

TARTU ÜLIKOOL  
Loodus- ja täppisteaduste valdkond  
Füüsika instituut

Allan Ahu

# **Aerosooli tekke mudelarvutused**

Bakalaureusetöö (12EAP)

Juhendajad:  
Aare Luts  
Jaan Salm

TARTU 2018

# **Aerosooli tekke mudelarvutused**

Käesoleva töö eesmärgiks oli esmalt valmistada programm aerosooli nukleatsioonipuhangute automaatotsingu jaoks, mille abil saaks leida Tahkuse õhuseirejaama 2004 – 2014 aasta andmestikust erinevaid aerosooli tekke puhanguolukordi, ning seejärel viia leitud puhanguolukordade alusel läbi aerosooli tekke mudelarvutused ehk simulatsioonid. Töö tulemusena valmis aerosooli nukleatsioonipuhangute otsingutarkvara Tahkuse 2004 – 2014 aasta andmestikust aerosooli nukleatsioonipuhangute leidmiseks, kuid peale väikeseid muudatusi on võimalik seda tarkvara kasutada ka teistest andmehulkadest puhangute leidmiseks. Seejärel viidi leitud puhangute alusel läbi 3 erineva puhangu mudelarvutused, mille tulemused lähendasid mõõtmistel saadud andmeid väga hästi. Selgus, et simulatsiooni tulemusena saadud parameetrid olid kohati ebatavapärased, kuid füüsikalistel kaalutlustel siiski mitte võimatud.

Märksõnad: Aerosooli nukleatsioonipuhangud – Aerosooli tekke mudelarvutused – Nukleatsioonipuhangu automaatotsing

CERCS: P500 (geofüüsika, meteoroloogia); P170 (arvutusmeetodid)

## **Model calculations of aerosol formation**

The aim of this thesis was to first develop a program for automatic search of aerosol nucleation burst events, which could then be used for finding different aerosol burst events from the Tahkuse Air Monitoring Station 2004 – 2014 dataset and to then run the simulations for the found aerosol burst events. As a result of this thesis an automatic software tool for finding aerosol nucleation burst events from the Tahkuse 2004 – 2014 dataset was developed, however after small changes this software could be used with any other aerosol measurements dataset. After finding the nucleation burst events from the dataset, simulations were run for 3 different burst events, the acquired results approximated the measured values very well. Some of the parameters found as the results of the simulations were rather unusual, however on physical considerations, not impossible.

Keywords: Aerosol nucleation bursts – Model calculations of aerosol formation – Automatic search of nucleation bursts

CERCS: P500 (geophysics, meteorology); P170 (numerical analysis)

# Sisukord

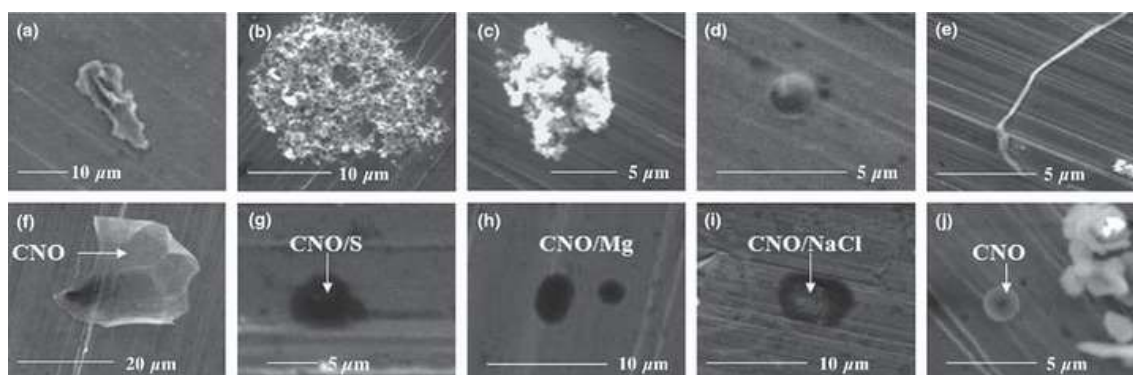
1. Sissejuhatus.....	4
1.1 Ülevaade aerosoolist.....	4
1.2 Aerosool atmosfääris.....	5
1.3 Aerosoolide tekkepuhangud.....	8
1.4 Tammeti ja Kulmala simuleerimistarkvara.....	9
1.5 Tahkuse õhuseirejaam.....	10
1.6 Tahkuse 2004 – 2014 andmestik.....	12
2. Troposfääri aerosooli tekkepuhangute otsimise tarkvara arendamine ja puhangusimulatsioonid.....	13
2.1 Töö käik.....	13
2.2 Puhangute otsingutarkvara ja algoritmi kirjeldus.....	19
2.3 Puhangute otsinguid lihtsustavad funktsioonid.....	25
3. Tulemused.....	26
4. Kokkuvõte.....	36
5. Kasutatud kirjandus.....	37
Lisad.....	41
Lisa 1.....	41
Lisa 2.....	42
Lisa 3.....	43
Lisa 4.....	46
Lisa 5.....	47
Lisa 6.....	53
Lisa 7.....	55
Lisa 8.....	56
Lisa 9.....	58

# 1. Sissejuhatus

## 1.1 Ülevaade aerosoolist

Aerosooliks nimetatakse kahefaasilist dispersset süsteemi, mille komponentideks on gaasiline keskkond ning selles hõljuvad tahked ja/või vedelad osakesed. Aerosooliosakeste mõõtmed on üldjuhul vahemikus  $10^{-9}$ m kuni  $10^{-5}$ m. Selliseks süsteemiks on näiteks ka Maa atmosfäär, kus gaasilises keskkonnas (õhus) hõljub palju erinevaid tahkeid ja vedelaid osakesi. Aerosooliosakeste mass on võrreldes kogu atmosfääri massiga tühine, kuid aerosooli mõju on siiski mitmes mõttes oluline. Mõneks konkreetsemaks näiteks sellistest süsteemidest on näiteks suits, udu, pilved, õhku sattunud meresool, õietolm.

Osakeste kuju ja mõõtmed võivad olla väga mitmesugused. Üldiselt ei saa aerosooliosakesi iseloomustada ühe mõõtmega (näiteks diameetriga), selleks on osakeste kujud liiga varieeruvad ja liiga keerulised. Lisaks sellele muutuvad väiksemate osakeste puhul ülitähtsateks ka kvantefektid, kus diameeter ei ole põhimõtteliselt hästi määratud. Üldjuhul ei ole aerosooliosakeste mõõtmed üldse lihtsasti mõõdetavad. Neid on võimalik mõõta erijuhtumitel, nt ladestunud osakeste uurimisel mikroskoobi all. Nendel põhjustel mõõdetakse tavaliselt mitte osakeste mõõtmeid, vaid osakeste liikuvusi ja/või masse, ning nendest suurustest tuletatakse mingil viisil osakeste suurustega sarnanevaid parameetreid nagu näiteks efektiivne diameeter. Osakeste mõõtmed omavad rohkem sisu suuremate osakeste puhul (alates umbes  $1 \mu\text{m}$ ). Tahked osakesed võivad oma kujult olla piklikud, ketitaolised, plaaditaolised, harulised jne. Mõningad erinevad aerosooliosakeste kujud on näha joonisel 1.



Joonis 1. Erinevad aerosooliosakeste kujud [1]

Aerosooli tähtsamateks iseloomustavateks suurusteks on näiteks PM2.5 ja PM10, mis kirjeldavad kõigi sellistest suurustest väiksemate (2,5 või 10  $\mu\text{m}$ ) osakeste massi ja on seega olulised ka keskkonnakaitse seisukohalt. Lisaks nendele suurustele on mõõtmistulemustes olulised ka osakeste arv ruumalaühikus ehk kontsentratsioon ja nende jaotused liikuvuste (või suuruste) järgi. Käesoleva töö seisukohalt ongi väga olulisel kohal just aerosooliosakeste kontsentratsioonid. Aerosooliosakeste kontsentratsioonid võivad varieeruda mõnest üksikust osakesest kuni kümnete miljonite osakesteni kuupsentimeetris. Kontsentratsiooni kirjeldamiseks kasutatakse enamasti numbrilist kontsentratsiooni ( $\text{cm}^{-3}$ ), kuid laialt on kasutusel ka pindkontsentratsioon ( $\mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$ ), ruumkontsentratsioon ( $\mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3}$ ) ja masskontsentratsioon ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ).

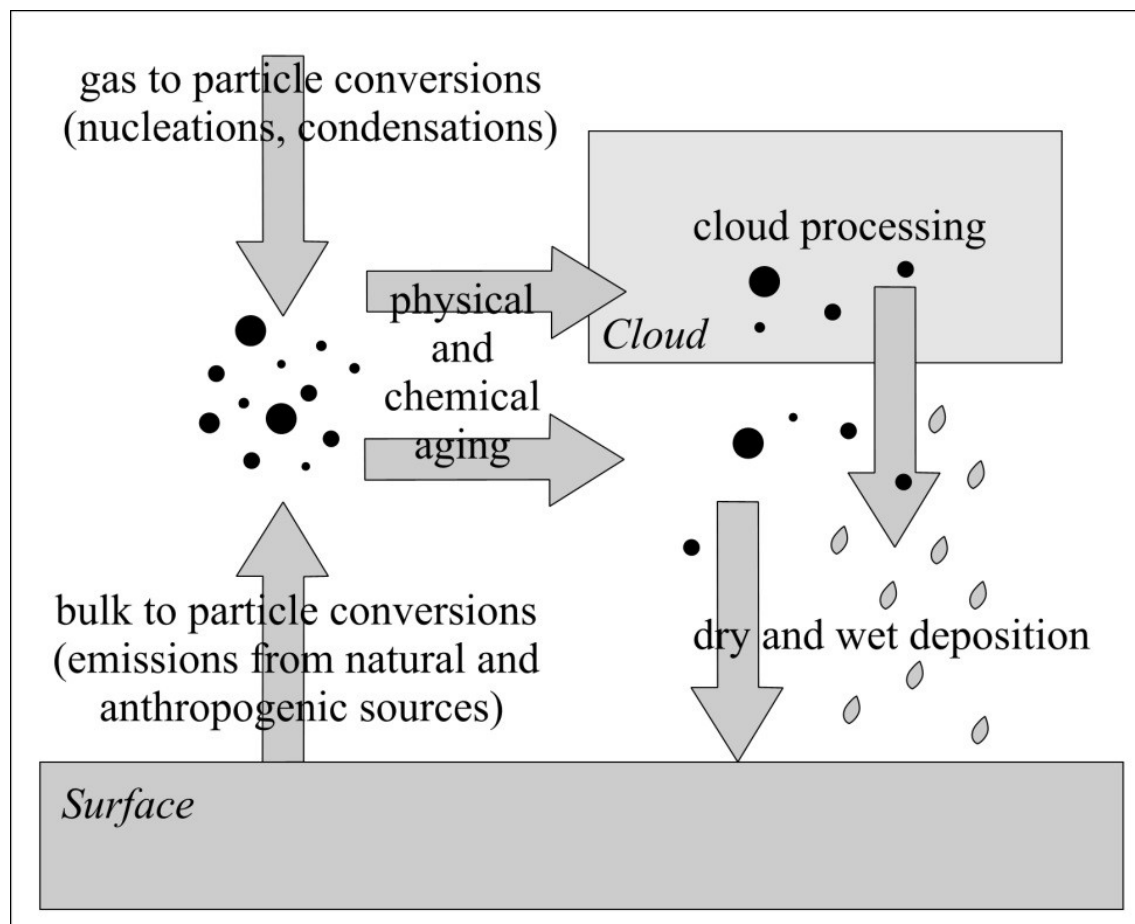
## 1.2 Aerosool atmosfääris

Aerosoolid mängivad meie igapäevaelus väga erinevaid rolle. Näiteks udune ilm toob endaga halvenenud nähtavuse, mis kaugemal olevad objektid ähmastab. Suurlinnades esineb tihti ka sudu, mis võib takistada isegi autoliiklust. Lisaks paljudele muudele aerosooli mõjudele meie elus võivad sudu ja teised aerosoolid sissehingamisel kahjustada ka inimeste tervist [2], mis on paljudes suurlinnades tänapäeval väga suureks probleemiks.

Aerosooli uurimine on üsna tähtis teadusharu, kuna aerosool mõjutab lisaks eelmainitule oluliselt ka Maa kliimat. Enamus aerosoolid peegeldavad päikesekiirgust, jahutades seeläbi atmosfääri, kuid leidub ka aerosoole, mis kiirgust neelavad ja seeläbi atmosfääri soojendavad. Peegeldavateks aerosooliosakesteks on näiteks sulfaadid ja nitraadid, ning üheks neelava aerosooli näiteks on tahm (black carbon), mis on Maa atmosfääris väga laialt levinud ja satub sinna nii looduslike protsesside käigus kui ka inimtegevuse tagajärjel mittetäielikul põlemisel. Tahm soojendab seda atmosfäärikihti, milles ta paikneb, aga jahutab ja varjutab selle alla jäävat maapinda. Teadlased arvavad, et peegeldavate aerosoolide jahutav roll on kaalukam kui tahma atmosfääri soojendav roll ja töötab seeläbi vastu kliima soojenemisele [3].

Lisaks otsesele mõjule (päikesekiirguse neelamisele ja peegeldamisele) muudavad aerosoolid Maa kliimat ka kaudselt. Nimelt on üheks väga oluliseks Maa kliimat mõjutavaks teguriks Maa albeedo: mida suurem see on seda rohkem kiirgust peegeldatakse. Maa albeedot suurendavad ka pilved. Aerosoolil on aga pilvede tekkimisel väga oluline roll. Nimelt on aerosoolid pilvede tekkimisel kondensatsiooni tsentriteks, ilma milleta pilved tekkida ei saaks [3].

Aerosooliosakesed satuvad atmosfääri üldjoontes kahel viisil: erinevate emissiooniprotsesside käigus või kondensatsiooni ja nukleatsiooniprotsesside käigus. Peale atmosfääri sattumist toimub aerosooliosakeste areng, mille käigus osakeste suurus, struktuur ja keemiline koostis võivad muutuda. Viimase sammuna sadestuvad osakesed märja või kuiva depositsiooni käigus. Aerosooli üldine elukäik atmosfääris on illustreeritud joonisel 2.

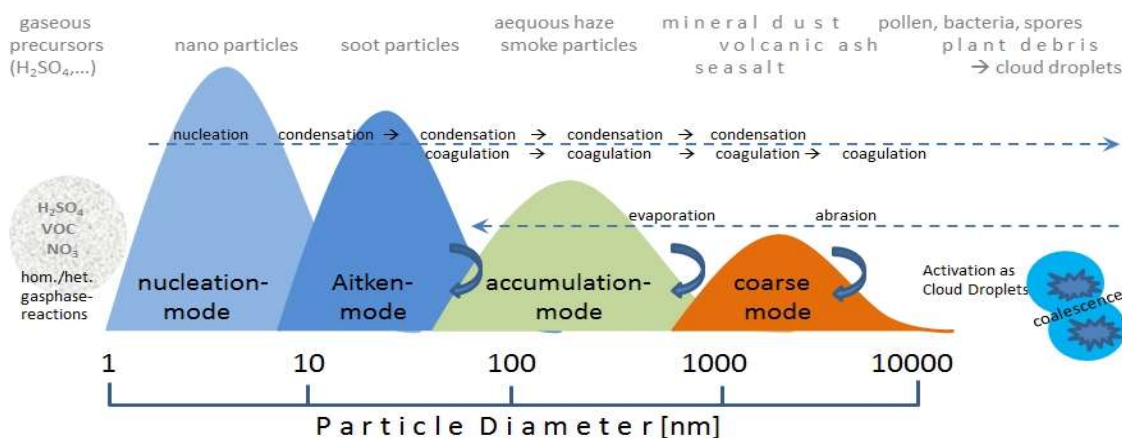


Joonis 2. Aerosooliosakeste üldine elukäik. [4]

Aerosoole võib erinevate tunnuste alusel rühmitada. Üheks aerosoolide liigitamise võimaluseks on liigitus aerosooli tekkemehhanismi alusel. Aerosool on dispersioonaaerosool, kui aerosooliosake satub gaaskeskonda pihustamisel, või kondensatsioonaaerosool, kui aerosool tekib osakeste kondenseerumisel kondensatsiooni tuumadele. Kondensatsioonaaerosooliks on näiteks eelnevalt mainitud pilved ja dispersioonaaerosooliks on näiteks auto heitgaasid. Teiseks rühmitamise võimaluseks on liigitamine agregaatoleku alusel – kui gaasis hõljub tahke osake, siis nimetatakse sellist aerosooli suitsuks, kui aga vedel osake, siis uduks. Lisaks sellele on aerosoole võimalik liigitada ka osakeste suuruse järgi peen- või jämedispersseks aerosooliks

või osakeste mõõtmete erinevuse alusel kas polü- või monodispersseks aerosooliks. Aerosool on peendispersne, kui tema osakeste läbimõõdud on väiksemad kui 100 nm, ja jämedispersne, kui läbimõõt on suurem kui 1000 nm.

Aerosooliosakesed jagatakse suuruse järgi tihtipeale nelja alagruppi: nukleatsioonimood (osakesed suurusjärgus 1 – 10 nm), Aitkeni mood, milles olevad osakesed võivad käituda pilvede tekkel kondensatsioonitsentritena (osakesed suurusjärgus mõnikümme nanomeetrit), akumulatsioonimood, milles osakesed tekivad väiksemate osakeste liitumisel (osakesed suurusjärgus 100 nm – 1 µm), ja jäme mood (coarse mode), milles osakesed tekivad erinevate protsesside käigus nagu näiteks kütuse põletamine, vulkaanipursked või meresoolade sattumine atmosfääri. Aerosooliosakeste mõõtmete jaotus on näha ka joonisel 3.



Joonis 3. Aerosooliosakeste mõõtmete jaotus. [5]

Aerosoolid võivad olla primaarsed, mille puhul osakesed paistakse otse atmosfääri (tööstuste korstnad, vulkaanid, õietolm, erosioon jms), kuid tekivad ka looduses iseseisvalt õhus leiduvatest gaasilistest lisanditest. Selliseid iseseisvalt tekkinud aerosoole nimetatakse sekundaarseteks aerosoolideks. Esimesena pani sellist iseseisvat aerosooli tekkimist tähele John Aitken (1897) [6], kuid ka paljud uuringud on näidanud, et troposfääris on leitud väga palju väga väikeseid, suurusvahemikus 3 – 15 nm, aerosooli osakesi. Samuti on erinevatel vaatlustel täheldatud, et sellised väiksed (paari nanomeetrised) osakesed kasvavad tihtipeale mõne tunni kuni mõne päeva kestel suuremaks, kuni 100 nm suurusjärku.

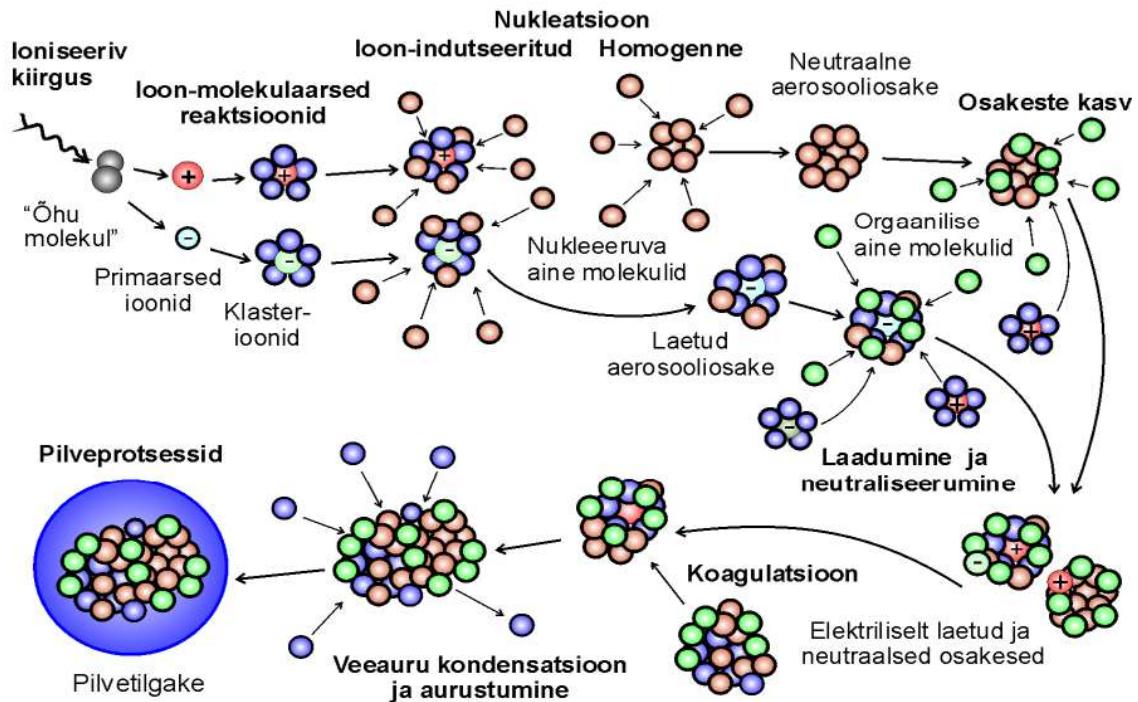
### 1.3 Aerosoolide tekkepuhangud

Aerosoolide puhanguteks või nukleatsioonipuhanguteks nimetatakse olukorda, kus mitmesugustel nukleatsiooniprotsessidel tekivad õhus olevatest gaasilistest lisanditest uued termodünaamiliselt stabiilsed, ligikaudu 1 nm suurused aerosooliosakesed, mis kasvavad ajapikku edasi suuremateks ~100 nm suurusteks osakesteks. Seniajani aga ei ole täpselt selge, milliste mehhanismide abil uued osakesed moodustuvad ja kasvavad, kuid on mitmeid erinevaid teooriaid, mis sisaldavad oma alamprotsessidena eri nukleatsiooni tüüpe ja erinevaid koagulatsiooni- ning kondensatsiooniprotsesse [7]. Eri tüüpi nukleatsioonide mudeliteks on ka homogeenne, heterogeenne ja ioon-indutseeritud nukleatsioon. Homogeense nukleatsiooni käigus toimub osakeste tekkimine gaasilises keskkonnas, mis võib sisaldada mitmeid keemilisi komponente. Lisaks veeaurule on oluliseks peetud näiteks väävelhappe auru, ammoniaaki jm. Kui gaasilises keskkonnas on juba olemas vedelad või tahked algosakesed, on tegemist heterogeense nukleatsiooniga ehk küllastunud auru kondensatsiooniga nendele algosakestele. Ioon-indutseeritud nukleatsiooni korral toimub aerosooliosakeste kasvamine laetud osakeste kaasabil. Peale algsete osakeste moodustumist algab osakeste esialgne kasv nano-Köhler teooria järgi. Nano-Köhler teooria kujutab endast Kulmala jt poolt modifitseeritud Köhleri teooriat. Köhleri teooria kirjeldab veeauru kondenseerumist kondensatsioonituumadele, mis toimub efektiivselt, kui tuuma läbimõõt on vähemalt ca 50 nm. Nano-Köhler teooria võtab lisaks arvesse õhus leiduvaid vesilahustuvate orgaaniliste ainete aurusid, mis aktiveerivad kondensatsiooni anorgaanilistele klastritele juba lävediametrist 1 – 3 nm alates [8]. Seejärel kasvavad aerosooliosakesed edasi omavahel mitteelastsetel kokkupõrgetel kombineerudes. Sellist protsessi nimetatakse koagulatsiooniks. Joonisel 4 on välja toodud aerosooliosakeste tekke ja arengu põhietapid.

Kuna aerosoolide tekke- ja arengumehhanismide uurimine on osakeste väikeste mõõtmete tõttu raskendatud, siis üheks uute teadmiste sünteesimise viisiks oleks erinevate teooriate põhjal aerosoolipuhangute simuleerimine. Kõige usaldusväärsem informatsioon aerosoolipuhangute kohta saadakse siiski mõõtmistelt ja nende mõõtmistulemuste abil saame teada, kui hästi teoreetilised mudelid aerosoolide tekkemehhanisme jäljendavad.

# SEKUNDAAROSAKESED

## Nanomeeterosakeste tekkimine ja evolutsioon atmosfääris



Joonis 4. Nukleatsioon ja osakeste kasv. [9]

### 1.4 Tammeti ja Kulmala simuleerimistarkvara

Tammeti ja Kulmala poolt loodud simuleerimistarkvara (edaspidi TK simuleerimistarkvara) pole ainuke olemasolev tarkvara aerosooli nukleatsioonipuhangute simuleerimiseks. Paar näidet teistest tarkvarapakettidest on Jacobsoni ja Seinfeldi [10] mudel, mis võtab puhangu simuleerimisel arvesse ka füüsikaliste parameetrite varieerumist eri ruumi piirkondades, ning Yu ja Turco või Laakso, Mäkelä, Pirjola ja Kulmala mudelid, mis koosnevad erinevatest detailsetest alammudelitest ja võtavad sealhulgas puhangu simuleerimisel arvesse ka erinevaid elektrilisi protsesse [11]. Eelnevalt nimetatud mudelid on aga oma detailsuse tõttu arvutuslikult üsna ebaefektiivsed. TK simuleerimistarkvara erineb nendest mudelitest oma arvutusliku efektiivsuse poolest, mis saavutatakse kasutades parametriseeritud alammudeleid. Need alammudelid lubavad arvesse võtta ioon-indutseeritud nukleatsiooni, homogeenset nukleatsiooni ja mitmeid osakestevahelise vastastikmõju efekte [11].

Joonisel 4 näha olevat osakese arengut simuleerib osaliselt ka TK programm. Simulatsiooni mudel algab sealt, kus on tekkinud stabiilsed aerosooliosakesed, ja lõppeb enne pilveprotsesse. Pilveprotsessid on TK mudeli jaoks juba liiga suured nähtused. TK programmi raames loetakse stabiilse aerosooliosakese tekkimist osakese sünniks. Osakese sünni mõjutavaid protsesse TK programm ei käsitle, ette antakse vaid osakese sünnisuurus  $d_0$  ning maksimaalsed nukleatsioonikiirused  $J_0$ ,  $J_+$ ,  $J_-$ . Nukleatsioonikiirused antakse TK programmile ette funktsioonina ajast ja see funktsioon koosneb kolmest etapist: tõusust, stabiilsest olekust ja langusest. Lisaks sellele võib kasutaja funktsiooni tõusu ja languse kuju määrata kas lineaarseks või sinusoidaalseks.

Peale osakeste sünni toimub osakeste kasv kondensatsiooni abil. TK programmis kasutatakse mudelis kahte liiki gaasilist kondenseeruvat ainet. TK programmis kasutatakse kahte erinevat ainet, kuna esimene, näiteks  $H_2SO_4$ , soodustab osakeste kasvu algstaadiumis, mil osakesed on veel väikesed, ning teine aine, näiteks mingi orgaaniline ühend, soodustab juba kasvanud osakeste edasist kasvu vastavalt nano-Köhleri teooriale. Kondensatsiooni simuleerimiseks antakse kummagi aine jaoks TK programmile ette kasvuühikute läbimõõt ja kasvukiirus. Kasvukiirused antakse TK programmis funktsioonina ajast: puhangu algul, keskel ja lõpus.

TK programm simuleerib ka osakestevahelisi elektrilisi protsesse. TK programmis saavad nanosakesed elektrilaengu kohtudes klasterioonidega ning ioonid kaovad omavahel rekombineerudes, adsorptsioonil teistele osakestele, taustaerosoolile või puude osakestele. Ionisatsiooni simuleerimiseks antakse programmile ette ionide tekkekiirused  $I_0$ ,  $I_1$  ja  $I_2$ , jällegi funktsioonina ajast, vastavalt puhangu algushetkel, keskel ja lõpus.

TK simuleerimistarkvara sisaldab kokku 94 kasutaja poolt kontrollitavat parameetrit ja lubab arvesse võtta palju erinevaid füüsikalisi protsesse, mis otseselt või kaudselt puhangu arengus rolli mängivad [11, 12]. Sellisteks parameetriteks on lisaks eelnevalt nimetatud parameetritele veel ka puhangu kestus, õhu temperatuur ja rõhk, taustaerosooli kontsentratsioon ning taustaerosooli keskmine läbimõõt jt.

## 1.5 Tahkuse õhuseirejaam

Nagu juba eelnevalt mainitud on meil simulatsioonidest kasu ainult sellepärast, et meil on võimalik simulatsiooni tulemusi võrrelda reaalselt mõõdetud tulemustega. Ühed väga

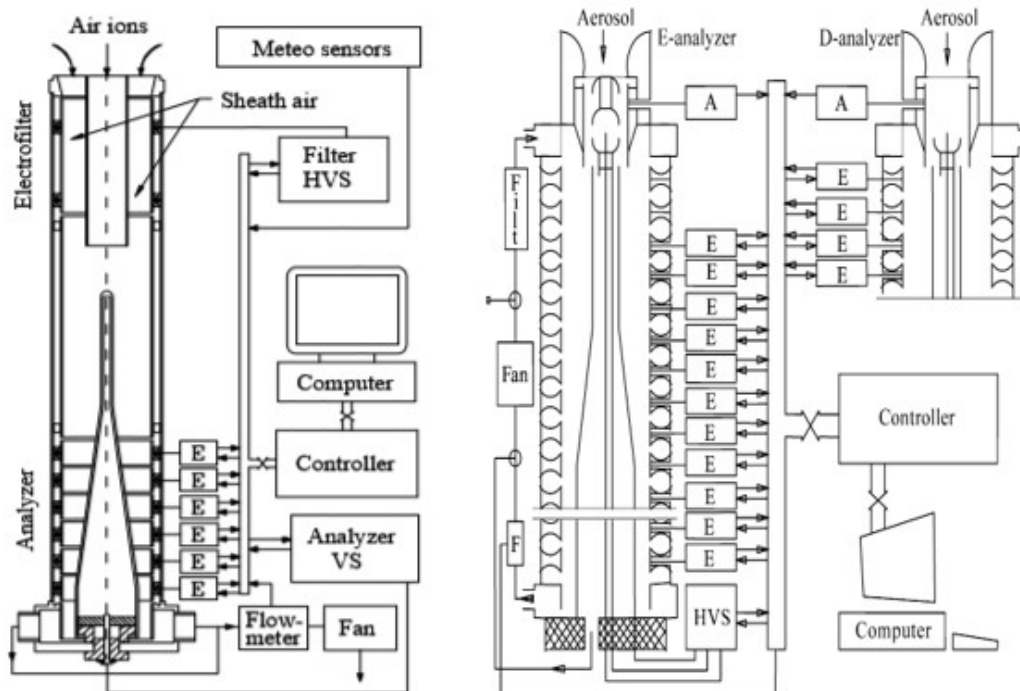
väärtuslikud mõõtetulemused on saadud Tahkuse õhuseirejaamast. Tahkuse õhuseirejaam asub Tahkuse külas, Pärnust umbes 27 km kirde suunas. Tahkuse õhuseirejaama ümbritsev maastik on tasane rohu ja põllumaa vähese metsaga. Tahkuse õhuseirejaamast umbes 180m kaugusel on ka vähese liiklusega tee – keskmiselt 10 autot päevas [13]. Tahkuse õhuseirejaama asukoht on välja toodud joonisel 5.



Joonis 5. Tahkuse õhuseirejaama asukoht. [13]

Esimene aeroioonide liikuvusspektromeeter (edaspidi AIS) paigaldati Tahkusele aastal 1985, mille abil avastati aerosoolide puhangulised tekked ehk aerosoolipuhangud. Aastal 1988 paigaldatud AIS mõõtepiirkonnaks on  $0.00041 - 3.14 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , mis võimaldab mõõta õhioone laias liikuvuse vahemikus [13]. Tahkuse AIS koosneb kolmest väiksemast spektromeetrist, mis katavad selle tundlikuspiirkonna: kergete ionide spektromeeter  $IS_1$ , keskmiste ionide spektromeeter  $IS_2$  ja suurte ionide spektromeeter  $IS_3$ . Aastast 2003 alates hakati Tahkusel EASi (electrical aerosol spectrometer) abil mõõtma lisaks liikuvustele veel ka aerosooliosakeste suurusi [14]. EAS mõõdab aerosooliosakesi vahemikus  $10 \text{ nm} - 10 \text{ }\mu\text{m}$  ja see vahemik on logaritmiselt jaotud 12 fraktsiooniks. EAS koosneb kahest identsest liikuvusanalüsaatorist, millest ühte laetakse difusioonilise laadijaga ning teist tugeva elektrivälja laadijaga. Difusioonilise laadijaga varustatud analüsaator mõõdab osakesi suurusega kuni  $0.5$

$\mu\text{m}$  ning teine analüsaator mõõdab osakesi, mis on suuremad kui  $0.3 \mu\text{m}$  [15]. Lisaks sellele mõõdetakse Tahkusel ka palju teisi õhu parameetreid, nagu õhurõhk ja temperatuur,  $\text{NO}_2$  sisaldus atmosfääris ja muud. AIS ja EAS seadmete skeemid on näha joonistel 6 ja 7.



Joonised 6 ja 7. AIS skeem (vasakul) [13] ja EAS skeem (paremal) [15]

## 1.6 Tahkuse 2004 – 2014 andmestik

Käesolevas töös käsitletakse Tahkuse 2004 – 2014 andmestikku (leitav aadressil [16]). Andmed on salvestatud 11 erinevas tabuleeritud tekstifailis, üks fail iga aasta kohta. Iga fail koosneb 114 veerust, üks iga mõõdetud parameetri jaoks, ja 8761 või 8785 reast, kus ühel real on ühe tunni jooksul mõõdetud parameetrite väärtused. Tahkuse 2004 – 2014 andmestikust on võimalik teha sellega kaasas oleva programmi Textractor11.exe abil väljavõtteid sobivate parameetritega ja sobivas ajavahemikus. Nimekiri kõigi 114 andmestiku parameetriga on välja toodud lisades 1 ja 2. Antud töös kõige olulisemateks parameetriteks on erinevad aerosooliosakeste läbimõõtude fraktsioonid  $d@4.2 - d@7500$  (osakesed keskväärtustega  $4.2 \text{ nm} - 7.5 \mu\text{m}$ , mõõdetud EAS-ga), ionliikuvuste fraktsioonid  $Z_+@2.77 - Z_+@0.0007$  ja  $Z_-@2.77 - Z_-@0.0007$  (positiivsed ja negatiivsed osakesed ionliikuvustega  $2.77 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1} - 0.0007 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , mõõdetud vastavate spektrometritega) ja kergete ionide summasred kontsentratsioonid  $n_+$  ja  $n_-$  (kergeteks

ioonideks peetakse siin ioone liikuvustega  $Z > 0.5 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ). Siinkohas on oluline rõhutada, et antud parameetrite piirkondadele vastavad liikuvuste ja läbimõõtude väärtused on ainult vastavate fraktsioonide keskvärtused, tegelikult sisaldavad need tabeli väärtused endas aga mingit osakeste läbimõõtude või liikuvuste vahemikku. Need vahemikud (fraktsioonid) on välja toodud vastavate mõõteseadmete kirjeldustes, EAS poolt mõõdetud osakeste jaoks on fraktsioonide piirid nanomeetrites järgnevad: 3.2, 5.6, 10, 18, 32, 56, 100, 180, 320, 560, 1000, 1800, 3200, 5600 ja 10,000 [15]. Lisaks sellele kasutan hiljem andmete filtreerimiseks ka mõõtmise kvaliteeti (mõõteinstrumendi mürast sõltuvalt) iseloomustavaid parameetreid q-ion1 (liikuvuste  $Z > 0.005 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ), q-ion2 (liikuvuste  $Z < 0.005 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ) ja q-eas (kõigi osakeste läbimõõtude jaoks).

## **2. Troposfääri aerosooli tekkepuhangute otsimise tarkvara arendamine ja puhangusimulatsioonid**

### **2.1 Töö käik**

Töö esimese sammuna toimus tutvumine TK simulatsioonitarkvaraga. Selleks uurisin põhjalikult tarkvara kontrollfaili ning selgitasin välja, mida kõik sealolevad parameetrid tähendavad ning kuidas need simulatsiooni tulemust mõjutavad. Näide kontrollfailist on välja toodud lisa 3. Ühe simulatsiooni läbiviimise mõistmine on oluline, kuna töö teises etapis toimub Aare Lutsu arendatud optimeerimistarkvaraga pidev üksikute simulatsioonide läbiviimine, kuid seda iga kord erinevate parameetritega, eesmärgiga teada saada kõige paremad algparameetrid nii, et simulatsiooni tulemus lähendaks võimalikult hästi mõõtmistel saadud tulemust.

Peale algset tutvumist TK simulatsioonitarkvaraga oli tarvis leida simuleerimiseks sobiv puhang. Kuna aga käesolevas töös kasutatud Tahkuse andmestikus oli andmeid kümne aasta jagu, siis sellest käsitsi puhangute otsimine ning nendest parima välja valimine oleks väga ajamahukas. Sellepärast oligi otstarbekas, kui mitte hädavajalik, seda tööd automatiseerida. Töö raames valmis puhangute otsingutarkvara, mida on võimalik peale väikeseid muudatusi kasutada ka teiste andmehulkadega töötamiseks. Puhangute otsinguid teostavad algoritmid on kirjeldatud järgmises alampeatükis.

Peale puhangute automaatotsingu teostamist oli vajalik tegeleda algandmete teisendamise, kuna kõik Tahkuse 2004 – 2014 andmestikus olevad andmed ei sobi vahetult TK simulatsioonitarkvara sisendiks. Andmestikus olevad  $Z_+$ ,  $Z_-$  ja  $D_p$  fraktsioonide andmed ei väljenda koheselt tegelikku aerosooliosakeste kontsentratsiooni. Algandmetes on kontsentratsioonid esitatud poollogaritmilisel kujul osakeste jaotusfunktsioonina  $dN/d(\lg Z)$  või  $dN/d(\lg d)$  (kasutatud on andmehulga juhendi tähistusi [14]). Jaotusfunktsiooni väärtused on antud vastavate fraktsioonide keskpunktides. Tahkuse andmehulgas on osakese läbimõõt tähistatud  $d$ . Meie kasutame alljärgnevalt selle asemel tähistust  $D_p$  eristamaks läbimõõtu diferentsiaalset  $d$ . Osakeste kontsentratsioonid fraktsioonides saame algandmetest leida kasutades järgnevat valemit

$$N(D_{pu}, D_{pl}) = \frac{dN}{d(\lg D_p)} * (\lg D_{pu} - \lg D_{pl}) \quad (1a)$$

või analoogiliselt liikuvuste jaoks

$$N(Z_u, Z_l) = \frac{dN}{d(\lg Z)} * (\lg Z_u - \lg Z_l) \quad (1b)$$

kus  $N(D_{pu}, D_{pl})$  ja  $N(Z_u, Z_l)$  on otsitavad kontsentratsioonid,  $\lg D_{pu}$  või  $\lg Z_u$  on vastava fraktsiooni ülemiseks piiriks oleva väärtuse kümnendlogaritm ja  $\lg D_{pl}$  või  $\lg Z_l$  on vastava fraktsiooni alumiseks piiriks oleva väärtuse kümnendlogaritm. Üldjuhul kehtiks selline diferentsiaalkujul esitatud valem ainult lõpmatult väikeste vahemike jaoks, aga siin kasutatud tähistustes ja andmehulgas antud andmete puhul kehtivad valemid täpselt, eeldusel, et me kasutame neid ainult ühe fraktsiooni kontsentratsioonide arvutamiseks. Erinevalt  $Z_+$ ,  $Z_-$  ja  $D_p$  andmetest on  $n_+$  ja  $n_-$  andmed tabelis kohe kontsentratsioonidena olemas.

Lisaks sellele on meil vaja veel tarvis teada saada mõningad parameetrite väärtused, mis otseselt ei ole andmestikus välja toodud. Puhangute modelleerimisel vaatleme fraktsioonide  $d@4.2$  kuni  $d@13$  (4.2 kuni 13 nm) summaarset kontsentratsiooni ja sellele suurusvahemikule vastavate liikuvusvahemike summaarseid kontsentratsioone. Osakesi fraktsioonidest  $d@24$  kuni  $d@7500$  käsitleme me taustaerosoolina. Puhangu simuleerimiseks on vajalik leida taustaerosooli summaarne kontsentratsioon  $B_{kgrC}$  ja lisaks sellele ka keskmine taustaerosooli osakese läbimõõt  $B_{kgrD}$ . Kontsentratsiooni leidmiseks tuleb vastavalt valemile (1a) leida esmalt fraktsioonide  $d@24 - d@7500$  kontsentratsioonid, ning need seejärel summeerida. Osakeste keskmise suuruse leidmiseks kasutame kaalutud aritmeetilist keskmist:

$$\bar{x} = \frac{\sum_{i=1}^n w_i x_i}{\sum_{i=1}^n w_i} \quad (2)$$

kus  $x_i$  tähistab  $i$ -nda fraktsiooni osakese läbimõõdu keskväärtust ja  $w_i$  selle kontsentratsiooni.

Seejärel on meil vaja teada saada fraktsioonides  $d@4.2 - d@13$  asuvate neutraalsete osakeste kontsentratsioonid ning sellele suurusvahemikule vastavates liikuvusvahemikes olevate positiivsete ja negatiivsete ionide kontsentratsioonid. Sellele läbimõõduvahemikule vastavate positiivsete ja negatiivsete ionide kontsentratsioonide leidmiseks peame aga esmalt teadma, millistele liikuvustele läbimõõdu vahemik 4.2 – 13 nm vastab. Kuigi selle teisenduse kuju ei ole täpsel kujul teada, on teisendusest olemas mitmeid lähendusi. Antud töös kasutame Hannes Tammeti poolt kirjutatud teisendusalgorithmi [17]. Liikuvuste piirkonna leidmiseks arvutame EAS poolt mõõdetud osakeste läbimõõdufraktsioonidele vastavad ionliikuvused ning seejärel leiame ionliikuvuste ja läbimõõtude vahemike kõige paremad vastavused. Siinkohal piirdume vaid läbimõõdufraktsioonidele kõige lähedasemate ionliikuvuste fraktsioonide leidmisega, mitte ei hakka fraktsioone osaliselt tükeldama, saavutamaks fraktsioonide täielikud kattuvused. Kuna TK simuleerimistarkvara ise on samuti vaid puhanguprotsesside lähendus, siis võime ka algandmetes kasutada mõningaid lähendusi. Nende lähenduste mõju simulatsiooni tulemustele on võimalik ka edaspidi täpsemalt uurida, muutes sihilikult liikuvuste  $Z$  fraktsioonide kontsentratsioone. Hannes Tammeti teisendusalgorithmiga (edaspidi HT teisendus) leitud liikuvuste väärtused sõltuvad tegelikult veel ka temperatuuri ja rõhu muutmisest, kuid nende muutus tavapäraste temperatuuri ja rõhutingimuste piires ei muuda  $Z$  piirkonda. Selle kontrollimiseks viisime läbi HT teisendused erinevate temperatuuride ning rõhutingimustega, mille tulemused on leitavad tabelis 1. Nende tulemuste põhjal jääb leitud piirkond  $Z@0.107 - Z@0.0068$  parimaks läbimõõdupiirkonnale 4.2 – 13 nm vastavaks liikuvuste piirkonnaks. HT teisendusega leitud läbimõõtude ja liikuvuste vastavused on välja toodud tabelis 2.

Tabel 1. Ioonliikuvuste ( $\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ) sõltuvus temperatuurist ( $^{\circ}\text{C}$ ) ja rõhust (mb), päistes läbimõõtude fraktsioonide keskväärtused ja nende piirid (nm).

	3.2	4.2	5.6	7.5	10	13	18
p:1013 T: -30	0.13	0.082	0.049	0.029	0.017	0.011	0.0057
p:1013 T: -15	0.14	0.085	0.051	0.03	0.018	0.011	0.0059
p:1013 T: 0	0.14	0.087	0.052	0.031	0.018	0.011	0.006
p:1013 T: +15	0.14	0.089	0.054	0.032	0.019	0.011	0.0061
p:1013 T: +30	0.15	0.092	0.055	0.032	0.019	0.012	0.0063
p:1067 T: -30	0.13	0.078	0.047	0.028	0.016	0.01	0.0054
p:1067 T: -15	0.13	0.08	0.048	0.028	0.017	0.01	0.0056
p:1067 T: 0	0.13	0.083	0.05	0.029	0.017	0.011	0.0057
p:1067 T: +15	0.14	0.085	0.051	0.03	0.018	0.011	0.0058
p:1067 T: +30	0.14	0.087	0.052	0.031	0.018	0.011	0.006
p:936 T: -30	0.14	0.089	0.053	0.031	0.019	0.011	0.0062
p:936 T: -15	0.15	0.092	0.055	0.032	0.019	0.012	0.0063
p:936 T: 0	0.15	0.094	0.057	0.033	0.02	0.012	0.0065
p:936 T: +15	0.15	0.097	0.058	0.034	0.02	0.012	0.0066
p:936 T: +30	0.16	0.099	0.059	0.035	0.021	0.013	0.0068

Tabel 2. Läbimõõdu fraktsioonide piirid, nendele vastavate liikuvuste (väärtused temperatuuril  $0^{\circ}\text{C}$  ja rõhul 1013 mb) lähimad AIS poolt mõõdetud osakestele vastavate liikuvuste  $Z$  fraktsioonid ja  $Z$  fraktsioonide ülemiste ja alumiste piiride kümnendlogaritmide vahed [14].

d piirid (nm)	$Z$ ( $\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ )	Closest $Z$ fraction	$\Delta\lg Z$
3.2	0.139	$Z@0.107$	0.3093
4.2	0.087	$Z@0.107$	0.3093
5.6	0.0523	$Z@0.051$	0.3374
7.5	0.0308	$Z@0.024$	0.3208
10	0.0181	$Z@0.024$	0.3208
13	0.0111	$Z@0.015$	0.3542
18	0.006	$Z@0.0068$	0.3382

Nüüd saame leida Tahkuse andmehulgast valemi (1b) abil vahemikule  $Z@0.107 - Z@0.0068$  vastavate positiivsete ja negatiivsete ionide kontsentratsioonid ning valemi (1a) abil saame leida vahemikule  $d@4.2 - d@13$  vastavate osakeste kontsentratsiooni. Viimasena on vaja veel leida neutraalsete osakeste kontsentratsioon  $N_0$ . Seda pole jällegi otseselt kusagil kirjas, kuid eeldusel, et EAS ja ionspektromeetrid mõõdavad osakesi ühtemoodi ning EAS peaks mõõtma kõiki (negatiivseid, positiivseid ja neutraalseid) osakesi, saame neutraalsete osakeste kontsentratsiooni leida kõikide osakeste  $N_{\text{eas}}$  ning positiivsete ionide kontsentratsioonide  $N_+$  ja negatiivsete ionide kontsentratsioonide  $N_-$  vahena:

$$N_0 = N_{\text{eas}} - N_+ - N_- \quad (3)$$

Teades neid parameetreid, saame leida ka teised, raskemini määratavad (näiteks aerosooli nukleatsiooni ja kasvu kiirused) parameetrid puhangu simuleerimiseks kasutades Aare Lutsu arendatud optimeerimistarkvara TK programmile, mis ongi selle töö viimaseks etapiks [18, 19]. Aare Lutsu arendatud lisatarkvara lahendab aerosoolipuhangu füüsikalist olemust määravate (kirjeldavate) parameetrite leidmiseks simulatsiooni pöördprobleemi – teada on tulemused ja vaja on teada saada, milliste parameetritega sellised tulemused saavutatakse. Tarkvara algoritm lahendab probleemi sammude kaupa ja igal sammul muudetakse otsitavate parameetrite väärtusi. Peale parameetrite väärtuste muutmist viiakse läbi simulatsioon uute parameetritega ning simulatsiooni tulemusi võrreldakse teadaolevate andmetega ehk referentsandmetega ja proovitakse minimeerida simulatsiooni ning referentsandmete erinevust. Tahkuse 2004 – 2014 andmestikust oleks referentsandmeteks andmestikust otseselt leitavad kergele negatiivsete ja positiivsete ionide kontsentratsioonid  $n_-$  ja  $n_+$  ja fraktsioonidele  $d@4.2 - d@13$  (osakesed vahemikus 3.2 – 18 nm) vastavad summaarsed osakeste kontsentratsioonid negatiivsete, positiivsete ja neutraalsete osakeste  $N_-$ ,  $N_+$  ja  $N_0$  jaoks (leitavad valemite (1a) ja (1b) abil). Näide referentsandmetest on välja toodud tabelis 3.

Tabel 3. Näide referentstabelist, tähistused on vastavuses TK simulaatori tähistustega.

aasta/kuu/päev/tund	$n_+$	$n_-$	$N_+$	$N_-$	$N_0$
2008/10/18/11	496	459	169	170	132
2008/10/18/12	500	469	123	131	171
2008/10/18/13	445	419	225	232	235
2008/10/18/14	468	408	237	180	128
2008/10/18/15	493	445	260	258	442
2008/10/18/16	493	462	446	374	1497
2008/10/18/17	591	553	510	447	2139
2008/10/18/18	601	566	633	537	2406
2008/10/18/19	468	416	613	538	1433
2008/10/18/20	427	376	573	495	889
2008/10/18/21	499	451	369	285	227
2008/10/18/22	524	484	326	251	62
2008/10/18/23	543	528	343	273	95

Tahkuse 2004 – 2014 andmetest sobivad simulaatori sisendparameetriteks õhutemperatuur ja rõhk, taustaerosooli kontsentratsioon ning taustaerosooli keskmine läbimõõt (leitav valemite (1a) ja (2) rakendamisel). Need parameetrid on puhtal kujul algandmed, mida optimeerimise käigus ei muudeta. Näide nendest algandmetest on näha tabelis 4.

Tabel 4. Teised simulaatori sisendparameetrid.

Parameeter	aasta/kuu/päev/tund	Väärtus	Ühik
Õhutemperatuur	2008/10/18/11	7.4	C
Õhurõhk	2008/10/18/11	1003.5	mb
Taustaerosooli keskmine läbimõõt puhangu algul	2008/10/18/11	62.2	nm
Taustaerosooli keskmine läbimõõt puhangu keskel	2008/10/18/17	49.8	nm
Taustaerosooli keskmine läbimõõt puhangu lõpus	2008/10/18/23	56.2	nm
Taustaerosooli kontsentratsioon puhangu algul	2008/10/18/11	1069	cm <sup>-3</sup>
Taustaerosooli kontsentratsioon puhangu keskel	2008/10/18/17	1969	cm <sup>-3</sup>
Taustaerosooli kontsentratsioon puhangu lõpus	2008/10/18/23	2573	cm <sup>-3</sup>

Lisaks nendele teadaolevatele parameetritele on eelnevatest uurimustest saadud teadmiste põhjal fikseeritud ka mitmed teised parameetrid. Nendeks TK simuleerimistarkvara parameetriteks vabas õhus on cluster ion mutual recombination coefficient ( $1.6 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^{-3}/\text{s}$ ), density of ions ( $2 \text{ g}/\text{cm}^3$ ), polarizability of the first condensing substance ( $149 \text{ \AA}^3$ ), polarizability of the second condensing substance ( $149 \text{ \AA}^3$ ), extra distance of the Van der Waals capture ( $0.115 \text{ nm}$ ), Nadykto-Yu dipole enhancement factor (1), critical size of quantum rebound ( $2.75 \text{ nm}$ ), critical temperature of quantum rebound ( $500 \text{ K}$ ) ja power of nano-Köhler approximation (2). Okasmetsa keskkonna simuleerimiseks on fikseeritud veel mõningad metsale iseloomulikud parameetrid [18].

Simulatsiooni pöördprotsessi lahendamise eesmärgiks on leida kõik ülejäänud parameetrid, mis iseloomustavad puhangu arengut ja võiksid puhangu mehhanismide füüsikalisel mõistmisel abiks olla, kuid mida on muude vahenditega raske määrata. Sellisteks parameetriteks on näiteks osakeste kasvu- ja nukleatsioonikiirused ning laetud osakeste osakaal aga ka osakese kasvamisel osakesele ladestuvate osiste diameetrid, keemilised omadused ja suurus, millest alates osised hakkavad kasvavale osakesele ladestuma, ning osakeste sünnisuurused.

Lisaks sellele aitab optimeerimine leida ka teisi parameetreid, mis näitavad kui võrd mõistlikud on optimeerimisel saadud tulemused. Sellisteks parameetriteks on näiteks klasterioonide liikuvused ja ionisatsiooni kiirused, aga ka juba nimetatud kasvuosiste suurused.

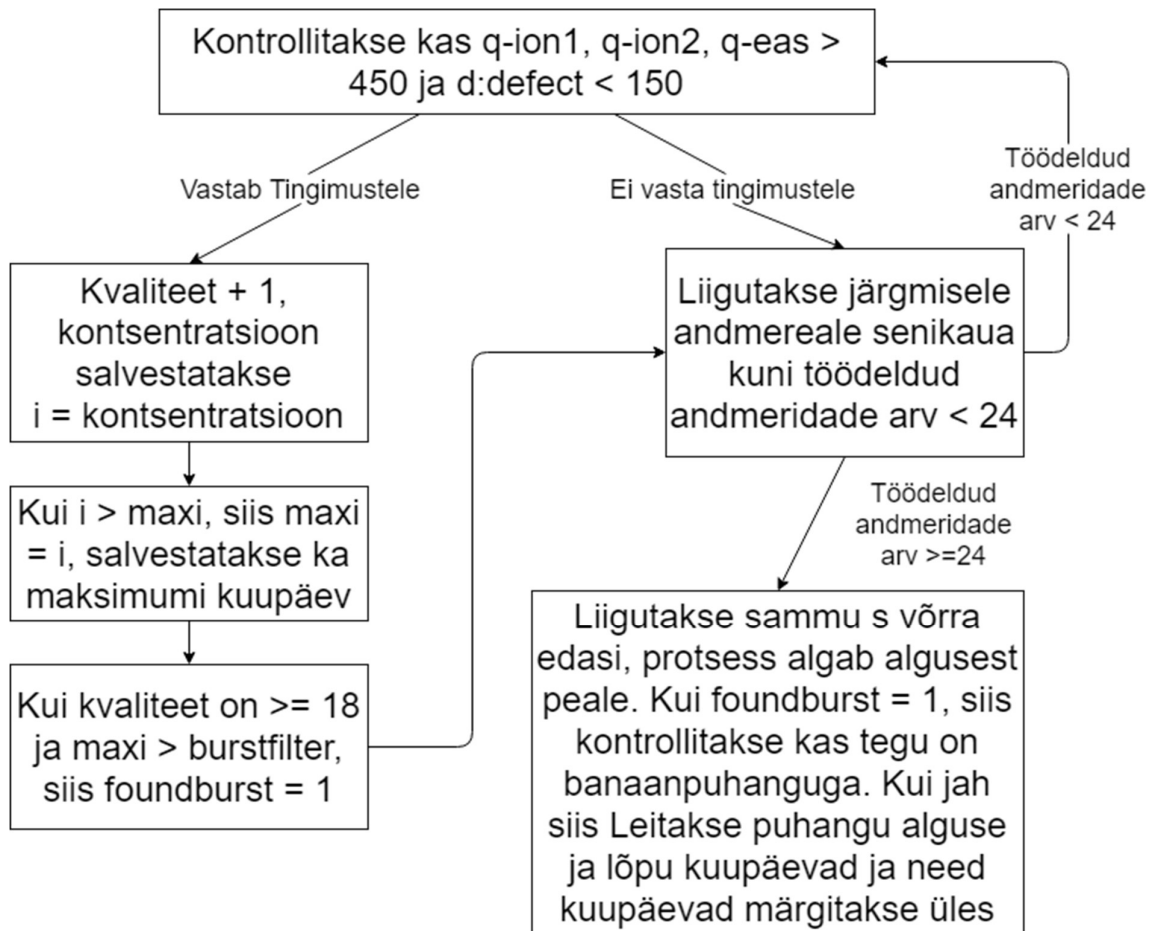
Optimeerimise läbiviimiseks valisin välja kõige paremad puhangud, mis oleks 1a tüüpi puhangule kõige lähedasema ja iseloomuliku kujuga ning milles oleks kõige vähem mõõteriistade ja muude tegurite põhjustatud müra andmetes

## 2.2 Puhangute otsingutarkvara ja algoritmi kirjeldus

Käesoleva töö üheks väga oluliseks eesmärgiks oli välja mõelda meetod, kuidas algandmete hulgast üles leida meid huvitavad puhanguolukorrad. Kuna andmestik koosneb ise ühe tunni vahedega mõõdetud kontsentratsioonidest ja seda kümne aasta vältel, on töödeldavate andmete hulk üsna suur ja puhangute otsimine käsitsi oleks ajaliselt väga kulukas ning simuleerimiseks parimate puhangute välja valimine võtaks samuti väga kaua aega. Ülesanne oli kohati keerukas, kuna aerosoolipuhangud ise võivad olla eri tüüpi ja neid puhanguid iseloomustavad graafikud varieeruvad seetõttu ka oma kujult ja kestuselt, seega puhangutel ei ole alati kindlaid iseloomulikke tunnuseid. Kuna andmestikuga kaasas oleva texttractor programmi abil on võimalik kõik andmed kohe Exceli tabeliteks teisendada, siis on otsingute läbiviimiseks kõige otstarbekam kasutada Exceli VBA programmeerimiskeelt. Algandmete tabel ise koosneb 96433 reast, seetõttu koostas in andmete visualiseerimise ja nende töötlemise lihtsustamiseks algandmetest uue 24 tunni pikkuse tabeli, milles olevaid väärtusi saab Exceli töölehel olevate liugurite abil muuta ning milles olevad ebakvaliteetsed tulemused filtreeritakse automaatselt välja. Ekraanitõmmis puhangute otsingutarkvara varajasest versioonist on näha lisa 4.

Puhangute otsimisel on tähtis ka asjaolu, et kõik mõõtetulemused ei ole mõõteriista müra tõttu piisavalt hea kvaliteediga. Mõõtmistulemuste kvaliteeti iseloomustavad (ka ülalpool kirjeldatud) d: defect, q-ion1, q-ion2 ja q-eas. Mida väiksem on d: defect ning mida suuremad on q-ion1, q-ion2 ja q-eas seda kvaliteetsem on mõõtmistulemus. Andmete filtreerimisel oli oluline, et alles jääks piisavalt palju mõõtetulemusi ja et nende alles jäävate tulemuste kvaliteet oleks võimalikult hea. Selgus, et sobivaimateks parameetrite väärtusteks on d: defect 150 ja q-ion1, q-ion2 ja q-eas 450, ehk alles jäetakse tulemused, milles d: defect < 150 ja q-ion1, q-ion2, q-eas > 450.

Puhangute otsingu teostamiseks sai proovitud väga paljusid erinevaid algoritme, kuid kõige töökindlamaks nendest osutus puhangute tuvastamine osakeste kontsentratsiooni piikide abil. Selle algoritmi plokk skeem on näha joonisel 8.

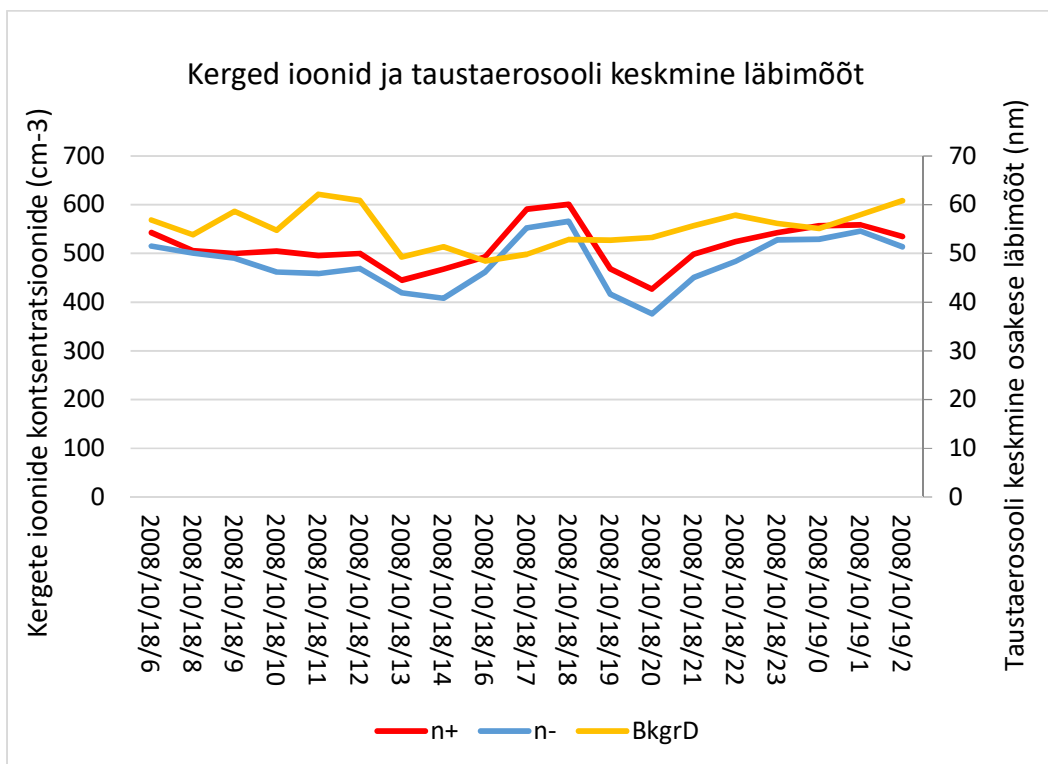
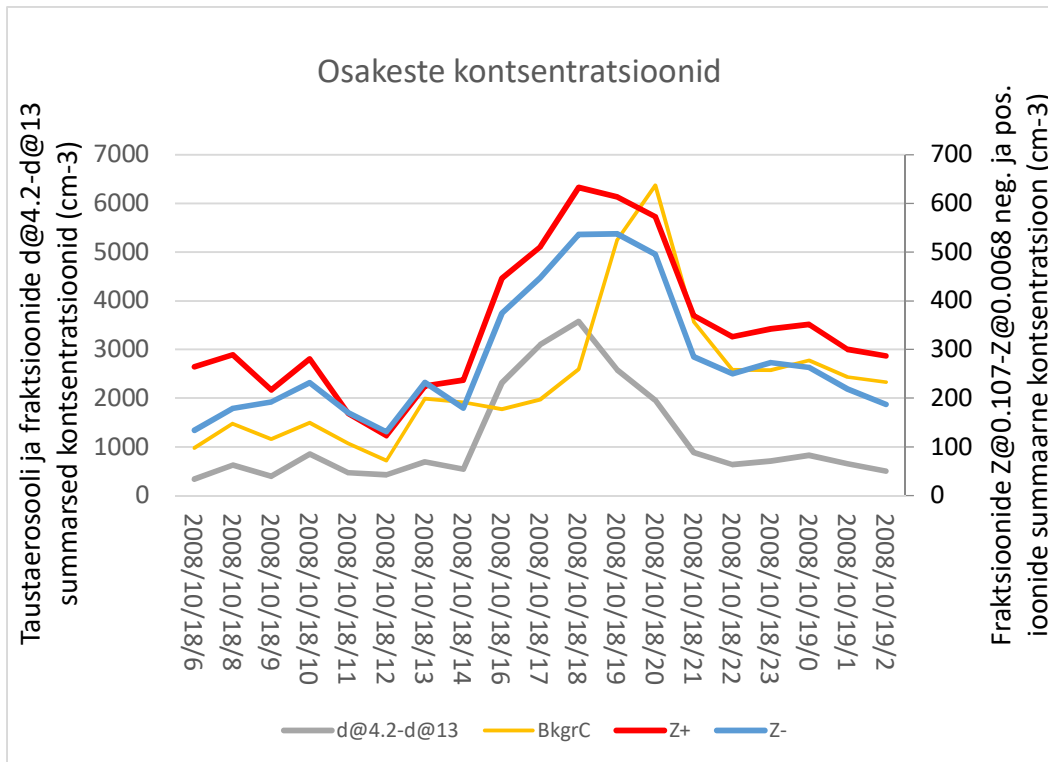


Joonis 8. Puhangute otsingualgoritmi plokk skeem.

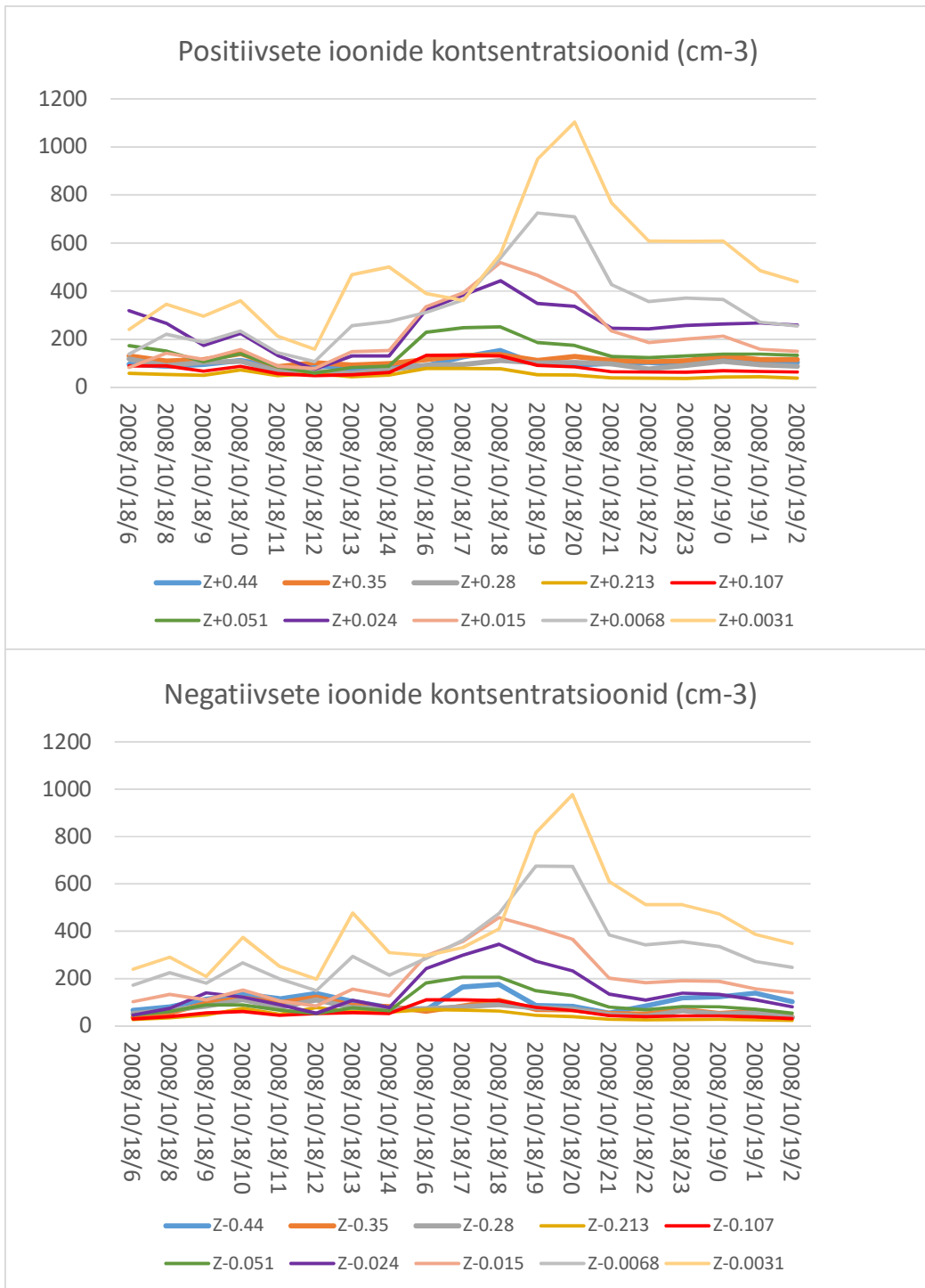
Algoritm töötleb andmeid päeva kaupa ja ükshaaval käiakse läbi kõik andmerekad (kokku 24). Esimese asjana kontrollitakse vastavust eelnevalt kirjeldatud kvaliteedinõuetele. Kui need on rahuldavad, siis lisatakse uuele muutujale, kvaliteedile, väärtus 1 ja salvestatakse selle andmerekale osakeste kontsentratsioon. Kvaliteet (algväärtusega 0) kirjeldab päeva pidevust, ta näitab mitu andmepunkti peale andmete filtreerimist alles jääb. See on jällegi oluline, et puhanguna ei tunnistataks müra, kus päevas on ainult paar andmepunkti. Edaspidi kontrollitakse tsüklis iga kord, kas hetkel käsiteldava andmerekale osakeste kontsentratsioon on suurem kui salvestatud osakeste maksimaalne kontsentratsioon. Kui salvestatud kontsentratsioon osutub hetkekonsentratsioonist väiksemaks, siis maksimumi väärtust uuendatakse ja salvestatakse ka selle kontsentratsiooni aeg. Sellisel viisil leitakse päeva maksimaalne osakeste kontsentratsioon. Kui päevast jääb peale filtreerimist alles vähemalt 18 andmerekat ja maksimaalne kontsentratsioon on suurem kui burstfilter, siis on leitud puhang. Burstfilter on kasutaja poolt määratav aerosooliosakeste kontsentratsiooni iseloomustav parameeter, millest alates peetakse piiki puhanguks. Selle algoritmiga on üldiselt küll hea puhanguid tuvastada, kuid kuna

puhanguid otsitakse päevaste hüpsetega, siis võib mõni puhang registreerimata jääda. Selle lahenduseks on kaks võimalust, kas jooksutada seda sama algoritmi läbi mitu korda, aga erineva algnihkega, või täiustada algoritmi koodi nii, et päevaste hüpsete asemel kasutatakse väiksemaid hüppeid.

Ülalkirjeldatud algoritm otsib aga andmetest vaid kontsentratsioonide piikväärtusi, seega tuvastab ta kõiki puhangute tüüpe. Puhangud jaotatakse nendele omaste tunnuste alusel tavaliselt kuni viide erinevasse klassi, nii et esimese astme puhangud on kõige tugevamad ning toimub selge aerosooliosakeste kasvu edasi kandumine väiksemate osakeste fraktsioonidest suuremate osakeste fraktsioonide poole ja viiendasse klassi kuuluvad puhangud, mis on kõige ebaselgemad või nõrgemad [20, 21]. Antud töö raames pakuvad aga eriti huvi just esimest klassi (vahel ka 1a klass [22, 23]) puhangud, mida kutsutakse tihtipeale ka banaanpuhanguteks. See puhangutüüp on oma nime saanud, kuna selles puhangus toimub esimese klassi puhangule iseloomulik aerosooliosakeste kasvu edasi kandumine väiksemate osakeste fraktsioonidest suuremate osakeste fraktsioonide poole ja näeb seetõttu graafikutel välja nagu banaan. Joonistel 9, 10 ja 11 on näha otsingualgoritmi poolt leitud ühte 1a tüüpi puhangut iseloomustavad graafikuid. Joonisel 9 on välja toodud fraktsioonide  $d@4.2 - d@13$  ning nendele fraktsioonidele vastavate liikuvuste fraktsioonide summaarsed kontsentratsioonid ja taustaerosooli summaarne kontsentratsioon BkgrC. Joonisel 10 on välja toodud kergete ionide ( $Z > 0.5 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ) kontsentratsioonid, ning taustaerosooli keskmine osakese läbimõõt BkgrD. Joonisel 11 on välja toodud positiivsete ja negatiivsete ionide kontsentratsioonid erinevate liikuvustega fraktsioonide jaoks. Näiteks  $Z+0.44$  tähistab ionide kontsentratsioone, mis vastavad liikuvuse fraktsioonile  $Z@0.44$  (fraktsiooni keskpunkt liikuvusega  $0.44 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ).



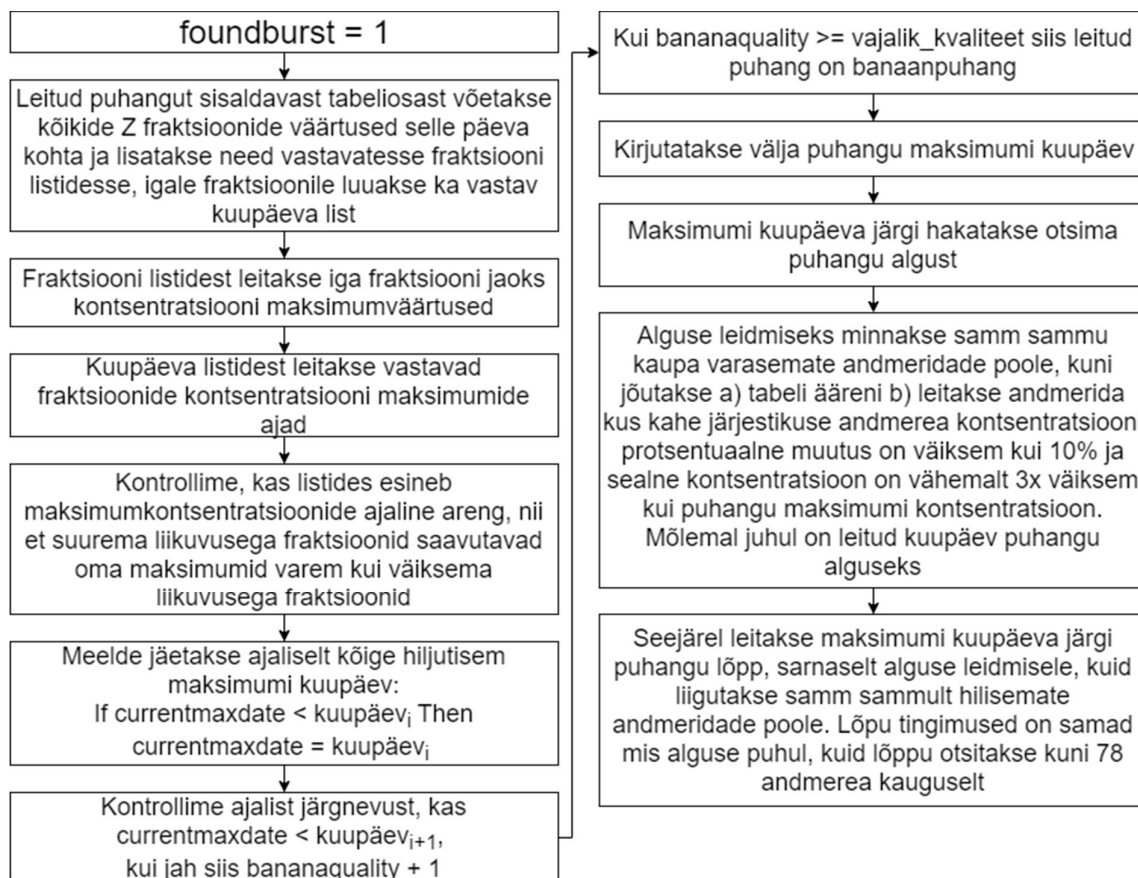
Joonis 9 ja 10. Üleval vahemiku d@4.2 – d@13 ning sellele vahemikule vastavate liikuvuste vahemike summaarsed kontsentratsioonid ja taustaerosooli summaarne kontsentratsioon, all taustaerosooli keskmine läbimõõt ning kerged ionide kontsentratsioonid.



Joonis 11. Üleval positiivsete ja all negatiivsete ionide fraktsioonide kontsentratsioonid.

Banaanpuhangute automaatotsingu algoritm on analoogne eespool kirjeldatud puhangu otsingu algoritmiga, erinev on viimane samm, kus enne puhangu välja kirjutamist kontrollitakse, kas tegu on banaanpuhanguga. Banaanpuhangute automaatotsingu algoritmi plokk skeem on välja toodud joonisel 12. Lisaks sellele on banaanpuhangu algoritmiga võimalik otsingut teostada

erinevalt eelmisest algoritmist ka väiksemate sammude kaupa kui 24 tundi (kasutaja poolt määratav) ja otsingul kirjutatakse välja, lisaks kontsentratsiooni maksimumi ajale, veel ka puhangu algus ja lõpp.



Joonis 12. Banaanpuhangu kontrollprotsess ning puhangu alguse ja lõpu otsing.

Peale algset puhangu tuvastamist toimub erinevalt eelnevast algoritmist kontroll, kas tegu on otsitava banaanpuhanguga. Kontrolli läbiviimiseks võetakse puhangut sisaldavast tabeliosast (päevast, juhul kui otsingu samm on 24) kõigi Z positiivsete või negatiivsete (vastavalt kasutaja soovile) fraktsioonide väärtused ja nendest moodustatakse iga fraktsiooni jaoks eraldi list, kokku 10. Seejärel leitakse nendest listidest iga fraktsiooni jaoks maksimumväärtused ning pannakse juba uude listi kirja nende maksimumide ajad, jällegi kokku 10, üks iga Z fraktsiooni jaoks. Selles uues aegade listis toimub itereerimine kogu listi ulatuses. Itereerimise käigus jäetakse jooksvalt meelde seni kõige hiljutisem kontsentratsiooni maksimumi aeg currentmaxdate, mida võrreldakse järgmise itereerimisel saadud ajaga. Kui suurema liikuvusega fraktsiooni maksimum saavutatakse enne väiksema liikuvusega fraktsiooni maksimumi, siis on tegu meie poolt otsitavale puhangule iseloomuliku tunnusega.

Banaanilikust iseloomustab siinkohal muutuja bananaquality ning kasutaja saab ise määrata, millisest piirist alates on banaanpuhang piisava kvaliteediga. Bananaquality näitab, mitu järjestikust maksimumi on puhangu jooksul saavutatud nii, et suurema liikuvusega fraktsioonile järgneb väiksema liikuvusega fraktsioon. Kui sellisel aegade võrdlemisel leitud kvaliteet on suurem kui määratud piirkvaliteet, siis on tegu banaaninga ning otsitakse puhangule ka algus ja lõppaeg. Alguseks ja lõpuks peetakse olukorda, kus kahe järjestikuse andmepunkti kontsentratsioonide protsentuaalne vahe on väiksem kui 10% ja sealne kontsentratsioon on vähemalt kolm korda väiksem kui maksimumi kontsentratsioon. Puhangu otsingualgoritmide lähtekoodid on välja toodud lisades 5 ja 6.

### **2.3 Puhangute otsinguid lihtsustavad funktsioonid**

Puhangute otsinguprotsessi lihtsustamiseks valmis puhangute otsingutarkvaras lisaks otsingualgoritmile veel mitmeid teisigi funktsioone. Kuna tarkvaras olev tabel on dünaamiline, ehk selles olevaid väärtusi on võimalik muuta, siis valmisidki tabeli andmepiirkonna muutmiseks kaks liugriba, üks neist nihutab tabelis olevaid väärtuseid 24 tunni (rea) võrra ning teine nihutab väärtuseid nelja tunni võrra. Algselt tuvastas puhangute automaatsing vaid puhangute kontsentratsioonide piikväärtusi ning üles märgiti ainult selle maksimumi ajale, kuid nüüd kirjutatakse lisaks puhangu maksimumi ajale üles veel ka puhangu algus ja lõpp.

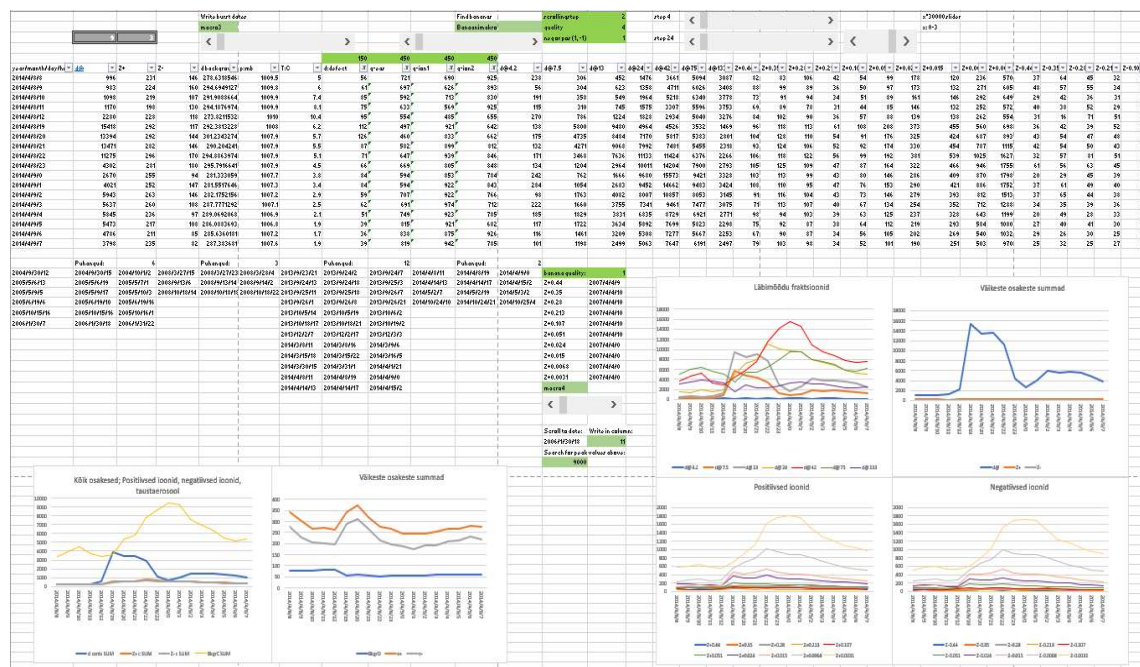
Peale puhangute üles kirjutamist oli puhangute uuesti leidmine nende graafiliseks analüüsimiseks käsitsi väga tülikas. Selleks valmis töös ka funktsioon scroll to date, milles kasutaja peab vaid kopeerima üles leitud puhangu kuupäeva õigesse exceli kasti, navigeerima andmepiirkonna algusesse ning seejärel käivitama otsingu. Otsing leiab automaatselt Tahkuse andmehulgast õige piirkonna, mis sisaldab seda kuupäeva.

Puhangute simuleerimiseks on aga tarvilik Tahkuse andmestikus olevate andmete teisendamine meile sobivale kujule. Selleks valmis töö käigus ka automaatne parameetrite teisendamine, automaatselt toimub tabelis olevate väärtuste teisendamine kontsentratsiooniks ja automaatselt leitakse ka piirkonna  $d@4.2 - d@13$  ning sellele vastavate  $Z_+$  ja  $Z_-$  piirkondade summaarsed kontsentratsioonid. Lisaks sellele leitakse automaatselt ka neutraalsete osakeste kontsentratsioon  $N_0$ ,  $d@24$  ja sellest suuremate fraktsioonide ehk taustaerosooli suumaarne kontsentratsioon ning taustaerosooli keskmine läbimõõt.

Lisaks sellele tegin ka mitmed varasemalt koodi sissekirjutatud väärtused kasutajale kergemini muudetavaks. Sellisteks parameetriteks on näiteks filtreerimistingimused q-eas, q-ion1 ja q-ion2, filtreerimistingimus burstfilter, mis tähistab minimaalset piikkontsentratsiooni, millest alates hakatakse puhanguid tuvastama, scrollingstep, mis määrab ära millise sammuga puhangute otsingul tabelit läbitakse, ja parameeter 1 või -1 vastavalt sellele, kas tahetakse kasutada otsinguks positiivsetele või negatiivsetele ioonliikuvustele vastavaid väärtusi.

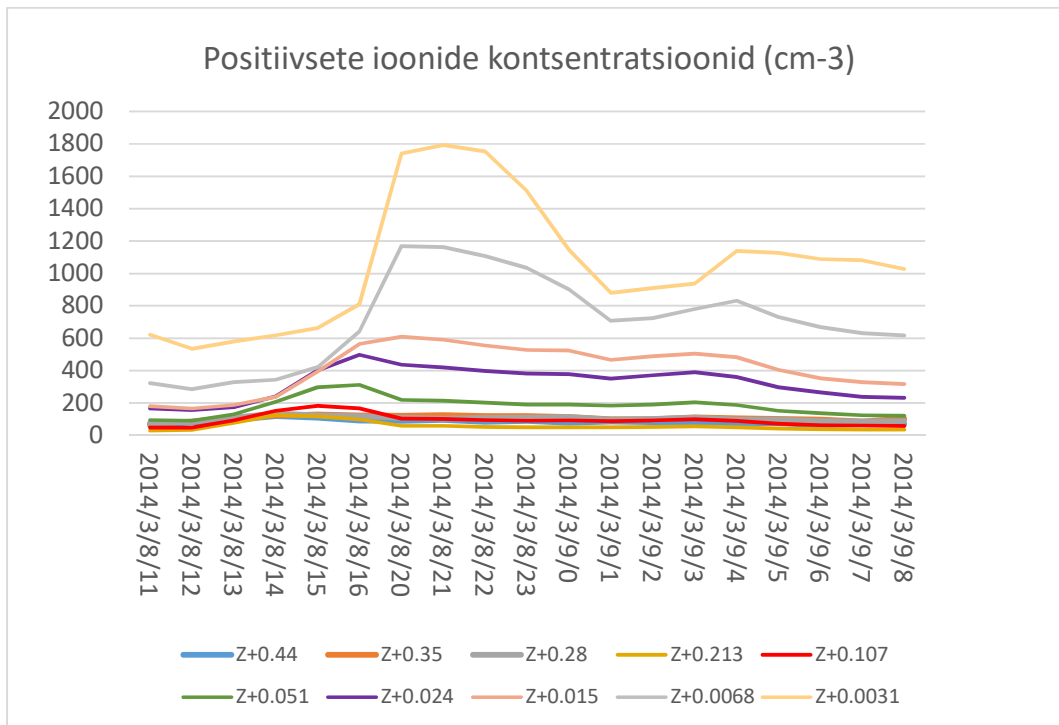
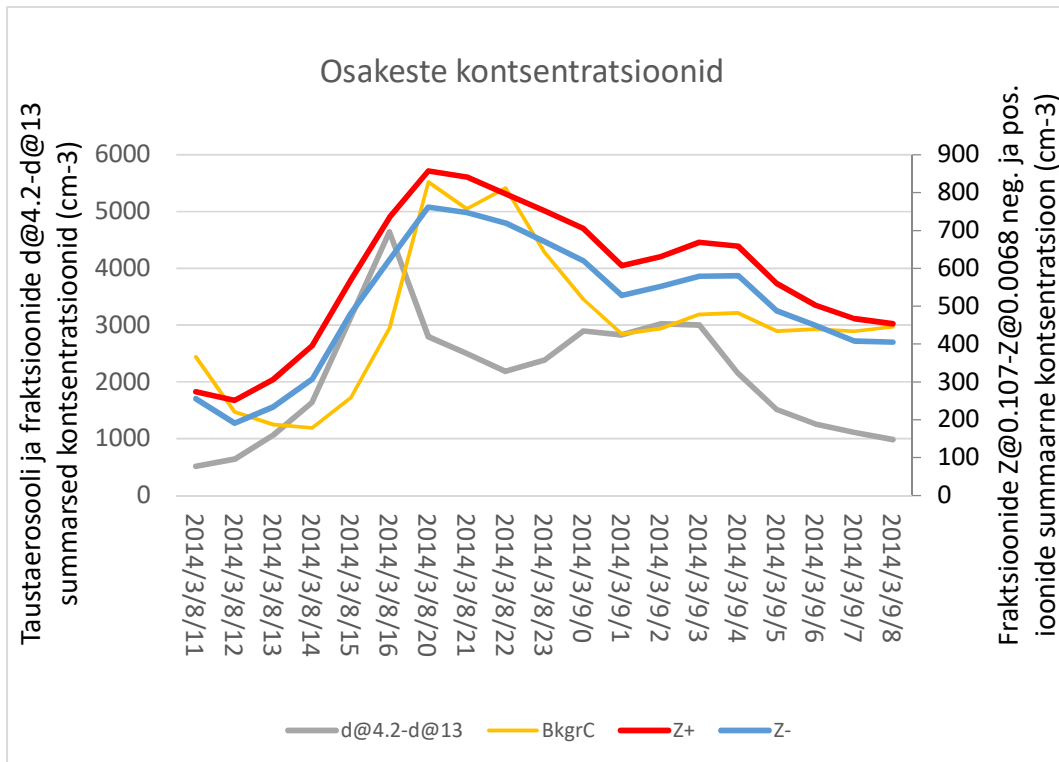
### 3. Tulemused

Töö käigus valmis Excelis põhjalik aerosooli tekkepuhangute otsingutarkvara, mille abil tuvastati palju erinevaid aerosoolipuhanguid. Filtreerimistingimuste d.defect < 150 ja q-eas, q-ion1, q-ion2 > 450, burstfilter väärtuse 9000 ja bananaquality väärtuse 4 korral otsingusammuga 2 oli banaanpuhangute otsingul leitud puhangute arv 7. Samadel tingimustel bananaquality väärtuse 3 korral oli leitud tulemusi 20. Samade filtreerimistingimuste korral oli tavalise puhangu otsingu käigus leitud puhangute arv 38. Kasutasid lödvemaid filtreerimistingimusi on võimalik tulemuste arvu märgatavalt suurendada, kuid oluline on märkida, et nii suureneb ka tahtmatult valepuhangute arv otsingutulemustes. Ekraanitõmmis puhangute automaatsingu tarkvara lõplikust versioonist on näha joonisel 13.

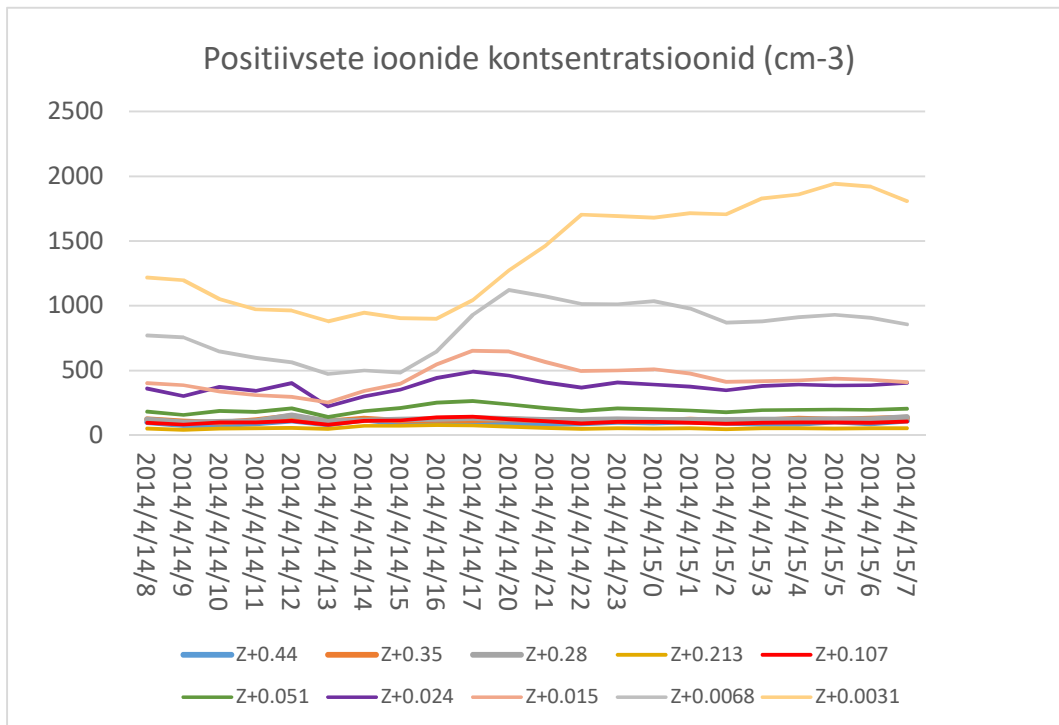
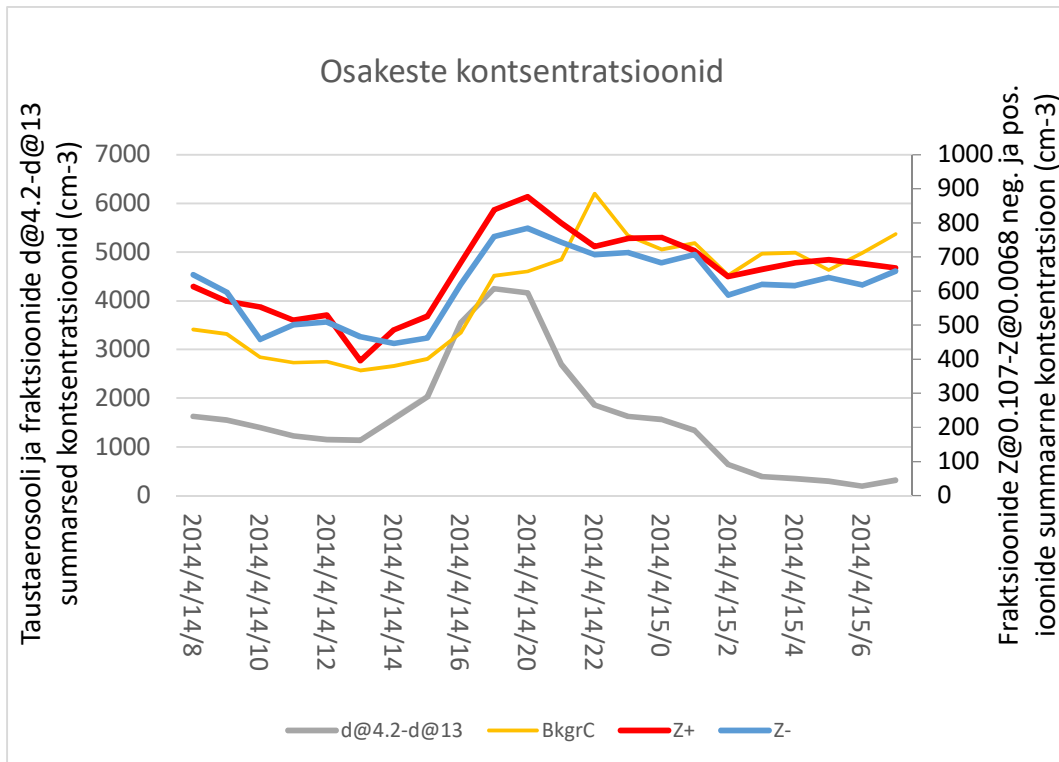


Joonis 13. Ülevaatlisk ekraanitõmmis lõplikust puhangute otsingutarkvara versioonist.

Leitud puhangute hulgas otsingutingimusega  $\text{bananaquality} = 4$  olid kõik puhangud 1a või 1b klassi. Kuigi banaanpuhangute otsingualgoritmi algseks eesmärgiks oli leida vaid 1a tüüpi puhangud, leiti siin lisaks 1a tüübile veel ka üksikuid 1b tüüpi puhanguid. Need puhangud registreeriti banaanpuhanguteks, kuna nad sisaldavad endas (mingil määral) 1a tüüpi puhangule iseloomulikke kontsentratsioonide ajalisi arenguid suuremate liikuvustega fraktsioonidest väiksemate liikuvustega fraktsioonidesse. Suurendades otsingutingimuse  $\text{bananaquality}$  väärtust hakatakse aga juba välja jätma lisaks 1b tüüpi puhangutele ka mõningaid 1a tüüpi puhanguid. Seda viiga annaks parandada mitut moodi, täiustades kas algoritmi ennast või suurendada mõõtmistel registreeritavate liikuvusfraktsioonide arvu. Suurendades registreeritavate liikuvusfraktsioonide arvu saaksime statistilistel kaalutlustel kindlamini väita, et leitud puhang on just 1a tüüpi ning see lihtsustaks ka otsingut. Teiseks võimaluseks oleks täiendada otsingualgoritmi ennast, lisades sellele veel mitmeid kontrolltingimusi, eesmärgiga välistada juhtumeid, mille korral otsingualgoritm tuvastab vale tüüpi puhangu 1a tüüpi puhangu. Üheks selliseks tingimuseks võiks näiteks olla täiendav kontroll aerosooliosakeste kontsentratsioonidele. Kui kontsentratsioonid on vahetult enne puhangu kõrget ja jäävad puhangu kestel pikaks ajaks maksimaalse kontsentratsiooni väärtusega umbes samale tasemele, või kõiguvad sellele lähedastel väärtustel, on tavaliselt tegu 1b tüüpi puhanguga ja seda teades saaksime selle tulemuse 1a tüüpi puhangu otsingutulemustest välja filtreerida. Puhangute klassifitseerimiseks on siinkohal kasutatud Dal Maso et al. poolt kasutatud klassifikatsiooni [22]. Optimeerimiseks valitud ja puhangute otsingualgoritmi poolt leitud puhangute graafikud on näha joonistel 9 – 11 ning 14 – 17. Lisas 7 on näha ka graafikud kergete ionide kontsentratsioonide ning taustaerosooli keskmise läbimõõdu kohta. Joonistel 14 – 17 ja lisas 7 olevad graafikud on kõik analoogilised jooniste 9 – 11 graafikutega. Siinkohal on ruumi kokkuhoiu mõttes välja jäetud negatiivsete ionide fraktsioonide kontsentratsioonide graafikud, kuna need on positiivsete ionide fraktsioonide kontsentratsioonide graafikutega peaaegu identsed.



Joonised 14 ja 15. 1a tüüpi puhangut iseloomustavad graafikud.



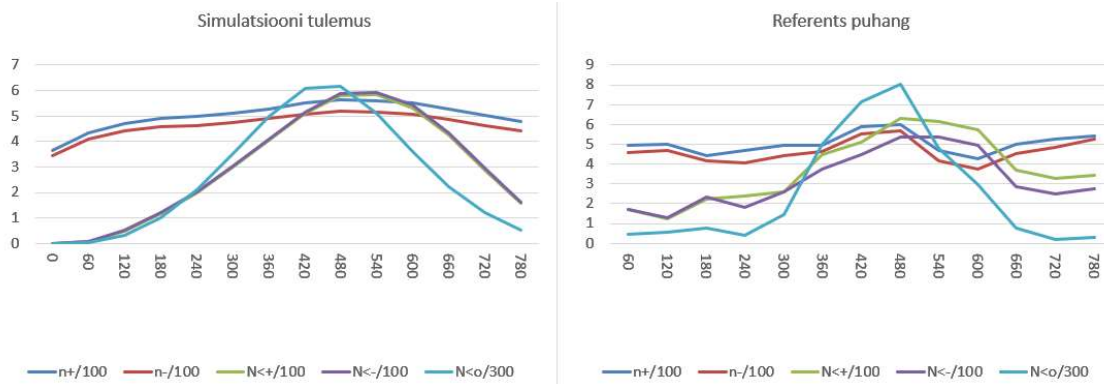
Joonised 16 ja 17. 1a tüüpi puhangut iseloomustavad graafikud.

Peale puhangute leidmist valisin välja 3 erinevat puhangut (vastavad graafikud välja toodud joonistel 9-11 ning 14-17.), mis on kõik 1a tüüpi puhangud ja viisin nende jaoks läbi optimeerimisprotsessi. Optimeerimisprotsessi tulemused on näha tabelis 5.

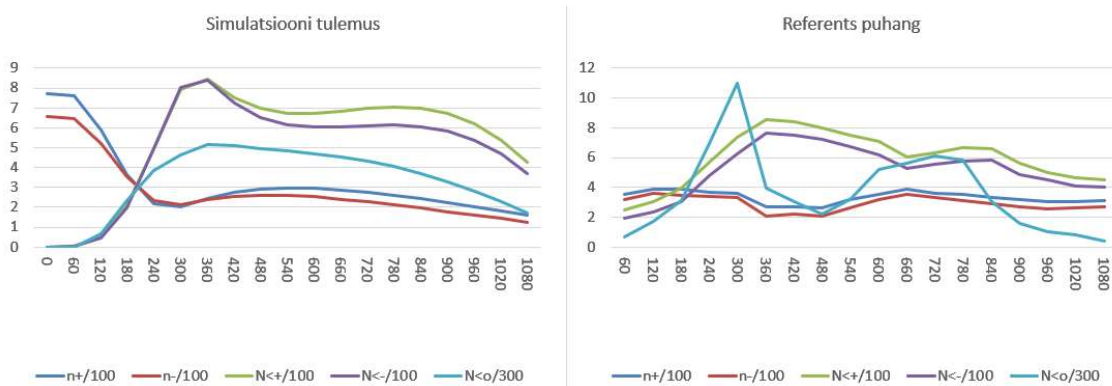
Tabel 5. Optimeerimisprotsessi tulemused.

Parameter name	2008/10/18	2014/3/8	2014/4/14
Time period (min)	780	1080	660
Initial ion. rate in free air ( $\text{cm}^{-3}/\text{s}$ )	0.4	1.3	0.6
Midpoint ionization rate, in free air	2.4	3.3	3.7
Final ion. rate in free air	6.9	2.5	2.5
Max nucl. rate for + ions, free air ( $\text{cm}^{-3}/\text{s}$ )	0.8	2	1.8
Max nucleation rate for – ions, free air	0.8	1.8	1.8
Max nucl. rate for neutral particles, free air	0.1	1.7	1.1
Rise time of nucleation activity (min)	455	284	262
Time of steady nucleation activity (min)	6	0.4	38
Time of dropping nucleation activity (min)	472	901	1066
Initial Kn GR1, free air (nm/h)	6.9	3	4.2
Midpoint Kn GR1 in free air	3.2	2.3	3
Final Kn GR1, free air	11.5	3.6	3
Density of growth units ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	1.2	1.6	1.7
Diameter of first growth unit (nm)	0.7	1	0.8
Initial Kn GR2 free air (nm/h)	4.5	3.9	6.1
Midpoint Kn GR2 free air	2.7	4.2	2.8
Final Kn GR2, free air	5.6	3.7	4.2
Diameter of second growth unit (nm)	2.7	2	1.9
Second condensation start diameter (nm)	1.4	2.6	2
Birth size of particles (nm)	0.9	0.9	0.9
Mobility of + cluster ions ( $\text{cm}^2/\text{V}/\text{s}$ )	0.6	0.5	0.9
Mobility of – cluster ions	0.7	0.7	1.3

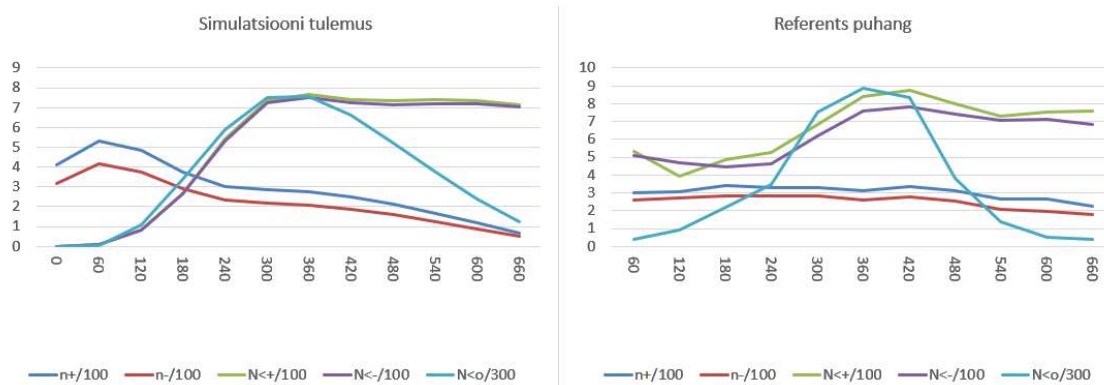
Optimeerimise tulemusi ning referentstabeli väärtusi võrdlevad graafikud on välja toodud joonistel 18 – 20.



Joonis 18. Optimeerimisprotsessi tulemus võrreldes mõõtmistega, kuupäeval 2008/10/18.



Joonis 19. Optimeerimisprotsessi tulemus võrreldes mõõtmistega, kuupäeval 2014/3/8.



Joonis 20. Optimeerimisprotsessi tulemus võrreldes mõõtmistega, kuupäeval 2014/4/14.

Optimeerimise käigus leitud parameetritest paistavad eriti välja puhangu algul tavapärasest madalamad ionisatsioonikiirused. Leides aga ionide bilansivõrandiga käsitsi need ionisatsioonikiirused saame tulemused üsna sarnased optimeerimisprotsessi käigus saadud tulemustega. Ionide bilansivõrand on tasakaalulises olukorras järgmine:

$$q - a * n_+ * n_- - b * n * BkgrC = 0 \quad (4)$$

Valemis (4) tähistab  $q$  otsitavat ionisatsiooni intensiivsust,  $a$  on vastastikuse rekombinatsiooni koefitsient,  $n_+$  on positiivsete kergete ionide kontsentratsioon,  $n_-$  on negatiivsete kergete ionide kontsentratsioon,  $b$  on koefitsient, mis kirjeldab ionide kadu rasketel osakestel,  $n$  on positiivsete või negatiivsete kergete ionide kontsentratsioon (sõltuvalt sellest kumma järgi vaadata) ning  $BkgrC$  on raskete osakeste ehk taustaerosooli kontsentratsioon. Valem (4) on tegelikult ionide bilansivõrrandi lihtsustatud kuju, kuna koefitsient  $b$  sõltub tegelikult ka raskete osakeste diameetrist. Diameetrist sõltuvaid  $b$  väärtusi on võimalik näha ka TK simulatsioonitarkvara tutvustuses [11].

$$b * n * BkgrC = n * \sum_{i=1}^m (b_i * BkgrC_i) \quad (5)$$

Valemis (5) tähistab  $m$  raskete osakeste fraktsioonide koguarvu ning  $BkgrC_i$  tähistab vastava raskete osakeste fraktsiooni kontsentratsiooni ning  $b_i$  selle fraktsiooni osakeste läbimõõdule vastavat ionide kao koefitsienti (väärtused võetud TK tarkvara tutvustusest [11]). Valemiga (5) arvatud ionisatsioonikiirused on näha tabelis 6.

Tabel 6. Ioonide bilansivõrrandiga arvatud ionisatsioonikiirused ( $\text{cm}^{-3}/\text{s}$ ).

	2008/10/18	2014/3/8	2014/4/14
initial ion. rate calc. with positive ions	1	0.8	1
halftime ion. rate calc. with positive ions	1.6	1.4	1.4
final ion. rate calc. with positive ions	2	1.1	1.2
initial ion. rate calc. with negative ions	1	0.8	0.9
halftime ion. rate calc. with negative ions	1.5	1.2	1.2
final ion. rate calc. with negative ions	1.9	1	1

Tuleb välja, et puhangu alghetke ionisatsioonikiirused on tegelikult nende andmete puhul normaalsed, ebatavalised on pigem bilansivõrrandiga leituga võrreldes kõrged ionisatsiooni kiirused puhangu lõpus. See võib aga olla seletatav asjaoluga, et puhangu arenedes bilansivõrrand sellisel kujul lihtsalt enam ei kehti, kuna seal mängivad rolli ka teised ionide kao protsessid, mida valemitega (4) ja (5) antud bilansivõrrand endas ei sisalda.

Lisaks sellele paistab veel silma ka asjaolu, et puhangute nukleatsioonitegevuste tõusu, stabiilse oleku ja languse summaarsed ajad on suuremad kui vaadeldav puhangu kesteperiood. See võib olla seletatav asjaoluga, et TK programm tekitab enda jaoks (võimalikult hea referentsandmete lähenduse saavutamiseks) uued kõverad, mille puhangu tõusu, stabiilse oleku ja languse ajad

võivadki olla suuremad kui puhangu kestus ning seejärel võetakse sellest tekitatud kõverast välja see osa, mis iseloomustab vaadeldavat puhanguperioodi. Mõlema 2014 aasta puhangu ajalised arengud on väga sarnased, esmalt kiire nukleatsiooni kasv, stabiilset nukleatsiooni aega on väga vähe ja sellele järgneb kohe üsna pikk ja aeglane langus. 2008 aasta puhangu korral toimub aeglane nukleatsiooni tõus, millele järgneb peaaegu kohe aeglane nukleatsiooni langus.

Nukleatsiooni kiirused laetud ja neutraalsete osakeste jaoks on üsna tavapärased. Üldiselt on nukleatsiooni kiirused üsna varieeruvad suurused, puhanguolukorral võivad nukleatsiooni kiirused varieeruda 1.5 nm suuruste osakeste jaoks näiteks  $4 \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1} - 0.07 \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$  [24]. Osakeste sünnisuurused olid kõigi puhangute jaoks 0.9 nm. Eelnevate uurimuste kohaselt võikski osakeste sünnisuurused olla ligikaudu 1 nm ja on seega ka optimeerimistulemustega kooskõlas.

Esimeste ja teiste kasvuosiste suurused tunduvad üsna mõistlikud. Esimeste kasvuosiste suurused 0.7 – 1 nm jäävad molekulide suurusjärku. Teised kasvuosised suurustega 1.9 – 2.7 nm on suuremad kui esimesed osised ja nano-Köhleri teooria kohaselt võivadki teised osised olla suuremad, orgaanilised ühendid. See on kooskõlas ka optimeerimisel leitud teise kondensatsiooni piirväärtustega 1.4 – 2.6 nm, kuna nano-Köhleri teooria kohaselt on selleks piiriks umbes 1.7 nm [24]. Esimesed kasvukiirused (tabelis 5 ja selle analoogides leitavad GR1 nimega) on 2008 aasta puhangu vältel ebatavapärastel kõrged ja vastuolus Kulmala et al. (2013) tulemustega, mille järgi esimesed kasvukiirused ei tohiks olla suuremad teistest (GR2), puhangu kestel peaks osakeste kasvukiirused suurenema koos osakeste kasvuga. 2014 puhangute vältel on kasvukiirused aga üsna tavapärased, esimesed kasvukiirused on väiksemad kui teised.

Klasterioonide liikuvused on kohati ebatavapärased, jäädes kõigi puhangute puhul vahemikku  $0.6 - 1.3 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ . Liikuvused  $1 - 1.3 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$  on tavalised, kuid  $1 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$  ja sellest väiksemad liikuvused on ebatavalised ja sellised ioonid kuuluvad pigem suuremate klasterioonide hulka. Tavaliselt jäävad klasterioonid liikuvusvahemikku  $1 - 1.6 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$  [25]. Liikuvuste edasiseks uurimiseks fikseerisin optimeerimisprogrammis liikuvused positiivsete klasterioonide jaoks 1.37 ja negatiivsete jaoks 1.39  $\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , et näha, kas sellisel juhul lähendab TK programm puhangut paremini. Fikseeritud liikuvuste jaoks on optimeerimise tulemused näha lisas 8. Simulatsiooni tulemusi fikseeritud klasterioonide liikuvustega ning referentstabeli väärtusi võrdlevad graafikud on samuti välja toodud lisas 8.

Fikseeritud liikuvustega optimeerimise tulemusena saadud graafikud on väga sarnased eelmiste, joonistel 18 – 20 olevate, optimeerimistulemuste graafikutega, kuid kõige suuremat erinevust on märgata 2008. aasta puhangu jaoks. 2008. aasta puhangu korral lähendab TK programm mõõtmiste tulemusi paremini, kui fikseerida eelnevalt klasterioonide liikuvused. Teisest küljest aga, vaadates tabelis 7 olevate parameetrite väärtusi, tunduvad need tulemused kohati rohkem ebausutavad. Esiteks suurenes ionisatsioonikiiruste varieeruvus märgatavalt 2008/10/18 ja 2014/3/8 puhangu jaoks. Algsed ionisatsiooni kiirused on mõlemal juhul üsna sarnased, kuid puhangu lõpufaasis erinevad ionisatsioonikiirused bilansivõrrandiga leitust veelgi enam. Lisaks sellele muutusioonliikuvuste fikseerimisel väga väikeseks esimeste kasvuosiste diameetrid 0.01 – 0.05 nm, mis on palju väiksemad kui vee molekulid ning on pigem juba elektronide suurusjärku.

Ebatavaliselt väikeste esimeste kasvuosiste üheks seletuseks võiks olla olukord, milles nende puhangute jaoks esimest kasvuetappi üldse ei toimunudki, osakeste kasv toimuski kogu ulatuses suuremate kasvuosistega teises etapis.

Ebatavaliselt väikeste esimeste kasvuosiste edasiseks uurimiseks seadsin kasvuühikutele minimaalse suuruse piirangu 0.2 nm, mis on natukene väiksem kui vee molekul ja käivitasin optimeerimisprotsessi uuesti 2008/10/18 puhangu jaoks. Optimeerimise tulemused on näha lisas 9. Fikseerides lisaksioonliikuvustele veel ka esimeste kasvuosiste läbimõõdud suurenesid ionisatsiooni kiirused veelgi, kaugenedes jälgi veelgi rohkem bilansivõrrandiga leitust. Lisaks sellele muutus ebatavaliselt suureks ka osakeste esimese kasvuetapi lõppfaasi kasvukiirus ning esimese kasvuetapi kasvukiirused ületasid teise kasvuetapi kasvukiirused, mis on aga jällegi varasemate uurimustega vastuolus. Optimeerimisel saadud referentsandmete lähenduse graafik oli siiski väga sarnane fikseeritudioonliikuvustega saadud tulemuste graafikule, kuid väga suure esimese kasvukiiruse tõttu on tulemus kaheldav.

Lisaks sellele hakkas Tahkuse andmehulgaga töödeldes silma asjaolu, et tegelikult taustaerosooli kontsentratsioonid võnguvad, kuid TK programmile on võimalik ette anda taustaerosooli ajaline käik vaid kolme parameetriga: puhangu algul, keskel ja lõpus. Uurimaks, kuidas mõjutab TK programmi simulatsiooni tulemust taustaerosoolide kontsentratsioon, alustasin optimeerimisprotsessi 2008/10/18 puhangu jaoks sihikult muudetud taustaerosooli kontsentratsioonidega ja vabade optimeerimisparameetritega. Algsete kontsentratsioonide ( $1069 \text{ cm}^{-3}$  puhangu algul,  $1969 \text{ cm}^{-3}$  keskel ja  $2573 \text{ cm}^{-3}$  lõpus) asemel kasutasin sihikult

muudetud kontsentratsioone: 3000 cm<sup>-3</sup> puhangu algul, 7000 cm<sup>-3</sup> keskel ja 6000 cm<sup>-3</sup> lõpus. Optimeerimise tulemus on näha lisas 9.

Muudetud kontsentratsioonidega muutusid optimeerimise tulemustes kõige enam nukleatsiooni ja esimesed kasvukiirused, kuid need ei ületanud teisi kasvukiirusi. Lisaks sellele suurenes oluliselt ka esimeste kasvuosiste läbimõõt. Taustaerosool mõjutab protsesse mitmel viisil, seetõttu on täpsemateks järelduseteks vaja täiendavaid uuringuid.

Vabade ja fikseeritud liikuvustega optimeerimisel saadud parameetrite võrdlus on näha tabelis 7.

Tabel 7. Vabade ja fikseeritud liikuvustega optimeerimistulemused, a) tähistab vabasid liikuvusi ning b) tähistab fikseeritud liikuvusi.

Parameter name	2008/10	2008/10	2014/03	2014/03	2014/04	2014/04
	a)	b)	a)	b)	a)	b)
Time period (min)	780	780	1080	1080	660	660
Initial ion. rate in free air (cm <sup>-3</sup> /s)	0.4	1	1.3	1.3	0.6	0.7
Midpoint ionization rate, in free air	2.4	3.8	3.3	5.3	3.7	3.7
Final ion. rate in free air	6.9	11.4	2.5	8.6	2.5	3
Max nucl. rate for + ions, free air (cm <sup>-3</sup> /s)	0.8	1.7	2	1.7	1.8	1.7
Max nucleation rate for – ions, free air	0.8	1.5	1.8	1.8	1.8	1.5
Max nucl. rate for neutral particles, free air	0.1	0.2	1.7	1	1.1	1
Rise time of nucleation activity (min)	456	425	284	269	262	231
Time of steady nucleation activity (min)	6	38	0.4	2	38	38
Time of dropping nucleation activity (min)	472	442	901	1210	1066	841
Initial Kn GR1, free air (nm/h)	6.9	0.2	3	0.9	4.2	1.4
Midpoint Kn GR1 in free air	3.2	1	2.3	1.5	3	1.5
Final Kn GR1, free air	11.5	2.2	3.6	1.7	3	2.2
Density of growth units (g/cm <sup>3</sup> )	1.2	1	1.6	1.7	1.7	1.6
Diameter of first growth unit (nm)	0.7	0.01	1	0.05	0.8	0.02
Initial Kn GR2 free air (nm/h)	4.5	6.5	3.9	0.7	6.1	4.5
Midpoint Kn GR2 free air	2.7	2.8	4.2	2.8	2.8	2
Final Kn GR2, free air	5.6	9.2	3.7	3.6	4.2	4.4
Diameter of second growth unit (nm)	2.7	5.8	2	6.3	1.9	5.1
Second condensation start diameter (nm)	1.4	1.8	2.6	1.9	2	1.9
Birth size of particles (nm)	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9
Mobility of + cluster ions (cm <sup>2</sup> /V/s)	0.6	1.37	0.5	1.37	0.9	1.37
Mobility of – cluster ions	0.7	1.39	0.7	1.39	1.3	1.39

Tabelist 7 on näha, et fikseerides klasterioonide liikuvused muutuvad optimiseerimisega leitud parameetrid oluliselt. Nende tulemuste põhjal on raske väita, kummad tulemused on realistlikumad. Ühest küljest on fikseeritud klasterioonide liikuvustega saadud tulemuste korral

tulemused paremad, kuna esimesed kasvukiirused on väiksemad kui teised kasvukiirused ning see on kooskõlas ka Kulmala et al. (2013) uurimusega (vastupidiselt vabade liikuvustega optimiseerimisel leitud parameetritele), kuid teisest küljest muutusid nii aerosooliosakeste sünnisuurused väga väikeseks, olles elektronide suurusjärku. Et kindlalt väita, kummad optimiseerimisega leitud parameetrid on tõele lähedasemad oleks vaja läbi viia täiendavaid uurimusi.

## 4. Kokkuvõte

Aerosooli nukleatsioonipuhangute uurimine on endiselt noor ja arenev teadusharu. Aerosooli nukleatsioonipuhangute simuleerimine päris mõõtetulemuste alusel võimaldab meil saadud simulatsioonitulemuste ning seni teadaolevate füüsikaliste mudelite alusel teada saada muidu raskesti mõõdetavaid füüsikalisi suurusi ning sünteesida seeläbi ka uusi teadmisi aerosooli nukleatsioonipuhangute tekkemehhanismide kohta.

Suurtest andmehulkadest simuleerimiseks sobilike puhangujuhtumite käsitsi otsimine võib olla vägagi ajakulukas. Selle probleemi lahendamiseks valmistasin puhangute otsingu lihtsustamise eesmärgiga 2 puhangute otsingualgoritmi, üks tuvastamaks üldisi puhangujuhte ning teine tuvastamaks spetsiifilisemat 1a tüüpi puhangut.

Käesoleva töö raames valminud puhangute otsingualgoritmid täitsid suuremas osas oma eesmärgi ning seda on seetõttu soovi korral võimalik ka edaspidi teistest andmehulkadest puhangute leidmiseks, peale teistsuguse andmehulgaga töötamiseks vajalike muudatuste tegemist, kasutada. Arendatud algoritmid ei ole kahjuks aga ideaalsed, kuna 1a tüüpi puhangute otsingul leiti ka mõningaid 1b tüüpi puhanguid ning paremate tulemuste saavutamiseks tuleks neid edasi täiendada. Puhangute otsingutarkvara ise on saadaval kontakteerudes autoriga.

Leitud puhangujuhtude põhjal läbi viidud simulatsioonide käigus leiti mitmeid tegelikel mõõtmistel raskesti mõõdetavaid füüsikalisi suurusi kokku 3 erineva puhangu jaoks. Mõned saadud tulemustest olid küll ebatavapärased, kuid erinevatel füüsikalistel kaalutlustel selgus, et need tulemused ei ole võimatud.

### **Edasised eesmärgid:**

- Võrrelda valminud puhangute otsingualgoritme ja selle poolt leitud tulemusi teiste, juba olemasolevate algoritmidega.
- Selle võrdluse alusel algoritme edasi arendada puuduste likvideerimise eesmärgil.
- Valmis teha otsingualgoritmid ka kõigi teiste teadaolevate puhangutüüpide leidmiseks ning seejärel valmis teha puhangute automaatne klassifitseerimine.
- Korrastada olemasolevat koodi ning teha tarkvara kergemini kasutatavaks.
- Uurida, mille poolest erinevad 1a ja 1b tüüpi puhangute parameetrid üksteisest.
- Simuleerida rohkem erinevaid puhanguolukordi ning uurida täpsemalt, millised tulevad TK programmiga statistiliselt keskmised puhanguparameetrid.
- Uurida, milliste ioonliikuvuste korral jäävad TK programmi simulatsioonides esimeste kasvuosiste suurused mõistlikusse suurusjärku.
- Uurida, milliseid parameetreid oleks mõistlik edaspidi optimeerimisprotsessi raames fikseerida ning millised võiks olla nende suurused.

## **5. Kasutatud kirjandus**

1. Jung, H. J., Song, Y. C., Liu, X., Li, Y. & Ro, C. U. Single-particle characterization of aerosol particles collected nearby a lead smelter in China. *Asian J. Atmos. Environ.* 6, 83–95 (2012).
2. Stieb, D. M., Judek, S., Burnett, R. T. Meta-Analysis of Time-Series Studies of Air Pollution and Mortality: Effects of Gases and Particles and the Influence of Cause of Death, Age, and Season. *J. Air Waste Manag. Assoc. J. Air Waste Manag. Assoc.* 52:4, (2002).
3. Voiland, A. Aerosols: Tiny Particles, Big Impact : Feature Articles. (2010). Available at: <https://earthobservatory.nasa.gov/Features/Aerosols/printall.php> (Accessed: 16th May 2018)
4. Lagzi, I., Mészáros, R., Gelybó, G. & Leelőssy, Á. Physical and chemical characteristics of aerosols. Available at: <http://elte.prompt.hu/sites/default/files/tananyagok/AtmosphericChemistry/ch09s02.html>. (Accessed: 16th May 2018)

5. Deutscher Wetterdienst. Particle Size-Distribution. Available at: [http://www.dwd.de/EN/research/observing\\_atmosphere/composition\\_atmosphere/aerosol/cont\\_nav/particle\\_size\\_distribution\\_node.html](http://www.dwd.de/EN/research/observing_atmosphere/composition_atmosphere/aerosol/cont_nav/particle_size_distribution_node.html). (Accessed: 16th May 2018)
6. Kulmala, M. et al. Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations. *Aerosol Sci.* 35, 143–176 (2004).
7. Kulmala, M. et al. Initial steps of aerosol growth. *Atmos. Chem. Phys.* 4, 2553–2560 (2004).
8. Kulmala, M., Kerminen, V.-M., Anttila, T., Laaksonen, A. & O’Dowd, C. D. Organic aerosol formation via sulphate cluster activation. *J. Geophys. Res. Atmos.* 109, D4 (2004).
9. Hörrak, U. *ATMOSFÄÄRIAEROSOOLIDE FÜÜSIKA JA SEIRE*. Available at: [http://meteo.physic.ut.ee/kkfi/index\\_files/oppetoo/tutvustavad-materjalid/Atmosfaariaerosoolide-fyysika-ja-seire.pdf](http://meteo.physic.ut.ee/kkfi/index_files/oppetoo/tutvustavad-materjalid/Atmosfaariaerosoolide-fyysika-ja-seire.pdf). (Accessed: 16th May 2018)
10. Jacobson, M. Z. & Seinfeld, J. H. Evolution of nanoparticle size and mixing state near the point of emission. *Atmos. Environ.* 38, 1839–1850 (2004).
11. Tammet, H. & Kulmala, M. Simulation tool for atmospheric aerosol nucleation bursts. *Aerosol Sci.* 36, 173–196 (2005).
12. Tammet, H. & Kulmala, M. Simulating aerosol nucleation bursts in a coniferous forest. *Boreal Environ. Res.* 12, 421–430 (2007).
13. Hörrak, U. *Air Ion Mobility Spectrum at a Rural Area. Doktoritöö* (2001). Available at: <https://dspace.ut.ee/bitstream/handle/10062/50218/index.html?sequence=14&isAllowed=y>. (Accessed: 16th May 2018)
14. Hörrak, U., Iher, H., Komsaare, K., Tamm, E. & Tammet, H. *Tahkuse\_2004\_2014 dataset guide*. Available at: [https://datadoi.ut.ee/bitstream/handle/33/43/Tahkuse\\_data\\_2004\\_2014\\_guide.pdf?sequence=1&isAllowed=y](https://datadoi.ut.ee/bitstream/handle/33/43/Tahkuse_data_2004_2014_guide.pdf?sequence=1&isAllowed=y). (Accessed: 16th May 2018)
15. Tammet, H., Mirme, A. & Tamm, E. Electrical aerosol spectrometer of Tartu University. *Atmos. Res.* 62, 315–324 (2002).
16. Hörrak, U., Iher, H., Komsaare, K., Tamm, E. & Tammet, H. *Dataset of air ion and aerosol measurements. Tahkuse 2004-2014.* (2017). Available at: <https://datadoi.ut.ee/handle/33/43>. (Accessed: 16th May 2018)
17. Tammet, H. *A simple approximation for size-mobility relationship of singly charged spherically symmetric airborne particles Concept of the particle diameter.* (2012).

- Available at: [http://ael.physic.ut.ee/tammet/software/a\\_tools/Size-mobility-approx.pdf](http://ael.physic.ut.ee/tammet/software/a_tools/Size-mobility-approx.pdf).  
(Accessed: 16th May 2018)
18. Luts, A., Hörrak, U., Salm, J., Vana, M. & Tammet, H. A Method for Automated Estimation of Parameters Controlling Aerosol New Particle Formation. *Aerosol Air Qual. Res.* 15, 1166–1177 (2015).
  19. Luts, A., Hörrak, U., Salm, J., Vana, M. & Tammet, H. Interpretation of Atmospheric Aerosol Measurements by Means of a Numerical Simulator of New Particle Formation Events. *Aerosol Air Qual. Res.* 16, 930–942 (2016).
  20. Komsaare, K. et al. Classification of intermediate air ion formation events at Tahkuse observatory. 13th Int'l Conf Atmos. Electr. 1, Beijing, CAS 116–119 (2007).
  21. Yli-Juuti, T. et al. Characteristics of new particle formation events and cluster ions at Kpuszta, Hungary. *Boreal Env. Res* 14, 683–698 (2009).
  22. Dal Maso, M. et al. Formation and growth of fresh atmospheric aerosols: eight years of aerosol size distribution data from SMEAR II, Hyytiälä, Finland. *Boreal Env. Res* 10, 323–336 (2005).
  23. Hirsikko, A. et al. Identification and classification of the formation of intermediate ions measured in boreal forest. *Atmos. Chem. Phys.* 7, 201–210 (2007).
  24. Kulmala, M. et al. Direct observations of Atmospheric Aerosol Nucleation. *Science* 399, 943 (2013).
  25. Hörrak, U., Salm, J. & Tammet, H. Statistical characterization of air ion mobility spectra at Tahkuse Observatory: Classification of air ions. Available at: <https://dspace.ut.ee/bitstream/handle/10062/50240/TahkuseStatistics.htm?sequence=16&isAllowed=y>. (Accessed: 24th May 2018)

## **Lihtlitsents lõputöö reprodutseerimiseks ja lõputöö üldsusele kättesaadavaks tegemiseks**

Mina, Allan Ahu,

1. annan Tartu Ülikoolile tasuta loa (lihtlitsentsi) enda loodud teose **AEROSOO LI TEKKE MUDELARVUTUSED.** mille juhendajad on Aare Luts ja Jaan Salm,
  - 1.1.reprodutseerimiseks säilitamise ja üldsusele kättesaadavaks tegemise eesmärgil, sealhulgas digitaalarhiivi DSpace-is lisamise eesmärgil kuni autoriõiguse kehtivuse tähtaja lõppemiseni;
  - 1.2.üldsusele kättesaadavaks tegemiseks Tartu Ülikooli veebikeskkonna kaudu, sealhulgas digitaalarhiivi DSpace'i kaudu kuni autoriõiguse kehtivuse tähtaja lõppemiseni.
2. olen teadlik, et punktis 1 nimetatud õigused jäävad alles ka autorile.
3. kinnitan, et lihtlitsentsi andmisega ei rikuta teiste isikute intellektuaalomandi ega isikuandmete kaitse seadusest tulenevaid õigusi.

Tartus, **22.05.2018**

# Lisad

## Lisa 1

#	Short name	Excel	Brief explanation (complements follow in the next section)
1	year	A	The years are 2004 ... 2014
2	month	B	The months are numbered 1 ... 12
3	day	C	The days in a month are numbered from 1 to 28, 29, 30, or 31
4	hour	D	The hours in a day are numbered 0 ... 23
5	weekday	E	The days in a week are numbered 1 (Monday) ... 7 (Sunday)
6	p:mb	F	Atmospheric pressure at a height of 30 m a.s.l.
7	T:C	G	Temperature of outdoor air near the inlet of spectrometers
8	RH%	H	Relative humidity of air at a height of 2 m in distance of 10 m
9	v:m/s	I	Average wind speed at a height of 12 m over the flat ground
10	vmax:m/s	J	Speed of wind bursts, average of six 10-minute maxima in a hour
11	v:deg	K	Wind direction at a height of 12 m over the flat ground 0 ... 360
12	Tbox:C	L	Temperature inside the container of air ion spectrometers
13	Tattic:C	M	Temperature of the attic near the instrument container
14	Tchimney:C	N	Temperature inside the chimney used to detect the burning of wood
15	rad:W/m2	O	Sun radiation intensity measured with a pyranometer
16	NO2:ug/m3	P	Concentration of NO <sub>2</sub> µg/m <sup>3</sup>
17	flow:lpn	Q	Air flow in NO <sub>2</sub> -meter. Value < 0.07 lpm indicates the malfunction of the instrument
18	Rn:Bq/m3	R	Concentration of radon activity measured with AlphaGUARD
19	Rn-s:Bq/m3	S	Estimate of instrumental noise in radon activity measurement
20	d@4.2	T	Aerosol particle size distribution $dN/d(lgd)$ at $d = 4.2$ nm, cm <sup>-3</sup>
21	d@7.5	U	Aerosol particle size distribution $dN/d(lgd)$ at $d = 7.5$ nm, cm <sup>-3</sup>
22	d@13	V	Aerosol particle size distribution $dN/d(lgd)$ at $d = 13$ nm, cm <sup>-3</sup>
23	d@24	W	Aerosol particle size distribution $dN/d(lgd)$ at $d = 24$ nm, cm <sup>-3</sup>
24	d@42	X	Aerosol particle size distribution $dN/d(lgd)$ at $d = 42$ nm, cm <sup>-3</sup>
25	d@75	Y	Aerosol particle size distribution $dN/d(lgd)$ at $d = 75$ nm, cm <sup>-3</sup>
26	d@133	Z	Aerosol particle size distribution $dN/d(lgd)$ at $d = 133$ nm, cm <sup>-3</sup>
27	d@237	AA	Aerosol particle size distribution $dN/d(lgd)$ at $d = 237$ nm, cm <sup>-3</sup>
28	d@422	AB	Aerosol particle size distribution $dN/d(lgd)$ at $d = 422$ nm, cm <sup>-3</sup>
29	d@750	AC	Aerosol particle size distribution $dN/d(lgd)$ at $d = 750$ nm, cm <sup>-3</sup>
30	d@1334	AD	Aerosol particle size distribution $dN/d(lgd)$ at $d = 1.33$ µm, cm <sup>-3</sup>
31	d@2371	AE	Aerosol particle size distribution $dN/d(lgd)$ at $d = 2.37$ µm, cm <sup>-3</sup>
32	d@4217	AF	Aerosol particle size distribution $dN/d(lgd)$ at $d = 4.22$ µm, cm <sup>-3</sup>
33	d@7500	AG	Aerosol particle size distribution $dN/d(lgd)$ at $d = 7.5$ µm, cm <sup>-3</sup>
34	d:defect	AH	EAS noise index. The measurements with defect > 5000 were replaced with -99
35	Z+2.77	AI	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 2.77$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>
36	Z+2.22	AJ	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 2.22$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>
37	Z+1.77	AK	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 1.77$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>
38	Z+1.41	AL	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 1.41$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>
39	Z+1.13	AM	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 1.13$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>
40	Z+0.88	AN	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 0.88$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>
41	Z+0.70	AO	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 0.70$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>
42	Z+0.56	AP	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 0.56$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>
43	Z+0.44	AQ	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 0.44$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup> **?
44	Z+0.35	AR	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 0.35$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup> **?
45	Z+0.28	AS	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 0.28$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup> **?
46	Z+0.213	AT	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 0.213$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>
47	Z+0.107	AU	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 0.107$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>
48	Z+0.051	AV	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 0.051$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>
49	Z+0.024	AW	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 0.024$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup> **?
50	Z+0.015	AX	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 0.015$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>
51	Z+0.0068	AY	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 0.0068$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>
52	Z+0.0031	AZ	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 0.0031$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>
53	Z+0.0014	BA	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 0.0014$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>
54	Z+0.0007	BB	Positive ion mobility distribution $dN/d(lgZ)$ at $Z = 0.0007$ cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> , cm <sup>-3</sup>

Lisa 1. Tahkuse andmestiku esimesed 54 mõõdetud parameetrit. [15]

## Lisa 2

#	Short name	Excel	Brief explanation (complements follow in the next section)
55	sum+0.3	BC	Apparent concentration in the integral condensor at $Z_0 = 0.3 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
56	Z-2.77	BD	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 2.77 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
57	Z-2.22	BE	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 2.22 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
58	Z-1.77	BF	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 1.77 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
59	Z-1.41	BG	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 1.41 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
60	Z-1.13	BH	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 1.13 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
61	Z-0.88	BI	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 0.88 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
62	Z-0.70	BJ	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 0.70 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
63	Z-0.56	BK	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 0.56 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
64	Z-0.44	BL	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 0.44 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$ *?*
65	Z-0.35	BM	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 0.35 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$ *?*
66	Z-0.28	BN	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 0.28 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$ *?*
67	Z-0.213	BO	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 0.213 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
68	Z-0.107	BP	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 0.107 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
69	Z-0.051	BQ	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 0.051 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
70	Z-0.024	BR	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 0.024 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$ *?*
71	Z-0.015	BS	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 0.015 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
72	Z-0.0068	BT	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 0.0068 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
73	Z-0.0031	BU	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 0.0031 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
74	Z-0.0014	BV	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 0.0014 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
75	Z-0.0007	BW	Negative ion mobility distribution $dN/d(\lg Z)$ at $Z = 0.0007 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
76	sum-0.3	BX	Apparent concentration in the integral condensor at $Z_0 = 0.3 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , $\text{cm}^{-3}$
77	Z1noise	BY	Air ion spectrometer noise index for $Z > 0.005 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$
78	Z2noise	BZ	Air ion spectrometer noise index for $Z < 0.005 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$
79	n+	CA	Concentration of positive small ions ( $Z > 0.5 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ), $\text{cm}^{-3}$
80	Z+	CB	Average mobility of positive small ions ( $Z > 0.5 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ )
81	fS/m+	CC	Conductivity of positive small ions ( $Z > 0.5 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ), fS/m
82	n-	CD	Concentration of negative small ions ( $Z > 0.5 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ), $\text{cm}^{-3}$
83	Z-	CE	Average mobility of negative small ions ( $Z > 0.5 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ )
84	fS/m-	CF	Conductivity of negative small ions ( $Z > 0.5 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ), fS/m
85	n&	CG	Concentration of all small ions ( $Z > 0.5 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ), $\text{cm}^{-3}$
86	Z&	CH	Average mobility of all small ions ( $Z > 0.5 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ )
87	fS/m&	CI	Conductivity of all small ions ( $Z > 0.5 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ), fS/m
88	q-eas	CJ	Quality index of EAS measurements
89	q-ion1	CK	Quality index of ion measurements at $Z > 0.005 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$
90	q-ion2	CL	Quality index of ion measurements at $Z < 0.005 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$
91	q-eas-st	CM	Stability of 10–300 nm aerosol particles during the preceding hour
92	q-ion-st	CN	Stability of 0.005–0.15 $\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ions during the preceding hour
93	q-ion-sym	CO	Polar symmetry of 0.005–0.15 $\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ions during the preceding hour
94	q-low	CP	Lowest value in the set of 6 above listed indices
95	a	CQ	Parameter of aerosol particle size distribution two-power-model
96	b	CR	Parameter of aerosol particle size distribution two-power-model
97	p	CS	Parameter of aerosol particle size distribution two-power-model
98	d0	CT	Parameter of aerosol particle size distribution two-power-model
99	dev%	CU	Deviation of aerosol measurements from the two-power-model
100	c+	CV	Parameter of positive ion mobility distribution two-power-model
101	g+	CW	Parameter of positive ion mobility distribution two-power-model
102	k+	CX	Parameter of positive ion mobility distribution two-power-model
103	Z0+	CY	Parameter of positive ion mobility distribution two-power-model
104	dev+%	CZ	Deviation of positive ion measurements from the two-power-model
105	c-	DA	Parameter of negative ion mobility distribution two-power-model
106	g-	DB	Parameter of negative ion mobility distribution two-power-model
107	k-	DC	Parameter of negative ion mobility distribution two-power-model
108	Z0-	DD	Parameter of negative ion mobility distribution two-power-model
109	dev-%	DE	Deviation of negative ion measurements from the two-power-model
110	c&	DF	Parameter of summary ion mobility distribution two-power-model
111	g&	DG	Parameter of summary ion mobility distribution two-power-model
112	k&	DH	Parameter of summary ion mobility distribution two-power-model
113	Z0&	DI	Parameter of summary ion mobility distribution two-power-model
114	dev&%	DJ	Deviation of summary ion measurements from the two-power-model

Lisa 2. Tahkuse andmestiku parameetrid 55 – 114. [15]

## Lisa 3

===== BURSTCONTROL\_DEMO.TXT for BURSTSIMULATOR version HT20060912  
=====

= The lines beginning with a symbol "=" in the first position and all lines  
= after The END are The comment lines. The lines beginning with a different  
= symbol are The control lines. a control line consists of a control value  
= followed by a space and a comment. a dual control value consists of The  
= free-air value, slash, and the forest value. The number and the identifier  
= of The control variable are shown at The END of a control line.  
= The control values can be modified by The user of The simulator.  
=== NB: Do not add or delete any control lines in this file! ===  
=== Symbol # indicates that the value must be a whole number.  
=== Symbol \* allows to present slash-separated dual values e.g. 4.5/6.7  
=== where the first is valid in the free air and the second in the forest.  
= Full instruction is available as a separate document.

=====

1400 #min : Time period under consideration (<= 1440), 1  
40 #: Number of evolution steps in a minute (recommended 20...60), 2:nst  
2 : Acceleration coefficient dd/dd\_min, normal value is 1, 3:acc  
0 Celsius: Air temperature, 4:t  
1019 millibar: Air pressure, 5:p  
=== IONIZATION PARAMETERS ===  
4/5 \*cm-3 s-1: Initial ionization rate, 6:I0  
4.5/5 \*cm-3 s-1: Halftime ionization rate, 7:I1  
5/5 \*cm-3 s-1: Final ionization rate, 8:I2  
1.36 cm<sup>2</sup> V-1 s-1: Electric mobility of positive cluster ions, 9:Z+  
1.56 cm<sup>2</sup> V-1 s-1: Electric mobility of negative cluster ions, 10:Z-  
.0000016 cm<sup>3</sup> s-1: Cluster ion mutual recombination coefficient, 11:rec  
2.08 g cm-3: Density of ions (standard value is 2.08), 12:idn  
=== NUCLEATION PARAMETERS ===  
1.5 nm: Birth size of particles, 13:d0  
0 \*cm-3 s-1: Maximum nucleation rate for positive ion nucleation, 14:J+  
.5/1 \*cm-3 s-1: Maximum nucleation rate for negative ion nucleation, 15:J-  
3/8 \*cm-3 s-1: Maximum nucleation rate for neutral nucleation, 16:J0  
10 min: Rise time of the nucleation activity, 17:rt  
2 #: Shape code of rise: 1=linear, 2=sinus, 3=square\_of\_sinus, 18:shr  
10 min: Time of steady nucleation activity, 19:st  
25 min: Time of dropping nucleation activity, 20:dt  
3 #: Shape of dropping: 1=linear, 2=sinus, 3=square\_of\_sinus, 21:shd  
=== PARAMETERS OF THE FIRST CONDENSING SUBSTANCE ===  
2 g cm-3: Density of growth units, 22:u1r  
.115 nm: Extra distance of the Van der Waals capture, 23:h  
.55 nm: Diameter of a growth unit, 24:u1d  
149 Å<sup>3</sup> : Polarizability, 25:poll  
1 : Nadykto-Yu dipole enhancement factor for d = 1 nm, 26:Yu1  
1 : Nadykto-Yu dipole enhancement coefficient for d = 2 nm, 27:Yu2  
2 \*nm/h: Initial plain Knudsen growth rate of neutral particles, 28:G10  
2 \*nm/h: Halftime plain Knudsen growth rate of neutral particles, 29:G11  
1 \*nm/h: Final plain Knudsen growth rate of neutral particles, 30:G12

2.5 nm: Critical size of quantum rebound, 31:dq0  
600 K: Extra temperature of quantum rebound, 32:Tq0  
=== PARAMETERS OF THE SECOND CONDENSING SUBSTANCE ===  
.8 nm: Diameter of a growth unit, 33:u2d  
 $32 \text{ \AA}^3$ : Polarizability, 34:pol2  
 $3/5 \text{ *nm/h}$ : Initial plain Knudsen growth rate of neutral particles, 35:G20  
 $4/7 \text{ *nm/h}$ : Halftime plain Knudsen growth rate of neutral particles, 36:G21  
 $4/6 \text{ *nm/h}$ : Final plain Knudsen growth rate of neutral particles, 37:G22  
3 nm: Critical diameter when the condensation starts, 38:nKd  
2 : Power of nano-Koehler approximation, 39:nKp  
=== PARAMETERS OF THE PRE-EXISTING BACKGROUND AEROSOL ===  
60 nm: Initial average diameter of background aerosol particles, 40:bd0  
40 nm: Halftime average diameter of background aerosol particles, 39:bd1  
20 nm: Final average diameter of background aerosol particles, 42:bd2  
1500 cm<sup>-3</sup>: Initial concentration of background aerosol particles, 43:bn0  
2000 cm<sup>-3</sup>: Halftime concentration of background aerosol particles, 44:bn1  
3000 cm<sup>-3</sup>: Final concentration of background aerosol particles, 45:bn2  
=== PARAMETERS OF THE CONIFER FOREST ===  
180 m: Air residence distance (time \* wind) in forest, 46:rd  
1 m s<sup>-1</sup>: Initial wind in the forest, 47:w0  
1 m s<sup>-1</sup>: Halftime wind in the forest, 48:w1  
1 m s<sup>-1</sup>: Final wind in the forest, 49:w2  
.9 mm: Conifer needle diameter, 50:dn  
150 m<sup>-2</sup>: Conifer needle length in a unit volume m/m<sup>3</sup>, 51:L  
=== PRESENTATION CONTROL ===  
1 #: Particle distribution argument is 1) diameter or 2) mobility, 52:d/Z  
0.4 nm or cm<sup>2</sup> V<sup>-1</sup> s<sup>-1</sup>: Low end of the particle presentation range, 53:dmm  
40 nm or cm<sup>2</sup> V<sup>-1</sup> s<sup>-1</sup>: High end of the particle presentation range, 54:dmx  
28 #: Number of size fractions in distribution tables ( $\leq 99$ ), 55:nfr  
2 #: Scale of size or mobility 1) linear 2) logarithmic, 56:scl  
3 #: Distr. 1) fraction concentrations 2) dN/dd 3) dN/d(log(d)), 57:dst  
5 #min: Duration of a time interval in the output table, 58  
1 #min: Unit of time in the output table, 59:unit  
0 #: Delimiter in the signature file 0) gap 1) tab 2) comma, 60  
ht\_burst : The name for the output files. NB: without extension, no gaps! 61  
=== RANKS OF VARIABLES AND SUBTABLES (RANK 0 = SKIP VARIABLE) ===  
1 #: Free air positive nucleation rate, 62:J+a  
1 #: Free air negative nucleation rate, 63:J-a  
1 #: Free air neutral nucleation rate, 64:Joa  
0 #: Forest positive nucleation rate, 65:J+f  
0 #: Forest negative nucleation rate, 66:J-f  
0 #: Forest neutral nucleation rate, 67:Jof  
1 #: Concentration of positive ions, 68:n+  
1 #: Concentration of negative ions, 69:n-  
1 #: Average diameter of positive particles, 70:d+  
2 #: Concentration of positive particles, 71:N+  
1 #: Average diameter of negative particles, 72:d-  
2 #: Concentration of negative particles, 73:N-  
1 #: Average diameter of neutral particles, 74:do  
1 #: Concentration of neutral particles, 75:No

0 #: Polarity balance index of charged particles, 76:balance5  
 0 #: Average diameter of positive particles between dmn&dmx, 77:d<+  
 0 #: Concentration of positive particles between dmn&dmx, 78:N<+  
 0 #: Average diameter of negative particles between dmn&dmx, 79:d<-  
 0 #: Concentration of negative particles between dmn&dmx, 80:N<-  
 0 #: Average diameter of neutral particles between dmn&dmx, 81:d<o  
 0 #: Concentration of neutral particles between dmn&dmx, 82:N<o  
 0 #: Polarity balance index between dmn&dmx, 83:balance<  
 0 #: Charge of background aerosol particles multiplied by 100, 84:100q  
 0 #: Charge concentration of background aerosol, 85:Nq  
 0 #: Effective diameter concentration of background aerosol, 86:Nd  
 0 #: Distribution subtable of positive particles, 87:p  
 0 #: Distribution subtable of negative particles, 88:n  
 0 #: Distribution subtable of neutral particles, 89:z  
 === SCALE DENOMINATORS FOR DIAGRAMS ===  
 100 #: Concentration of ions cm-3, 90  
 5 #: Concentration of charged nanoparticles cm-3, 91  
 500 #: Concentration of neutral nanoparticles cm-3, 92  
 -10 #: Concentration of background aerosol charge m-3, 93  
 100 #: Effective diameter concentration of background aerosol m-2, 94  
 === Table composition ===  
 1. : Concentration of ions cm-3, 95  
 1. : Concentration of ions cm-3, 96  
 1 #: Concentration of ions cm-3, 97  
 0 #: Concentration of ions cm-3, 98  
 === REPLACEMENT FOR INDETERMINED VALUES ===  
 ? : Symbol(s) of indeterminacy (- = gap, # = presumable limit), 99  
 === THE END ===  
 COMMENTS:  
 1. The columns of the output table are delivered in the order of ranks  
 and when of equal rank, then in the order of control lines.  
 The columns of zero rank are skipped in the output table.  
 2. Scale denominators are applied to the integral concentrations only,  
 the distributions are delivered in cm-3 or cm-3 nm-1 independent  
 of denominator values.

Lisa 3. TK simulatsioonitarkvara kontrollfaili näide.

# Lisa 4

20

Write burst dates

Automated scrolling to next burst

step 4

step 24

ScrollBar1\_Change

ScrollBar1\_Change

x:30000 slider

x:0-3

year/month/day/hou	d@	z+	z-	d backg	pmb	Tc	dddefe	q-eas	q-ont1	q-ont2	q@4.2	q@7.5	q@13
2008/4/9/2	1066	242	264	310.5831	987.3	3.7	54	731	451	613	200	170	696
2008/4/9/4	1302	156	56	394.977	988.8	2.7	17	955	702	753	294	262	746
2008/4/9/9	2170	185	66	267.3191	993.5	2.7	30	876	753	562	394	645	1131
2008/4/9/10	2326	168	90	275.74	994.4	3.5	110	505	891	748	461	773	1092
2008/4/9/11	1928	175	96	273.5676	995.1	3.6	87	583	559	696	509	680	739
2008/4/9/12	2015	189	117	282.1275	996.2	3.1	22	925	452	813	480	650	905
2008/4/9/13	9273	527	800	291.2349	996.9	4	56	719	503	551	1580	3283	4430
2008/4/9/15	6948	286	259	290.208	998.6	4.1	36	836	754	717	1032	2804	3312
2008/4/9/16	1337	177	101	288.6088	999.2	4.2	31	870	579	631	305	373	659
2008/4/9/17	1459	180	99	278.3308	999.6	4.2	57	714	639	809	392	440	627
2008/4/9/18	1191	149	65	285.9112	999.8	4.1	70	654	823	804	305	374	512
2008/4/9/19	1468	146	73	286.5692	1000.2	3.9	90	571	894	895	355	459	614
2008/4/9/20	1966	155	96	283.1182	1000.6	3.8	101	531	863	936	327	656	983
2008/4/9/21	1401	132	95	274.4736	1000.8	4	101	532	952	872	346	409	646
2008/4/9/22	1198	135	69	277.332	1001.1	4	97	545	787	890	303	321	574
2008/4/10/1	1432	242	321	286.6739	1001.1	1.4	26	898	662	666	366	201	885

MACRO CONTROLS

Write in column: 3

Search for peak values above: 9000

Scroll to date: 2013/12/2/17

Scroll to date: 2014/3/15/22

2014/3/16/0

2014/3/22/2

2014/3/30/23

2014/4/3/23

2014/4/6/19

Lisa 4. Ülevaatluk ekraanitõmmis varasest otsingutarkvara versioonist.

## Lisa 5

Function checkifbanana(maxicounter As Integer)

```
Dim negorpos As Integer 'checking for negative or positive bananas? NEW VAR
If Cells(3, 14).Value = 1 Then
    negorpos = 19 'starting col number for Z+ fraction
End If
If Cells(3, 14).Value = -1 Then
    negorpos = 29 'starting col number for Z- fraction
End If

Dim maximums(1 To 10) As Integer
Dim maximumsdates(1 To 10) As String

Dim z As Integer
Dim dailyconcentrations(1 To 24) As Integer
Dim dailyconcentrationstimes(1 To 24) As String
Dim h As Integer

' kvaliteedi piirväärtused
Dim vajalik_kvaliteet As Integer ' banaani etteantud min kvaliteet
Dim piir_d_defect, piir_q_eas, piir_q_ion1, piir_q_ion2 As Integer
piir_d_defect = Cells(5, 8).Value
piir_q_eas = Cells(5, 9).Value
piir_q_ion1 = Cells(5, 10).Value
piir_q_ion2 = Cells(5, 11).Value
vajalik_kvaliteet = Cells(2, 14).Value

For z = 0 To 9
    For h = 1 To 24
        If Cells(h + 7, 8).Value < piir_d_defect And Cells(h + 7, 9).Value > piir_q_eas And
Cells(h + 7, 10).Value > piir_q_ion1 And Cells(h + 7, 11).Value > piir_q_ion2 Then
            dailyconcentrations(h) = Cells(h + 7, negorpos + z).Value
        Else
            dailyconcentrations(h) = 0
        End If
        dailyconcentrationstimes(h) = Cells(h + 7, 1).Value
        maximumsdates(1 + z) =
dailyconcentrationstimes(Application.Match(WorksheetFunction.Max(dailyconcentrations),
dailyconcentrations, False))
    Next h
Next z

Cells(34, 14).Value = maximumsdates(1)
Cells(35, 14).Value = maximumsdates(2)
Cells(36, 14).Value = maximumsdates(3)
Cells(37, 14).Value = maximumsdates(4)
Cells(38, 14).Value = maximumsdates(5)
Cells(39, 14).Value = maximumsdates(6)
```

```

Cells(40, 14).Value = maximumsdates(7)
Cells(41, 14).Value = maximumsdates(8)
Cells(42, 14).Value = maximumsdates(9)
Cells(43, 14).Value = maximumsdates(10)

```

```

Dim maximumsdates2(1 To 10) As String

```

```

'Here i just take the absolute maximums of the whole day

```

```

'splitting hour information from dates

```

```

Dim maximumshours(1 To 10) As Double

```

```

For z = 0 To 9

```

```

    maximumshours(1 + z) = CDbI(Split(maximumsdates(1 + z), "/")(3)) + 100 *
    CDbI(Split(maximumsdates(1 + z), "/")(2)) + 10000 * CDbI(Split(maximumsdates(1 + z),
"/")(1)) + 100000000 * CDbI(Split(maximumsdates(1 + z), "/")(0))

```

```

    Next z

```

```

'this variable will be used in determining if the burst is a banana or not max 9

```

```

Dim bananaquality As Integer

```

```

bananaquality = 0

```

```

Dim currentmaxdate As Double

```

```

currentmaxdate = 0

```

```

For z = 0 To 8

```

```

    If currentmaxdate < maximumshours(1 + z) Then

```

```

        currentmaxdate = maximumshours(1 + z)

```

```

    End If

```

```

    If currentmaxdate < maximumshours(1 + 1 + z) Then

```

```

        bananaquality = bananaquality + 1

```

```

    End If

```

```

    Next z

```

```

If bananaquality >= vajalik_kvaliteet Then

```

```

    checkifbanana = 1

```

```

Else

```

```

    checkifbanana = 0

```

```

End If

```

```

Cells(33, 14).Value = bananaquality

```

```

End Function

```

```

Function findburstbeginning(counter As Integer, maxi As Integer)

```

```

    Do While Cells(counter, 2).Value > (maxi / 3) And counter > findborder1(7)

```

```

        counter = counter - findpreviousstep(counter)

```

```

    Loop

```

```

    Do While counter > findborder1(7) And percentchange(Cells(counter, 2).Value,
Cells(counter - findpreviousstep(counter), 2).Value) <= -0.1 And Cells(counter, 2).Value <=
(maxi / 3)

```

```

        counter = counter - findpreviousstep(counter)

```

```

        'reaching the basin of the burst

```

```

    Loop

```

```

    findburstbeginning = Cells(counter, 1).Value

```

End Function

Function findburstend(counter As Integer, maxi As Integer)

Dim scrollingstep As Integer

scrollingstep = Cells(1, 14).Value

Dim temporaryiterator As Double

temporaryiterator = Cells(3, 2).Value

Dim stepsum As Integer

stepsum = 0 'measurement variable, shows how far away we have moved from the initial burst peak in time, max 78

Do While stepsum < 78 And Not findnextstep2(counter) = 0

If counter + findnextstep2(counter) <= 18 Then

If Cells(counter, 2).Value > (maxi / 3) Then

counter = counter + findnextstep2(counter)

stepsum = stepsum + findnextstep2(counter)

End If

If percentchange(Cells(counter + findnextstep2(counter), 2).Value, Cells(counter, 2).Value) <= -0.1 And Cells(counter, 2).Value <= (maxi / 3) Then

counter = counter + findnextstep2(counter)

stepsum = stepsum + findnextstep2(counter)

'reaching the basin of the burst

End If

If percentchange(Cells(counter + findnextstep2(counter), 2).Value, Cells(counter, 2).Value) > -0.1 And Cells(counter, 2).Value <= (maxi / 3) Then

counter = counter + findnextstep2(counter)

stepsum = stepsum + findnextstep2(counter)

Exit Do

'reaching the basin of the burst

End If

End If

If counter + findnextstep2(counter) > 18 Then

counter = counter - 12 'shifting by half a day...

temporaryiterator = temporaryiterator + 12

Cells(3, 2).Value = temporaryiterator

counter = findborder1(counter)

stepsum = findborder1(counter) - counter

End If

Loop

Dim finalresult As String

finalresult = Cells(counter, 1).Value

'Cells(4, 2).Value = temporaryiterator

findburstend = finalresult

End Function

'positive if rising, negative if falling

Function percentchange(val1 As Double, val2 As Double)

Dim g As Double

g = (val2 / val1) - 1

percentchange = g

```

End Function
Function findborder1(counter As Integer)
    piir_d_defect = Cells(5, 8).Value
    piir_q_eas = Cells(5, 9).Value
    piir_q_ion1 = Cells(5, 10).Value
    piir_q_ion2 = Cells(5, 11).Value
    If Cells(counter, 8).Value < piir_d_defect And Cells(counter, 9).Value > piir_q_eas And
Cells(counter, 10).Value > piir_q_ion1 And Cells(counter, 11).Value > piir_q_ion2 Then
        findborder1 = counter
    Else
        findborder1 = counter + findnextstep(counter)
    End If
End Function

```

```

Function findpreviousstep(counter As Integer)

    Dim f As Integer
    Dim switch As Integer

    ' kvaliteedi piirväärtused
    Dim piir_d_defect, piir_q_eas, piir_q_ion1, piir_q_ion2 As Integer
    piir_d_defect = Cells(5, 8).Value
    piir_q_eas = Cells(5, 9).Value
    piir_q_ion1 = Cells(5, 10).Value
    piir_q_ion2 = Cells(5, 11).Value

    switch = 0 ' leiab, kas EELMISES 6 reas on mõni hea-kvaliteediline mõõtmistulemus,
tulemuseks selle rea number
    For f = 1 To 7
        If counter - f >= 7 And counter - f <= 30 Then
            If Cells(counter - f, 8).Value < piir_d_defect And Cells(counter - f, 9).Value >
piir_q_eas And Cells(counter - f, 10).Value > piir_q_ion1 And Cells(counter - f, 11).Value >
piir_q_ion2 Then
                switch = 1
                findpreviousstep = f
                Exit For
            End If
        End If
    Next f
    If switch = 0 Then
        findpreviousstep = 0
    End If
End Function

```

```

Function findnextstep(counter As Integer) '

    Dim f As Integer
    Dim switch As Integer

```

```

' kvaliteedi piirväärtused
Dim piir_d_defect, piir_q_eas, piir_q_ion1, piir_q_ion2 As Integer
piir_d_defect = Cells(5, 8).Value
piir_q_eas = Cells(5, 9).Value
piir_q_ion1 = Cells(5, 10).Value
piir_q_ion2 = Cells(5, 11).Value

switch = 0 ' leiab, kas järgmises 6 reas on mõni hea-kvaliteediline mõõtmistulemus,
tulemuseks selle rea number
For f = 1 To 7
    If counter + f >= 7 And counter + f <= 30 Then
        If Cells(counter + f, 8).Value < piir_d_defect And Cells(counter + f, 9).Value >
piir_q_eas And Cells(counter + f, 10).Value > piir_q_ion1 And Cells(counter + f, 11).Value >
piir_q_ion2 Then
            switch = 1
            findnextstep = f
            Exit For
        End If
    End If
Next f
If switch = 0 Then
    findnextstep = 0
End If

```

End Function

Function findnextstep2(counter As Integer) ' modified version for finding burst end

```

Dim f As Integer
Dim switch As Integer
' kvaliteedi piirväärtused
Dim piir_d_defect, piir_q_eas, piir_q_ion1, piir_q_ion2 As Integer
piir_d_defect = Cells(5, 8).Value
piir_q_eas = Cells(5, 9).Value
piir_q_ion1 = Cells(5, 10).Value
piir_q_ion2 = Cells(5, 11).Value

switch = 0 ' leiab, kas järgmises 6 reas on mõni hea-kvaliteediline mõõtmistulemus,
tulemuseks selle rea number
For f = 1 To 24
    If counter + f >= 7 And counter + f <= 30 Then
        If Cells(counter + f, 8).Value < piir_d_defect And Cells(counter + f, 9).Value >
piir_q_eas And Cells(counter + f, 10).Value > piir_q_ion1 And Cells(counter + f, 11).Value >
piir_q_ion2 Then
            switch = 1
            findnextstep2 = f
            Exit For
        End If
    End If
Next f
If switch = 0 Then

```

```

        findnextstep2 = 0
    End If
End Function

```

```

Sub Banaanimacro()
'
' Banaanimacro Macro
'
Dim i As Integer
Dim maxi As Integer
Dim b As Integer
Dim counter As Integer
Dim foundburst As Integer
Dim quality As Integer
Dim burstfilter As Integer
Dim datarange As Long
Dim rangecounter As Long
Dim maxidate As String
Dim burstcounter As Integer
Dim writingcolumn As Integer
Dim maxicounter As Integer
Dim piir_d_defect, piir_q_eas, piir_q_ion1, piir_q_ion2 As Integer

' dsum value
i = Cells(7, 2).Value
' kvaliteedi piirväärtused
piir_d_defect = Cells(5, 8).Value
piir_q_eas = Cells(5, 9).Value
piir_q_ion1 = Cells(5, 10).Value
piir_q_ion2 = Cells(5, 11).Value
'Beginning row of our dynamic data list (24h)
counter = 7
'shows how many data points meet the requirements per day
quality = 0
'maximum dsum value and dsum value condition
maxi = 0
burstfilter = Cells(51, 13).Value
'data range and counter
datarange = 30100
rangecounter = Cells(3, 2).Value
'number of bursts found
burstcounter = 0
writingcolumn = Cells(49, 14).Value

'counter variable for max dsum
scrollingstep = Cells(1, 14).Value
Do While rangecounter <= datarange
    Do While counter < 31

```

```

    If Cells(counter, 8).Value < piir_d_defect And Cells(counter, 9).Value > piir_q_eas And
Cells(counter, 10).Value > piir_q_ion1 And Cells(counter, 11).Value > piir_q_ion2 Then
        i = Cells(counter, 2).Value ' selle rea väljade d4.2 kuni d13 summa väärtus
        quality = quality + 1
        If i > maxi Then
            maxi = i
            maxidate = Cells(counter, 1).Value
            maxicounter = counter
        End If
        If maxi > burstfilter And quality >= 18 Then
            foundburst = 1
        End If
    Else ' selle rea kvaliteet halb, ei lähe arvesse
        i = 0 ' pole vaja midagi teha, sest i-st ei sõltu nüüd miski
    End If
    counter = counter + 1
Loop

If foundburst = 1 Then
    If checkifbanana(maxicounter) = 1 Then
        If Not Cells(33 + burstcounter - 1, writingcolumn).Value = maxidate Then
            burstcounter = burstcounter + 1
            Cells(32 + burstcounter, writingcolumn).Value = maxidate
            Cells(32 + burstcounter, writingcolumn - 1).Value =
findburstbeginning(maxicounter, maxi)
            Cells(32 + burstcounter, writingcolumn + 1).Value = findburstend(maxicounter,
maxi) ' has to be last in the row!
        End If
    End If
End If

maxi = 0
quality = 0
b = Cells(3, 2).Value
counter = 7
Cells(32, writingcolumn + 1).Value = burstcounter
foundburst = 0
Cells(3, 2).Value = b + scrollingstep
rangecounter = rangecounter + scrollingstep
Loop
'
End Sub

```

Lisa 5. Banaanpuhangu otsingumakro ja selle alamfunktsioonid.

## Lisa 6

```

Sub Macro3()
'
' Macro3 Macro

```

```

Dim i As Integer
Dim maxi As Integer
Dim b As Integer
Dim counter As Integer
Dim foundburst As Integer
Dim quality As Integer
Dim burstfilter As Integer
Dim datarange As Long
Dim rangecounter As Long
Dim maxidate As String
Dim burstcounter As Integer
Dim writingrow As Integer

```

```

i = Cells(7, 2).Value
counter = 7
quality = 0
maxi = 0
burstfilter = Cells(51, 13).Value
datarange = 30000
rangecounter = Cells(3, 2).Value
burstcounter = 0
writingrow = Cells(49, 14).Value

```

```

Do While rangecounter <= datarange
  Do While counter < 31
    If Cells(counter, 8).Value < 150 And Cells(counter, 9).Value > 450 And Cells(counter,
10).Value > 450 And Cells(counter, 11).Value > 450 Then
      i = Cells(counter, 2).Value
      quality = quality + 1
      If i > maxi Then
        maxi = i
        maxidate = Cells(counter, 1).Value
      End If
      If maxi > burstfilter And quality >= 18 Then
        foundburst = 1
      End If
    Else
      i = 0
    End If
    counter = counter + 1
  Loop
  maxi = 0
  quality = 0
  counter = 7
  b = Cells(3, 2).Value
  If foundburst = 1 Then
    burstcounter = burstcounter + 1
    Cells(32 + burstcounter, writingrow).Value = maxidate
  End If

```

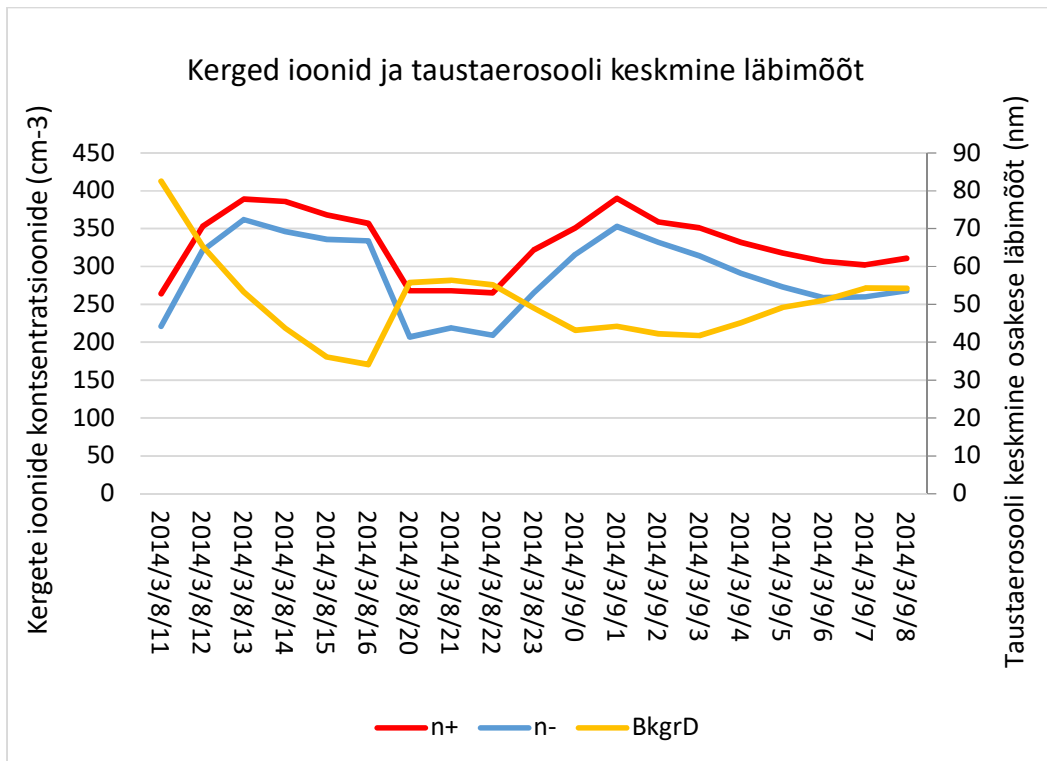
```

End If
Cells(32, writingrow + 1).Value = burstcounter
foundburst = 0
Cells(3, 2).Value = b + 24
rangecounter = rangecounter + 24
Loop
'
End Sub

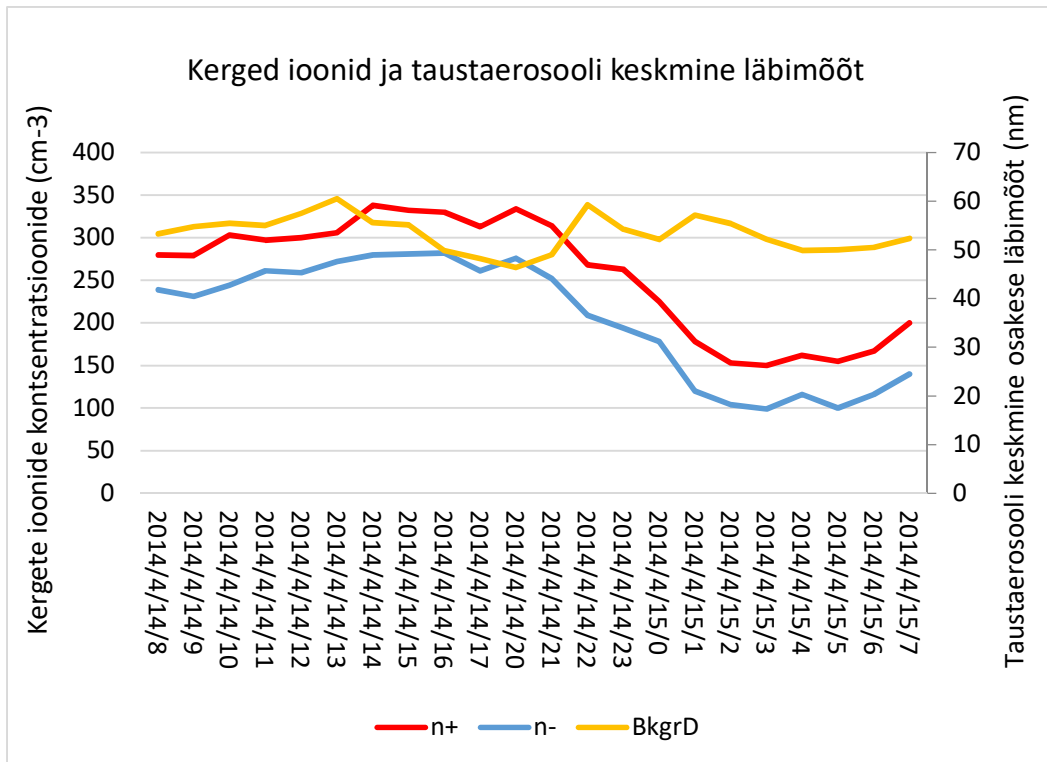
```

Lisa 6. Tavaline puhangu otsingumakro.

## Lisa 7



Lisa 7.1. Kerged ioonide ja taustaerosooli keskmine läbimõõt 2014/03/09 puhangul.



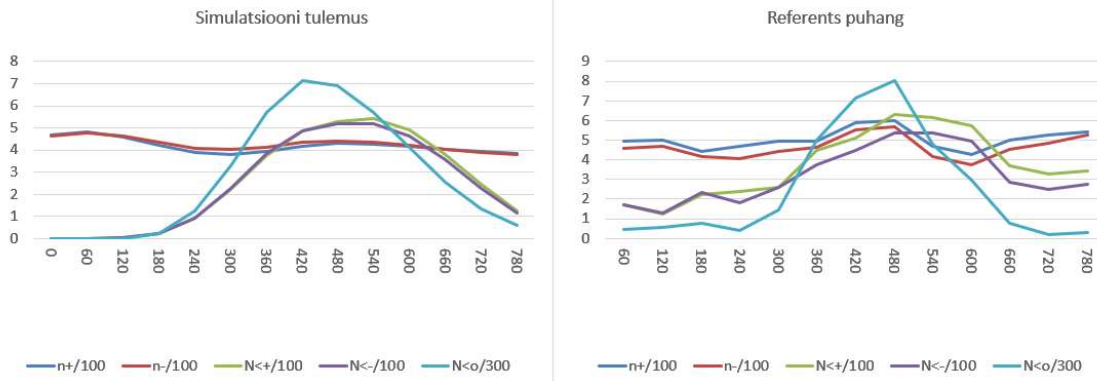
Lisa 7.2. Kerge ionide ja taustaerosooli keskmine läbimõõt 2014/04/15 puhangul.

## Lisa 8

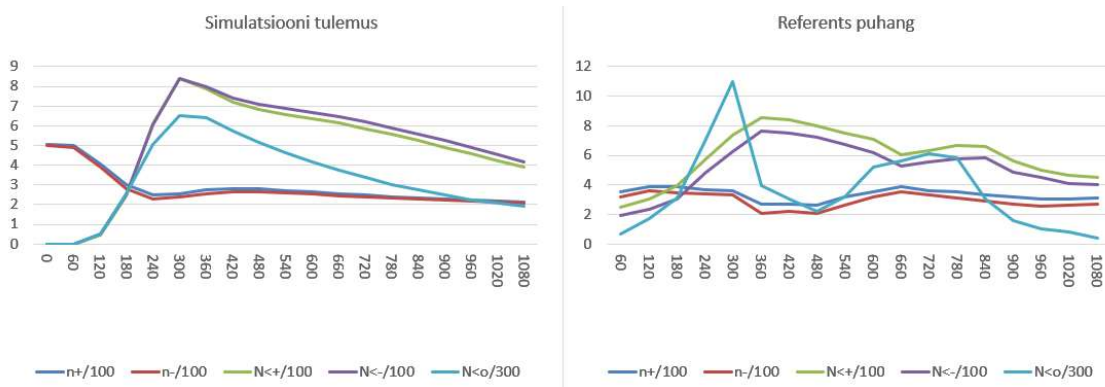
Lisa 8.1. Optimeerimisprotsessi tulemused fikseeritud liikuvuste puhul.

Parameter name	2008/10/18	2014/3/8	2014/4/14
Time period (min)	780	1080	660
Initial ion. rate in free air (cm <sup>-3</sup> /s)	1	1.3	0.7
Midpoint ionization rate, in free air	3.8	5.3	3.7
Final ion. rate in free air	11.4	8.6	3
Max nucl. rate for + ions, free air (cm <sup>-3</sup> /s)	1.7	1.7	1.7
Max nucleation rate for – ions, free air	1.5	1.8	1.5
Max nucl. rate for neutral particles, free air	0.2	1.	1
Rise time of nucleation activity (min)	425	269	231
Time of steady nucleation activity (min)	38	2	38
Time of dropping nucleation activity (min)	442	1210	841
Initial Kn GR1, free air (nm/h)	0.2	0.9	1.4
Midpoint Kn GR1 in free air	1	1.5	1.5
Final Kn GR1, free air	2.2	1.7	2.2
Density of growth units (g/cm <sup>3</sup> )	1	1.7	1.6
Diameter of first growth unit (nm)	0.01	0.05	0.02
Initial Kn GR2 free air (nm/h)	6.5	0.7	4.5
Midpoint Kn GR2 free air	2.8	2.8	2.02
Final Kn GR2, free air	9.2	3.6	4.4
Diameter of second growth unit (nm)	5.8	6.3	5.1

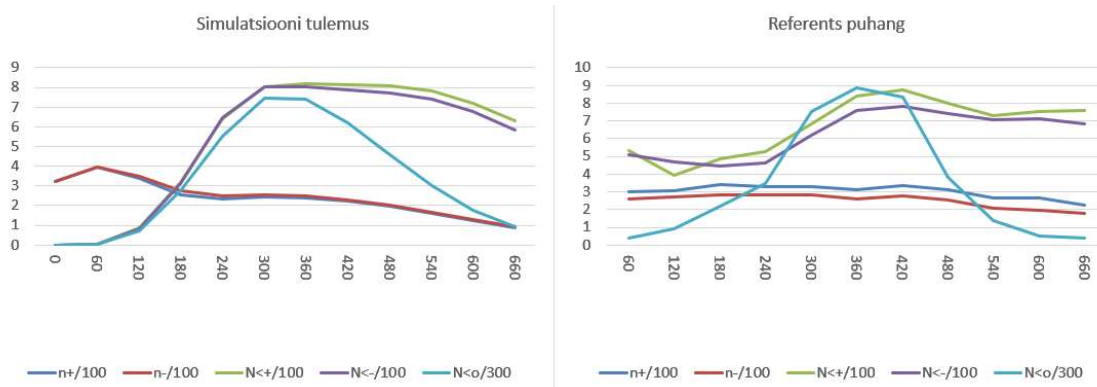
Second condensation start diameter (nm)	1.8	1.9	1.9
Birth size of particles (nm)	0.9	0.9	0.9
Mobility of + cluster ions (cm <sup>2</sup> /V/s)	1.37	1.37	1.37
Mobility of – cluster ions	1.39	1.39	1.39



Lisa 8.2. Optimeerimisprotsessi tulemus võrreldes mõõtmistega, kuupäeval 2008/10/18.



Lisa 8.3. Optimeerimisprotsessi tulemus võrreldes mõõtmistega, kuupäeval 2014/3/8.

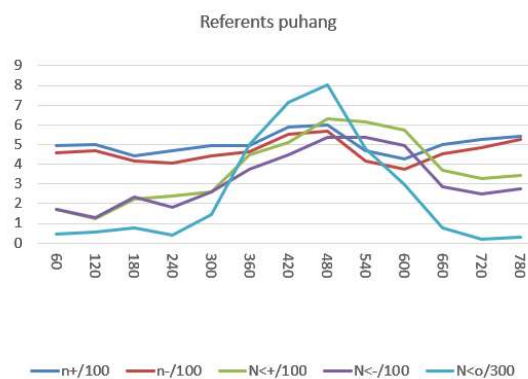
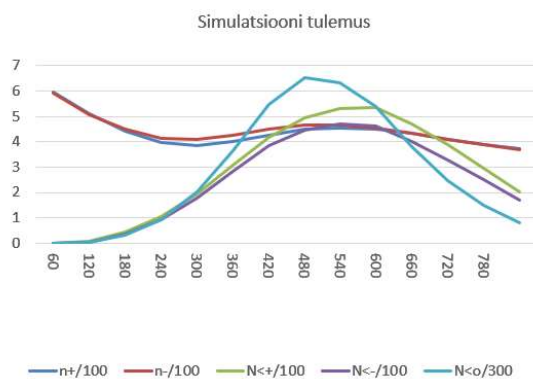


Lisa 8.4. Optimeerimisprotsessi tulemus võrreldes mõõtmistega, kuupäeval 2014/4/14.

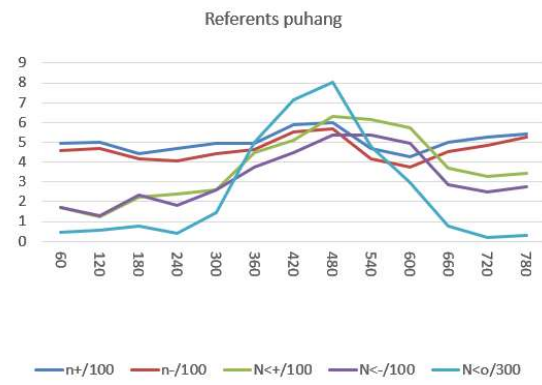
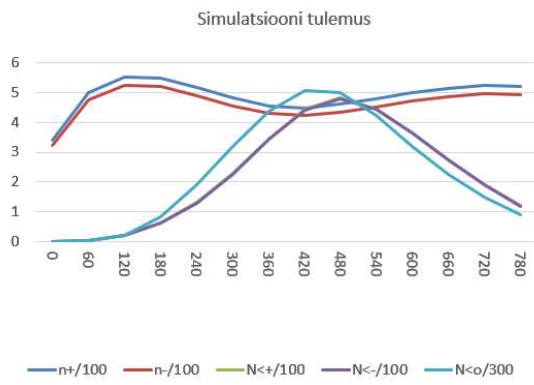
## Lisa 9

Lisa 9.1. Optimeerimisprotsessi tulemused fikseeritud kasvuosiste ning muudetud taustaerosooli kontsentratsioonide jaoks.

Parameter name	Growth unit size 0.2 nm	Changed BkgC
Time period (min)	780	780
Initial ion. rate in free air ( $\text{cm}^{-3}/\text{s}$ )	1.6	0.4
Midpoint ionization rate, in free air	3.2	4.1
Final ion. rate in free air	12.7	4.6
Max nucl. rate for + ions, free air ( $\text{cm}^{-3}/\text{s}$ )	0.8	2.1
Max nucleation rate for – ions, free air	0.7	2.1
Max nucl. rate for neutral particles, free air	0.01	1.8
Rise time of nucleation activity (min)	407	439
Time of steady nucleation activity (min)	85	6
Time of dropping nucleation activity (min)	426	540
Initial Kn GR1, free air (nm/h)	4.5	1.8
Midpoint Kn GR1 in free air	3.2	2.4
Final Kn GR1, free air	16.3	2.5
Density of growth units ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	1.3	1.1
Diameter of first growth unit (nm)	0.2	1.2
Initial Kn GR2 free air (nm/h)	7.4	3.7
Midpoint Kn GR2 free air	3.8	1.5
Final Kn GR2, free air	2.3	6.1
Diameter of second growth unit (nm)	2.7	2.9
Second condensation start diameter (nm)	1	1.4
Birth size of particles (nm)	0.9	0.9
Mobility of + cluster ions ( $\text{cm}^2/\text{V}/\text{s}$ )	1.37	0.6
Mobility of – cluster ions	1.39	0.6



Lisa 9.2. 2008 puhang fikseeritud kasvuosise suurusega 0.2 nm.



Lisa 9.3. 2008 puhang muudetud taustaerosooli kontsentratsioonidega: initial 3000, midpoint 7000, final 6000 cm<sup>-3</sup>.