Die Nukleation von Düsentriebwerksöldämpfen ist eine große Quelle von luftfahrtbezogenen ultrafeinen Partikeln

<u>Florian Ungeheuer</u>, <u>Lucía Caudillo</u>, <u>Florian Ditas</u>, <u>Mario Simon</u>, <u>Dominik van Pinxteren</u>, <u>Doğuşhan Kılıç</u>, <u>Diana Rose</u>, <u>Stefan Jacobi</u>, <u>Andreas Kürten</u>, <u>Joachim Curtius</u> & <u>Alexander L. Vogel</u>

<u>Kommunikation Erde & Umwelt</u> Volumen 3, Artikelnummer: 319 (2022) <u>Diesen Artikel zitieren</u>

Abstrakt

Große Flughäfen sind eine Hauptquelle für ultrafeine Partikel, die sich über dicht besiedelte Wohngebiete ausbreiten und die Luftgualität und die menschliche Gesundheit beeinträchtigen. Schmieröle für Strahltriebwerke sind in luftfahrtbezogenen ultrafeinen Partikeln nachweisbar, ihre Rolle bei der Partikelbildung und dem Wachstum bleibt jedoch unklar. Hier zeigen wir die Flüchtigkeit und die Fähigkeit zur Bildung neuer Partikel eines herkömmlichen synthetischen Jet-Öls und den quantifizierten Ölanteil in ultrafeinen Partikeln in der Luft in Windrichtung des internationalen Flughafens Frankfurt, Deutschland. Wir finden, dass der Ölmassenanteil bei den kleinsten Partikeln (10-18 nm) mit durchschnittlich 21% am größten ist. Durch die Kombination der Partikelphasenkonzentration in der Umgebungsluft und der Flüchtigkeit der Düsenölverbindungen bestimmen wir ein unteres Sättigungsverhältnis größer als 1 × 10 ⁵für sehr schwerflüchtige organische Verbindungen. Dies weist darauf hin, dass das Öl ein wirksames Nukleierungsmittel ist. Unsere Ergebnisse zeigen, dass Jet-Öl-Keimbildung ein wichtiger Mechanismus ist, der die zahlreichen Beobachtungen von hohen Konzentrationen von nicht feuerfesten ultrafeinen Partikeln in der Nähe von Flughäfen erklären kann.

Einführung

Mehrere Studien identifizierten Flughäfen als Hauptquelle für ultrafeine Partikel (UFPs) <u>1·2·3·4·5·6·7·8</u> . Unter verschiedenen

Triebwerksbetriebsbedingungen an den Flughäfen ist der Start oft mit den höchsten UFP-Emissionen verbunden <u>3/9/10/11/12</u>. Diese Partikel werden typischerweise über eine Gas-zu-Partikel-Umwandlung nach der Verbrennung 13 gebildet . Transmissionselektronenmikroskopische Analysen von UFPs aus der Luftfahrt zeigen sphärische Partikel mit flüchtigem Charakter im Hochvakuum 14. Sie können über große Entfernungen von der Quelle bis in dicht besiedelte Wohngebiete transportiert werden, da große Flughäfen meist in unmittelbarer Nähe von Ballungsräumen liegen <u>3, 15, 16</u>. UFP-Emissionen aus dem Flughafenbetrieb führen zu einer höheren Partikelkonzentration (PNC) in der Umgebung von Flughäfen, bei begrenztem Wissen über ihre chemische Zusammensetzung 17, 18. Der UFP-Transport und die anschließende Infiltration in die Innenraumumgebung scheinen relevanter zu sein als die Infiltration von PM 2,5 und PM 10 18, 19. Die Anzahl-Größen-Verteilungen von Partikeln, die von Strahltriebwerken emittiert werden, werden von einem Modendurchmesser kleiner als ~30 nm dominiert, der im Vergleich zu Partikeln aus Straßenverkehrsemissionen 12, 20, 21, 22, 23 deutlich kleiner ist . Bestandteile von Strahltriebwerksöl (ergänzende Abb. 1) wurden in UFPs in der Nähe der Flughäfen 2,7,24,25,26 identifiziert . Schmieröle werden von Flugzeugtriebwerken durch eine Entlüftungsöffnung und unbeabsichtigt als Lecks des Ölumlaufsystems (dh aufgrund verschlissener

Dichtungen) 24 abgegeben .

Aufgrund der geringen Größe von UFPs sind expositionsbedingte Gesundheitseffekte von Bedeutung, da sie möglicherweise die Alveolen erreichen, das Lungenepithel in den unteren Atemwegen durchdringen und die Luft-Blut-Schranke verschieben <u>27 28 29 30</u>. Tierversuche zeigten auch, dass sie über den Riechnerv unter Umgehung der Blut-Hirn-Schranke 31 zum zentralen Nervensystem gelangen können . UFPs können innerhalb von Minuten bis Stunden in das Atmungs- und Herz-Kreislauf-System eindringen und sind noch Monate nach der Exposition nachweisbar 32. Abhängig von ihrer chemischen Zusammensetzung können UFPs oxidativen Stress, Entzündungsreaktionen und Zellmembranschäden auslösen <u>33/34/35</u>. Gesundheitliche Wirkungen hängen von ihrer Partikelgröße, Massen- und Anzahlkonzentration 5 und zusätzlich von individuellen Eigenschaften wie Oberfläche, Löslichkeit, oxidativem Potenzial und der Fähigkeit ab, der Phagozytose von Makrophagen entgegenzuwirken_36. Mehrere Studien untersuchten die UFP-Exposition von Flughafen-Bodenpersonal und Passagieren<u>37,38</u> und gesundheitliche

Auswirkungen aufgrund einer UFP-Exposition in der Nähe des Flughafens <u>6</u>. Eine kürzlich durchgeführte Kohortenstudie berichtete von einem um 12 % erhöhten Risiko für die Entwicklung eines bösartigen Hirntumors im Flughafenbereich von Los Angeles für jede Erhöhung der UFP-Exposition um 6.700 Partikel cm <u>39</u>. Dieser Befund wird durch eine Studie aus Toronto gestützt, die eine Hazard Ratio von 1,112 bei der Entwicklung eines bösartigen Hirntumors pro UFP-Zunahme von 10.000 Partikeln cm <u>3</u>, bereinigt um andere Luftschadstoffe und soziodemografische Faktoren, berichtet <u>40</u>. Eine Studie über die gesundheitlichen Auswirkungen einer langfristigen UFP-Exposition von Flughafenmitarbeitern ergab keinen Zusammenhang mit Herz-Kreislauf-Erkrankungen <u>41</u>.

Ultrafeine und feine Partikelemissionen von Strahltriebwerken während des Fluges wurden ebenfalls untersucht 42,43. Hier wurde der Fokus auf die Bestimmung von Emissionsindizes für Partikelemissionen im Reiseflug und deren Rolle bei der Kondensstreifen- und Zirrusbildung gelegt 44. Es wurde diskutiert, dass Rußemissionen die Bildung von Eiskristallen in Kondensstreifen dominieren, insbesondere im rußreichen Regime, das durch Rußpartikelzahl-Emissionsindizes, Els, von mehr als ~10¹⁴ (kg-Kraftstoff) ⁻¹ 44 gekennzeichnet ist. Jüngste Studien haben gezeigt, dass die Rußbildung durch Flugzeugtriebwerke, die pflanzliche Biokraftstoffe verbrennen, die mit erdölbasiertem herkömmlichem Kerosin (Jet A) oder Mischungen aus synthetischen Kraftstoffen (Fischer-Tropsch) mit Jet A-Kraftstoff gemischt werden, beides die Rußbildung erheblich reduziert <u>43,45</u>, was wahrscheinlich durch den Aromatengehalt von Bio- und synthetischen Kraftstoffen nahe Null erklärt wird. Es wurde angenommen, dass ultrafeine flüchtige Partikel hauptsächlich aus Schwefelsäure und organischen Kraftstoffkomponenten bestehen, die in der jungen Abgasfahne <u>46,47</u> Keime bilden, aber Jet-Schmieröl wurde bisher nicht als wichtige Quelle der frisch gebildeten Partikel in der Abgasfahne vorgeschlagen im Flug.

In unserer vorherigen Studie zu flughafenbezogenen UFPs haben wir gezeigt, dass Schmieröle für Düsentriebwerke das Spektrum der nachgewiesenen organischen Verbindungen nach einer Nicht-Zielanalyse dominieren <u>26</u>. Im Anschluss an diese nicht zielgerichtete Studie beschreiben wir hier die Nukleationsfähigkeit von Düsenöldämpfen in Laborexperimenten und durch Quantifizierung von Düsentriebwerksölbestandteilen in drei Umgebungs-UFP-Größenfraktionen (<56 nm) in Windrichtung des internationalen Flughafens Frankfurt.

Ergebnisse

Flüchtigkeit und Neupartikelbildung von Strahltriebwerksschmieröl

Wir verglichen Partikelgrößenverteilungen (PNSD) von Umgebungs-UFPs mit im Labor erzeugten Düsenölpartikeln. Bei den Umgebungsmessungen in Frankfurt-Schwanheim (ergänzende Abb. 2) beobachten wir einen deutlichen Unterschied zwischen UFPs vom Flughafen und der Innenstadt (Abb. <u>1a</u>). Luftmassen, die vom Frankfurter Flughafen transportiert werden, zeigen eine ~ 15-mal höhere PNC von UFPs bei ~ 18 nm im Vergleich zu Luftmassen aus der Innenstadt (Windrosen sind in ergänzender Abb. <u>3</u> dargestellt). Bei größeren UFPs wird dieser Unterschied weniger ausgeprägt. Im Labor untersuchten wir die PNSD von zerstäubtem Schmieröl, das einen Thermodenuder bei 20 °C und 300 °C passierte, um die Flüchtigkeit und Keimbildungsfähigkeit der Jet-Öl-Verbindungen zu untersuchen. Wenn die Jet-Öl-Partikel (mittlerer Durchmesser 27 nm) den Thermodenuder bei 300 °C passieren, beobachten wir eine mehr als fünffache Erhöhung der Partikelanzahlkonzentration im Vergleich zum Versuch bei 20 °C und eine Verringerung des mittleren Durchmessers bis auf ~10 nm der gemessenen Partikel (Abb. 1b). Obwohl die Partikel den Thermodenuder passierten, ist es wichtig zu erwähnen, dass die PNSD-Messung stromabwärts des Heizabschnitts bei Raumtemperatur durchgeführt wurde. Die Flüchtigkeit des Jet-Öls bei 300 °C ist offensichtlich, da der Massenanteil des Jet-Öls im Vergleich zum Kontrollversuch bei 20 °C um ~99 % reduziert ist (Abb. 1c). Stromabwärts des Heizabschnitts des Thermodenuders geht wahrscheinlich der Großteil der Öldämpfe in der Gasphase an den Oberflächen der Rohre verloren. Ein kleiner Teil der Öldämpfe bildet jedoch innerhalb weniger Sekunden Keime und bildet neue Partikel stromabwärts des Thermodenuders, wenn die Temperatur des Probenahmestroms einen Punkt erreicht, an dem der Öldampf übersättigt wird. Das schnelle Wachstum von Partikeln auf Größen >10 nm ermöglicht es, dem "Tal des Todes" im Keimbildungsmodus zu entkommen<u>48</u>, in dem kleine Partikel effizient durch Koagulation abgefangen werden. Das Thermodenuder-Experiment zeigt, dass Triebwerksölpartikel bei 300 °C flüchtige UFPs sind, und es kann angenommen werden, dass sich das Öl vollständig in die Gasphase abscheidet, wenn es den Betriebstemperaturen von Flugzeug-Turbofan-Triebwerken (»300 °C49) ausgesetzt wird.

Abb. 1: Partikelgrößenverteilungen von Umgebungs- und Laborerzeugten ultrafeinen Partikeln.



Umgebungspartikelgrößenverteilung (**a**) am Messstandort bei Windrichtung (WD) vom Flughafen (grau) und der Stadt (gelb), gemittelt über drei Tage (05:00–23:00 MEZ). Anzahl-Größen- (b) und Masse-Größen-Verteilung (**c**) aus zwei Laborexperimenten, jeweils mit Düsenöl-Nanopartikeln, erzeugt aus einer methanolischen Lösung, nativ bei 20 °C (blau & hellblau) und nach Erhitzen auf 300 °C (rot & hellrot). Messdaten (schwarze Punkte) wurden unter Verwendung einer Lognormalverteilung angepasst.

Bild in voller Größe

Anteil des Schmieröls in Umgebungs-UFP-Proben

Wir haben die Bestandteile von Strahltriebwerksöl (ergänzende

Abb. <u>1</u> und ergänzende Anmerkung <u>1</u>) aus Umgebungspartikelproben quantifiziert, um die Ölfraktion in UFPs in der Nähe des Frankfurter Flughafens zu bestimmen. Daher haben wir UFP-Proben in Windrichtung des Flughafens in Frankfurt-Schwanheim gesammelt, als Luftmassen vom Flughafen eintrafen (Abb. <u>2a–d</u>). Mit einem Kaskadenimpaktor (Nano-MOUDI) haben wir UFPs während sieben Perioden (18–54 h) in drei verschiedenen UFP-Größenbehältern (10–18 nm, 18–32 nm, 32–56 nm) für die anschließende chemische Analyse beprobt. Aus den kontinuierlichen Messungen der PNSD berechneten wir die Massenkonzentration (Öldichte = 1 g cm⁻³, siehe Durdina et al. <u>50</u>) für die drei untersuchten Partikelgrößenklassen (Abb. <u>2b–d</u>). Die entsprechende Konzentration der UFP-Zahl ist in der ergänzenden Fig. <u>4</u> gezeigt . Die Partikelmassenkonzentration der beiden Bins mit der kleinsten Größe (< 32 nm) stieg signifikant an (zweiseitiger *t* - Test, *p* < 0,001), wenn die Windrichtung während der Betriebszeiten in den Flughafensektor fällt, im Vergleich zu Perioden mit anderen Windrichtungen oder Nicht-Betriebszeiten. Die Variabilität größerer UFPs (>32 nm) zeigt dieses Verhalten nicht (Abb. 2d-q). Dies steht im Einklang mit früheren Studien, die besagen, dass der Modendurchmesser von flugzeugbedingten Partikelemissionen kleiner als 30 nm ist, während der Modendurchmesser von Partikeln aus Straßenfahrzeugen überwiegend größer als 30 nm ist <u>3</u>, <u>12</u>, <u>22</u>, <u>23</u>. Die Partikelanzahlkonzentration (< 32 nm) erreicht gegen Mitternacht das ländliche Hintergrundniveau. Daher betrachten wir die nächtlichen Perioden zwischen 00:00–05:00 MEZ benachbart zu jedem Probenahmetag als mittlere Partikelmassenkonzentration im ländlichen Hintergrund, die weitgehend unbeeinflusst von UFPs vom Flughafen ist (dunkelrote Balken in Abb. <u>2b-d</u>). Die Subtraktion der mittleren Hintergrundmasse von der Masse während der UFP-Probenahme ergibt die gesamte akkumulierte UFP-Masse auf jeder Impaktorstufe, die dem Flughafen zugeordnet werden kann (ergänzende Abbildung <u>5</u> und ergänzende Tabelle 1). Dieser Ansatz des Massenschlusses lässt sich nicht auf die größte Stufe (32–56 nm) übertragen, da die Partikelmassenkonzentration im Ruhezustand teilweise höhere Werte erreicht als während der Betriebsstunden (Abb. 2d).



Abb. 2: Übersicht der aus PNSD-Messungen und Windrichtung abgeleiteten UFP-Massenkonzentrationen am Flughafen Frankfurt.

Windrichtung (**a**) mit Windgeschwindigkeit, die durch den Farbcode angezeigt wird. Die Winddaten werden von der Meteorologischen Station am Flughafen Frankfurt (International Civil Aviation Organization, ICAO, Code: EDDF) des Deutschen Wetterdienstes (DWD) bereitgestellt. Die umgebende UFP-Massenkonzentration (µg m -³) in den Größenbereichen 10–18 nm (**b**), 18–32 nm (**c**) und 32–56 nm (d) und die Nano-MOUDI-

Abtastintervalle (horizontale Linien), die die durchschnittliche Massenkonzentration während der Probenahmezeiten (blau) und die durchschnittliche Hintergrundmassenkonzentration (dunkelrot) anzeigt. Boxplots in (**e**) zeigen die Streuung der Gesamtmassenkonzentrationen (µg m -3) für 10–18 nm, 18–32 nm und 32– 56 nm Partikel während der Betriebs- und Nichtbetriebszeiten des Flughafens (basierend auf SMPS-Daten der Probenahme- und Hintergrundkorrekturperioden). Der untere und obere Rand der Kästchen geben den Quartilsabstand an, und die horizontale Linie innerhalb der Kästchen gibt den Median an. Die Whisker zeigen die Streuung zu den extremsten Werten. Die Windrosen zeigen die vorherrschenden Windrichtungen während der Filterbeprobung während der Betriebszeiten des Flughafens (**f**). Darüber hinaus werden die Windrichtungen während der Nicht-Betriebsstundenperioden, die für die SMPS-Hintergrundkorrektur verwendet werden, angezeigt (**g**).

Bild in voller Größe

Wir quantifizierten die Jet-Öl-Konzentration der einzelnen Impaktorstufen, indem wir authentische Standards zu Aliquots der Filterextrakte hinzufügten (Standardadditionsverfahren). Darüber hinaus haben wir Partikelverluste im Nano-MOUDI basierend auf einer experimentell bestimmten Verlustfunktion der drei Nanostufen korrigiert (siehe Abschnitt Methoden). Wir stellen fest, dass Strahltriebwerksöle durchschnittlich 21 ± 11 % zur UFP-Masse im Größenbereich von 10–18 nm beitragen. Der Jet-Öl-Massenanteil einzelner Proben im 10–18-nm-Bin variiert zwischen 10 und 38 %, mit allgemein höheren Werten bei kurzen Probenahmeintervallen. Der Beitrag von Strahltriebwerksöl zur Gesamtmasse der 18-32 nm großen Partikel beträgt im Durchschnitt nur 5 ± 3 % (Fehlerschätzung siehe Anhang 2). Da die Hintergrundsubtraktion nicht auf die größte Stufe angewendet werden konnte, haben wir die nicht hintergrundkorrigierte SMPS-Masse der 32–56-nm-Stufe verwendet und einen Mittelwert von 9 % für die Ölfraktion dieses Größenbehälters gefunden. Daher weist die kleinste Partikelstufe durchweg den höchsten Massenanteil von Strahltriebwerksschmierölen auf (Ergänzungstabelle 1 und Ergänzungsabbildung 6).

Die Berechnung des fraktionierten Ölbeitrags auf allen drei Stufen berücksichtigte experimentell bestimmte Partikelverluste. In Bezug auf Verdunstungsverluste beobachten wir eine Verzerrung in der molekularen Zusammensetzung von Düsenöl aus den Umgebungsproben, die gut durch die Verdunstung der halbflüchtigen Additive während der Nano-MOUDI-Probenahme erklärt werden kann (Ergänzungstabelle 2). Wir haben die Probenahmeeffizienz des Nano-MOUDI gegenüber halbflüchtigen Stoffen auf der Basis von reinen Ethyloleat-UFPs (C 20 H 38 O 2) bewertet, 98 %, Sigma-Aldrich) aus einer zerstäubten Lösung. Obwohl die erzeugte PNSD den gesamten Nano-MOUDI-Bereich abdeckte, konnten wir die Verbindung nur auf der Stufe 32–56 nm (mit der niedrigsten Druckdifferenz der drei Nano-MOUDI-Stufen) nachweisen, und sogar auf dieser Stufe beobachteten wir einen Verlust von > 99 Masse-% der Ethyl-Oleat-UFPs. Der Dampfdruck von Ethyloleat beträgt 8,10 × 10 -3 Pa (EPI Suite 51), was dem Dampfdruck des N-Phenyl-1-naphthylamin-Jet-Öl-Additivs ähnlich ist. Die anderen Additive und die Jet-Öl-Ester weisen niedrigere Dampfdrücke auf (Ergänzungstabelle 2). Somit kann festgehalten werden, dass der Dampfdruck und diesbezüglich die Verflüchtigung schwerflüchtiger Verbindungen der wichtigste Verlustprozess bei der Probenahme im Nano-MOUDI ist. Glücklicherweise sind Jet-Oil-Ester extrem schwerflüchtig, sodass die Verdunstung dieser Verbindungsklasse während der Probenahme vernachlässigbar ist.

Ester der Schmierölgrundstoffe im Flüchtigkeitsbasissatz

Die beobachtete Neupartikelbildung stromabwärts des Thermodenuders und der größte Massenanteil von Schmieröl in den kleinsten Umgebungs-UFPs legen nahe, dass Schmierölemissionen aus Strahltriebwerken eine entscheidende Rolle bei der Keimbildung und dem frühen Wachstum neuer Partikel spielen. Wir haben diese Hypothese weiter bewertet, indem wir die synthetischen Ester der Öle in den Flüchtigkeitsbasissatz (VBS 52, 53, 54) eingeteilt haben. Abbildung <u>3a</u> zeigt die quantifizierte Umgebungspartikelphasenkonzentration von einzelnen Estern aus zwei verschiedenen Jet-Öl-Basismaterialien: Pentaerythritester (C 27-38 H 48-70 O 8) und Trimethylolpropanester (C 27-34 H 50-64 O6). Wir haben das SIMPOL.1-Modell 55 verwendet, um die Dampfdrücke der verschiedenen Ester abzuschätzen. Wir haben dann ihre Sättigungsmassenkonzentration (bei 293,15 K) berechnet, die der Kehrwert der Gas-Partikel-Verteilungskonstante ist [Gl. 1] und Volatilitätsklassen 56 zugeordnet . In den Umgebungs-UFP-Proben haben wir Partikelphasenkonzentrationen der Ester zwischen 0,01 und 4 ng m⁻³ gemessen. Anschließend berechneten wir die theoretische Gasphasenkonzentration unter der Annahme, dass sich die Verteilung der Ester bei Umgebungstemperatur vollständig in die Gasphase verlagern würde [GI. 2C*ichCi*]. Da die Schmierölkonzentration zwischen dem Flughafen und der Messstation in Frankfurt-Schwanheim nicht um die atmosphärische Verdünnung korrigiert wird, liegt die Gasphasenkonzentration in den Triebwerksabgasfahnen bei hohen Temperaturen (> 300 °C) sicherlich über dieser Untergrenze Schätzung in Windrichtung des Flughafens. Wir beobachten jedoch immer noch ein großes Sättigungsverhältnis der theoretischen Gasphasenkonzentration [Gl. 3], die wir aus Umgebungskonzentrationen in der Partikelphase abgeleitet haben (Abb. 3b). Die drei größten Pentaerythritester, die in den Bereich der Ultra-Low-Volatility fallen, erreichen ein Sättigungsverhältnis von bis zu 3 × 10 ⁵. Obwohl diese Berechnung eine Schätzung der unteren Grenze ist, stützt sie die Hypothese, dass die synthetischen Ester aus Schmierölen eine schnelle Keimbildung in der Abgasfahne von Flugzeugtriebwerken initiieren können. Basierend auf der theoretischen Gasphasenkonzentration haben wir auch die Temperatur bestimmt, bei der jede einzelne Esterverbindung während des Abkühlens der Gasphasenübersättigung erreicht Abgasfahne [Gl. 6] (Abb. 3c). Bei ~60

°C sind die extrem schwerflüchtigen Pentaerythritolester (C $_{36}$ H $_{66}$ O $_{8}$ – C $_{38}$ H $_{70}$ O $_{8}$) die ersten Verbindungen, die (S*ich> 1)(Si*>1){S}_{i}^{*} > 1S*ich> 1Si*>1, obwohl ihre Umgebungskonzentration eine Größenordnung niedriger ist als die des extrem schwerflüchtigen Esters

C $_{29}$ H $_{52}$ O $_8$. Basierend auf unseren Messungen beobachten wir, dass alle synthetischen Ester bei Umgebungstemperatur eine Übersättigung erreichen, mit Ausnahme der drei flüchtigsten Trimethylolpropanester C $_{27\text{-}}$ $_{29}$ H $_{50\text{-}54}$ O $_6$.





a Quantifizierte Umgebungspartikelkonzentration (ng m ⁻³) jeder synthetischen Esterverbindung (C ₂₇₋₃₈ H ₄₈₋₇₀ O ₈ (rote Kästen); C ₂₇₋₃₄ H ₅₀₋₆₄ O ₆ (blaue Kästen)), aufgetragen gegen dieProtokoll10C*ichlog10Ci*bei 20 °C (ULVOC: ultra-low volatility-, ELVOC: extrem-low volatility-, LVOC: low-volatility organic compound). Die Kästen zeigen die Streuung der quantifizierten Massenkonzentrationen (10–56 nm) als Quartilsabstand während der Betriebszeiten des Flughafens. Die horizontale Linie innerhalb der Kästchen zeigt den Median und die Schnurrhaare zeigen die Streuung zu den extremsten Werten. Werte außerhalb von $\pm 2,7 \sigma$ werden durch "o"- Symbole als Ausreißer gekennzeichnet. **b** Resultierendes Gasphasensättigungsverhältnis (20 °C) der theoretischen Gasphasenkonzentration, wenn alle Partikel- Phasenverbindungen von (**a**) würden sich in die Gasphase verteilen. Werte von (20 °C) über 1 (gelbe Linie) weisen auf Übersättigung hin. $c{\{\{S\}\}}_{\{\{i\}\}}^{\{\{i\}\}}^{\{\{i\}\}}_{\{\{i\}\}}^{\{\{i\}\}}^{\{\{i\}\}}^{\{\{i\}\}}^{\{\{i\}\}}^{\{\{i\}\}}^{\{\{i\}\}}^{\{\{i\}\}}_{\{\{i\}\}}^{\{\{i\}$

<u>Bild in voller Größe</u>

Diskussion

Wir interpretieren unser Labor-Thermodenuder-Experiment so, dass erhitzte Ölpartikel aus einer zerstäubten Lösung gasförmige Öldämpfe erzeugen, die direkt hinter dem erhitzten Abschnitt Keime bilden und neue ~10-nm-Partikel bilden. Dieses Experiment zeigt, dass die Jet-Öl-Verbindungen bei 300 °C flüchtig sind, aber auch wirksame Keimbildner bei Raum- oder Umgebungstemperatur. Der Partikeldurchmesser der frisch nukleierten Partikel in unserem Laborexperiment erscheint im gleichen Größenbereich wie die Umgebungs-UFPs in Windrichtung des Frankfurter Flughafens. Sicherlich spiegeln diese Laborexperimente nicht die volle Komplexität der Strahltriebwerksemissionen in der Atmosphäre wider. In realen Emissionsfahnen könnten nichtflüchtige Partikel (nvPM) die Keimbildung abfangen, indem sie eine Oberfläche für die Kondensation von Öldämpfen bereitstellen. Jedoch, 14, daher scheint es wahrscheinlich, dass eine große Anzahl dieser Partikel, die in Windrichtung von Flughäfen <u>12, 23</u> beobachtet werden, durch Nukleation von gasförmigen Strahlölemissionen gebildet werden.

Effiziente Keimbildung und Wachstum durch organische Verbindungen erfordern sowohl (ultra-low) flüchtige Verbindungen als auch ausreichend hohe Gasphasenkonzentrationen, um die Partikel schnell genug wachsen zu lassen. Die niedrigere Konzentration der drei organischen Verbindungen mit extrem niedriger Flüchtigkeit (ULVOCs) und die höheren Konzentrationen der organischen Verbindungen mit extrem niedriger Flüchtigkeit (ELVOCs) schaffen ideale Bedingungen für die anfängliche Nukleation durch die Jet-Öl-ULVOCs, gefolgt von einem schnellen Wachstum aufgrund von Kondensation von einem großen Gasphasenreservoir von Düsenöl-ELVOCs. Der Bereich der kritischen Temperaturen, bei denen die Verbindungen eine Übersättigung erreichen, deutet darauf hin, dass Keimbildung und Partikelwachstum im Nahfeld während der Abkühlung des heißen Abgases hinter dem Turbofan stattfinden (Abb. <u>4</u>) und kann den großen flüchtigen Anteil (bei erhöhten Temperaturen) von UFPs aus der Luftfahrt erklären. Inwieweit die Emission von nvPM aus Turbofan-Triebwerken diese Keimbildung und dieses Wachstum abfangen kann, muss weiter untersucht werden.



Emissionen von Flugzeug-Turbofan-Triebwerken führen zu einer schnellen Keimbildung und einem schnellen Wachstum von Düsenöldämpfen im Nahfeld. Nichtflüchtige Emissionen (nvPM) sind nicht dargestellt. Maße sind nicht maßstabsgetreu.

<u>Bild in voller Größe</u>

Tatsächlich hat die Reduzierung der nvPM-Emissionen (z. B. Ruß) von Flugzeugtriebwerken in den letzten Jahrzehnten 57– und damit die Verringerung der Kondensationssenke – könnte zu einer Erhöhung der Anzahlkonzentration flüchtiger UFPs geführt haben, die durch Nukleation von gasförmigen Öldämpfen oder Schwefelsäure gebildet werden. Dennoch deuten die ermittelten hohen Gasphasensättigungsverhältnisse der synthetischen ULVOC-Ester darauf hin, dass es trotz des Vorhandenseins der Kondensationssenke von nvPM zu Keimbildung kommen kann. Die Dynamik der Bildung und Kondensation halbflüchtiger Oxidationsprodukte (z. B. aus unvollständiger Verbrennung) wird in dieser Studie nicht untersucht, dient aber ergänzend zum Verständnis der UFP-Zusammensetzung. Daher sind die oben erwähnten Nano-MOUDI-Probenahmeartefakte kritisch, da schwer- und halbflüchtige Oxidationsprodukte, die zur UFP-Masse beitragen können, während der Probenahme verloren gehen.

Unsere Beobachtungen, dass Schmierölemissionen eine wichtige Quelle für UFPs sind, implizieren, dass diese Quelle nicht angegangen wird, indem herkömmliche Düsenkraftstoffe durch nachhaltige Flugkraftstoffe (SAF) ersetzt werden 45, und sollten daher auch bei den aktuellen Bestrebungen zur Eliminierung von UFP-Emissionen aus dem Luftverkehr berücksichtigt werden. Dementsprechend sollte der Luft-/Ölabscheider im Hinblick auf eine verbesserte Strahlölrückgewinnung und somit die Vermeidung von Ölemissionen optimiert werden. Darüber hinaus könnten die Entwicklung fortschrittlicher Wartungsroutinen und die Reduzierung der Gesamtbetriebszeit von Strahltriebwerken auf Flughäfen (z. B. durch Elektrifizierung der Bodenabfertigung) auch die Ölemissionen reduzieren. Darüber hinaus sollte eine Bewertung der toxikologischen Eigenschaften von Düsenöl-UFPs durchgeführt werden, um ihre gesundheitlichen Auswirkungen zu beurteilen, auch unter Berücksichtigung schädlicher und potenziell neurotoxischer Substanzen, die entweder direkt emittiert werden (z. B. Organophosphate als Schmieröladditive 58, 59) oder die durch thermische Umwandlung der eingesetzten Trimethylolpropanester (z. B. Trimethylolpropanphosphat) entstehen 26,60. Darüber hinaus müssen Schmierölemissionen während des Reiseflugs und ihre möglichen Auswirkungen auf die Cirruswolkenbildung weiter untersucht werden, da die Ölwirkung (z. B. als organische Beschichtung auf Rußpartikeln) noch nicht untersucht wurde.

Materialen und Methoden

Thermodenuder-Messungen für Strahltriebwerksöl

Wir haben Thermodenuder-Messungen verwendet, um die Flüchtigkeit von Düsenöl-UFPs zu bestimmen, da der neue internationale Flugzeug-Feinstaubstandard nur die Anzahl und Massenkonzentration von nvPM berücksichtigt <u>61</u>. Wir haben die Partikelgrößenverteilung von Mobil Jet ™ Oil II UFPs bestimmt, die unter Verwendung eines Zerstäubers (Nachbau des TSI-Modells 3076) mit 0,04 g L -1 Jet-Öl, gelöst in ultrareinem Methanol, gebildet wurden. Die resultierende PNSD nach dem Thermodenuder (betrieben bei 20 °C und 300 °C) wurde mit einem Scanning-Mobility Particle Sizer (SMPS, TSI, Modell: 3938, Shoreview, MN, USA) gemessen. Durch Vergleich der aus den PNSD-Messungen abgeleiteten Partikelmasse bei beiden Temperaturen wurde die verbleibende Triebwerksölfraktion nach der Heizstrecke ermittelt.

Impaktor-Probenahme und molekulare Charakterisierung

Ausführliche Informationen zu Probenahmetechnik, Probenvorbereitung und Extraktionsverfahren finden sich an anderer Stelle <u>26</u>. Kurz gesagt, wir verwendeten einen Micro Orifice Uniform Deposition Impactor (Nano-MOUDI, Modell 115, MSP, Minneapolis, MN, USA) an einem Standort zur Überwachung der Luftqualität in Frankfurt-Schwanheim und nahmen Proben von Partikeln auf den drei Nanostufen <56 nm. Alle Stufen wurden mit Aluminiumfolien (TSI, Durchmesser 47 mm und Dicke 0,015 mm) ausgestattet, und die oberen zehn Stufen wurden mit Apiezon®-Fett beschichtet, um das Abprallen größerer Partikel zu minimieren.

Im Zeitraum August bis Oktober 2019 haben wir UFPs für 18–54 h während der Flughafenbetriebszeit (5:00–23:00 Uhr MEZ) und bei südlicher Windrichtung beprobt. Ohne einen aktiven Probenluftstrom haben wir 115 h lang Feldblindproben auf den drei Nanostufen gesammelt, um mögliche Hintergrundkonzentrationen in Bezug auf die Zielverbindungen abzuschätzen. Wir haben die Filter bis zur Analyse bei –20 °C gelagert. Aufgrund der umfangreichen Probenahmezeiträume gehen wir davon aus, dass unsere UFP-Proben Flugzeugtriebwerke verschiedener Typen in unterschiedlichen Betriebszuständen repräsentieren. Dies ist unerlässlich, um die durchschnittliche UFP-Emission des gesamten Flughafens und nicht einzelner Triebwerke oder bestimmter Triebwerksbetriebszustände zu erfassen.

Wir quantifizierten die Additive und Düsenölester unter Verwendung von Standardaddition mit authentischen bzw. Ersatzstandards (Ergänzende Abb. <u>7</u> und <u>8</u>). Gezielte Messungen der Bestandteile des Strahltriebwerksöls wurden unter Verwendung von Ultrahochleistungs-Flüssigkeitschromatographie (UHPLC)/beheizter Elektrospray-Ionisation (HESI) gekoppelt mit einem hochauflösenden Orbitrap-Massenspektrometer (HRMS) durchgeführt. Die chromatographische Trennung der Bestandteile des Düsentriebwerköls wurde unter Verwendung einer C ₁₈ -Umkehrphasensäule durchgeführt (Einzelheiten siehe Anhangsanmerkung $\underline{3}$). Unter Verwendung der Standardadditionsmethode haben wir 23 Verbindungen in 25 Umgebungsfilterproben einschließlich 3 Blindproben quantifiziert (Einzelheiten siehe Ergänzende Anmerkung <u>4</u>). Die meisten dieser Verbindungen gehören zur Gruppe der Pentaerythritol- oder Trimethylolpropanester, die als Ausgangsmaterialien für Strahltriebwerksöle verwendet werden (Ergänzungstabelle <u>2</u>). Schließlich haben wir die Strahltriebwerksölmasse der abgeschiedenen UFPs nach Feldleerwertkorrektur bestimmt.

Experimentelle Verlustbestimmung im Nano-MOUDI

Da die Probenahme von UFPs mit einem Nano-MOUDI mit Partikelverlusten einhergeht, haben wir einen Verlustfaktor für jede Nano-MOUDI-Stufe bestimmt (Details siehe Anhang <u>5</u>, Anhang Abb. 9 - 11 und Anhang Tabelle 3). Der Verlust beträgt bei Partikeln mit einem aerodynamischen Durchmesser zwischen 32-56 nm 28 % und bei 18-32 nm Partikeln 40 %. Wir waren nicht in der Lage, experimentell einen Verlustfaktor für den kleinsten Größenbehälter von 10-18-nm-Partikeln zu bestimmen, da die abgeschiedene Masse nicht ausreicht. Wir haben den Verlust unter der Annahme berechnet, dass die Partikeldiffusivität die Hauptantriebskraft für Probenverluste von extrem schwerflüchtigen Verbindungen im UFP-Größenbereich ist. Wir bestimmten die Abhängigkeit zwischen Partikeldurchmesser und Diffusionskoeffizient bei 17.2 kPa und 20 °C (Abtastbedingung der Stufe 18–32 nm). Um die experimentell bestimmten Partikelverluste der beiden größeren Stufen anzupassen, haben wir einen Dämpfungsterm auf die Diffusionskoeffizientengleichung angewendet (Ergänzende Abb. <u>11</u>). Basierend auf den experimentell ermittelten Verlusten der beiden oberen Nanostufen haben wir für die kleinste Stufe einen Verlust von ~58% errechnet. Dieser Verlustfaktor kann als konservative Schätzung angesehen werden, da er nur auf Partikeldiffusionsverlusten basiert und Verluste durch Verdunstung nach dem Aufprall nicht einschließt (siehe Haupttext). Durch die Implementierung dieser Verlustfaktoren haben wir die guantifizierte Strahlölfiltermasse korrigiert und den Massenanteil von Strahltriebwerksschmierölen in flughafenbezogenen UFPs bestimmt.

Umgebungs-SMPS-Messungen

Die PNSD an der Probenahmestelle wurde mit einem SMPS mit einem elektrostatischen Klassifikator (TSI, Modell: 3082), einem Differential

Mobility Analyzer (DMA, TSI, Modell: 3081) und einem Kondensationspartikelzähler (CPC, TSI, Modell: 3772) bestimmt. . Umgebungsluft wurde durch ein Edelstahlrohr (Innendurchmesser: 20 mm, Länge 1,6 m) unter Verwendung eines PM 2,5 -Einlasskopfs bei einer Flussrate von 1 m³ h⁻¹ entnommen . Vor dem Eintritt in das SMPS passiert das Aerosol einen Nafion-Trockner (1,2 m Länge, Durchflussrate 0,3 m³ h⁻¹), um die relative Luftfeuchtigkeit unter 40 % zu stabilisieren. Der tatsächliche Probenfluss des SMPS betrug 1 L min -1, dient der zusätzliche Bypass dazu, Verweilzeit und Partikelverluste im Einlasssystem zu minimieren. Die PNSD wurde im Größenbereich von 10–500 nm mit einer zeitlichen Auflösung von 5 min gemessen. Partikelverluste durch Sedimentation, Trägheitseinwirkung und Diffusion wurden berechnet und entsprechend korrigiert 62. Die UFP-Masse wurde durch Integration unter der Annahme kugelförmiger Teilchen bestimmt. Wir haben die Partikelmasse für jedes Filtersammelintervall ausschließlich während der Betriebszeiten des Flughafens berechnet, indem wir die PNSD in eine über den Probenahmezeitraum gemittelte Volumenverteilung mit einer Einheitsdichte von 1 g cm -3 und dem Nano-MOUDI-Probenahmedurchfluss von 0,6 m³ umgerechnet haben h⁻¹. Die Partikeldichte wurde gemäß den analysierten Öldichten von Strahltriebwerken (siehe Sicherheitsdatenblätter) und Flugzeugturbinentriebwerksstudien 50 gewählt. Folglich ist eine Umrechnung des gemessenen Mobilitätsdurchmessers in den aerodynamischen Durchmesser nicht erforderlich 63. Wir haben die SMPS-Daten von sieben Filterprobenahmeperioden analysiert, da für eine Probenahmeperiode aufgrund eines Instrumentenausfalls keine Daten verfügbar sind.

Flüchtigkeit und Sättigungsverhältnis von Jet-Öl-Estern

Die Flüchtigkeit von Verbindungen bestimmt stark ihr Gas-Partikel-Verteilungsverhalten. Daher ermöglicht die Bewertung der Jet-Öl-Grundstoffe mit semiempirischen Gruppenbeitragsmethoden (SIMPOL.1-Modell 55) und dem Volatilitätsbasissatz (VBS 52,53) die Gruppierung der einzelnen Esterverbindungen zu Flüchtigkeitsklassen (ULVOC: ultra- Low Volatility-, ELVOC: Extreme-Low Volatility-, LVOC: Low Volatility Organic Compound). Die Klassifizierung der Verbindungen basiert auf ihrer Flüchtigkeit, ausgedrückt als Logarithmus der Sättigungsmassenkonzentration (), wobei die Volatilität wird um eine Dekade differenziert inProtokoll10C*ichlog10Ci*C*ichCi*{C}_{i}^{*} {K} _{p}, was ebenfalls als Unsicherheit angenommen wird. Die Sättigungsmassenkonzentration ((µg m $^{-3}$)) wird als Kehrwert der Gas-zu-Partikel-Phasenverteilungskonstante () 52 unter Berücksichtigung des Gewichtsanteils der Phase des absorbierenden organischen Materials (om) (), ihres durchschnittlichen Molekulargewichts (, g mol $^{-1}$), sowie Aktivitätskoeffizient () und Dampfdruck (, Torr) 52 $^{-64}$ der Verbindung *i* :C*ichCi*KpKpfo mfomMWo mMWom{\zeta }_{i} {p}_{L,{i}}^{0} \zetaichCipOL, ichpL,iO 1 \zetaich* C*ich=Kp=fo m* 760 * R * TMWo m*ζich*pOL, ich*1061ζi*Ci*=Kp=fom* 760*R*TMWom*ζi*pL,iO*106

(1)

Wir berechneten unter der Annahme, dass die absorbierende organische Phase nur aus der jeweiligen Substanz besteht, was zu einer idealen Absorptionsaffinität von führt die Moleküle, die von der Gasphase in die Teilchenphase übergehen . Die Affinität der Verbindung zur Partikelphase korreliert umgekehrt mit <u>65</u> . *R* ist die Gaskonstante (8,2 × 10 ⁻⁵ m ³ atm mol ⁻¹ K ⁻¹) und *T* (K) die

Temperatur.KpKp(fom=1)(fom=1)(ζ ich=1)(ζ i=1) ζ ich ζ i

Wir haben die quantifizierten Basisstock-Esterkonzentrationen in der Partikelphase ((gm ⁻³)) in Gasphasenanzahlkonzentrationen ((m ⁻³)) unter Verwendung des idealen Gasgesetzes (: quantifizierte Estermasse; : Molekülmasse in g

 $\label{eq:mol-1} mol^{-1} := michvmiV{c}_{i}^{i} \in \mathbb{N}_{i} \in \mathbb{N}_{i}^{i} \in \mathbb{$

(2)

Um zu bestimmen, ob Jet-Öl-Bestandteile eine Gasphasen-Übersättigung erreichen, haben wir ihr Gasphasen-Sättigungsverhältnis<u>66</u> berechnet :(S*ich)(Si*)

S*ich=cvich*Mich*106C*ich*NEINSi*=civ*Mi*106Ci**NA

(3)

(4)

Unter Berücksichtigung der Temperaturabhängigkeit des Sättigungsdampfdrucks lässt sich nach der Clausius-Clapeyron-Gleichung beschreiben: C*ichCi* Protokoll¹⁰C*ich(T) = Protokoll¹⁰C*ich(293.15K)+ Δ H_veinpichR * l n (10))* (1293.15K-1T)log10Ci*(T)=log10Ci*(293.15K)+ Δ HivapR*ln(10)*(1293.15K-1T)

wobei $R = 8,314 \times 10^{-3}$ kJ K $^{-1}$ mol $^{-1}$. Die Verdampfungsenthalpie (kJ mol $^{-1}$) kann angenähert werden durch: $\Delta H_v ein pich\Delta Hivap$

 $\Delta Hv ein pich = -11 * Protokoll^{10}C*ich(293.15K) + 129\Delta Hivap = -11*log10Ci*(293.15K) + 129\Delta Hivap = -11*log10Ci*(293.$

(5)

Trotz der großen Unsicherheiten dieses Ansatzes <u>67</u> kann er immer noch verwendet werden, um eine einfache Schätzung der Temperaturabhängigkeit der Ölpartitionierung zu beschreiben. Schließlich kombinierten wir [Gl. <u>3</u>] und [Gl. <u>4</u>], um die ungefähre Temperatur zu berechnen, bei der die Jetölester die Gasphasenübersättigung in einer abkühlenden Motorabgasfahne erreichen [Gl. <u>6</u>].(S*ich= 1)(Si*=1) TS*= 1ich= -1Protokoll10(cvich*Mich*106NEIN*C*ich(293.15K)) *R*l n (10) Δ Hv ein pich-1293.15KTiS*=1=-1log10(civ*Mi*106NA*Ci*(293.15K))*R*ln(10) Δ Hivap-1293.15K (6)

Zusammenfassung der Berichterstattung

Weitere Informationen zum Forschungsdesign finden Sie in der mit diesem Artikel verlinkten <u>Nature Portfolio Reporting Summary</u>.

Datenverfügbarkeit

Die in dieser Studie gezeigten Daten sind unter <u>https://doi.org/10.5281/zenodo.6876277</u> verfügbar .

Verweise

 Hu, S. et al. Auswirkungen von Flugzeugemissionen in einer Nachbarschaft neben einem Flughafen der allgemeinen Luftfahrt in Südkalifornien. *Umgebung. Wissenschaft. Technol.* 43, 8039–8045 (2009).

Artikel CAS Google Scholar

 Yu, Z. et al. Identifizierung von Schmieröl in den Partikelemissionen aus Triebwerksabgasen von in Betrieb befindlichen Verkehrsflugzeugen. Umgebung. Wissenschaft. Technol. 46, 9630– 9637 (2012).

Artikel CAS Google Scholar

 Keuken, MP, Moerman, M., Zandveld, P., Henzing, JS & Hoek, G. Gesamt- und größenaufgelöste Partikelanzahl und Rußkonzentrationen in städtischen Gebieten in der Nähe des Flughafens Schiphol (Niederlande). *Atmosphäre*. *Umgebung*. **104**, 132–142 (2015).

Artikel CAS Google Scholar

4. Stafoggia, M. et al. Partikelanzahlkonzentrationen in der Nähe des Stadtflughafens Rom-Ciampino. *Atmosphäre*. *Umgebung*. **147**, 264–273 (2016).

Artikel CAS Google Scholar

5. Yu, Z. et al. Bewertung der PM-Emissionen von zwei in Betrieb befindlichen Gasturbinen-Flugzeugtriebwerken der allgemeinen Luftfahrt. *Atmosphäre. Umgebung.* **160**, 9–18 (2017).

Artikel CAS Google Scholar

 Habre, R. et al. Kurzfristige Auswirkungen einer flughafenassoziierten Exposition gegenüber ultrafeinen Partikeln auf die Lungenfunktion und Entzündung bei Erwachsenen mit Asthma. Umgebung. Int. 118, 48–59 (2018).

Artikel CAS Google Scholar

 Fushimi, A., Saitoh, K., Fujitani, Y. & Takegawa, N. Identifizierung von Düsenschmieröl als Hauptbestandteil von Flugzeugabgas-Nanopartikeln. *Atmosphäre. Chem. Phys.* **19**, 6389–6399 (2019).

Artikel CAS Google Scholar

8. Rivas, I. et al. Quellenzuordnung der Partikelgrößenverteilung im städtischen Hintergrund und an Verkehrsstationen in vier europäischen Städten. *Umgebung. Int.* **135**, 105345 (2020).

Artikel CAS Google Scholar

 Zhu, Y., Fanning, E., Yu, RC, Zhang, Q. & Froines, JR Flugzeugemissionen und lokale Auswirkungen auf die Luftqualität durch Startaktivitäten auf einem großen internationalen Flughafen. *Atmosphäre. Umgebung.* **45**, 6526–6533 (2011).

Artikel CAS Google Scholar

10.Hsu, H.-H. et al. Die Beziehung zwischen Luftverkehrsaktivitäten und Ultrafeinstaubkonzentrationen in der Nähe eines mittelgroßen Flughafens. *Atmosphäre. Umgebung.* **50**, 328–337 (2012).

Artikel CAS Google Scholar

11.Hsu, H.-H. et al. Beiträge von Flugzeugankünften und -abflügen zur Zählung ultrafeiner Partikel in der Nähe des internationalen Flughafens von Los Angeles. *Wissenschaft. Gesamtumgebung.* 444, 347–355 (2013).

Artikel CAS Google Scholar

12.Pirhadi, M. et al. Relative Beiträge der Aktivitäten eines großen internationalen Flughafens und anderer städtischer Quellen zu den Partikelanzahlkonzentrationen (PNCs) an einer nahe gelegenen Überwachungsstelle. Umgebung. Verschmutzung. 260, 114027 (2020).

Artikel CAS Google Scholar

 Pekkanen, J. & Kulmala, M. Expositionsbewertung ultrafeiner Partikel in epidemiologischen Zeitreihenstudien. Scannen. J. Arbeitsumgebung. Gesundheit **30**, 9–18 (2004).

Google Scholar

14.Mazaheri, M., Bostrom, TE, Johnson, GR & Morawska, L. Zusammensetzung und Morphologie der Partikelemissionen von in Betrieb befindlichen Flugzeugen während des Starts und der Landung. Umgebung. Wissenschaft. Technol. **47**, 5235–5242 (2013).

Artikel CAS Google Scholar

15.Hudda, N. & Fruin, SA Auswirkungen des internationalen Flughafens auf die Luftqualität: Größe und verwandte Eigenschaften starker Zunahmen der Konzentrationen ultrafeiner Partikel. Umgebung. Wissenschaft. Technol. **50**, 3362–3370 (2016).

Artikel CAS Google Scholar

16.Zhang, X., Karl, M., Zhang, L. & Wang, J. Einfluss von Luftverkehrsemissionen auf die Partikelanzahlkonzentration in der Nähe des Flughafens Zürich. Umgebung. Wissenschaft. Technol. 54, 14161–14171 (2020).

Artikel CAS Google Scholar

17.Hudda, N., Simon, MC, Zamore, W. & Durant, JL Luftfahrtbedingte Auswirkungen auf die Anzahl der ultrafeinen Partikelkonzentrationen außerhalb und innerhalb von Wohngebäuden in der Nähe eines Flughafens. Umgebung. Wissenschaft. Technol. **52**, 1765–1772 (2018).

Artikel CAS Google Scholar

18.Hudda, N., Durant, LW, Fruin, SA & Durant, JL Auswirkungen von Luftverkehrsemissionen auf die Luftqualität in Wohngebieten in der Nähe von Flughäfen. Umgebung. Wissenschaft. Technol. 54, 8580– 8588 (2020).

Artikel CAS Google Scholar

 Chen, C. et al. Transport von ultrafeinen Partikeln von außen nach innen: Messung und Modellentwicklung des Infiltrationsfaktors. Umgebung. Verschmutzung. 267, 115402 (2020).

Artikel CAS Google Scholar

20.Riley, EA et al. Ultrafeine Partikelgröße als Tracer für Flugzeugturbinenemissionen. *Atmosphäre*. *Umgebung*. **139**, 20–29 (2016).

Artikel CAS Google Scholar

21.Masiol, M., Harrison, RM, Vu, TV & Beddows, DCS Quellen von Submikrometerpartikeln in der Nähe eines großen internationalen Flughafens. *Atmosphäre. Chem. Phys.* **17**, 12379–12403 (2017).

Artikel CAS Google Scholar

22.Shirmohammadi, F. et al. Emissionsraten von Partikelanzahl, Masse und Ruß durch den Los Angeles International Airport (LAX) und ihre Auswirkungen auf die Luftqualität in Los Angeles. Atmosphäre. Umgebung. **151**, 82–93 (2017).

Artikel CAS Google Scholar

23.Stacey, B. Messung ultrafeiner Partikel an Flughäfen: eine Übersicht. *Atmosphäre*. *Umgebung*. **198**, 463–477 (2019).

Artikel CAS Google Scholar

24.Yu, Z. et al. Charakterisierung von Schmierölemissionen aus Flugzeugtriebwerken. *Umgebung. Wissenschaft. Technol.* **44**, 9530– 9534 (2010).

Artikel CAS Google Scholar

25.Timko, M. T. et al. Partikelemissionen der Gasturbinentriebwerksverbrennung eines synthetischen fischertropsch-Kraftstoffs. *Energie Kraftstoff.* **24**, 5883–5896 (2010).

Artikel CAS Google Scholar

26.Ungeheuer, F., van Pinxteren, D. & Vogel, AL Identifizierung und Quellenzuordnung von organischen Verbindungen in ultrafeinen Partikeln in der Nähe des Frankfurter Flughafens. Atmosphäre. Chem. Phys. **21**, 3763–3775 (2021).

Artikel CAS Google Scholar

27.Oberdörster, G. et al. Extrapulmonale Translokation von ultrafeinen Kohlenstoffpartikeln nach inhalativer Ganzkörperexposition von Ratten. J. Toxicol. Umgebung. Gesundheitsteil A **65**, 1531–1543 (2002).

Artikel Google Scholar

28.Oberdörster, G., Oberdörster, E. & Oberdörster, J. Nanotoxikologie: eine aufstrebende Disziplin, die sich aus Untersuchungen ultrafeiner Partikel entwickelt. Umgebung. Gesundheit. Pers. **113**, 823–839 (2005).

Artikel Google Scholar

29.Kreyling, WG et al. Die Translokation der Luft-Blut-Barriere von tracheal instillierten Gold-Nanopartikeln hängt umgekehrt von der Partikelgröße ab. *ACS Nano* **8**, 222–233 (2014).

Artikel CAS Google Scholar

30.Lu, D. et al. Chemischer Multi-Fingerprinting von exogenen ultrafeinen Partikeln in menschlichem Serum und Pleuraerguss. *Nat. Kommun.* **11**, 2567 (2020).

Artikel CAS Google Scholar

31.Oberdörster, G. et al. Translokation von eingeatmeten ultrafeinen Partikeln zum Gehirn. *Einatmen. Giftig.* **16** , 437–445 (2004).

Artikel Google Scholar

32.Miller, MR et al. Eingeatmete Nanopartikel reichern sich an Stellen von Gefäßerkrankungen an. ACS Nano **11**, 4542–4552 (2017).

Artikel CAS Google Scholar

33.Nel, A., Xia, T., Mädler, L. & Li, N. Toxisches Potential von Materialien auf Nanoebene. *Wissenschaft* **311**, 622–627 (2006).

Artikel CAS Google Scholar

34.Jonsdottir, HR et al. Nichtflüchtige Partikelemissionen aus Flugzeugturbinentriebwerken im Bodenleerlauf induzieren oxidativen Stress in Bronchialzellen. Kommun. biol. 2, 90 (2019).

Artikel Google Scholar

35.Ohlwein, S., Kappeler, R., Kutlar Joss, M., Künzli, N. & Hoffmann, B. Gesundheitliche Auswirkungen ultrafeiner Partikel: eine systematische Literaturrecherche, Aktualisierung epidemiologischer Beweise. Int. J. Public Health 64, 547–559 (2019).

Artikel Google Scholar

36.Chalupa, DC, Morrow, PE, Oberdörster, G., Utell, MJ & Frampton, MW Ablagerung ultrafeiner Partikel bei Patienten mit Asthma. *Umgebung. Gesundheit. Pers.* **112**, 879–882 (2004).

Artikel CAS Google Scholar

37.Møller, KL et al. Berufliche Exposition gegenüber ultrafeinen Partikeln bei Flughafenmitarbeitern – Kombination aus persönlicher Überwachung und globalem Positionsbestimmungssystem. *PLoS ONE* **9**, e106671 (2014).

Artikel Google Scholar

38.Ren, J., Cao, X. & Liu, J. Einfluss atmosphärischer Feinstaubschadstoffe auf die Innenluftqualität von Flughafenterminals: eine erste Feldstudie am Flughafen Tianjin, China. *Atmosphäre*. *Umgebung*. **179**, 222–226 (2018).

Artikel CAS Google Scholar

39.Wu, AH et al. Assoziation zwischen flughafenbedingten ultrafeinen Partikeln und dem Risiko für bösartigen Hirntumor: Eine multiethnische Kohortenstudie. *Krebsres.* **81**, 4360–4369 (2021).

Artikel CAS Google Scholar

40.Weichenthal, S. et al. Innerhalb der Stadt räumliche Variationen der Konzentrationen ultrafeiner Partikel in der Umgebung und auftretende Hirntumore bei Erwachsenen. *Epidemiologie* **31** , 177–183 (2020).

Artikel Google Scholar

41.Møller, KL et al. Herz-Kreislauf-Erkrankungen und langfristige berufliche Exposition gegenüber ultrafeinen Partikeln: eine Kohortenstudie von Flughafenarbeitern. *Int. J. Hyg. Umgebung. Gesundheit* **223**, 214–219 (2020).

Artikel Google Scholar

42.Brock, CA et al. Ultrafeine Partikelgrößenverteilungen gemessen in Flugzeugabgasfahnen. *J. Geophys. Auflösung* **105**, 26555–26567 (2000).

Artikel CAS Google Scholar

- 43.Voigt, C. et al. Sauberer verbrennende Flugkraftstoffe können Kondensstreifentrübungen reduzieren. *Kommun. Erde. Umgebung* . <u>https://doi.org/10.1038/s4324</u> <u>7-021-00174-y</u> (2021).
- 44.Kärcher, B., Burkhardt, U., Bier, A., Bock, L. & Ford, IJ Der mikrophysikalische Weg zur Kondensstreifenbildung. *J. Geophys. Auflösung Atmosphäre.* **120**, 7893–7927 (2015).

Artikel Google Scholar

45.Moore, RH et al. Die Beimischung von Biokraftstoff reduziert die Partikelemissionen von Flugzeugtriebwerken im Reiseflug. *Natur* **543** , 411–415 (2017).

Artikel CAS Google Scholar

46.Anderson, BE, Cofer, WR, Barrick, JD, Bagwell, DR & Hudgins, CH Luftbeobachtungen von Flugzeugaerosolemissionen II: Faktoren, die die Produktion flüchtiger Partikel kontrollieren. *Geophysik. Auflösung Lette.* **25**, 1693–1696 (1998).

Artikel CAS Google Scholar

47.Curtius, J. et al. Erster direkter Schwefelsäurenachweis in der Abgasfahne eines Düsenflugzeugs im Flug. *Geophysik. Auflösung Lette.* **25**, 923–926 (1998).

Artikel CAS Google Scholar

48.Wang, M. et al. Schnelles Wachstum neuer atmosphärischer Partikel durch Salpetersäure- und Ammoniakkondensation. *Natur* **581**, 184–189 (2020).

Artikel CAS Google Scholar

- 49.EI-Sayed, AF Aircraft Propulsion and Gas Turbine Engines (CRC Press Taylor & Francis Group, 2017).
- 50.Durdina, L. et al. Bestimmung der PM-Massenemissionen aus einem Flugzeugturbinentriebwerk unter Verwendung der effektiven Partikeldichte. *Atmosphäre. Umgebung.* **99**, 500–507 (2014).

Artikel CAS Google Scholar

- 51.Ministerium für Umweltschutz der Vereinigten Staaten. US EPA. [2021]. Estimation Programs Interface Suite™ v 4.11 (Washington, DC, USA, 2012).
- 52.Donahue, NM, Robinson, AL, Stanier, CO & Pandis, SN Gekoppelte Partitionierung, Verdünnung und chemische Alterung halbflüchtiger organischer Stoffe. Umgebung. Wissenschaft. Technol. 40, 2635–2643 (2006).

Artikel CAS Google Scholar

53.Donahue, NM, Epstein, SA, Pandis, SN & Robinson, AL Ein zweidimensionaler Volatilitäts-Basissatz: 1. Organo-Aerosol-Mischungsthermodynamik. *Atmosphäre. Chem. Phys.* **11**, 3303–3318 (2011).

Artikel CAS Google Scholar

54.Donahue, NM, Kroll, JH, Pandis, SN & Robinson, AL Ein zweidimensionaler Volatilitätsbasissatz – Teil 2: Diagnostik der Entwicklung organischer Aerosole. *Atmosphäre. Chem. Phys.* **12**, 615– 634 (2012).

Artikel CAS Google Scholar

55.Pankow, JF & Asher, WE SIMPOL.1: eine einfache Gruppenbeitragsmethode zur Vorhersage von Dampfdrücken und Verdampfungsenthalpien von multifunktionellen organischen Verbindungen. Atmosphäre. Chem. Phys. 8, 2773–2796 (2008).

Artikel CAS Google Scholar

56.Stolzenburg, D. et al. Schnelles Wachstum organischer Aerosol-Nanopartikel über einen weiten troposphärischen Temperaturbereich. *Proz. Natl. Akad. Wissenschaft. USA* **115**, 9122– 9127 (2018).

Artikel CAS Google Scholar

57.Lee, DSet al. Auswirkungen des Verkehrs auf Atmosphäre und Klima: Luftfahrt. *Atmosphäre*. *Umgebung*. **44** , 4678–4734 (2010).

Artikel CAS Google Scholar

58.Duarte, DJ, Rutten, JMM, van den Berg, M. & Westerink, RHS In-vitro-Charakterisierung neurotoxischer Gefahren verschiedener Tricresylphosphat (TCP)-Isomere und -Mischungen. *Neurotoxikologie* **59**, 222–230 (2017).

Artikel CAS Google Scholar

 Hageman, G., Mackenzie Ross, SJ, Nihom, J. & van der Laan,
G. Occupational Neurotoxicology, herausgegeben von M. Aschner (Elsevier Science & Technology, San Diego, 2022), Vol. 3, No. 7, p. 77– 132.

60.Keefer, EW, Gramowski, A., Stenger, DA, Pancrazio, JJ & Gross, GW Charakterisierung akuter neurotoxischer Wirkungen von Trimethylolpropanphosphat über neuronale Netzwerk-Biosensoren. *Biosens. Bioelektron.* **16**, 513–525 (2001).

Artikel CAS Google Scholar

- 61.Internationale Zivilluftfahrt-Organisation (ICAO). Umweltbericht Luftverkehr und Umwelt. Destination Green Das nächste Kapitel. Internationale Zivilluftfahrt-Organisation (ICAO) (2019).
- 62.Weiden, S.-L., von der, Drewnick, F. & Borrmann, S. Particle Loss Calculator – ein neues Softwaretool zur Bewertung der Leistungsfähigkeit von

Aerosoleinlasssystemen. *Atmosphäre*. *Mess. Technik*. **2**, 479–494 (2009).

Artikel Google Scholar

- 63.Seinfeld, JH & Pandis, SN Atmosphärische Chemie und Physik. Von der Luftverschmutzung zum Klimawandel . 3. Aufl. (Wiley, sl, 2016).
- 64.Pankow, JF Ein Absorptionsmodell der Gas/Partikel-Verteilung organischer Verbindungen in der Atmosphäre. *Atmosphäre. Umgebung.* **28**, 185–188 (1994).

Artikel CAS Google Scholar

65.Williams, BJ, Goldstein, AH, Kreisberg, NM & Hering, SV In-situ-Messungen von Gas-/Partikelphasenübergängen für halbflüchtige organische Verbindungen in der Atmosphäre. *Proz. Natl. Akad. Wissenschaft. USA* **107**, 6676–6681 (2010).

Artikel CAS Google Scholar

66.Donahue, NM et al. Wie tragen organische Dämpfe zur Neupartikelbildung bei? *Faraday-Diskussion*. **165**, 91–104 (2013).

Artikel CAS Google Scholar

67.Epstein, SA, Riipinen, I. & Donahue, NM Eine semiempirische Korrelation zwischen Verdampfungsenthalpie und Sättigungskonzentration für organisches Aerosol. *Umgebung. Wissenschaft. Technol.* **44**, 743–748 (2010).

Artikel CAS Google Scholar

Referenzen herunterladen

Danksagungen

Wir danken Anett Dietze vom Leibniz-Institut für Troposphärenforschung (TROPOS) für die Filtervorbereitung und das Wiegen. Diese Forschung wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) unterstützt (Fördernummern 410009325 und 428312742 (TRR 301)).

Finanzierung

Open-Access-Förderung ermöglicht und organisiert durch Projekt DEAL.

Informationen zum Autor

Autoren und Zugehörigkeiten

- 1. Institut für Atmosphäre und Umweltwissenschaften, Goethe-Universität Frankfurt, Frankfurt am Main, 60438, Deutschland Florian Ungeheuer, Lucía Caudillo, Mario Simon, Andreas Kürten, Joachim Curtius & Alexander L. Vogel
- 2. Fachbereich Immissionsschutz, Hessisches Landesamt für Naturschutz, Umwelt und Geologie, Wiesbaden, 65203, Deutschland

Florian Ditas, Diana Rose & Stefan Jacobi

- 3. Atmospheric Chemistry Department (ACD), Leibniz-Institut für Troposphärenforschung (TROPOS), Leipzig, 04318, Deutschland Dominik van Pinxteren
- 4. Department of Earth and Environmental Sciences, Faculty of Science and Engineering, University of Manchester, Manchester, M13 9PS, UK

Doğuşhan Kılıç

5. National Centre for Atmospheric Science, Manchester, M13 9PS, UK

Doğuşhan Kılıç

Beiträge

FU hat die Arbeit geschrieben; entwarf Forschung, führte Feldprobenahmen, Probenvorbereitung, Messungen, Laborexperimente und den Großteil der Datenanalyse durch; LC führte Laborexperimente durch und analysierte Daten; FD und DR führten SMPS-Messungen durch; MS, DvP, SJ, DK, AK und JC berieten bei der Dateninterpretation; ALV konzipierte die Forschung, beriet bei der Datenanalyse, Dateninterpretation und Manuskripterstellung; bearbeitet und überarbeitet das Manuskript; und leitete die Projektadministration. Alle Autoren haben das Manuskript kommentiert und zur wissenschaftlichen Diskussion beigetragen.

Korrespondierender Autor

Korrespondenz mit <u>Alexander L. Vogel</u>.

Ethik-Erklärungen

Konkurrierende Interessen

Die Autoren erklären keine konkurrierenden Interessen.

Peer-Review

Peer-Review-Informationen

Communications Earth & Environment dankt den anonymen Gutachtern für ihren Beitrag zum Peer-Review dieser Arbeit. Herausgeber der primären Handhabung: Clare Davis. Die <u>Peer-Reviewer-Berichte</u> stammen erst aus der zweiten Peer-Review-Runde.

Zusätzliche Information

Hinweis des Herausgebers Springer Nature bleibt neutral in Bezug auf Zuständigkeitsansprüche in veröffentlichten Karten und institutionellen Zugehörigkeiten.

Zusatzinformationen

Ergänzende Materialien

Peer-Review-Datei

Zusammenfassung der Berichterstattung

Rechte und Berechtigungen

Open Access Dieser Artikel ist unter einer Creative Commons Attribution 4.0 International License lizenziert, die die Verwendung, Weitergabe, Anpassung, Verbreitung und Reproduktion in jedem Medium oder Format erlaubt, solange Sie den/die ursprünglichen Autor(en) und die Quelle angemessen nennen. Stellen Sie einen Link zur Creative Commons-Lizenz bereit und geben Sie an, ob Änderungen vorgenommen wurden. Die Bilder oder andere Materialien von Drittanbietern in diesem Artikel sind in der Creative Commons-Lizenz des Artikels enthalten, sofern nicht anders in einer Quellenangabe für das Material angegeben. Wenn Material nicht in der Creative-Commons-Lizenz des Artikels enthalten ist und Ihre beabsichtigte Nutzung durch gesetzliche Bestimmungen nicht gestattet ist oder die zulässige Nutzung überschreitet, müssen Sie die Genehmigung direkt vom Urheberrechtsinhaber einholen. Um eine Kopie dieser Lizenz anzuzeigen, besuchen Sie<u>http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/</u>.