



Konsentrasi Gas NH₃ di Daerah Perkotaan

NH₃ Gas Concentration in Urban Areas

DYAH ARIES TANTI*, ARIF RACHMAN, OPIK TAOPIK, ASRI INDRAWATI, WIWIEK SETYAWATI,
AMALIA NURLATIFAH

Badan Riset dan Inovasi Nasional

*dyahariest@gmail.com

ARTICLE INFO

Article history:

Received 13 April 2023

Accepted 6 July 2023

Published 31 July 2023

Keywords:

Ambient air

Passive sampler

Ammonia gas

ABSTRACT

The presence of ammonia gas as a pollutant in the atmosphere can cause various air pollution problems, including as a precursor to the formation of PM_{2.5} particulate matter which is harmful to human health. In urban areas, NH₃ gas emissions come from transportation and household activities. This research was conducted to determine the concentration of ammonia gas in ambient air in urban areas using a passive sampler. Sampling locations include areas that include the center of Bandung city, namely Pasteur, Kopo, and Kebon Kalapa. Sampling was carried out from 2014–2018 with a sampling duration of one month. Based on the results of laboratory analysis, it was found that the highest concentration of ammonia gas was in the Kebon Kalapa area with the highest concentration value of 45.03 µg/m³, followed by the Kopo area of 26.88 µg/m³ and Cipedes of 11.7 µg/m³. If based on seasonal patterns, it is found that in the dry months, the concentration of ammonia gas in ambient air tends to be higher than in the wet season for the three study locations.

INFORMASI ARTIKEL

Histori artikel:

Diterima 13 April 2023

Disetujui 6 Juli 2023

Diterbitkan 31 Juli 2023

Kata kunci:

Udara ambien

Passive sampler

Gas amonia

ABSTRAK

Keberadaan gas amonia sebagai polutan di atmosfer dapat menimbulkan berbagai masalah pencemaran udara diantaranya sebagai prekursor dari pembentukan partikulat PM_{2.5} yang berbahaya bagi kesehatan manusia. Di daerah perkotaan emisi gas NH₃ berasal dari transportasi serta kegiatan rumah tangga. Penelitian ini dilakukan untuk menentukan konsentrasi gas amonia di udara ambien daerah perkotaan dengan menggunakan metode passive sampler. Lokasi sampling meliputi daerah yang termasuk pusat kota Bandung, yaitu Pasteur, Kopo dan Kebon Kalapa. Sampling dilakukan dari tahun 2014–2018 dengan durasi sampling satu bulan. Berdasarkan hasil analisa laboratorium, diperoleh bahwa konsentrasi gas amonia tertinggi ada di daerah Kebon Kalapa dengan nilai konsentrasi tertinggi sebesar 45,03 µg/m³, selanjutnya daerah Kopo sebesar 26,88 µg/m³ dan Cipedes sebesar 11,7 µg/m³. Jika berdasarkan pola musiman diperoleh bahwa pada bulan kering kecenderungan konsentrasi gas amonia di udara ambien lebih tinggi dibandingkan dengan musim basah untuk ketiga lokasi penelitian.

1. PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Amonia (NH₃) merupakan gas polutan atmosfer yang berperan dalam beberapa masalah pencemaran udara. Meskipun sebagian besar emisi gas NH₃ berasal dari kegiatan pertanian namun di daerah perkotaan sumber emisi NH₃ berasal dari transportasi (Ehrnsperger, 2020; Farren et al., 2021), dan kemungkinan berasal dari masalah pengelolaan lingkungan, sampah rumah tangga, pengolahan air limbah dan industri (Reche et al., 2015). Pengukuran konsentrasi gas NH₃ yang dilakukan di Romania menunjukkan konsentrasi gas NH₃ lebih tinggi di pagi hari dibandingkan saat malam hari, hal ini menunjukkan bahwa kegiatan antropogenik berpengaruh terhadap emisi NH₃ (Petrus, 2022). Penelitian terbaru juga menunjukkan bahwa emisi NH₃ dari kendaraan bermotor berperan penting dalam pembentukan partikulat di atmosfer (Farren et al., 2021).

Dampak langsung NH₃ terhadap kesehatan manusia hanya ditemukan pada beberapa kasus diantaranya dampak langsung pada kesehatan pernafasan pekerja peternakan yang berinteraksi langsung dengan hewan ternak (Wyer et al., 2022). Dalam studi kasus pada pekerja di suatu pabrik pupuk urea paparan jangka pendek dari gas NH₃ menyebabkan iritasi jaringan dan sistem pernafasan sedangkan paparan dalam jangka panjang tidak bersifat karsinogen namun dalam beberapa kasus dapat menyebabkan luka bakar, gangguan pernafasan dan kelainan otak (Pratiwi et al., 2018). Gas NH₃ berhubungan erat dengan kehadiran amonium di atmosfer, yang merupakan salah satu penyebab keasamaan pada air hujan (Chatain et al., 2022) dan pembentukan partikulat bersama dengan nitrat dan sulfat membentuk garam amonium (Ehrnsperger, 2020). Garam amonium yang terbentuk berupa aerosol anorganik yang merupakan partikel halus dengan diameter kurang dari 2,5 µm (PM_{2.5}) diantaranya amonium sulfat ((NH₄)₂SO₄), amonium bisulfat (NH₄HSO₄), dan amonium nitrat (NH₄NO₃) (Baurer et al., 2016). Di Eropa, gas NH₃ berkontribusi terhadap pembentukan PM_{2.5} sebesar 50%, sedangkan di Amerika sebesar 30% dan sebesar 14–18% di Cina Timur (Han et al., 2019; Wyer et al., 2022). PM_{2.5} memiliki dampak negatif terhadap kesehatan manusia dan menyebabkan kematian. Partikel ini memiliki kemampuan menembus jauh ke dalam paru-paru dan menyebabkan penyakit jangka panjang seperti penyakit paru kronis dan kanker paru-paru (Wyer et al., 2022).

Mengingat dampak yang ditimbulkan dari gas NH₃ terutama dalam kaitannya dengan pembentukan partikel PM_{2.5} dan masih terbatasnya ketersediaan data maka dilakukan pemantauan terhadap gas NH₃ di udara ambien. Salah satunya adalah dengan menggunakan metode *passive sampler*. Metode ini telah banyak digunakan secara luas di seluruh dunia termasuk Indonesia (Vieira et al., 2013; Bycenkiene et al., 2018; Bozkurt et al., 2018; Indrawati et al., 2019; Tanti et al., 2022; Setyawati et al., 2022). Penggunaan metode *passive sampler* ini mudah dan murah serta data yang dihasilkan telah divalidasi dengan metode aktif *sampler* dengan hasil korelasi yang cukup baik (Indrawati et al., 2021; Rosario et al., 2016)

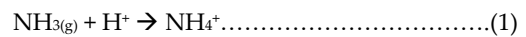
1.2 Tujuan Penelitian

Gas NH₃ adalah prekursor utama pembentuk aerosol sekunder yang erat kaitannya dengan PM_{2.5}, sehingga membuat pentingnya pemantauan NH₃ di udara ambien terutama untuk daerah perkotaan. Penelitian ini dilakukan untuk menentukan konsentrasi gas NH₃ di udara ambien dengan menggunakan metode *passive sampler*. Hasil yang diperoleh diharapkan dapat digunakan untuk identifikasi lebih lanjut dalam menjelaskan pembentukan polutan sekunder hasil reaksi gas NH₃ di udara dengan beberapa senyawa lainnya di daerah perkotaan. Serta dapat menjadi masukan untuk menentukan kebijakan yang terkait dengan kualitas udara di daerah perkotaan.

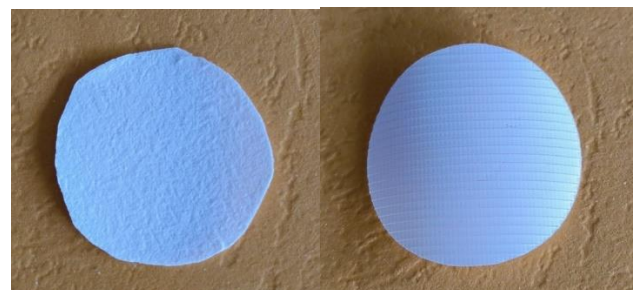
2. METODE

2.1 Alat dan Bahan

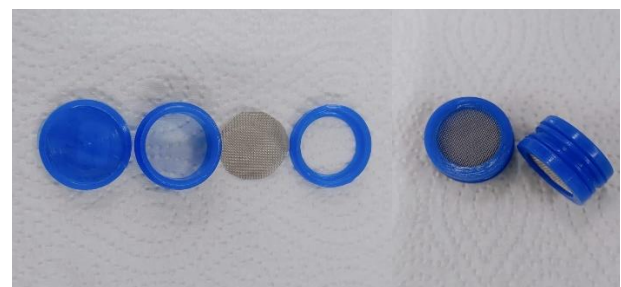
Pengambilan sampel gas NH₃ menggunakan peralatan *passive sampler* sesuai prosedur CMAR Chemlab (CSIRO Marine and Atmospheric Research Wet Chemistry Laboratory) (Powell, 2007). Larutan penyerap yang digunakan untuk menangkap gas NH₃ menggunakan campuran 0,5 gram asam sitrat yang dilarutkan dalam 25 mL aseton. Reaksi yang terjadi pada filter yaitu (Adon et al., 2010; Powell, 2007):



Passive sampler menggunakan dua buah filter seperti terlihat pada Gambar 1, yaitu filter PTFE 25 mm Advantec J100A025A dan filter selulosa whatman 24 mm *glass fibre*.



Gambar 1. (kiri) Filter PTFE; (kanan) filter selulosa



Gambar 2. (kiri) *Passive Sampler*; (kanan) bagian-bagian *passive sampler*

Metode *passive sampler* (Gambar 2) yang digunakan mengikuti prosedur dari CMAR Chemlab dengan tipe *passive sampler* yaitu tipe Ferm (Powel, 2007). *Passive sampler* menggunakan prinsip difusi molekul dimana molekul gas

akan berdifusi ke dalam sampler dan terkumpul pada filter. *Passive sampler* di bagi menjadi 2 bagian, yang pertama *diffusion zone* (bagian difusi) yaitu bagian *inlet* gas dengan lapisan filter PTFE yang melindungi bagian penyerapan. Bagian kedua adalah *absorbent zone* (bagian penyerapan) berupa filter selulosa yang telah ditambah bahan penyerap. Durasi sampling untuk gas NH₃ adalah 1 bulan (kurang lebih 30 hari). Filter hasil sampling di ekstrak dengan air demineralisasi, selanjutnya hasil ekstraksi dianalisa dengan peralatan kromatografi ion dan terbaca sebagai ion NH₄⁺. Kemudian dari hasil perhitungan diperoleh konsentrasi ambien gas NH₃. Perhitungan konsentrasi ambien gas NH₃ dihitung dengan menggunakan persamaan sebagai berikut:

$$C_a = \frac{EV \times C_{aq} \times R}{t \times D} \dots\dots\dots(2)$$

Keterangan:

- Ca = konsentrasi gas NH₃ ambien (nmol m⁻³)
- EV = volume ekstraksi (cm³)
- Caq = konsentrasi ion NH₄⁺ (μmol l⁻¹)
- t = waktu paparan (detik)
- D = koefisien difusi (2,54 × 10⁻⁵ m² s⁻¹)
- R = total resistensi difusi sampel (38,64 m⁻¹)

$$[NH_3] = \frac{C_a \times MW}{1000} \dots\dots\dots(3)$$

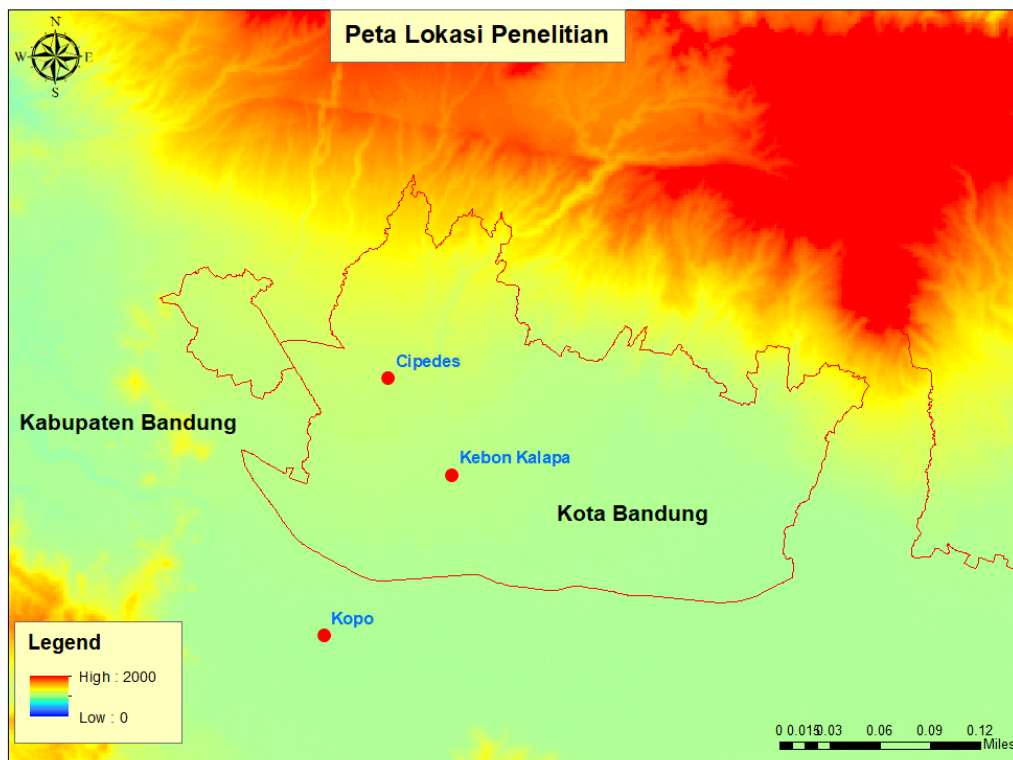
Keterangan:

- [NH₃] = konsentrasi gas NH₃ ambien (nmol m⁻³)
- EV = volume ekstraksi (cm³)
- Caq = konsentrasi ion NH₄⁺ (μmol l⁻¹)
- t = waktu paparan (detik)
- D = koefisien difusi (2,54 × 10⁻⁵ m² s⁻¹)
- R = total resistensi difusi sampel (38,64 m⁻¹)

2.2 Alat dan Bahan

Lokasi pengambilan data dilakukan di 3 lokasi perkotaan di daerah Bandung (Gambar 3) yaitu di Cipedes, Kopo dan Kebon Kalapa. Cipedes, Kopo dan Kebon Kalapa merupakan daerah kota Bandung dengan tingkat transportasi yang cukup tinggi, baik pada hari libur maupun hari kerja. Kopo merupakan daerah industri, sedangkan titik sampling di Kebon Kalapa berada pada daerah pemukiman penduduk sehingga akan mewakili sumber polutan yang berasal dari kawasan pemukiman.

Data yang digunakan adalah data konsentrasi gas NH₃ udara ambien hasil sampling dengan *passive sampler* dari tahun 2014–2018. Sebagai data tambahan digunakan data meteorologi berupa data curah hujan bulanan dari tahun 2014–2018 yang diperoleh dari penakar hujan disetiap lokasi sampling.



Gambar 3. Peta lokasi sampling

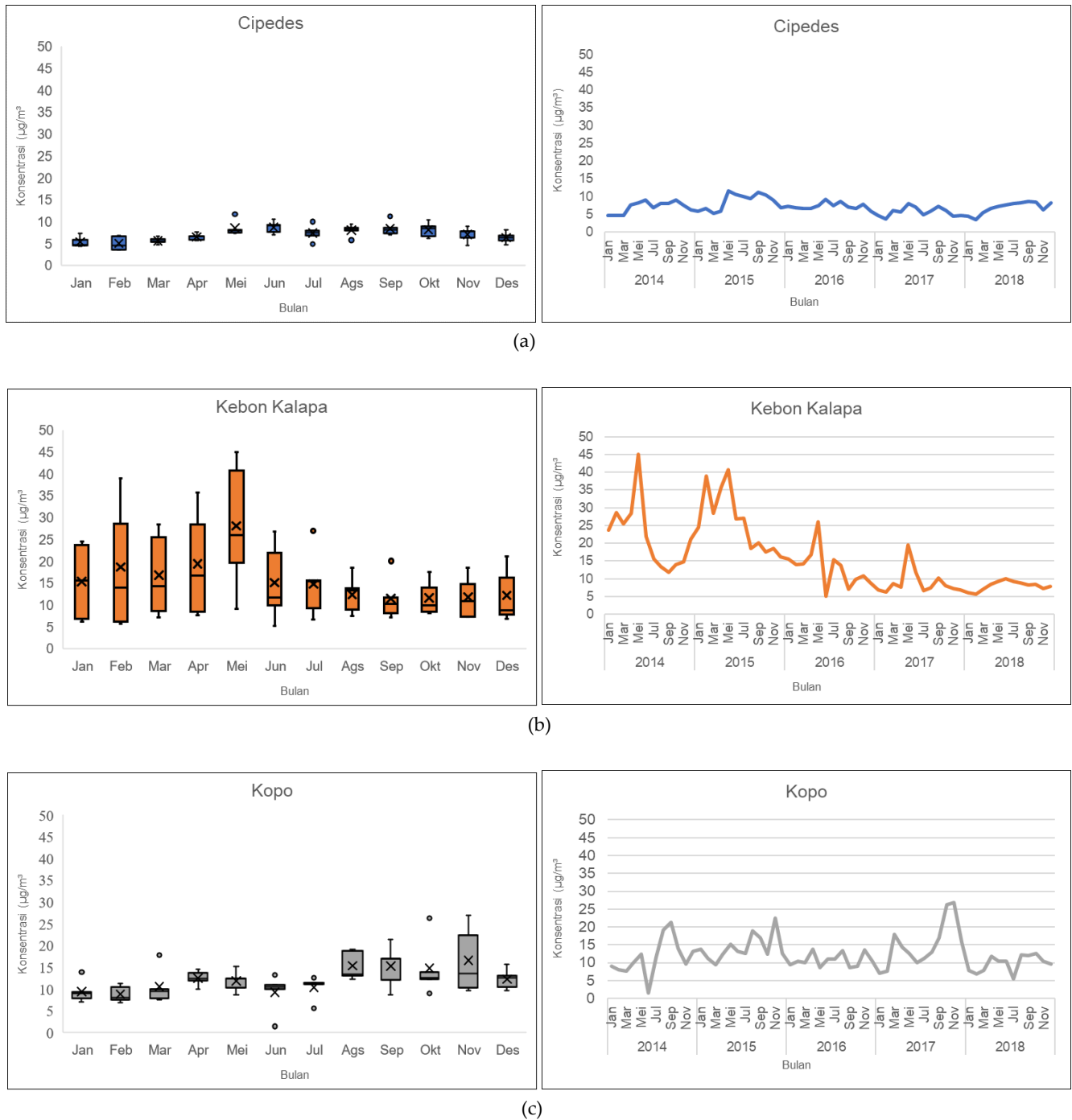
3. HASIL DAN PEMBAHASAN

Konsentrasi gas NH₃ di udara ambien pada lokasi penelitian yaitu Cipedes, Kopo dan Kebon dari tahun 2014–2018 pada Gambar 4, terlihat berfluktuasi. Konsentrasi gas NH₃ tertinggi yaitu ada di daerah Kebon Kalapa dengan nilai rata-rata konsentrasi gas NH₃ sebesar 15,65 μg/m³.

Selanjutnya daerah Kopo sebesar 12,24 μg/m³ dan Cipedes sebesar 7,12 μg/m³. Tingginya konsentrasi NH₃ di daerah perkotaan diantaranya berasal dari emisi lokal lalu lintas jalan raya, industri dan juga akibat transportasi massa gas polutan dari daerah dengan konsentrasi tinggi (Wang et al., 2015). Selain itu emisi NH₃ berasal dari limbah konsumsi manusia, vegetasi alami dan hewan liar, pembakaran bahan bakar dan

biomassa, industri dan lainnya (Sapek, 2013). Kebon Kalapa dan Kopo merupakan daerah dengan kepadatan transportasi yang cukup tinggi setiap harinya dan banyaknya pemukiman

bila dibandingkan dengan daerah Cipedes. Sehingga konsentrasi gas NH₃ di daerah Kebon Kalapa dan Kopo signifikan lebih tinggi dibandingkan dengan Cipedes.



Gambar 4. Konsentrasi NH₃ ambien di (a) Cipedes; (b) Kebon kalapa; (c) Kopo

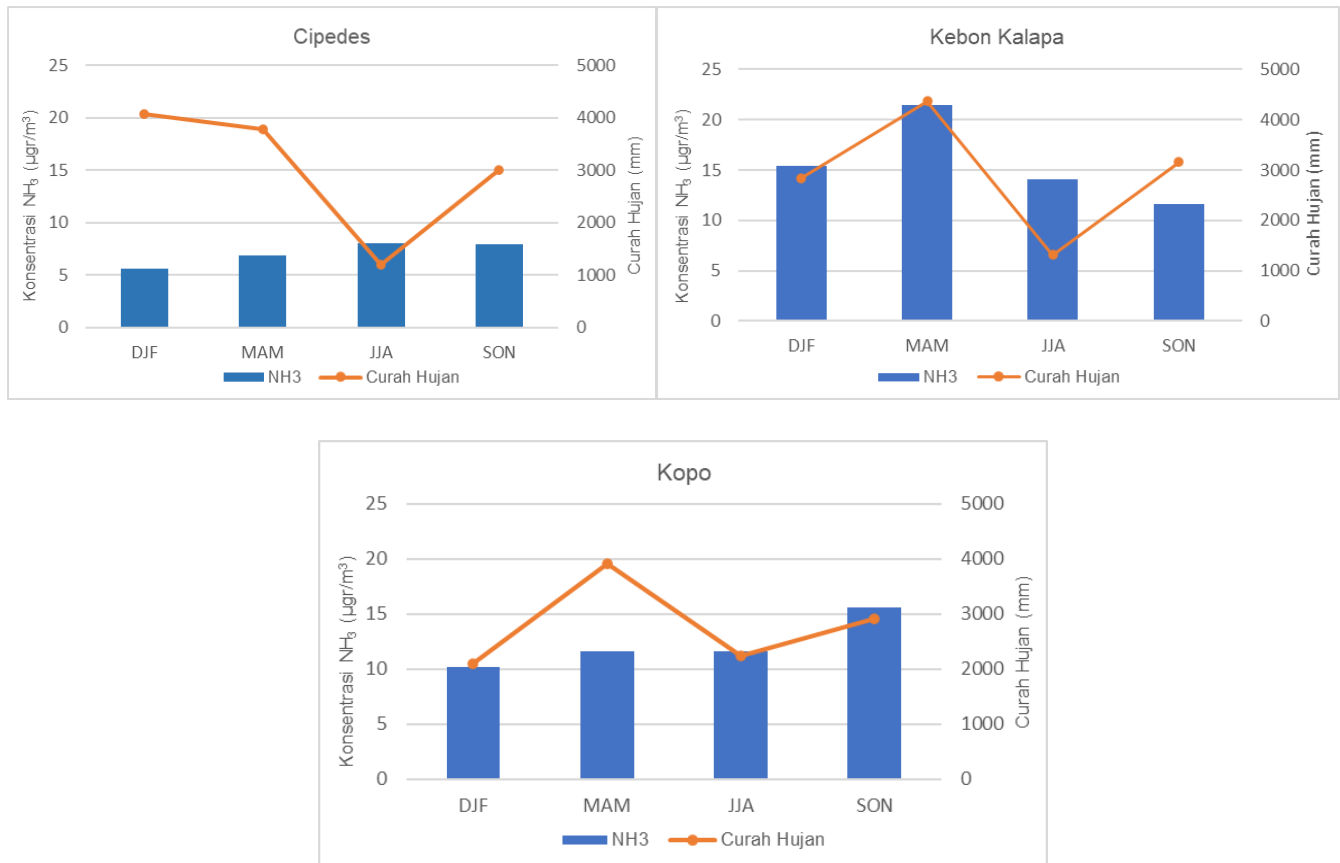
Tren konsentrasi daerah Kebon Kalapa terlihat meningkat pada tahun 2014–2015, dan menurun pada tahun 2016–2018, hal ini dikarenakan pada tahun 2014–2015 terdapat tempat pembuangan sampah didekat lokasi penelitian. Asam lemak ada dalam limbah rumah tangga. Asam lemak terdekomposisi diikuti dengan peningkatan pH dan emisi NH₃. Emisi nitrogen yang dihasilkan dari limbah rumah tangga terdiri dari 84,5% dan diantaranya berasal dari proses pengolahan makanan (Xing *et al.*, 2021). Kondisi ini yang mengakibatkan peningkatan konsentrasi gas NH₃ di daerah Kebon Kalapa. Menurut penelitian yang dilakukan

oleh Reche *et al.*, 2012, diperoleh adanya korelasi yang signifikan antara nilai rata-rata konsentrasi NH₃ dengan jumlah tempat pembuangan sampah per hektometer persegi dalam sebuah perkotaan. Kepadatan penduduk yang tinggi memberikan pengaruh yang kuat terhadap peningkatan konsentrasi gas NH₃.

Jika dilihat berdasarkan pola musiman dari tahun 2014–2018 untuk semua lokasi penelitian seperti yang tersaji pada Gambar 5, terlihat bahwa setiap lokasi mempunyai karakteristik yang berbeda. Daerah Cipedes konsentrasi tertinggi pada saat bulan kering Juni, Juli, dan Agustus (JJA).

Sedangkan untuk Kebon Kalapa pada musim peralihan basah - kemarau, yaitu bulan Maret, April, dan Mei (MAM). Konsentrasi gas NH₃ untuk Kopo terjadi pada musim peralihan kemarau – basah, yaitu September, Oktober, dan November (SON). Perbedaan karakteristik ini tergantung kepada jumlah sumber emisi NH₃ yang berada di dekat lokasi

penelitian pada bulan-bulan tersebut dan juga faktor meteorologi. Suhu berpengaruh pada tinggi rendahnya konsentrasi NH₃ udara ambien, dimana kosentrasi akan meningkat saat suhu udara tinggi dan sebaliknya akan menurun saat suhu udara rendah (Petrus et al., 2022).



Gambar 5. Konsentrasi bulanan NH₃ dengan curah hujan di lokasi penelitian

Konsentrasi gas NH₃ cenderung rendah pada saat curah hujan tinggi, dan sebaliknya. Kondisi ini berhubungan dengan proses pencucian atmosfer, dimana air hujan akan menghilangkan gas-gas polutan yang teremisikan ke atmosfer (Yoo et al., 2014). Pada daerah Cipedes, konsentrasi NH₃ tertinggi pada JJA sebesar 8,05 µgr/m³ dan saat DJF (Desember, Januari, dan Februari) konsentrasi NH₃ menurun 5,62 µgr/m³. Daerah Kebon Kalapa, konsentrasi NH₃ tertinggi pada MAM yaitu 21,45 µgr/m³ dan konsentrasi NH₃ terendah sebesar 11,62 µgr/m³ terjadi SON. di Kopo konsentrasi NH₃ terendah juga terjadi saat musim basah DJF sebesar 10,18 µgr/m³.

4. KESIMPULAN

Hasil penelitian menunjukkan tingginya konsentrasi gas NH₃ di daerah perkotaan. Dari tiga lokasi penelitian dari tahun 2014–2018, daerah Kebon Kalapa memiliki konsentrasi NH₃ tertinggi dan selanjutnya diikuti daerah Kopo dan Cipedes. Tinggi rendahnya konsentrasi dipengaruhi oleh kondisi lingkungan yaitu sumber emisi di sekitar lokasi pemantauan. Selain itu faktor meteorologi juga berpengaruh mempengaruhi terhadap tinggi rendahnya konsentrasi NH₃ seperti suhu dan curah hujan dalam kaitannya dengan pencucian atmosfer.

PERSANTUNAN

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Laboratorium Kimia BRIN yang telah menyediakan data serta Organisasi Riset Penerbangan dan Antariksa untuk mendukung biaya penelitian.

DAFTAR PUSTAKA

Adon, M., Galy-Lacaux, C., Yobou'e, V., Delon, C., Lacaux, J.P., Castera, P., Gardrat, E., Pienaar, J., Laouali, D., Diop, B., Sigha-Nkamdjou, L., Akpo, A., Tathy, J.P., Lavenu, F., & Mougin, E. (2010). Long Term Measurements of Sulfur Dioxide, Nitrogen Dioxide, Ammonia, Nitric Acid and Ozone In Africa Using Passive Samplers. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10:7467-7487.

Bauer, S.E., Tsigaridis, K., & Miller, R. (2016). Significant Atmospheric Aerosol Pollution Caused by World Food Cultivation. *Geophysical Research Letters*. DOI: 10.1002/2016GL068354.

Bozkurt, Z., Uzmez, O.O., Dogeroglu, T., Artun, G., & Gaga, E.O. (2018). Atmospheric Concentration of SO₂, NO₂, Ozone and VOCs in Duzce, Turkey Using Passive Air

- Samplers: Sources, Spatial and Seasonal Variations and Health Risk Estimation. *Atmospheric Pollution Research*, Vol 9, No.6, pp. 1146-1156.
- Bycenkiene, S., Jasineviciene, D., & Perkauskas, D. (2018). Overview of Air Pollution Assessment in Northern Europe (Lithuania) by Passive Diffusion Sampling. *Advances in Meteorology*, Vol. 2018, 11 pages. DOI: 10.1155/2018/7529043.
- Chatain, M., Chretien, E., Crunaire, S., & Jantzen, E. (2022). Road Traffic and Its Influence on Urban Ammonia Concentration (France). *Atmosphere*, 13, 1032. DOI: 10.3390/atmos13071032.
- Ehrnsperger, L., & Klemm, O. (2020). Source Apportionment of Urban Ammonia and its Contribution to Secondary Particle Formation in a Mid-size European City. *Aerosol and Air Quality Research*, Vol.21. DOI: 10.0429/aaqr.2020.07.0404.
- Farren, N.J., Davison, J., Rose, R.A., Wagner, R.L., & Carslaw, D.C. (2021). Characterisation of Ammonia Emissions from Gasoline and Gasoline Hybrid Passenger Cars. *Atmospheric Environment: X*. DOI: 10.1016/j.aeaoa.2021.100117.
- Han, X., Zhu, L., Liu, M., Song, Y., & Zhang, M. (2019). Numerical Analysis of The Impact of Agricultural Emissions on PM_{2.5} In China Using a High-Resolution Ammonia Emissions Inventory. *Atmospheric Chemistry and Physics*. DOI: 10.5194/acp-2019-1128.
- Indrawati, A., Tanti, D.A., Budiwati, T., & Sumaryati. (2019). Perhitungan Konsentrasi Nitrogen Oksida (NO, NO_x) Ambien Dengan Menggunakan Konsentrasi NO₂ dan O₃ Dari Passive Sampler (Studi Kasus: Cipedes, Bandung). *Jurnal Sains Dirgantara*, Vol.16 No.2: 91-104.
- Indrawati, A., Tanti, D.A., Cholianawati, N., Sofyan, A., & Cahyono, W.E. (2021). Perbandingan Tingkat Kadar Gas SO₂ dan NO₂ di Udara Ambien Antara Metode Pasif dan Metode Aktif (Studi Kasus: Kota Jakarta). *Jurnal Teknologi Lingkungan*, 22(1): 111-120. DOI: 10.29122/jtl.v22i1.4182.
- Petrus, M., Popa, C., & Bratu, A.M. (2022). Ammonia Concentration in Ambient Air in a Peri-Urban Area Using a Laser Photoacoustic Spectroscopy Detector. *Materials* 2022, 15, 3182. DOI: 10.3390/ma15093182.
- Powell, J. (2007). Chemlab Wet Chemistry Measurement, Work Instructional Manual for NATA Accredited Laboratories, CMAR-NATA-WC-2.0.2nd Edition.
- Pratiwi, D.M., Soemantodjo, R.W., & Utomo, S.W. (2018) E3S Web of Conference 73, 06003. DOI: 10.1051/e3sconf/20187.
- Reche, C., Viana, M., Pandolfi, M., Alastuey, A., Moreno, T., Amato, F., Ripoll, A., & Querol, X. (2012). Urban NH₃ Levels and Sources in a Mediterranean Environment. *Atmospheric Environment*, Vol. 57, pages 153-164. DOI: 10.1016/j.atmosenv.2012.04.021.
- Reche, C., Viana, M., Karanasiou, A., Cusack, M., Alastuey, A., Artinano, B., Revuelta, M.A., Lopez-Mahia, P., Blanco-Heras, G., Rodriguez, S., Sanchez de la Campa, A.M., Fernandez-Camacho, R., Gonzales-Castanedo, Y., Mantilla, E., Tang, Y.S., & Querol, X. (2015). Urban NH₃ Levels and Sources in Six Major Spanish Cities. *Chemosphere* 119, 769-777. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2014.07.097.
- Rosario, L., Pietro, M., & Francesco, S.P. (2016). Comparative Analyses of Urban Air Quality Monitoring Systems: Passive Sampling and Continuous Monitoring Stations. *Energy Procedia*, 101, 321-328. DOI: 10.1016/j.egypro.2016.11.041.
- Sapek, A., (2013). Ammonia Emission from Non-Agricultural Sources. *Journal of Environmental Studies*, Vo.22, No.1, 63-70.
- Setyawati, W., Tanti, D.A., & Indrawati, A. (2022). Air Quality in the Bandung Basin of Indonesia as Measured by Passive Sampler. *Proceeding of the International Conference on Radioscience, Equatorial Atmospheric Science and Environment and Humanosphere Science*, DOI: 10.1007/978-981-19-0308-3_36.
- Tanti, D.A., & Indrawati, A. (2022). Measurement of Ambient Ozone Concentration Using Passive Sampler. *Jurnal Kimia Dan Pendidikan Kimia*, Vol.7, No. 1. p-ISSN 2503-4146 e-ISSN 2503-4154.
- Vieira, L.C., Brandli, L., & Korf, E.P. Passive Samplers for Air Quality Monitoring in a Brazilian University. (2013). *International Journal of Environment and Pollution*, Vol.53. DOI: 10.1504/IJEP.2013.058813.
- Wang, S., Nan, J., Shi, C., Fu, Q., Gao, S., Wang, D., Cui, H., Saiz-Lopez, A., & Zhou, B. (2015). Atmospheric Ammonia and Its Impacts on Regional Air Quality Over the Megacity of Shanghai, China. *Scientific Reports*, 5:15842. DOI: 10.1038/srep15842.
- Wyer, K.E., Kelleghan, D.B., Blanes-Vidal, V., Schaubberger, G., & Curran, T.P. (2022). Ammonia Emissions from Agriculture and Their Contribution to Fine Particulate Matter: A Review of implications For Human Health. *Journal of Environmental Management*. DOI: 10.1016/j.jenvman.2022.116285.
- Xing, L., Lin, T., Xue, X., Liu, J., Lin, M., & Zhao, Y. (2021). Urban Metabolism of Food-Sourced Nitrogen Among Different Income Households: A Case Study Based on Large Sample Survey in Xiamen City, China. *Foods*, 10, 2842. DOI: 10.3390/foods10112842.
- Yoo, J.M., Lee, Y.R., Kim, D., Jeong, M.J., Stockwell, W.R., Kundu, P.K., Oh, S.M., Shin, D.B., & Lee, S.J. (2014). New Indices for Wet Scavenging of Air Pollutants (O₃, CO, NO₂, SO₂, and PM₁₀) by summertime rain. *Atmospheric Environment*, 82 (2014) 226-237. DOI: 10.1016/j.atmosenv.2013.10.022.