

Summary

Atmospheric aerosols comprise a wide range of solid or liquid particles suspended in our atmosphere, contributing significantly to air pollution. Besides climate effects by scattering, absorption and modification of cloud properties, aerosols show negative acute and long-term health effects. Moreover, the negative impacts of aerosols on health are enhanced in heavily urbanized areas, especially in India and China, due to increased emissions from a wide array of sources and high population density. In order to develop effective mitigation strategies, the quantification and characterization of emission sources is an essential precondition.

Aerosols are a complex mixture of thousands of individual compounds, among them elements or metals which have a high degree of source specificity and chemical stability, making them powerful chemical species for aerosol source apportionment (SA) studies. In this work, we exploited the use of a recently developed near real time ambient metals monitor (Xact, based on X-ray fluorescence spectrometry) across Europe (Härkingen, Switzerland, and Krakow, Poland) and Asia (Beijing, China, and Delhi, India) to measure highly time-resolved (30 min to 1 h) elemental data in different particulate matter size ranges (PM_{10} and $PM_{2.5}$). In the first study, an advanced statistical SA technique was applied on the Härkingen dataset to explore the first use of an Xact for SA in Europe where the concentrations are considerably lower than in Asia. The SA results from this data revealed a strong influence from the secondary sulfate, followed by traffic emissions and dust-related (road and background) emissions, while lower contributions came from sea salt and industrial emissions. In addition to that, fireworks-related factors captured during the Swiss National Day celebration were also resolved. The comparison of elemental concentrations in European and Asian cities was the focus in the second study. Extremely high concentrations of elements were observed in Delhi as compared to Beijing and European cities. This study showed that the elements can be broadly classified into five groups on a global scale: dust-related (Si, Ca, Ti, Sr), traffic (Ba, Zr, Mn, Fe, Ni), solid fuel combustion (K), traffic/industrial (Cu), industrial/coal/waste burning emissions (Pb, Zn, S, Cl, Br). In addition to that, a strong enrichment of toxic elements was observed in these cities. In the third study, we developed a combined method to investigate sources and their potential source regions in the Delhi urban atmosphere. The SA analysis identified nine sources: S-rich, dust-related, brake wear, two for solid fuel combustion, and four for plume-like events. The analyses revealed strong source contribution enhancements during late night until early morning, consistent with enhanced emissions in stagnant ambient conditions. Furthermore, the dust-related and brake wear factors were strongly enriched in elemental PM_{10} while the remaining factors were mostly dominant in elemental $PM_{2.5}$.

Zusammenfassung

Atmosphärische Aerosole umfassen einen grossen Bereich von festen und flüssigen Teilchen, welche in unserer Atmosphäre schweben, und welche signifikant zur Luftverschmutzung beitragen. Neben Klima-Effekten durch Streuung, Absorption und Änderung von Wolkeneigenschaften weisen Aerosole auch akute und langzeitige negative Gesundheitseffekte auf. Zudem werden die negativen Auswirkungen auf die Gesundheit in städtischen Gebieten, wie etwa in Indien und China, noch verstärkt durch vermehrte Emissionen aus einer breiten Palette von Quellen, sowie durch die hohe Bevölkerungsdichte. Um effektive Minderungsstrategien entwickeln zu können, ist die Quantifizierung und Charakterisierung der Emissionsquellen eine wesentliche Voraussetzung.

Aerosole sind eine komplexe Mischung aus Tausenden von individuellen Komponenten, darunter Elemente oder Metalle, welche einen hohen Grad von Quellenspezifität und chemischer Stabilität aufweisen, was sie zu leistungsstarken chemischen Spezies für Quellenzuordnungsstudien (QZ) macht. In der vorliegenden Arbeit untersuchten wir den Einsatz eines kürzlich entwickelten quasi-Echtzeit-Umwelt-Elementmonitors (Xact, basierend auf der Röntgenfluoreszenzspektrometrie) in Europa (Härkingen, Schweiz, und Krakau, Polen) sowie in Asien (Beijing, China, und Delhi, Indien) für die Messung zeitlich hochaufgelöster (30 min bis 1 Std) Elementkonzentrationen in Feinstaub verschiedener Grössenklassen (PM₁₀ und PM_{2.5}). In der ersten Studie wurde eine fortgeschrittene QZ-Technik angewendet auf einen Datensatz von Härkingen, um die erste Anwendung eines Xact für die QZ in Europa zu untersuchen, wo die Konzentrationen erheblich niedriger sind als in Asien. Die QZ-Resultate aus diesen Daten zeigten einen starken Einfluss von sekundärem Sulfat auf, gefolgt von Verkehrsemissionen und staub-bezogenen (Strasse und Hintergrund) Emissionen, während geringere Beiträge von Meersalz und industriellen Emissionen herrührten. Zusätzlich wurden Feuerwerksfaktoren gefunden, welche während des Schweizer Nationalfeiertags auftraten. Der Vergleich der Elementkonzentrationen in europäischen und asiatischen Städten bildeten den Schwerpunkt der zweiten Studie. Extrem hohe Elementkonzentrationen wurden in Delhi beobachtet, im Vergleich zu Beijing und den europäischen Städten. Diese Studie zeigte auf, dass Elemente auf einer globalen Skala grob in fünf Gruppen aufgeteilt werden können: staub-bezogen (Si, Ca, Ti, Sr), Verkehr (Ba, Zr, Mn, Fe, Ni), Feststoffverbrennung (K), Verkehr und Industrie (Cu), Industrie/ Kohle/ Abfallverbrennungsemissionen (Pb, Zn, S, Cl, Br). Zusätzlich wurde eine starke Anreicherung von toxischen Elementen in diesen Städten beobachtet. In der dritten Studie entwickelten wir eine kombinierte Methode, um die Quellen der Aerosole in der Delhi-Atmosphäre und deren potentielle Herkunftsgebiete zu untersuchen. Die QZ identifizierte neun Quellen: schwefelreich, staub-bezogen, Bremsabrieb, zwei für die Verbrennung fester Brennstoffe, und vier für Ereignisse mit Rauchfahnen. Die Untersuchungen ergaben starke Zunahmen von Quellen in der späten Nacht und am

frühen Morgen, die konsistent waren mit verstärkten Emissionen in stagnierenden Wetterlagen. Zudem waren die staub-bezogenen und Bremsabrieb-Faktoren besonders stark vorhanden in den elementaren PM₁₀ Daten, während die verbleibenden Elemente vor allem im elementaren PM_{2.5} dominierten.