

---

## BURSA'DAKİ İÇ VE DIŞ ORTAM HAVASINDA ORGANOKLORLU PESTİSİTLER (OCP'LER): KONSANTRASYON DAĞILIMLARI, MUHTEMEL KAYNAKLARI VE SAĞLIK RİSKLERİ

*Mehmet Ferhat SARI* \*<sup>ID</sup>

*Fatma ESEN* \*\*<sup>ID</sup>

*Sündüz SHANABO* \*\*\*<sup>ID</sup>

---

Alınma:20.07.2023; düzeltme:26.09.2023; kabul: 09.10.2023

**Öz:** Organoklorlu pestisitler (OCP'ler) fiziksel ve kimyasal özelliklere göre tüm çevrede bulunan ve dünyada en yaygın olarak kullanılan kimyasalların başında gelmektedir. Yaklaşık 40 yıldır kullanımları yasak olmasına rağmen hem kararlılıklarından hem de kaçak kullanımlarından dolayı günümüzde hala insan sağlığını tehdit etmektedir. Bu çalışmada, Bursa sınırları içerisinde yer alan 15 iç ve 6 dış ortam havasında OCP konsantrasyonlarının seviyeleri, muhtemel kaynakları ve soluma yoluyla oluşabilecek kanser riski hesabı değerlendirilmiştir. Toplam 10 OCP bileşiğinin iç ortam havasındaki konsantrasyon değerlerinin  $467,8 \pm 94,9$  pg/m<sup>3</sup>, dış ortam havasındaki konsantrasyon değerlerinin ise  $419,3 \pm 137,1$  pg/m<sup>3</sup> olduğu belirlenmiştir. Örnekleme noktalarındaki binaların yaşının yanı sıra dış ortam havasında da tarımsal alanların varlığı ve yakınlığı iç ortam OCP konsantrasyonlarının dağılımlarında önemli rol oynadığı belirlenmiştir. Muhtemel kaynakların değerlendirilmesinde izomer oranlarından yararlanılmıştır. Bu izomer oranlarına göre, Bursa'da OCP'lerin esas kaynaklarını lindanların oluşturduğu tespit edilmiştir. Ayrıca yine aynı oranlara göre günümüzde hala Bursa'da pestisit kullanıldığı sonucuna varılmıştır. Son olarak hem iç hem de dış ortam havasının solunması yoluyla oluşabilecek kanser riskleri artan yaşam boyu kanser riski (ILCR) yöntemine göre değerlendirilmiştir. Elde edilen hesaplamalara göre, Bursa'da hem iç hem de dış ortamda OCP'lerin solunması yoluyla oluşabilecek herhangi bir kanser riski tespit edilmemiştir.

**Anahtar Kelimeler:** OCP, İç ve dış ortam havası, Pasif hava örnekleme, Bursa, Sağlık riski

### Organochlorine Pesticides (OCPs) in Indoor and Ambient Air in Bursa: Concentration Distributions, Possible Sources and Health Risks

**Abstract:** Organochlorine pesticides (OCPs) are among the most greatly used chemicals in the world, according to their physical and chemical properties. Although their use has been banned for about 40 years, they still threaten human health today due to their determination and illegal use. In this study, the levels of OCP concentrations in 15 indoor and 6 ambient airs within the borders of Bursa, their possible sources and the risk of cancer that may occur by inhalation were evaluated. Concentration values of 10 OCP compounds in indoor air were determined as  $467.8 \pm 94.9$  pg/m<sup>3</sup>, and concentration values in ambient air were determined as  $419.3 \pm 137.1$  pg/m<sup>3</sup>. In addition to the age of the buildings at the sampling points, the presence and proximity of agricultural areas in the ambient air have been determined to play an important role in the distribution of indoor OCP concentrations. Isomer ratios were used in the evaluation of possible sources. According to these isomer ratios, it has been determined that lindanes are the main sources of OCPs in Bursa. In addition, according to the same rates, it was concluded that pesticides are still used in Bursa today.

---

\* 511904004@ogr.uludag.edu.tr – Bursa Uludağ Üniversitesi Çevre Mühendisliği Bölümü

\*\* [payan@uludag.edu.tr](mailto:payan@uludag.edu.tr) – Bursa Uludağ Üniversitesi Çevre Mühendisliği Bölümü

İletişim Yazarı: Fatma Esen ([payan@uludag.edu.tr](mailto:payan@uludag.edu.tr))

\*\*\* [sendos1212ms@gmail.com](mailto:sendos1212ms@gmail.com) – Bursa Uludağ Üniversitesi Çevre Mühendisliği Bölümü

Finally, the cancer risks that may occur by breathing both indoor and outdoor air were evaluated according to the increased lifetime cancer risk (ILCR) method. According to the calculations obtained, no cancer risk that may occur through inhalation of OCPs in both indoor and outdoor environments has been detected in Bursa.

**Keywords:** OCP, Indoor and ambient air, Passive air sampler, Bursa, Health risk

## 1. GİRİŞ

Organoklorlu pestisitler (OCP'ler) bir karbon atomuna kovalent olarak bağlı bir veya birden fazla klor atomunun birleşmesiyle oluşan kimyasal bileşiklerdir. Bu bileşikler fiziksel ve kimyasal özelliklere bağlı olarak parçalanması zor ve neredeyse tüm çevresel ortamlarda bulunan ve dünyada en yaygın kullanılan kimyasallar arasında yer almaktadır (Wang ve diğ., 2013). Özellikle tarım ve sağlık sektörlerinde yaygın olarak kullanılan OCP'ler kalıcı, toksik ve biyobirikim özellik gösterdiklerinden dolayı kalıcı organik kirleticiler (KOK'lar) sınıfında yer alırlar (Sultan ve diğ., 2023). Pestisitler ucuz olmaları ve çevredeki çeşitli zararlıları kontrol altına alabildikleri için özellikle gelişmekte olan ülkelerde yaygın olarak kullanılmaktadırlar (Carolin C ve diğ., 2023). Türkiye'de gelişmekte olan ülkeler arasında yer aldığı için pestisit kullanımının yaygın olabileceği düşünülmektedir. Günümüzde düzenli olarak kullanılan pestisitlerin %40'ını OCP'lerin oluşturduğu tahmin edilmektedir ve bunun sonucu olarak da çevresel ortamlarda yaygın bulunmaktadırlar (Carolin C ve diğ., 2023). OCP'ler hem çevresel ortamlarda bu kadar fazla bulunmaları hem de sahip oldukları toksik ve kalıcılık özelliklerinden dolayı yirminci yüzyılın sonlarına doğru yasaklanmıştır (Arias ve diğ., 2023; Carolin C ve diğ., 2023). Ancak gelişmekte olan ülkelerde cezaların caydırıcı olmaması, gayri resmi üretim vs. gibi sebeplerden dolayı kullanımları devam edebilmektedir.

Mevcut ve geçmiş kalıntıların nihai deposu gibi olduğu için tarımsal topraklar OCP'lerin ana kaynakları arasında yer almaktadır (Sultana ve diğ., 2014). Ayrıca OCP'ler genel olarak uçucu bileşikler olduğu için kontamine atıkların yasal ve/veya yasa dışı bertarafı, ev içi kullanımları ve üretim tesislerinden kaynaklanan emisyonlar yoluyla da çevresel ortamlara girebilmektedir (Helou ve diğ., 2019). Tüketim ürünlerine uygulanan pestisitlerin yaklaşık %0,1'i hedef zararlılara ulaşmakta ve geri kalan ise çevreye girerek dış ortam havası, su ve toprak gibi ortamları kirletmektedir (Sultana ve diğ., 2014). Dış ortam havası, pestisitlerin uygulama alanından hedef olmayan alanlara taşınmasında önemli rol oynamaktadır (Veludo ve diğ., 2022). OCP'lerin dış ortam havasında bulunması, uygulama sonrası topraktan/bitkiden buharlaşması ve rüzgar erozyonu ile uzaklaştırılmasından kaynaklanmaktadır (Llanos ve diğ., 2022).

OCP'lerin iç ve dış ortam havasındaki konsantrasyon seviyelerinin belirlenmesinde yaygın olarak aktif ve pasif hava örnekleyiciler (PHÖ'ler) kullanılmaktadır (Sari ve diğ., 2020a). PHÖ'ler aktif hava örnekleyicilerine göre hem daha ucuz hem de daha az insan gücü gerektirmektedir (Khairy ve Lohmann, 2010). Bu sebepten dolayı literatürde OCP'lerin hem dış hem de iç ortamdaki konsantrasyon seviyelerinin belirlenmesinde genellikle PHÖ'ler kullanılmaktadır. Ayrıca, insanlar zamanlarının %90'ından fazlasını iç mekanlarda ve 7-8 saatini ise daha kapalı mikro ortamlarda (yatak odası, oturma odası, ofis vb.) geçirmektedir. Bu sebeple günümüzde iç ortam hava kalitesi giderek bir endişe kaynağı haline gelmektedir (López ve diğ., 2021). Bununla birlikte son yıllarda iç ortam hava kalitesine odaklanan çalışmaların sayısında artmalar meydana gelmiştir (López ve diğ., 2021). Türkiye'de ise iç ortam havasında polisiklik aromatik hidrokarbonlar (PAH'lar) (Civan, 2023; Esen ve Kayıkçı, 2017; Türkmen ve diğ., 2022), poliklorlu bifeniller (PCB'ler) (Civan, 2023; Sari ve diğ., 2020b), polibromlu difenil eterler (PBDE'ler) (Çetin ve Odabaşı, 2011; Kurt-Karakus ve diğ., 2017) gibi organik kirleticilerin ölçüldüğü birçok çalışma bulunmasına rağmen, OCP'ler ile ilgili bilinen herhangi bir çalışma bulunmamaktadır. İç ortam havasında OCP'ler ile ilgili Türkiye'de yapılan çalışma olmamasına rağmen yurtdışında yapılmış bir kaç çalışma bulunmaktadır (Audy ve diğ., 2018; Leone ve diğ.,

2000). Leone ve diğ. (2000) tarafından ABD’de yapılan çalışmada iç ortam havasındaki  $\Sigma$ DDT (p,p'-DDE+p,p'-DDD+o,p'-DDT+p,p'-DDT) konsantrasyonlarının 0,02 ile 13 ng/m<sup>3</sup> arasında değişim gösterdiği belirtilmiştir. Audy ve diğ. (2018) tarafından iç ortam havasında yapılan bir başka çalışmada ise,  $\Sigma$ HCH ( $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ - ve  $\delta$ -HCH) konsantrasyonlarının Kanada’da 514  $\pm$  105 pg/m<sup>3</sup>, Çek Cumhuriyeti’nde ise 1500  $\pm$  359 pg/m<sup>3</sup> olduğu belirtilmiştir. Son olarak, Yu ve diğ. (2012) tarafından Çin’de iç ortam havası tozlarında yapılan çalışmada  $\Sigma$ DDT ve  $\Sigma$ HCH konsantrasyonlarının sırasıyla 0,19–52,4 ng/g ve 0,15–179,3 ng/g seviyelerinde değiştiği belirtilmiştir. Bu çalışmanın amacı, (i) iç ve dış ortam havasındaki OCP’lerin konsantrasyon dağılımlarının belirlenmesi, (ii) muhtemel kaynaklarının araştırılması ve (iii) solunum yoluyla oluşabilecek sağlık risklerinin ortaya koyulmasıdır.

## 2. MATERYAL ve METOT

### 2.1. Örneklem Programı ve Noktaları

Bu çalışmada, 2020 Aralık-2021 Şubat tarihleri arasında PHÖ (TISCH) kullanılarak Bursa’da 15 farklı noktadan iç ortam havası ve bu noktaların 6 tanesinden ise aynı zamanda dış ortam havası örnekleri alınmıştır. Örneklem periyodu 1 ay seçilmiş olup, her bir örneklem noktasından toplam 3 örnek alınmıştır. Örneklem noktaları Bursa’nın 5 büyük ilçesini (Osmangazi, Yıldırım, Nilüfer, Kestel ve Mudanya) kapsamaktadır. Örneklem noktalarının özellikleri ve alındığı yerler Tablo 1’de özetlenmiştir.

**Tablo 1. Örneklem Noktaları ve Özellikleri**

Numune Bölgesi No	Numune Bölgesi ve Alındığı Yer	Numune Bölgesinin Özelliği	Örneklemenin Ortamı
S1	Osmangazi İlçesi (Ev)	Kentsel	İç ortam ve Dış ortam havası
S2	Yıldırım İlçesi (Ev 1)	Kentsel	İç ortam ve Dış ortam havası
S3	Yıldırım İlçesi (Ev 2)	Kentsel	İç ortam ve Dış ortam havası
S4	Yıldırım İlçesi (Ev 3)	Kentsel	İç ortam
S5	Nilüfer İlçesi (Üniversite)	Yarı Kentsel	İç ortam
S6	Yıldırım İlçesi (Ev 4)	Kentsel	İç ortam ve Dış ortam havası
S7	Nilüfer İlçesi (Ev)	Kentsel-Sanayi	İç ortam ve Dış ortam havası
S8	Yıldırım İlçesi (Huzurevi)	Kentsel	İç ortam
S9	Yıldırım İlçesi (İş yeri)	Kentsel	İç ortam ve Dış ortam havası
S10	Kestel İlçesi (Eğitim Merkezi)	Sanayi	İç ortam
S11	Yıldırım İlçesi (Eczane)	Kentsel	İç ortam
S12	Yıldırım İlçesi (Lise)	Kentsel	İç ortam
S13	Yıldırım İlçesi (Belediye)	Trafik	İç ortam
S14	Mudanya İlçesi (Otel)	Kentsel	İç ortam
S15	Kestel İlçesi (Sağlık Kuruluşu)	Sanayi	İç ortam

İç ve dış ortam hava örneklerinin alınmasında kullanılan PHÖ'lere örnekleme materyali olarak poliüretan köpük (PÜK) disk yerleştirilmiştir. İç ortamda PHÖ'ler yaklaşık 1,5-2 m yükseklikteki dolapların üzerine konumlandırılmışken, benzer şekilde dış ortam havası örneklerindeki PHÖ'ler ise yerden yaklaşık 1,5-2 m yükseğe konumlandırılmıştır.

## 2.2. Ekstraksiyon ve Fraksiyon İşlemleri

İç ve dış ortam hava örneklerinin ekstraksiyonlarında literatürde çoğunlukla kullanılan sokslet ekstraksiyon işlemi uygulanmıştır. Bu bağlamda örneklemeden getirilen PÜK disklerin ilk olarak 300 mL aseton (Merck, Darmstadt, Almanya)/hekzan (Merck, Darmstadt, Almanya) (ACE/HEX, 1/1) solvent karışımıyla yaklaşık 24 saat boyunca ekstraksiyonları gerçekleştirilmiştir. Ekstraksiyonları gerçekleştirilen hava örnekleri daha sonra alüminyum folyalara sarıldıktan sonra fraksiyon işlemlerine kadar  $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 'de derin dondurucuda muhafaza edilmiştir. Ekstraksiyon işlemleri biten örnekler ilk olarak döner buharlaştırıcı (Laborota 4001-Heidolph, Almanya) ile  $23-25\text{ }^{\circ}\text{C}$ 'de 30 dev/dk ile konsantre hale getirilmiştir. Konsantre işlemi için ilk olarak örneklerin hacmi 5 mL'ye indirilmiş ve 5 mL'ye indirilen örneklerin üzerine 10 mL HEX ilave edilmiştir. Son olarak örneklerin hacmi 2 mL'ye indirip fraksiyon işlemleri için hazır hale getirilmiştir (Çetin ve Odabaşı, 2011; Sari ve diğ., 2020a).

Fraksiyon işlemleri için sırasıyla cam elyaf yünü, 2 gram sodyum sülfat (Merck, Darmstadt, Almanya) ( $\text{Na}_2\text{SO}_4$ ), 3 gram silisik asit (Sigma-Aldrich, 60780) ve 2 gram alümina (Merck, Darmstadt, Almanya) içeren fraksiyon kolonları kullanılmıştır. Hazırlanan bu kolonlarda olası kirliliğin önüne geçmek için sırasıyla 20 mL diklorometan (DCM) (Merck, Darmstadt, Almanya) ve 20 mL petrol eteri (PE) (Merck, Darmstadt, Almanya) ile temizlenmiştir. Daha sonra fraksiyon kolonuna hacmi 2 mL'ye indirilen örnek ilave edilmiş ve OCP fraksiyonlarının toplanması için üzerine 20 mL DCM ilave edilmiştir. Toplanan OCP örneklerinin hacmi ilk olarak döner buharlaştırıcı yardımıyla 5 mL'ye indirilmiş ve üzerine 15 mL HEX ilave edilmiştir. Son olarak örnekler 1 mL'ye konsantre hale getirilip vial içerisine alınmış enstrümantal analize kadar  $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 'de derin dondurucularda muhafaza edilmiştir (Sari ve diğ., 2020b).

## 2.3. Enstrümantal Analiz

İç ve dış ortam hava örneklerindeki OCP'lerin kütle değerlerinin belirlenmesinde Agilent 7890A marka mikro-elektron yakalama detektörü ( $\mu\text{ECD}$ ) ihtiva eden gaz kromatografi (GC) ile tespit edilmiştir. GC- $\mu\text{ECD}$ 'de kullanılan fırın programı kısaca şöyledir;  $80\text{ }^{\circ}\text{C}$  başlangıç sıcaklığında 1 dakika bekleme ve ardından  $20\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{dk}$  yükselme hızıyla  $240\text{ }^{\circ}\text{C}$ 'ye yükseltme ve  $240\text{ }^{\circ}\text{C}$ 'de 5 dakika bekletme, ardından  $5\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{dk}$  yükselme hızıyla  $270\text{ }^{\circ}\text{C}$ 'ye çıkartma ve son olarak  $20\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{dk}$  yükselme hızıyla  $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ 'ye yükseltme ve bu sıcaklıkta 3,5 dakika bekleme ve bitişir. GC- $\mu\text{ECD}$ 'de taşıyıcı gaz olarak  $1,9\text{ mL}/\text{dk}$  akış hızı ile helyum kullanılmıştır. Enjeksiyon ve dedektör sıcaklıkları sırasıyla  $250$  ve  $320\text{ }^{\circ}\text{C}$ 'dir. Enjeksiyon hacmi ise  $1\text{ }\mu\text{L}$ 'dir. Ayrıca kapiler kolon olarak HP 5 ( $30\text{ m} \times 320\text{ }\mu\text{m} \times 0,25\text{ }\mu\text{m}$ ) marka kolon kullanılmıştır (Sari ve Esen, 2022).

GC- $\mu\text{ECD}$ 'nin kalibrasyon işlemlerinde 6 farklı konsantrasyonda ( $1,0$ ;  $2,0$ ;  $4,0$ ;  $8,0$ ;  $16,0$  ve  $32,0\text{ ng}/\text{mL}$ ) kalibrasyon standardı kullanılmıştır. Tüm kalibrasyon standartları için elde edilen  $R^2$  değerleri  $0,999$ 'dan büyük bulunmuştur. Ayrıca cihazın kalibrasyondan sapmalarının kontrol edilmesi amacıyla yaklaşık her 100 örnekte bir orta seviyeli ( $4,0$  veya  $8,0\text{ ng}/\text{mL}$ ) konsantrasyona sahip kalibrasyon standardı okutulmuştur. Bu çalışmada 10 tane OCP bileşiğinin tayin edilmesi hedeflenmiştir. Bu 10 OCP bileşikler şunlardır;  $\alpha$ -HCH,  $\beta$ -HCH,  $\gamma$ -HCH,  $\delta$ -HCH, heptachlor endo epoxide iso A, endrin, endosulfan- $\beta$ , endrin aldehide, p,p'DDT ve methoxychlor'dur.

## 2.4. Kalite Kontrol/Kalite Güvenirlik

Tüm laboratuvar çalışmasında kullanılan cam ve çelik malzemeler ilk olarak saf su, ACE ve DCM kullanılarak temizlenmiştir. Temizlenen tüm malzemeler 105 °C’de 24 saat boyunca etüvide bekletilmiş ve ardından desikatöre alınarak soğuması sağlanmıştır. Steril hale getirilen tüm malzemeler kullanılabildiği kadar alüminyum folyolara sıkıca sarılıp güneş görmeyen ortamda muhafaza edilmiştir.

PÜK disklerin ve örneklemede kullanılacak tüm malzemelerin analizlerinin gerçekleşmesi sırasında oluşabilecek kontaminasyonu elimine etmek için örnek sayısının en az %10’u kadar şahit örnekleri alınmıştır. Şahit örneklerindeki OCP’lerin konsantrasyonları gerçek örneklerdeki analiz işlemleri uygulanarak belirlenmiştir. Elde edilen şahit örneklerin kütle değerlerinin ortalaması ile standart sapmanın 3 katının eklenmesi ile belirleme limit değeri (LOD) hesaplanmıştır (Çetin ve Odabaşı, 2011; Esen ve Kayıkçı, 2017). İç ve dış ortam hava örnekleri için hesaplanan OCP bileşiklerine ait kütle değerleri LOD’dan küçük ise hesaplamalara dahil edilmemiştir. Bu çalışmada hesaplanan LOD değerleri 0,25 pg/m<sup>3</sup> (Endrin Aldehyde) ile 13,42 pg/m<sup>3</sup> (Endrin) arasında değişim göstermiştir. Son olarak GC-µECD’nin belirleme limit (IDL) değerlerinin hesaplanmasında en düşük konsantrasyon seviyesine ait kalibrasyon standardı (1,0 ng/mL) kullanılmıştır. Bu standart için 1 µL enjeksiyon için sinyal/gürültü oranı 3/1 olmasını sağlayan en düşük seviye 0,08 pg olarak hesaplanmıştır.

İç ortam havasındaki OCP konsantrasyonlarının belirlenmesi için örnekleme hacmi literatürde iç ortam için sıklıkla kullanılan 2,5 m<sup>3</sup>/gün değeri kabul edilmiştir. Dış ortam havasındaki OCP konsantrasyonlarının belirlenmesi için ise Herkert ve diğ. (2018) tarafından önerilen model yardımıyla hesaplanmıştır. Hesaplanan dış ortam havasındaki örnekleme hacmi 2,04 m<sup>3</sup>/gün (Endosülfan Beta) ile 2,97 m<sup>3</sup>/gün (α-HCH) arasında değişim göstermiştir. Geri kazanım verimini belirlemek için vekil (external) standardı kullanılmış ve bu standarda göre geri kazanım verimleri %70’den büyük bulunmuştur.

## 2.5. Soluma Yoluyla Oluşabilecek Kanser Riski

OCP bileşiklerine çeşitli yollardan maruz kalmak nörolojik, kanserojen, mutajenik ve immünolojik sorunlarla birlikte çeşitli sağlık risklerinin oluşmasına neden olmaktadır. Literatürde bu tür bileşiklere maruz kalınması sonucunda oluşabilecek kanser riskleri artan yaşam boyu kanser riski (ILCR) ile hesaplanmaktadır (Denklem 1) (Sari ve diğ., 2020a).

$$ILCR = \frac{C_s \times IR \times EF \times ED \times ET \times SF}{BW \times AT} \times CF \quad (1)$$

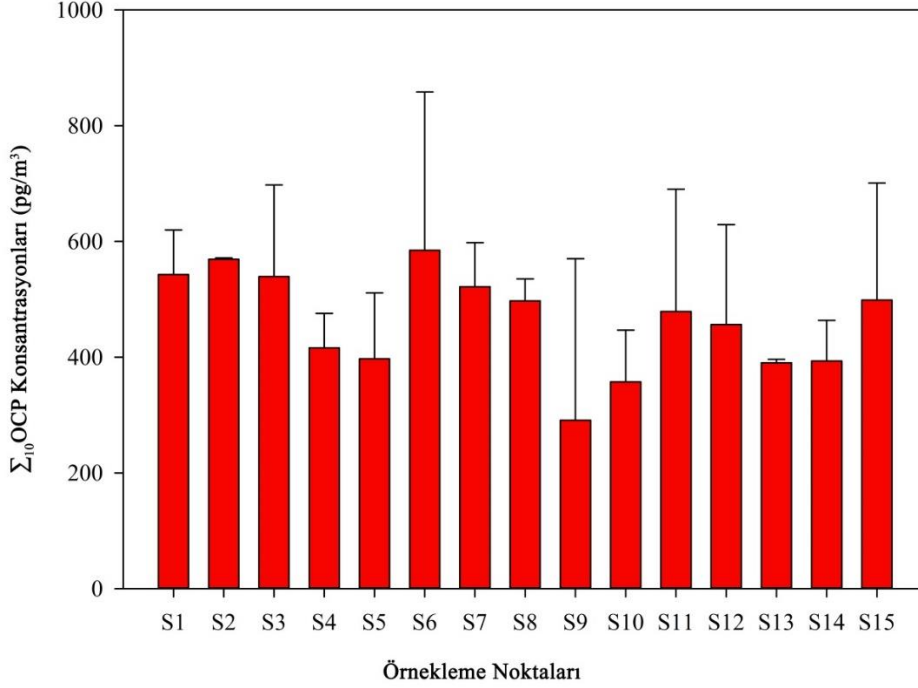
Burada, ILCR artan yaşam boyu kanser riski (birimsiz),  $C_s$  iç ve dış ortam havasındaki OCP konsantrasyonu (pg/m<sup>3</sup>), IR soluma oranı (0,83 m<sup>3</sup>/saat), EF maruz kalma sıklığı (350 gün/yıl), ED maruz kalma zamanı (24 yıl), ET maruziyet süresi (24 saat/gün), SF kanser eğim faktörü (1 gün×kg/mg), BW vücut ağırlığı (70 kg), AT ortalama ömür (25,550 gün) ve CF dönüşüm faktörünü ( $1 \times 10^{-9}$ ) ifade etmektedir. Eğer, ILCR değeri  $1 \times 10^{-6}$ ’dan düşük ise kanser riski çok düşük, ILCR değeri  $1 \times 10^{-6}$ - $1 \times 10^{-4}$  arasında ise kabul edilebilir kanser riski ve son olarak bu değer  $1 \times 10^{-4}$ ’dan büyük ise yüksek kanser riski olduğu anlamına gelmektedir (Sari ve diğ., 2020b; Wang ve diğ., 2019).

## 3. BULGULAR ve TARTIŞMA

### 3.1. İç ve Dış Ortam Havasındaki OCP Konsantrasyonları

Bu çalışmada, iç ortam hava örnekleri Bursa sınırlarında yer alan ve değişik özelliklere sahip 15 farklı binada Aralık 2020-Şubat 2021 tarihleri arasında (Ocak-Şubat ve Mart)

gerçekleştirilmiştir. Örneklem periyodu olarak 1 ay seçilmiştir. Örneklem periyodu boyunca iç ortam toplam OCP ( $\Sigma_{10}OCP$ ) bileşiklerinin konsantrasyon değerleri 291,0 ile 651,6  $pg/m^3$  ( $467,8 \pm 94,9$   $pg/m^3$ , ortalama $\pm$ STD) arasında değişiklik göstermiştir (Şekil 1).

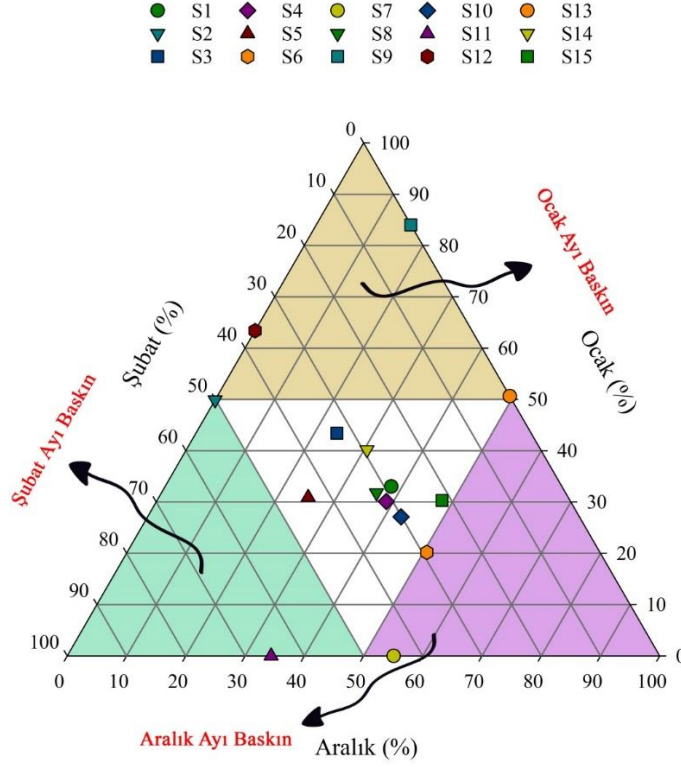


**Şekil 1:**  
İç ortam havasındaki  $\Sigma_{10}OCP$  konsantrasyonları

En yüksek  $\Sigma_{10}OCP$  konsantrasyonları S6. örneklem noktasında ölçülmüşken, en düşük  $\Sigma_{10}OCP$  konsantrasyonları ise S9. örneklem noktasında ölçülmüştür. Hem S6. hem de S9 örneklem noktaları kentsel örneklem noktalarını temsil etse de, S6. örneklem noktası tarımsal arazilere daha yakın bir konumda yer almaktadır. Bu sebepten dolayı en yüksek konsantrasyon seviyeleri S6. örneklem noktasında ölçülmüştür. Literatürde tarımsal alanlara yakın örneklem noktalarında yüksek OCP konsantrasyonlarının ölçüldüğü birçok çalışma mevcuttur (Jiang ve diğ., 2009; Kafaei ve diğ., 2020; Sultana ve diğ., 2014). Ayrıca Audy ve diğ. (2018) tarafından yapılan çalışmada, bina yaşı ile iç ortam havasındaki OCP konsantrasyonları arasında ilişki olduğu belirtilmiştir. Wallace ve diğ. (1996) tarafından yapılan bir başka çalışmada, pestisit uygulamalarının üzerinden 10 yıl bile geçse hala iç ortam havasında pestisit kalıntılarının olabileceğini göstermiştir. Örneklem noktaları arasında bina yaşının en büyük olduğu yer S6. örneklem noktası iken, bina yaşının en küçük olduğu yer ise S9. örneklem noktasıdır. Özellikle eskiden inşa edilen binalarda DDT ile işlenmiş yapı malzemelerinin kullanılması ve haşere kontrollerinde DDT kullanılması eski binalarda yüksek OCP konsantrasyonlarının ölçülmesine neden olmaktadır (Audy ve diğ., 2018).

İç ortam havasındaki  $\Sigma_{10}OCP$  konsantrasyonlarının yüzdelerik dağılımları Şekil 2'de gösterilmiştir. Genel olarak örneklem periyodu boyunca  $\Sigma_{10}OCP$  konsantrasyonlarının yüzdelerik dağılımları homojen dağılıma sahip iken, S6 ve S7 örneklem noktaları Aralık ayında, S9, S12 ve S13 örneklem noktaları Ocak ayında ve S2 ve S5 örneklem noktaları ise Şubat ayında baskın konsantrasyon değerlerine sahiptir. Xiao ve diğ. (2010) tarafından yapılan çalışmada, OCP konsantrasyonlarının hem aylık hem de bölgesel olarak dağılımlarında en önemli faktörün hava sıcaklığı olduğu belirtilmiştir. Genellikle örneklem noktaları arasındaki aylık konsantrasyon

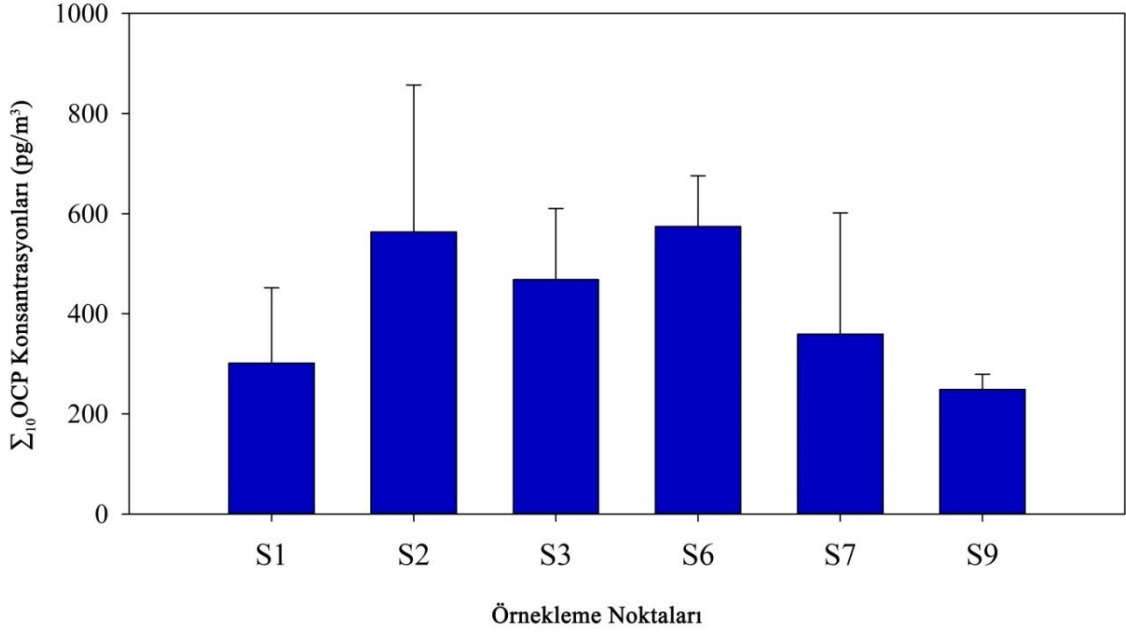
değerlerinin homojen bir dağılım göstermesi, örnekleme periyodunun yalnızca kış mevsiminde gerçekleşmesinden kaynaklanıyor olabileceği düşünülmüştür.



Şekil 2:

İç ortam havasındaki  $\sum_{10}OCP$  konsantrasyonlarının yüzdelik dağılımları

Örnekleme periyodu boyunca dış ortam OCP konsantrasyonları 248,7 ile 574,6  $pg/m^3$  ( $419,3 \pm 137,1$   $pg/m^3$ , ortalama $\pm$ STD) arasında değişiklik göstermiştir (Şekil 3). En yüksek OCP konsantrasyonları S6. örnekleme noktasında ölçülmüş iken, en düşük OCP konsantrasyonları ise S9. örnekleme noktasında ölçülmüştür. Benzer durum iç ortam havasında da gözlenmiştir. Buradan da iç ortam OCP konsantrasyonlarının dış ortam havasından da etkilendiği anlamına gelmektedir.



**Şekil 3:**  
*Dış ortam havasındaki Σ<sub>10</sub>OCP konsantrasyonları*

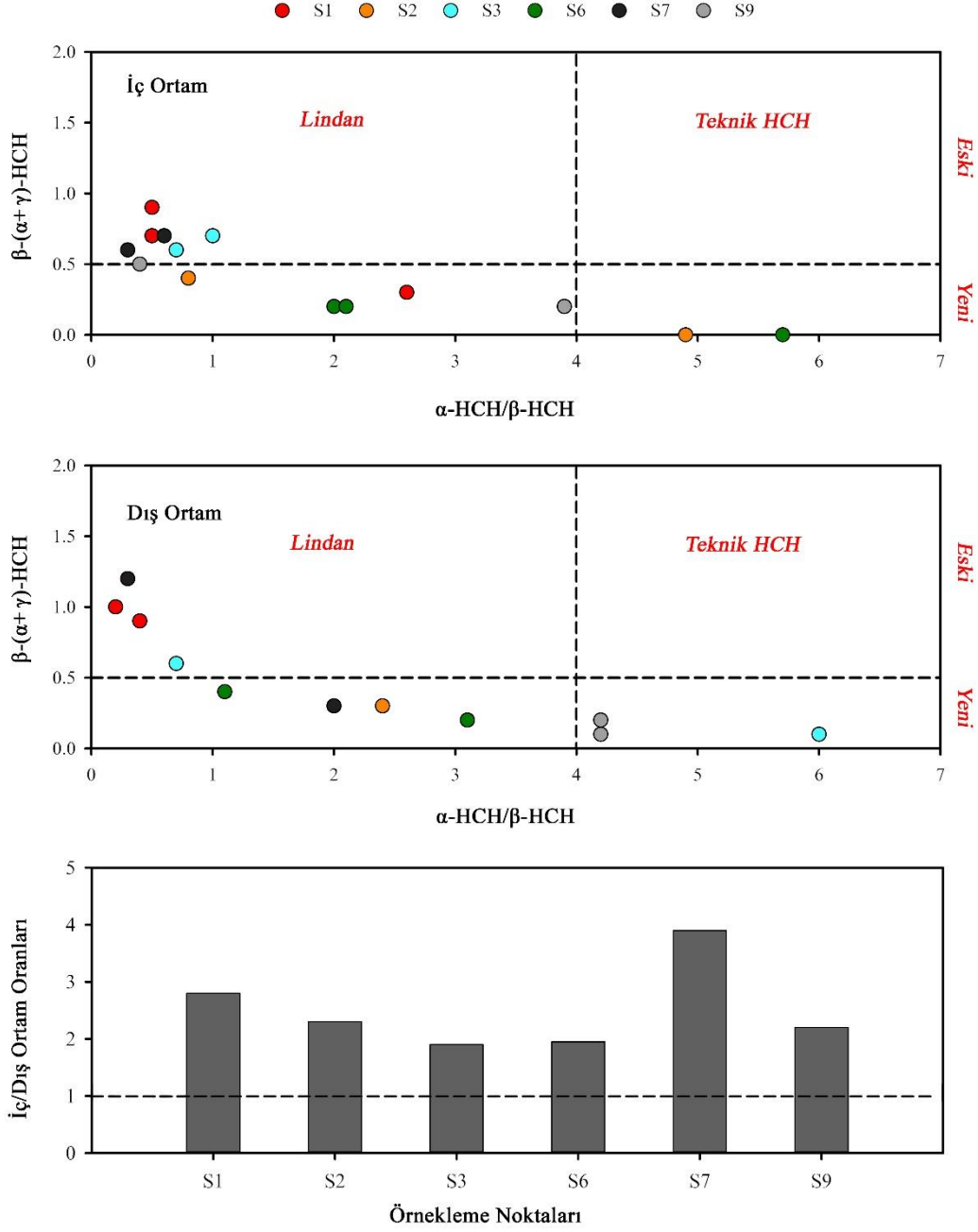
Bu çalışmada elde edilen konsantrasyon değerleri, Bursa'da daha önce yapılmış çalışmalarda elde edilen konsantrasyon seviyeleri ile benzerlik göstermiştir. Örneğin, Sari ve Esen, (2022) tarafından Bursa'da yapılan çalışmada, Σ<sub>10</sub>OCP konsantrasyonlarını kentsel ve yarı-kentsel örneklem noktaları için sırasıyla 242,5±104,6 pg/m<sup>3</sup> ve 275,9±130,9 pg/m<sup>3</sup> arasında değişim gösterdiği belirtilmiştir. Sari ve diğ. (2020a) tarafından 2018 yılında yaz mevsiminde gerçekleştirilen çalışmada ise, Σ<sub>10</sub>OCP konsantrasyonlarının 628±385 pg/m<sup>3</sup> olduğu belirtilmiştir. Cindoruk ve diğ. (2020) tarafından Bursa'da 2016 tarihinde 12 ay boyunca PHÖ kullanılarak gerçekleştirilen bir başka çalışmada ise, Σ<sub>10</sub>OCP konsantrasyonlarının 122±89 pg/m<sup>3</sup> olduğu raporlanmıştır. Her üç çalışmada da Bursa'daki OCP konsantrasyonlarının örneklem noktalarının tarımsal arazilere uzaklığına bağlı olarak değiştiği belirtilmiştir.

Dış ortam havasında S9. örneklem noktasından sonra en düşük konsantrasyon değerleri S1, en yüksek konsantrasyon değerleri ise S6. örneklem noktasından sonra S2. örneklem noktasında ölçülmüştür. S1 örneklem noktası özellikle trafiğin yoğun olduğu ve tarımsal aktivitelerin ise hiç olmadığı bir alanı temsil etmektedir. S2 örneklem noktası ise kısmen tarımsal aktivitelerin ve sanayinin yakın olduğu bir alanı temsil etmektedir. Bu sebeplerden dolayı bu iki örneklem noktasındaki konsantrasyon dağılımları literatürde yapılan çalışmalarla benzerlik göstermiştir (Gevao ve diğ., 2018; Sari ve diğ., 2020a, 2020b). Dış ortam havasındaki OCP'lerin aylık dağılımları ise Şekil 4'te gösterilmiştir.





havasındaki örnekler için hesaplanan  $\alpha$ -HCH/ $\beta$ -HCH ve  $\beta$ -( $\alpha+\gamma$ )-HCH oranları ile iç/dış ortam konsantrasyon oranları Şekil 5'te gösterilmiştir.



Şekil 5:  $\alpha$ -HCH/ $\beta$ -HCH ve  $\beta$ -( $\alpha+\gamma$ )-HCH ve iç/dış ortam oranları

İç ve dış ortam havasındaki  $\beta$ -( $\alpha+\gamma$ )-HCH oranlarına bakıldığında, hem yeni hem de eski pestisit kullanımının örnekleme bölgelerinde etkili olduğu görülmektedir (Şekil 5). Ayrıca her iki ortam havasında da lindanların örnekleme noktalarında etkili olduğu sonucuna varılmıştır. Lindanlar genellikle toksisiteleri ve kararlılığı ile bilinen pestisitlerdir ve bu pestisitler özellikle toprak ve su kirliliğine neden olmaktadır (Kartalovic ve diğ., 2015). Sari ve diğ. (2020a) tarafından yapılan çalışmada, dış ortam havasındaki esas OCP kaynaklarının lindanlar olduğu

belirtilmiştir. Ayrıca hem iç hem de dış ortam havasında genellikle düşük  $\alpha$ -HCH/ $\beta$ -HCH oranları (<4) tespit edilmiştir. Düşük  $\alpha$ -HCH/ $\beta$ -HCH oranları OCP'lerin bölgesel kaynaklardan etkilendiği anlamına gelmektedir (Odabasi ve diğ., 2008). Son olarak iç/dış ortam konsantrasyon oranlarına bakıldığında tüm örnekleme noktalarında 1'den büyük bulunduğu tespit edilmiştir. Bu durum özellikle iç ortam havasındaki OCP'lerin dış ortam havasındaki OCP'lerden daha fazla olduğunu göstermektedir.

### 3.3. İç ve Dış Ortam Havasında Solunum Yoluyla Oluşabilecek Kanser Riskleri

OCP bileşiklerine solunum yoluyla maruz kalmanın özellikle kanserojen ve nörolojik sorunlara neden olduğu bilinmektedir. Bu sebepten dolayı solunum yoluyla oluşabilecek kanser risklerinin belirlenmesi oldukça önemlidir (Wang ve diğ., 2013). Bu çalışmada solunum yoluyla oluşabilecek kanser riskleri hesaplanmış ve Tablo 2'de özetlenmiştir.

**Tablo 2. İç ve dış ortam havasının solunması yoluyla oluşabilecek kanser riskleri ( $\times 10^{-6}$ )**

Örnekleme Noktaları	İç Ortam	Dış Ortam
S1	0,05	0,03
S2	0,04	0,04
S3	0,05	0,04
S4	0,04	-
S5	0,04	-
S6	0,05	0,05
S7	0,05	0,03
S8	0,05	-
S9	0,03	0,02
S10	0,03	-
S11	0,04	-
S12	0,04	-
S13	0,04	-
S14	0,04	-
S15	0,05	-

İç ve dış ortam havasının solunması yoluyla oluşabilecek kanser riski bulunamamıştır ( $ILCR < 10^{-6}$ ). Bu çalışmadan elde edilen kanser riski hesaplamaları, Bursa'da yapılmış önceki çalışmalarla benzerlik göstermiştir (Sari ve diğ., 2020a; Sari ve Esen, 2022). En düşük kanser riski S9 örnekleme noktasında ölçülmüşken, en yüksek kanser riski S6 örnekleme noktasında ölçülmüştür. Bu durum özellikle kanser riski hesaplamalarında konsantrasyon değerlerinin doğrudan etkili olmasından kaynaklanmaktadır.

#### 4. SONUÇ

Bu çalışmada Aralık 2020-Şubat 2021 ayları arasında Bursa'da farklı özelliklere sahip iç ortam ve bu örnekleme noktalarının 6 tanesinden ise dış ortam hava örnekleri pasif hava örnekleme noktaları kullanılarak alınmış ve değerlendirilmiştir. Dış ortam havasında en yüksek OCP konsantrasyonları tarımsal arazilere yakın örnekleme noktalarında ölçülmüş iken, en düşük OCP konsantrasyonları kentsel özellikteki örnekleme noktalarında ölçülmüştür. Dış ortam havasına benzer şekilde iç ortam havasındaki en yüksek ve en düşük OCP konsantrasyonları da aynı örnekleme noktalarında ölçülmüştür. Ayrıca örnekleme noktalarındaki binaların yaşının OCP konsantrasyonlarının dağılımlarında önemli rol oynadığı belirlenmiştir. Bursa atmosferindeki OCP'lerin kaynaklarının tanımlanmasında izomer oranlarından yararlanılmıştır.  $\alpha$ -HCH/ $\beta$ -HCH ve  $\beta$ -( $\alpha$ + $\gamma$ )-HCH oranlarına göre Bursa'da hala hem eski hem de yeni pestisit kullanımlarının atmosferik OCP'lerin esas kaynakları olduğu tespit edilmiştir. Son olarak hem iç ortam hem de dış ortam havasının solunması yoluyla insanlarda OCP maruziyeti sonucunda oluşabilecek herhangi bir kanser riski belirlenmemiştir. Bu çalışma özellikle hem Bursa hem de Türkiye'de iç ortam havasındaki OCP konsantrasyonlarının belirlendiği ilk çalışmalardan birisi olması sebebiyle daha sonra bu konu da yapılacak olan çalışmalar ışık tutacaktır.

#### 5. TEŞEKKÜR

OCP verilerinin GC okumalarındaki katkısından dolayı Prof. Dr. Yücel Taşdemir ve ekibine teşekkür ederiz.

#### ÇIKAR ÇATIŞMASI

Mehmet Ferhat Sari, Fatma Esen ve Sündüz Shanabo bilinen herhangi bir çıkar çatışması veya herhangi bir kurum/kuruluş ya da kişi ile ortak çıkarı bulunmadığını onaylamaktadırlar.

#### YAZAR KATKISI

Mehmet Ferhat Sari çalışmanın örnekleme, laboratuvar analizleri, verilerin düzenlenmesi ve yazım süreçlerinde, Fatma Esen çalışmanın örnekleme ve laboratuvar dizayn edilmesi, verilerin oluşturulması, yorumlanması ve kontrolü, çalışmanın gerçekleştirilmesi ve yönetim süreçlerinde, Sündüz Shanabo çalışmanın örnekleme ve laboratuvar analizlerinde katkı sağlamıştır.

#### KAYNAKLAR

1. Arias, A.H., Oliva, A.L., Ronda, A.C., Tombesi, N.B., Macchi, P., Solimano, P., Abrameto, M. ve Migueles, N. (2023) Large-scale spatiotemporal variations, sources, and risk assessment of banned OCPs and PAHs in suspended particulate matter from the Negro river, Argentina, *Environmental Pollution*, 320, 121067. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2023.121067>
2. Audy, O., Melymuk, L., Venier, M., Vojta, S., Becanova, J., Romanak, K., Vykoukalova, M., Prokes, R., Kukucka, P., Diamond, M.L. ve Klanova, J. (2018) PCBs and organochlorine pesticides in indoor environments - A comparison of indoor contamination in Canada and Czech Republic, *Chemosphere*, 206, 622–631. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2018.05.016>
3. Carolin C, F., Kamalesh, T., Senthil Kumar, P. ve Rangasamy, G. (2023) An insights of organochlorine pesticides categories, properties, eco-toxicity and new developments in

- bioremediation process, *Environmental Pollution*, 333, 122114. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2023.122114>
4. Cetin, B. ve Odabasi, M. (2011) Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in indoor and outdoor window organic films in Izmir, Turkey, *Journal of the Hazardous Materials*, 185, 784–791. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2010.09.089>
  5. Cindoruk, S.S., Sakin, A.E. ve Tasdemir, Y. (2020) Levels of persistent organic pollutants in pine tree components and ambient air, *Environmental Pollution*, 256. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2019.113418>
  6. Civan, M. (2023). PAH, PCB ve PBDE'lerin iç/dış toz oranlarının karşılaştırılması, *Ömer Halisdemir Üniversitesi Mühendislik Bilimleri Dergisi*, Basımda. <https://doi.org/10.28948/ngumuh.1164032>
  7. Da, C., Liu, G. ve Yuan, Z. (2014) Analysis of HCHs and DDTs in a sediment core from the Old Yellow River Estuary, China, *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 100, 171–177. <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2013.10.034>
  8. Esen, F. ve Kayıkçı, G. (2017) İç ve dış ortam hava örneklerinde poliaromatik hidrokarbonların (PAH'ların) incelenmesi: Bursa örneği, *Uludağ University Journal of The Faculty of Engineering*, 22, 213–224. <https://doi.org/10.17482/uumfd.331620>
  9. Gevao, B., Porcelli, M., Rajagopalan, S., Krishnan, D., Martinez-Guijarro, K., Alshemmari, H., Bahloul, M. ve Zafar, J. (2018) Spatial and temporal variations in the atmospheric concentrations of “Stockholm Convention” organochlorine pesticides in Kuwait, *Science of the Total Environment*, 622–623, 1621–1629. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.10.036>
  10. Helga, B.E., Schmid, C.A.O., Feher, I., Podar, D., Szatmari, P.M., Marincaş, O., Balázs, Z.R. ve Schröder, P. (2018) HCH phytoremediation potential of native plant species from a contaminated urban site in Turda, Romania, *Journal of Environmental Management*, 223, 286–296. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2018.06.018>
  11. Helou, K., Harmouche-Karaki, M., Karake, S. ve Narbonne, J.F. (2019) A review of organochlorine pesticides and polychlorinated biphenyls in Lebanon: Environmental and human contaminants, *Chemosphere*, 231, 357–368. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2019.05.109>
  12. Herkert, N. J., Martinez, A. ve Hornbuckle, K. C. (2016) A model using local weather data to determine the effective sampling volume for PCB congeners collected on passive air samplers, *Environmental Science and Technology*, 50, 6690–6697. <https://doi.org/10.1021/acs.est.6b00319>
  13. Jiang, Y.F., Wang, X.T., Jia, Y., Wang, F., Wu, M.H., Sheng, G.Y. ve Fu, J.M. (2009) Occurrence, distribution and possible sources of organochlorine pesticides in agricultural soil of Shanghai, China, *Journal of the Hazardous Materials*, 170, 989–997. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2009.05.082>
  14. Kafaei, R., Arfaeina, H., Savari, A., Mahmoodi, M., Rezaei, M., Rayani, M., Sorial, G.A., Fattahi, N. ve Ramavandi, B. (2020) Organochlorine pesticides contamination in agricultural soils of southern Iran, *Chemosphere*, 240, 124983. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2019.124983>
  15. Kartalovic, B., Babic, J., Prica, N., Zivkov-Balos, M., Jaksic, S., Mihaljev, Z. ve Cirkovic, M. (2015) The presence of lindane in different types of honey in the Pannonian region, *Bulgarian Journal of Agricultural Science*, 21, 208–212.

16. Khairy, M.A. ve Lohmann, R. (2010) Field Validation of Polyethylene Passive Air Samplers for Parent and Alkylated PAHs in Alexandria, Egypt, *Environmental Science and Technology*, 46, 3990–3998. <https://doi.org/10.1021/es300012u>
17. Kurt-Karakus, P.B., Alegria, H., Jantunen, L., Birgul, A., Topcu, A., Jones, K.C. ve Turgut, C. (2017) Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and alternative flame retardants (NFRs) in indoor and outdoor air and indoor dust from Istanbul-Turkey: Levels and an assessment of human exposure, *Atmospheric Pollution Research*, 8, 801–815. <https://doi.org/10.1016/j.apr.2017.01.010>
18. Leone, A.D., Ulrich, E.M., Bodnar, C.E., Falconer, R.L. ve Hites, R.A. (2000) Organochlorine pesticide concentrations and enantiomer fractions for chlordane in indoor air from the US cornbelt, *Atmospheric Environment*, 34:4131-4138. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(00\)00247-8](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(00)00247-8)
19. Llanos, Y., Cortés, S., Martínez, A., Pozo, K., Příbylová, P., Klánová, J. ve Jorquera, H. (2022) Local and regional sources of organochlorine pesticides in a rural zone in central Chile, *Atmospheric Pollution Research*, 13. <https://doi.org/10.1016/j.apr.2022.101411>
20. López, A., Yusà, V., Villoldo, E., Corpas-Burgos, F. ve Coscollà, C. (2021) Indoor air pesticide in dwellings of breastfeeding mothers of the Valencian Region (Spain): Levels, exposure and risk assessment, *Atmospheric Environment*, 248. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2021.118231>
21. Odabasi, M., Cetin, B., Demircioglu, E. ve Sofuoglu, A. (2008) Air-water exchange of polychlorinated biphenyls (PCBs) and organochlorine pesticides (OCPs) at a coastal site in Izmir Bay, Turkey, *Marine Chemistry*, 109, 115–129. <https://doi.org/10.1016/j.marchem.2008.01.001>
22. Sari, M.F., Córdova Del Águila, D.A., Tasdemir, Y. ve Esen, F. (2020a) Atmospheric concentration, source identification, and health risk assessment of persistent organic pollutants (POPs) in two countries: Peru and Turkey, *Environmental Monitoring and Assessment*, 192. <https://doi.org/10.1007/s10661-020-08604-8>
23. Sari, M.F., Esen, F., Cordova Del Aguila, D.A. ve Kurt Karakus, P.B. (2020b) Passive sampler derived polychlorinated biphenyls (PCBs) in indoor and outdoor air in Bursa, Turkey: Levels and an assessment of human exposure via inhalation, *Atmospheric Pollution Research*, 11, 71–80. <https://doi.org/10.1016/j.apr.2020.03.001>
24. Sari, M.F. ve Esen, F. (2022) Atmospheric concentration, spatial variations, and source identification of persistent organic pollutants in urban and semi-urban areas using passive air samplers in Bursa, Turkey, *Environmental Science and Pollution Research*, 32082–32092. <https://doi.org/10.1007/s11356-021-17987-1>
25. Sultan, M., Hamid, N., Junaid, M., Duan, J.J. ve Pei, D.S. (2023) Organochlorine pesticides (OCPs) in freshwater resources of Pakistan: A review on occurrence, spatial distribution and associated human health and ecological risk assessment, *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 249, 114362. <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2022.114362>
26. Sultana, J., Syed, J.H., Mahmood, A., Ali, U., Rehman, M.Y.A., Malik, R.N., Li, J. ve Zhang, G. (2014) Investigation of organochlorine pesticides from the Indus Basin, Pakistan: Sources, air-soil exchange fluxes and risk assessment, *Science of the Total Environment*, 497–498, 113–122. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2014.07.066>
27. Türkmen, A., Elkaya, A. ve Türkmen, M. (2022) Giresun'da İç Ortam Havasındaki PAH Bileşenlerinin Mevsimsel Olarak Belirlenmesi, *Karadeniz Fen Bilimleri Dergisi*, 12, 892–904. <https://doi.org/10.31466/kfbd.1173131>

28. Veludo, A.F., Martins Figueiredo, D., Degrendele, C., Masinyana, L., Curchod, L., Kohoutek, J., Kukučka, P., Martiník, J., Příbylová, P., Klánová, J., Dalvie, M.A., Rössli, M. ve Fuhrmann, S. (2022) Seasonal variations in air concentrations of 27 organochlorine pesticides (OCPs) and 25 current-use pesticides (CUPs) across three agricultural areas of South Africa, *Chemosphere*, 289. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2021.133162>
29. Wallace, J.C., Brzuzy, L.P., Simonich, S.L., Visscher, S.M. ve Hites, R.A. (1996). Case study of organochlorine pesticides in the indoor air of a home, *Environmental Science and Technology*, 30, 2715–2718. <https://doi.org/10.1021/es950849t>
30. Wang, W., Huang, M.J., Wu, F.Y., Kang, Y., Wang, H.S., Cheung, K.C. ve Wong, M.H. (2013) Risk assessment of bioaccessible organochlorine pesticides exposure via indoor and outdoor dust, *Atmospheric Environment*, 77, 525–533. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.04.071>
31. Wang, X., Celander, M.C., Yin, X., Zhang, Z., Chen, Y., Xu, H., Yu, X., Xu, K., Zhang, X. ve Kanchanopas-Barnette, P. (2019) PAHs and PCBs residues and consumption risk assessment in farmed yellow croaker (*Larimichthys crocea*) from the East China Sea, China, *Marine Pollution Bulletin*, 140: 294-300. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2019.01.062>.
32. Xiao, H., Kang, S., Zhang, Q., Han, W., Loewen, M., Wong, F., Hung, H., Lei, Y.D. ve Wania, F. (2010) Transport of semivolatile organic compounds to the Tibetan Plateau: Monthly resolved air concentrations at Nam Co, *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 115, 1–9. <https://doi.org/10.1029/2010JD013972>
33. Yu, Y., Li, C., Zhang, X., Pang, Y., Zhang, S. ve Fu, J. (2012) Route-specific daily uptake of organochlorine pesticides in food, dust, and air by Shanghai residents, China, *Environment International*, 50: 31-37. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2012.09.007>.

