6781,36	236,05	
19	9	2012	218,00	77,18	383,67	668,86	4827,53	108,98	182,79	6,66	0,30	9,18	3,66	131,53	1,71	4,80	6,04	0,49	6,65	8,00	626,68	4827,53	910,55
21	9	2012	192,64	272,60	651,09	2480,87	2200,99	190,83	1240,71	28,61	1,10	0,91	6,39	509,57	0,77	0,93	5,12	0,21	6,16		644,42	2200,99	650,70
22	9	2012	164,19	85,24	949,03	2730,43	2821,86	497,94	864,20	34,80	0,91	2,21	6,16	362,45	1,29	3,96	0,23	3,29		347,66	2821,86	807,80	
23	9	2012	164,12	136,46	179,98	3058,03	1229,56	267,78	563,52	19,70	1,57	2,62	5,18	401,50	2,58	2,75	0,16	11,13	4,22	652,05	1229,56	475,72	
24	9	2012	422,58	78,09	355,72	1186,23	3241,71	352,48	814,63	38,62	3,83	0,65	6,02	358,58	1,42	5,34	2,22	0,30	1,72		636,26	3241,71	858,31
25	9	2012	231,80	420,92	69,69	844,35	3419,23	157,90	156,37	15,38	2,26	2,85	1,18	43,55	2,31	3,39	0,34	3,28		193,44	3419,23	525,09	
26	9	2012	149,17	95,93	55,81	274,86	2431,73	87,65	273,25	6,24	0,56	0,36	1,01	82,68		1,48	3,67	0,23	2,17		227,40	2431,73	303,86

12	3	2013	102,90	63,07	16,96	319,10	1827,40	96,12	339,05	2,42	0,26	2,40	2,18	60,71		4,26	0,74	2,15	3,98	173,12	1827,40	
13	3	2013	90,65		41,20	115,89	1910,59	45,38	319,35	2,09	1,17	3,99	0,91	29,80	1,08	8,19	0,46	1,50	5,40	61,55	1910,59	
14	3	2013	126,97	190,85	36,35	65,57	994,23	87,67	404,32	3,21	0,99	3,61	1,71	58,20	1,87	5,55	1,04	3,05	4,80	120,20	994,23	
15	3	2013	279,19	66,51	25,98	50,87	1217,88	35,33	141,66	0,96	0,54	0,68	0,71	8,55	0,66	6,07	0,62	0,26	4,62	681,29	1217,88	
17	3	2013	495,72	36,70	9,82	30,09	1007,38	35,59	113,63	2,00	0,18		0,55	7,13	0,23	1,38	0,28	0,94		601,21	1007,38	
19	3	2013	45,76	67,20	33,87	246,46	2112,13	63,85	426,98	1,72	0,45	1,63	1,72	23,97	2,11	0,44	7,77	0,51	1,13	4,58	78,45	2112,13
21	3	2013	184,80		36,26	123,17	1456,81	23,44	117,41	0,16	0,11			19,76		8,17	0,40	0,82		419,06	1456,81	
23	3	2013	324,11	55,94	35,51	165,03	2946,60	49,64	280,65	1,51	0,33	1,55	2,06	58,27	0,48	3,98	0,55	0,34	11,49	451,14	2946,60	
25	3	2013	1373,64	70,68	24,11	66,72	2010,60	31,32	142,40	0,47	0,24	0,22	0,19	11,09	0,42	3,17	0,17	0,32		1262,51	2010,60	
26	3	2013	3958,67	79,40	47,92	99,17	1088,93	66,78	89,82	0,62	0,23	0,09	0,63	12,35		1,69	0,08	1,00		4029,70	1088,93	
30	3	2013	212,99	34,08	8,85	13,82	609,01	20,53	44,57	0,43	0,13	0,35		16,55	0,84	4,76	0,28	0,40		206,67	609,01	
31	3	2013	1613,75	153,98	92,80	295,79	3492,44	59,92	173,43	1,59	1,03	0,36	1,63	43,71	0,66	2,64	0,27	1,84	5,20	2063,19	3492,44	
3	4	2013	3095,29	68,64	319,26	760,59	2217,52	144,40	295,00	16,01	0,34		3,53	163,07	0,97	3,28	0,20	1,92		3873,09	2217,52	
4	4	2013	2644,16	146,27	151,98	307,21	1212,38	240,82	218,39	0,80	0,37	0,35	2,99	28,56	4,53	0,82	0,90	0,04	1,13		3278,31	1212,38
5	4	2013	149,83	180,86	777,24	1765,09	2106,34	195,49	619,97	27,46	0,40	0,08	8,28	177,93		11,16	0,25	1,98		568,98	2106,34	
7	4	2013	49,54	53,46	472,01	1989,89	2061,95	49,69	410,41	17,43	0,55	0,17	7,66	255,81	0,81	7,22	0,45	5,85	7,69	46,87	2061,95	
8	4	2013	1012,26	87,03	51,85	88,87	1264,51	50,49	298,38	1,21	0,27	0,81	0,38	32,53	0,19	3,92	0,15	2,00		1213,86	1264,51	
9	4	2013	1225,43	81,17	21,10	29,28	909,73	47,77	255,00	0,63	0,10		1,00	15,98	0,27	3,41	0,10	3,85	7,10	1442,00	909,73	
10	4	2013	528,02	43,59	24,82	78,44	1132,72	61,29	355,92	0,55	0,30	2,62	0,08	35,58	2,50	3,63	0,30	4,35	7,03	848,51	1132,72	

Bölüm 2 PM₁₀ fraksiyonu
(konsantrasyon değerleri ng m⁻³ cinsindedir)

			Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Mn	Ni	cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	SO4	NO3
10	8	2010	3890,80	891,39	714,34	2428,75	7982,75	552,02	2175,72	34,79	4,71	4,16	12,56	403,30	2,71	31,51	16,39	0,81	15,12	17,47	2129,06	7982,75	5385,76
11	8	2010	3792,27	403,33	613,88	2087,18	7936,59	466,68	1759,03	34,58	7,38	3,27	12,66	363,63	3,05	4,05	26,48	0,80	14,59	15,95	1358,97	7936,59	3417,05
12	8	2010	2489,49	593,38	701,57	2385,33	3512,43	745,71	2692,42	40,36	3,41	1,02	11,94	448,67	2,74	15,37	11,71	0,59	11,13	16,02	1558,80	3512,43	2183,46
14	8	2010	2592,70	945,08	577,18	1962,43	2290,56	717,64	2689,56	29,80	5,82	2,46	11,01	340,62	3,22		9,66	0,39	16,23	14,01	2445,75	2290,56	3046,80
15	8	2010	2245,69	846,98	746,43	2537,86	3847,58	583,20	2302,38	37,88	2,91	4,33	11,81	467,05	3,01	15,89	12,99	0,76	14,40	13,24	1679,64	3847,58	2916,35
23	8	2010	2659,73	468,02	540,88	1839,00	7302,67	490,87	1537,41	27,83	7,83	1,74	11,78	363,45	3,95	0,17	27,52	0,87	14,89	16,86	771,87	7302,67	4296,42
24	8	2010	2398,98	511,31	821,08	2791,68	9776,03	647,95	2739,92	40,16	9,84	8,73	14,17	452,45	4,35	1,72	20,21	0,85	19,38	19,39	683,74	9776,03	4187,43
25	8	2010	1477,43	328,81	584,59	1987,61	8431,03	460,40	1726,99	29,34	12,20	8,50	15,45	312,78	5,76		20,62	0,88	8,42		526,02	8431,03	3768,97
26	8	2010	1336,45	547,15	977,97	3325,10	14311,31	671,38	2682,70	46,86	12,92	5,94	12,34	504,29	6,69	4,91	38,26	1,11	15,56	26,81	505,03	14311,31	3995,91
28	8	2010	1875,45	580,87	1064,72	3620,06	17566,57	785,68	3519,09	53,31	12,04	7,61	18,55	590,84	5,75	0,63	27,02	0,88	23,96	32,36	411,56	17566,57	3705,56
29	8	2010	1494,68	336,06	717,81	2440,54	13239,86	525,61	1635,91	33,55	9,44	3,47	12,71	394,86	4,83	1,76	45,54	1,13	10,80	21,69	410,18	13239,86	2691,70
4	9	2010	2287,84	786,95	758,47	2578,79	3904,49	612,45	3086,52	44,27	2,67	6,61	8,21	462,87	2,27	38,65	11,02	0,81	19,12	14,36	2020,02	3904,49	2641,48
5	9	2010	3006,01	1305,45	1517,83	5160,62	6616,75	925,50	4499,36	86,70	4,30	9,63	24,59	916,72	4,06	0,98	18,26	1,31	29,29	21,41	2984,13	6616,75	3274,18
6	9	2010	3999,65	1146,04	1332,55	4530,67	8393,89	634,58	2804,53	60,26	6,94	9,40	10,55	634,56	3,43	3,48	26,37	1,34	32,43		2462,02	8393,89	6906,28
7	9	2010	2430,05	688,64	1312,49	4462,46	8743,49	611,06	3146,22	66,70	7,14	6,77	20,26	728,22	2,67	9,56	18,03	0,80	21,31	17,18	730,57	8743,49	3955,85
8	9	2010	2306,50	1335,33	2198,76	7475,79	11970,60	874,64	5074,91	105,03	9,00	12,15	25,99	1074,45	4,54	18,90	25,78	0,97	46,86	22,96	694,93	11970,60	4085,57
10	9	2010	2707,49	1171,82	1799,42	6118,03	7982,21	764,57	3952,16	90,41	9,30	7,23	19,83	911,68	4,23	26,15	26,47	1,38	32,80	30,16	1444,30	7982,21	5129,89
11	9	2010	3078,88	887,59	1156,11	3930,77	6562,30	593,43	3209,85	60,86	6,73	6,65	11,97	612,59	3,83	27,25	21,48	0,95	28,97	21,43	1724,17	6562,30	4080,09
12	9	2010	2118,80	603,69	900,89	3063,04	6210,68	391,85	2127,17	42,94	5,84	5,04	11,32	444,39	3,05	6,78	22,33	0,74	19,30	13,81	993,28	6210,68	3912,52
13	9	2010	4276,31	886,29	906,07	3080,65	6842,73	481,23	1351,36	49,92	7,53	6,17	13,72	457,50	3,09		19,12	0,80	14,79	13,48	1787,30	6842,73	4178,20
14	9	2010	1976,32	695,12	818,80	2783,93	6802,23	374,42	1414,79	39,23	3,64	4,41	11,92	368,85	2,79	9,94	8,83	0,30	9,42		1453,02	6802,23	2733,92
16	9	2010	2858,34	875,81	379,81	1291,34	3667,25	245,52	1354,99	21,33	2,03	2,96	5,67	206,00	1,59	22,39	7,56	0,34	9,91	8,38	2869,52	3667,25	2150,74
17	9	2010	1413,06	391,53	116,73	396,90	3247,69	127,92	784,74	7,38	2,33	2,09	1,82	85,30	1,11	79,85	6,56	0,81	4,11	10,35		3247,69	
19	9	2010	4656,43	1006,89	143,90	489,26	5396,86	202,59	1014,96	8,27	2,99	5,54	3,44	99,68	1,19	70,28	6,24	0,39	5,80			5396,86	
20	9	2010	3691,86	1263,52	153,80	522,93	4674,35	250,07	1085,21	7,90	1,98	3,72	2,82	90,93	1,67		13,42	0,41	3,29			4674,35	
21	9	2010	6129,60	1185,88	144,93	492,76	4532,27	178,99	1057,97	9,54	1,50	5,02	6,86	102,02	1,11	15,20	4,77	0,28	5,84	10,98		4532,27	
23	9	2010	958,82	183,75	166,73	566,90	2985,51	111,96	756,18	8,85	0,73	0,65	5,31	105,03	1,16	22,52	4,70	0,33	5,37			2985,51	
24	9	2010	413,48	808,89	216,87	737,37	875,33	444,54		1,15	0,41	62,47	5,60			4,23	4,68	0,15	2,64			875,33	
25	9	2010	711,02	4277,58	2604,72	8856,04	1164,02	3309,78		5,17	2,01	366,31	16,93				13,19	0,58	17,53			1164,02	
26	9	2010	573,61	193,74	333,55	1134,05	2484,51	266,38	2123,65	19,86	1,54	4,57	5,17	252,11	1,64	3,96	10,37	0,43	11,56			2484,51	
28	9	2010	1190,68	263,94	283,37	963,46	2481,25	240,73	1413,74	13,81	1,77	7,41	5,05	178,25	1,46	1,74	5,40	0,41	9,53			2481,25	
29	9	2010	1629,04	539,34	372,79	1267,49	4933,79	236,11	1360,56	18,35	2,94	3,81	9,79	190,92	1,19	42,78	8,64	0,45	7,23			4933,79	
30	9	2010	3051,89	656,88	183,31	623,24	3775,22	202,70	947,03	14,10	1,27	3,45	7,57	130,02	1,60	68,82	13,89	0,40	6,55	14,94		3775,22	
1	10	2010	598,52	1911,22	1213,88	4127,19	1282,42	2006,57		7,96	3,41	167,02	12,49			31,87	13,97	0,52	23,26			1282,42	
2	10	2010	1562,34		172,70	587,18	3040,04	129,04	1535,16	14,29	5,35	7,50	4,56	142,78	2,52		12,40	0,74	16,59	22,17		3040,04	

9	6	2011	531,10	120,16	267,77	910,41	2392,54	133,73	654,58	15,70	1,20	1,69	5,58	197,47	14,31		9,84	0,55	3,76	8,68	2000,80	2392,54	733,27
10	6	2011	669,70	346,43	218,84	744,05	2651,02	129,34	699,95	13,21	1,05	0,17	4,92	156,07	1,22	8,42	6,02	0,53	4,18		2190,32	2651,02	680,38
11	6	2011	627,70		200,44	681,49	3102,22	145,45	836,07	13,59	1,12	1,88	5,15	156,24		5,30	8,51	0,41	4,79		2090,93	3102,22	742,89
12	6	2011	761,15	408,15	462,80	1573,51	2796,99	203,72	941,73	26,13	1,38	3,47	9,28	283,40	1,50		11,11	0,53	7,02		2913,55	2796,99	983,91
14	6	2011	511,44		226,75	770,94	2237,29	153,16	416,44	13,99	1,88	2,10	3,77	143,10		2,59	5,86	0,32	4,24	9,49	1120,32	2237,29	773,24
15	6	2011	697,48		221,18	752,00	2905,17	151,39	528,33	11,32	1,62	0,50	3,26	123,55	0,87	11,36	8,96	0,37	4,35	11,39	934,04	2905,17	689,71
16	6	2011	635,19	152,89	266,60	906,46	2447,36	284,75	1436,41	17,59	1,85	4,06	1,93	190,15	1,48	0,88	5,82	0,40	6,58	14,93	886,51	2447,36	1570,36
17	6	2011	848,75	408,45	368,77	1253,81	2954,59	282,06	1303,11	21,95	2,14	9,80	5,18	240,20		1,18	8,62	0,31	6,73		1363,42	2954,59	810,88
18	6	2011	1432,65	281,22	460,04	1564,15	3861,59	217,21	813,42	25,14	5,61	2,88	7,85	231,75	2,31		12,26	0,51	4,65	6,59	878,07	3861,59	1434,18
19	6	2011	365,40	402,30	531,20	1806,09	4944,84	264,98	1182,60	32,30	3,36	4,13	5,93	280,54	2,12		5,46	0,43	14,65	14,39	967,56	4944,84	2212,48
21	6	2011	1013,57	278,76	337,54	1147,64	3949,58	239,79	979,51	16,02	3,20	5,43	7,01	169,04	1,49	5,34	6,86	0,46	5,54	12,65	1629,90	3949,58	1569,92
22	6	2011	3462,45	523,42	273,27	929,12	3278,26	171,86	761,24	13,63	3,43	0,70	0,90	123,35	3,11	0,64	5,57	0,20	3,10	6,11	6111,62	3278,26	2096,74
23	6	2011	3092,60	841,51	259,83	883,41	3616,34	229,65	854,53	13,41	2,25	1,30	2,70	139,29			6,55	0,16	2,89	8,03	6579,35	3616,34	2042,33
24	6	2011	1190,67	525,74	171,84	584,25	2317,26	133,64	766,38	10,56	0,82	0,69	2,52	114,37		18,00	4,73	0,14	2,69	6,60	2061,10	2317,26	1729,16
25	6	2011	1002,70	337,69	126,13	428,84	2172,51	94,29	512,44	7,65	0,72	1,06	2,23	85,24		26,87	3,57	0,21	4,47	6,03	895,77	2172,51	621,86
26	6	2011	1292,35	277,94	90,04	306,13	1559,82	77,93	595,67	5,22	0,86	1,64	4,10	67,92		14,76	3,67	0,27	3,15	6,22	1436,71	1559,82	712,82
28	6	2011	842,37	563,42	186,18	633,01	1828,22	185,87	3139,79	12,24	0,97	5,97	9,80	188,97	7,31	40,86	9,50	0,43	5,62	10,97	1904,89	1828,22	1034,65
29	6	2011	1179,99		170,80	580,71	2435,67	139,04	620,32	6,75	1,91	0,68	12,31	82,22	1,00	10,29	3,28	0,33	1,43		2332,76	2435,67	1078,74
30	6	2011	925,84	172,48	134,56	457,50	2062,11	128,04	840,10	9,51	1,90	5,35	2,18	93,60	1,24	2,37	12,27	0,49	3,35	9,48	934,12	2062,11	1046,03
1	7	2011	1140,19	127,06	270,44	919,49	6233,40	212,30	967,67	13,77	5,99	3,55	6,07	148,00	2,32	10,32	14,50	0,78	4,17	11,17	1602,65	6233,40	2208,49
2	7	2011	862,39	182,58	178,62	607,32	3991,75	133,11	635,88	10,22	2,45	2,93	3,12	111,18	1,37	9,90	5,29	0,25	6,42	8,09	2617,96	3991,75	1412,31
3	7	2011	954,12		159,34	541,77	4394,01	125,56	465,75	9,70	5,02			97,61	1,41	11,34	15,04	0,67	1,29		1019,59	4394,01	8976,99
4	7	2011	881,02		308,35	1048,39	6624,99	187,31	796,54	15,61	5,21	2,60	3,67	176,45	2,06	14,37	13,28	0,68	4,01	12,34	275,94	6624,99	1204,87
5	7	2011	970,27	163,59	285,53	970,80	5587,62	194,78	827,47	15,14	4,04	2,25	5,50	163,47	1,65	6,86	8,83	0,36	4,54	13,87	2209,15	5587,62	1987,28
6	7	2011	1211,50	318,32	182,02	618,87	3220,16	165,43	997,06	11,58	2,38	1,93	2,94	129,51		15,09	10,32	0,45	4,56	9,44	2317,46	3220,16	1086,82
7	7	2011	833,87	261,15	224,79	764,30	2548,56	217,84	1431,41	15,47	1,44	7,28	6,98	172,66	2,14	5,96	8,05	0,45	5,33	7,15	1820,44	2548,56	1058,41
8	7	2011	1247,04	251,69	294,29	1000,59	4522,57	191,90	890,96	15,55	5,37	2,07	4,98	173,35		9,70	21,65	0,62	4,23	9,44	2726,47	4522,57	1939,87
9	7	2011	1143,21	261,55	268,92	914,31	4271,95	179,48	766,97	15,30	7,57	6,23	4,29	164,89	3,77	6,28	14,95	0,64	4,21	10,22	2155,73	4271,95	2127,65
10	7	2011	1367,17	176,99	278,17	945,76	5005,42	193,66	1001,65	15,68	4,89	3,91	5,96	178,35	2,89	13,54	18,00	0,64	4,10		2624,79	5005,42	1562,41
12	7	2011	1193,69	292,89	337,63	1147,93	3666,63	216,97	1676,50	18,72	3,51	4,97	9,52	226,20	2,18	5,16	9,02	0,53	5,81	9,67	2582,27	3666,63	2099,69
13	7	2011	1879,61	526,39	391,37	1330,67	2751,49	269,60	1577,88	25,05	3,00	2,30	4,50	279,30	2,18	20,61	8,81	0,58	5,27		4067,39	2751,49	1620,74
14	7	2011	2288,60	607,87	423,39	1439,54	3432,15	272,09	1539,21	23,68	3,30	2,64	6,63	263,15	2,25	8,91	11,03	0,55	5,01	8,37	2774,78	3432,15	1776,10
15	7	2011	3087,29	461,23	413,11	1404,59	2902,63	257,92	925,30	20,29	4,98	2,01	3,62	216,73	2,98	60,60	24,90	0,63	6,12	11,38	3372,61	2902,63	2797,52
16	7	2011	1422,82	144,08	318,00	1081,20	3667,29	202,30	643,91	15,58	2,71	1,07	0,62	184,39	1,37	12,61	11,80	0,41	3,96		2040,57	3667,29	1413,91
17	7	2011	2244,80	555,53	684,10	2325,94	5927,43	324,12	1557,16	30,41	5,37	3,85	4,80	319,95	2,29	2,64	8,36	0,39	5,97	14,33	2934,80	5927,43	2867,07
18	7	2011	2361,24	570,19	631,25	2146,26	4579,68	306,47	1384,00	31,93	4,61	4,06	6,80	315,94	1,85	22,18	10,56	0,38	5,06	7,18	7378,21	4579,68	2751,34
19	7	2011	1306,03	634,86	381,02	1295,48	2814,56	220,86	1369,54	19,32	2,20	2,58	5,66	212,57		11,37	7,33	0,31	4,53	9,46	3117,80	2814,56	1590,62

20	7	2011	964,66	349,03	288,42	980,62	2013,07	147,42	1036,08	12,63	0,91	0,62	4,84	181,26	0,86	4,59	6,32	0,28	3,45	2416,24	2013,07	956,90	
21	7	2011	937,52		2166,39	7365,74	1536,79	133,82	965,31	18,52	0,96	1,16	6,29	316,74	1,57	6,23	28,56	0,26	5,01	2647,06	1536,79	948,13	
1	8	2011	838,10	117,94	252,48	858,42	7775,58	288,05	743,17	12,63	3,63	3,12	5,98	146,41	1,61	10,79	5,68	0,35	4,24	12,17	2076,96	7775,58	2216,44
2	8	2011	1363,60	197,57	242,36	824,03	7867,65	282,43	721,99	16,25	5,87	4,71	4,14	148,48	2,19	22,53	10,10	0,52	3,94	6,67	1717,61	7867,65	2093,85
3	8	2011	1359,45		242,37	824,07	7874,06	264,48	521,96	13,57	4,42	0,78	3,07	152,26	1,75	9,27	9,99	0,40	6,19	6,89	1993,53	7874,06	1794,38
4	8	2011	1762,03	228,32	312,84	1063,67	6828,65	295,25	831,72	15,78	5,67	2,42	6,07	174,04	2,08	3,58	14,09	0,60	4,67	10,26	1578,47	6828,65	2452,81
5	8	2011	901,82	123,90	301,65	1025,60	6593,36	329,81	922,50	15,76	1,27	3,76	6,40	179,01		7,95	5,67	0,29	5,31	14,55	2953,89	6593,36	2434,44
6	8	2011	824,32	168,65	321,03	1091,50	4909,44	299,36	918,80	17,43	2,83	3,46	4,03	181,39		13,99	8,60	0,47	3,53	12,57	2146,79	4909,44	2185,13
7	8	2011	1346,34	178,42	266,93	907,57	4935,62	310,93	850,38	14,75	3,53	3,32	8,39	169,66	8,84	1,84	10,81	0,50	3,72	13,63	2014,93	4935,62	2050,68
9	8	2011	1687,41	300,53	271,23	922,19	5016,69	287,01	1123,75	14,86	2,47	6,21	8,13	167,58	3,92	7,32	9,45	0,41	5,78	7,30	2614,02	5016,69	2477,73
12	8	2011	725,74	239,71	336,71	1144,80	6914,66	327,06	1104,70	19,79	2,88	3,91	6,84	200,88	2,43		8,97	0,57	5,34	12,27	1503,16	6914,66	2744,42
13	8	2011	1011,68	141,34	442,90	1505,87	5769,22	287,89	956,10	20,64	5,23	3,14	4,53	216,70	2,25	7,24	12,67	0,49	5,14		1224,33	5769,22	1834,30
14	8	2011	1062,59	472,77	875,31	2976,04	4864,66	370,71	1577,72	44,36	8,43	7,02	8,20	429,73	3,80	3,52	19,33	0,75	9,16	9,43	1394,64	4864,66	2406,52
15	8	2011	1557,29	426,41	848,89	2886,22	5369,52	359,73	1463,74	41,55	10,01	5,09	8,67	396,90	4,49		12,77	0,70	10,61	11,82	1787,39	5369,52	2938,23
16	8	2011	1904,34	273,31	563,44	1915,71	7156,73	311,22	1038,64	28,43	6,76	4,42	7,85	296,25	2,79		15,32	0,50	5,64	12,57	2453,19	7156,73	2937,91
17	8	2011	2337,98	213,11	716,12	2434,80	7031,51	354,62	1069,93	36,85	10,97	1,88	6,99	351,54	5,90		19,99	0,92	8,92	11,03	2773,47	7031,51	2945,99
18	8	2011	384,69	295,96	646,67	2198,66	7880,91	328,71	1031,48	30,64	0,57	2,66	4,96	314,41	0,75		7,55	0,32	3,03	12,60	2058,56	7880,91	2772,49
19	8	2011	1466,19	396,19	486,94	1655,59	6358,57	325,72	1591,51	26,28	5,40	6,79	6,03	265,27	2,31		13,92	0,44	4,60	11,16	10913,32	6358,57	10507,86
20	8	2011	1630,69	263,27	472,32	1605,89	7589,16	297,33	1175,75	23,34	9,12	2,30	3,36	239,85	3,87		15,03	0,77	4,66	13,79	1616,72	7589,16	2431,73
21	8	2011	1042,95	263,34	489,20	1663,28	8343,49	263,61	1084,64	26,14	6,02	3,37	11,66	270,07	2,84		9,03	0,38	5,75	16,29	2835,04	8343,49	2029,18
22	8	2011	873,70	293,92	432,37	1470,07	7713,48	248,42	1045,03	23,88	5,53	4,21	5,84	227,12	2,75		7,79	0,33	5,04	10,95	2016,01	7713,48	2213,83
23	8	2011	1089,65		462,92	1573,91	9300,26	260,32	719,31	22,21	6,23	1,10		219,10	3,55		16,40	0,33	11,46		2185,58	9300,26	2257,57
25	8	2011	946,26	247,92	131,77	448,02	2043,11	93,61	445,06	8,12	0,84	0,73	2,49	108,69	3,33		6,66	0,35	1,95		2314,14	2043,11	814,23
26	8	2011	480,91		89,80	305,31	1281,23	85,47	528,64	5,51	0,51		6,62	74,92			6,75	0,28	1,78		1600,41	1281,23	774,93
27	8	2011	835,96	288,70	181,71	617,83	3534,73	147,30	818,43	11,61	0,90	0,90	3,83	150,53	1,55		9,24	0,76	3,28	9,00	2805,03	3534,73	827,64
29	8	2011	882,32	131,18	122,55	416,67	1551,46	150,38	925,32	7,28	2,05	2,93	3,31	97,24	1,96		9,48	0,41	14,47	11,88	1353,51	1551,46	936,72
30	8	2011	647,12	178,90	161,67	549,69	1710,55	196,73	1075,16	9,75	1,33	5,52	3,14	111,82	2,24		6,76	0,37	3,63	12,10	1292,34	1710,55	1283,99
31	8	2011	1175,43	188,72	204,47	695,18	4266,82	182,21	726,04	10,27	3,19	3,59	3,58	125,69	1,48		10,48	0,45	2,61	8,43	2093,42	4266,82	1983,77
1	9	2011	1315,88	223,09	162,74	553,33	3861,08	128,92	395,07	7,54	3,37	0,50	3,16	92,42	1,60		9,69	0,34	2,51	6,63	1865,89	3861,08	1805,70
2	9	2011	2094,48	191,67	98,95	336,44	2427,41	102,12	284,51	5,35	1,21	1,06	0,99	54,55	0,38		3,46	0,14	3,44		2527,29	2427,41	753,91
3	9	2011	937,83	107,32	138,73	471,69	3274,27	108,07	444,86	8,98	2,13	6,93	4,92	83,62	13,82		8,56	0,22	2,50		1177,03	3274,27	4586,92
5	9	2011	890,97	122,80	159,89	543,62	5659,09	143,12	535,06	7,45	2,78	5,22	5,29	95,87	1,50		6,04	0,31	2,99	8,42	1854,10	5659,09	2103,08
6	9	2011	872,09	366,12	273,12	928,62	3629,04	177,52	824,28	13,70	1,71	1,44	5,30	167,99	1,47		7,85	0,39	4,37	8,70	1982,05	3629,04	1808,46
7	9	2011	663,75	272,04	298,43	1014,68	2825,51	260,73	1360,22	19,60	2,15	2,44	6,63	240,59	2,42		10,57	0,76	5,21	15,41	1696,16	2825,51	1253,64
8	9	2011	616,40	130,74	294,05	999,78	3196,25	282,53	1097,90	16,15	2,38	3,22	6,00	213,04	1,78		12,36	0,45	8,45	8,79	1862,46	3196,25	1455,28
9	9	2011	770,16	307,03	326,64	1110,57	3824,49	287,88	801,02	15,82	2,48	3,08	6,52	208,50			11,82	0,51	5,14	10,13	2228,93	3824,49	1826,42
2	10	2011	1040,36	419,08	415,40	1412,35	5542,41	274,24	1413,99	23,32	8,85	6,87	7,77	237,84	3,86		17,62	0,68	6,22	17,78	1942,74	5542,41	3290,20

12	3	2013	279,72	194,85	175,45	596,55	2287,37	167,70	1352,03	10,88	1,83	6,53	7,55	113,74			11,41	0,90	9,24	9,09	470,62	2287,37
13	3	2013	314,35		150,04	510,14	1967,43	150,42	1119,95	10,37	3,44	5,69	3,07	102,85	2,63		9,81	0,95	10,78	12,35	213,46	1967,43
14	3	2013	560,62	361,40	141,07	479,64	2650,89	197,91	1781,73	11,33	4,78	12,50	6,31	101,40	2,51		7,60	1,59	13,90	10,81	530,70	2650,89
15	3	2013	1074,87	347,24	53,27	181,12	2393,96	100,47	599,99	3,85	0,88	1,30	2,07	39,85	1,34	2,50	13,84	1,36	2,26	10,32	2622,93	2393,96
17	3	2013	1216,52	158,06	37,09	126,11	1134,72	65,09	291,19	2,40	0,53		0,81	23,25	0,36		5,02	0,33	2,38		1475,38	1134,72
19	3	2013	176,71	224,28	167,98	571,13	2432,40	170,24	1111,97	9,07	1,63	5,61	5,56	114,78	2,93	0,44	17,30	1,49	5,59	9,74	302,94	2432,40
21	3	2013	647,19		50,56	171,92	1573,59	61,95	383,02	1,44	0,54			26,66			14,70	0,59	2,10		1467,60	1573,59
23	3	2013	482,71	240,38	122,10	415,15	3150,33	132,35	1008,70	9,05	1,27	4,33	4,34	101,84	1,19		9,08	0,99	2,84	23,53	671,92	3150,33
25	3	2013	4835,69	305,23	53,45	181,73	2255,71	168,03	652,21	2,82	0,88	1,62	0,29	36,16	0,67	5,85	3,85	0,41	4,00		4444,49	2255,71
26	3	2013	7279,16	423,32	104,41	355,01	1960,38	168,81	437,38	3,28	0,56	0,24	2,05	42,91			2,40	0,15	4,46		7409,76	1960,38
30	3	2013	655,84	126,02	33,75	114,74	1917,32	39,87	217,02	1,54	0,54	1,78		26,97	1,22	0,36	13,92	0,36	2,82		636,39	1917,32
31	3	2013	3631,66	731,73	138,41	470,58	3988,07	187,09	580,82	7,46	2,75	3,45	3,36	93,91	0,84		7,07	0,36	3,72	9,65	4643,10	3988,07
3	4	2013	7668,70	358,37	734,69	2497,93	2511,42	382,19	1443,69	36,86	1,94		8,56	345,12	2,09		11,82	0,26	5,53		9595,72	2511,42
4	4	2013	9510,15	603,19	275,60	937,05	1697,77	307,56	797,08	9,52	0,62	1,88	3,96	102,68	7,77	7,60	4,63	0,07	1,73		11791,00	1697,77
5	4	2013	590,92	944,30	1298,85	4416,07	2346,20	394,41	2201,53	65,51	2,16	0,22	16,93	595,11			16,48	0,70	3,81		2244,03	2346,20
7	4	2013	391,82	543,48	1196,75	4068,96	2455,81	357,70	2182,63	58,50	2,79	1,73	12,42	562,33	3,03		16,48	0,73	14,68	11,85	370,73	2455,81
8	4	2013	2728,64	321,12	109,71	373,03	1492,86	134,60	653,97	5,72	0,81	2,21	0,54	54,67	0,72		5,87	0,24	2,27		3272,07	1492,86
9	4	2013	2657,81	423,78	44,73	152,10	991,11	85,61	604,73	2,64	0,48		1,39	34,98	0,90		5,34	0,11	6,06	10,56	3127,54	991,11
10	4	2013	616,89	227,61	82,14	279,29	1154,20	113,35	881,72	4,90	1,09	7,18	0,15	55,58	7,81		20,98	0,70	5,93	9,46	991,33	1154,20

Ek 3. Bolu gnlk Aerosol Konsantrasyonları
(konsantrasyon deęerleri ng m⁻³ cinsindedir)

Blm 1 PM_{2.5-10} fraksiyonu

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
22	2	2011	26553		24	53	148	301	1600	115	274	72,9	4,7	15,5	49,8	398	9,5	39,4	118,0				131,9	1079
24	2	2011	9358	56	13	52	103	170	1660	98	115	43,9	3,2	7,3	24,4	188	4,5	19,2	49,6			4,8	81,1	1032
25	2	2011	15657		5				294		596		1,4	3,0	11,2	865	2,0	5,0	14,0				1,9	126
26	2	2011	3365						56		105					162								75
27	2	2011	6504						2831	232				1,5	7,8	603		2,2	7,8					1213
28	2	2011	7053						253		181					276								113
1	3	2011	21005						222		128					191			4,7					131
2	3	2011	9747		9				499	61	802	20,7	0,9	4,4	18,2	121	2,8	11,8	8,5				6,6	378
3	3	2011	8377		92	14		72	5552	336	309	13,8	2,3	5,3	17,9	137	3,2	12,4	30,6			6,1	146,2	1012
4	3	2011	7006		1				437		276			0,8	6,3	441		0,8	10,3				0,4	122
5	3	2011	13602	13	13	38	125	232	1047	132	197	102,6	6,4	12,2	40,6	313	7,6	37,8	92,2			12,5	239,1	543
7	3	2011	11327						73		238					332			7,9					15
8	3	2011	4479						67		261			0,5	5,3	374								31
9	3	2011	3002													83								
10	3	2011	2746	36					226		130					218								186
11	3	2011	6192	28	4				317	45	249			0,6	5,0	394		0,0	12,8				1,8	200

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
13	3	2011	16329	258	97	47	121	247	1193	133	243	85,9	7,8	15,1	48,6	360	8,8	43,1	137,8			11,6	128,9	177
14	3	2011	22281	391	98	43	860	145	2953	290	409	339,	27,	25,	78,	602	14,	82,	328,	1,7		54,	853,5	1790
15	3	2011	18945	269	19	84	234	456	1578	180	352	205,	11,	23,	73,	566	13,	69,	179,	1,1		36,	390,6	672
16	3	2011	25985	564	25	18	529	144	2740	321	466	57,2	1,0		31,	519	3,5	2,8	3,3	1,3		32,	408,8	3031
17	3	2011	18804	289	25	10	354	745	665	202	330	320,	12,	20,	65,	514	11,	67,	210,	1,1		8,6	479,7	316
18	3	2011	6919	84	20				219	58	553	17,0		2,6	10,	813		5,8	26,2				14,6	88
19	3	2011	6170		4				265	77	551	17,0	0,5	2,6	10,	826		6,0	29,0				1,1	120
20	3	2011	2759						174		115					163			1,0					90
21	3	2011	2751		2				165		244			0,5	4,4	360			5,9				4,6	66
23	3	2011	12373	109	76	32	96	152	772	133	146	113,	5,9	9,2	30,	235	5,5	28,	82,8				76,8	453
24	3	2011			25				332	80	965	46,2	4,3	5,6	19,	151	3,7	15,	8,3				45,0	205
25	3	2011	5476	276	7				72	51	758	23,4	1,1	3,9	16,	109	2,6	8,8	19,4				24,0	64
26	3	2011	7487	18	10	12			166	75	120	36,1	5,5	7,1	23,	175	4,1	18,	51,2		6,0	22,8	187	
27	3	2011	11248		53	28	68	132	248	87	163	62,9	6,1	9,6	32,	235	5,6	27,	84,8				60,1	190
28	3	2011	3510		30				252	54	923	25,2	1,4	5,0	17,	133	3,1	12,	35,4				8,9	86
29	3	2011	13502	161	97	71	181	345	592	179	223	146,	10,	14,	50,	341	8,2	43,	39,5	0,5		11,	209,7	203
30	3	2011	30515		45	36	127	236	1117	152	142	114,	4,4	9,3	30,	246	5,8	27,	20,7	0,6			98,4	534
1	4	2011	5178	103	14	14		102	614	105	130	52,5	2,5	7,9	25,	198	4,7	21,	14,2				30,3	118

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
2	4	2011	5727	104					479	56	317	8,5		1,3	6,3	503	1,2	2,0	20,6					185
6	4	2011	3391						522		266			0,9	5,5	442		0,7	5,5					106
7	4	2011	11674	13	50	53	152	292	790	174	181	99,2	5,9	11,3	38,8	297	7,0	33,1	25,8				44,3	534
9	4	2011	7597		2				80	93	557	18,1	1,3	2,7	11,0	848	2,0	6,5	25,4				3,7	85
10	4	2011	2149	73					26		108					162			0,2					7
11	4	2011	5777		3				47		209				4,3	297			3,4				3,5	23
13	4	2011	4988	35	25	32	137	251	242	154	144	82,3	4,2	8,8	30,0	229	5,3	25,3	73,1		6,8		14,3	151
16	4	2011	7269		39	20		94	363	98	146	47,8	8,8	8,6	27,3	220	5,1	23,8	17,5				20,6	234
20	4	2011		66	29	12		100	194	41	447	9,0			8,4				19,7		8,4		88,5	105
21	4	2011	3394	174	279	93	183	490	266	99	114	30,1			13,6			1,3	60,9				679,1	161
22	4	2011		443	781	229	374	984	940	186	206	40,7			18,2	530		0,2	7,2		5,7		2474,5	320
23	4	2011		357	538	216	468	1195	1968	236	210	42,2	2,4		8,1	274		0,2	9,8				725,2	1799
24	4	2011	52323	568	245	382	1027	2430	4310	454	334	77,8	1,5		10,3	732		1,2	12,6		19,0		366,4	1648
25	4	2011	14067	497	231	165	524	1226	1331	224	285	51,2			63,7	80		1,3	35,6				1304,0	477
26	4	2011		313	1739	39	175	664	586	167	366	41,5	1,5		24,8	312			20,1		13,9		54,6	150
27	4	2011	7000	194	50	54	197	780	1108	215	369	65,2			20,4	459		2,0	29,6				167,9	265
28	4	2011		95	18	43	174	562	565	136	958	33,6	0,8					3,3	5,2				16,5	355
29	4	2011		475	450	710	1924	4538	2213	767	420	160,3	3,19		56,0	1066		12,1	49,1	0,57	20,8		1722,1	778

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
30	4	2011		169		25	93	306	232	131	1572	17,8							25,8					71
1	5	2011		43									2,5						39,2					
2	5	2011		336	31	47	206	718	314	164	2151	42,2		8,4	343				6,4	0,60	10,4	68,6	108	
3	5	2011		475	27	87	423	1302	1187	358	2785	86,1	2,0	40,6	508			4,1	47,5		12,4	43,3	1168	
4	5	2011	673	608	50	104	385	1171	622	337	1749	61,9	0,5	22,3	607						8,1	121,9	257	
5	5	2011		58					43		152								16,5					47
6	5	2011		204	280	90	125	335	401	122	670	15,5							36,7			690,7	83	
7	5	2011		195	199	141	363	919	525	194	1738	38,5	0,5		194			0,4	36,2			320,6	458	
8	5	2011		92	60	42	119	438	299	134	1433	26,1		17,8	163						5,9	8,1	67	
9	5	2011		302	93	50	124	401	802	142	1802	29,2			235				6,8		3,6	78,2	218	
10	5	2011		409	151	190	564	1355	1435	231	3576	58,8	1,6	20,1	586			1,0	2,4			192,9	561	
11	5	2011	4276	132	70	60	177	454	887	129	789	24,7		41,2				7,3	42,8			99,1	127	
12	5	2011		137	24	12			362	38	101								25,6		4,4	55,5	425	
13	5	2011		10	27	23		132	356	65	259								23,6			122,7	132	
14	5	2011		118	60	85	237	643	556	194	1228	32,3						2,0	38,0			359,3	255	
15	5	2011		257	80	129	400	1142	609	223	2200	40,7		18,4	260						7,8	171,3	537	
16	5	2011		118	67	157	426	1138	471	199	2840	68,1		11,3	121				54,9			219,4	71	
17	5	2011	3361	214	52	125	321	862	553	148	2477	37,9	2,1	10,7	97			1,0	15,4			58,0	152	

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
18	5	2011		33	17	29	767	213	1460	353	489	87,1	2,2			478		8,8	46,2	0,4		12,	918,7	642
				9	2	9		5			6									5		4		
19	5	2011		37	11	13	363	112	708	327	172	58,7	1,5		21,	379			16,9			12,	11,7	277
				5		2		8			4				6							0		
20	5	2011		90	16	23	556	143	1215	258	154	47,6			23,	372			17,3	0,9			297,3	571
					6	6		5			6				9						1			
21	5	2011		11	11	46	188	656	225	191	849	38,3	1,4		6,8	140			11,9				3,5	29
				3																				
22	5	2011																						
23	5	2011	8563	48	13	14	345	787	5487	309	599	25,1			12,	230		4,3	24,5	1,0		36,	300,9	2029
				5	1	0									3					9		3		
24	5	2011		11	35	50	115	292	2026	85	315	13,5	1,1					3,1	26,6				81,2	765
				0																				
25	5	2011	5386	13	84	78	184	462	5657	207	423	14,0	1,1		6,3	32			18,0	0,6			163,2	1387
				1																3				
26	5	2011	1172	12	18	14	402	944	9635	440	186	22,3				469		8,9	49,8	2,3		44,	199,6	4403
				5	0	2					0									4		6		
26	5	2011	4191	30	12	11	243	588	7665	278	528	18,9	0,9		58,	144		1,1	18,6	1,0		32,	236,2	1929
				2	5	4									1					5		8		
27	5	2011		25	9			197	7257	348	529	21,4						3,5	67,1	1,3		13,	16,3	3385
				7																4		6		
28	5	2011		12	2			99	3780	188	266							4,1	49,2	0,8		7,9	1,9	2292
				1																7				
29	5	2011		18	11	50	155	353	6940	214	495	17,7			21,							22,	131,2	5367
				4	3										3							7		
30	5	2011	13933	16				119	4094	185	369	11,3			48,				3,1			16,		1945
				4											1							5		
31	5	2011		21					2131	105	253							2,3	42,2			25,		1103
				4																		6		
1	6	2011	1395	32	3				4023	114	182								19,4	0,6		18,	5,6	2480
				3																0		0		
2	6	2011		22	93	50	136	355	8650	200	423	16,0			9,4			2,0	53,8	0,7		9,0	222,0	9738
				0																9				
3	6	2011		23	11	10	262	627	6696	239	467	25,2	1,3			279			25,2	0,8			191,1	2586
				2	6	0														9				

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
4	6	2011		685	96	69	184	500	4004	156	293	16,5			15,5				20,0			8,7	152,6	1869
5	6	2011		77	3	11		230	2088	163	441	16,6	1,4		9,0	143						10,1	5,4	2310
6	6	2011	27225	259		8	58	185	3474	171	395	17,6					3,3	7,3	42,1					1387
15	6	2011		67				232	4701	192	655	24,1					7,6	9,1	80,9					1337
16	6	2011	212	250	36				13005	208	473	17,5	3,3						4,2				22,4	4830
17	6	2011	7874	316		13	82	266	1358	125	378	25,7							5,5					869
18	6	2011		783	15	76	176	444	10362	411	134	60,1		43,5			16,2	137,6	1,85		39,5	265,1	7732	
19	6	2011	3697	297	21	16	536	128	5976	404	110	35,1	1,9	6,2		325		8,3	41,8	0,54		7,1	189,1	1711
20	6	2011		197	10	26		167	6058	103	171	8,8			6,9							15,0	186,8	3142
21	6	2011		102	10	35	97	201	3836	127	318	9,2	2,5									7,3	209,5	1634
22	6	2011	4490	203	53	28	79	184	2550	98	346				5,2		2,1	0,2	14,5	0,51			116,8	1220
23	6	2011		457	14	8		159	3728	208	637	14,8	1,6					0,8	10,5	0,71		20,0	18,2	554
24	6	2011		240	16	32	236	796	4626	403	123	65,7	0,9		14,5	525	2,3		5,9	0,56		12,7	24,9	1270
25	6	2011	8423	99	3			2825	80	248			2,7										10,5	994
27	6	2011	938	169	12	19		1609	71	107								1,8	27,1			9,0	137,5	1235
28	6	2011		53	5	9	92	350	2863	248	362	30,3	1,4		37,9		2,5	0,5	15,9	0,58		21,4	6,4	2618
29	6	2011				2		1754	111	299								2,5	40,7					1868
30	6	2011		159				4118	107	141								6,1	36,7	0,65		21,9		1699

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
1	7	2011		110				179	6880	197	767	18,1	3,8					3,4	38,4			7,2		3735
2	7	2011		182	5	7		164	4245	146	358	21,9			17,6				38,1			4,6	20,5	1301
3	7	2011			23	17	104	327	8976	315	190	28,3	0,7		8,5	64		3,1	55,2	0,93		21,2	37,4	3568
4	7	2011		203	84	104	344	822	441	154	139	29,1			52,2	134			24,1				178,1	249
5	7	2011		79		14	109	428	2725	291	562	29,9			56,5			10,5	46,1			33,8		699
6	7	2011		114					8442	154	355				52,2				27,4			6,0		3227
7	7	2011	5513		25	28	161	589	1019	413	117	52,9	3,4		10,3			13,9	95,4			16,5	34,0	2421
8	7	2011	295033	215	342	364	1024	2651	8762	1177	1479	78,2	1,9		19,5	210		6,6	56,1			25,8	1137,7	2098
9	7	2011		160	45	64	328	1069	1495	341	400	64,4			41,0	857							62,8	959
10	7	2011	11148	199	314	548	1866	4409	1994	604	554	133,1		23,9		1051		9,7	4,6	0,45		4,2	710,7	1128
11	7	2011		256	133	59	169	386	7340	247	577	20,1	3,2						29,5			20,3	210,9	1338
12	7	2011		179				138	5018	177	437	15,4			11,5	129						5,6		4477
14	7	2011		136				215	6230	194	694	18,5			55,1				26,4					2140
15	7	2011		518	1			91	2809	91	381		1,8		4,1				13,0	0,54			2,8	1698
16	7	2011		412	8	9	65	243	3090	248	433	18,2	1,1		4,6	46		2,3	28,1	0,53		15,7	26,3	1051
17	7	2011			12	37	250	966	4266	604	175	69,5	3,0		12,7	383			7,7			38,7	25,4	816
18	7	2011		478	41	27	64	151	4519	76	293				20,4			3,2	35,8				89,2	1562
19	7	2011		167	3				3782	70	321							6,2	21,7			8,7	15,4	1357

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
20	7	2011	15198	170	16				10761	204	371	13,4							36,7	0,79	7,1	22,3	6905	
21	7	2011		186	11	63	205	854	77	421	16,6			11,7		4,7					8,0		382	
22	7	2011		47	357	113	372	912	5956	388	3606	34,0	1,1		412		8,2	74,0	1,37		24,8	1084,5	2107	
24	7	2011	9674	95	10			287	8918	598	924	25,0							47,9			23,6	10,2	2858
25	7	2011	1981		77	83	258	667	4037	302	486	19,3	0,8										98,8	1657
26	7	2011	10060	229	53	8	27	48	3196	129	59			21,2				11,5		0,71	14,6	164,8	1920	
27	7	2011	14478	39					2845	78									20,3			12,2		1557
28	7	2011		250	296	44	124	297	10943	733	493	9,5		29,6				8,4	80,6	1,40	29,2	372,3	2912	
29	7	2011	6787	138	197	42	65	196	10474	341	155	11,0		2,0		139		7,8	24,1	2,34	48,4	555,8	6462	
30	7	2011	19871	144	91	8	15	37	7528	155	57	1,4		10,8				0,3	2,8	0,13	3,7	118,7	3641	
31	7	2011	2715	135	283	38	31	238	17944	564	72	2,3		8,9				0,5	96,0	2,37	42,7	701,2	5115	
1	8	2011	13098	261	566	130	213	567	3398	186	1695	43,2		5,0		202		4,1	8,2	0,47	13,4	1853,0	1255	
2	8	2011	7193	191	132	40	73	205	428	39	914	8,9		11,2				4,4	0,0	0,02		173,5	212	
3	8	2011		139	460	70	58	151	6502	222	144	3,9		4,5				1,9	4,6	0,75	2,7	675,2	1482	
4	8	2011		225	223	23	90	216	563	55	407	7,3		4,3					36,1	0,11		345,9	278	
5	8	2011	3954																					
6	8	2011	9797	34	439	13	311	837	3589	258	2555	29,0	2,0	14,2		181			64,5	0,63	7,7	898,8	1425	
7	8	2011	762	79	88	27	58	164	1561	130	606	6,4		1,4		59		1,7	6,3	0,40	8,2	131,3	649	

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
8	8	2011	16559	29	20	11	29	93	580	30	776	5,1		20,9					83,7	0,2			24,6	184
9	8	2011	10122	16	71	16	454	118	7919	307	306	123,2	2,0	19,9	298		9,1	90,3	1,3	22,9	1854,0	3525		
10	8	2011	12174	14	95	10	357	845	6615	380	805	25,1							23,4		13,9	112,3	2771	
11	8	2011	1748	60	10			261	5609	249	433	18,8							13,2		6,6	52,4	1973	
12	8	2011	15118	40	3			153	2788	181	309	14,8										7,7	678	
13	8	2011	5925	45	46	74	129	544	2832	136	683	10,8		82,4				41,9	192,6	4,8	76,1	504,9	2729	8
15	8	2011	1699	16	23			202	3713	348	701	12,8							45,2		19,3	172,9	6135	
16	8	2011			18	10	187	458	6083	135	230	16,6		33,8				11,2	65,2	0,4	5,7	432,1	3438	
17	8	2011	5631	11		2								10,4				3,8						
18	8	2011	15388	31	32	12	401	104	4877	453	308	38,1		6,5	392		8,6	60,8	1,2	18,3	348,0	9965		
19	8	2011	3625	32	49	16	377	101	8536	399	430	43,3		7,3	396		3,8	71,5	1,0	20,1	1080,6	3545		
20	8	2011	1913		11	35	110	313	1526	571	390	6,1		33,2				10,4	115,3	2,2	40,7	256,4	8991	
22	8	2011		27	67	12	289	624	3499	171	974	39,6	0,8	13,7	86		4,7	74,3	0,3	0,8	1268,3	1743		
23	8	2011	13079	18	33	11	264	593	2640	235	212	22,9		27,1	148		14,6	10,3	0,4	9,9	105,7	480		
24	8	2011	8226		54	11	163	425	2679	125	101	33,0		29,5				6,1	4,1	0,4	9,8	1201,2	1149	
25	8	2011	5186		40	16	255	640	829	97	141	20,2	2,8	36,5				12,7	105,8	0,2	1,3	773,0	280	
26	8	2011	20519		44	14	375	108	4503	563	431	41,9	2,9	19,0	261		6,5	76,5	1,6	34,1	964,9	2579		
27	8	2011	18217	44	27	50	152	662	1452	778	419	60,9	1,0	8,0	629		13,0	83,9	3,7	73,8	533,2	4535		

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
28	8	2011	12761	473	167	270	925	2344	1824	338	3424	84,6	1,0	19,9		549		4,9	62,9	0,40	1,1	329,4	808	
29	8	2011	6151	880	130	2977	411	8309	282	109	6,1			11,2				9,8	43,8	1,47	33,4	157,6	4300	
30	8	2011	7715	106	272	77260	496	1974	131	140	26,4			9,5		153		8,6	4,2	0,17	2,3	619,7	702	
31	8	2011	50321	878	361	42108	346	15847	573	234	11,3			8,9		62		3,6	55,0	2,08	46,2	904,1	7533	
	1	9	2011	8758	881	2228	62	185	10528	525	264	6,4		18,0				4,6	82,6	1,37	28,8	317,1	4059	
	2	9	2011	12417	49	1								1,1						0,20				
15	9	2011	34683	476					1396	91	90								16,8			8,9		851
16	9	2011	47341	256	110	133	377	1057	1402	217	2738	31,6							22,1			7,2	353,2	655
17	9	2011	4342	689	1951	145	438	10315	661	733	15,2								32,1	2,43		39,9	360,1	2626
18	9	2011	12709	234	158	3284	198	7727	454	582									51,7	1,45		31,7	86,9	2630
19	9	2011	6816	357	104	191	575	1467	569	252	1415	40,5							16,6				567,1	87
20	9	2011	26277	553	6178	255	639	277	108	1298	20,3								0,9				267,0	220
21	9	2011	20900	392	3				28										12,1			4,4	2,4	8
22	9	2011	10645	213	124	31		244	4068	321	295								53,0	1,28		32,6	197,3	650
23	9	2011	11861	241	76			149	3737	328	348	2,9							2,9	0,93		22,4	62,0	1235
24	9	2011	21495	911	9			139	2605	347	505	10,8							18,2	0,49		14,8	24,7	1344
25	9	2011	10270	653	235	14438	1642	1169	575	2077	85,2								24,7				1399,8	497
26	9	2011	15413	334	4				3876	98									7,3			14,9	14,2	2860

D y	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
27	9	2011	22171	150	149	30		194	4451	246	296								11,8			12,6	157,5	1755
28	9	2011	15395	268	127	32	79	202	5584	414	406		0,9						15,8			48,4	351,4	2434
29	9	2011	8233	81	8	24	116	439	56	134	696	21,1							19,5			8,0	28,8	11
30	9	2011	12882	178	112	62	205	462	3868	275	717	15,5						2,2	41,5	0,38		15,0	282,8	2083
1	10	2011	22773	118	186	58	152	501	6530	478	104	21,3	1,9						28,8	2,67		77,1	543,6	9271
2	10	2011	28795	808					682	49	128								20,6			8,0		955
3	10	2011	10835	216	109	48	141	313	4801	171	177	7,7	0,7						20,2			7,8	312,4	1654
4	10	2011	10340	316	51	23		186	4277	143	321								6,9			7,7	78,6	1602
5	10	2011	13742		3			112	1403	115	349								7,3			8,1	6,2	699
6	10	2011	12125	293	144	11	321	805	1066	153	154	32,7										3,4	753,2	296
7	10	2011	12814	409	45	36	122	282		44	534	9,3										3,8	69,2	
8	10	2011	35468		211	74	231	485	7709	206	443	16,5							6,3			9,5	941,6	2636
9	10	2011	15235	453	7			338	1808	438	459	22,5				82						14,4	14,8	723
10	10	2011	6904	59	78	59	181	468	79	69	117	15,4							6,1			4,2	79,1	31
11	10	2011	2671		15		90	319	4309	375	555	22,4							14,9			16,1	28,6	2558
12	10	2011	5307	131	61	30		317	219	111	797	17,0											203,2	51
13	10	2011	7118	197	9				6153	182	189	7,5	1,1									7,7	19,4	1912
14	10	2011	7007	237	112	80	177	450	302	94	130	23,4							1,0	37,2			356,5	373

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
15	10	2011	26212	52	13	10	326	807	295	129	167	30,6							31,5				232,2	137
16	10	2011	45571	22	10	10	379	936	445	160	194	32,7	0,9			142			0,9			8,0	230,2	104
17	10	2011	2060	47	5			229	10	65	952	15,2											15,5	9
18	10	2011	3462	74	28	35	156	533	435	162	221	37,8	1,8			284						12,2	93,8	263
19	10	2011	9991	10	12			404	5996	241	900	28,4	2,2									10,5	36,0	2864
20	10	2011	24407	65	7			149	4151	234	257	13,9	1,8						11,2			6,3	20,6	1890
21	10	2011	18588		13	20		318	4336	320	192											18,1	168,5	1014
22	10	2011	6200		75	15		118	4011	235	132								3,8	0,5		10,9	101,1	597
23	10	2011	8355		12	47	199	492	5332	466	240	16,1						1,9	40,1	0,5		13,5	76,9	1861
24	10	2011	18056	31	13	52	154	363	4998	320	330	27,4							9,3			13,9	332,5	2218
25	10	2011	12329	26	14	84	274	903	680	250	366	49,0				500							179,5	211
26	10	2011	11742	18	1			94	1001	76	235	8,9										6,2	3,3	287
27	10	2011	12591	23	15				3671	267	246								19,8			18,6	31,6	1364
28	10	2011	60319		85	62	160	456	5880	359	780	12,5	0,7						25,7	0,4		15,2	205,8	296
29	10	2011	35603																					
30	10	2011	3310		2																	3,8	8,5	
31	10	2011	4532	26	10	35	88	222	2176	280	472								9,3	0,5		10,6	160,5	862
1	11	2011	50684		61	18	73	171	2990	227	84	5,0										5,0	79,6	563

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
2	11	2011	5193		65	57	232	499	3438	345	266	17,0							7,6		11,0	80,1	676	
3	11	2011	7645	142	45	21		108	92		253								16,4			30,4	85	
4	11	2011	22939	651	10	87	252	641	291	107	136	26,5				75						216,5	218	
5	11	2011	5413		17	12	354	891	1799	241	272	34,1	1,4			247			22,7	0,48	13,6	244,3	925	
6	11	2011	12362																					
7	11	2011	15132	221	17	14	394	102	280	186	210	38,2							34,5			242,0	131	
8	11	2011	13296	313	76	52	204	675	659	209	227	36,1				301			20,5			186,7	262	
9	11	2011	15072		50			78	4616	131	193								17,7		10,2	42,4	613	
10	11	2011	11137	90	73	72	260	572	1953	173	491	17,5							0,1		8,6	143,2	139	
11	11	2011	19661	466	7			148	12	42	687	9,2							24,9		6,6	34,1	4	
12	11	2011	8584		13	74	258	549	5867	446	478	13,8							27,5		8,1	241,8	2294	
13	11	2011	12337		17	71	210	499	7278	346	774	15,4							22,9		9,4	331,4	3909	
14	11	2011	19167	530	61				4406	157	94									0,50	14,0	66,2	203	
15	11	2011	48086		15	30		246	7075	547	265	7,4							21,6	1,38	38,3	323,6	3419	
16	11	2011	9960		68	31	112	276	1936	246	487	10,3							8,7	0,58	9,8	146,2	1237	
17	11	2011	31757		11	42	128	289	3032	322	210	11,7							18,6	0,60	13,3	229,5	2216	
18	11	2011	28000		13				107		257											17,0	31	
19	11	2011	45769		14	49	112	359	3925	310	651							0,5	57,0		10,6	151,2	5572	

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3	
20	11	2011	19318		98			133	2872	145	169												142,2	347	
21	11	2011			13	23		158	6441	431	288								8,6	1,7		46,	56,9	3043	
22	11	2011	11232		12	33	84	213	5226	359	475							7,3	88,9	0,9		20,	251,6	1530	
23	11	2011	15966		38				1328	134												8,0	50,2	390	
24	11	2011	12809																						
26	11	2011	32087		56	20	67	158	2653	141		3,6										6,7	34,6	267	
27	11	2011	4660		13	22		156	3760	439	389	4,9							5,8	1,8		42,	39,2	820	
28	11	2011	79228		19	46	95	236	4262	290	205	9,3							41,9		0	10,	391,0	2779	
29	11	2011	1914		18	46	131	308	3494	331	355	7,6										11,	157,0	1689	
30	11	2011	15214		65				4315	243	95											12,	57,6	1472	
1	12	2011	25858		8						348												15,3		
2	12	2011	26719		3				2252	317	297								9,3	0,9		25,	4,8	1097	
3	12	2011	12427		13	25	77	192	8196	522	593								5,5	57,8	1,7	54,	162,9	4549	
4	12	2011	70537		13	82	204	539	430	88	849	19,0											304,8	261	
5	12	2011	2351		17	50	152	351	4623	451	371	10,1	1,4									14,	473,2	1525	
6	12	2011	26141		96	19		103	5484	267	208								1,0	23,5	0,7	23,	102,6	2838	
7	12	2011	9402	25	69	38	123	326	6961	153	465	6,2		3,9	10,	109	2,4			8,0	0,2	5,	6,4	74,6	2721
8	12	2011	12699	22	12	11	342	889	7322	374	427	21,0		2,0	12,	271	1,4			5,5	0,3	8,	7,4	101,9	2230

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
10	12	2011	2344		4	8	29	88	765	26	54			3,7	9,3		1,2			0,2	0,	0,5	2,8	721
11	12	2011	2320	28	18	16	55	141	1213	44	65	2,0		12,	21,		0,3	0,2		0,1			11,2	269
12	12	2011		58	19	19	51	143	831	33	505	1,7		3,8	6,7		1,7	0,2		0,2			27,8	128
13	12	2011	29114	45	12	96	319	807	8018	235	129	23,4		3,8	12,	280	2,1		12,4	0,4	4,	5,1	161,8	2347
14	12	2011	76003	86	15	83	339	792	9117	304	999	33,5		11,	28,	108	3,8	5,3	60,4	0,5	1,	11,	2675,	2147
15	12	2011	25291	39	13	94	262	676	1144	347	622	16,9			13,	232	2,7		4,6	0,5	3,	5,3	266,9	6395
16	12	2011	54458	77	21	81	267	700	8261	315	117	14,6		9,0	29,	232	3,2	7,7	11,3	0,7	9,	15,	127,2	3866
17	12	2011	6567	65		1	1	2	106	4	8			2,2	7,1		0,7			0,1		0,2		43
18	12	2011	2553	20	17	15	46	133	1022	36	63	4,1		7,8	4,2		0,9			0,2	0,		11,9	635
19	12	2011	18917	30	89	47	134	361	9996	157	748	9,5		7,9	5,2		0,3	5,6	7,2	0,5	3,	3,2	83,1	2341
20	12	2011	31847	40	24	95	199	478	1194	222	694	14,9		11,	3,4		0,5	3,3	12,4	0,7	3,	4,1	393,7	9234
22	12	2011	10747	14	10	60	139	350	7558	130	247	7,4		3,9	7,8					0,2	1,	1,2	142,0	4151
23	12	2011	10616	20	10	60	229	680	1409	261	999	15,5		4,4	10,	203	3,4	18,	13,8	0,4	4,	3,0	116,9	4308
24	12	2011	2008	22	10	6	25	70	919	21	68			7,2	8,8						4,	0,4	19,8	767
25	12	2011	1986		9	4	15	42	495	11	54				8,7	14	2,9			0,1	1,		21,4	224
26	12	2011	13098	23	51	43	144	496	5138	148	608	9,0		3,1	10,	159	3,7	0,8	4,3	0,3	1,	5,3	47,6	295
27	12	2011	20457	48	10	47	151	404	1167	212	905	10,1		4,9	32,	59	2,7	6,0	5,1	0,5	1,	14,	315,2	2775
28	12	2011	22494	32	16	16	474	122	9685	489	587	30,0		3,6	15,	372	1,2		10,6	0,5	7,	17,	420,7	7488

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
29	12	2011	4447	52	12	26	56	169	5306	111	168	5,5		6,8	5,9		1,9		2,8	0,1	6,	2,6	135,6	4249
					0															9	4			
30	12	2011	39855	48	22	12	405	101	1557	464	720	33,5	1,2	5,9	23,	431	0,9	0,7	15,7	0,9	9,	9,0	550,6	1352
				7	7	6		7	4						4					0	1			0
9	12	2012	18768	28	18	11	401	107	6131	517	829	25,3		5,1	11,	219	2,1	4,2	15,6	0,3	8,	11,	25,0	1724
				1	1	1		2							7					1	7	2		

Ek 3. Bolu gnlk Aerosol Konsantrasyonları
(konsantrasyon deęerleri ng m⁻³ cinsindedir)

Blm 2 PM_{2.5} fraksiyonu

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
22	2	201	74739						580							204								391
		1																						
24	2	201	50292	105					600	58						159			0,0					373
		1																						
25	2	201	23485	329	3				1786	132				0,6	4,7	390		0,0	9,5				0,9	769
		1																						
26	2	201	21723	195					907	89						204								1207
		1																						
27	2	201	14106						444		156					277			1,5					190
		1																						
28	2	201	27818	621					1561	164				0,5	4,2	343			9,0					698
		1																						
1	3	201	44429	747					1408	195				0,6	4,6	369		0,2	10,0					829
		1																						
2	3	201	24347	504	34				5225	205	137		3,9	3,5	12,6	958	2,2	8,0	31,8			3,8	25,6	3960
		1															3							
3	3	201	23720		39	17		87	556	83	1089	44,9	2,2	6,3	21,6	173	4,1	16,	45,7			6,5	36,9	80
		1														2	4	9						
4	3	201	13258	612	17				4051	212				2,2	11,2	761		5,4	5,3				6,5	1131
		1																						
5	3	201	6711	100	17				6147	318	373	13,4	3,7	6,2	20,7	162	3,8	15,	37,1	0,71		19,0	12,4	2043
		1		2												6	4	7		8				
7	3	201	8652	309	10				2090	100	88			0,8	5,9	441		0,8	12,7				2,3	441
		1																						
8	3	201	3101	369					1414	82	94			0,5	4,4	360			5,5					583
		1																						
9	3	201	730						460	37						111								281
		1																						
10	3	201	14427	140	28				4227	201			1,3	2,3	9,5	744		4,3	10,8				16,9	3478
		1		1																				
11	3	201	22198	287	3				5276	277	94		2,7	3,6	12,9	102	2,3	8,4	33,1	0,50		8,2	1,3	3324
		1														2	4			1				
13	3	201	29074	147	15				5330	291	599	15,9	5,5	7,1	23,1	182	4,3	18,	40,3	0,94		12,9	15,4	1141
		1		8												4	2	1		2				
14	3	201	20280	777	118	32			3901	274	676	15,6	4,8	6,3	24,9	166	4,0	16,	42,8			6,8	113,6	1501
		1														4	4	9						

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
15	3	2011	15043	395					2816	173	762	14,3	2,5	6,2	20,1	1587	3,86	16,1	39,8			14,6		840
16	3	2011	15655	1279	104	44	106	287	3190	210	766	10,3						2,1	27,9	0,802		21,3	140,4	785
17	3	2011	17251	1331	7				2489	257	964	37,6	4,1	7,6	28,0	1886	4,56	20,5	73,0	0,642		19,0	36,3	1020
18	3	2011	16335	530	4				1998	289	267	9,7	0,3	3,0	12,4	921	2,23	6,7	6,6			4,8	3,3	803
19	3	2011	13750	107	28	17			3052	199	194	13,3	0,6	2,6	9,9	797		6,0	26,1				8,4	1381
20	3	2011	11250						1458	83				0,3		293			5,4					364
21	3	2011	9990						2766	146				1,5	7,3	583		2,2	11,2					661
23	3	2011	1020						331	13														194
24	3	2011	16249	277					2559	176	184		0,9	2,1	10,8	712		3,8	14,8					750
25	3	2011	2547	371					1194	135	224			1,5	7,2	556		2,6	18,0					228
26	3	2011	25069	549					1835	182	504	11,5	0,9	4,0	14,2	1095	2,59	9,8	31,4			8,7		433
27	3	2011	16851	1012	81	28			3661	273	554	12,6	1,6	5,6	18,9	1457	3,34	13,4	29,3			9,1	62,9	344
28	3	2011	16988	387	88	22			5553	201	316	8,5	3,9	4,7	17,1	1281	3,03	11,6	29,0				26,5	1895
29	3	2011	20776	1423	195	86	206	288	6180	361	794	53,5	9,2	8,8	29,5	2149	4,97	24,0	77,1	0,648		18,6	443,5	434
30	3	2011	19623	1123		5		88	3921	232	427	35,7	3,2	4,8	19,4	1302	3,18	12,9	47,2			6,2		530
1	4	2011	25525		1				4047	322	318	20,1	2,1	4,6	18,9	1260	3,01	11,6	38,6			6,1	1,1	836
2	4	2011	12522	895	14				2803	160	119	7,8		1,9	8,5	674	1,64	3,3	9,4				3,1	673
6	4	2011	9156	730	6				2540	144				1,3	6,6	537		1,5	8,9				1,6	516

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
7	4	2011	21777	190	3				4303	283	478	22,5	4,4	5,4	17,8	139 9	3,1 4	15, 2	56,0			6,8	2,9	2911
9	4	2011	8413		38	15			2411	170	264		0,9	2,5	10,4	799		5,4	3,8				33,0	785
10	4	2011	7048	455					982	103						248								426
11	4	2011	8490	235	19				2075	120				0,9	6,8	451		1,2					18,6	1027
13	4	2011		525					2796	172	380	31,6	0,4	3,7	14,9	103 4	2,3 9	8,8	31,0			4,5		1738
16	4	2011	18935	327	64				4000	230	326		1,2	4,1	16,2	108 8	2,5 7	8,9	8,0			5,0	34,1	2571
20	4	2011	9816	106 7	78	13		62	2843	135	125		3,5				2,3 3	4,6	33,1			8,9	63,3	681
21	4	2011	9779		183	43	85	196	2931	216	280	12,3	1,1		36,1		3,2 7	3,9	41,1	1,03 1		24,8	102,5	759
22	4	2011	10069	101 8	22			103	2033	174	304					89	2,5 2		8,3			11,0	13,4	674
23	4	2011	11726		124	25		118	3816	180	101						3,9 4	4,7	38,5			6,2	151,2	1716
24	4	2011	17773	100 6	95	105	339	798	5462	320	427	23,3	2,6		8,2			1,7	17,9	0,90 4		27,4	134,6	1552
25	4	2011	27806	845	185	52	190	426	7603	333	465	15,8	0,4					5,2	48,8	0,89 2		25,1	419,3	981
26	4	2011	7503	139 4	124	47	128	316	4885	222	759	12,3	1,7		11,6				28,3	0,73 0		6,6	30,3	1044
27	4	2011	28253		175	66	167	424	7818	353	928	26,8	1,1			106				0,74 4		38,1	186,1	1178
28	4	2011	16955	132 3	95	99	350	797	4443	252	330	24,5	1,7					3,7	3,7			10,9	85,2	2795
29	4	2011	20601		354	451	135 9	2992	5769	542	1124	84,0	1,3		12,9	682	3,2 3	1,8	28,7	0,53 0		12,3	840,6	783
30	4	2011	11060	813	32	52	127	306	3545	119	376	10,7	1,9					3,0	36,2	0,65 2		26,7	43,7	343
1	5	2011		147 0					712				1,3		12,3			0,2				20,2		136

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
2	5	2011	10963	2212	10			176	3352	173	422	16,6	0,0			72	3,68	0,8	40,8	0,679		12,5	16,6	1126
3	5	2011	21798		164	250	869	1940	5554	355	1239	57,9	1,3		23,2	534		0,4	15,9	0,589		15,9	263,0	5467
4	5	2011	15061	844	215	372	1049	2376	3127	360	1077	64,4	1,5		8,5	565	2,44	1,6	7,3	0,493		19,9	199,5	496
5	5	2011	3096	692	1				554	41									3,4				2,3	605
6	5	2011	9143	1104	129	31		118	3308	146	156		0,8						28,7	0,492		18,3	318,2	688
7	5	2011	18242	1687	156	59	167	361	4800	306	416	13,1	2,1						46,9	1,035		21,0	250,4	4192
8	5	2011	7627	1039	18			107	2842	188	282	10,5	0,3		50,3		2,99	1,7	53,4				2,5	635
9	5	2011	16407	2093	240	46	66	167	6064	270	244	10,4	1,6						36,7				201,4	1650
10	5	2011	24727	1960	133	43	154	318	8369	299	423	16,0	1,3					6,0	69,7	0,852		38,5	169,7	3273
11	5	2011	11334	980	3				3330	221			0,6		9,7	107	3,97		1,4			23,4	4,8	477
12	5	2011	5583	920	75				2382	115			1,9						3,7	0,498		8,7	177,5	2794
13	5	2011	92		66	8			3542	94			1,2					1,1	33,3			14,7	304,6	1314
14	5	2011	14862	1262	6				3961	214	227	11,7	2,5					1,5	49,5	0,911		44,1	37,0	1818
15	5	2011	12683		91	45	163	426	4405	234	479	8,7			43,4			8,2	27,0	0,690			194,3	3883
16	5	2011	18701	1016	134	90	281	745	5628	278	913	28,4	1,2						8,4	1,255		41,0	438,8	848
17	5	2011	12764	1506	73	64	157	394	4073	154	698	14,7			32,2				29,2	0,528		26,5	81,1	1117
18	5	2011	21516	1902	130	157	336	850	6055	298	1169	32,2	1,1		4,7	3		5,7	49,4	0,709		29,2	694,1	2660
19	5	2011	16762		92	301	601	1425	3905	274	605	43,5	0,7		10,6	215				1,376		40,2	98,7	1527

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
20	5	2011		1080	9	13		208	4848	170	162	23,2	4,4		15,8			9,0	50,4	1,250		23,1	15,8	2280
21	5	2011	10923	510	125	93	235	575	3428	184	200	13,3			47,7				18,4	0,561			39,5	438
22	5	2011		1290	99	280	685	1753	853	311	3486	64,0	1,7		16,5	574		4,4	31,6			6,4	161,5	68
23	5	2011	17759	2429	5	31	82	226	30	39	550	8,7						3,2	28,7				10,7	11
24	5	2011	6730	289	77	243	596	1596	895	283	2673	60,9	1,7		16,5	166			49,4			24,4	177,4	338
25	5	2011	13215	983	127	290	697	1825	1572	338	3166	70,7	2,9		8,9	860			27,7	0,532		11,7	247,4	385
26	5	2011	15331	530	157	216	571	1566	1426	211	5876	58,1		9,7		329		9,5	77,8	0,856			174,7	651
26	5	2011	20250	3175	68	148	453	1142	1320	204	2498	51,8	0,9		13,2	320		2,4	3,6			5,6	127,7	332
27	5	2011	25634	2463	14	35	124	435	920	209	1958	27,1			9,4			1,7	67,8			8,8	25,5	429
28	5	2011	17498	1270	73	124	326	830	1487	231	2393	40,2	2,2		11,9								63,5	901
29	5	2011	20071	1279	104	142	437	1165	1302	209	2325	37,7							73,5				120,6	1007
30	5	2011	16330	2079	18	48	86	278	437	179	999								24,9			9,7	33,2	207
31	5	2011	10961	1101	5	26	82	302	831	132	1114	19,5	0,4		9,4				21,1			18,0	5,8	430
1	6	2011	9208		6	39	145	502	976	171	2089	43,4	0,7						51,0				11,6	602
2	6	2011	21547	835	82	223	515	1438	921	265	2431	55,1			58,0	299		1,7	32,8				195,9	1036
3	6	2011	16515	1286	146	301	963	2565	1452	428	3312	81,5	1,2		27,9	949		1,3	14,4			4,9	241,3	561
4	6	2011	12570	1606	41	93	318	842	164	132	1245	26,1				176		2,2	26,5				64,7	76
5	6	2011		1567	107	207	701	1820	769	292	3238	78,7			17,8	436		2,1	51,0			14,7	175,1	851

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
6	6	2011	13613	1141	16	19	57	184	233	69	715	17,5			37,7				18,7	0,545			32,3	93
15	6	2011		436	1198	747	1857	4912	4450	966	13456	196,6	6,8		167,3	1856			8,7			17,0	1650,7	1266
16	6	2011		1242	87	61	174	383	28	60	869	17,2											53,3	10
17	6	2011	905	1076	2	9	82	268	1357	127	412	23,4	0,9					0,8	4,9				3,5	868
18	6	2011		347	140	168	484	1234	1937	178	6832	42,9		20,9		172			6,3		0,451		242,3	1446
19	6	2011	26711	1557	453	607	2095	5632	9036	1145	13523	197,1	7,4	26,4		1915		25,3	111,6	1,239		24,1	404,3	2587
20	6	2011	13299	2227	205	101	234	566	332	132	1545	21,5	1,9						4,1				372,4	172
21	6	2011	8643	1684	17	31	107	341	239	101	1523	22,7	0,4		12,7	101			24,9	0,609			33,9	102
22	6	2011	3092	854	34	68	202	497	140	88	1023	16,1			10,8				16,9			10,2	75,4	67
23	6	2011	16345	2395	54	108	323	835	539	142	1811	29,0	1,7		6,1	57			22,6			4,1	71,6	80
24	6	2011	8104	1066	231	111	184	519	923	138	1498	23,1			32,0			1,5	37,5				370,9	253
25	6	2011	9468	468	89	169	480	1150	1240	202	3218	40,8				198			40,9				342,4	436
27	6	2011	5967	1304	40	94	287	706	429	138	1538	25,2	1,6						13,7				45,6	329
28	6	2011	7738	1179	261	192	594	1656	579	268	1958	50,0			7,7	232		6,0	34,3				352,7	529
29	6	2011		867	160	264	1044	2865	715	457	2536	85,5	1,2		28,1	739			10,3			6,7	348,1	762
30	6	2011	19789	2914	29	86	166	418	490	86	1477	24,8			12,0								71,7	202
1	7	2011	7263	1517	50	115	273	711	968	172	2162	31,6				225			14,7			6,8	150,4	525
2	7	2011	45519	770	85	144	481	1265	215	192	1418	33,8			16,2	209			30,4				319,3	66

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
3	7	2011		769		30	150	503	52	135	904	31,9	1,5					3,6	44,2			15,7		21
4	7	2011		903				102	3887	138	256	11,1	1,8		9,3				15,6			3,1		2195
5	7	2011	9260	1019	250	413	1112	3110	921	536	3083	86,2	4,5		31,3	808							816,8	236
6	7	2011		1079	151	100	130	340	1365	181	1174	28,3	0,8						27,4				225,6	522
7	7	2011			232	244	588	1409	2152	371	3455	55,9	1,5		15,0			0,3	69,1			14,2	311,1	511
8	7	2011		873	43	97	260	687	164	109	1757								23,7				143,9	39
9	7	2011	32770		22				10480	205	444	18,7	2,5						18,9			18,8	20,6	2646
10	7	2011	6967	943	1689	1570	4349	10228	30054	2483	13471	351,4	11,8	2,9		3431		41,4	151,8	4,840		114,6	3819,8	17009
11	7	2011	18421	1315	244	397	1045	2844	869	474	3717	82,7	0,8		8,2	448		3,7	38,0			19,4	386,2	158
12	7	2011		748	78	61	134	377	296	110	1276	20,4						0,8	48,6				253,2	264
14	7	2011	20515	2741	176	48			91	44	309								15,8				380,5	31
15	7	2011	16425	2153	44	110	388	927	625	167	2354	34,9			9,9			5,9	36,2			13,6	107,5	378
16	7	2011	9256	1620	45	68	179	474	349	94	1459	17,8	0,5						30,6				143,6	119
17	7	2011	24399	301	218	250	721	2041	1187	315	4664	69,0	0,2		29,4	486			7,3			21,8	456,4	227
18	7	2011		787	416	262	696	1755	836	282	3245	63,5	2,7		24,7				24,8			7,1	910,6	289
19	7	2011	3895	216	62	144	471	1136	500	204	2324	41,6	0,8		13,2	289		1,0	30,7			5,6	347,6	179
20	7	2011	28449	1173	396	390	1181	2821	1111	433	4941	108,0	2,6		43,2	811		1,1	10,6			10,7	552,0	713
21	7	2011	13047	382	277	190	452	1173	639	207	3916	39,8			15,8	169			50,3			6,9	732,4	286

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
22	7	2011	6544		172	32	93	246	6880	562	501	5,3		15,3				4,2	69,7	1,869		34,7	522,1	2434
24	7	2011			34	61	311	1022	671	324	3515	67,3										16,8	34,1	215
25	7	2011			127	219	714	1915	564	326	2387	59,6							104,6				163,3	231
26	7	2011	30109	944	24	7	16	76	297	33	272	11,2		21,0				16,3	91,1	0,096			74,3	179
27	7	2011	2455		3				203	71	474								9,6				3,3	111
28	7	2011	21792	1569	569	217	638	1509	7298	576	5533	63,6	0,9	40,5		319		19,8	125,3	1,462		26,2	717,2	1942
29	7	2011	23409	1319	554	123	217	552	3947	164	1255	46,9		8,9		185			85,8	0,636		8,7	1562,8	2435
30	7	2011	27934	549	255	26	35	117	469	21	248	5,4		18,6				3,0	82,0	0,048		4,0	333,3	227
31	7	2011	16687	485	745	119	253	715	11839	481	1057	42,1		23,4				13,0	18,7	1,878		37,9	1845,8	3375
1	8	2011	5628	805	250	18	50	144	27826	640	144	9,1	2,0	19,4				5,8	80,0	2,598		55,8	818,0	10274
2	8	2011	3136	764	46	94	201	507	3983	165	289	14,8										10,1	60,2	1970
3	8	2011	13667	1235	458	99	66	225	2019	107	509	8,3		27,4				9,7	61,2	0,105			671,4	460
4	8	2011		734	153	32	63	194	7442	391	313	5,0		22,0				9,1	73,4	0,889		20,0	236,3	3675
5	8	2011	12767	1197	180	27	33	166	5568	248	125			3,4		53		4,5	38,0	1,127		17,7	161,3	2000
6	8	2011	11295	156	124	14	33	128	6960	208	207	0,7				30			54,4	0,712		8,8	257,0	2762
7	8	2011		52	13	2	4	22	590	26	11	0,1		2,0				0,6	0,6	0,148		1,7	19,3	245
8	8	2011	7953	727	139	25	59	197	4944	196	500	28,4		17,4				9,0	73,8	0,133		15,1	168,3	1572
9	8	2011		1103	270	43	83	270	7739	556	412	0,3		7,6				8,4	40,3	1,316		27,1	703,2	3445

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
10	8	2011	6505	306	17	49	239	793	383	192	2087	37,3	1,7			119							20,1	160
11	8	2011		362	31	38	183	601	454	196	1562	34,6											164,8	160
12	8	2011		109	4	9		192	28	51	457	15,0							31,5				11,6	7
13	8	2011	20739		824	306	854	2155	1845	111	7573	100,		69,		266		33,	265,	1,82		19,0	899,8	1778
15	8	2011	19417	729	112	65	223	758	508	251	2910	43,7						8	1	9			835,4	839
16	8	2011	19465	739	469	168	246	610	768	83	915	23,9	2,0	12,		18		3,0	47,2	0,22			1119,	434
17	8	2011	4336	672	229	26	70	217	1534	775	458	4,8		15,				9,1	33,7	2,63		50,4	321,5	5435
18	8	2011	24812	121	236	39	81	281	7947	564	353	6,2		18,		44		5,6	79,4	1,26		30,9	252,6	1623
19	8	2011	29340	701	400	54	74	377	1886	565	209	17,9	0,5	15,				3,7	83,2	2,40		49,5	873,3	7835
20	8	2011	1786		593	162	489	1270	8831	380	4133	49,2		9,9		442		15,	13,3	1,32		18,2	1283,	5202
22	8	2011	13685	352	437	72	148	642	1704	808	696	18,1	1,1	8,6		61		3,2	93,6	3,47		75,9	823,6	8489
23	8	2011	12960	870	116	11	61	122	9415	334	124	6,8		6,1		19		3,4	65,6	0,89		17,4	36,2	1712
24	8	2011	5774	557	452	46	90	402	2233	823	181	12,2	1,8	3,4		95		6,1	35,0	2,45		43,7	987,4	9578
25	8	2011	3519		386	50	69	273	1924	909	498	13,4		12,		20		6,1	108,	3,03		43,9	739,0	6495
26	8	2011		867																				
27	8	2011	12980	530	85	18	37	94	2351	227	307	2,3		5,7				4,0	4,3	0,35		8,5	163,7	734
28	8	2011	15409	127	1					2		9,1		22,				8,0	55,2				2,8	
29	8	2011	19354	524	154	62	253	612	2255	116	709	21,2	1,4	10,		0		1,4	52,5	0,33		5,6	186,2	1167

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
30	8	2011	10319	378	242	91	160	454	5976	188	697	9,3	0,9	4,6		77			8,8	0,809		5,3	550,8	2126
31	8	2011	9093	1288	772	138	452	1182	10061	473	2525	68,0	1,7	5,3		452		2,2	57,9	2,021		40,0	1933,8	4783
	1	9	2011	16761	866	397	113	259	583	3435	178	2004	25,1		27,4			11,2	5,8	0,547		1,0	568,7	1324
	2	9	2011	7392	435	2	3							12,4				3,0	58,2	0,263			1,7	
15	9	2011	23002	1487	7				117		295												17,4	71
16	9	2011	14808		0				1890	164	512				6,4				40,8				0,8	883
17	9	2011	14320	207	265	189	553	1411	1927	278	4137	50,2				192			52,2			6,1	479,6	490
18	9	2011	34181	2195	312	201	520	1387	2884	366	5389	49,9	0,9		8,3	296			24,9	0,633		8,8	172,2	982
19	9	2011	21715	1789	2			281	1406	231	271	17,5							29,3			6,4	10,5	215
20	9	2011	30656	2729	43	21	103	226	1715	93	327	7,3							1,7				187,6	1360
21	9	2011	25991	1292	11	19	95	330	193	123	1830	19,9							7,5			11,7	9,9	52
22	9	2011	24045	1516	258	112	230	560	1375	121	1834	18,5										10,6	410,3	220
23	9	2011	18100	1292	52	44	124	301	333	86	1089											7,9	42,9	110
24	9	2011	27112	1611	54	96	291	726	488	157	1836	27,1							17,1			4,5	147,3	252
25	9	2011	16989		12				9388	672	276								63,3	1,812		53,6	73,7	3992
26	9	2011	21624	739	26				407	72	433	11,9							20,0				83,2	300
27	9	2011	27945	1572	385	124	241	586	826	128	1810	20,4							2,2				406,5	326
28	9	2011	23780	1184	17			167	899	128	1038	13,1						4,6	44,8				46,3	392

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3	
29	9	2011	16111	588	136	22		112	3517	194													500,0	716	
30	9	2011	20576	2049	49	15		126	4606	99	115		0,6						5,8			3,4	123,6	2480	
1	10	2011	13827	68	246	207	611	1766	4126	659	5475	70,0				554				1,776		45,4	716,0	5859	
2	10	2011	29842	1340				92			306		0,9						3,4						
3	10	2011	13797	769	178	147	377	953	556	161	1078	30,5			3,7				11,8				512,1	192	
4	10	2011	15488	960	109	117	329	887	571	180	2190	37,0											167,5	214	
5	10	2011	1533		34	44	155	416	47	65	838	11,8											9,0	78,2	23
6	10	2011	15550	1343	79	34	132	315	3070	190	397	10,0							25,3				7,9	412,4	851
7	10	2011	20900	1781					1793	146	271								0,5				3,9		1083
8	10	2011	21621	1001	264	196	523	1337	691	216	2697	46,2	1,8			180			18,1			4,1	1176,7	236	
9	10	2011	12109	55	189	266	1142	3426	3172	754	3296	109,2	2,5		8,0	1230		1,2	47,4	0,525		14,1	404,6	1269	
10	10	2011	9407	408	85	36	164	363	4297	211	456	11,7							17,5				7,0	86,6	1657
11	10	2011	7093	220	93	205	624	1591	659	288	2229	51,1	2,2			389							6,3	173,8	391
12	10	2011	12929	486	2				838	62	165												3,7	7,1	196
13	10	2011	16139	608	183	118	305	752	912	140	1297	29,2				206							7,0	409,4	283
14	10	2011	14116	1282	2			73	1216	99	302		0,8						2,4				4,7	5,6	1505
15	10	2011	33251	1556	14			167	3449	286	586	16,2							20,0				14,7	25,4	1603
16	10	2011	15256	2397	44	19		158	5941	178	353								1,7				9,5	94,0	1393

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
17	10	2011	7540	534	72	40	117	264	3568	152	566	12,2							43,1			15,7	228,1	3013
18	10	2011	11864	954	11				2038	191	127								16,8			6,1	37,2	1233
19	10	2011	23621	1178	311	246	652	1624	782	251	3332	57,2				284			7,7			899,6	374	
20	10	2011	17771	1641	230	162	413	1107	710	185	1786	37,9	0,9						26,7			4,2	694,6	323
21	10	2011	93468		37	51		328	698	97	988	13,4										46,2	163	
22	10	2011	19440		71	40	123	254	520	60	678	10,9							11,5			11,1	96,0	77
23	10	2011	14453		45	48	260	888	752	274	1191	46,2	2,9			528			7,8			27,8	263	
24	10	2011	36210	1334	28	30	134	448	252	135	1346	54,4							21,5			72,2	112	
25	10	2011	25877	1726	15			149	4094	271	503	15,2							3,0			5,7	18,4	1272
26	10	2011	19906	1203				157		47	453	11,9										4,8		
27	10	2011	25578	2015	388	153	343	890	512	176	1631	24,4							4,2			5,3	807,8	190
28	10	2011	38103		30	58	243	955	1218	322	3684	67,3				667			19,8			72,5	61	
29	10	2011	34684									0,5	0,3											
30	10	2011	7951									1,2							4,7					
31	10	2011	17423	972	122	92	234	654	286	134	1494	20,5							2,4			195,9	113	
1	11	2011	14087		133	61	182	479	308	104	393	12,0							1,1			3,9	172,9	58
2	11	2011	12306		45	71	231	540	376	104	684	16,6							4,4			1,7	56,3	74
3	11	2011	18077	1310	7			302	3148	327	402	21,1							2,2			5,6	4,9	2886

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
4	11	2011	26040	156	2			82	1626	134	271	8,9	0,0						10,7			3,6	4,3	1221
5	11	2011	10425		13				1449	94									23,7			6,9	18,2	745
6	11	2011	35277	207	12			201	6800	324	502	14,5	0,9						8,7			8,2	25,0	1651
7	11	2011	36792	194	187	49	164	387	3734	232	462	12,4							19,5			2,1	265,2	1746
8	11	2011	22603	212	6			102	2053	156	357	8,1							22,1			4,7	14,3	818
9	11	2011	20758		10			155	330	92	750	13,6							20,9			3,6	8,4	44
10	11	2011	3128	533	48	65	209	496	49	77	713	15,3										9,0	93,4	3
11	11	2011	24398	254	2				425		77												8,8	145
12	11	2011	22405		215	224	725	1715	920	285	2266	55,1	3,1			434						7,7	385,6	210
13	11	2011			297	215	627	1594	3237	414	3764	65,2	3,4			552			16,4			16,8	574,4	1739
14	11	2011	25386	167	53	36		158	1539	84	712								9,9				57,7	71
15	11	2011	43957		101	111	276	716	1062	162	1984	29,6							28,0			8,9	215,8	417
16	11	2011	22043		44	66	228	599	401	128	1375	22,1	0,7						7,5			3,7	95,8	256
17	11	2011	25750		28	19	84	287	123	89	636	13,7			5,4				6,4			4,3	56,6	90
18	11	2011	33662		201	96	206	516	863	160	1647	22,2							15,3			7,2	257,1	210
19	11	2011	58875		359	168	379	1088	724	217	2489	32,4							0,6			7,4	378,8	171
20	11	2011	37516		23			164	170	60	511	10,9							12,9				33,7	21
21	11	2011	13699		334	116	248	624	2884	272	2529	29,1				213			1,4	0,82		15,0	141,6	1363

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
22	11	2011	28322		139	33	92	197	7167	549	325								52,5	1,76		34,2	286,8	2099
23	11	2011	25275		17				212	38	90	6,9							21,7			5,2	22,0	62
24	11	2011	44168									5,4							51,5			19,5		
26	11	2011	52305		15			159	170	50	247	8,3											9,3	17
27	11	2011	17252		199	84	205	545	1746	195	2416	28,5										17,2	58,1	381
28	11	2011	58213		332	156	313	780	950	165	1514	23,7				135			16,0			8,3	678,4	619
29	11	2011	8907		240	132	346	880	557	175	1834	32,0				158							205,1	269
30	11	2011	28068		67	36	90	209	518	58	555	11,9	0,4						0,2			6,2	59,6	177
1	12	2011	37621		230	54		451	1052	412	399								2,9			23,1	431,4	8249
2	12	2011	23134		237	122	282	716	989	158	2875	23,1	0,3						20,2			10,6	380,4	482
3	12	2011	17684		163	116	363	935	3828	352	3960	33,3				348			38,3	1,05		28,1	201,2	2125
4	12	2011	18355						628	38									10,7			12,4		382
5	12	2011	31489		196	126	401	942	712	202	1434	30,8	0,3		3,8	67			16,3			8,4	538,1	235
6	12	2011	15871		232	87	171	404	1297	100	1439	13,2	0,5						8,7			4,9	249,0	671
7	12	2011	17832	938	90	121	337	958	1203	185	2726	36,7		4,4	31,1	259	1,3		7,4	0,25	9,1		97,5	470
8	12	2011	19048	894	169	194	540	1476	851	252	1412	40,4		5,3	26,7	371	1,2			0,22	5,4	1,1	143,2	259
10	12	2011	4688		4	9	33	138		14	129	1,0		19,8	2,6			5,3	0,13			4,7	2,7	
11	12	2011	4921	29	14	26	75	231	52	30	175	5,4		4,7	4,3					0,09			8,8	12

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
12	12	2011	6728	236	21	25	66	215	20	27	835	2,2		6,3	25,8		2,5			0,16			31,3	3
13	12	2011	27397	1229	47	82	383	1359	2198	341	5713	75,6		16,5	38,1	557		7,5	6,8	0,34	4,2	2,7	59,1	643
14	12	2011	27067	1159	347	444	1910	5204	10816	997	11819	175,4	3,4	16,3	50,6	2020	2,28	26,2	33,9	1,11	43,3	23,0	6119,8	2547
15	12	2011	20270	1405	185	226	658	1833	2673	384	3691	53,4		3,7	22,4	582		2,6	5,2	0,30	1,2	0,1	373,6	1494
16	12	2011	30381	1924	365	397	1351	3772	4213	644	1034	122,3		15,0	43,5	1382	0,09	9,8	17,9	0,60	25,2	9,4	215,6	1971
17	12	2011	2047	59	74	86	156	436	564	88	911	12,5			15,4	148							262,8	229
18	12	2011	5247	180	11	18	53	172	32	25	139	15,4		5,6	7,8				20,8	0,47			8,0	20
19	12	2011	24777	884	134	185	537	1468	1630	249	4517	48,1		4,8	17,9	473	0,74		5,6	0,29	4,8	1,1	126,1	382
20	12	2011	27684	1014	505	296	679	1961	3266	412	5401	67,2	0,1	5,4	13,6	541		1,3	31,5	0,46	4,6	7,5	805,5	801
22	12	2011	15519	659	193	124	206	545	1481	162	927	14,7		9,3	5,7					0,27			255,7	813
23	12	2011	33546	1310	57	102	359	1106	1021	158	2776	30,0		5,5	6,5	299	1,87	2,5	2,7	0,25	6,4	2,5	64,7	312
24	12	2011	5097	202	2	7	25	108	4	15	118	2,9		7,0	11,1		0,88		51,0	0,28		0,7	3,1	4
25	12	2011	3922	153		2	8	43		7	80			1,7	9,4					0,14				
26	12	2011	14299	805	3	26	112	491	708	163	2073	21,9		5,1	7,4	164		4,9	1,4	0,13	1,5	1,4	2,3	41
27	12	2011	27094	1601	214	224	696	1923	3747	423	6441	57,2		4,1	19,7	716	2,90	8,9	7,8	0,42	22,7	10,7	634,7	891
28	12	2011	26069	1292	189	307	912	2640	1823	418	2951	78,4		11,0	33,5	732	3,25	5,9	8,4	0,36	12,0	3,5	492,7	1410
29	12	2011	11311	440	22	16	28	148	247	36	494	4,0		1,8	3,1					0,01			25,3	197
30	12	2011	36439	1584	544	405	1173	3459	3929	614	6020	110,2	1,6	2,5	36,7	1402	2,68		11,9	0,45	26,4	4,0	1317,5	3411

D	Mo	Yr	MASS	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
9	12	201	21103	103	324	247	766	2135	931	336	3045	60,5	0,1	7,8	15,7	558		3,5	31,2	0,25	11,		44,7	262
		2		0																6	4			

Ek 3. Bolu gnlk Aerosol Konsantrasyonları
(konsantrasyon deęerleri ng m⁻³ cinsindedir)

Blm 3 PM₁₀ fraksiyonu

D	Mo	Yr	Mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
22	2	201	10129						2179							418								1470
			1	2												8								
24	2	201	59650	161					2260	156						204		49,6						1405
			1													1								
25	2	201	39142		8				2079					3,6	15,8	125		5,1	23,5				2,8	895
			1													5								
26	2	201	25088						964							367								1282
			1																					
27	2	201	20610						3275							880			9,3					1403
			1																					
28	2	201	34871						1814							619								811
			1																					
1	3	201	65434						1631							560		14,7						959
			1																					
2	3	201	34094		43				5723	266	939	4,8	7,9	30,8	217	5,01	19,	40,3					32,2	4338
			1												2		9							
3	3	201	32097		131	31		158	6108	419	1398	59	4,5	11,6	39,5	310	7,33	29,	76,3			12,6	145,7	1675
			1												8		3							
4	3	201	20264		18				4488					3,1	17,5	120		6,1	15,6				6,9	1253
			1												3									
5	3	201	20313	113	149				7194	450	2347	11	10,	18,4	61,2	475	11,4	53,	129,			31,5	350,1	8437
			1	5								6	1			9	1	5	3					
7	3	201	19979						2163		326					774			20,6					456
			1																					
8	3	201	7581						1480		355			1,1	9,7	734								579
			1																					
9	3	201	3732													193								
			1																					
10	3	201	17173	143					4453							962								3664
			1	7																				
11	3	201	28389	315	7				5593	322	343			4,1	17,9	141		8,5	45,8				3,1	3523
			1													6								
13	3	201	45402	173	112				6523	424	3031	10	13,	22,2	71,7	542	13,1	61,	178,			24,5	365,7	982
			1	6								2	3			4	3	2	2					
14	3	201	42562	116	110	471			6853	564	4770	35	32,	31,4	103,	768	18,4	99,	371,			61,2	1773,	6745
			1	7	3							5	4		7	8	4	8	2				1	

D	Mo	Yr	Mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
15	3	201	33989	664					4394	353	4286	21	13,9	29,3	93,5	724	17,4	86,9	219,0			50,7		1630
16	3	201	41640	184	354	223	636	1728	5930	530	5429	68						5,0	31,2	2,1		53,9	875,3	1233
17	3	201	36055	162	266				3154	459	4267	35	16,8	28,4	93,7	703	16,4	87,9	283,8	1,8		27,6	238,6	1984
18	3	201	23254	614	24				2217	347	820	27		5,6	23,1	173		12,4	32,8				17,9	891
19	3	201	19920		32				3317	276	745	30	1,2	5,2	20,3	162		11,9	55,1				9,5	1501
20	3	201	14008						1632							456			6,4					1780
21	3	201	12741						2931					2,0	11,7	943			17,1					420
23	3	201	13393	109					1104	146														647
24	3	201							2890	256	1149		5,2	7,7	29,9	222		19,3	23,1					2524
25	3	201	8023	647					1266	186	982			5,4	23,7	164		11,7	37,4					162
26	3	201	32556	567					2001	257	1709	48	6,4	11,1	37,8	285	6,68	28,2	82,5			14,7		447
27	3	201	28099		134	56			3909	360	2192	75	7,6	15,2	51,2	380	8,98	40,9	114,5				240,6	1838
28	3	201	20498		117				5805	256	1239	34	5,3	9,7	34,9	261	6,15	23,7	64,3				35,4	1981
29	3	201	34278	158	292	157	387	633	6771	540	3028	20	19,0	22,9	79,8	556	13,1	67,4	116,2	1,1		29,9	313,7	2649
30	3	201	50138			42		324	5037	383	1850	15	7,6	14,1	49,9	376	8,96	39,3	67,9					2312
1	4	201	30703	103	15				4661	427	1624	73	4,6	12,5	44,8	324	7,67	33,1	52,8				82,9	2048
2	4	201	18249	999					3282	216	436	16		3,1	14,8	117	2,83	5,7	30,0					893
6	4	201	12547						3062					2,2	12,1	979		2,2	14,4					623

D	Mo	Yr	Mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3	
2	5	2011		2548	41			894	3665	337	2573	59				415			47,2	1,28		22,9	68,1	1415	
3	5	2011			190	338	1292	3242	6741	713	4024	144	3,4		63,8	1042		4,5	63,3			28,3	306,3	6635	
4	5	2011	15734	1452	264	475	1434	3547	3748	697	2826	126	2,0		30,8	1172						28,1	307,7	2899	
5	5	2011		750					598										19,9					652	
6	5	2011		1308	409	120		453	3709	268	826								65,4				1008,9	771	
7	5	2011		1883	355	201	530	1280	5325	501	2154	52	2,6						83,1				571,0	4650	
8	5	2011		1132	79			545	3141	322	1715	37			68,1								10,6	702	
9	5	2011		2395	333	96	190	567	6867	412	2046	40							43,5				279,6	1868	
10	5	2011		2369	284	234	717	1673	9805	530	4000	75	2,9						6,9	72,1			362,6	3834	
11	5	2011	15610	1112	73				4217	350					50,9				44,2				103,9	604	
12	5	2011		1057	99				2744	153									29,4			13,2	233,0	3218	
13	5	2011		10	93	31			3899	159									56,9				427,3	1446	
14	5	2011		1380	67				4517	408	1456	44							3,5	87,5			396,3	2073	
15	5	2011			172	174	562	1568	5014	457	2679	49			61,8								365,6	4420	
16	5	2011		1134	201	248	707	1882	6099	476	3753	97							63,3				658,2	919	
17	5	2011	16125	1719	125	190	478	1255	4625	302	3175	53			43,0				44,6				139,1	1268	
18	5	2011		2242	301	456	1103	2985	7516	651	6066	119	3,3			480			14,5	95,5	1,16		41,6	1612,8	3302
19	5	2011			103	433	965	2553	4612	602	2329	102	2,2		32,2	594							52,1	110,5	1804

D	Mo	Yr	Mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3	
20	5	2011		1170	174	249		1643	6063	428	1708	71			39,7				67,7	2,16			313,1	2851	
21	5	2011		622	137	139	423	1231	3653	375	1050	52			54,6				30,3				42,9	467	
22	5	2011																							
23	5	2011	26322	2914	135	172	427	1014	5516	348	1149	34						7,5	53,1				311,6	2040	
24	5	2011		399	113	293	711	1888	2921	368	2988	74	2,8						75,9				258,6	1103	
25	5	2011	18601	1114	211	368	881	2288	7229	545	3589	85	4,0		15,1	892			45,6	1,16			410,6	1772	
26	5	2011	16503	655	337	358	973	2509	11060	652	7736	80				798			18,5	127,6	3,19		374,3	5054	
26	5	2011	24441	3476	193	262	696	1730	8984	481	3025	71	1,8		71,3	465			3,4	22,2			38,4	363,9	2261
27	5	2011		2720	23			632	8177	558	2487	48							5,2	134,9			22,4	41,8	3814
28	5	2011		1391	75			930	5267	419	2659												65,4	3194	
29	5	2011		1463	216	192	592	1518	8242	423	2820	55											251,7	6373	
30	5	2011	30263	2243				397	4530	365	1369								28,0				26,3	2153	
31	5	2011		1315					2962	236	1367								63,3				43,6	1533	
1	6	2011	10604		10				4999	286	2271								70,4				17,2	3082	
2	6	2011		1055	175	273	651	1794	9571	465	2855	71			67,4				3,7	86,6			417,9	10774	
3	6	2011		1518	261	402	1225	3192	8148	667	3778	107	2,5			1229			39,7				432,3	3146	
4	6	2011		2291	137	162	502	1342	4168	289	1538	43							46,5				217,3	1945	
5	6	2011		1643	110	218		2049	2857	455	3678	95			26,8	578							24,8	180,5	3161

D	Mo	Yr	Mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3	
6	6	2011	40838	1400		27	114	370	3707	241	1110	35							60,8					1480	
15	6	2011		502				5144	9152	115	1411	22							89,5					2603	
16	6	2011		149	124				1303	268	1342	35											75,7	4840	
17	6	2011	8779	1392		22	164	534	2715	252	790	49							10,4					1737	
18	6	2011		425	293	243	660	1678	1229	588	8178	10		64,4				22,5		2,30			507,4	9178	
19	6	2011	30408	1853	664	775	2631	6915	15012	1549	14629	232	9,3	32,6		2240		33,6	153,4	1,78		31,1	593,4	4297	
20	6	2011		2423	308	126		733	6390	235	1716	30												559,3	3315
21	6	2011		1786	123	66	204	542	4075	229	1841	32	2,9											243,4	1735
22	6	2011	7581	1057	88	96	281	681	2690	186	1369			16,1					31,3					192,1	1287
23	6	2011		2852	67	116		994	4268	351	2448	44	3,4						33,1			24,1	89,8	634	
24	6	2011		1306	246	143	419	1315	5549	541	2733	89		46,5					43,3					395,8	1523
25	6	2011	17891	568	92				4066	282	3466													352,9	1430
27	6	2011	6905	1474	162	113			2038	209	1645								40,7					183,0	1564
28	6	2011		1232	266	201	686	2006	3443	516	2320	80		45,6				6,5	50,3					359,1	3147
29	6	2011				266			2469	569	2835								51,0						2630
30	6	2011		3073					4608	193	1618														1901
1	7	2011		1628				889	7848	369	2929	50							53,1			14,1		4261	
2	7	2011		952	90	151		1430	4459	338	1776	56		33,8					68,5					339,8	1367

D	Mo	Yr	Mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3	
3	7	2011				47	254	830	9028	450	2807	60	2,3					6,7	99,4			37,0		3589	
4	7	2011		1106				924	4328	292	1647	40			61,5				39,8					2444	
5	7	2011		1098		427	122	3538	3646	828	3645	11			87,8									936	
6	7	2011		1193					9806	335	1529								54,8					3749	
7	7	2011			258	272	750	1998	1234	785	4631	10	4,9		25,3			14,2	164,5			30,7	345,1	2932	
8	7	2011		1088	385	461	128	3338	8927	128	3236								79,8				1281,6	2138	
9	7	2011		160	67				1197	546	4450	83											109,1	13249	
10	7	2011	18115	1143	2003	2118	6215	14637	32048	3087	19019	484		26,8		4483		51,1	156,3	5,29		118,9	4530,5	18137	
11	7	2011		1570	377	456	1214	3230	8209	721	4294	10	4,0						67,5				39,6	597,0	1496
12	7	2011		926				515	5314	287	1712	36												4741	
14	7	2011		2877					6321	238	1002								42,2					2171	
15	7	2011		2672	45			1018	3434	257	2736				14,0				49,2				110,3	2075	
16	7	2011		2032	54	77	244	717	3439	342	1892	36	1,6						58,7				169,9	1170	
17	7	2011			230	287	972	3008	5453	918	6421	13	3,1		42,1	869			15,0			60,5	481,8	1044	
18	7	2011		1266	456	289	760	1905	5355	358	3538				45,1				60,5				999,8	1851	
19	7	2011		383	64				4282	274	2645							7,2	52,4			14,4	363,1	1536	
20	7	2011	43647	1343	411				1187	636	5312	12							47,3				17,8	574,3	7618
21	7	2011		568		202	515	1379	1493	284	4336	56			27,5							14,8		668	

D	Mo	Yr	Mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
22	7	2011		47	529	145	466	1158	1283	950	4107	39		16,4				12,4	143,7	3,24		59,5	1606,7	4541
24	7	2011		95	45			1309	9589	921	4440	92										40,4	44,3	3072
25	7	2011			204	302	972	2583	4601	627	2874	79											262,2	1889
26	7	2011	40169	1172	77	15	43	124	3493	162	330			42,2				27,7		0,81			239,1	2099
27	7	2011	16933	39					3048	150									29,9					1668
28	7	2011		1819	865	261	763	1806	1824	1309	6026	73		70,1				28,2	205,9	2,86		55,4	1089,5	4855
29	7	2011	30197	1457	750	165	282	748	1442	505	1410	58		10,9		324			109,9	2,98		57,2	2118,6	8897
30	7	2011	47805	693	346	34	50	154	7998	176	305	7		29,4				3,3	84,9	0,18		7,7	452,0	3868
31	7	2011	19402	6198	102	157	284	952	2978	1045	1129	44		32,4				13,5	114,7	4,24		80,6	2547,0	8490
1	8	2011	18726	1066	815	148	263	711	3122	826	1839	52		24,4				9,9	88,2	3,07		69,2	2671,0	11529
2	8	2011	10329	956	178	134	274	712	4411	203	1203	24											233,7	2182
3	8	2011		1374	918	169	124	377	8521	329	652	12		31,9				11,6	65,8	0,86			1346,6	1942
4	8	2011		960	376	55	153	410	8004	446	720	12		26,3					109,5	1,00			582,2	3953
5	8	2011	16721																					
6	8	2011	21092	159	558	152	344	964	10549	467	2762	30				212			118,9	1,34		16,6	1155,8	4187
7	8	2011		131	101	29	62	186	2152	156	618	6		3,4				2,3	6,9	0,55		9,9	150,6	894
8	8	2011	24512	1018	159	36	87	290	5523	226	1277	34		38,3					157,5	0,35			192,9	1756
9	8	2011		1264	982	211	537	1454	15658	863	3479	124		27,5				17,5	130,6	2,65		49,9	2557,3	6969

D	Mo	Yr	Mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
10	8	2011	18679	446	112	153	596	1638	6998	572	2892	62											132,4	2932
11	8	2011		422	41			862	6063	445	1995	53											217,1	2133
12	8	2011		150	7			345	2816	232	766	30											19,3	685
13	8	2011	26664	45	128	380	983	2699	4677	247	8256	11		151,7				75,7	457,7	6,6		95,1	1404,7	4508
15	8	2011	21117	892	135			960	4220	600	3610	57							50,8				1008,3	6974
16	8	2011			650	270	433	1068	6852	218	1145	41		46,2				14,2	112,3	0,6			1551,5	3872
17	8	2011	9967	787		29								26,1				12,9						
18	8	2011	40200	152	562	161	482	1330	1282	101	3438	44		25,3		437		14,2	140,2	2,5		49,1	600,6	2620
19	8	2011	32964	102	895	220	451	1390	2740	964	4512	61		22,5				7,4	154,7	3,4		69,7	1953,9	1138
20	8	2011	3699		711	198	599	1583	2409	950	4523	55		43,1				25,8	128,6	3,5		58,9	1539,4	1419
22	8	2011		622	110	193	437	1266	2054	979	1671	58	1,9	22,3		147		7,9	167,9	3,8		76,7	2091,9	1023
23	8	2011	26039	105	453	128	326	715	1205	569	2252	30		33,2		167		18,0	75,9	1,2		27,3	141,9	2192
24	8	2011	14000		100	160	253	827	2500	949	1191	45		32,9				12,1	39,1	2,9		53,5	2188,6	1072
25	8	2011	8706		790	215	324	912	2007	100	1914	34		48,8				18,9	213,9	3,2		45,2	1512,1	6774
26	8	2011																						
27	8	2011	31197	971	363	68	190	756	1687	100	4500	63		13,6				16,9	88,2	4,1		82,3	696,9	5269
28	8	2011	28169	174	168					340		94		42,0				12,9	118,1				332,2	
29	8	2011	25505	612	284	90	330	1023	1056	398	818	27		21,3				11,1	96,3	1,8		39,0	343,9	5467

D	Mo	Yr	Mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
4	11	201	48979	221	111			723	1917	241	1639	35											220,8	1439
		1		2																				
5	11	201	15837		189				3248	335									46,4			20,5	262,6	1670
		1																						
6	11	201	47640																					
		1																						
7	11	201	51924	216	358	190	558	1411	4014	418	2564	51							54,0				507,2	1877
		1		6																				
8	11	201	35899	243	82			777	2712	365	2630	44							42,7				201,0	1081
		1		4																				
9	11	201	35830		60			233	4946	223	943								38,6			13,8	50,8	657
		1																						
10	11	201	14264	623	121	138	469	1069	2003	250	1204	33										17,5	236,6	142
		1																						
11	11	201	44059	301	9				437		764												42,8	149
		1		1																				
12	11	201	30989		349	298	983	2264	6787	731	2744	69										15,8	627,4	1988
		1																						
13	11	201			469	286	837	2093	1051	761	4538	81							39,3			26,1	905,8	5648
		1							5															
14	11	201	44553	220	113				5945	241	806												123,9	274
		1		0																				
15	11	201	92043		252	141		962	8137	708	2249	37							49,5			47,2	539,3	2383
		1																						
16	11	201	32004		112	97	340	875	2336	374	1862	32							16,2			13,5	241,9	1493
		1																						
17	11	201	57507		143	61	212	576	3155	411	845	25							25,0			17,7	286,1	2306
		1																						
18	11	201	61662		214				970		1903												274,1	284
		1																						
19	11	201	10464		503	217	491	1447	4649	526	3140								57,6			18,0	530,0	1420
		1	5																					
20	11	201	56834		122			297	3043	205	680												176,0	367
		1																						
21	11	201			468	139		782	9325	703	2817								10,0	2,5		61,5	198,5	4406
		1																		7				

D	Mo	Yr	Mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
22	11	201	39554		261	66	177	410	1239	909	801								141,3	2,7		54,9	538,4	3629
		1							3										3	1				
23	11	201	41241		55				1540	172									39,2			13,2	72,2	452
		1																						
24	11	201	56977																					
		1																						
26	11	201	84392		72			317	2823	191		12											43,8	284
		1																						
27	11	201	21912		333	106		701	5506	634	2806	33										59,6	97,3	1201
		1																						
28	11	201	13744		523	202	408	1016	5212	455	1719	33							57,8			18,3	1069,	3398
		1	1																				5	
29	11	201	10820		424	178	477	1188	4052	507	2190	40											362,1	1958
		1																						
30	11	201	18021		131				4833	301	650									7,7		18,4	117,2	1648
		1	2																					
1	12	201	63479		238						747									21,6			446,7	
		1																						
2	12	201	49853		240				3242	475	3172									29,5		36,0	385,2	1579
		1																						
3	12	201	30110		296	140	440	1126	1202	874	4553									96,0	2,8	82,5	364,0	6673
		1							5												4			
4	12	201	88892						1059	126														643
		1																						
5	12	201	33840		369	177	553	1293	5335	653	1806	41	1,7							37,9		23,1	1011,	1760
		1																					3	
6	12	201	18485		328	106		507	6781	366	1647									32,2		28,1	351,7	3510
		1	2																					
7	12	201	27234	118	160	159	460	1284	8164	338	3191	43		8,3	41,3	368	3,78		15,4	0,5	14,4		172,1	3191
		1		9																	0	9		
8	12	201	31747	111	290	309	882	2365	8173	626	1838	61		7,3	38,8	642	2,60			0,5	13,4	8,5	245,1	2489
		1		6																	4	8		
10	12	201	7031		8	18	62	227		40	183			23,4	11,9					0,3		5,2	5,5	
		1																			9			
11	12	201	7241	57	32	42	130	372	1266	74	240	7		17,4	25,8					0,2			20,0	281
		1																			8			

D	Mo	Yr	Mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3	
12	12	2011		294	40	45	117	357	851	60	1341	4		10,1	32,5		4,27			0,43			59,1	131	
13	12	2011	56511	1680	176	178	702	2166	10216	576	7005	99		20,3	50,3	836			19,2	0,8	8,78	7,9	220,9	2990	
14	12	2011	103070	2024	498	526	2249	5996	19933	1301	12818	209		28,2	79,2	2129	6,12	31,5	94,3	1,7	44,7	34,6	8795,1	4695	
15	12	2011	45561	1804	318	320	920	2508	14118	731	4312	70			36,0	815			9,8	0,8	4,64	5,3	640,5	7889	
16	12	2011	84839	2702	580	478	1618	4472	12474	959	11517	137		23,9	72,9	1614	3,30	17,4	29,2	1,3	34,3	24,9	342,9	5837	
17	12	2011	8614	124		87	157	439	670	92	919				22,5									272	
18	12	2011	7800	200	28	32	99	306	1054	61	203	20		13,3	12,1					0,69			19,9	655	
19	12	2011	43694	1187	223	232	671	1829	11627	407	5265	58		12,7	23,1		1,07		12,8	0,8	7,83	4,3	209,2	2722	
20	12	2011	59531	1417	751	391	877	2440	15210	634	6095	82		16,7	17,0			4,5	43,9	1,1	8,00	11,6	1199,2	4454	
22	12	2011	26266	807	300	184	345	895	9038	292	1174	22		13,2	13,6					0,47			397,8	4965	
23	12	2011	44162	1514	161	162	588	1786	15120	419	3775	45		9,8	17,3	502	5,28	20,7	16,5	0,7	10,8	5,4	181,6	4620	
24	12	2011	7105	224	12	13	49	178	923	36	187			14,2	20,0								1,2	22,9	770
25	12	2011	5908			6	23	86		18	134				18,1						0,28				
26	12	2011	27397	1037	53	69	256	987	5846	312	2681	31		8,1	17,8	323		5,7	5,7	0,4	2,94	6,7	49,9	336	
27	12	2011	47551	2083	320	270	847	2328	15421	634	7347	67		9,0	51,7	776	5,62	14,9	13,0	0,9	24,6	25,1	949,9	3665	
28	12	2011	48563	1613	350	476	1386	3866	11509	907	3538	108		14,6	48,7	1103	4,49		19,0	0,9	19,9	21,3	913,4	8898	
29	12	2011	15758	492	142	43	84	317	5553	147	662	9		8,6	9,0					0,2			160,8	4446	
30	12	2011	76294	2071	772	531	1577	4476	19502	1079	6740	144	2,8	8,4	60,1	1833	3,60		27,6	1,3	35,4	13,0	1868,1	16931	

D	Mo	Yr	Mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
9	12	201	39871	131	506	357	116	3207	7063	853	3874	86		12,9	27,4	778		7,7	46,8	0,5	20,0		69,7	1986
		2		1			7													7	7			

Ek 4. Kırklareli gnlk Aerosol Konsantrasyonları
(konsantrasyon deęerleri ng m⁻³ cinsindedir)

Blm 1 PM_{2.5-10} fraksiyonu

1	1	201	3792	0	4			34	170	31	33	0,9		2,4		9,5	88			
3	1	1																		
1	1	201	2240		28			66	692	61	104	4,9		15,3		3,7	97,6	281		
4	1	1																		
1	1	201	7368	37	49	45	134	358	646	74	496	11,0	1,4	0,6		4,6	59,8	358		
5	1	1																		
1	1	201	1183	99	19	15	70	217	555	80	281	9,5				5,6	30,7	270		
6	1	1	6																	
1	1	201	5398		87	53	72	177	148	43	290	5,2				93,5	77			
7	1	1																		
2	1	201	6921	447	36	18	10	25	103	48	102	1,4		2,6		19,8	353			
3	1	1							8											
2	1	201	8053		53			15	185	30	85	3,4		11,3		83,6	30			
5	1	1																		
2	1	201	3806		6		14	24	128	9		1,1				3,8	5,6	35		
6	1	1																		
2	1	201	4489	19548	10	23	34	112	562	56	255	5,6				9,6	17,8	143		
7	1	1																		
2	1	201	8359	31	330	162	193	510	362	118	513	13,6				2,9	960,9	513		
8	1	1																		
2	1	201	5546	0	324	118	119	359	244	81	272	8,7		22,6		6,2	265,6	81		
9	1	1																		
3	1	201	3722	0	26	50	57	198	205	74	522	9,6		41,9		32,8	60			
0	1	1																		
1	1	201	3445		12	13	33	56	57	9	46	1,5		21,6		1,5	7,3	26		
6	1	2																		
1	1	201	4880		43	26	56	104	386	26	126	3,4	14,6	4,2	38,5	0,	5,9	109		
7	1	2														1				
1	1	201	7242		51	50	97	193	313	35	214	5,5	19,1	8,5	58,6	0,	0,6	58,0	96	
8	1	2														3				
1	1	201	9775		82	118	78	163	695	47	402	6,9	17,4	3,7	61,7	0,		166,0	388	
9	1	2														2				
2	1	201	3346		26	29	15	41	252	19	115	0,4	11,4	3,9	51,1	0,	0,8	37,6	39	
0	1	2														0				
2	1	201	2251		30	9	17	42		10	35	2,4	17,2	5,1	49,3	0,		521,7		
1	1	2														0				
2	1	201	9455		168	62	38	65	347	24	220	3,1	14,6	1,7	54,1	0,		5,0	184,6	88
2	1	2														0				

8	3	201	6406	256	53	48	131	973	42	76	3,9	9,2	1,7	42,4	0,1	218,9	470			
9	3	201	8672	259	46	29	58	766	24	73		14,5	1,1	29,6		710,4	253			
1	3	201	6398	50	16	28	38	242	13	37	1,2	2,1		30,0	0,2	53,4	94			
1	3	201	2793	102	23	34	59	99	16	41	1,9	15,0	0,6	46,7	0,0	197,5	53			
1	3	201	2239	57	127	105	222	502	47	419	3,9	20,0	7,0	47,1	0,2	117,3	327			
1	3	201	5033	71	18	28	44	31	13	33	0,1	1,4		44,5		44,3	11			
1	3	201	5861	130	115	129	311	620	64	401	11,3	0,5	6,2	35	2,6	22,8	0,1	1,7	231,4	50
1	3	201	3621	408	252	261	669	809	144	769	19,6	4,4	52			2,5	2,9	1211,8	192	
2	3	201	3653	148	190	313	840	575	151	834	24,2	0,2	14,9	65	8,1	47,4	0,4	4,1	316,4	278
2	3	201	3378	148	1015	599	1547	483	256	3565	51,2	15,3	281	4,5	0,9	0,1	5,6	0,1	182,8	95
2	3	201	3482	88	334	341	926	446	147	1139	25,4	0,1	28,7	10,8	86,1	0,1		5,2	158,9	174
2	3	201	2001	105	284	460	1236	481	198	1249	35,9	0,2	17,7	118	6,1	51,2	0,1		64,5	48
2	3	201	2748	261	117	261	885	120	126	417	21,8	11,4	12		37,1	0,0	0,8		338,1	23
2	3	201	2778	56	111	331	986	216	161	513	29,3	12,1	116	2,1	53,2	0,1	3,9		16,5	47
2	3	201	3407	85	102	193	549	178	75	425	15,1	20,3		8,2	59,7	0,2			135,2	137
2	3	201	2257	391	205	359	990	539	168	624	28,0	7,0	221	3,7	47,0	0,0	1,7	0,3	366,9	126
3	3	201	4781	54	58	215	558	288	68	348	11,0	10,3			47,0	0,1	2,2		71,8	85
2	4	201	3835	29	67	73	226	117	36	293	2,7	2,1	7,0	0,5	52,9	0,1	5,3	1,2	40,4	38
3	4	201	8821	431	218	201	494	508	99	666	11,4	0,7	4,4	118	1,5	49,0	0,1	7,5	1630,6	209

4	4	201	2671	693	308	340	799	590	139	835	41,6	1,9	2,6	131		32,5	0,	3,2	1731,	267	
			2														1		6		
5	4	201	3002	448	186	314	739	460	111	617	22,4		19,2	52	3,8	67,0	0,	2,8	378,6	140	
			2														2				
6	4	201	6161	442	199	346	782	983	128	539	23,4	0,3	4,7	116		26,3	0,	4,5	273,9	218	
			2														0				
7	4	201	1760	633	481	1293	3025	159	404	1782	83,9	1,1	20,5	542	10,3		0,	4,1	718,2	127	
			2				6										1		8		
8	4	201	1963	36	42	100	257	120	42	143	4,1		11,0		1,7				71,3	100	
			2																		
9	4	201	1992	104	22	26	60	45	14	49	11,6	0,4	0,2			18,1			252,8	39	
			2																		
1	4	201	3130	130	45	54	176	67	38	110	2,4		0,2			38,5	0,		339,2	51	
0			2														2				
1	4	201	6247	164	95	105	243	451	55	403	21,7		20,0		8,1	44,0		6,5	114,6	425	
1			2																		
1	4	201	1802	316	357	878	2201	790	284	1831	68,5		14,5	431	5,1	1,7		5,7	442,9	651	
7			2																		
1	4	201	7307	103	127	231	557	220	94	529	16,3	0,4	17,6		2,8	55,9			74,3	137	
8			2																		
2	4	201	3583	35	46	130	315		46	177	7,7		9,1	15	3,9		0,		210,5		
4			2														2				
2	4	201	4763	18	19	55	138	142	37	38	2,3	0,4	5,0			24,9	0,	3,7	64,5	104	
5			2					0									1				
3	4	201	4693	50	169	698	1915	329	228	550	62,2	2,9	0,4	438	0,0	1,8	0,	8,5	45,3	110	
0			2														1				
1	5	201	3921	51	105	510	1361	471	177	457	53,4	1,2	7,7	322		30,1	0,	1,9	46,2	167	
			2														3				
2	5	201	1568	44	191	708	1906	241	225	579	55,4	0,9	19,6	322	4,3		0,	3,9	178,0	162	
			2														2				
3	5	201	1535	47	135	458	1305	423	163	546	34,4		11,1	179	4,5	32,2	0,	1,7	64,6	294	
			2														1				
4	5	201	5812	66	220	675	1910	511	261	929	57,5	1,1	21,9	374	6,1	0,7	0,	4,1	3,1	101,4	427
			2														2				
5	5	201	2957	20	108	177	490	384	156	355	12,1		3,1	17	1,3			1,6	21,4	131	
			2																		
6	5	201	3009	30	261	206	535	321	137	862	12,5		16,1		2,7	33,6	0,		39,5	112	
			2														1				

2	8	201		45	54	75	199	440	121	61	272	11,9		11,8	24,9			0,		256,0	28		
4		2																1					
2	8	201		44	42	70	160	350	93	50	231	11,3		11,4	0			0,	1,8	54,4	34		
5		2																1					
2	8	201	3348	76	237	98	239	594	344	98	238	16,1		6,0	22,9	13		0,		253,4	73		
6		2																3					
2	8	201		99	40	87	376	908	312	168	244	27,4		7,7	5,8	67		1,6	0,	2,3	26,9	51	
7		2																1					
2	8	201		68	264	66	75	229	160	59	135	2,9		6,9	5,7			0,		0,3	446,9	34	
8		2																2					
2	8	201		62	196	78	141	409	90	80	207	10,9		21,2				7,5	0,		6,3	322,6	9
9		2																1					
3	8	201	3613	70	27	17	65	251	79	76	213	14,7		4,2	23,7		1,5		1,0		7,0	9	
0		2																					
3	8	201		65	113	63	154	441	128	84	237	10,4		8,6	10,3			0,			162,7	18	
1		2																1					
1	9	201		21	416	91	133	410	185	82	109	11,1		1,2	19,0	35				0,8	959,1	29	
0		2																					
1	9	201																					
1	9	201	6167	86	630	235	371	1070	477	200	488	21,6		6,5	6,1	197	0,2		0,		4,3	1827,79	
2		2																	2		5		
1	9	201		99	515	156	381	928	711	214	243	29,7			10,9	469		0,1	0,		0,8	1891,273	
8		2																	3		6		
1	9	201			257	131	315	776	560	174	309	19,6		1,2	7,1	197	1,7		0,		460,5	229	
9		2																	1				
2	9	201		66	37	64	116	294	330	99	201	6,8			8,6	56	1,0				55,8	82	
0		2																					
2	9	201			874	167	137	371	396	93	186	8,3		1,8	32,0	23			0,		647,8	116	
1		2																	1				
2	9	201		118	82	152	319	791	334	164	688	20,5		10,5	15,6	31	1,3	0,4	0,	0,7	29,7	79	
4		2																	4				
2	9	201		255	245	351	1033	2738	838	416	1449	79,9	0,1	7,2	35,0	498	1,1		0,	7,0	80,7	201	
5		2																	2				
2	9	201		216	224	277	950	2453	720	332	1066	76,7	1,7	11,2	16,9	509	1,1	9,9	4,6	0,	3,4	165,7	297
6		2																	2				
2	9	201		119	174	155	509	1289	373	173	572	39,8		9,2	16,2	178		2,7	0,		274,5	92	
7		2																	1				

2	9	201		118	172	125	396	1024	360	151	456	30,7	3,7	13,1	187	0,4		0,	0,3		130,9	86		
8		2																3						
3	9	201	3778	117	144	149	656	1749	337	220	446	54,3	16,1	29,8	143	0,8	3,4	59,9	0,	0,5	1,4	128,7	112	
0		2																3						
1	1	201		196	583	361	796	2113	937	334	945	67,7	8,2	16,7	436		2,1	45,8	0,	3,6		465,1	280	
0		2																3						
2	1	201		228	394	345	893	2371	118	336	966	66,0	17,9	34,8	289	1,3	4,7	66,2	0,		8,7	86,0	161	
0		2						6										3						
3	1	201	6405	105	145	132	410	1091	364	151	350	34,0	12,2	27,3	100	0,1			0,			152,0	158	
0		2																1						
4	1	201	7215	184	124	246	1034	2893	774	373	685	92,4	4,8	29,1	642				0,	7,1	2,9	79,5	166	
0		2																2						
5	1	201		110	86	161	512	1295	596	201	549	36,5	11,9	6,3	122		0,1		0,	0,3	1,0	24,3	86	
0		2																4						
6	1	201		236	84	570	1004	2856	463	445	1889	86,2	15,4	38,0	496	0,9	5,5		0,	3,5	3,1	54,2	96	
0		2																2						
7	1	201		228	110	350	923	2402	849	422	1181	68,8	11,0	13,9	372		4,9		0,	2,0	4,9	8,7	60	
0		2																3						
9	1	201		147	205	350	645	1772	549	287	1189	59,6	1,5	4,9	14,8	454	0,3	4,8	4,3	0,	7,1	2,9	187,6	51
0		2																1						
1	1	201		298	252	636	1136	2935	118	517	2346	98,3	0,2	10,8	38,9	710		7,0	35,5	0,	10,1	6,3	299,0	225
2	0	2						3										3						
1	1	201		127	533	556	630	1535	897	292	1260	41,9	6,7	16,5	313			0,6	0,	4,4		424,6	292	
3	0	2																3						
1	1	201		73	510	203	290	754	410	176	424	22,3	13,3	29,4		1,7	2,4		0,		6,3	713,6	184	
4	0	2																1						
1	1	201		94	690	239	219	562	577	152	459	14,2	11,4	21,1		0,4			0,			571,9	191	
5	0	2																2						
1	1	201		107	534	254	456	1177	830	237	662	31,4	16,6	9,7	16		0,0		0,	5,8		265,7	215	
6	0	2																4						
1	1	201		42	400	151	221	608	400	137	440	16,6	7,2	3,7	30				0,	0,1		45,6	96	
7	0	2																2						
1	1	201		25	302	68	94	275	216	71	97	6,8	5,4	3,5					0,			648,5	61	
8	0	2																2						
1	1	201		54	70	89	180	524	317	95	235	11,8	2,0	11,9	41				0,			129,1	50	
9	0	2																0						
2	1	201		71	252	104	205	504	804	131	266	12,7		10,0	171			0,4	0,	0,0	1,8	579,9	104	
0	0	2																1						

2	1	201	133	308	218	471	1247	129	243	580	31,4	10,5	23,9	160	5,9	53,0	0,2	2,7	299,5	125		
2	0	2						0									2					
2	1	201	125	106	173	335	993	134	215	702	32,1	0,5	3,4	6,2	267	3,0	4,1	0,2	2,3	2,1	143,9	287
3	0	2						1									2					
3	1	201	51	277	69	39	93	349	119	122	2,3	6,9	14,6			25,5				316,2	53	
0	0	2																				
1	1	201	132	670	339	431	1249	866	272	1211	45,3	0,9	10,5	373	0,9	12,4	0,2	9,7		702,5	118	
	1	2															2					
2	1	201	155	356	225	431	1166	170	261	659	35,0	4,4	6,7	169		2,5	0,4			406,4	574	
	1	2						7									4					
3	1	201	118	421	154	157	499	400	230	447	18,6	21,9	27,7		7,8		0,4		0,9	388,3	77	
	1	2															4					
4	1	201	182	377	376	447	1364	167	327	1368	46,6	12,3	31,1	188		2,5	42,6	0,0		3,1	490,3	422
	1	2						2									0					
5	1	201	85	755	235	147	384	811	147	375	12,1	3,2	8,1	9				1,8	2,7	463,5	165	
	1	2																				
6	1	201	11	30	14	18	43	94	37	44	0,0	4,4	7,6				0,1			9,2	22	
	1	2															1					
7	1	201	17	71	28	65	153	229	58	130		5,5	4,7				0,2			76,0	56	
	1	2															2					
8	1	201	29	101	38	73	182	129	50	157	3,7	12,7	22,2			49,5	0,1			201,8	51	
	1	2															1					
9	1	201	55	42	70	146	373	311	88	277	10,4	17,0	9,9		8,2	58,1	0,4		7,0	42,3	71	
	1	2															4					
1	1	201	83	247	137	233	592	723	152	351	20,2	5,5	5,1	97		0,3	0,2		0,1	141,4	177	
	2	2															2					
1	1	201	49	164	45	58	128	128	82	104	1,8	1,6	7,7	56			0,1			251,4	321	
	3	2						9									1					
1	1	201	9	10	5	4	8	564	25	11	0,4	10,0			1,1	25,4	0,2			10,7	138	
	4	2															2					
1	1	201	46	225	49	68	142	630	74	86	6,0	9,0	4,4		3,7	0,3	0,2		0,5	55,9	218	
	6	2															2					
1	1	201	29	75	22	32	77	844	70	37		17,0	25,4			57,0	0,2			17,6	120	
	7	2															2					
1	1	201	66	132	42	51	110	117	96	80	4,8	10,5	1,5		6,3		0,3			236,0	112	
	8	2						0									3					
1	1	201	44	361	81	75	174	855	91	90	3,9	4,3	10,0	0,3			0,4			364,4	160	
	9	2															4					

2 1 201	19	162	61	63	188	658	80	119	6,1	14,2	18,0	1,4	0,	169,6	23
0 1 2													2		
2 1 201	32	71	21	30	76	915	58	39	0,8	2,1	10,0		0,	3,0	204,3 173
1 1 2													2		
2 1 201	58	231	75	110	245	658	98	191	7,5	4,9	11,4	69	0,	773,4	195
2 1 2													1		
2 1 201	94	158	93	192	455	813	131	318	9,5	0,3	11,7	196		333,8	233
3 1 2															
2 1 201	67	47	50	99	234	157	68	133	5,4	12,6	29,8		47,3	2,1	187,2 611
4 1 2						8									
2 1 201	144	23	151	344	852	286	173	362	27,5	3,0	13,5	162	0,	1,7	35,0 759
5 1 2						5							3		
2 1 201	214	70	333	779	1913	183	316	851	66,1	0,3	12,0	16,1	333	6,5	45,2 0, 5,5 4,6 58,2 282
6 1 2						5							1		
2 1 201	82	92	34	28	93	532	82	206	6,1	4,5	4,9		1,7	0,	4,1 140,9 67
8 1 2													2		
2 1 201	77	258	105	162	393	433	155	268	10,9	11,1	1,7		25,5	0,	0,1 605,5 86
2 2 2													1		
3 1 201		939	184	27	38	227	101	193		36,1	17,5		9,5	0,	1621, 45
2 2 2													2		
4 1 201	52	30	18	32	59	214	41	81	1,1		7,4		0,	34,4	59
2 2 2													1		
1 1 201	14	19	11	22	38	386	29	48	1,1	7,0	8,7			53,3	221
0 2 2															
1 1 201	1	26	41	21	47	267	24	125	3,0	5,1	4,0		0,	85,6	158
1 2 2													2		
1 1 201		2	20	11	25		7	57		4,2	6,1		0,	4,7	3,4
2 2 2													0		
1 1 201		11	34	48	138	24	29	109	5,3	5,0	6,9		0,	10,3	23
3 2 2													1		
1 1 201	36	68	137	167	511	194	70	380	15,4	0,3	11,3	35	0,	361,4	75
4 2 2													1		
1 1 201	53	87	85	148	397	657	78	430	13,9		10,7	163	0,	1,3	67,8 318
5 2 2													3		
1 1 201	11	55	16	3	0	955	61	22	0,9	10,6	3,0		3,9	0,	154,6 574
6 2 2													5		
1 1 201		197	36	1	4	288	28	16	0,6	4,9	5,2		0,	0,3	147,7 163
7 2 2													1		

1	1	201	23	58	28	70	161	411	33	55	4,0	1,8	2,5	0,6	0,	12,4	195
8	2	2													1		
2	1	201	19	49	26	45	92	521	39	98	2,7	8,7	2,8		0,	4,0	722,9 322
5	2	2													1		
2	1	201	39	369	73	49	102	764	82	76	1,0	12,7	5,3	1,7	48,0	0,	1,2 497,3 218
6	2	2													1		
2	1	201	49	280	60	38	72	867	99	88	0,8	11,0	3,8	2,6	0,	275,1	231
7	2	2													1		
2	1	201	18	104	33	20	33	145	90	42	0,9	13,8	0,6		0,	0,8 76,6	332
8	2	2						6							2		
2	1	201	13	4	6	9	11	806	26	43	0,6	5,9	7,7		0,	4,3	289
		3													4		

Ek 4. Kırklareli gnlk Aerosol Konsantrasyonları
(konsantrasyon deęerleri ng m⁻³ cinsindedir)

Blm 2 PM_{2.5} fraksiyonu

	mass	BC-IR	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
9	7	201					2441	54				0,3		325			13,7		5,2			1647
		0																				
1	7	201					198	120						237			2,0		3,1			85
		0																				
1	7	201					3047	72				0,9	6,3	451		0,1	8,4		7,8			1894
		1																				
1	7	201					2453	88				0,9	5,5	425		0,7			7,5			3263
		2																				
1	7	201		5	38		4578	61	237			3,2	11,2	856	2,	7,3	23,7		19,		3,4	3470
		3													0				4			
1	7	201					2966	70				1,1	5,3	458		1,2	15,0		9,2			1745
		4																				
1	7	201					174															75
		6																				
2	7	201					1847	106				0,2		351			7,9		4,7			826
		0																				
2	7	201		28	18		4114	239	118	15,2	0,	2,9	12,7	839	2,	6,6	31,4		15,		10,6	1149
		1									3				1				2			
2	7	201					1946	152				0,9	6,1	435		0,6			7,9			410
		2																				
2	7	201		20	27	88	3695	278	129	19,1		2,8	11,3	877	2,	6,9	21,0		16,		5,5	751
		3													0				1			
2	7	201					2603	209	188	15,5		2,4	10,8	771	1,	5,1	22,3		11,			1761
		4													9				9			
2	7	201		45	36	93	5102	204	175	20,2	0,	3,6	13,3	106	2,	9,4	30,5		20,	6,1	44,9	2524
		5									9				0	6			8			
2	7	201		25	16		3847	137	99	8,1		2,2	10,2	706		4,9	2,0		14,		15,7	3165
		6																	1			
2	8	201					1397	136				0,7	4,6	368		0,7	10,1		6,3			632
		1																				
2	8	201		28			3465	124				1,5	8,3	591		2,3	13,2		10,		8,3	1183
		2																	3			
2	8	201		53	13		4992	221		10,7		2,9	10,8	837	2,	7,1	41,2		16,		28,2	3208
		3													0				7			
2	8	201		74	124	119	5997	243	363	19,8	2,	5,3	17,7	144	3,	14,	44,7		30,	8,2	41,4	3729
		4									5			9	5	4			9			

2 8 201 3192	49 328 170	4466 332 952 37,6	1, 8,0 26,2 201 4, 23, 82,1	40, 7,1 23,0 2814
5 0 1			4 0 9 0	9
2 8 201 2840	13 292 209 335 7432 375 675 44,9	4, 8,3 29,5 197 4, 23, 84,4	4, 8,3 29,5 197 4, 23, 84,4	40, 6,5 58,0 4538
6 0 6			9 8 5	8
2 8 201 2601	81 534 297 393 5900 225 117 53,1	4, 9,6 30,5 240 5, 28, 27,7	4, 9,6 30,5 240 5, 28, 27,7	45, 7,2 59,7 2371
8 0 4			7 8 8	9
2 8 201 7027	36 36 105	2378 272 309 22,0	0, 3,2 12,2 966 2, 7,9 24,3	17, 36,3 1395
9 0			5 2	8
3 8 201 1712	79 24	7013 158 89 12,7	1, 4,0 14,1 108 2, 9,7 5,8	20, 75,7 2698
0 0 8			6 8 7	7
3 8 201 1321		229		94
1 0 9				
1 9 201 1430		1867	0,4 4,0 329	4,7 466
0 9				
2 9 201 2312		3405 99	1,6 7,2 564 2,5 20,8	11, 998
0 1				0
4 9 201 2152		1998	0,1 254 3,4	3,5 471
0 2				
2 9 201 1678	11 182	1898 325 635 11,6	2, 4,8 16,0 125 3, 12, 47,5	26, 24,2 455
8 0 4	2		5 5 1 1	6
2 9 201 1199		43		18
9 0 7				
3 9 201 1756	16 33	6268 180 146	1, 4,1 13,9 111 2, 9,5 30,8	22, 6,6 22,0 1543
0 0 1			6 5 8	6
2 1 201 2513		1430 46		219 342
0 0 2				
3 1 201 1521	15	2397 76	0,6 4,2 347 0,0 13,8	6,0 11,1 797
0 0 3				
4 1 201 1518	48 16	3660 85	1,7 7,4 576 2,8 17,1	10, 52,6 1092
0 0 6				1
5 1 201 8980		236		32
0 0				
6 1 201 1004	6	2499 68	0,7 4,7 386 0,1	6,5 77,0 1083
0 0 2				
7 1 201 1840	52 12	7906 331 9,1	0, 5,2 17,7 133 3, 12, 37,6	29, 5,8 53,0 1692
0 0 4			4 9 2 9	7
9 1 201 1739	5	4778 108	0, 2,5 9,6 725 1, 5,0 19,2	13, 4,7 687
0 0 6			5 7	2

1 1 201 1677	11 47	4915 203 230	1, 3,8 13,5 106 2, 8,1 25,1	19,	11,1 1016
0 0 0 8			2 8 5	3	
1 1 201 1544	8 21	1193 87 216	1,1 6,0 471	1,0 19,0	9,7 18,9 84
1 0 0 6					
1 1 201 1294	54 53	4663 415 210	1, 4,6 18,2 118 2, 10, 33,8	24, 5,5 41,6 438	
1 0 0 7			4 9 9	0	
1 1 201 1324	6	5007 104	0, 2,2 8,3 666	4,4 21,0	12, 9,8 954
2 0 0 2			8	9	
1 1 201 1374		4451 110	0, 1,6 7,4 606	2,3	10, 1449
3 0 0 6			1	5	
2 1 201 1481		1144		164 3,2	514
3 0 0 1					
2 1 201 2484	2	2119	0,2 4,2 301	8,2 4,7	1,1 703
4 0 0 6					
2 1 201 1203		305			79
5 0 0 3					
2 1 201 1208		1004		142	241
6 0 0 0					
2 1 201 1710	20	5208 198	0, 2,7 10,7 832 2, 5,9 27,2	16, 28,0 1480	
7 0 0 6			7 0	8	
3 1 201 1105	3	2648 92	0,8 5,6 387	0,4 9,3 8,0	3,2 420
0 0 0 5					
3 1 201 2210	16	2820 68 119	1,1 6,3 515	1,2 13,2 8,2	36,4 364
1 0 0 4					
6 1 201 1888	11 458 443 650	5624 422 100 77,9	6, 9,3 29,7 228 5, 26, 102, 0,	47, 19, 159,4 545	
1 0 7	7	2	7 7 6 5 6 7 2 7		
7 1 201 1083	16	3478 170 402 16,0	2, 4,0 14,0 105 2, 10, 56,1	22,	743
1 0 6			5 3 5 6	1	
8 1 201 1694	85 72 117	2706 140 368 16,1	1, 2,9 11,1 890 2, 6,9 35,5	17, 90,5 408	
1 0 2			2 1	3	
9 1 201 1450	42 217 342 497	6075 214 543 46,7	3, 5,4 21,5 145 3, 14, 46,3	30, 1015, 825	
1 0 5	8		5 1 6 3	1 4	
1 1 201 1244	39 310 557 859	4411 319 773 74,2	3, 6,4 21,9 171 4, 18, 12,8	32, 8,8 668,2 1482	
0 1 0 9	7		2 5 2 7	1	
4 1 201 1499		2725 211 316	0, 2,6 13,6 921	5,6 4,3 17,	522
2 0 3			3	9	
5 1 201 9123		1597 43		207 3,3	403
2 0					

8	1	201	1268		38				3731	146		2,0	8,0	638		3,6	24,7	12,8		63,0	296	
9	1	201	7623						1308	62		0,3	3,4	241			6,2	4,4			484	
1	1	201	1297		50				7248	219	172	2,1	4,6	16,4	122	3,1	11,5	53,9	25,9	7,1	115,4	2737
1	1	201	1204		2				2360	101		0,7	4,5	373		0,1	7,5	5,1		4,1	578	
1	1	201	1917		7				3757	118		0,2	1,6	7,4	592		3,0	2,5	12,6		13,0	945
2	1	201	8034		63	11			8311	287	11,4	3,1	5,4	20,5	137	3,4	14,5	30,0	0,6	28,15	117,7	3877
2	1	201	1450						1492	43				224			4,4	2,9			1154	
2	1	201	1435						1454	44				226			2,2				882	
2	1	201	1313		6				5712	138		0,3	2,7	11,7	803	2,0	4,9	17,2	15,9		11,2	2714
9	2	201	1190	80	6				1282	126	63	1,6	0,1	1,1	4,7	365	0,8	2,8	3,3		6,6	664
1	2	201	1699	3					76	1				9							47	
1	2	201	1215						1874	50	13		0,2	3,2	263	0,6		3,8			2109	
1	2	201	1104	128					1966	94	63	1,4	0,9	4,8	392	0,9	0,8	8,7			759	
1	2	201	8705						2355	132	72	3,1	1,1	5,9	485	1,1	1,2	0,1			1099	
1	2	201	7675						192	10				0,0							212	
2	2	201	1039		12	24	64		4624	294	155	12,9	1,4	3,3	13,9	102	2,3	9,0	15,8	3,9	248,2	1846
2	2	201	1207	15					36	4											19	
2	2	201	1086						690	18				1,4	128						294	
2	2	201	1150						101	6				0,2							48	

2 2	201 3648	44 44	18		6360	409	82	12,4	1, 4,2	15,4	121	2, 9,7	52,1	60,7	1809		
8	1								0		3	8					
1 3	201 9352	24096	38		7123	284	66	8,0	0, 4,4	15,6	122	2, 10, 11,6	6,3	51,3	1058		
	1	3							9		3	8	7				
2 3	201 1622	55	26	5	2357	92	24	2,8	0, 1,4	5,0	388	0, 3,5	12,4	1,9	41,2	430	
	1	3							7			9					
9 3	201 1009	152	20		3216	231	64	1,2	1,9	8,6	670	1, 3,6	18,6	42,0	615		
	1	2										6					
1 3	201 8370	70	38	14	4294	204	135	12,0	1, 3,3	11,1	863	2, 9,2	10,3	81,7	1475		
0	1								6			0					
1 3	201 1222	365	63	30	245	6887	307	283	19,4	4, 5,6	19,6	148	3, 14, 20,6	5,4	71,9	5285	
2	1	9							3			9	5	9			
1 3	201 1875		56	41	66	91	4602	209	263	10,7	1, 4,0	14,2	111	2, 8,7	28,4	181,1	4106
3	1	3							5			9	6				
1 4	201 1106		18		1972	86	39	2,2	0,8	5,1	354	0, 1,1	0,5	38,8	2100		
8	1	9										8					
1 4	201 1068				128		6										117
9	1	9															
2 4	201 524				104		45			0,6	75						35
0	1																
2 4	201 1084				1472	127	91	2,6	0,8	5,2	428	1, 0,3	8,2				890
1	1	1										0					
2 4	201 9658	21	39		2825	114	59	3,8	1,1	7,2	503	1, 2,2	2,6	117,7	1534		
2	1											1					
2 4	201 8727		26		2174	110	72	4,1	0,9	5,7	468	1, 0,5	5,3	39,1	831		
3	1											1					
2 4	201 1667				57												23
4	1	1															
2 4	201 1725	125			614		14			1,0	101						220
5	1	6															
2 4	201 5692				1134	52	27			2,4	203	0, 3,1	347				
6	1											4					
2 4	201 1159				380		20			0,7	78						98
7	1	9															
2 4	201 1066				1489	60	31		0,1	3,1	261	0, 2,0	357				
8	1	6										6					
2 4	201 1428	147	10		2028	108	115	4,2	1,0	5,9	461	1, 1,2	18,7	37,9	713		
9	1	4										1					

1	9	201	8794	137	66	94	85	224	3122	182	192	6,3		2,1	3,0	221,3	731
6		1															
1	9	201	1287	6763	11	31	68	192	1858	137	61	6,2				168,5	1122
7		1	0		0												
1	9	201	5731	0	16	24		88	1926	123		2,9				328,7	1446
8		1			5												
1	9	201	6223	0	12	40		158	2494	190		3,8		14,2	6,9	221,9	1160
9		1			5												
2	9	201	5443														
0		1															
2	9	201	8132	135	72			134	1368	167		1,2		8,7	12,	86,6	425
1		1													9		
2	9	201	1169	155	64	57	182	440	4356	341	147	13,3		34,1	11,	80,0	6103
3		1	3												6		
2	9	201	6589	30	70	93	200	490	5267	362	221	13,7			14,	145,5	1957
4		1												0,	0		
2	9	201	5019		13	21		304	2102	116		3,5			7,1	294,4	1047
5		1			0												
2	9	201	6694		28	50	44	129	1387	177	48	5,4		7,3		731,7	615
6		1			6												
2	9	201	6876		10	18		94	1290	100	26	3,4		10,7	4,5	310,0	587
7		1			3												
2	9	201	9811														
8		1															
2	9	201	6828	2472	38	101		173	1406	128	184	1,1		24,1	6,8	70,0	835
9		1															
3	9	201	6854		19			24	349	19		0,8				41,6	140
0		1															
1	1	201	1305	254	45	107	70	198	1646	199	217	6,1		18,7		129,6	567
0		1	9														
2	1	201	6446	75	29	28		199	880	88	70	5,5	0,	14,0	5,4	65,0	273
0		1											6				
3	1	201	1202	92	2			23	410	56	98	0,3				10,3	140
0		1	3														
4	1	201	1246	167	21	119	90	267	2889	199	229	5,8		14,6	3,1	32,8	1082
0		1	8														
5	1	201	8136	0	27	159	130	350	2013	200	333	11,8	0,			67,3	1084
0		1											2				

2	1	201	7622		28		30	2192	61		2,2						148,1	608	
3	0		1																
2	1	201	9108		39		37	2086	64			2,6					170,8	1655	
4	0		1																
2	1	201	4787	18	37		38	1610	60	7	0,4	15,6		4,4	117,8	1359			
5	0		1																
2	1	201	7070		72	9	47	1830	60		1,6	0,1		10,	228,8	2265			
6	0		1												1				
2	1	201	5444	53	55		79	1267	54		0,1	13,6		8,3	56,0	488			
7	0		1																
2	1	201	1401	355	38	6	24	51	2367	84	19	2,8		1,4	6,4	0,	5,2	81,3	555
8	0		1												2				
3	1	201	1026									23,9		5,7					
1	0		1	0															
1	1	201	1264					686	45		1,1			9,3		234			
1	1		1	7															
2	1	201	5209				29				0,5		1,0						
1	1		1																
3	1	201	6725	102	50	17	40	1313	85	32	3,4			5,5	114,1	797			
1	1		1																
4	1	201	9275		26	18	27	1149	47	35	2,1	1,0	13,2		17,2	1053			
1	1		1																
5	1	201	7132		21		37	1880	58	38	2,0		0,5	8,5	114,1	287			
1	1		1																
6	1	201	7062		43		20	753	25						157,9	153			
1	1		1																
7	1	201	7235		18	34	28	729	29	24	2,0		17,6	5,8	1119,	310			
1	1		1		7										1				
8	1	201	6540		3			4							3,5	1			
1	1		1																
1	1	201	7612		18		0	323	57	9					48,5	141			
0	1		1																
1	1	201	1124	269	48		41	1577	245	30				4,4	119,7	960			
1	1		1	9															
1	1	201	1193	236	43		42	1681	290			17,0			136,0	1240			
2	1		1	6															
1	1	201	1036		9		188	336	64		0,	16,6		7,2	23,4	173			
3	1		1	5							4								

1	1	201	1107		22		14	2013	139		1,1		7,3	4,6	77,4	817				
4	1	1	0																	
1	1	201	6628	0	43		60	3500	210	35	0,8				52,6	1943				
5	1	1																		
1	1	201	1462		2		1	517	51		0,9				3,2	252				
6	1	1																		
1	1	201	8320		16		30	1125	74		3,0			7,4	17,0	582				
7	1	1																		
2	1	201	5889		11			972	52	1					5,9	331				
3	1	1																		
2	1	201	4865	132	44		5	1720	80					3,2	69,6	275				
5	1	1																		
2	1	201	8963	86	14	10	16	2354	89		0,9		21,6	2,5	12,6	640				
6	1	1																		
2	1	201	8266	206	21	14	27	3461	148		1,3		1,1	6,4	37,6	881				
7	1	1																		
2	1	201	4451	227	97	33		99	2461	332	65	1,7		40,3	10,	284,0	3494			
8	1	1													7					
2	1	201	7574		49		26	832	165	25			14,3		39,8	275				
9	1	1																		
3	1	201	9305	0	55	32	27	78	2895	259	64	1,2		7,7	68,9	847				
0	1	1																		
1	1	201	8304		15	2	6	3	1515	46	5	9,9	2,5	44,5	0,	2,6	8,7	709		
6		2													1					
1	1	201	6906		39	6	15	15	4903	118	13		10,	6,1	54,2	0,	10,	5,3	1378	
7		2											8		4	5				
1	1	201	4518		37	11	31	51	7072	195	28	0,1	21,	13,	54,0	0,	5,3	3,1	41,9	2161
8		2											1	8		4				
1	1	201	2239		33	18	14	29	6324	148	45		0,	2,1	68,4	0,		9,1	65,9	3534
9		2											9		7					
2	1	201	8708		15	6	3	1	973	31	12		17,	6,4	62,7	0,			22,2	150
0		2											9		3					
2	1	201	9494		32	7	6	10	1628	57	6		15,	1,6	56,4	0,	2,6	0,4	567,5	384
1		2											6		1					
2	1	201	2238		63	17	10	21	2984	125	47		21,	5,9	61,0	0,	2,0	5,1	69,0	608
2		2											5		3					
2	1	201	4586		58	10	13	26	2092	94	27	0,	9,8	4,1	31,3	0,		4,1	60,8	494
3		2										4			2					

9	3	201	2891	75	8	14	16	1040	152	13	0,3	6,6	2,7	44,5	0,	1,8	206,2	3431			
			2					1							2						
1	3	201	4684	30	4	11	12	3242	89	10		4,7		26,4	0,	8,6	32,0	1267			
			2												3						
1	3	201	8576	46	6	16	22	2124	81	4		10,	3,0	33,9	0,	2,0	5,0	88,1	1141		
			3									5			2						
1	3	201	9103	29	17	23	43	3152	59	31		2,4			0,	2,2	59,2	2055			
			4												3						
1	3	201	6625	42	9	16	26	949	44	11		3,9	4,1	51,4		4,0	0,2	25,9	331		
			5																		
1	3	201	4207	36	15	19	43	2940	69	34	0,7	0,	1,8	2	1,2	16,5	0,	0,4	64,0	235	
			6									0					2				
1	3	201	6836	11	35	52	125	3645	121	68	2,0	0,	17,		1,8	36,3	0,	3,6	328,4	866	
			9									0					3				
2	3	201	6677	49	32	73	167	4085	178	78	8,6	16,	3,3	58,7	0,	2,1	105,4	1605			
			0									3									
2	3	201	6850	59	267	144	340	3129	193	565	10,9	17,	6,6	41,8		2,8	73,2	615			
			1									1									
2	3	201	6898	61	107	124	295	5943	203	252	10,1	7,5	24	3,0	32,8	0,	3,2	1,6	109,1	1355	
			2													2					
2	3	201	8901	18	25	38	88	1597	61	60	8,9	16,	4,5	55,6	0,	5,5	11,2	161			
			3									7				1					
2	3	201	7953	78	35	114	482	1086	103	133	8,2	1,7	28		30,1	0,	3,5	101,6	204		
			6													0					
2	3	201	8211	24	23	67	206	1394	75	80	6,0	5,5		0,3	36,4	0,	0,5	7,1	304		
			7													1					
2	3	201	7537	40	19	49	117	2268	83	46	2,2	7,9	2,1	0,7		10,	0,9	64,4	556		
			8													6					
2	3	201	8033	69	32	72	192	3259	110	86	2,9	7,5	1,9	34,1	0,	9,2	64,4	763			
			9													0					
3	3	201	5307	3	4	15	24	235	1	6		5,3	3,2	41,6	0,	4,1	3,4	69			
			0													1					
2	4	201	6336	23	26	32	79	2161	57	73	3,7	37,	10,	68,1	0,		32,3	695			
			2									4		6		3					
3	4	201	906	10	41	54	132	3770	85	79	2,1	15,	5,9	51,7		3,1	2,8	387,6	1549		
			2									4									
4	4	201	6935	21	89	184	407	4387	142	160	13,4	0,	5,5	23	5,9	46,8	0,	1,1	2,3	531,1	1988
			2									1					2				

5	4	201	6520	8	4	18	31	341	5	7	1,1	0,3			2,1	37,4	0,	3,2	6,8	104	
			2														2				
6	4	201	3342	15	79	228	538	6333	127	139	11,4	1,17,			5,4	35,8	0,	4,5	95,2	1405	
			2	4								0	4				2				
7	4	201	7705	20	201	661	1520	3276	198	389	38,5	14,	219		3,9	38,7	0,	4,6	237,2	2623	
			2	9								4					2				
8	4	201	7710	22	26	95	232	905	39	67	4,9	15,			3,0	65,0	0,	0,6	43,3	755	
			2									4					1				
9	4	201	8053	29	5	8	11	1617	36	9		3,3			0,1	41,7	0,	4,2	69,7	1404	
			2														3				
1	4	201	6647	13	8	10	18	799	27	19		23,			8,6	65,3	0,	2,0	33,0	618	
			2									4					2				
1	4	201	3820	41	19	26	47	3951	66	54	1,5	11,			10,	4,1	0,	4,3	28,6	3723	
			2									7			0		1				
1	4	201	7254	16	225	586	1336	1961	183	818	63,4	29,			2,5	74,9	0,	7,0	226,5	1615	
			2	2								4					1				
1	4	201	2050	59	78	183	401	1769	64	240	12,2	0,1	124		2,7	38,4	0,	9,4	42,6	1099	
			2														2				
2	4	201	5436	11	138	392	896	1563	148	375	21,4	2,0	323		3,1	36,5		5,9	664,3	389	
			2	2																	
2	4	201	4420	72	125	330	922	283	149	440	32,4	4,4	218		1,5		0,	4,1	254,4	21	
			2														1				
3	4	201	4075		0	3	30	5	0		2,8	14,			9,2		0,			2	
			2									8					2				
1	5	201	5541	73	81	382	930	6728	199	144	28,7	5,4	231		0,9	46,6	0,	6,4	65,3	2380	
			2														3				
2	5	201	7770	72	136	523	1343	5124	212	271	40,0	1,20,	201		7,2	42,6	0,	8,8	289,8	3437	
			2									3	0				2				
3	5	201	7890	37	65	238	604	3599	108	134	15,0	26,			11,	56,9			50,0	2503	
			2									5			3						
4	5	201	3215	69	91	315	780	5249	172	193	18,5	1,11,	85		1,7	7,0	0,	6,4	8,6	105,9	4390
			2									1	0				4				
5	5	201	6195	38	101	226	505	8153	107	190	12,5	4,2	77		0,8		0,	5,1	40,4	2788	
			2														3				
6	5	201	5889	38	199	207	518	7739	108	433	14,6	5,8	120			38,0	0,		50,5	2709	
			2														2				
7	5	201	5560	52	48	151	368	5141	102	104	5,4	7,6	100		3,5	57,4	0,	2,9	1,0	30,8	2120
			2														2				

1 6 201 6519		1	0	3	97	156	3	0		6,4	3,0		0,9	0,		1,4	25	
8 2														4				
1 6 201 3072		75	24	82	229	3098	101	45	5,9	7,6	4,9		2, 3,5	1,7	0,	2,0	216,7 752	
9 2													0		4			
2 6 201 4969		68	34	174	469	5197	135	87	13,3		13,8	175	2,	3,4	0,	7,6	5,3 135,7 2855	
0 2													2		3			
2 6 201 3710		36	108	148	368	3713	87	233	10,7	14,	4,0		3, 11,		0,	2,7	2,6 37,0 2571	
1 2										1			5 8		2			
2 6 201 6424		75	323	289	709	6402	182	644	29,4	7,7	30,4	92	3,	4,5	0,	5,7	5,1 39,6 1818	
2 2													2		3			
2 6 201 3226		19	50	144	386	3053	75	97	12,5	9,5	2,0		1, 3,5		0,	1,9	3,2 964	
5 2													4		2			
2 6 201 5890		21	16	70	199	3258	48	38	4,4	0,5	8,0	3	0,		0,	7,4	6,1 816	
6 2													1		3			
2 6 201 5691		49	24	55	133	2957	34	36	3,4	1,6	8,4		2,		0,	0,1	1,5 23,3 345	
7 2													2		2			
2 6 201 4743		57	115	263	751	4120	125	299	25,8	4,9	6,6	111			0,	1,6	1,3 31,3 1017	
8 2															2			
3 7 201 4989		73	423	580	1382	3677	239	101	40,1	6,0	12,4	325	1,	2,4	0,	7,0	159,2 619	
2 2								5					3		2			
4 7 201 5102		41	270	512	1148	1751	173	642	34,2	1,9	13,9	199	0,		0,	2,1	0,2 58,1 355	
2 2													6		2			
5 7 201 2380	2	14	400	825	2085	6814	381	925	61,7	6,2	33,5	409	1,	7,7	0,	4,7	0,8 275,9 1924	
2 2		4											2		3			
6 7 201 5243		41	272	531	1377	3257	208	584	42,7		17,7	485	2,	1,4	0,	5,7	6,3 37,4 637	
2 2													5		2			
9 7 201 3560		14	114	102	2513	5705	484	281	74,2	0,	13,	19,0	562	2,	3,9	6,1	0,	10, 6,6 78,0 1786
2 2		5	1	9				5		8	1			1		4	1	
2 7 201 4218		18	115	407	1171	2873	202	245	37,6	5,2	5,3	231	0,		0,	0,1	0,1 282,7 436	
1 2		8											6		1			
2 7 201 346		23	233	664	2072	2828	318	638	53,5	13,	13,2	291	4,	7,3	0,0		206,8 329	
2 2		3								2			1		5			
2 7 201 1462	108	87	473	138	3771	5564	667	117	107,	1,	17,	19,6	670	3,	15,	6,3	0,	15, 10, 3363, 831
5 2		9		6				7	9	6	4			4	2	5	9	3
2 7 201 1994	99	53	350	126	3428	4013	564	797	94,3	5,6	40,7	757	4,	1,5	0,8	0,	3,8	8,0 760,3 321
6 2		4		9									0		3			
2 7 201 946	46	24	334	167	4789	3640	665	734	141,	4,	3,1	33,5	995	1,	0,8	0,	17,	5,4 453,6 864
7 2		1		7					8	5				6		5	7	

2 8 201 3219	46 96 314 692 1783 106 166 18,0	11, 9,8	1, 5,4	0, 0,9 0,2 60,0 643
5 2 3		5	0	1
2 8 201	15 16 68 156 945 59 44 5,4	18, 14,3	1, 12,	0, 1,5 2,8 16,2 200
6 2		2	4 5	3
2 8 201	28 37 166 399 2895 174 70 9,8	4,3 72		0, 1,8 18,3 477
7 2				2
2 8 201	70 18 35 96 1634 41 45 1,3	3,6 10,3	0,	0, 8,7 118,8 349
8 2			9	1
2 8 201	82 27 61 171 1358 68 54 5,6	10, 3,3		0, 1,8 134,3 131
9 2		7		1
3 8 201	72 26 90 252 1512 102 72 8,3	8,3 5,6		0, 1,2 0,9 18,2 182
0 2				1
3 8 201	49 22 77 221 1960 146 76 6,8	1,8 8,3	1,	0, 6,4 0,8 70,3 273
1 2			5	2
1 9 201	72 14 37 110 1092 47 19 1,6	10, 5,1	1, 1,8	0, 2,6 165,0 173
0 2		1	1	1
1 9 201	13 22 47 124 1978 108 25 2,2	7,8 21	0,	0, 186,2 502
1 2		7	2	1
1 9 201	13 52 109 263 2474 278 87 5,8	9,0 10,9	0,5	0, 1,7 384,9 606
2 2		3		4
1 9 201	10 19 74 155 3664 189 32 9,6	4,1 12,1	0,	0, 5,6 389,1 1410
8 2		6	7	5
1 9 201	85 93 51 165 364 3818 186 89 12,2	4,5 27,5 55	3,	0, 2,7 5,4 167,5 1565
9 2			3	2
2 9 201	9 11 25 57 1001 37 16 1,7	2,4 5,9		0, 1,4 13,1 250
0 2				2
2 9 201	18 11 51 115 2497 50 25	8,4 23,9	2,	0, 4,1 2,5 13,4 732
1 2			4	3
2 9 201 3332	4 8 18 55 523 44 32 1,0	11, 7,8	2, 1,1	0, 1,4 123
4 2 7		3	6	3
2 9 201 4362	127 15 132 358 860 4494 586 381 24,0	10, 8,1 51	0, 3,8	0, 7,8 5,1 51,7 1078
5 2 9		6	5	0
2 9 201 725	257 11 95 371 878 7326 285 215 25,7	4,8 11,3 167	0,	0, 1,2 9,2 85,3 3022
6 2		5	3	4
2 9 201	3 11 42 212 7 7 1,3	7,3 2,2	0, 1,6	0, 52
7 2			0	2
2 9 201 1296	10 61 238 560 4399 184 107 11,9	2,3 11,0 44	3,	0, 1,2 6,5 78,6 1052
8 2		3	1	3

3	9	201		69	66	291	708	3542	165	114	19,6	1,	4,1	11,2	4			0,	3,1	1,4	62,1	1177	
0		2										1						3					
1	1	201		37	16	82	224	716	5501	316	145	13,8	4,5	8,5	54		1,6	6,2	0,	3,1	8,5	131,6	1642
	0	2			5														6				
2	1	201		400	23	123	378	922	9978	640	222	32,0	6,2	19,9	197	3,	6,9	13,7	0,	5,3	17,	52,1	1350
	0	2			9										4				7		1		
3	1	201		290	20	152	512	1260	9844	496	257	40,0	10,	6,2	186		10,	6,9	0,	1,4	8,2	210,6	4266
	0	2			1								7				7		5				
4	1	201			48	79	341	942	3557	251	123	26,8		11,7	202	2,			0,	3,6	5,1	31,1	761
	0	2													7				3				
5	1	201			45	79	259	594	4844	206	138	17,2	5,0	7,7	52	2,	1,1		0,		3,3	12,6	697
	0	2													1				2				
6	1	201		86	58	273	466	1103	5109	287	526	35,0	11,	9,7	82	2,	6,3	3,4	0,	2,4	7,8	37,4	1056
	0	2											7			4			2				
7	1	201	3797	197	94	88	236	607	4811	600	218	18,9	5,6	11,9	82	1,			0,	2,8	5,0	7,5	338
	0	2	0												4				5				
9	1	201	1058	148	59	66	125	321	3071	148	142	10,4	3,0	4,3	36	0,		2,1	0,	0,8	3,5	53,6	288
	0	2	8												1				2				
1	1	201		204	12	117	218	532	5396	449	283	16,5	1,	6,9	4,9	0,	2,0	50,7	0,	3,3	5,5	146,0	1028
	2	0	2		3								9			3			2				
1	1	201	948	124	19	111	137	300	6853	566	190	7,3	14,	8,5		0,	4,3	2,2	0,			152,1	2231
	3	0	2		1								1			5			4				
1	1	201			72	19	41	104	1854	84	25			8,6	94	1,			0,	3,7		100,2	834
	4	0	2												3				2				
1	1	201	1094		19	43	62	145	2826	174	56	2,4	0,	6,4	3,2	1,			0,			157,3	937
	5	0	2	5	0								5			5			0				
1	1	201	1140	75	21	71	209	436	5149	437	108	14,1	0,	3,7	10,5	2,			0,		3,1	107,9	1333
	6	0	2	3	7								1			7			2				
1	1	201	7651	47	96	45	97	232	3141	123	83	5,6	2,0	11,8	9	2,			0,	3,3	6,6	10,9	753
	7	0	2													6			3				
1	1	201	1208		23	6	21	47	1102	36	10	3,3	7,5	0,8		0,			0,	0,9		49,3	313
	8	0	2	4												3			2				
1	1	201	9804		17	20	43	104	1454	79	40	3,0	14,	3,4		0,	4,8	37,2		2,8		32,4	231
	9	0	2										1			7							
2	1	201	1125	23	52	13	36	158	2604	112	25	2,3	2,8	5,5	11	1,		3,6	0,		4,0	120,3	336
	0	0	2	6												0			3				
2	1	201	1037	307	10	38	87	210	3913	208	60	5,4	4,4	3,0				5,9	0,	1,6	6,4	103,9	379
	2	0	2	2	7														2				

2	1	201	7374		2	1	0		375	13		4,6	7,9	1,		0,	3,8	1,4	5,8	71		
1	1	2												5		1						
2	1	201	8473		35	7	19	32	1770	89	13		21,	18,7		2,7	52,3	0,	1,0	115,7	523	
2	1	2											0									
2	1	201	8029	90	51	16	37	96	3041	160	23	0,8	12,	8,4	1,	4,2	1,1	0,	3,6	107,5	871	
3	1	2											1		5							
2	1	201	7560		16	7	28	43	6745	93	14	0,0	10,	5,6		4,4		0,		64,1	2610	
4	1	2											0									
2	1	201	1984		10	15	35	80	5921	78	23	1,5	13,	6,8	0,			0,	1,9	15,5	1568	
5	1	2											5		1							
2	1	201	2629	51	19	28	60	142	4115	94	49	7,0	3,4	7,2	0,			0,	4,2	15,7	632	
6	1	2	4												6							
2	1	201	1349		94	14	20	47	5283	159	61	0,9	13,	20,5	0,	6,7	9,8	0,	2,2	143,1	660	
8	1	2	4										4		6							
2	1	201	2381		57	23	62	157	1286	63	47	2,2	6,7	7,9	0,			0,	2,9	2,6	133,0	255
2	2	2	0												5							
3	1	201	4865		36	16	2		792	54	21		35,	30,3	7,		195,	0,	19,	62,8	156	
2	2	2											4		1		6		0			
4	1	201	2543		20	4	3	3	1685	81	7		12,	6,6	0,	2,4		0,		22,8	465	
2	2	2	2										1		2							
1	1	201	2443	214	18	2	6	10	3384	97	2	0,2	11,	0,6	1,		54,6	0,	0,0	37,2	2283	
0	2	2	5										4		9							
1	1	201	3604		17	21	9	22	3091	104	40		6,6	18,8	0,			0,	2,9	2,8	69,4	1331
1	2	2													2							
1	1	201	2896		11	29	19	46	2189	78	80	2,0	11,	24,0		5,9		0,	1,0	0,3	17,0	1361
2	2	2	6										4									
1	1	201	4723		1	6	7	10	741	22	9		7,7	26,5	0,			0,	4,2	1,2	1,4	986
3	2	2													6							
1	1	201	1505		4	5	6	14	733	19	15	1,5	6,9	22,3	2,			0,	0,8	1,0	18,8	556
4	2	2	6												8							
1	1	201	2193	104	35	4	14	27	2940	74	13		12,	7,0	1,			0,	1,8	9,0	27,4	1730
5	2	2	0										5		1							
1	1	201	2023		12		0	2	2521	135	0	0,9	9,5	17,4	0,			0,	1,3	32,6	1080	
6	2	2	5												6							
1	1	201	1923		32	2			900	49			9,5	4,9	1,		28,2	0,		23,7	402	
7	2	2	5												2							
1	1	201	1886	6	23	6	28	61	1578	71	12	1,2	3,7		0,	1,2	1,8	0,	0,1	2,1	5,0	441
8	2	2	4												2							

2 1 201 2097	16 3 12 79 2745 78 16	5,9 22,0	1, 1,8 32,8 0, 2,7	236,7 579
5 2 2 5			4 3	
2 1 201 1575	30 1 2	2,8 8,8	0, 0,	6
6 2 2 3			3 2	
2 1 201	43 8 6 14 2453 111 14 1,1	4,6 2,5	1, 0, 0,3	41,9 1660
7 2 2			0 2	
2 1 201 5309	27 7 0 1 3174 146 78	9,5 33,3	1, 58,0 0, 6,1	19,8 1571
8 2 2			7 2	
2 1 201 1438	7 3 9 1448 48 12	10, 12,5	0, 6,1 1,6 0, 1,6 2,9	7,7 1192
3 2		9	3 5	

Ek 4. Kırklareli gnlk Aerosol Konsantrasyonları
(konsantrasyon deęerleri ng m⁻³ cinsindedir)

Blm 2 PM₁₀ fraksiyonu

1	1	201	13310		50			80	2705	200		6,0					22,5		8,3	175,0	1098				
4	1		1																						
1	1	201	13996	37	91			418	4146	284	532	11,8							0,5	112,4	2301				
5	1		1																						
1	1	201	13297		21			218	1072	131		10,4							1,6	33,9	522				
6	1		1																						
1	1	201	13718		103			207	1274	117		8,1								110,6	659				
7	1		1																						
2	1	201	12809		46				2010	100	103									25,6	684				
3	1		1																						
2	1	201	12918		96			21	1905	110										153,2	304				
5	1		1																						
2	1	201	12770		20	24	40	2481	98			2,0							6,3	18,2	674				
6	1		1																						
2	1	201	12755	19754	31			48	139	4024	204	6,9								16,	55,4	1024			
7	1		1																	0					
2	1	201	12810	258	427	195		609	2822	449	578	15,3								13,	1244,	4007			
8	1		1																	7	9				
2	1	201	13121		372			385	1076	246	297								2,2	305,4	356				
9	1		1																						
3	1	201	13027	0	81	82	85	276	3101	332	586	10,7								101,7	907				
0	1		1																						
1	1	201	11750		27	15	39	59	1572	55	51									66,1	16,0	736			
6			2																						
1	1	201	11786		81	33	71	119	5289	144	139		25,4						10,3	92,7	0,	11,2	1487		
7			2																	5					
1	1	201	11760		89	61	128	244	7385	230	242	5,6	40,3						22,3	112,	0,	3,8	99,9	2257	
8			2																	6	7				
1	1	201	12015		115	136	92	192	7019	195	447		35,5						5,8	130,	0,		231,9	3922	
9			2																	2	9				
2	1	201	12054		41	35	18	41	1225	49	127		29,3						10,3	113,	0,		59,8	189	
0			2																	8	3				
2	1	201	11745		62	16	23	52		68	40		32,7						6,6	105,	0,		1089,		
1			2																	7	1		3		
2	1	201	11693		231	79	48	86	3331	149	267		36,1						7,6	115,	0,		10,	253,6	936
2			2																	1	4		2		
2	1	201	11733		176	47	48	116	2558	138	304		15,6						8,4	63,2	0,		6,5	185,0	782
3			2																		3				

2	1	201	12009																
5			2																
1	2	201	12391	72	21	51	140	1525	281	70		19,3		95,7	0,	7,7		173,7	769
4			2					7							6				
1	2	201	12636	38	22	21		4174	60	73		18,8	2,3	81,3	0,			61,2	1654
5			2												2				
1	2	201	12472	68	14	65	113	9640	226	31		20,9			0,		1,5	140,3	2823
6			2												1				
1	2	201	12392	21	29	100		2122	52		16,0	37,6	5,5					29,1	1092
7			2																
1	2	201	12376	43	25	54	92	4867	79	68		38,6	10,9	117,	0,			40,6	280
8			2											7	4				
1	2	201	12718	93	46	62	116	6064	99	194		13,1					0,6	119,4	1776
9			2																
2	2	201	12448	125	126	140	379	4453	118	671	10,3	13,7			0,	8,9		268,4	2846
0			2												2				
2	2	201	12296	86	27	66	341	9995	153	163		32,9		180,	0,	14,7		94,1	461
1			2											3	3				
2	2	201	12197	50	485	207	495	1860	116	1468		25,2	11,5	67,1	0,	1,6		54,8	374
3			2												2				
2	2	201	12505	171	31	49	97	1107	64	54		26,4	13,1		0,			216,1	259
7			2												2				
2	2	201	12315	79	47	85	196	3192	119	670	2,7	25,9		101,	0,			155,0	227
8			2											9	6				
2	2	201	12666																
9			2																
1	3	201	12237		31	45		520	30			16,4		92,7	0,	8,9			177
			2												2				
2	3	201	12160	66	66	63		1074	48	243		8,2		88,0	0,	4,9		90,1	160
			2												6				
5	3	201	11530		99			397				32,0	8,7	81,9	0,				290
			2												3				
6	3	201	11400	306	151	118	280	3247	118	434				65,2				405,4	1784
			2																
7	3	201	11205	315	56	38	60	4726	94	54		46,3	15,1	122,				456,0	570
			2											6					
8	3	201	11578	294	58	55	139	5642	114	77	5,1	34,4	7,2	95,7	0,			251,2	2726
			2												1				

9	3	201	11563	334	54	43	75	1116	176	86				21,1		3,8	74,1			916,7	3684	
			2					7														
1	3	201	11082	79	21	39	50	3484	102	47				6,8			56,4	0,		85,3	1362	
			2															5				
1	3	201	11369	148	29	50	81	2223	97	45				25,5		3,5	80,6	0,		285,6	1194	
			3															2				
1	3	201	11342	86	144	128	265	3654	105	450				22,4				0,		176,4	2382	
			4															5				
1	3	201	11659	113	27	44	70	981	57	44				5,3			95,9			70,2	342	
			5																			
1	3	201	10068	166	130	148	354	3560	133	435	11,9	0,5	8,0		37	3,8	39,3	0,	2,1	295,4	285	
			6															2				
1	3	201	10457	519	287	313	793	4455	265	837	21,6			21,4						6,5	1540,	1059
			9																		2	
2	3	201	10330	197	222	386	1007	4659	328	913	32,8			31,2		11,4	106,	0,	6,2	421,7	1364	
			0														1	7				
2	3	201	10228	207	1282	743	1886	3612	449	4131	62,1			32,4		11,1	42,7	0,	8,4	255,9	710	
			1															0				
2	3	201	10380	149	441	465	1220	6389	350	1390	35,6			36,2		13,8	118,	0,	6,8	268,0	1871	
			2														9	3				
2	3	201	10902	124	308	498	1323	2078	259	1308	44,8			34,4		10,6	106,	0,		75,7	209	
			3														8	2				
2	3	201	10701	339	151	375	1368	1206	228	550	30,0			13,1	40		67,2	0,	4,3	439,7	227	
			6															0				
2	3	201	10988	81	134	398	1193	1610	236	593	35,3			17,6		2,5	89,6	0,	4,4	23,5	351	
			7															2				
2	3	201	10945	125	120	243	666	2446	158	471	17,3			28,2		10,3	60,4	0,		199,6	716	
			8															2				
2	3	201	10290	460	238	431	1182	3797	278	710	30,8			14,5		5,6	81,1	0,	10,9	431,3	889	
			9															1				
3	3	201	10088	57	62	230	582	524	69	354				15,7			88,6	0,	6,4	75,2	154	
			0															1				
2	4	201	10170	51	93	106	305	2278	93	366	6,4			44,4		11,1	121,	0,	0,2	72,7	733	
			2															4				
3	4	201	9727	533	259	254	626	4278	184	746	13,6			19,8		7,4	100,	0,	10,6	2018,	1757	
			2															8	1		2	
4	4	201	9606	905	397	523	1206	4977	281	994	55,1	2,0	9,1		153		79,2	0,	4,2	2262,	2255	
			2															3			7	

3	9	201		213	215	947	2457	3879	386	559	73,9		20,2	41,0	147			0,	3,7	2,9	190,8	1289	
0		2																6					
1	1	201	232	748	443	1020	2828	6439	650	1091	81,5		12,7	25,2	491		3,8	52,0	0,	6,7		596,7	1921
	0	2																9					
2	1	201	629	633	469	1271	3293	1116	976	1189	98,0		24,0	54,7	486	4,7	11,6	79,9	0,		25,	138,1	1511
	0	2						4										9			8		
3	1	201	395	347	284	922	2352	1020	648	607	74,0		22,9	33,5	286				0,			362,6	4423
	0	2						8										6					
4	1	201		172	326	1375	3835	4331	623	808	119,2			40,8	844				0,	10,7	8,1	110,7	927
	0	2																5					
5	1	201		131	239	771	1889	5440	407	687	53,8		16,8	14,0	174		1,2		0,		4,4	36,9	783
	0	2																6					
6	1	201	322	142	843	1470	3959	5572	732	2415	121,1		27,0	47,8	578	3,3	11,8		0,	5,9	10,	91,7	1151
	0	2																4			9		
7	1	201	425	203	438	1159	3009	5660	102	1399	87,6		16,6	25,8	453				0,	4,9	9,9	16,2	397
	0	2						2										8					
9	1	201	294	264	416	770	2093	3620	435	1331	70,0		7,8	19,1	490	0,4		6,4	0,	7,9	6,3	241,2	340
	0	2																3					
1	1	201	502	374	753	1353	3467	6578	966	2629	114,8	2,1	17,6	43,8			9,0	86,2	0,	13,4	11,	445,0	1254
	2	0	2															5			9		
1	1	201	251	724	667	767	1836	7750	858	1450	49,2		20,8	25,0				2,8	0,			576,7	2523
	3	0	2															7					
1	1	201		582	222	331	858	2264	260	449				38,0		3,0			0,		2,2	813,8	1018
	4	0	2															2					
1	1	201		879	283	280	707	3403	326	515	16,6		17,8	24,3		1,9			0,			729,3	1129
	5	0	2															3					
1	1	201	182	751	326	665	1613	5980	674	771	45,5		20,2	20,2					0,			373,6	1548
	6	0	2															6					
1	1	201	89	496	196	318	839	3541	260	523	22,2		9,2	15,5	39				0,	3,4		56,5	849
	7	0	2															5					
1	1	201		325	74	115	322	1317	107	107	10,1		12,9	4,4					0,			697,8	374
	8	0	2															5					
1	1	201		87	108	223	628	1771	174	275	14,8		16,1	15,3					0,			161,4	281
	9	0	2															0					
2	1	201	94	305	117	241	662	3408	243	291	15,0			15,5	182			4,0	0,		5,8	700,3	440
	0	0	2															4					
2	1	201	440	414	256	558	1458	5203	450	640	36,7		14,9	26,8				58,9	0,		9,1	403,4	504
	2	0	2															5					

2	1	201	65	29	57	171	3266	117	113		14,7	24,8	0,	2,4	959,6	2507
5	2	2											4			
2	1	201				793	83	78			15,5	14,1	0,		708	
6	2	2											3			
2	1	201	322	68	44	87	3320	209	101	1,8	15,7	6,3	0,	317,0	3536	
7	2	2											3			
2	1	201	131	40	20	34	4630	236	121		23,3	33,9	0,	96,4	4233	
8	2	2											4			
2	1	201	11		13	20	2254	74	55		16,8	20,1	0,	11,9	767	
		3											8			

Ek 5. Trabzon (Torul) gnlk Aerosol Konsantrasyonları
(konsantrasyon deęerleri ng m⁻³ cinsindedir)

Blm 1 PM_{2.5-10} fraksiyonu

4	5	201	6951	72	19	104	240	601	392	111	501	11,5	8,0	1,1	58,2	0,0	43,4	222
5	5	201	11391	115	23	149	390	907	292	183	1316	20,7	27,3	8,5	60,7	0,0	36,6	80
6	5	201	2052	39	13	43	145	448	127	77	217	7,2	44,3	11,8		3,8	25,0	56
7	5	201	10326	174	38	106	311	853	416	161	553	19,9	9,3			0,1	65,4	310
8	5	201	5970	103	44	96	308	843	461	133	540	20,2	7,7	23	0,3	23,4	48,5	211
13	5	201	14240	216	24	389	723	1992	455	269	1758	52,7	9,8	9,6	384	0,3	25,6	930
14	5	201	29795	4327	78	287	696	1986	1015	550	2076	233,2	90,7	353,	938	8,9	2378,	359
15	5	201	211	42		13	32	126	27	31	129		14,0	21,8	3,9	0,3	1,4	9
16	5	201	3662	85	19	38	99	280	65	41	367	5,4	2,9	9,5	60	0,9	34,1	23
17	5	201	5969	111	30	70	177	462	255	136	517	10,3	12,2	4,8		2,8	65,9	106
18	5	201	15163	204	94	301	702	1813	610	232	2318	56,0	9,4	12,4	355	0,3	206,5	261
19	5	201	9529	149	41	211	511	1276	340	162	1234	30,7	4,8	13,3	262	1,6	41,4	172
20	5	201	7041	102	23	147	303	795	187	144	692	20,9	5,1	5,4	157	1,1	17,9	63
21	5	201	3450	61	8	39	88	294	24	61	262	3,3		3,2	62		2,4	4
22	5	201	7223	147	48	169	361	953	260	156	1098	20,6		13,3	290		90,7	130
28	5	201	3948	75	29	47	127	319	219	81	281	5,9	0,8	9,2	4	0,4	0,6	132
29	5	201	9226	178	48	198	598	1411	351	174	895	40,1	6,0	31,8	283		2,7	170
30	5	201	10932	172	32	223	539	1405	292	203	1127	33,6	4,3	34,0	285	1,1	2,3	91
31	5	201	1652	29		14	71			17	53		6,8	24,6		0,4	0,1	

1	6	201	4140	83	4	23	61	160	76	66	320	2,0	1,3	11,6	36	1,3	0,	0,	1,4	10,9	36		
		2															1	6					
2	6	201	2629	36	2	20	66	169	73	39	197	2,6	3,5	8,4		1,1	1,8	0,	0,	5,0	42		
		2															2	8					
3	6	201	8537	121	49	94	289	757	317	140	769	16,0	4,4	8,0	143	0,5	3,6	0,	3,	105,9	186		
		2															1	2					
4	6	201	8045	98	40	88	277	725	283	124	740	17,0	5,3	7,8	139	1,3	2,0	0,	5,	1,9	43,9	273	
		2															1	7					
5	6	201	11139	89	38	67	209	642	304	147	553	11,8	13,9			0,5	1,5		2,	3,7	46,2	157	
		2																2					
6	6	201	7453	127	10	81	226	589	248	117	519	18,0	11,8	2,7			2,0	39,5	0,	2,	239,1	140	
		2			0														0	7			
7	6	201	3337	58			18	56	22	34	48	1,0	5,6	5,7					0,			9	
		2																	1				
15	6	201	10902	143	94	114	307	848	571	156	621	16,8	5,4	11,3	92	1,1			0,	1,	2,1	137,7	130
		2																	0	5			
16	6	201	8419	114	29	107	285	864	488	150	447	16,2	3,7	12,4	117				0,		455,5	241	
		2			4														3				
17	6	201	4475	58	11	52	140	391	112	70	266	8,8	4,4	7,0	57				0,	3,7	299,6	50	
		2			5														1				
18	6	201	7120	105	81	83	288	831	194	137	538	15,9	7,1	30,4	85				0,	1,9	264,9	72	
		2																	3				
19	6	201	5978	72	93	63	201	515	161	84	381	9,2	9,2	3,4			2,1		0,		117,2	43	
		2																	1				
20	6	201	12373	116	15	108	378	1003	389	157	630	21,2	0,1	13,9	329				0,		140,6	140	
		2			7														2				
21	6	201	6609	84	62	81	276	676	251	116	830	12,7	4,2	10,7	88			31,8	0,		154,0	71	
		2																	2				
22	6	201	8873	126	12	146	418	1085	336	163	789	24,8	2,5	12,1	295			19,3	0,	1,4	151,3	107	
		2			5														2				
23	6	201	12611	142	11	171	487	1244	372	194	1011	37,2	15,3	11,2	82		4,9		0,	5,	173,2	155	
		2			6														0	6			
24	6	201	5203	56	8	20	62	231	67	47	952	6,9	5,9	23,7			0,3	10,5	0,	9,	16,7	27	
		2																	1	3			
6	7	201	8369	109	67	75	217	575	270	98	471	8,9	2,5	10,4	102				0,	1,	2,0	360,0	95
		2																	3	4			
7	7	201	20334	56	18	48	146	394	173	65	278	7,6	2,3	10,0					0,	0,	0,3	133,8	287
		2																	1	9			

3	8	201	7286	125	11	156	367	959	411	154	922	26,1	5,3	10,9	151			0,2	0,1	135,5	128		
4	8	201	22007	70	74	60	149	386	210	68	346	7,3	10,2	6,5		1,5	0,6	0,2		153,8	78		
5	8	201	26827	68	85	67	154	449	200	72	322	8,1	6,0	11,4	4			38,4	0,1	180,8	80		
6	8	201	5244	119	65	115	297	754	317	114	621	13,2	4,3	10,8	146			0,1		115,8	147		
9	8	201	48837	122	97	145	400	1159	410	161	705	23,1	8,4	9,8	135			0,2	0,5	430,2	325		
10	8	201	7866	79	52	70	263	624	267	97	431	14,1		13,3	206	1,1		0,2	3,1	66,7	110		
11	8	201	16765	106	79	110	363	853	410	142	803	18,8	4,3	12,5	130	0,3		0,3	3,4	2,0	121,6	154	
12	8	201	17341	80	64	90	292	731	308	115	557	13,3	4,3	34,2	93	0,7		0,2		4,0	160,4	166	
13	8	201	35457	51	40	31	79	209	117	37	212	5,0	13,2	3,5		1,8	9,0	65,1	0,3		177,8	40	
14	8	201	5837	35		19	63	161	56	30	146	3,0	6,7	8,4				0,1			16		
15	8	201	2932	28	13	30	97	227	98	38	247	3,0	3,1	3,8				0,1		40,0	83		
16	8	201	5716	67	69	65	210	519	690	91	436	13,1	2,7	15,3	58			13,0	0,0	197,8	238		
18	8	201	24540	458	46	337	114	2791	1658	520	2228	72,3	1,3	5,1	25,5	807		40,0	0,3	4,1	3,0	1493,2	2051
27	8	201	14705	175	87	204	678	1661	505	250	1551	38,6	5,9	38,3	338			0,1		195,1	157		
28	8	201	8747	81	87	56	193	489	238	69	436	10,6	7,8	7,3				0,2	4,1	401,8	81		
29	8	201		56	10	48	133	361	76	56	355	6,2		5,9	63	0,2		0,3	8,5	392,9	16		
30	8	201	5650	57	43	65	214	518	57	80	508	10,6	6,8	27,1				0,2	1,1	96,7	35		
31	8	201		46	16	50	177	545		79	384	8,0	2,1	13,4	101	0,3		0,2		85,9			
1	9	201	1675	109	42	54	144	393	416	68	387	7,3	13,7	4,5			6,1	0,2	0,9	42,7	160		

2	9	201	19366	76	53	62	158	416	265	71	432	8,9	10,4	6,9			3,0	0, 2,	35,2	243		
			2	2														1 2				
3	9	201	3661	102	37	66	181	482	232	73	461	8,3		8,0	143			0, 1,	0,3	69,9	181	
			2															1 7				
4	9	201	10624	112	66	130	414	984	346	139	819	20,1	4,3	34,3	114			0,	0,5	142,7	81	
			2															1				
5	9	201		82	46	78	265	661	183	99	500	12,7	6,3	1,5	47	0,2		0,	1,0	273,5	78	
			2															1				
6	9	201	13608	242	11	169	570	1423	612	240	1353	29,3	5,2	17,5	337	0,5		0,		381,9	286	
			2		9													2				
9	9	201																				
			2																			
10	9	201	3911	76	10	48	159	394	260	69	365	5,3	12,4	24,1		0,9		0,		114,0	102	
			2		8													1				
11	9	201	30326	83	19	29	88	234	70	39	341	2,6	12,3	11,3		0,2		0,		65,5	29	
			2															1				
12	9	201	10579	114	61	117	277	684	304	102	1045	16,5	7,1	24,8		0,3		0,	5,	3,3	196,0	224
			2															4 4				
13	9	201	9456	164	93	188	459	1141	474	161	1438	27,2	8,1	12,5	162			0,		149,7	231	
			2															1				
14	9	201	9281	154	99	163	394	1065	347	148	1187	25,5	3,1	15,7	197	1,0	2,5	23,6	0,	3,3	244,9	211
			2																2			
15	9	201	14544	69	41	67	247	658	105	95	507	14,2	1,9	10,7	107	0,2			0,		112,3	54
			2																1			
16	9	201	13156	217	11	220	893	2216	294	353	1597	64,6	15,1	37,6	367	2,6	3,9		0,	2,	123,3	152
			2		5														3 7			
17	9	201	6680	128	73	125	463	1115	251	155	744	21,8	5,3	30,5	128	0,0			0,	3,0	203,4	109
			2																3			
18	9	201	9485	146	71	135	484	1199	324	175	975	23,3	1,0	38,9	254				0,		106,8	124
			2																2			
19	9	201	13219	135	75	151	493	1616	377	185	1007	30,3		14,1	516	0,3			0,		243,8	337
			2																3			
20	9	201	2431	40	3	17	55	164	101	23	158	3,6	17,7	2,0			12,1		0,	2,	4,3	92
			2																1 6			
21	9	201	6296	90	66	87	246	685	510	120	615	13,5	0,9	8,8	214	0,0			0,		161,0	308
			2																1			
22	9	201	6187	97	12	19	55	222	214	52	389	1,4	0,1	8,8	24				0,		37,5	116
			2																0			

23	9	201	3811	51	13	35	61	198	251	38	212	3,7		9,4	170	2,0		0,4,	281,3	267	
		2			0													0	3		
24	9	201	5062	60	60	40	112	303	150	53	592	5,0	4,6	6,3			27,8	0,	189,4	51	
		2																3			
25	9	201	3902	63	21	45	168	432	120	72	663	8,9	7,4	6,8				0,	24,2	92	
		2																2			
26	9	201	2033	4			36	160	58	13	101		11,2	6,2		2,0	3,1	0,		20	
		2																2			
27	9	201	4832	74	27	52	187	447	152	61	479	10,1		15,3	146	1,9		0,2,	56,5	29	
		2																1	9		
28	9	201	3154	41	14	31	116	266	10	41	269	5,2	2,8	23,8		1,2			15,3	3	
		2																			
29	9	201	9030	87	73	134	489	1173	334	182	1350	28,0	0,1	17,8	322	0,4	2,2	0,2,	0,7	43,3	156
		2																2	2		
1	10	201	7629	113	42	105	390	910	136	141	923	19,9	6,8	25,1	97	0,5		0,	2,6	52,1	40
		2																2			
2	10	201	16072	246	87	265	846	2028	754	313	2176	49,4	5,8	15,5	464	0,6		0,	2,9	157,6	192
		2																2			
4	10	201	5156	76	11	74	196	501	159	76	643	11,1	9,4	7,0		0,5	2,1		0,2	8,7	53
		2																			
5	10	201	6047	98	82	87	263	621	454	90	521	15,8	1,1	29,1	73	0,8		0,2,	0,9	239,0	644
		2																1	6		
6	10	201	10662	59	11	168	459	1134	494	173	1020	30,8	12,5	3,6	108		1,8	0,5,	1,9	16,2	139
		2			7													2	5		
7	10	201	18515	322	75	616	125	3246	970	341	2960	81,3	9,3	19,3	666	0,8	0,0	0,	1,4	119,4	155
		2				1												2			
8	10	201	12401	254	30	268	514	1438	460	161	1313	29,2	4,0	9,3	246			0,6,		16,3	157
		2																0	2		
9	10	201	3454	96	4	24	53	157	89	65	278	4,2	2,5	8,6				0,		6,2	35
		2																0			
10	10	201	6866	110	73	113	216	591	405	94	844	15,0	2,8	4,0	136		2,2	0,		146,6	226
		2																1			
11	10	201	8737	132	37	192	392	1027	369	141	1008	28,0	10,9	9,1	87		2,2	0,		660,6	87
		2																0			
12	10	201	2953	60	13	22	65	170	109	36	340	0,7	10,3	18,9		0,5		0,5,		30,2	6
		2																3	9		
13	10	201	1819	24	3	15	57	132	25	28	267	2,6	3,4	2,4				0,		2,8	6
		2																2			

15	10	201	5982	104	4	35	95	222	121	41	569	3,3	8,9	21,5	0,1	6,4	19				
		2													2	8					
16	10	201	5040	73	12	37	109	307	92	48	430	4,6	6,4	6,2	0,4	1,8	10,3	12			
		2													1	4					
17	10	201	8314	132	68	99	357	818	196	133	1355	23,0	5,5	33,0	93	0,1	93,8	101			
		2													3						
18	10	201	8013	122	19	118	352	870	410	128	888	24,0	18,1	4,9	6,6	0,1	395,5	120			
		2			1										2						
19	10	201	2956	72	18	35	112	285	25	43	389	5,2	5,5	33,3	0,4	19,1	35				
		2													3	2					
20	10	201	8619	144	29	204	494	1224	592	171	1711	33,9	11,6	7,2	148	0,3	2,0	318			
		2													1	0					
21	10	201	23339	284	44	501	101	2758	1048	277	2463	71,0	2,1	34,0	667	0,1	3,7	95,0	670		
		2				1									3						
22	10	201	6273	67	11	115	233	578	274	71	702	16,4	1,9	4,3	112	0,2	10,6	16			
		2													1	8					
24	10	201		39	18	36	83	223	117	31	203	2,4	7,6	8,7	0,4	0,4	0,1	11,5	41		
		2													3						
25	10	201	18878	94	17	36	88	341	203	38	139	4,2	0,6	9,0	10	0,2	18,9	41			
		2													2	6					
26	10	201	2434	73	7	22	59	142	134	40	148	1,5	6,0	7,8	0,5	0,3	3,5	13,9	88		
		2													3						
27	10	201	6729	52	17	35	174	458	71	63	276	8,4	7,1	29,7	8	0,3	1,2	0,1	2,1	18,5	3
		2													1						
28	10	201	5514	71	30	47	183	468	139	70	352	10,8	0,5	10,7	129	0,4	58,1	10			
		2													3	9					
29	10	201	7538	133	41	112	393	913	244	131	734	19,6	7,1	10,5	59	0,1	51,9	57			
		2													1						
30	10	201	7476	144	95	117	332	803	351	119	1107	16,1	0,5	13,9	145	0,1	122,4	103			
		2													2						
31	10	201		110	26	106	304	752	265	99	745	19,8	14,1	3,0	0,4	23,8	72				
		2													2	4					
1	11	201	8136	112	32	86	251	622	342	123	918	19,0	5,9	13,6	80	0,1	0,3	42,1	188		
		2													2	2					
2	11	201	10436	160	73	186	501	1247	579	176	1743	30,9	8,0	32,5	157	0,1	2,4	62,1	280		
		2													2						
3	11	201	4070	112	58	86	254	577	364	109	434	13,0	15,9	8,0	2,9	1,4	158,7	120			
		2													2						

4	11	201	6734	111	68	91	305	710	272	112	646	11,6	9,8	6,3				0,2	135,2	199		
5	11	201	9739	144	60	118	343	851	350	130	1312	18,3	8,5	25,4	62	0,5	1,1	0,1	0,9	53,8	120	
6	11	201	9349	161	38	123	360	867	662	135	2272	20,0	4,9	8,4	149	0,1	1,4	0,1		16,2	313	
7	11	201	24025	109	34	89	277	715	241	116	1135	19,7	12,4	29,4		0,3		0,2		60,8	19	
8	11	201	346	31	3	14	50	137		30	164	11,1	7,8	4,9			42,2	0,2	1,4	4,3		
9	11	201	5531	142	10	55	158	346	241	80	363	5,0	10,5	13,8		0,9		0,1	3,6	2,6	13,0	36
11	11	201		47	9	27	74	199	86	53	179	8,1		12,8	110			0,6		9,8	34	
17	11	201	22417	140	74	201	679	1469	1042	317	2847	37,1	15,8	34,5	126	0,2	1,0	4,8	0,3	117,9	806	
21	11	201	20381	29	48	68	255	674	343	128	738	26,5	6,0	2,0	56			35,4	0,1	181,3	141	
22	11	201	24266	218	32	49	160	476	317	107	552	7,9	0,2	8,6	126			0,3		30,0	74	
23	11	201	4915	53	4	25	85	196	65	36	372	6,1	3,4	9,7			29,1	0,2	2,2	12,5	16	
24	11	201	10463	23	11	25	85	255	23	66	352	2,1	13,4	29,8			1,8	1,6	0,2	6,8	2	
25	11	201	3684	32			46	92		32	129	0,5	1,4	10,3	39	0,2		0,0				
26	11	201	4138	20	2	16	55	108	7	33	163	2,8	4,4	21,4				0,0	5,1	2,4	2	
27	11	201	2925	24			26	57		13	181			9,8				0,1				
28	11	201	1394	38		16	34	79	44	19	219	10,9	5,2	23,7		0,4	31,1	0,2			35	
29	11	201	1901	25	3	21	43	101	69	20	281	2,2	14,3	20,3				0,2		2,0	15	
30	11	201	22809	84	5	33	74	210	94	35	622	3,6	5,7	22,7				0,0		6,6	28	
1	12	201	18101	97	19	50	171	494	137	58	636	10,3	2,0	9,6		1,6		0,0	4,1	1,8	15,8	42

2	12	201	11884	133	32	86	383	960	141	105	614	24,2	2,5	7,3	134	0,	1,9	81,2	64
		2														2			
3	12	201	8937	12			45	131		16	46	1,0	10,9			0,			
		2														1			
4	12	201	35287	16			16	110	19	13	101		4,6	8,8		0,	5,	0,7	9
		2														1	9		
5	12	201	9176	23			23	132	43	15	197		12,7	1,0	0,5	0,			8
		2														2			
21	12	201	1727	29			17	36	7	17	215		4,2	8,9	1,3	0,	1,0		6
		2														0			

Ek 5. Trabzon (Torul) gnlk Aerosol Konsantrasyonları
(konsantrasyon deęerleri ng m⁻³ cinsindedir)

Blm 2 PM_{2.5} fraksiyonu

Dy	Mo	Yr	mass	BC-IR	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V
5	3	2011	250						448	48	122		
6	3	2011	8594						1423	65	165		
7	3	2011	15199						681	47			
8	3	2011	15714	309	6	28			1493	114	322		
9	3	2011	23079		8	56	185	464	590	193	1704	140,4	9,5
10	3	2011	8998	342					306	54	381		
11	3	2011	4730										
12	3	2011	6842	66					1195	52			
13	3	2011	14816						1071	59			
14	3	2011	6675						736	67	156		
15	3	2011	8839		1	4			704	60	185		
16	3	2011	5062						896	67	121		
17	3	2011	11987	332	33	83	264	441	2057	184	549	49,9	0,9
18	3	2011	12308	230	38	85	304	613	3079	226	480	49,9	2,0
19	3	2011	19183	316	4	11	50		2921	106	116	9,3	
20	3	2011	14325		2	11	44	95	2434	131	127	8,7	
21	3	2011	5788						469				
22	3	2011	14627	108					353				
23	3	2011	19318						1953	56			
30	3	2011	11711						2082	69	169		
31	3	2011	7545						1073	61	95		
1	4	2011	16150						2033	117	245	16,0	
2	4	2011	24216		17	405	1146	3210	1444	448	3049	466,3	11,7
9	4	2011	1066						137				
10	4	2011							490	44			
11	4	2011	2050										
12	4	2011	1980						226				
13	4	2011	7751		2	1			1547	58	155		
14	4	2011	24366		156	363	1136	2206	4368	283	1165	166,4	7,0
15	4	2011	15018	113	99	310	720	1334	2141	239	1580	143,4	6,2
16	4	2011	7990						556	45			

Dy	Mo	Yr	mass	BC-IR	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V
17	4	2011	7384	109					613	46			
18	4	2011	21849		28	150	651	1640	1303	387	2169	296,4	11,2
19	4	2011	24923	222	30	234	844	2208	678	373	2960	397,5	12,3
20	4	2011	8641	251					1009	78	187		
21	4	2011	6478						517	42			
22	4	2011	8262						549				
23	4	2011	6748	13					554	61			
24	4	2011	6163					91	297				
25	4	2011	15501	417					261				0,1
26	4	2011	13979					186	259				0,3
4	5	2011	17643	629	55	150	488	1247	1263	132	426	28,4	
5	5	2011	5134	741				357	221				
6	5	2011	2729					86	160				
7	5	2011	4713		7				45				
8	5	2011	10864	563					212				
9	5	2011	29507	503				358	688				
8	7	2011	6046	77	12	14		130	977	39	123		
9	7	2011	11292	241	47	86	234	681	1930	140	688	16,3	
10	7	2011	14127	101	19	14		152	3025	82			
11	7	2011	7829	235	8			141	1143	34			
12	7	2011			16	13		144	1611	47			
13	7	2011	368										
14	7	2011	6233		9			192	748				
15	7	2011			5			66	519				
16	7	2011		1	31	13		150	1613	57			
17	7	2011	10933	512				150	1179	65			0,2
18	7	2011	19734	1025	93	111	255	718	2762	183	312	13,1	
19	7	2011	11380	58	20	20	62	204	1987	53			
20	7	2011	14509	289		19	97	449	1451	136	456	19,5	
21	7	2011	8461	391	40	155	337	916	2370	143	419	21,4	
22	7	2011	12240	116	52	50	189	914	849	82	168	10,9	

Dy	Mo	Yr	mass	BC-IR	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V
24	7	2011	9915	468	32	24	81	282	1393	55	99		
25	7	2011	15188	432	1	9	103	357	1788	129	249	20,0	1,0
26	7	2011	17064	596	14	30	213	825	2398	235	821	48,8	
27	7	2011	19895	529	4	17	119	527	2610	168	444	30,0	0,7
28	7	2011	15376	353				296	1784	125	217	11,9	
4	8	2011	6084	113	16	15		119	855	39	100		
5	8	2011	6315	68	16			86	842				0,4
6	8	2011	2252		5			34	82				
7	8	2011	7123		13	12		177	739	44	93		
8	8	2011	7249	403	15	16		254	1212	64	92		
9	8	2011	8772	277	18	21	86	223	1384	82	125		
10	8	2011	10090	159	20	32	135	309	1564	106	205		
11	8	2011	11406	307	23	35	115	308	1893	117	198		
12	8	2011	4055		17	15		99	871	50			
16	8	2011	13600	320	53	35	99	291	3263	171			
17	8	2011	17710	113	64	60	177	520	2665	184	159	11,2	
18	8	2011	13979	183	43	32	112	431	3254	137	100		
19	8	2011	12305		37	17		183	3058	90			
22	8	2011	7752		20	5		117	1478	56	50		
23	8	2011	7487	285	32	11		131	1131	73			
24	8	2011	7581	49	21	12		131	1377	71	106		
25	8	2011	10237	102	19	9		151	2041	73			
26	8	2011	11711	117	33	12		205	2288	99			
11	11	2011	2025					111	172				
14	11	2011	2848	13				99	182				
15	11	2011	7295	558	7	11		96	745	57			
16	11	2011	2705	160					121				
17	11	2011	4378	292	3				239				
18	11	2011	2344						51				
22	11	2011	5911	170	10			70	792	44			
23	11	2011	7795		12	5	13	297	1161	26	19		

Dy	Mo	Yr	mass	BC-IR	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V
24	11	2011	4684		43	10	7	91	655	25	16		
25	11	2011	6339	69	34	14	28	64	751	50	77	0,5	
28	11	2011	6981	437	18	12	33	107	933	60	82		
29	11	2011	5135		72	10	14	85	787	91	33		
30	11	2011	8152	875	50	16	31	96	926	101	61	11,9	
14	4	2012	5858		18	43	100	454	931	36	171	3,1	
15	4	2012	3243		9	35	87	269	465	22	98	4,1	
16	4	2012	3207		14	19	67	225	591	26	64	2,1	
17	4	2012	4263		43	45	120	329	912	49	182	6,1	
18	4	2012	8931	28	67	151	502	1230	875	125	542	30,2	
19	4	2012	10387		6	5	27	2134	341	12	44	12,6	
21	4	2012	7624		62	57	162	398	1670	74	232	10,5	
22	4	2012	1510			8	17	57	164	6	14		
23	4	2012	4971		24	26	64	346	887	36	93	1,4	
28	4	2012	5590		19	50	188	413	961	56	143	15,6	
29	4	2012	10350		48	101	317	736	1893	119	378	18,4	
30	4	2012	8140		37	57	198	452	1938	112	210	10,9	
1	5	2012	9551		41	55	195	456	2581	121	222	9,7	
2	5	2012	16228		73	155	445	1105	3793	227	728	30,2	
3	5	2012	2355	81	31	223	520	1263	1208	122	535	38,8	
4	5	2012	6854		11	63	157	397	1641	47	157	10,4	
5	5	2012	7337		8	65	156	390	1032	59	199	9,7	
6	5	2012	9893		31	44	134	340	3221	100	94	8,3	
7	5	2012	7854		22	39	110	289	2384	78	98	5,7	
8	5	2012	7906		21	35	104	268	2892	83	100	5,0	
13	5	2012	8986	150	4	88	175	1342	468	44	255	9,8	
14	5	2012	303832	10313	474	1771	4457	11523	78790	2138	5601	233,2	
15	5	2012	3590	133			25	186	798	14	58	0,2	
16	5	2012	6736	131	15	37	115	396	1186	48	229	4,3	
17	5	2012	3495	134			1	21	80				
18	5	2012	13828	351	82	242	631	1599	3179	190	969	37,3	

Dy	Mo	Yr	mass	BC-IR	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V
19	5	2012	9861	226	32	156	378	967	1891	115	478	23,0	
20	5	2012	6521	220	15	103	217	559	1099	73	287	14,7	
21	5	2012	2374	85			19	150	165	14	44		
22	5	2012	1210	90	1		10	27	120	4	14		
28	5	2012	8677	318	25	40	163	367	2721	48	143	5,5	
29	5	2012	12258	215	35	196	682	1556	2103	142	606	40,2	
30	5	2012	12689	362	37	242	664	1621	1924	176	710	38,7	
31	5	2012	4658	119		16	47	118	637	38	77	3,3	
1	6	2012	2760	92			18	58	365	14	67		
2	6	2012	9077		14	22	71	159	3145	55	143		
3	6	2012	9529	195	29	33	100	249	3251	76	178	1,6	
4	6	2012	8177	309	21	29	98	250	2612	83	159	4,4	
5	6	2012	672	279					64				
6	6	2012	7297	204	29	27	100	231	2113	75	120	5,9	
7	6	2012	2401	126			13	31	272	10	16	0,2	
15	6	2012	10863	367	39	47	139	372	3695	98	111	12,8	
16	6	2012	7447	282	44	15	39	137	2665	45	31	1,3	
17	6	2012	6777	88	38	13	42	246	1793	46	57	10,8	
18	6	2012	6569	28	29	16	65	260	1725	61	73	2,7	1,3
19	6	2012	10641	165	45	27	110	360	3076	72	138	5,6	
20	6	2012	39651	168	17	10	40	811	1849	33	40		
21	6	2012	7270	262	23	22	74	215	1739	46	160	1,3	
22	6	2012	2985	130			14	41	238	8	14		
23	6	2012	10089	215	44	68	172	470	2902	108	214	7,7	
24	6	2012	23518	383	116	190	535	1339	5236	257	702	36,6	
6	7	2012	791	17				5	109				
7	7	2012	8245		14	36	119	301	2386	75	124	5,3	
8	7	2012	11428	271	42	49	152	349	3408	99	177	5,5	
9	7	2012	6407	268	27	53	124	308	1671	66	173	5,6	
10	7	2012	7747	374	48	30	101	255	2464	74	111	4,3	
11	7	2012	8619	205	38	39	158	403	2600	113	147	8,8	

Dy	Mo	Yr	mass	BC-IR	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V
12	7	2012	6940	180	32	35	129	368	1983	99	112	3,9	
13	7	2012	8257	282	31	36	156	372	2481	123	121	7,8	
14	7	2012	1490	62			14	41	255	8	22		
16	7	2012	10620	371	37	39	165	363	3915	128	194	6,6	
23	7	2012	8057	256	30	74	188	682	2327	80	270	11,4	
24	7	2012	24909	398	137	154	416	1134	5302	184	834	22,9	
25	7	2012	2670	454					120	1	4		
26	7	2012	8138	319	35	76	207	638	2051	98	257	10,5	
27	7	2012	8542	174	18	33	91	965	1316	45	123	4,4	
28	7	2012	13198	257	64	81	239	616	3553	131	224	9,4	
29	7	2012	10415	23	48	57	168	440	3191	110	171	6,6	
30	7	2012	7307	222	24	27	105	373	1294	43	118	4,7	
31	7	2012	9163	281	47	39	114	497	2456	92	120	3,7	
1	8	2012	7577	128	27	52	111	309	1881	63	142	7,1	
2	8	2012	12773	331	40	75	178	484	2141	106	245	9,8	
3	8	2012	9385	363	46	72	170	452	3312	115	161	8,7	
4	8	2012	16517	112	30	36	92	257	2114	72	110	3,0	
5	8	2012	17914	235	41	38	96	300	2064	105	132	2,8	
6	8	2012	16531	224	33	70	164	447	1963	90	177	9,1	
9	8	2012	2522	70			14	49	364	10	9		
10	8	2012	9288	51	28	33	142	350	3747	97	172	5,8	
11	8	2012	7885	252	34	45	136	311	2829	106	178	6,2	
12	8	2012	11213	383	34	51	172	411	4095	122	186	8,8	
13	8	2012	10465	76	4		19	54	512	8	27		
14	8	2012	2756	252	6	12	42	95	397	16	94		
15	8	2012	4354	154	6		34	73	896	24	71	0,6	
16	8	2012	5288	152	11	10	31	71	2484	32	46	1,5	
18	8	2012	19658	801	110	67	273	579	7162	225	290	14,0	
27	8	2012	5063	128	61		8	21	167	90	30		
28	8	2012	3807	166	21	16	61	161	1250	38	74	4,3	
29	8	2012	1289	166	31	18	66	149	414	26	180		

Dy	Mo	Yr	mass	BC-IR	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V
30	8	2012		235	14	31	100	401	435	48	192		
31	8	2012		276			9	664	84	6	19		
1	9	2012	4935	179	19	19	60	180	1932	55	114	3,2	
2	9	2012	166804	241	5	7	22	120	491	13	40		
3	9	2012	6684	366	19	35	104	458	1484	69	159	4,5	
4	9	2012	2061	8			5	17	194	4	13		
5	9	2012	4845	273	18	30	101	242	1209	66	147	6,8	
6	9	2012	10474	407	41	55	182	474	3039	157	254	9,0	
9	9	2012	3656	281	7		35	92	730	38	91	1,5	
10	9	2012	5389	122	34	18	68	150	1922	51	116	2,4	
11	9	2012	6074	265	15	25	86	199	1207	66	194	3,7	
12	9	2012	8067	279	42	117	257	641	2435	129	531	15,6	
13	9	2012	9867	319	51	111	257	664	2971	158	457	14,0	
14	9	2012	19747	333	45	71	171	462	2837	122	316	8,9	
15	9	2012	1654	31	1	7	26	60	211	15	45	3,0	
16	9	2012	9759	294	23	41	137	357	1451	101	193	2,3	
17	9	2012	8540	298	38	49	173	418	2240	139	196	11,2	
18	9	2012	12938	436	38	62	197	470	2768	157	296	8,4	
19	9	2012	12898	132	32	34	106	299	2129	119	151	6,0	
20	9	2012	13453	248	39	55	171	413	2261	126	342	7,2	
21	9	2012	4280	42				70	323	2	1		
22	9	2012	3483	66				26	320	1	1		
23	9	2012	8311		27		30	130	1729	39	58	1,2	
24	9	2012	3203				1	20	265		7		
25	9	2012	6341	52	3		28	90	514	18	92	1,6	
26	9	2012	8852	97	25	47	194	451	857	91	330	6,3	
27	9	2012	5290	120	9	20	82	192	547	28	101	2,2	
28	9	2012	7619		39	66	269	606	860	122	402	14,2	
29	9	2012	6610	164	39	58	214	506	1451	133	358	10,5	
1	10	2012	1817	86					63	1	2	0,0	
2	10	2012	9635	174	57	117	332	777	2010	190	540	15,9	

Dy	Mo	Yr	mass	BC-IR	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V
4	10	2012	6413	215	10	77	198	476	1675	81	316	11,4	
5	10	2012	8724	153	44	42	140	303	3424	109	108	7,2	
6	10	2012	9477		49	103	242	576	2784	169	332	15,5	
7	10	2012	7882		14	98	193	937	774	64	282	8,2	
8	10	2012	6242	302	10	94	178	468	624	50	272	7,8	
9	10	2012	5368	210			22	161	779	27	73		
10	10	2012	6782	122	16	29	71	185	2135	47	119	4,3	
11	10	2012	6956	299	12	73	158	398	1803	61	206	8,7	
12	10	2012	4430	215	8		31	66	996	33	117		
13	10	2012	783	22			2	3	31	2	12		
15	10	2012	1606	279					56	2			
16	10	2012	6786	341	16	27	92	204	2258	70	237	1,9	
17	10	2012	7281	194	27	53	223	478	1380	89	434	8,3	
18	10	2012	8832	197	53	40	160	377	3245	107	173	5,5	
19	10	2012	9448	443	37	38	139	348	1934	100	314	3,9	
20	10	2012	4508	47	7	58	138	360	1816	57	279	7,9	
21	10	2012	10471	346	19	236	475	1194	2618	148	764	27,9	
22	10	2012	15983	366	42	292	600	1438	3962	193	969	37,7	1,0
24	10	2012	11736	443	35	63	149	350	3948	110	146	10,5	
25	10	2012	5095	128	4		33	91	1148	35	23		
26	10	2012		62					58	6		4,0	
27	10	2012	2257				6	217	189	6	10		
28	10	2012	2224	111			1	7	82	2	1	0,3	
29	10	2012	8508	188	23	83	276	641	1320	104	306	13,5	
30	10	2012	6697	321	29	47	148	324	1839	88	315	6,3	
31	10	2012		342	31	123	340	798	2172	102	412	18,1	
1	11	2012	5937	135	11	29	98	224	1861	61	159	4,3	
2	11	2012	8547	334	27	66	233	542	2614	95	253	13,6	0,4
3	11	2012	6681	255	27	44	153	346	2060	87	125	6,5	
4	11	2012	5647	227	21	41	140	300	1372	69	155	5,3	
5	11	2012	8129	336	30	64	216	551	1979	93	305	12,4	

Dy	Mo	Yr	mass	BC-IR	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V
6	11	2012	7657	350	28	64	193	452	2550	97	566	7,8	
7	11	2012	1527				5	14	145	4	13		
8	11	2012	3629	172	5	6	28	54	255	40	59		
9	11	2012	6321	670	15	19	56	119	1141	77	79	1,2	
11	11	2012		170	8		17	36	443	45	21		
17	11	2012	9213	146	23	40	155	326	1079	137	248	5,1	
21	11	2012	7944	34	17	15	51	133	1966	71	97	1,3	
22	11	2012	10354		11		36	93	1754	55	41		
23	11	2012	13736	159	19	24	71	188	1976	99	201	0,4	
24	11	2012	10195		6		11	16	108	19	35		
25	11	2012	7109						38	1	4	5,4	
26	11	2012	3113				22	58	346	23	53		
27	11	2012	5544				18	44	335	26	90		
28	11	2012	3625				8	19	450	18	35	0,6	
29	11	2012	4234		4		18	46	912	32	72		
30	11	2012	22218		5		27	140	1045	53	123		
1	12	2012	950				7	14	89	4	13		
2	12	2012	6698		19	50	248	631	560	101	211	13,6	
3	12	2012	1288				1	6	45	4		0,9	
4	12	2012	13529				3	8	361	16	14		
5	12	2012	10110	17			6	478	730	26	39		
21	12	2012	1768				5	7	248	16	45	0,0	

Ek 5. Trabzon (Torul) gnlk Aerosol Konsantrasyonları
(konsantrasyon deęerleri ng m⁻³ cinsindedir)

Blm 3 PM₁₀ fraksiyonu

D	Mo	Yr	mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3	
8	5	2011							236										20,3					59	
9	5	2011	4216	511				747	750			8,9										9,5		60	
			8																						
8	7	2011	1483	171	43	83		736	1070	147	815	16,2							22,7				105,7	222	
			9																						
9	7	2011																							
10	7	2011	2100	176	51	54		534	3207	167		8,3							67,5			22,1	73,1	459	
			3																						
11	7	2011	2030	390	105			1305	1554	227		28,8										10,0	14,2	348	
			3																						
12	7	2011			62	70		663	1812	150		9,2												99,7	1582
13	7	2011	1181									17,1										6,0			
			1																						
14	7	2011	1098		30			524	832															71,0	976
			0																						
15	7	2011			46			532	745			10,5												76,8	812
16	7	2011		63	168	73		540	1820	140		10,3												151,0	1145
17	7	2011	1478	578				444	1296	154		9,8													479
			7																						
18	7	2011	2207		102	128		931			400													118,7	
			6																						
19	7	2011		125	46	68	200	587	2165	124														73,5	1010
20	7	2011	2377	411		218	484	1552	1767	286	1312	43,1													1089
			9																						
21	7	2011	1395	518	86	324	713	1940	2721	276	1268	46,5							61,1				141,6	1051	
			4																						
22	7	2011	1454		55			1015																13,3	59,5
			1																						
24	7	2011	1546	568	77	72	236	778	1470	122	432												11,6	142,0	698
			4																						
25	7	2011	2563	517	51	119	484	1289	1971	290	877	46,3							24,4				81,5	1940	
			3																						
26	7	2011	3501	844	150	323	1035	2910	2933	502	2619	110,5				896			8,7			14,5	245,3	3245	
			1																						
27	7	2011	4021	741	157	318	935	2611	3244	456	2233	91,2	1,6						28,2			8,6	376,0	3652	
			5																						
28	7	2011	2289	444				1389	2125	290	1227	43,8							24,9					1288	
			4																						
4	8	2011	1198	121	85	64		520	1035	109	469	7,6											278,1	156	
			9																						
5	8	2011	1390	190	135			527	1217			9,5							59,3				288,3	1073	

D	Mo	Yr	mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
24	11	2011	8535		376	68	44	197	771	50	118	0,1								0,0			746,9	328
25	11	2011	8438	129	92	37	87	205	757	78	282	1,7											122,5	112
28	11	2011	1358	518	92	68	223	665	1145	176	731	5,0		26,6						0,2			219,5	1289
			6																					
29	11	2011	1043		479	90	105	400	1029	157	334	5,3								0,3			863,8	634
			7																					
30	11	2011	1722	936	245	87	181	501	1174	164	512	18,4						108,8	0,3				266,3	608
			0																					
14	4	2012	1095		40	108	242	883	964	79	615	11,8											133,2	231
			2																					
15	4	2012	1082		53	187	442	1182	763	124	995	28,5		10,4									130,1	315
			1																					
16	4	2012	5981		29	40	122	389		47	168	5,3		33,4				8,6	78,2				111,7	
17	4	2012	6664		80	77	189	508		74	399	8,5		9,5						0,3	5,9		107,6	
18	4	2012	1341	88	99	226	733	1883	911	191	945	43,9		22,2				2,2		0,2			373,9	279
			9																					
19	4	2012	1349		12	25	100	2689		40	198	19,2		43,0				10,8	127,6				37,8	
			4																					
21	4	2012	1060		94	94	259	633		107	515	16,4		40,2				16,4					205,6	
			1																					
22	4	2012	8583			148	381	958	472	138	763	20,8								0,3	5,0	7,6		303
23	4	2012	7622		43	54	125	542		67	304	3,0		13,3				1,3		0,1			243,7	
28	4	2012	1433		46	130	466	1179	1093	148	684	25,0											28,4	406
			7																					
29	4	2012	1668		99	229	689	1601	2057	239	1267	37,0		15,5							6,2		158,9	818
			3																					
30	4	2012	1369		70	137	463	1081	2059	197	678	25,9								0,3			185,8	921
			5																					
1	5	2012	2447		128	231	834	2140	2937	379	1525	53,2		51,6				16,7	118,6				225,7	1879
			2																					
2	5	2012	4648		124	315	900	2222	4113	378	1579	57,3				444		5,2			10,3		110,7	1177
			5																					
3	5	2012	1348	182	62	470	1083	2668	1536	293	1573	78,9		13,9		392							131,6	867
			6																					
4	5	2012	1380		31	166	397	998	2033	158	657	22,0		11,9				1,6					69,3	1150
			5																					
5	5	2012	1872		31	214	547	1297	1324	242	1515	30,4		65,5				21,8	167,8				50,1	363
			8																					
6	5	2012	1194		44	87	279	788	3348	177	311	15,5											86,7	1483
			5																					
7	5	2012	1818		60	145	421	1142	2800	238	651	25,5		24,4						0,3	2,5		104,0	2089

D	Mo	Yr	mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
			0																					
8	5	2012	1387		65	131	412	1110	3353	216	640	25,2		33,3				9,3	88,4				72,0	1532
13	5	2012	2322	365	28	476	898	3333	923	313	2013	62,5		17,4	18,2			5,5		0,3			30,0	1886
14	5	2012	6017	14640	125	464	1142	3138	88943	764	2636	466,5		189,	524,	2772				13,			3817,3	3146
15	5	2012	3801	174			58	312	825	45	187			14,2	30,7					0,5				293
16	5	2012	1039	216	35	76	214	676	1251	89	596	9,7		15,6	15,4		1,2			0,2			48,5	443
17	5	2012	9464	244			178	484	336			9,8		16,9	24,4					0,2	7,8			139
18	5	2012	2899	555	177	544	1333	3412	3789	422	3288	93,2		16,3	25,6	636				0,5			386,7	1625
19	5	2012	1939	375	73	368	889	2242	2231	276	1713	53,7		10,2	20,6	491	4,9			0,5			73,2	1132
20	5	2012	1356	322	38	250	520	1354	1287	217	979	35,7		5,4	13,7	323	5,1			0,4			72,5	434
21	5	2012	5824	146			107	444	190	76	306	2,2			14,0									35
22	5	2012	8433	237	49		370	980	380	161	1113	20,2			18,4					0,3			93,0	190
28	5	2012	1262	393	54	87	290	686	2940	129	424	11,4		4,2	40,3	51	3,4			0,1			168,7	1766
29	5	2012	2148	393	83	394	1279	2967	2454	316	1501	80,3		9,7	38,4	607				0,4			108,4	1187
30	5	2012	2362	534	69	466	1203	3026	2216	378	1837	72,4		7,8	42,7	669	5,2			0,5			133,1	692
31	5	2012	6310	149			62	189		56	130			10,6	29,1		1,0			0,1				
1	6	2012	6900	175			80	218	441	80	388	2,0		4,1	18,5		3,5			0,2		2,4		210
2	6	2012	1170		16	42	137	328	3217	95	340	2,5		7,3	39,2		5,5			0,4			34,7	1842
3	6	2012	1806	316	78	127	389	1007	3567	216	948	17,6			18,5	283	2,3			0,3			168,4	2101
4	6	2012	1622	407	62	117	375	975	2895	207	899	21,4		9,6	19,4		3,9			0,4			67,3	2790
5	6	2012	1181	368					367			10,9		26,1			3,5				4,4			190
6	6	2012	1475	332	129	108	326	820	2361	193	639	23,9		23,6	5,5			6,4	86,0	0,0			308,6	1334
7	6	2012	5739	184			31	86	295	44	64	1,2		6,7	11,1					0,3				114
15	6	2012	2176	510	133	161	446	1220	4266	253	733	29,6		10,8	39,1		4,1			0,3		2,5	195,4	972
16	6	2012	1586	395	338	122	324	1001	3152	195	478	17,5		7,4	21,1					0,4			523,4	1557

D	Mo	Yr	mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
17	6	2012	1125 6	146	153	65	182	637	1905	116	322	19,6		8,9	12,4					0,2			397,3	848
18	6	2012	1369 2	133	110	99	353	1092	1919	198	611	18,7		11,7	39,7					0,7			361,4	709
19	6	2012	1661 0	237	138	90	311	874	3237	157	519	14,8		22,4						0,3			173,3	862
20	6	2012	5202 9	284	174	118	418	1813	2238	191	669	20,2		6,5	19,6					0,3			155,6	804
21	6	2012	1387 4	346	85	102	350	891	1989	162	990	13,9		6,5	21,5	124				0,5			211,5	567
22	6	2012	1185 9	256			431	1126	574	171	803	24,5		6,3	16,9					0,4				183
23	6	2012	2270 8	356	160	240	659	1714	3274	301	1225	44,9		15,6	47,4	213				0,3			239,0	1360
24	6	2012	2872 0	439	124	210	597	1570	5303	304	1654	43,5		8,8	35,3				32,1	0,2	12,5		257,1	2105
6	7	2012	9160 1	126				580	379			7,9		9,8	19,7					0,4				133
7	7	2012	2857 8		32	83	265	695	2559	140	402	12,9		16,5	32,3					0,1			240,8	4229
8	7	2012	3319 2	306		58	176	445		112	231	5,8		12,3	9,9							11,5		
9	7	2012	1145 0	356	85	134	319	797	1865	170	732	16,3		12,7	33,7					0,3			111,7	922
10	7	2012	1299 6	463	183	100	297	787	2643	177	469	15,3		10,5	15,5					0,4			367,8	642
11	7	2012	1404 0	309	95	126	451	1212	2801	241	630	24,8		22,7	13,0			6,3		0,5		3,3	109,5	1533
12	7	2012	1261 0	277	91	122	455	1202	2158	227	608	20,9		3,1	24,3	228				0,5			221,4	860
13	7	2012	1655 7	443	120	178	750	1866	2766	346	924	43,5			24,5	470	3,1			0,7			325,9	673
14	7	2012	6846	110			130	424	346	53	256	3,6		11,8	27,2		2,5			0,4				145
16	7	2012	2547	458	80	114	427	990	4246	234	691	20,1		13,7	32,5					0,5			185,7	1219
23	7	2012	1661 1	374	94	225	586	1709	2810	212	1305	33,1		19,9	19,0					0,4			176,1	1668
24	7	2012	2982 3	423		171	468	1296	5328	208	995	25,2		20,1	38,0		2,1			0,4				2492
25	7	2012	5493 2	510					150	41	167	4,0		10,9	14,1					0,5				75
26	7	2012	1987	485	113	261	792	2095	2454	283	1377	40,0		26,0	33,7					0,6	9,8		380,6	575

D	Mo	Yr	mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3	
27	7	2012	2346 7	366	146	271	820	2972	1935	314	1632	49,2		13,4	23,6				78,6	0,3			291,5	1453	
28	7	2012	1138 65	430	230	312	934	2357	4189	395	1381	50,7			35,4	608	5,8				0,4			288,3	5868
29	7	2012	1867 9	62	170	205	564	1574	3688	251	898	29,0			43,8						0,7	4,8		260,1	2226
30	7	2012	1465 5	289	102	99	389	1075	1443	141	538	18,7		14,2	38,9		2,0				0,5			308,7	657
31	7	2012	1782 4	419	225	179	524	1551	2867	284	902	25,7		4,3	14,8		1,6				0,1	3,0		651,8	1369
1	8	2012	1688 5	262	30	77	195	616	2056	169	694	19,2		18,2	13,1						0,3			99,7	1243
2	8	2012	1622 2	377			198	578		122	280	12,4		16,3	29,5										
3	8	2012	1667 2	488	158	227	536	1411	3723	269	1083	34,8		19,4	30,3						0,3			190,8	1156
4	8	2012	3852 4	182	104	96	242	642	2323	141	457	10,3		15,2	17,0		4,4	0,9			0,3			216,1	863
5	8	2012	4474 1	303	126	104	251	750	2264	177	454	10,9		8,1	21,7	43								268,8	906
6	8	2012	2177 5	343	98	185	461	1201	2280	204	798	22,4		5,1	23,0	184					0,3			173,9	1060
9	8	2012	5135 9	192			414	1207	774	172	714	21,5		14,0	38,5						0,3				614
10	8	2012	1715 4	130	80	103	405	973	4014	194	603	19,8			24,2	285	2,1				0,5			103,2	1648
11	8	2012	2465 0	358	114	155	498	1163	3239	249	981	25,1		9,9	24,4		4,2				0,8	9,7		174,2	1213
12	8	2012	2855 4	463	97	142	464	1142	4403	238	743	22,2		16,1	42,6						0,3	7,0		245,0	2371
13	8	2012	4592 2	128	43		98	263	629	45	239	3,4		16,8	12,4		2,8				0,5			193,9	215
14	8	2012	8593	287		31	106	256	453	46	240	1,8		14,3	13,4										126
15	8	2012	7286	182	19		130	300	995	63	318	3,6		15,6	8,3						0,3			59,2	840
16	8	2012	1100 4	219	80	75	241	590	3174	123	482	14,6		7,1	15,7						0,1			228,9	1094
18	8	2012	4419 8	1259	579	404	1419	3371	8820	744	2518	86,4		5,6	40,1	929			46,2	0,6		9,0		1841,7	1091 4
27	8	2012	1976 7	303	148		686	1682	672	340	1581	37,9		14,4	39,1						0,1			332,0	209

D	Mo	Yr	mass	BC	Na	Mg	Al	Si	SO4	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Ba	Pb	Cl	NO3
28	8	2012	1255 4	247	108	71	254	650	1488	107	509	14,9		15,9	10,5					0,3			497,6	508
29	8	2012		222	138	66	199	510	491	82	535	5,4			20,6	148	1,6			0,5			508,0	100
30	8	2012		292	56	96	314	920	492	128	700	10,4		17,3	31,9					0,4			127,3	299
31	8	2012		322			186	1210		85	403	6,4			24,1		3,0							
1	9	2012	6611	288	61	72	204	573	2348	123	500	10,5		25,8	9,4					0,5			61,9	905
2	9	2012	3604 66	318	57	69	180	536	757	84	472	8,4		16,1	29,6					0,2			38,2	694
3	9	2012	1034 6	468	56	101	285	940	1716	142	619	12,8			10,7					0,2			105,7	1345
4	9	2012	1268 5	120			419	1002	540	143	832	18,5		7,3	42,4									127
5	9	2012		355	64	108	365	903	1392	165	647	19,5		13,5	10,1		1,7			0,4			382,9	592
6	9	2012	2408 2	648	160	224	752	1896	3650	397	1607	38,3		15,6	31,1		3,5			0,4			513,6	1705
9	9	2012																						
10	9	2012	9300	198	142	66	227	544	2182	121	482	7,7		14,6	29,2					0,3			149,7	860
11	9	2012	3640 1	348	33	54	174	433	1277	106	536	6,3		14,4	19,3					0,2			118,0	518
12	9	2012	1864 6	393	103	233	534	1326	2739	231	1576	32,1		8,2	33,4		2,6			0,6	8,2		330,8	2021
13	9	2012	1932 3	483	144	299	716	1805	3445	320	1894	41,2		15,4	14,9	184				0,3			231,3	1678
14	9	2012	2902 8	487	144	234	564	1527	3184	270	1503	34,4		3,5	26,9	291	4,7					5,9	355,5	1939
15	9	2012	1619 8	100	42	74	273	718	316	111	552	17,2		12,1	13,1		1,1			0,4			115,5	163
16	9	2012	2291 5	511	138	261	1030	2573	1745	454	1790	66,8		16,9	47,6	440	4,4			0,4	4,0		147,4	903
17	9	2012	1522 0	426	111	173	635	1533	2491	294	940	33,0		11,2	33,5					0,5		6,2	308,6	1086
18	9	2012	2242 2	582	110	197	680	1669	3091	333	1271	31,8		6,0	52,2	267				0,2			164,0	1182
19	9	2012	2611 7	267	107	185	599	1915	2507	304	1158	36,3			26,3	583	3,7			0,5			347,8	2237
20	9	2012	1588 3	287	42	72	226	577	2362	149	499	10,8		21,9	14,0			16,1		0,3			57,0	2159
21	9	2012	1057 6	133				756	833	122	616	13,4			21,1	243	3,6							504
22	9	2012	9669	164				247	534	53	390	0,8		3,6	36,6					0,2				290
23	9	2012	1212		157		91	328	1979	77	271	4,9			33,5		5,2			0,3			340,7	2108

Ek 6. Antalya gnlk Yađmur suyu Konsantrasyonları
(konsantrasyon deđerleri $\mu\text{g L}^{-1}$ cinsindedir)

ANTALYA YAĞMUR SUYU

	Ph	H+	NH4	SO4	NO3	Cl	Li	Na	Mg	Al	S	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	
	28	6,2	0,54	150	103	120	350		50	10	16	470	30	130		0,4	17,90	5,44	181,11	0,7
		7			0	0					1					1				0
2 1	201	6,3	0,48	380	570	480	360		60	40	0	820	40	520		0,5	9,66	4,21	42,51	0,1
9 0	0	2														2				1
2 1	201	6,3	0,45	420	142	108	350	0,0	140	80	36	520	60	990		0,1	22,20	7,48	188,01	1,3
9 0	0	5			0	0		3								4				8
1 1	201	6,4	0,37	350	980	173	138		570	12			70	129	152,	0,0	9,18	2,71	102,71	
5 1	0	3			0	0			0				0	2		3				
2 1	201	5,9	1,26	70	290	290	160		110	11	35	430	30	820		0,1	33,10	4,52	465,91	0,5
0 1	0								0							8				1
1 1	201	6,7	0,17	120	100	130	280		110	10		460	60	280		0,3	9,57	2,58	167,41	
2 2	0	6														7				
1 1	201	6,6	0,23	730	670	330	820		680	10	86	460	90	440	62,7	0,1	18,70	2,80	132,21	0,5
5 2	0	3							0							4				4
1 1	201	6,9	0,11	250	350	130	510		40	10	11	390	20	100		0,1	24,50	3,95	162,31	1,1
8 2	0	4									1					2				2
	19	6,5	0,28	170	360		620		220	40		480	20	200		0,2	13,10	3,79	26,61	0,1
		6														9				6
	19										53	490				0,3	21,50	4,92	233,11	1,4
																0				2
3 1	201	5,6	2,34	110	250	170	590	0,2	100	20	10	420	10	90		0,2	17,00	3,01	209,11	3,7
	1	3						1			0					2				4
1 1	201	5,7	1,91	190	290	220	210	0,0	60	60	76	133	30	920		0,4	22,40	4,53	265,61	1,4
3	1	2						7			0					8				7
2 1	201	4,1	70,7	320	469	220	204	0,1	40	20	13	102	20	320		0,3	26,00	4,98	583,81	1,9
2	1	5	9		0	0	0	4			7	0				0				7
2 1	201	5,3	4,47	260	420	160	160		260	40	21	108	90	350		0,3	105,0	16,5	1058,1	2,8
4	1	5									2	0				4	0	2	1	9
2 1	201	5,5	2,95	590	150	180	100		141	53	51	620	280	490		0,2	28,80	3,62	176,61	0,8
5	1	3							0	0				0		8				7
2 1	201	5,3	4,79	50	590	430	610		680	14		220	60	111		0,0	4,50	0,91	4,51	
6	1	2							0					0		6				
2 1	201	5,2	5,13	140	230	170	280		110	40		440	30	440		0,1	4,88	3,10	4,21	0,0
9	1	9														2				6
	5	5,9	1,02	680	440	90	110		360	80	70	480	560	660		0,1	17,20	3,30	124,61	0,5

ANTALYA YAĞMUR SUYU

			Ph	H+	NH4	SO4	NO3	Cl	Li	Na	Mg	Al	S	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co
			9														4				1
1	2	201	5,2	5,13	730	720	620	360		400	14	41	103	260	152	21,7	1,0	17,40	8,28	463,71	0,5
9		1	9								0	1	0		0		0				8
2	2	201	6,4	0,35	170	274	114	194		120	20		260	80	240		0,1	8,64	2,56	25,91	
0		1	6			0	0	0									0				
2	2	201	5,7	1,70	140	190	200	130		210	10	11	480	170	201		0,2	24,70	4,45	295,61	1,3
5		1	7		0						0	4			0		8				4
8	3	201	5,9	1,17	790	390	270	250		530	22		620	290	294		0,3	9,03	3,81	119,71	
		1	3								0				0		3				
9	3	201	6,2	0,52	10	151	102	430		810	37			180	606		0,0	7,83	0,87		
		1	8			0	0				0				0		0				
2	3	201	6,2	0,55	205	184	261	430		720	28	65	590	590	279		0,1	16,40	4,11	210,91	0,5
2		1	6		0	0	0				0				0		7				5
7	4	201	6,4	0,40	620	250	120	330		180	40			90	490		0,0	9,20	1,80		
		1															8				
2	4	201	6,0	0,91	950	653	400	870		230	25	24	109	166	337	15,8	0,9	18,90	3,65	303,81	0,5
0		1	4			0	0				0	5	0	0	0		7				2
2	4	201	5,2	5,62		360	360	350		430	36		410	820	397		0,0	10,80	2,85	41,51	
2		1	5								0				0		7				
1	5	201	6,4	0,37	770	237	132	740		310	60		570	150			0,2	21,70	6,94	1568,1	
		1	3			0	0										7			1	
2	5	201	6,3	0,44	500	343	253		0,6	110	30	91	800	180		49,6	1,7	22,60	13,5	832,31	
		1	6			0	0		4			7					4		2		
6	5	201	6,9	0,12	610	364	142			120	70		710	660	118		0,6	12,00	8,06	149,21	
		1	2			0	0								0		0				
7	5	201	7,0	0,09	80	187	940	580		160	23		280	510	334		0,0	9,81	2,20	29,71	
		1	3			0					0				0		6				
1	5	201	6,5	0,32	800	320	220	300		150	13	55	117	100	184		0,8	14,60	4,22	189,41	0,3
2		1									0		0	0			3				8
1	5	201	6,2	0,52	470	303	263	202		130	60			70			0,1	16,00	3,84	191,21	
3		1	8			0	0	0									3				
1	5	201	6,3	0,42	244	610	280	650		290	18			300	351			8,19	0,92		
4		1	8		0						0				0						
2	5	201	6,3	0,47	130	930	620	460		250	60	26	661	510	196	13,9			9,32	162,05	0,1
6		1	3									5			0						2
2	5	201	6,4	0,32	160	428	435	780		330	90		475	290	713						

Ek 6. Antalya Yağmur suyu (Devam)
(konsantrasyon değerleri $\mu\text{g L}^{-1}$ cinsindedir)

ANTALYA YAĞMUR

	Ni	Cu	Zn	Ge	As	Se	Rb	Sr	Y	Mo	Cd	In	Sn	Sb	Cs	Ba	La	Ce	Pr
	28 10	23,1	132,	0,01	0,16		0,1	1,07	0,05		0,2		4,2		0,006	9,27	0,13	0,08	0,02
	2010		3	0	2		4		6		0		1		2		9	5	4
2 1	201	9,7	56,8		0,23		0,5	5,15	0,00		0,0	0,02	2,9		0,018	7,49	0,08		0,00
9 0	0				7		3		7		8	3	8		2		5		7
2 1	201	36,2	160,	1,75	0,03	0,13		0,12	0,00		0,1	0,01	5,6		0,009	12,4	0,07		0,00
9 0	0		3		6	9			6		9	2	1		0	7	9		8
1 1	201				0,10	0,11							0,9				0,06		0,00
5 1	0				7	3							8				6		5
2 1	201	16,2	109,		0,13	0,12		1,49		0,2	0,1		2,0			6,72	0,03		0,00
0 1	0		3		8	2				0	3		0				6		2
1 1	201	0,2	1,0			0,11		0,19	0,00		0,0		0,6			1,55	0,04		0,00
2 2	0					5			7		1		4				7		6
1 1	201	12,8	119,		0,06	0,08		0,88			0,1		2,0			7,67	0,04		0,00
5 2	0		3		2	6					5		3				5		6
1 1	201	17,1	169,		0,07	0,07					0,1		3,0			14,0	0,05		0,00
8 2	0		3		9	6					9		6			7	8		7
	19	11,1	63,8		0,00	0,13		1,62			0,0		2,7			7,77	0,07		0,00
					8	9					8		5				1		6
	19	39,4	152,		0,01	0,11		0,04	0,01		0,1		5,9			11,7	0,12		0,01
			3		1	5			6		8		2			7	9		2
3 1	201	33,8	156,		0,05	0,18			0,01		0,1		5,9			58,9	0,08		0,01
	1		3		3	7			2		5		4			7	5		1
1 1	201	35,0	129,	41,55	0,04	0,25	0,0	3,16	0,02	0,0	0,2		5,8		0,005	14,2	0,15	0,01	0,01
3 1			3		7	6	5		9	8	4		1		0	7	9	2	3
2 1	201	38,0	320,	28,55	0,12	0,17	0,0	2,11	0,02	0,2	0,1		6,6			14,1	0,11		0,01
2 1			3		5	6	2		6	2	9		8			7	4		5
2 1	201	103,	449,		0,24	0,16		1,23	0,02	0,6	0,9		5,4			12,2	0,08		0,01
4 1		8	3		4	4			5	5	7		1			7	9		2
2 1	201	24,6	101,		0,02	0,19	0,1	0,03	0,01	0,0	0,1	0,00	4,5			7,52	0,18		0,00
5 1			3		3	7	4		1	6	7	2	2				0		8
2 1	201	7,4	16,8		0,05	0,06							2,4			4,33	0,04		0,00
6 1					2	7							0				6		7
2 1	201	8,1	30,9		0,02	0,06		2,35	0,00		0,0		2,7			12,2	0,04		0,00
9 1					2	3			5		6		2			7	6		8
	5	9,7	115,		0,01	0,12					0,3		2,0			5,66	0,03		0,00

1	2	201	12,0	118,		3	7	4			1	1		6	5			
9		1		3			0,13	0,18	0,5	8,71	0,10	0,1	2,3	0,006	10,0	0,20	0,22	0,04
2	2	201					9	3	5		4	9	5	3	7	8	9	9
0		1					0,05	0,03		0,12	0,00		0,5		0,36	0,04		0,00
2	2	201	23,0	183,			3	4			0		6		7			6
5		1		3			0,07	0,07				0,2	3,6		10,5	0,05		0,00
8	3	201		1,2			2	6				3	0		7	2		6
		1					0,07	0,15	0,0	0,57	0,01	0,0	1,1		1,43	0,06		0,01
9	3	201		1,0			6	5	0		1	1	3		5			2
		1						0,03					0,4		0,04			0,00
								6					0		1			6
2	3	201	13,6	123,			0,06	0,18				0,5	2,0		8,30	0,03		0,00
2		1		3			9	7				8	0		4			3
7	4	201		0,7			0,08	0,07				0,0	0,6		0,33	0,03		0,00
		1					3	1				1	9		5			7
2	4	201	11,3	115,			0,07	0,48	0,4	6,10	0,08	0,2	2,7	0,001	10,3	0,14	0,06	0,02
0		1		3			1	5	2		1	2	8	5	7	5	0	8
2	4	201		3,9			0,03	0,17			0,01	0,0	0,6		1,46	0,05		0,00
2		1					0	0				3	4		6			8
1	5	201	5,9	1,9	106,5		0,39	0,32	0,1	2,14	0,01	0,0	1,4		2,36	0,06		0,01
		1			5		6	1	5		1	5	6		0			0
2	5	201	7,0	2,7			0,20	0,27	1,4	19,0	0,34	0,0	3,5	0,052	11,3	0,64	1,05	0,14
		1					0	3	0	1	1	5	3	6	7	5	6	7
6	5	201		0,8			0,03	0,06	0,2	5,15	0,04		0,7		4,13	0,20	0,15	0,02
		1					4	5	6		0		2		5	7		3
7	5	201					0,00	0,05				0,0	0,6		1,09	0,04		0,00
		1					5	5				1	1		8			6
1	5	201	9,1	112,			0,02	0,14	0,0	2,82	0,00	0,2	1,6		8,18	0,08		0,00
2		1		3			9	5	3		1	1	9		0			8
1	5	201	4,3	1,3			0,05	0,12			0,01	0,0	1,1		1,29	0,06		0,00
3		1					4	0			5	2	9		1			6
1	5	201					0,03	0,03					0,8			0,03		0,00
4		1					4	6					0		3			3
2	5	201							0,2	0,2	1,20	0,10		0,010	1,15	0,09	0,17	0,02
6		1							0	6	9			4	9	3	7	
2	5	201		5,1			5,9		0,81			0,3						
8		1										6						
2	5	201					4,3					0,0						

9	1												
5	6	201	0,1		6,3	0,0	0,89		0,9	0,0		4,56	
		1				1			0	1			
6	6	201			3								
		1											
1	6	201							0,00	0,01	0,06	0,00	
3		1							2	9		9	
	14	6		0,02									
		2011		5									
	17	6	2,8			0,69	0,01	2,9	0,0	0,00			
		2011				5	1	5	0	0			

Ek 6. Antalya Yağmur suyu (Devam)
(konsantrasyon deęerleri $\mu\text{g L}^{-1}$ cinsindedir)

	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	Hf	Ta	W	T I	Pb	Bi	Th	U
	28 10	0,058	0,011	0,005				0,01					0,00	0,0		17,2	0,29		0,07
	2010	9	0	5				8					8	7			9		1
2 1	201		0,004					0,01				0,03	0,01	0,0		10,8	0,58	0,01	0,04
9 0	0		9					0				1	0	5			4	0	9
2 1	201	0,002	0,004					0,00					0,01	0,0		26,0	0,60		0,09
9 0	0	0	3					9					7	6			5		6
1 1	201		0,001					0,00								1,3	0,02		
5 1	0		8					2									6		
2 1	201		0,003					0,00					0,00	0,0		12,4	0,06		
0 1	0		4					5					0	3			6		
1 1	201		0,001					0,00								1,5	0,01		
2 2	0		8					6									3		
1 1	201		0,004					0,00								13,8	0,04		0,03
5 2	0		6					5									4		6
1 1	201		0,003					0,00								19,6	0,03	0,10	0,02
8 2	0		7					7									7	6	6
	19		0,002					0,00								11,2	0,08		0,07
			8					2									9		5
	19	0,003	0,008					0,00					0,00	0,0		26,7	0,15		0,15
		2	6					5					6	5			6		0
3 1	201	0,013	0,015					0,00				0,00	0,00	0,0		28,2	0,31		0,04
	1	8	6					6				9	3	2			4		7
1 1	201	0,014	0,012					0,00					0,00	0,0		30,3	0,21		0,09
3 1	6		5					6					7	6			6		4
2 1	201		0,008					0,00					0,00	0,1		33,8	0,18		0,10
2 1	1		9					7						0			1		0
2 1	201	0,017	0,004					0,00						0,1		22,2	0,09		0,06
4 1	6		6					5						5			7		8
2 1	201	0,005	0,004					0,01					0,00	0,1		16,2	0,21		0,00
5 1	1		6					0					6	2			1		9
2 1	201		0,002					0,00					0,00			7,9	0,22		0,03
6 1			1					5					7				8		1
2 1	201		0,006					0,00								10,7	0,09		0,00
9 1			4					3									4		7
	5		0,003					0,00					0,00			14,3	0,07		0,00

						7										4							1				6		4
1	2	201	0,146	0,025	0,013	0,030						0,00	0,01										0,00				13,8	0,03	0,01
9		1	9	2	5	0						2	9										2				9		5
2	2	201			0,004								0,00													1,1	0,01	0,00	
0		1			0								6													6		2	
2	2	201			0,005								0,00										0,00			23,2	0,05		
5		1			2								5										0			2			
8	3	201			0,004								0,00										0,00			1,8	0,02		
		1			9								7										0			6			
9	3	201			0,000								0,00													1,4	0,01		
		1			9								2													1			
2	3	201			0,004								0,00													16,2	0,05	0,01	
2		1			0								6													9		4	
7	4	201			0,002								0,00										0,00			1,5	0,03		
		1			5								6										0			4			
2	4	201	0,048	0,005	0,006	0,023						0,00	0,01										0,00			13,9	0,05	0,00	
0		1	5	4	4	3						0	4												7	9		7	
2	4	201			0,001								0,00													5,0	0,04		
2		1			2								1													8			
1	5	201			0,005								0,00													4,0	0,08	0,03	
		1			8								6													5		0	
2	5	201	0,526	0,095	0,030	0,112	0,008	0,065	0,01	0,05	0,00	0,01										0,08	0,00	0,1	11,7	0,07	0,14	0,08	
		1	9	7	9	6	9	0	2	6	0	8										5	4	3	4	4	0	9	
6	5	201	0,061		0,010	0,004							0,00													1,4	0,02	0,00	
		1	9		7	8							8													6		6	
7	5	201			0,002								0,00													1,3	0,00	0,00	
		1			8								5													5		0	
1	5	201			0,004								0,00													12,6	0,03		
2		1			9								2													2			
1	5	201			0,005								0,00													3,1	0,06	0,01	
3		1			8								6													3		7	
1	5	201			0,001								0,00											0,00		1,0	0,06		
4		1			2								4												6		6		
2	5	201	0,165	0,001		0,003						0,00	0,01	0,00	0,01	0,00							0,07		1,9				
6		1	9	6		4						3	1	1	7	1								9					
2	5	201			0,012										0,00	0,00										113,			
8		1			9										1	9									9				
2	5	201			0,001											0,06										1,1			

9	1	2	4	5	5	9					
5	6	201	0,009	0,012	0,016	0,00	0,00	0,05	0,03	1,9	0,01
	1	7	7	7		3	0	7	9		9
6	6	201					0,00		0,01		
	1						0		9		
1	6	201				0,00	0,00	0,00	0,05	1,8	
3	1					7	0	8	9		
	14						0,00			0,3	0,01
						0	0				1
	17		0,013	0,003		0,00	0,01		0,02	1,0	
			2	7		3	7		9		

Ek 7. Kırklareli gnlk Yađmur suyu Konsantrasyonları
(konsantrasyon deđerleri $\mu\text{g L}^{-1}$ cinsindedir)

dy	mo	yr	Ph	H	NH4	S04	N03	Cl	Li	Na	Mg	Al	S	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co
20	10	2010	6,39	0,40	70	390	200	140	1,07	70,00	120,00	73,20	366,00	30,00	1990,00		1,16	31,30	4,11	61,24	
27	10	2010	6,27	0,53	30	1250	740	1600		180,00	40,00		774,50	30,00	810,00	80,94	2,23	14,70	23,72	463,11	
28	10	2010	6,38	0,41		2340	1730	1730		250,00	80,00	2190,66	382,77	30,00	760,00	18,94	0,60	18,60	5,55	59,91	
29	10	2010	5,71	1,94	200	570	410	190	2,04	60,00	20,00	2034,56	292,82	10,00	230,00	23,54	0,63	21,30	5,36	40,06	
13	11	2010	5,63	2,34	200	520	390	770	11,46	290,00	40,00		1295,20	50,00	230,00	86,24	1,36	30,60	31,62	196,97	
24	11	2010	6,88	0,13	710	1830	1410	950		420,00	110,00		1591,90	280,00	1450,00	36,64	1,57	18,20	8,99	79,52	
25	11	2010	6,52	0,30	60	3850	2440	3550		1350,00	250,00	3177,76	211,14	200,00	1760,00	35,74	0,61	22,70	5,93	42,56	
14	12	2010	4,81	15,48	10	3770	3160	9920		850,00	110,00	238,47	527,33	40,00	190,00	0,34	1,59	17,50	6,96	166,29	
17	12	2010	6,29	0,51	260	1240	680	770		70,00	10,00			10,00	360,00		0,62	31,50	3,40		
19	12	2010	4,57	26,91	280	1070	600	180	0,17	60,00	10,00			30,00	70,00		0,63	32,50	6,60		
27	12	2010	4,88	13,18	20	6170	2050	23510		1340,00	160,00		1892,60	50,00	190,00		1,25	47,50	6,77	152,10	
28	12	2010	5,85	1,41	340	1990	1070	1580	0,29	510,00	100,00	18,94	3534,20	60,00	810,00		0,63	26,40	4,41	157,25	0,11
29	12	2010	5,45	3,54	160	810	650	530		170,00	40,00		181,21	20,00	300,00		0,56	22,70	2,35	104,48	
30	12	2010	5,11	7,76	230	1190	730	300	0,11	160,00	20,00	29,78	2288,60	30,00	310,00		1,03	28,50	3,83	98,17	0,03
2	1	2011	4,1	79,43	500	12980	5860	3530		220,00	30,00	3300,76	1854,70	40,00	100,00	64,24	1,05	20,50	10,12	167,64	
3	1	2011	5,95	1,12	980	4370	2160	2410		900,00	90,00	26,93	1692,00	490,00	850,00		0,94	27,90	5,84	473,70	
17	1	2011	4,4	39,81	580	3660	1870	1070		380,00	50,00	11,43	1998,80	90,00	390,00		0,73	21,20	3,86	91,85	
24	1	2011	3,99	102,32	430	2770	1520	490	0,33	200,00	30,00		526,77	20,00	140,00		0,87	22,00	4,34	87,56	
25	1	2011	4,28	52,48	380	2830	1580	2660		850,00	120,00	2209,56	778,91	50,00	340,00	25,74	0,71	29,90	8,86	149,72	
27	1	2011	5,15	7,08	310	2150	1090	880		230,00	40,00		3238,20	50,00	610,00	40,44	1,99	19,70	21,62	123,11	34,95
30	1	2011	4,4	39,81	1730	17540	13170	3790	2,84	1540,00	250,00	2745,86	1596,40	160,00	2630,00	28,64	1,39	21,40	8,52	6,09	20,55
16	4	2011	5,56	2,75	170	910	520	740		510,00	100,00	6,15	1092,20	80,00	810,00				3,82		
17	4	2011	5,43	3,71	880	3240	1920	940		760,00	200,00	8,30	2238,30	180,00	2500,00				5,18	2,64	
19	4	2011	4,7	19,95	1210	19250	7290	410		70,00	50,00	50,56	2778,60	80,00	660,00				6,04	42,00	
28	4	2011	5,85	1,41	2020	8730	6000	3620	0,02	2570,00	450,00		1130,60	290,00	4260,00				3,77		
1	5	2011	6,13	0,74	570	2530	1760	280		370,00	190,00		1419,20	110,00	2840,00				8,04		
4	5	2011	6,01	0,97	850	3000	1720	590		460,00	130,00	511,34	1417,40	100,00	1480,00	37,94			6,39	337,97	
5	5	2011	6,57	0,26	590	3640	960	840		640,00	380,00	275,22	3137,60	200,00	5130,00	12,64			13,72	136,02	
29	5	2011	6,38	0,41	3310	13880	6490	2670	0,32	1860,00	590,00		3275,70	530,00	6480,00	2,44			25,32		
7	7	2011	6,87	0,13	390	610	480	150		60,00	70,00	10,70	2032,30	90,00	1330,00	5,14			2,06	17,28	

Ek 7. Kırklareli gnlk Yađmur suyu Konsantrasyonları
(konsantrasyon deđerleri $\mu\text{g L}^{-1}$ cinsindedir)

dy	mo	yr	Ni	Cu	Zn	Ge	As	Se	Rb	Sr	Y	Mo	Cd	In	Sn	Sb	Cs	Ba	La	Ce
20	10	2010	13,05	2,34			0,91			6,01	0,04	0,31	0,65	0,02	2,88		0,03	43,57	0,29	0,04
27	10	2010	1,95	0,08		0,25	0,86		1,56				0,53		0,25		0,12		0,66	
28	10	2010		0,26	0,75	0,09	0,33		0,33				0,43		7,21		0,02		0,20	1,41
29	10	2010	3,45			0,05	0,30		0,48		0,15		0,55		0,95		0,05		0,21	1,35
13	11	2010	6,15	3,76	155,55	0,57	1,16		1,56				0,66		1,41		0,08		0,57	3,71
24	11	2010	0,52		43,55	0,20	0,72		1,23		0,29	12,52	0,45		0,66		0,04		0,44	2,35
25	11	2010	4,15	3,18	37,55	0,24	0,47		0,48		0,21	11,72	0,66		0,50		0,04		0,36	1,98
14	12	2010	42,75	2,16			0,29		0,54	2,59			0,00		1,46		0,02	7,44	0,21	0,11
17	12	2010	37,45	24,35			0,40		0,30			0,04	0,03		5,80			5,53	0,10	
19	12	2010		8,15	47,55		0,35		0,37	1,86		0,07	0,06	0,03	10,09		0,04	5,84	0,24	0,02
27	12	2010	25,55	16,35			0,18		0,06	2,03		0,35	0,03		3,91			9,67	0,04	
28	12	2010	24,35	80,15			0,34		0,24	0,14	0,00	0,10	0,17	0,19	4,69		0,17	17,57	0,06	
29	12	2010	27,25	6,95			0,19		0,23		0,00		0,02		3,27		0,01	7,11	0,10	
30	12	2010	28,15	21,25			0,68		0,73	0,36	0,01	0,15	0,09		2,28		0,00	9,37	0,25	
2	1	2011		139,35	91,55	0,33	2,49				0,23		0,67				0,10		0,31	
3	1	2011		24,05	85,55		0,87		0,52	3,65	0,04	0,49	0,13		2,93		0,01	6,62	0,23	
17	1	2011	26,95	47,75			0,65		0,24		0,01		0,09		7,54			4,17	0,14	
24	1	2011	27,15	6,30			0,36		0,19			0,22	0,05						0,19	
25	1	2011	21,35	11,05	29,55	0,15	0,85		0,88		0,18		0,42		7,09		0,03		0,28	1,41
27	1	2011	12,45	6,06	111,55	0,22	3,25		1,29		0,39		1,05			11,80	0,10		0,62	
			20,45	5,16	31,55	0,12	0,48		0,89		0,46		0,87		7,02		0,07		0,47	
30	1	2011	2,45	1,77	33,55	0,23	1,43		1,16		0,19		0,50		0,21		0,11		0,31	1,62
16	4	2011						3,00	0,13		0,03	1,49	0,00					0,88	0,02	
17	4	2011		5,00					0,23	0,97	0,04		0,03	0,00		0,23	0,01	0,22		
19	4	2011		186,35			0,46	0,20	0,14	4,27	0,01	10,52	0,31		0,36	0,14	0,03			
28	4	2011							0,05	3,29	0,01					0,01		4,88		
1	5	2011		3,48				3,00	0,21	1,78	0,01									
4	5	2011		4,16				9,20	0,93	12,91	0,14	1,24					0,08	7,14	0,26	0,31
5	5	2011		4,82				1,00	0,85	9,81	0,12				0,23	0,20	0,05	7,66	0,32	0,34
29	5	2011	0,85	0,52			0,04	1,80	0,82	8,21	0,03	0,60	0,20			0,21	0,01	5,26	0,05	
7	7	2011		4,26					0,28	4,10	0,03	0,01				0,09		1,60	0,02	

Ek 7. Kırklareli gnlk Yađmur suyu Konsantrasyonları
(konsantrasyon deđerleri $\mu\text{g L}^{-1}$ cinsindedir)

dy	mo	yr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	Hf	Ta	W	Tl	Pb	Bi	Th	U
20	10	2010		0,00	0,01					0,01									0,42		0,04
27	10	2010	0,40			0,12	0,01	0,06	0,01	0,06	0,00	0,04	0,01							0,10	0,11
28	10	2010	0,05			0,03			0,00	0,02		0,01								0,02	0,06
29	10	2010	0,05			0,02			0,00	0,03										0,02	0,07
13	11	2010	0,26			0,07	0,00	0,02	0,01	0,06	0,00	0,03	0,01		0,01	0,00				0,06	0,23
24	11	2010	0,15			0,07		0,01	0,00	0,03		0,02	0,00							0,02	0,09
25	11	2010	0,06			0,02			0,01	0,03		0,01	0,00								0,11
14	12	2010	0,07		0,00					0,01								16,43		0,06	0,00
17	12	2010			0,00					0,00								30,83			0,00
19	12	2010			0,00					0,00							0,04		0,78		0,08
27	12	2010			0,00					0,00								21,23			
28	12	2010			0,01					0,00								27,33	2,76		0,18
29	12	2010			0,01					0,00								25,13	0,19		0,02
30	12	2010			0,01					0,01						0,07		28,33	0,07		0,01
2	1	2011	0,09			0,03			0,00	0,02		0,02	0,00				0,03	228,93			0,13
3	1	2011	0,02		0,00					0,00						0,00	0,02	27,23	0,05		0,00
17	1	2011			0,00					0,01								25,43			
24	1	2011			0,01					0,00				0,02				23,93		0,01	0,01
25	1	2011	0,04			0,02			0,00	0,02											0,07
27	1	2011	0,16			0,07		0,03	0,01	0,04	0,00	0,02	0,00				0,05		0,04	0,01	0,11
			0,19			0,08		0,02	0,01	0,05	0,00	0,05	0,00			0,13				0,06	0,16
30	1	2011	0,06			0,03			0,00	0,03							0,01	57,23	0,12		0,10
16	4	2011	0,04	0,01		0,00						0,03	0,00		0,04	0,06					
17	4	2011		0,06							0,00	0,07			0,04			0,89			0,00
19	4	2011	0,04	0,02							0,00			0,01		0,29	0,01	3,39			
28	4	2011		0,06	0,02							0,00	0,00		0,02		0,05	0,02			
1	5	2011								0,00											
4	5	2011	0,24	0,08		0,03				0,02		0,00			0,10	0,01					0,02
5	5	2011	0,05			0,00			0,00			0,00	0,00	0,04	0,02			0,55			
29	5	2011	0,05	0,00		0,00						0,02			0,02		0,05	1,13			
7	7	2011	0,00	0,03		0,02						0,00	0,00		0,02	0,02	0,01	0,75			0,00

Ek 8. Bolu gnlk Yađmur suyu Konsantrasyonları
(konsantrasyon deđerleri $\mu\text{g L}^{-1}$ cinsindedir)

			pH	Li	Na	Mg	Al	S	K	Ca	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co
3	6	2011	5,90		261	55	211	278	30	324		0,13	19,79	5,56	270	
10	6	2011	6,00		302	90		371	48	456		0,11	18,05	8,48	2	
11	6	2011	5,94		904	95	65	371	57	241		0,20	21,22	18,28	136	
17	6	2011	5,64		1064	374	263	2003	216	4601	175	0,52	30,08	5,15	52	0,96
27	6	2011	6,75		96	21	235	352	18	120		0,08	24,86	27,24	105	0,30
29	6	2011	7,08	0,32	758	179		943	190	576		0,22	19,95	6,78	72	
29	6	2011	6,90		445	139		861	123	792		0,19	19,79	13,02	45	
2	7	2011	6,85		455	153	141	450	68	1333		0,18	21,69	5,84	51	
18	7	2011	7,44		201	92		237	41	553		0,08	17,10	1,90	5	
12	8	2011	7,31	0,75	867	332		913	133	1341		0,17	20,74	5,95	10	
13	8	2011	7,33		478	210	323	923	133	2325		0,38	23,91	18,17	152	0,77
23	9	2011	7,35		220	155	68	743	126	666		0,78	77,57	6,79	132	
30	9	2011	6,86		320	164	115	899	177	1032		0,28	17,57	3,73	99	
10	10	2011	5,94	0,38	466	292	167	1099	274	1020		0,15	18,37	5,94	139	
11	10	2011	6,08	13,08	2979	2020		3334	1148	5771	220	0,79	22,64	2,35	20	1,05
15	10	2011	6,00		2016	55			316	2524	57	0,24	17,42	2,29		
17	10	2011	5,64		186	46	29	718	106	477		0,20	19,79	5,66	76	
10	11	2011	5,86		710	76	254	788	53	649		0,29	22,80	7,84	210	
25	12	2011	6,34	0,06	501	141	354	1256	88	1721		0,68	22,96	2,29	91	0,24
1	1	2012	6,38	0,19	193	126	194	1271	80	1338		0,35	18,05	3,34	57	
15	1	2012	5,38		109	42	295	1013	41	630		0,32	19,16	6,14	279	
17	1	2012	6,31		385	51	281	740	63	365		0,21	21,53	38,99	438	0,49
19	1	2012	6,43		400	149	444	988	78	1897		0,43	20,74	17,56	413	0,26
21	1	2012	5,24	0,01	622	246	300	1745	223	3743	133	0,81	22,48	19,10	48	2,56
27	1	2012	5,19	1,01	515	95	23	1304	439	497		0,18	18,37	20,75	101	
1	2	2012	6,56		117	61	216	543	31	768		0,16	17,26	2,73	93	
9	2	2012	5,74		404	78	207	1014	100	1064		0,33	18,37	3,91	153	
16	2	2012	5,38	0,43	372	417	260	874	135	2871	98	0,23	19,63	4,75	124	0,44
19	2	2012	4,58		103	131		134	49	691		0,10	18,05	5,00	65	
26	2	2012	4,44		136	141	651	995	188	3975	140	0,63	26,12	3,20	210	1,24
7	3	2012	4,81		227	99	408	1346	188	2109		0,77	20,27	4,61	199	0,33
8	3	2012	4,66		149	147	84	737	208	2775	94	0,36	18,05	5,01	117	0,57
20	3	2012	5,88		130	73	806	538	185	1473		0,46	18,37	6,99	118	0,03
29	3	2012	6,19		271	260	419	1189	335	4425	157	0,68	22,64	6,38	181	2,26
2	4	2012	6,56		26	11	6	72	12	142		0,03	15,99	11,68	51	
5	4	2012	6,60		85	45	79	378	97	1048		0,29	17,42	2,71	160	

11	4	2012	6,73		85	30	974	337	75	975		0,32	17,10	3,82	288	0,04
12	5	2012	6,37		62	92	132	332	107	1956		0,20	16,31	2,06	21	
15	5	2012	6,67		30	55		137	48	612		0,06	15,36	5,77	72	
16	5	2012	5,86	0,12	316	152	56	588	239	1177		0,21	25,49	2,96	114	
20	5	2012	6,14		49	64	199	517	55	1471		0,26	16,94	1,88	38	

Ek 8. Bolu gnlk Yađmur suyu Konsantrasyonları
(konsantrasyon deđerleri $\mu\text{g L}^{-1}$ cinsindedir)

			Ni	Cu	Zn	Ge	As	Se	Rb	Sr	Y	Mo	Cd	In	Sn	Sb	Cs	Ba	La	Ce	Pr
3	6	2011	4,83	0,03			0,21				0,15			0,10	6,67	0,11			0,06	0,30	0,03
10	6	2011	4,51	2,26			0,20	0,24		1,10	0,03			0,07	3,74				0,01		0,01
11	6	2011	6,31	1,79	87,29		0,29				0,22		0,01	0,09	3,87	0,02			0,07	0,46	0,04
17	6	2011	58,22	2,10			1,18	6,33	0,29	27,54	0,09			0,08	2,06	0,01		4,44	0,02	0,01	0,03
27	6	2011	5,65	2,53	116,27	0,26	0,35				0,09		0,47	0,05			0,00		0,02		0,02
29	6	2011	4,31	0,19			0,84		0,12	3,50	0,05	0,73			1,60		0,00	0,46	0,01	0,09	0,01
29	6	2011	10,62	1,67	392,49		0,59	3,06	0,02	3,92	0,05	0,25	0,02	0,01	0,44			0,29	0,02		0,00
2	7	2011	8,31				0,30	3,86		5,56	0,08		0,06	0,09	4,26	0,04		0,37	0,02		0,04
18	7	2011	3,29	0,90	109,45		0,26	2,27		1,14	0,03			0,04	0,89			0,19	0,01		0,02
12	8	2011	9,39	4,89	663,60	0,06	0,34	3,42		12,76	0,02	0,06	0,02	0,03	2,64			1,19	0,01		0,02
13	8	2011	17,92	2,59			0,49	5,10	0,34	13,48	0,14	0,04	0,00	0,05	5,55	0,01		2,01	0,05	0,22	0,09
23	9	2011	11,70	2,48			0,40	1,47	0,00	0,80	0,03	0,08		0,05	3,10			0,05	0,03	0,05	0,03
30	9	2011	6,62	8,23		0,23	0,92	3,06	0,26	2,67	0,05	0,22		0,05	0,50		0,01	0,91	0,04	0,11	0,02
10	10	2011	14,16	4,23	104,34	0,02	0,79		0,19	5,48	0,04	0,82		0,06	1,54	0,01	0,01	0,86	0,03	0,08	0,03
11	10	2011	21,56	0,92			9,07	7,92	2,18	65,93	0,21	2,45		0,04	1,28	0,01	0,01	12,78	0,02		0,03
15	10	2011	3,46			0,33	0,42				0,02			0,00					0,01		0,01
17	10	2011	13,24	0,93		0,04	0,56		0,09		0,09			0,03	0,50	0,03			0,03	0,24	0,04
10	11	2011	21,87	4,89	50,63		0,70	0,68			0,07		0,05	0,00	2,97	0,04	0,02		0,04	0,19	0,02
25	12	2011	14,78	3,24			1,74	4,74	0,22	2,06	0,05	0,29			3,35		0,07	1,14	0,03	0,08	0,06
1	1	2012	12,93	3,68		0,24	1,98		0,23	1,79	0,12	0,14	0,14	0,03	5,11		0,09	0,79	0,03	0,08	0,04
15	1	2012	28,18	8,23	1,18	0,45	1,19		0,08		0,18		0,22	0,03	5,30	0,17	0,08	0,13	0,06	0,46	0,05
17	1	2012	16,63	5,49	11,24		0,76	2,71	0,02		0,26		0,07	0,06	5,75	0,08	0,03		0,06	0,45	0,05
19	1	2012	15,40	5,87		0,11	0,80	3,06	0,18	5,29	0,15			0,00	6,18	0,05	0,00	0,70	0,22	2,76	0,09
21	1	2012	12,62	5,00			0,95		0,62	21,37	0,06	0,33		0,01		0,04		3,68	0,01		0,04
27	1	2012	9,85	4,50	41,25	0,30	0,66		0,30	2,86	0,06	2,93	0,59	0,01	3,61	0,01	0,01	0,26	0,03	0,08	0,01
1	2	2012	7,23	3,57			0,35	0,68	0,01		0,06			0,01	3,87	0,00	0,00	0,03	0,03	0,09	0,03
9	2	2012	7,23	1,72			0,41		0,07	6,25	0,14			0,00	2,57			0,17	0,04	0,24	0,05
16	2	2012	20,02	12,93		0,26	0,49	8,36	0,13	7,92	0,09			0,03	3,48	0,05		2,15	0,03	0,04	0,04
19	2	2012	14,16	1,43	14,65		0,20			0,68	0,02			0,02		0,06		0,10	0,01		0,01
26	2	2012	29,88	12,17			1,85		0,69	5,83	0,07	0,23		0,01	4,20	0,21	0,10	2,48	0,04	0,11	0,01
7	3	2012	21,71	7,30		0,10	1,35	8,81	0,38	4,07	0,06	0,26		0,01	6,92	0,04	0,03	1,02	0,03	0,10	0,02
8	3	2012	13,55	11,84		0,32	1,41	10,93	0,93	2,51	0,09	0,28		0,00	3,16	0,08	0,14	2,08	0,03	0,10	0,03
20	3	2012	14,47	7,08			0,64	8,45	0,30	0,88	0,04		0,00	0,02	4,45	0,02		0,50	0,04	0,12	0,01
29	3	2012	28,34	14,58	20,11	0,15	1,47	1,91	0,97	13,03	0,13	0,38		0,02	3,68	0,07	0,06	4,04	0,05	0,25	0,07
2	4	2012	10,47	14,41	145,26	0,07	0,11				0,04				0,70				0,02	0,03	0,01
5	4	2012	13,55	2,42		0,05	0,37		0,14		0,03			0,03	0,63		0,02	0,07	0,02		0,02

11	4	2012	70,55	7,79			0,34							0,00				0,05	0,15	0,05
12	5	2012	6,62	9,21			0,45	0,12	0,19	0,02				0,01		0,00	0,58	0,01		
15	5	2012	8,47	10,63	19,25	0,20	0,11	0,68		0,01				0,04		0,02		0,05	0,23	0,01
16	5	2012	9,70	10,85		0,27	0,36		0,20	3,50	0,02	0,11		0,00	0,57	0,01	0,28	0,01		0,01
20	5	2012	8,00	0,84			0,37			0,27	0,02			0,02			0,42	0,01		0,01

Ek 8. Bolu gnlk Yađmur suyu Konsantrasyonları
(konsantrasyon deđerleri $\mu\text{g L}^{-1}$ cinsindedir)

			pH	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	Hf	Ta	W	Tl	Pb	Bi	Th	U
3	6	2011	5,90		0,013	0,001		0,001			0,001	0,018		0,002	0,143	0,039	0,082		29,231	1,756		
10	6	2011	6,00						0,008	0,023	0,001	0,002			0,589	0,041	0,052		6,269	0,305	0,031	0,026
11	6	2011	5,94	0,087	0,008	0,001		0,003		0,002		0,018			0,027	0,050	0,159	0,016	24,397	0,476		0,019
17	6	2011	5,64	0,009	0,025	0,009	0,021	0,017		0,010	0,004			0,006	0,013	0,025	0,251		5,609	0,169		0,255
27	6	2011	6,75	0,010	0,005		0,006		0,021	0,004		0,006		0,006	0,073	0,022		0,018	51,448	0,106		
29	6	2011	7,08		0,001		0,011					0,010		0,004	0,000	0,020	0,032	0,013	9,895	0,111		0,025
29	6	2011	6,90		0,017	0,003							0,006		0,002	0,015	0,032	0,037	14,450	0,114		0,023
2	7	2011	6,85	0,075	0,017	0,002	0,031	0,021		0,012	0,002	0,010	0,016	0,006	0,000	0,013			19,842	0,138	0,118	0,006
18	7	2011	7,44		0,013		0,002	0,005					0,026	0,002			0,016		19,430	0,089		0,023
12	8	2011	7,31		0,068	0,001		0,001					0,026	0,006		0,001			21,794	0,077		0,132
13	8	2011	7,33	0,167	0,021	0,005	0,084	0,003	0,046	0,015	0,002	0,006	0,006	0,006		0,018	0,057		26,721	0,410	0,049	0,042
23	9	2011	7,35	0,046			0,016				0,001		0,016	0,008		0,002			25,512	0,778		0,005
30	9	2011	6,86	0,008	0,013	0,005	0,002		0,046	0,002	0,003		0,016					0,019	20,399	0,584		
10	10	2011	5,94	0,016		0,004	0,006		0,021		0,004							0,002	27,093	0,157		0,010
11	10	2011	6,08	0,075	0,125	0,017	0,007	0,005	0,008	0,015	0,001		0,016						7,822	0,062		1,049
15	10	2011	6,00		0,005		0,016			0,002			0,036			0,001		0,016	8,872	0,719		0,006
17	10	2011	5,64	0,012			0,021						0,036				0,001		21,143	0,075		
10	11	2011	5,86	0,019			0,035		0,008	0,004	0,003			0,006			0,067	0,197	39,177	0,109		
25	12	2011	6,34	0,061	0,040	0,001	0,006	0,003						0,006		0,006	0,159	0,081	15,937	0,043		0,055
1	1	2012	6,38	0,084	0,016	0,002	0,026	0,009	0,008	0,010	0,005			0,008			0,180	0,041	12,591	0,518		0,051
15	1	2012	5,38	0,063			0,002	0,005		0,004			0,016	0,002	0,007		0,006	0,092	50,147	1,482		0,031
17	1	2012	6,31	0,082	0,016			0,003	0,034	0,002								0,050	111,408	1,607		0,022
19	1	2012	6,43	0,118		0,002	0,055	0,003		0,004			0,006	0,004	0,020		0,052	0,023	49,310	1,906		0,009
21	1	2012	5,24		0,021	0,004	0,021			0,020			0,006				0,134	0,007	7,933	0,035		0,260
27	1	2012	5,19		0,005	0,001	0,016		0,008	0,012					0,022	0,001		0,023	41,780	1,781		
1	2	2012	6,56	0,006	0,009		0,002	0,003			0,004		0,006	0,004	0,000			0,003	18,540	1,060		
9	2	2012	5,74	0,050	0,005	0,002	0,016	0,005	0,008	0,007			0,026	0,004		0,002			22,630	0,397		0,016
16	2	2012	5,38	0,049	0,049	0,004	0,002			0,012			0,026				0,078		20,585	0,064		0,144
19	2	2012	4,58																7,162	0,033		0,016
26	2	2012	4,44		0,017					0,002			0,006			0,174	0,026	46,986	1,906		0,161	
7	3	2012	4,81	0,028	0,013				0,033	0,015			0,045				0,205	0,026	31,926	1,082		0,017
8	3	2012	4,66		0,021					0,004		0,006	0,016	0,002			0,128	0,072	25,326	0,543		0,005
20	3	2012	5,88	0,027	0,025	0,004								0,004			0,113		41,687	1,607		0,015
29	3	2012	6,19	0,097	0,049	0,005	0,050	0,013	0,046	0,002			0,006	0,004			0,128	0,041	42,989	0,471		0,153
2	4	2012	6,56		0,005		0,002			0,002	0,002			0,004					23,653	0,068		0,005
5	4	2012	6,60	0,003	0,005	0,002		0,003		0,007									15,844	0,073		0,005

11	4	2012	6,73	0,071	0,017		0,007			0,010	0,003				0,001		21,050	0,046	0,039	0,004
12	5	2012	6,37			0,002				0,010		0,010				0,047	11,754	0,035		0,005
15	5	2012	6,67	0,004			0,007					0,006					13,613	0,043		0,019
16	5	2012	5,86					0,021	0,004	0,002						0,002	11,754	0,050		0,062
20	5	2012	6,14		0,009				0,002			0,006	0,004				11,289	0,072		0,002

TÜBİTAK
PROJE ÖZET BİLGİ FORMU

Proje Yürütücüsü:	Prof. Dr. SÜLEYMAN GÜRDAL TUNCEL
Proje No:	108Y306
Proje Başlığı:	Üst Atmosfer Hava Kütlelerinin Türkiye Üzerindeki Seyahatleri Sırasında Kompozisyonlarında Olan Değişimlerin İncelenmesi ve Kırsal Hava Kirliliğine Yurt İçi ve Yurt Dışı Kaynakların Katkı Paylarının Belirlenmesi
Proje Türü:	Araştırma
Proje Süresi:	36
Araştırmacılar:	TÜLAY BALTA, CİHAN DÜNDAR, ALİ İHSAN İLHAN, YAKUP KALAYCI, RIDVAN KIRMAZ, ABDULLAH ZARARSIZ
Danışmanlar:	
Projenin Yürütüldüğü Kuruluş ve Adresi:	ORTA DOĞU TEKNİK Ü. MÜHENDİSLİK F. ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ B.
Projenin Başlangıç ve Bitiş Tarihleri:	15/05/2009 - 15/05/2013
Onaylanan Bütçe:	441850.0
Harcanan Bütçe:	402745.15
Öz:	<p>Özet</p> <p>Bu çalışmada Türkiye’de dört noktada toplanan aerosol ve yağmur suyu örnekleri XRF, ICPMS ve IC gibi tekniklerle analiz edilerek eser element ve iyonları içeren çok büyük bir veri seti oluşturulmuştur. Bu kadar çok sayıda örneğin rutin olarak toplanması ve analizi oldukça büyük ve güçlü bir analitik alt yapı gerektirmiştir. Bu analitik alt yapı ODTÜ, Çevre mühendisliği bölümü, ODTÜ Merkezi laboratuvarı , ANAEM ve MGM nün güçlerini birleştirmesiyle sağlanmıştır.</p> <p>Verilere uygulanan istatistik araçlarla Bölgedeki aerosol proseslerinden bazılarının yanıt vermeye çalışılmıştır. Bu çalışmanın başından beri yanıtlanmasına çalışılan en önemli soru Türkiye’nin farklı yerlerinde ölçülen kirlenici konsantrasyonlarında Türkiye’deki ve yurt dışındaki kaynakların katkılarının ne kadar olduğu sorusudur. Bu soruya çalışmada iki aşamalı bir yaklaşım uygulanmıştır. Birincisi Değişik istasyonlarda ölçülen kirlenici konsantrasyonlarının yıllık ortalama değerlerinin karşılaştırılması şeklinde bir seküler yaklaşımdır. Bu yaklaşımdan, elementlerin farklı davranışlar gösterdiği bazı elementlerin Trabzon ve Antalya’da ölçülen konsantrasyonlarına Türkiye’deki kaynakların katkıda bulunduğu görülürken, büyük bir bölümüne ise ulusal kaynakların katkılarının çok az olduğu anlaşılmıştır. İkinci yaklaşımda ise geri yörüngeler teker, teker değerlendirilmiştir. İstasyonlardan birinden başlayan ve Kırklareli istasyonunun üzerinden geçen geri yörüngeler belirlenmiş ve bu hava kütlelerinin istasyonun üzerinde olduğu günlerde toplanan örneklerdeki element ve iyon konsantrasyonları karşılaştırılmıştır. Bu yaklaşımdan elde edilen sonuçların da çok farklı olmadığı görülmüştür.</p> <p>Bu temel sorunun yanında ölçülen elementlerin mevsimsel değişimleri incelenmiş ve PMF tekniği kullanılarak istasyonlardaki aerosol popülasyonunu oluşturan bileşenler araştırılmıştır</p>
Anahtar Kelimeler:	Hava kirliliği, atmosferik taşınım, eser element, kaynak belirleme PMF
Fikri Ürün Bildirim Formu Sunuldu Mu?:	Hayır