

KUGLER SZILVIA–HORVÁTH LÁSZLÓ–WEIDINGER TAMÁS

# Felelős-e a légköri nitrogén a balatoni tápanyagdúsulásért?

*A Balatont érő tápanyagdúsulás (nitrogén, foszfor) és az ezt követő vízminőség-romlás, algásodás miatt szükség volt a jelenség vizsgálatára és megelőzésére. Ennek első lépése a szennyező források hatásának számszerűsítése. A vízfolyásokból, szennyvizekből, városias területek bemosódásából és egyéb közvetlen bemosódásokból 1975 és 1987 között évente átlagosan 2400 tonna nitrogéntartalommal kifejezett nitrogénvegyület érkezett a tóba. 1988 és 2004 között a vízfolyások terhelése felére csökkent, a szennyvizek hatása jelentéktelenné vált, ennek következtében az éves terhelés 1400 tonna N alá csökkent. De mi a helyzet a légköri forrásokkal? A nitrogénvegyületek ugyanis nedves és száraz ülepedéssel eljutnak a tóba, további terhelést okozva. Vizsgálatainkból megállapítottuk, hogy 2001 és 2004 között a légköri ülepedés átlagosan 440 t N év<sup>-1</sup> volt. Ez a mennyiség a korábbi (70–80-as) évek összes terhelésének kb. 20%-át tette volna ki, a 2001–2004-es években, amikor a nem légkörből származó nitrogén mennyisége 780 tonna/év volt, ezt az értéket már felülmúlta, a nitrogénvegyületek legfontosabb forrása tehát a légkör lett. Szerencsére az összes terhelés mértéke – a megelőzés hatására – mára a kritikus szint alá csökkent, tehát a Balaton esetében napjainkban nem beszélhetünk eutrofizációról. A vizsgálatokból az is kiderült, hogy a légkör nem csak forrása a nitrogénnek; túlzott tápanyagdúsulás esetén a tóból ammónia szabadulhat fel, a többlet N-terhelést csökkentve. Ez is alátámasztja azt a korábbi megállapítást, hogy a Balaton eutrofizációját elsősorban a foszfor limitálja.*

A légkör-Balaton közti nitrogénforgalom ismeretének igénye az eutrofizáció kapcsán merült fel. Az „eutrofikus” szó jelentése tápanyaggal jól ellátott, azaz a vizek természetes vagy mesterséges forrásokból többlet tápanyaghoz jutnak, ami környezetterhelést jelent. Az eutrofizáció, mely az állóvizek természetes előregedési folyamataként is jelentkezik, az 1960-as években a fejlett iparral és mezőgazdasággal rendelkező társadalmakban került előtérbe. Az eutrofizáció általában az alga (fitoplankton) túlzott mértékű elszaporodásával jelentkezik, ami az állóvizeket és a lassú-pangó vízfolyásokat zöld színűvé változtatja. A köznyelv „algavirágzásként” ismeri e jelenséget, mely elsősorban a két legfontosabb növényi tápanyag, a nitrogén és a foszfor külső terhelésének növekedésével kapcsolatban észlelhető. Az állóvizek tápanyagterhelése alapvetően a különböző szennyező és természetes vízfolyásokból és a légkörből származik.

Az eutrofizáció első jelei már az 1930-as években jelentek meg a Balatonnál, de az antropogén tevékenység csak az 1970-es években kezdte komolyan befolyásolni a tó növény- és állatvilágát. A tó a megnövekedett tápanyagterhelés miatt az 1970-es években folyamatosan eutrofikussá-hidrotrofikussá vált (Herodek and Istvanovics, 1986); a jelenség különösen a Keszthelyi-öböl térségében jelentkezett, ahol pl. megfigyelték a kékalgák elszaporodását a nyári hónapokban. A tóban az erős toxikus algavirágzás mellett súlyos halpusztulás következett be 1975-ben (Herodek, 1977). Ez idő tájt indultak meg a



1. ábra. Az OMSZ Siófoki Viharjelző Observatóriuma

Balaton eutrofizációjával kapcsolatos első intenzív kutatások. A 2000-es évek elején ismét fontossá vált a tavat érő tápanyagterhelés forrásainak felmérése, melynek többek között a légköri nitrogénterhelés mértékének meghatározása volt a célja.

## Vizsgálataink célja

Kutatásaink célkitűzései között szerepelt, hogy az eddig részletesen, vagy egyáltalán

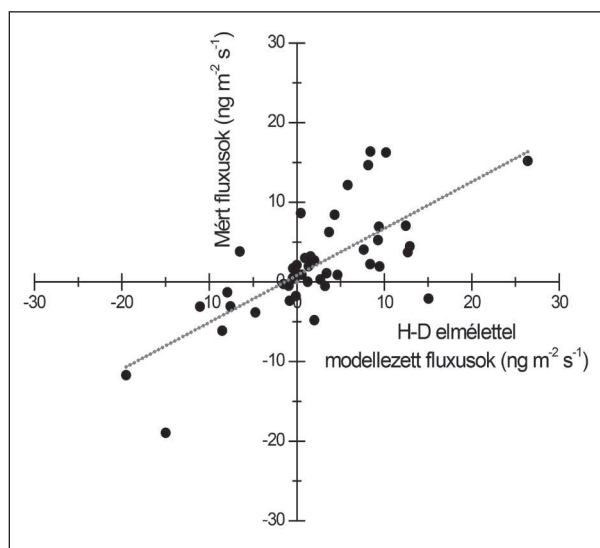
nem vizsgált nitrogénvegyületekre is meghatározzuk az éves kicserélődés mértékét a Balaton és a légkör között a 2001–2004 közötti időszakban. Meghatároztuk a nitrogéntartalmú gázok közül az ammónia és a salétromsav-gőz kicserélődését az ún. kompenzációs-pont modell segítségével. A modellt az ún. gradiens módszerrel végzett mérések eredményeinek felhasználásával validáltuk, melyhez az adatokat egy 2002-es siófoki nyári mérési kampány során gyűjtöttünk. Továbbá megbecsültük az

aeroszol részecskék (ammónium, nitrát) száraz ülepedését az adott méreteloszláshoz tartozó ülepedési sebességük felhasználásával, továbbá a nitrogénvegyületek nedves ülepedését a csapadékvízben mért koncentrációjuk alapján. Őszszegzés után ezek a mennyiségek adják a tó és a légkör közti nitrogénforgalom mértékét.

**Mérési és mintavételi helyszínek**

A mintavételeket és a meteorológiai méréseket az OMSZ Siófoki Viharjelző Observatóriumának területén végeztük 2002 márciusa és 2003 februárja között.

A nyomgázok mintavétele általában egy szinten történt az obszervatórium



**2. ábra. A Hales–Drewes-elmélettel modellezett fluxusok összehasonlítása a gradiens módszerrel mért fluxusokkal**

tornyán, 12,3 m magasságban.

A nyomgázok kicserélődésének mérését, mely a modell validációjához szükséges, szintén a 2002-es nyári expedíciós mérés során végeztük 3 órás mintavételi idővel, a vízfelszín felett 2,8 m magasságban is. Az expedíciós mérések idején a gázhalmazállapotú nitrogénvegyületek (ammónia, salétromsav) légkör-víz közti kicserélődését (nettó fluxusát) a gradiens módszer segítségével határoztuk meg. Az **1. ábra** a mérések helyszínét mutatja.

A mérések háromfokozatú szűrős mintavételekkel történtek. Ez a módszer alkalmas a levegő szilárd alkotóinak (aeroszol fázisú nitrát és ammónium), valamint a gáz halmazállapotú nyomanyagok (ammónia, salétromsav) egyidejű mintavételére.

A siófoki egy éves mérési időszakon kívül a nitrogénvegyületek koncentrá-

cióit két magyarországi háttérszennyezettség-mérő állomás adataiból interpoláltuk. A helyszíni mintavételt követő mérések az OMSZ Levegőkörnyezet-ellenőző Osztályának laboratóriumában történtek.

**Gázok (NH<sub>3</sub> és HNO<sub>3</sub>) légkör-víz közti kicserélődésének modellezése**

A nyomgázok felszín-légkör közti fluxusának számítását az ún. kompenzációs-pont modellel végeztük, melynek elve a következő. Az adott gáz fluxusát megkaphatjuk a  $z_{ref}$  szinten mért, illetve a  $z_0$  szintre számított koncentráció különbségből és az ülepedési sebesség szorzatából. A  $z_0$  szinthez tartozó koncentráció vagy más néven kompenzációs-pont koncentráció, melyet a tó vízének kémiai és fizikai tulajdonságai szabnak meg a *Henry-törvény* alapján. Az ülepedési sebességet elektrotechnikai analógiára ellenállások összegének reciprokával jellemezhetjük. Az elmélet szerint két pont közötti áramot (fluxust) a fennálló koncentrációkülönbség és az erdő ellenállás (reciprok vezetetés) hányadosaként kapjuk meg. Az ülepedési sebességet ( $V_0$ ) az ülepedést gátló ellenállások eredőjének ( $R=R_a+R_b+R_c=1/V_0$ ) reciproka adja meg különböző felszínek esetén, ahol  $R_a$  az aerodinamikai ellenállás,  $R_b$  a határreteg ellenállása,  $R_c$  a felszíni ellenállás.

Az egyes rétegekre vonatkozó ellenállásokat két különböző módszerrel határoztuk meg. Egyrészt a klasszikus Monin–Obukhov-féle hasonlósági elméletet alkalmazva (későbbiekben ellenállás modell), másrészt az ún. FLake tó-modellt is alkalmaztuk a Balatonra. Az aerodinamikai ellenállást ( $R_a$ ) a turbulens diffúziós együttható alapján határoztuk meg. A kvázi-lamináris határreteg ellenállás ( $R_b$ ) az aktív felszín feletti vékony réteg ellenállása, melyet a *Kramm et al.* (1996) féle parametrizáció alapján származtattunk. Az  $R$  felszíni ellenállások parametrizációját *Erisman et al.* (1994) szerint egyaránt nullának vehetjük ammóniára és salétromsav gőzre is vízfelszínnek felett.

**Az ammónia kicserélődésének modellezése**

Az ammónia vízfelszín-légkör közti ún. kompenzációs-pont, más néven egyensúlyi koncentrációját ki lehet számolni az egyszerű Henry-törvény alkalmazásával. Több kísérleti tény viszont arra mutat, hogy a légköri szén-dioxid a vízben oldódva befolyásolhatja az ammónia oldhatóságát. Korábbi vizsgálatok szerint az ammónia oldhatósága csökken (illékonyasága megnő) a CO<sub>2</sub> hatására, melyre *Lau and Charlson* (1977) mutatott rá először. Az oldhatóság csökkenése valószínűleg a szén-dioxid és az ammónia vízfázisú kémiai reakciójával képződő karbaminsav hatásának tulajdonítható, mely a vízből a légkörbe távozik, ezáltal a víz számára ammónia veszteséget okoz (*Hales and Drewes*, 1979). Korábbi balatoni mérések is megerősítették ezt a hatást (*Horváth*, 1982). Ennek figyelembe vételével a kompenzációs-pont koncentráció meghatározásakor a Henry-törvény módosított alakot vesz fel, melyben szerepel a légköri szén-dioxid-koncentráció, a víz pH-jából számított hidrogénion koncentráció, vízhőmérséklettől függő konstansok, és a szén-dioxid Henry-állandója is.

A vízben oldott szén-dioxid hatásáról azonban megoszlanak a vélemények, ezt az elméletet később más kutatások, laboratóriumi vizsgálatok alapján cáfolták (*Ayers et al.*, 1985; *Dasgupta and Dong*, 1986). A kérdés tehát a mai napig nyitott, emiatt számításainknál mindkét módszert felhasználtuk és a fenti két módszer alapján modellezett kicserélődés értékeket összehasonlítottuk a mért fluxusokkal, ami egyben a modell validálását is szolgálta.

**A modell validálása**

A modellt a gradiens módszeren alapuló kicserélődés (ammónia, salétromsav) mérésekkel validáltuk. Ez a módszer a koncentráció és a meteorológiai paraméterek profiljának, vagyis gradienseknek egyidejű mérésén alapul. A fluxust a szenzibilis hőáramra vonatkozó turbulens diffúziós együtthatóból és a nyomgáz koncentrációjának két szinten mért különbségéből, pontosabban gradiensekből határoztuk meg. A turbulens diffúziós együttható megadásához szükségünk volt a különböző rétegződéshez tartozó úgynevezett univerzális függvények bevezetésére. Az univerzális függvény vonatkozhat hőre vagy impulzusra. Ezeket a hőmérsékleti-, illetve szélgradiens ismeretében számítottuk. A számítások

során az ellenállás modellhez a *Businger et al.* (1971), míg a FLake modellnél a *Dyer* (1974) féle parametrizációt használtuk. A turbulens diffúziós együttható ismeretében, ha ismerjük a koncentráció gradienst, e két mennyiség szorzataként megkaphatjuk a nyomanyag áramát (fluxusát), mely ammónia esetében kétirányú lehet, salétromsav esetében csak ülepedés történhet.

A gradiens módszernél a felszíni homogenitásra vonatkozó követelményeknek teljesülniük kell, mely szerint a mérőponthoz érkező légtömegnek nyomanyag-kicserélődés szempontjából egyensúlyban kell állni a légkör és felszín között. Ez a követelmény általában akkor teljesül, ha a felszín homogénnek tekinthető a felső mérési szint (12,3 m) kb. 100-szorosának megfelelő távolságban, szélirányban. Ez a követelmény a víz felől fújó szelek esetén érvényesül, a part felől fújó szelek esetén a mérési eredményeket nem vettük figyelembe.

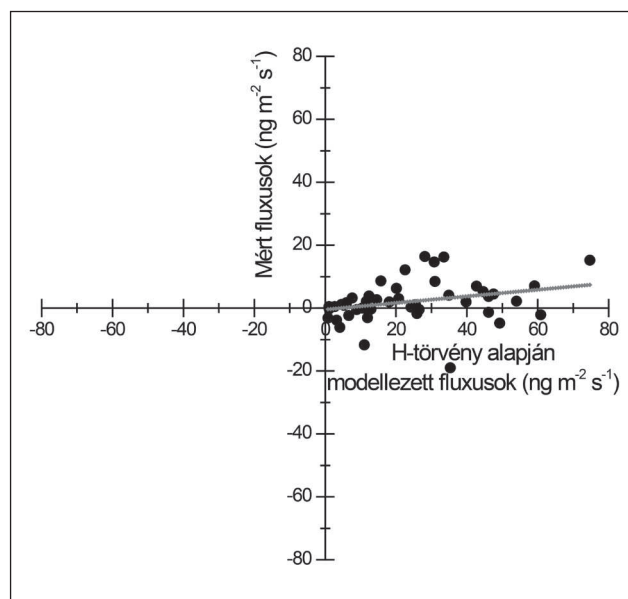
A 2001–2004 közötti évekre alkalmazott modell validálása céljából összehasonlítottuk a mért és a modellezett, azaz a gradiens módszerrel mért és a kompenzációs-pont modellel számított fluxusokat a 2002-es nyári siófoki mérési kampány alatti időszakokra. A modellezett fluxus számításánál az ammónia kompenzációs-pont (egyensúlyi) koncentrációjának meghatározását egyrészt a klasszikus Henry-törvény szerint, másrészt a már említett *Hales and Drewes* (1979) elmélete alapján számítottuk, mely figyelembe veszi a szén-dioxid hatását az ammónia oldhatóságára. A mért és a két kicserélődés-elmélet alapján modellezett fluxusok összehasonlítását a 2. és 3. ábrán láthatjuk.

Az ábrák jól mutatják, hogy a Henry-törvény alkalmazásával meglehetősen eltérő eredményeket kaptunk a mérésekhez képest. A Balaton esetében a *Hales–Drewes*-elmélettel meghatározott kompenzációs-pont koncentráció jól használható a fluxusok számításához, mivel a gradiens módszerrel mért átlagos fluxussal ( $2,11 \text{ ng m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) is jól egyezik a számított  $2,21 \text{ ng m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  érték és a korreláció is erős, szignifikáns kapcsolatra utal. Ezzel szemben, ha a kompen-

zációs-pont koncentrációt a Henry-törvénnyel számítjuk, az így kapott fluxusok átlagosan egynagyságrenddel nagyobb értéket adnak, és a korrelációk együtthatójuk alapján sincs szignifikáns kapcsolat közöttük.

### Az ammónia kicserélődése; a kompenzációs-pont modellel meghatározott kicserélődés

Mivel a helyszíni koncentrációmérések csak egy évig folytak, a többi időszakra két háttér légszennyezettség-mérő állomás (Farkasfa, K-pusztá) interpolált átlagértékeit használtuk a modellezés-



3. ábra. A Henry-törvénnyel modellezett fluxusok összehasonlítása a gradiens módszerrel mért fluxusokkal

hez. Az összehasonlítási időszakban a mért és az interpolált havi átlagértékek között szignifikáns kapcsolatot találtunk ( $r=0,90$ ;  $p=0,01$ ).

Az ammónia légköri koncentrációján és a kompenzációs-ponton kívül a modell másik két bemenő paramétere az aerodinamikai és a határreteg ellenállás. Ezeket az ellenállásokat a FLake modellel (Mironov et al., 2010; Vörös et al., 2010), illetve az *Monin–Obukhov*-féle hasonlósági elméletet használó ellenállás modellel határoztuk meg. A FLake és az ellenállás modell gyakorlatilag azonos eredményre vezetett.

Amikor a tó befagyott, az ammónia kicserélődését nem számítottuk. Szélirány-korrekciót is végeztünk a fluxus számításakor, mivel a part, illetve a tó irányából fújó szél esetében más-más szélességek, illetve léghőmérsékletek jellemzőek, ezek jelentősen befolyásolják

az ammónia számított kicserélődését. A kompenzációs-pont modellel minden órára meghatároztuk a fluxusokat, melyekből havi és éves átlagértékeket számítottunk, elvégezve a fent említett szűréseket. Az éves kicserélődés mértéke a **Táblázatban** látható.

### A salétromsav száraz ülepedésének modellezése

A salétromsav gőz ülepedésének modellezése is a fenti elveken alapul. Ebben a modellben egyetlen különbség az ammónia kompenzációs-pont modellel képest, hogy a kompenzációs-pont nulla lesz. A salétromsav gőz a vízből nem kerül a légkörbe, mivel a víz pH-ja 8,5 körül van. Ilyen pH esetén a salétromsav disszociációja teljes, azaz  $\text{HNO}_3$  molekula nem fordul elő a vízben. Így a salétromsav gőz árama csak a légkörből a víz felé irányulhat, azaz csak ülepedhet. Az egyes rétegekre vonatkozó ellenállásokat az ammóniához hasonlóan számítottuk.

### A modell validálása gradiens módszerrel és kompenzációs-pont modellel kapott értékek összehasonlítása alapján

Az ammóniához hasonlóan a salétromsav gőz esetében is a modellt a gradiens módszerrel mért fluxusokkal validáltuk. A nyári expedíció során, az ammóniához hasonlóan, 3 órás időszakokra határoztuk meg a fluxusokat gradiens módszerrel. A mért és modellezett fluxusok értékeit a nyári expedícióra a 4. ábra mutatja.

A kompenzációs-pont modellel számított és a gradiens módszerrel mért salétromsav kicserélődés közötti korreláció  $r=0,68$ , ami a  $p=0,01$ -es valószínűségi szinten szignifikáns kapcsolatot jelent.

### A salétromsav ülepedése; a kompenzációs-pont modellel meghatározott ülepedés

A salétromsav gőz száraz ülepedési modellje az ammónia kompenzációs-pont modellelhez hasonló. Itt az egyetlen különbség az, hogy a salétromsav gőz kompenzációs-pont koncentrációja pontosan nulla lesz, mivel a salétromsav vizes oldatban a Balatonra jellemző pH-tartományon belül 100%-osan ionjaira disszociál.

A koncentrációkat az ammóniához hasonlóan az éves helyszíni méréseken ki-

vüli időszakban és a farkasfai és K-pusztai háttér-légszennyezettség mérő állomások mérési adatai alapján interpolált koncentrációkkal vettük figyelembe (a mért és számított értékek közti korreláció  $r=0,78$ , ami a  $p=0,01$ -es valószínűségi szinten szignifikáns kapcsolatra utal). Az éves ülepedés mértéke a *Táblázatban* látható.

### Az aeroszol részecskék száraz ülepedése

Az aeroszol részecskék száraz ülepedésének meghatározását egy egyszerű „inferential” (származtatási) módszerrel végeztük, melynek során az ülepedést a mért légköri koncentrációk és az irodalomból származtatott (méretfüggő) száraz ülepedési sebességek szorzataként kaptuk meg. Adott mérettartományba tartozó részecskék ülepedése a mérettartományba tartozó részecskék ülepedési sebessége és tömegkoncentrációja szorzataként kapható meg. Mivel a részecskék ülepedése egyirányú, azaz felfelé irányuló fluxus, más néven emisszió nem képzelhető el, az ülepedési modell egyszerűbb, mint a gázok esetében. Elméletileg az ülepedést a teljes mérettartomány integrálja adja, a gyakorlatban azonban a részecskék nagyság szerinti eloszlásából egy átlagos részecskeméretet számítanak. Az adott átlagos részecskeméretre tartozik egy száraz ülepedési sebesség érték (Kugler and Horváth, 2004). Ennek az ülepedési sebességnek és a részecskék teljes mérettartományára vonatkozó koncentráció értéknek a szorzata adja meg a száraz ülepedés mértékét. A száraz ülepedés mértékének kiszámításához szükséges közepes részecskeméretet a Balaton közelében végzett mérésekből (Mészáros et al., 1997) származtattuk.

Az ülepedési sebesség becsléskor egy természetes vízfelszínre vonatkozó tanulmány (Slinn and Slinn, 1980) eredményeit használtuk, mely szerint az ülepedési sebesség, ellentétben a száraz felszínektől, erősen függ a részecske természetétől (annak higroszkopikus, hidrofíl vagy hidrofób voltától). Számításainkhoz említett szerzők higroszkopikus részecskékre vonatkozó elméletileg meghatározott értékeivel számoltunk  $5 \text{ ms}^{-1}$  átlagos szélesebb és 99% felszín közeli relatív nedvesség esetére. A számítások során felhasznált ülepedési sebességeket évszakos átlaggal vettük figyelembe.

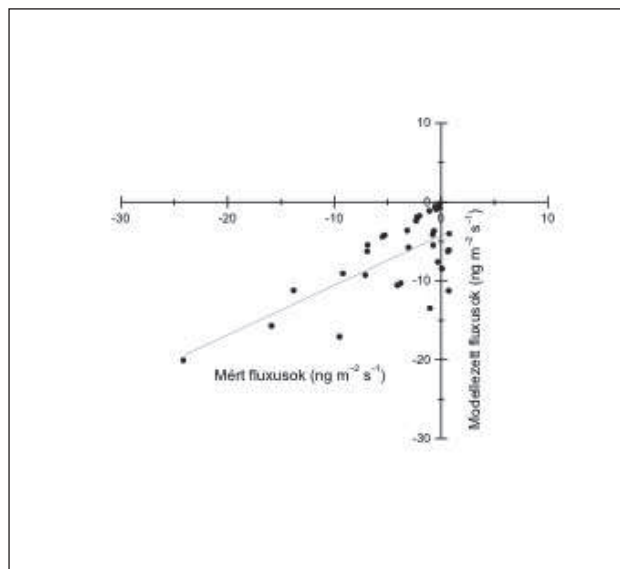
### Az aeroszol részecskék légköri koncentrációja és száraz ülepedése

A nitrogéntartalmú aeroszol részecskék közül az ammónium és a nitrát éves fluxusát határoztuk meg a 4 évre vonatkozóan.

A gázokhoz hasonlóképpen itt is csak 2002. március és 2003. február közötti időszakban történtek napi átlagos koncentráció-mérések Siófokon. A helyszíni mintavételezések hiányában a K-pusztán illetve Farkasfán végzett mérések átlagát használtuk. A korreláció mértéke nitrát esetében  $r=0,91$ , ammóniumra pedig  $r=0,96$ , azaz mindkét kapcsolat a  $p=0,01$ -es szignifikancia szinten szignifikáns. Fenti statisztikai vizsgálatok alapján interpolálhatjuk a K-pusztai és farkasfai adatokat Siófokra a hiányzó időszakban. A 2001 és 2004 közötti teljes nitrát- és ammónium-ülepedés éves mértékét a *Táblázat* tartalmazza.

### A nedves ülepedés meghatározása

A nedves ülepedés mérése nemzetközi és hazai viszonylatokban is évtizedek óta egyszerű rutinmérésnek tekinthető. A nitrogénvegyületek nedves ülepedését a csapadékvíz kémiai összetételéből és a csapadék mennyiségéből kapjuk meg. A nedves ülepedést a kérdéses ion (nitrát vagy ammónium) csapadékvízben mért koncentrációja és a hozzá tartozó csapadékmennyiség szorzata adja.



4. ábra. Az ülepedési modellel számított salétromsav gőz fluxusok összehasonlítása a gradiens módszerrel mért fluxusokkal

Az ülepedés előjele definíció szerint negatív. A havi csapadékvíz gyűjtését az OMSZ Siófoki Viharjelző Observatóriumának kertjében végeztük automata (csak csapadékhullás alatt nyitott) mintavevővel. A csapadékmennyiség mellett a nitrogéntartalmú ionok koncentrációit az OMSZ Levegőkörnyezet-elemző Osztálya mérte. Összesítve a két nitrogéntartalmú ion nedves ülepedését a *Táblázatban* láthatjuk.

### Következtetések

Vizsgálataink célja a Balatonra érő teljes nitrogénterhelés meghatározása volt a 2001 és 2004 közötti időszakra vonatkozóan, különösen azon komponensek (gázok, részecskék száraz ülepedése) pontosabb tanulmányozása alapján, amelyek eddig (mérések hiányában) csak becsléssel lettek figyelembe véve. Ezen vizsgálatok eredményei azonban napjainkra is érvényesek, mivel sem a redukált, sem az oxidált nitrogénvegyületek háttérkoncentrációja nem változott lényegesen azóta (Móring and Horváth, 2014).

A nitrogén a legfontosabb tápanyagok közé tartozik, amelyek a Balaton eutrofizációjának meghatározó elemei. Mivel a különböző forrásokból származó terhelés közül a légköri terhelés az egyik legjelentősebb forrás, ezért vállalkoztunk egy pontosabb mérleg elkészítésére. Annak ellenére, hogy állóvizeink esetében a limitáló tényező általában a foszfor, a Balatonnál a tó tápanyagellátásában, és a vízminőség állapotának befolyásolásában a légköri nitrogénterhelésnek is alapvető szerepe van.

2001 és 2004 között a Balaton felszínére vonatkozó teljes nitrogénmérleg az *Táblázat* szerint alakul.

A nitrogénvegyületek Balatonra és a légkör közti kicserélődésének vizsgálata alapján a tavat 2001–2004 között átlagosan  $440 \text{ t N év}^{-1}$  nitrogénterhelés érte.

Egyik legfontosabb eredménye vizsgálatunknak, hogy a Balaton esetében nincs szükség további bonyolult mérésekre és modellezésekre, ha a légkör-víz közti nitrogénmérlegre vagyunk kíváncsiak. Elegendő egyszerű csapadékkémiai

vizsgálatokat végezni. A nitrogénterhelésben ugyanis elsősorban a nedves ülepedés dominál, annak mintegy 96%-át teszi ki, ellentétben az alacsony és magas vegetációval borított felszínekkel, ahol a száraz ülepedés mértéke jóval meghaladja a nedvesét Magyarországon (Kugler et al., 2008). Ennek fő oka nyilvánvalóan a vízi és szárazföldi felszín karakterisztikái (érdesség) közti különbség. Ezen

Kicserélődési forma	2001	2002	2003	2004	Átlag
	(mg N m <sup>-2</sup> év <sup>-1</sup> )				
NH <sub>3</sub> gáz fluxus	43,2	9,27	20,4	147	54,9
HNO <sub>3</sub> gőz száraz ülepedés	-39,5	-38,3	-39,9	-29,0	-36,7
NO <sub>2</sub> gáz száraz ülepedés*	-25,0	-25,0	-25,0	-25,0	-25,0
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> nedves ülepedés	-165	-108	-227	-263	-191
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> nedves ülepedés	-567	-737	-437	-359	-525
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> részecske száraz ülepedés	-10,1	-10,2	-11,5	-8,17	-10,0
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> részecske száraz ülepedés	-6,95	-7,75	-7,97	-6,91	-7,40
Összesen	-770	-917	-728	-544	-740

\*korábbi mérések alapján becsült adat

**Táblázat. A Balatont érő teljes légköri nitrogénterhelés (a negatív értékek ülepedést, a pozitív értékek kibocsátást jelölnek)**

okok miatt sem a gázok, sem az ammónium és a nitrát részecskék száraz ülepedése sem számottevő.

A Balaton vizének pH-ja abba a tartományba esik (pH=8,3–8,9), melyben az oldott ammóniagáz és az ammóniumion egyaránt létezik. Ez lehetővé teszi, mind az ammónia ülepedését, mind a felszabadulását a tó vizéből. Mivel a víz fizikai és kémiai paraméterei által megszabott kompenzációs-pont koncentráció vizsgálataink során hol kisebb, hol nagyobb volt, mint az aktuális légköri koncentráció, az ammónia fluxusa kétirányú. A nettó fluxus a négy év átlagában 32,7 t N év<sup>-1</sup> kibocsátást mutat, ami nem elhanyagolható, de nem is domináns mennyiség a nitrogénmérlegben. A salétromsav gőz fluxusa pedig -21,8 t N év<sup>-1</sup> (ülepedés).

Mivel az ammónia nettó fluxusát többek között a víz ammónia+ammónium és a levegő ammónia koncentrációja szabja meg, a Balatont érő nagyobb nitrogénterhelés esetén a kompenzációs-pont koncentráció is megnő, ami az ammónia kibocsátás megnövekedésével jár. Ez negatív visszacsatolás szerű folyamat, ami a nitrogénterhelés hatását tompíthatja. Nagyságrendnyi terhelésnövekedés nagyságrendnyi kibocsátás növekedéssel járhat a leírt egyensúlyi egyenletek szerint. Nitrogénhiány esetén pedig a víz alacsony ammónia+ammónium tartalma miatt csökken a kompenzációs-pont koncentráció, ami a fluxus előjelének megfordulásával jár, azaz a tó a levegőből veszi fel a szükséges nitrogént. Ez az egyik oka lehet annak a ténynek, hogy a Balaton eutrofizációja foszfor limitált.

Vizsgálataink szerint a gradiens módszerrel mért ammónia fluxus és a klasszikus Henry-törvény alapján modellezett fluxusok közt nincs szignifikáns korreláció és az értékek között egy nagyságrendnyi különbség van. Ellentétben a CO<sub>2</sub> hatását figyelembe vevő Hales–Drewes-elmélettel, mely szignifikáns korrelációt ad és a modellezett, illetve a mért átlagértékek is megegyeznek. A CO<sub>2</sub> hatása számításaink szerint pH-függő, pH=8,25 alatt csökkenti, e fölött növeli

az ammónia oldhatóságát. Ez nyilvánvalóan annak a következménye, hogy az oldott NH<sub>3</sub> és CO<sub>2</sub> reakciójából keletkező karbaminsav alacsonyabb pH-n illékony (ammóniát visz el), magasabb pH-n ionjaira disszociál, mely az ammóniát oldatban tartja (illékonyását csökkenti).

*A nitrogénvegyületek kicserélődésének vizsgálata a Balaton és a légkör között 2001-2004 című OTKA K-46824 kutatási program eredményeinek összefoglalója*

## Irodalom

- Ayers, G.P., Gillett, R.W., Caeser, E.R. (1985): Solubility of ammonia in water in the presence of atmospheric CO<sub>2</sub>. *Tellus* **37B**: 35–40.
- Businger, J.A., Wyngaard, J.C., Izumi, Y., Bradley, E.F. (1971): Flux-Profile Relationships in the Atmospheric Surface Layer. *Journal of Atmospheric Sciences* **28**: 181–189.
- Dasgupta, P.K., Dong, S. (1986): Solubility of Ammonia in Liquid Water and Generation of Trace Levels of Standard Gaseous Ammonia. *Atmospheric Environment* **20**: 565–570.
- Dyer, A.J. (1974): A review of flux-profile relationships. *Boundary-Layer Meteorology* **7**: 363–372.
- Erisman, J.W., van Pul, A., Wyers, P. (1994): Parameterization of dry deposition mechanisms for the quantification of atmospheric input to ecosystems. *Atmospheric Environment* **28**: 2595–2607.
- Hales, J.M., Drewes, D.R. (1979): Solubility of ammonia at low concentrations. *Atmospheric Environment* **13**: 1133–1147.
- Herodek S. (1977): A balatoni fitoplankton kutatás újabb eredményei. *Annales Instituti Biologici (Tihany) Hungaricae Academiae Scientiarum* **44**: 181–198.
- Herodek, S., Istvanovics, V. (1986): Mobility of phosphorus fractions in the sediments of Lake Balaton. *Hydrobiologia* **135**: 149–154.
- Horváth, L. (1982): *On the vertical flux of gaseous*

*ammonia above water and soil surfaces*. In: Deposition of Atmospheric Pollutants. (Ed. D. Reidel) Dordrecht, 17–22.

Kramm, B., Dlugi, R., Foken, Th., Mölders, N., Müller, H., Paw U.K.T. (1996): On the determination of the sublayer-Stanton numbers of heat and matter for different types of surfaces. *Contribution to Atmospheric Physics* **69**: 417–430.

Kugler, Sz., Horváth, L. (2004): Estimation of the nitrogen loading from the atmospheric dry deposition of ammonium and nitrate aerosol particles to Lake Balaton. *Időjárás*, **108**: 155–162.

Kugler, Sz., Horváth, L., Machon, A. (2008): Estimation of nitrogen balance between the atmosphere and Lake Balaton and a semi natural grassland in Hungary. *Environmental Pollution* **154**: 498–503.

Lau, J.M., Charlson, R.J. (1977): On the discrepancy between background atmospheric ammonia gas measurements and the existence of acid sulfates as a dominant atmospheric aerosol. *Atmospheric Environment* **11**: 475–478.

Mészáros, E., Barcza, T., Gelencsér, A., Hlavay, J., Kiss, Gy., Krivácsi, Z., Molnár, Á., Polyák, K. (1997): Size distributions of inorganic and organic species in the atmospheric aerosol in Hungary. *Journal of Aerosol Science* **28**: 1163–1175.

Mironov, D., Heise, E., Kourzeneva, E., Ritter, B., Schneider, N., Terzhevik, A. (2010): Implementation of the lake parameterisation scheme FLake into the numerical weather prediction model COSMO. *Boreal Environment Research* **15**: 218–230.

Móring, A., Horváth, L. (2014): Long-term trend of deposition of atmospheric sulfur and nitrogen compounds in Hungary. *Időjárás* **118**: 167–191.

Slinn, S.A., Slinn, W.G.N. (1980): Prediction for particle deposition on natural waters. *Atmospheric Environment* **14**: 1013–1016.

Vörös, M., Istvánovics, V., Weidinger, T. (2010): Applicability of the FLake model to Lake Balaton. *Boreal Environment Research* **15**: 245–254.