

TARTU ÜLIKOOL
Loodus- ja täppisteaduste valdkond
Füüsika instituut

Raido Kiss

**Atmosfääri keemia-transpordi mudeli SILAM usaldusväärsuse
hindamine temperatuuri maapinnalähedase inversiooni tingimustes**

Bakalaureusetöö (6 EAP)

Füüsika, keemia ja materjaliteaduse õppekava

Füüsika eriala

Juhendaja:
Marko Kaasik, PhD

Tartu 2022

Atmosfääri keemia-transpordi mudeli SILAM usaldusväärsuse hindamine temperatuuri maapinnalähedase inversiooni tingimustes

Atmosfääri keemia-transpordi mudelitel on mitmeid kasutusalasid: õhu kvaliteedi hindamine, metsapõlengute suitsu, allergeense õietolmu, aga ka keemia- ja tuumaõnnetuste modelleerimine. Temperatuuri pinnainversiooni ajal on mudelitel raskusi saasteaine kontsentratsiooni täpse prognoosimisega. Selle töö eesmärgiks oli selgitada välja, kui hästi saab mudel SILAM pinnainversiooni olukorraga hakkama. Tulemusteks saadi, et SILAM diagnoosib inversiooniolukorra õigesti pooltel juhtudel, neil juhtudel ennustab ta peaaegu alati ka kontsentratsiooni vertikaalprofiilid õigesti. Inversiooni tugevust ja maapinnalähedasi kontsentratsioone SILAM alahindab, põhjused võivad vastavalt olla seotud mudeli pinnakihi parametriseringutega ja saaste vertikaalse hajumise alahindamisega. Piigid on mudelis ajaliselt lühemad, põhjus võib olla saaste horisontaalse hajumise alahindamine.

Märksõnad: atmosfääri keemia-transpordi mudel – temperatuuri pinnainversioon – mudeli valideerimine

CERCS: P500 (Geofüüsika, füüsikaline okeanograafia, meteoroloogia); P305 (keskkonnakeemia)

Performance evaluation of atmosphere chemical transport model

SILAM in conditions of near-ground thermal inversion

Atmospheric chemical-transport models are used many ways: assessment of air quality, modelling of spread of forest fire smoke, allergenic pollen, but also chemical or nuclear accidents. During a temperature inversion the models struggle to predict correct concentrations of the modelled pollutant. The aim of this study was to evaluate the performance of model SILAM during ground-based temperature inversions. Results show that in half of the cases SILAM diagnoses well the temperature inversion and in almost all of these cases, SILAM predicts the vertical profile of concentration correctly. SILAM underestimates inversion strength and near-ground concentrations. The reasons may be, respectively, related to the parametrization of the surface layer and the underestimation of vertical dispersion of the pollutant. The usual duration of peaks was in modelled concentrations shorter than measured. The reason may be underestimation of horizontal dispersion of pollutant.

Keywords: atmospheric chemistry-transport model – near-surface temperature inversion – model validation

CERCS: P500 (Geophysics, physical oceanography, meteorology); P305 (Environmental chemistry)

Sisukord

Sissejuhatus	4
1 Kirjanduse ülevaade.....	7
1.1 Inversiooni mõju õhu vertikaalsele liikumisele	7
1.2 Varasemad uuringud.....	8
1.3 Õhusaaste mõju tervisele	9
1.4 Uuritavad saasteained	9
1.5 Atmosfäärimudelite täpsus	11
2 Metoodika	13
2.1 Õhusaaste leviku mudel SILAM	13
2.2 Võrdlusmõõtmised.....	15
2.3 Toetav andmestik.....	16
2.4 Andmete eeltöötlus ja piikide sobivuse esmane kontroll	17
2.5 Modelleerimine: arvutused ajas tagasi	18
2.6 Saasteallikate andmed, ajaline dünaamika	19
2.7 Programm andmete töötlemiseks.....	21
2.8 Modelleerimine: arvutused ajas edasi.....	22
2.9 Arvutatu ja mõõdetu võrdlus	22
3 Tulemused.....	25
3.1 Eelanalüüs: HYSPLIT, SILAM.....	25
3.2 Tundlikkusuuring.....	26
3.3 Inversiooni ulatus	28
3.4 Arvutused ajas edasi	29
3.5 Arvutatu ja mõõdetu võrdlus	29
4 Arutelu	33
Kokkuvõte	35
Tänuavaldused.....	36
Kasutatud kirjandus.....	37
Lisad	40
Lisa 1	40
Lisa 2	40
Lisa 3	41

Sissejuhatus

Tüüpilise atmosfääri temperatuuriprofiili korral õhutemperatuur langeb kõrguse kasvades. Sel juhul on maapind soojem kui õhukiht selle kohal, kujunevad vaheldumisi tõusvad ja laskuvad õhuvoolud ning toimub õhukihi vertikaalne segunemine. Kui atmosfääri pinnakihis leiab aga aset temperatuuriinversioon, on asi teisiti. Maapinna lähedal on siis õhk ülemiste kihtidega võrreldes jahedam ning seetõttu ei segune õhk nii hästi – külm õhk ei tõuse üles, sest tema tihedus on suurem. Sagedaseim viis sellise olukorra tekkeks on, kui maapind jahtub kiirelt ja püsib sellisena. Siis on tegu kiirgusliku inversiooniga. Näiteks talvised selge taevaga ööd, eriti kõrgrõhkkonna ajal, kuid ka suveööd pärast kuuma suvepäeva on soodsad inversioonide tekkeks, sest maapind jahtub siis kiiremini kui õhk. (Ahrens, 2009; ‘temperature inversion’, 2020)

Keset talve võib pinnainversioon püsida päevi, sest nõrk päikesepaiste lumise (heleda) aluspinna kohal ei jõua lühikese päeva jooksul piisavalt soojendada. Suvel päevane päikesepaiste lõhub pinnainversiooni, aga see võib soodsate tingimuste püsimisel taas tekkida järgneval ööl. Inversiooni tekkimist soodustab veel nõrk tuul, mis ei jõua ülemisi ja alumisi õhukihte läbi segada. Inversioonikiht võib alata maapinnalt, kuid võib olla ka kõrgemal, tüüpiline kihi paksus ülainversiooni korral on sadades meetrites (Seinfeld & Pandis, 2016), kuid öine maapinnalähedane inversioon võib olla palju õhem.

Õhu vähene segunemine võib viia õhuseisaku episoodini (*stagnation episode*), eriti juhul kui inversioon püsib pikemat aega (Lyamani *et al.*, 2012). Inversiooni mõju õhusaastele võib olla kahesugune. Kui allikas on inversioonikihis, jääb saaste sinna lõksu, sest atmosfäär on kihistunud (Ahrens, 2009; Seinfeld & Pandis, 2016). See juht on sage talvel suurlinnades, kus saaste nii transpordist kui kütmisest jääb välisõhku püsima ning koguneb. Suuremate saasteaine kontsentratsioonidega võib aga kaasneda mõju inimtervisele, näiteks (Trinh *et al.*, 2019). Teisalt, kui saasteallikas on inversioonikihist kõrgemal, ei jõua saaste maapinnani, vaid jääb inversioonikihist kõrgemale, hästi segunenud kihti.

Saasteained ei pea olema ilmtingimata kohalikku päritolu. Atmosfääris võivad viimased levida algallikast kümnete, isegi sadade ja tuhandete kilomeetrite kaugusele, eriti kui satuvad kõrgematesse troposfääri kihtidesse. Sellisteks saasteaineteks on näiteks vääveldioksiid (SO_2) ja lämmastiku oksiidid (NO_x), mida uurin selles töös. Neile lisandgaasidele, mis pärinevad eelkõige kõrgetest punktsaasteallikatest, nagu elektrijaama- või tehasekorstnad, on

iseloomulikud lühiajalised, foonitasemest mitu korda kõrgemad kontsentratsioonitasemed ehk piigid (piigi näide vt Lisa 1). Sellised lisandgaasi kontsentratsiooni piigid on mõõdetavad saasteallikast kaugemal, seirejaamades. Suurimad inimtekkelised SO_2 ja NO_x punktsaasteallikad Eesti territooriumil on Kirde-Eesti elektrijaamad ning keemiatehased (Keskkonnaagentuur, 2017). Kuigi käimas on üldine heitmete vähendamine, on siiski veel võimalik foonitasemest kõrgemaid kontsentratsioone mõõta üle Eesti (Järvselja, Lahemaa, Tahkuse, Saarejärve seirejaamad).

Õhulisandite levikut atmosfääris võimaldavad seletada ja prognoosida atmosfääri keemia-transpordi mudelid. Nende mudelite abil on võimalik saada teaduslikku tunnetust õhusaaste leviku kohta, peamine rakenduslik kasutus on aga erinevate õhusaastest tulenevate riskide hindamine (lähtuvalt õhusaaste mõjust inimestevisele). Selles töös uuritakse mudeli SILAM toimimist (*System for Integrated modeling of Atmospheric composition*), mida on täiustatud juba aastakümneid ja see töö jätkub (Sofiev & Silijamo, 2004; Sofiev *et al.*, 2015). Üldiselt kirjeldavad atmosfäärimudelid pinnainversiooni varieeruva edukusega, tihti on vajalikud mudeli usaldusväärsuse hindamiseks lisauuringud, näiteks (Pohjola *et al.*, 2004). Temperatuuriinversioon on õhusaaste modelarvutuste jaoks keeruline olukord, sest vertikaalne segunemine õhukeses aluspinnalähedases kihis on pärsitud ja vertikaalse leviku kiiruse (millest sõltub lisandi kontsentratsioon kõrgusel, kus inimene hingab) hindamine teadaolevate parameetrite järgi on keeruline. Mudelite usaldusväärsust saab üldiselt hinnata, võrreldes mudeli arvutatud saasteaine kontsentratsiooni mõne seirejaama asukohas mõõdetud kontsentratsiooniga. Nii tehakse ka selles töös.

Selles töös uuritakse mudeli SILAM prognooside täpsust olukorras, kus maapinnalähedase temperatuuriinversiooni tingimustes on kontsentratsioonid aluspinna lähedal tunduvalt madalamad, kui kõrgemates õhukihtides – olukord, mis viitab aeglasele hajumisele kõrgest saasteallikast. Mudeleksperiment on just selliselt üles seatud, sest olemas on kindlad Kirde-Eesti vääveldioksiidi SO_2 ja lämmastiku oksiidide NO_x allikad, kust pärinevad selged piigid, see on hea võimalus mudeli valideerimiseks. Just sellises olukorras saame hästi jälgida, kuidas inversioon mõjutab saastet: kui Järvselja pinnakihis on ees inversioon, ei jõua Kirde-Eestist tulev saaste maapinnani. Kui mudel oskab ära kirjeldada sellise olukorra, on tõenäoline, et ta saab ka muude inversiooniolukordadega hakkama. Keerukama võimalusena võib saastatud õhk liikuda üles tõusvas õhuvoos, mille alla tungib allatuult levimise käigus puhtam õhumass ja samal ajal kujuneb pinnainversioon.

Inversiooni hindamisel on vaja teada nii temperatuuri kui kontsentratsiooni kõrguskäiku, seetõttu kasutatakse mastimõõtmisi (Järvselja mõõtejaam, täpsemalt punkt 2.2), inversiooni leviku ulatuse hindamiseks ka üle Eesti paiknevaid tugijaamu. Inversiooni tingimustes on SILAMi töö hindamiseks SO_2 ja NO_x piigid asjakohased, sest need on ajaliselt lokaliseeritud. Mõõdetud ja arvutatud kontsentratsioone võrreldes saab aimu, kui hästi mudel olukorra simuleerimisega hakkama sai. Atmosfäärimudelid on kasulikud, sest nad võimaldavad ennustada atmosfääris esinevaid kõrgeid õhulisandite kontsentratsioone, sealhulgas pinnainversioonist tingitud õhuseisaku episoodide korral, kui nende hindamise metoodika on arendatud ja mudelisse integreeritud.

Selle töö eesmärk on välja selgitada, kui usaldusväärne on atmosfääri keemia-transpordi mudel SILAM õhusaaste leviku modelleerimisel temperatuuri pinnainversiooni tingimustes SO_2 ning NO_x piikide abil. Lisaks saadakse esialgne ettekujutus võimalike kõrvalekaldumise põhjuste kohta, mis võimaldab anda vastavalt tulemustele soovitusi mudeli täiustamiseks.

Üldise uurimisküsimuse võib sõnastada järgnevalt: kui hästi tuleb mudel SILAM toime kõrgest ja kaugel paiknevast allikast pärineva õhulisandi vertikaalprofiili prognoosimisega temperatuuri pinnainversiooni tingimustes? Küsimusele vastamiseks viiakse läbi rida mudeleksperimente, mille tulemusi võrreldakse mastimõõtmistest saadud profiilidega. Kuna bakalaureusetöö mahus läbiviidavate eksperimentide hulk ei ole piisav pädevaks statistiliseks võrdluseks, siis antakse hinnang mõõdetud ja arvutatud profiilide sarnasust kvalitatiivselt võrreldes. Arutatakse ja tehakse järeldusi selle üle, millised mudeli arvutusskeemid võivad märgatud erinevusi põhjustada.

1 Kirjanduse ülevaade

1.1 Inversiooni mõju õhu vertikaalsele liikumisele

Inversiooni ajal on atmosfäär stabiilne, esineb püsiv tasakaal. Tasakaalu tekkimise mõistmiseks vaatleme portsjonit õhku („*air parcel*“), mis ei vaheta ümbritseva õhuga ei ainet ega energiat ning veeaur on küllastumata kujul (kuivadiabaatilised protsessid). Kui adiabaatiliselt oma esialgselt kõrguselt kõrgemale viidud õhuportsjon osutub ümbritsevast õhust kergemaks (väiksem tihedus) ja madalamale viidud portsjon raskemaks (suurem tihedus), siis jätkab see portsjon vastavalt laskumist kuni aluspinnani või tõuseb piiramatult. Seda nimetatakse labiilseks kihistuseks ja see esineb siis, kui temperatuur langeb kõrgusega kiiresti, näiteks päikesepaistest soojenenud maapinna kohal. Tegelikus atmosfääris ei ole õhuportsjon isoleeritud, vaid seguneb tõustes või langedes turbulentsi mõjul – labiilses atmosfääris kujunevad ajas muutlikud tõusvad ja laskuvad õhuvoolud, mis segavad õhu hästi läbi.

Kui kõrgemale viidud portsjon osutub ümbritsevast õhust kergemaks ja madalamale viidud õhuportsjon raskemaks, siis ta pöördub oma algkõrgusele tagasi – tegemist on stabiilse kihistusega, milles turbulents on alla surutud ja segunemine nõrk. Piirjuhul, kui algkõrguselt üles või alla viidud portsjoni tihedus on sama, mis ümbritseval õhul, on tegemist neutraalse kihistusega, milles väliste jõudude (näiteks tuulehõõre) põhjustatud segunemine toimib takistamatult, kuid soojuslikke tõusvaid ja laskuvaid õhuvoolu ei teki.

Kõrgusel, kus lõpeb maapinnalähedane inversioon (temperatuuriprofiil pöördub ja kõrgemal on jälle jahedam), saab toimuda ka intensiivne segunemine, kuid kõrgemast kihist inversioonikihti levib õhusaaste väga aeglaselt, üksnes tuulehõõrdest ja ujulainetest põhjustatud segunemise tõttu. Küll aga võib saaste koguneda inversioonikihti allikatest, mis on inversioonikihi sees maapinna lähedal. (Ahrens, 2009)

Temperatuurinversioon atmosfäärikihis tähendab kindlasti, et kihistus on stabiilne, kuid iga stabiilne kihistus ei ole inversioon. Mida suurem on temperatuuri vertikaalne gradient, seda stabiilsem on kiht. Lisandid levivad sel juhul vertikaalsihis aeglasemalt. Inversiooni ja neutraalse kihistuse vahele jääb nõrgalt stabiilne kihistus, milles mõõdetav temperatuur langeb kõrgusega, kuid potentsiaalne temperatuur (täpsemalt vt. p. 2.8) tõuseb.

1.2 Varasemad uuringud

Temperatuuri pinnainversioonid võivad põhjustada maapinnalähedase aerosooli ja teiste atmosfäärilisandite kontsentratsiooni suurt tõusu, palju on tehtud juhtumiuuringuid. Illustreeriv näide on töö (Lyamani *et al.*, 2012), kus uuriti 2011. a veebruaris Lõuna-Hispaanias aset leidnud õhuseisaku episoodi. Tegu oli kõrgrõhkkonnaga, millele lisandusid püsivad temperatuuriinversioonid maapinna lähedal. Töö eesmärk oli kirjeldada maapinnalähedase aerosooli ja vertikaalse õhusamba aerosooli (*columnar aerosol*) dünaamilisi ja optilisi parameetreid ning mõnede saasteainete massikontsentratsioone Granada ja Málaga linnades. Analüüsiti aerosooliandmeid, mis olid kogutud enne õhusaasteepisoodi, episoodi ajal ja pärast episoodi. Tulemusi võrreldi omavahel. Lisaks hinnati, kuidas vastasid aerosooli näitajad Euroopa Liidu (EL) piirnormidele saasteepisoodi ajal. Leiti, et saasteepisoodi ajal olid aerosooli optilise tiheduse (AOD, *Aerosol Optical Density*) väärtused tavalisest kõrgemad, mis tähendab, et õhusambas oli rohkem aerosooliosakesi. Samuti olid tavalisest kõrgemad atmosfääri lisandgaaside CO, SO₂, NO₂ ning aerosooli peenosakeste PM₁₀ (suurusega 2,5–10 µm) massikontsentratsioonid. Mõlemas linnas ületas uuritud ajavahemikul EL piirnorme vaid PM₁₀ massikontsentratsioon.

Temperatuuriinversioone on palju uuritud, kuid uusi teadmisi tuleb pidevalt juurde. Näiteks uurimuse (Prasad, Basha & Ratnam, 2022) eesmärgiks oli välja selgitada, kuidas mõjutab atmosfääri piirkihi (*boundary layer*, aluspinna omadustest mõjutatud alumine kiht) paksus ja tugev pinnalähedane temperatuuriinversioon atmosfääriaerosooli vertikaalprofiili. Selleks kasutati maapinnal põhineva lidari (laserskanneerimisseade) pikaajalisi (2010–2018) vaatlusandmeid ning raadiosondi mõõtmisi Gadanki mõõtejaamas Indias. Analüüsi laiendati, kattes kogu India. Arvesse võeti satelliidi CALIPSO pardal oleva lidari CALIOP (*Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization*) ja 23 raadiosondijaama mõõtmistulemusi. Põhitulemuseks saadi, et olenemata aastaajast on suurim aerosooli vertikaalprofiili mõjutaja vaadeldaval hetkel esinev tugevaim temperatuuriinversiooni nähtus, mitte atmosfääri piirkihi paksus, nagu arvati varem. Tugevuse all mõeldakse siin temperatuurigradiendi ühikutes °C m⁻¹. See tähendab, et juhul kui atmosfääri alakihtides esineb eri kõrgustel mitu inversioonikihti, osutub määravaks inversioon, kus temperatuuride erinevus kõrgusühiku kohta on suurim. Tulemus on tähtis aerosooli modelleerimise seisukohast, aidates paremini ennustada maapinnalähedase aerosooli levikut.

1.3 Õhusaaste mõju tervisele

Hingamisteede ning südame-veresoonkonna haiguste leviku ja välisõhu kvaliteedi vahel on otsene seos. Viimasel sajandil on tihti välja toodud lisanduvate surmade põhjustajana õhu saastatust. Eriti terav on õhu saastatuse probleem arengumaades, kus kasutatakse energia allikana jätkuvalt fossiilkütuseid, mis on väävli ja lämmastiku oksiidide ning aerosoolide üheks peamiseks allikaks. Probleem on terav, sest arengumaades pole piisavalt efektiivseid õhusaaste leviku kontrollprogramme (Romieu *et al.*, 2002). Siiski, õhusaaste mõjud tervisele on märkimisväärsed ka Euroopas, sh. Eestis (Orru *et al.*, 2010).

Enamasti on pinnainversiooni ajal saasteainete ning atmosfäärilisandite kontsentratsioonid maapinna lähedal kõrged. Juhtumianalüüs (Trinh *et al.*, 2019) keskendub pinnainversioonist tulenevale võimalikule tervisemõjule. Uuriti saasteainete NO_x (lämmastiku oksiidid), SO₂, PM_{2.5} ja PM₁₀ (viimased vastavalt tahked aerosooliosakesed läbimõõduga kuni 2.5 µm ja 2.5–10 µm) kontsentratsioone Hanoi linnas Vietnaxis pinnainversioonide ajal. Vaadeldav periood oli 2011–2015. Töö eesmärgiks oli hinnata pinnainversioonide mõju hingamisteede ägedatele nakkustele ja südame-veresoonkonna haigustele. Vaatluse all oli patsientide (vanuses alla 15 ja üle 60 a) arv kahes haiglas. Töös leidis kinnitust tõsiasja, et inversioonide ajal on enamasti saasteainete kontsentratsioonid kõrgemad. Põhitulemuseks saadi, et kuu keskmiste patsientide arvu ja inversioonipäevade vahel on korrelatsioon. Erakorraliste haiglavisitiide arv oli rohkema inversioonipäevade arvuga kuudel kõrgem. Siit tuleb veelkord välja atmosfäärimudelite arendamise tähtsus: mudelite piisava võimekuse korral saab atmosfäärilisandite kõrgemaid kontsentratsioone prognoosida.

1.4 Uuritavad saasteained

Vääveldioksiid (SO₂) molaarmassiga 64 g mol⁻¹ on värvusetu teravalõhnaline gaas, mis on üheks väga levinud saasteaineks atmosfääris. SO₂ satub atmosfääri nii looduslike kui inimtekkeliste protsesside tulemusena. Inimtekkelised allikad on igasugune põletamine, eelkõige fossiilkütuste kasutamine nii liikluses kui tööstuses. (NRC (US) Committee on Toxicology, 1984). Suurima osa tööstuslikest emissioonidest maailmas annavad kivisööelektrijaamad. Suurimad looduslikud allikad on aktiivsed vulkaanid, kuid ka geisrid ja metsapõlengud. Põlengutest tulev väävel pärineb biomassis sisalduvatest aminohapetest. (U.S. EPA, 2017).

Peamised SO₂ allikad Eestis on Kirde-Eesti põlevkivielektrijaamad ja tööstus (Keskkonnaagentuur, 2017), samuti on tööstusettevõtted lämmastiku oksiidide NO_x allikateks.

Saaste väljub kõrgetest korstnatest, mis tingib kõrgema mõõdetud kontsentratsiooni maapinnast kõrgemal vaadeldavate episoodide ajal. Kõrged korstnad on kõige tõenäolisem seletus sellele, et ülal on kontsentratsioon kõrgem. Teine võimalik füüsikaline mehhanism niisuguse olukorra kujunemiseks on tõusvas õhuvoolus üles kantud saastunud õhk, mille alla on tunginud puhtam õhumass koos inversiooniga. Selles töös vaadeldakse olukordi, mil saaste päritolu kõrgematest allikatest, konkreetselt Kirde-Eesti korstnatest, on tõestatav.

SO₂ eluaeg atmosfääris on 2–10 päeva olenevalt sadenemise tüübist. See on ebastabiilne ühend, mis oksüdeerub eelkõige vääveltrioksiidiks, mis omakorda muundub kiirelt väävelhappeks. Lisaks viimastele muundumistele lahkeb SO₂ atmosfäärist ka kuiv- ning märgsadenemise teel. Tüüpiline mandriline foonitase on 0,05–3 µg m⁻³ (Eestis hiljutistel aastatel alla 1 µg m⁻³), tööstuslikult saastunud linnaõhus võib kontsentratsioon ajuti tõusta ka üle 200 µg m⁻³. (Seinfeld & Pandis, 2016)

Lämmastiku oksiidide (NO_x) all mõeldakse atmosfäärifüüsikas lämmastikoksiidi NO ja lämmastikdioksiidi NO₂ summaarset masskontsentratsiooni. Molaarmassid on vastavalt 30 ja 46 g mol⁻¹. Neid vaadeldakse koos, sest nad esinevad atmosfääris koos ja võivad muunduda üksteiseks. NO on värvitu gaasiline vaba radikaal ühe vaba elektroniga, NO₂ on punakaspruun kirbe lõhnaga gaas ja tugev oksüdeerija: veega reageerides tekib lämmastikhape HNO₃ ja NO.

Rääkides NO_x massikontsentratsioonist, peetakse selles töös silmas NO₂ ja NO kogumassi NO₂ ekvivalendis, nagu seda käsitletakse õhusaastet reguleerivates õigusaktides ja heitkoguste aruandluses. Peamine NO_x inimtekkeline allikas on fossiilkütuste põletamine, sh transport ja elektri tootmine. Transpordiheitmete tõttu võivad olla NO_x kontsentratsioonid linnades palju kõrgemad, kui maapiirkondades. Kõige rohkem NO_x energiaühiku kohta pärineb kivisöe põletamisest, sest see sisaldab enim lämmastikku, kuid õhulämmastiku põlemise tagajärjel paiskub seda õhku ka teiste kütuste põletamisest – mida kõrgem on leegi temperatuur, seda rohkem. Suurema osa atmosfääri paisatud lämmastiku oksiididest (95%) moodustub NO, kuid atmosfääris oksüdeerub osooni toimet sellest suur osa NO₂-ks. Kohtküttel elamuid võib pidada maapinnalähedaseks allikaks, mis annab lokaalselt kõrgeid NO_x kontsentratsioone, kuid kõrgetest elektrijaamade korstnatest pärinev saaste mõjutab palju suuremat maa-ala. Looduslikud allikad on biomassi põlemine (metsatulekahjud), vulkanism, bakterite elutegevus ja äike. Looduslikud emissioonid on palju suuremad, kuid üle maailma jaotunud, seetõttu on looduslikud taustakontsentratsioonid väikesed. (WHO, 2006)

NO_x eluiga atmosfääris varieerub mõõdukalt, kuid jääb suurusjärku mõned tunnid (üldisemalt vahemik 1–8 tundi) (Liu *et al.*, 2016). NO muundub NO₂-ks minutite kuni tundide jooksul, viimase muundumine lämmastikhappeks ja paljudeks teisteks ühenditeks (mis enamasti määrab NO_x eluea) sõltub OH-radikaalide ja NO₂ kontsentratsioonidest. NO_x eemaldub atmosfäärist ka kuiv- ning märgsadenemise teel. Viimane pole peamine, kuna NO ja NO₂ on vees vähelahustuvad. HNO₃ jaoks on märgsadenemine peamine. (U.S. EPA, 2016)

Toon välja NO₂ foonitasemed, sest see moodustab suurema osa mõõdetud NO_x-st. Tööstusmaades loetakse NO₂ foonitasemeks 15-30 µg m⁻³, linnades võib foon olla palju kõrgem, üle 40 µg m⁻³, tiheda liiklusega tee ääres võib kontsentratsioon lühiajaliselt ületada 940 µg m⁻³ (WHO, 2006). Eesti taustaaladel, nagu Järvelja, jääb foonitase suurusjärku 0,1–2 µg m⁻³.

Vääveldioksiidi kontsentratsioone mõõdetakse selle töö peamises taustaandmete allikas, Järvelja mõõtemastis, SO₂ analüsaatoriga Thermo Scientific 43i, mille töö põhineb impulssfluorestsentsil (*pulsed fluorescence*). NO_x kontsentratsioone mõõdetakse analüsaatoriga Thermo Scientific 42 TL, mille töö põhineb kemoluminestsentsil.

1.5 Atmosfäärimudelite täpsus

Ilma- ning õhusaastemudelite (sh. SILAMi) võimekus adekvaatselt hinnata meteoroloogilisi ja muid parameetreid pinnainversiooni tingimustes varieerub mõneti. Enamasti on vajalikud lisauuringud, et mudel näitaks ka sellistes tingimustes adekvaatseid tulemusi. Ilma- ja õhusaastemudelite adekvaatsust pinnainversiooni tingimustes on varem uuritud töös (Pohjola *et al.*, 2004). Tegu on 27.–29. detsembril 1995 a. Lõuna- ja Lääne-Soomes aset leidnud tugeva pinnainversiooni juhtumianalüüsiga. Vaadeldi, kui hästi järelprognoosivad mudelid HIRLAM (*High Resolution Limited Area Model*) ja MM5 (*Fifth Generation NCAR/Penn State Meso-Scale Modelling System*) pinnainversiooni kirjeldavaid suurusi ja temperatuuri vertikaalprofiile. Hinnati ka Soome Meteoroloogiainstituudi väljatöötatud linnapiirkonna õhusaaste leviku modelleerimise süsteemi ennustusvõimet, kuna saasteepisoodi ajal olid NO₂, PM₁₀ ja CO kontsentratsioonid kõrged. Leiti, et mõlemad mudelid alahindavad suurel määral pinnainversiooni tugevust (°C). Põhjuseks arvati olevat maapinnalähedase temperatuuri ülehindamine. Temperatuuri vertikaalprofiilide järelanalüüsil ilmnes samuti probleeme, MM5 andis veidi paremad vertikaalprofiilid kui HIRLAM. Linnapiirkonna õhusaaste leviku modelleerimise süsteem ennustas episoodi alguses saastetasemeid enamjaolt hästi, hiljem alahindas saastetasemeid. Mudeli piiranguks on kvaasistatsionaarsus: kontsentratsioone

käsitleti mudelis ajaliselt, nagu nad koosneks tunnise sammuga kontsentratsiooni väärtuste jadast.

Järeluuringus (Rantamäki *et al.*, 2005) võrreldi vanemat, töös (Pohjola *et al.*, 2004) kasutatud HIRLAMi versiooni uuemaga. Võrdlusel kasutati sama pinnainversiooni episoodi. Leiti, et mõlemad mudeli versioonid jätkuvalt ülehindavad maapinnalähedast temperatuuri, inversioonikihi paksust ja tuule kiirust maapinna lähedal. Mõnel juhul oli uuem mudel parem, võrreldes eelmise versiooniga olid seal leitud veapõhjused väiksema kaaluga. Selgus, et mudel ennustab hästi, kui temperatuurid on kuni $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$, kuid alla selle suurenevad ebakõlad kiirelt. Alla $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$ esinevad Põhja-Euroopas enamasti õhusaasteepisoodid, seetõttu on mudelite arendamine vajalik.

2 Metoodika

2.1 Õhusaaste leviku mudel SILAM

SILAM (*System for Integrated modeLling of Atmospheric coMposition*) on globaal- ja mesoskaalal kasutatav õhusaaste leviku mudel, mida arendab Soome Meteoroloogiatinstituut ('SILAM v5.7', 2014). Mudeli abil saab hinnata mitmesuguste õhulisandite levikut atmosfääris: radionukliidid koos lagunemiste ja muundumistega, lisandgaasid (näiteks SO₂, NO, NO₂, O₃), aerosoolid (näiteks PM_{2.5}, PM₁₀) ning bioloogiline materjal (õietolm). Võimalik on arvutada saasteallikast lähtuvalt õhulisandite hajumist atmosfääris, või vastuvõtjast (nagu seirejaam) lähtuvas režiimis õhulisandi päritolu. Esimesel juhul tehakse arvutus ajas edasi, sisendiks on saasteaine heitkogused, arvutustulemuseks on õhulisandi kontsentratsioonid. Teisel juhul lähtutakse seirejaamas mõõdetud õhulisandi kontsentratsioonidest ning tehakse arvutus ajas tagasi (ajahetked läbitakse mudelis tagurpidises järjestuses, seega ka näiteks tuule vektorid on vastupidises suunas). Tulemuseks on tundlikkusjaotus ehk „tõenäosuspilv“ suhtelistes ühikutes, mis näitab, kust õhulisand võis pärineda. ('User-guide for SILAM chemical transport model', no date). SILAMi praktiline rakendus on välisõhu kvaliteedi, metsapõlengutest pärineva suitsu, tuuma- või keemiaõnnetusel õhku paiskuvate saasteainete (Sofiev & Silijamo, 2004) ja allergeense õietolmu leviku ennustamine ('SILAM v5.7', 2014).

Mudel vajab arvutamiseks sisendina mõnesuguseid aegridu. Ajas tagasi arvutuste puhul on nendeks seirejaamades (selles töös eelkõige Järvelja mõõtemastis) mõõdetud uuritavate saasteainete (SO₂, NO_x) kontsentratsioonid (ühik $\mu\text{g m}^{-3}$). Ajas edasi arvutuste puhul on vajalikud andmed saasteallikate SO₂ või NO₂ ekvivalendi (NO_x-le vastav heide: NO heide vastavalt lämmastiksisaldusele NO₂-ks ümber arvutatud) heitkoguste kohta (ühik g s^{-1}). NO heitkoguseid arvutatakse NO₂-ks ümber vastavalt määrusele ('Põletusseadmetest välisõhku eralduvate saasteainete heitkoguste määramise kord ja määramismeetodid', 2003).

Lisaks on vajalikud meteoroloogilised andmed ilnamudelist (selles töös Riigi Ilmateenistuse kasutatav numbrilise ilmaprognoosi mudel HIRLAM), mida SILAM loeb Maailma Meteoroloogiaorganisatsiooni GRIB standardile vastavatest failidest, mis kujutavad endast kas prognoositud või analüüsitud ilmaparameetrite kolmemõõtmelisi (ruumimõõtmes) andmehulki teatud ajahetkel. HIRLAM mudelis on maapinnalähedases kihis vähe kõrgusi mille jaoks on arvutatud ilmaparameetrite (nagu temperatuur, õhuniiskus, tuulevektori

komponendid) väärtused. Vertikaalne võrgulahutus on umbes 50 m (Harmonie wiki, no date). See on üks põhjusi, miks SILAMil, nagu teistelgi atmosfääri keemia-transpordimudelitel võib olla probleeme inversioonitingimuste hindamisega, sest selles olukorras muutuvad ilmaparameetrid õhukeses kihis palju. Töös on kasutusel HIRLAMi kolme tunni prognoosi arhiivandmed.

Mudeli toimimiseks on vajalikud „modelisisesed“ failid, mida kasutaja tavaliselt ei muuda. Need kirjeldavad saasteainete keemilisi ning füüsikalisi omadusi ja muid fikseeritud parameetreid. SILAMi käivitamine toimub käsurealt, selleks on vajalik kontrollfail, mis viitab kõigile vajaminevatele failidele. ('User-guide for SILAM chemical transport model', no date)

SILAM lähtub arvutustes atmosfäärifüüsikast. Kõigi atmosfääri transpordi mudelite alus on turbulentse difusiooni-adveksiooni võrrand,

$$\frac{\partial \langle c \rangle}{\partial t} + \bar{u}_j \frac{\partial \langle c \rangle}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(K_{jj} \frac{\partial \langle c \rangle}{\partial x_j} \right) + S(\mathbf{x}, t), \quad j = 1, 2, 3, \quad (1)$$

mis veidi sarnaneb Browni difusioonivõrrandile, kuid atmosfääris on turbulentne ülekanne palju kiirem molekulaarsest difusioonist. Selles võrrandis

$\langle c \rangle$ – vaadeldava aine kontsentratsiooni ajaline keskmine (sobiv keskmistamise aeg umbes 1 tund, hetkväärtust pole võimalik leida atmosfääri turbulentsi tõttu),

$\bar{u}_j$ – õhu liikumiskiiruse (tuule kiiruse) deterministlikud (keskmistatud) komponendid,

K_{jj} – ülekandekoefitsiendi tensori diagonaalkomponendid (ülejäanud tensori komponendid on nullid, kui koordinaatteljed ühtivad tensori põhitelgedega),

$S(\mathbf{x}, t)$ – allikaliige: vaadeldava aine lisandumise kiirus koordinaatidel $\mathbf{x} = (x_1, x_2, x_3)$. (Seinfeld & Pandis, 2016)

Võrrandi 1 kasutamise eelduseks on, et atmosfäär on kokkusurumatu, mis kehtib lokaalselt hästi, kui liikumiskiirused on palju väiksemad helikiirusest, nagu nad atmosfääris peaaegu alati on. Sealjuures arvestatakse vertikaalsest rõhugradiendist tingitud staatilise tiheduseerinevusega. Võrrandis pole arvestatud kontsentratsiooni muutumist keemiliste reaktsioonide tõttu, kuid see tekitaks vaid lisaliikme, mis sõltub eri ainete ajaliselt keskmistatud kontsentratsioonidest. Vastasmärgiga sulgudes olev liige on tuule kiiruse ja kontsentratsiooni fluktuatsioonide korrutise keskmine (kovariatsioon):

$$-K_{jj} \frac{\partial \langle c \rangle}{\partial x_j} = \langle u_j' c' \rangle, \quad j = 1, 2, 3,$$

See kovariatsioon on aine voog vastavas sihis. Ülekandekoefitsient K (difusioonikoefitsiendi turbulentne analoog) on suurtes piirides varieeruv sõltuvalt atmosfääri seisundist. Temperatuuriinversiooni korral on K palju väiksem, kui konvektiivses olukorras. (Seinfeld & Pandis, 2016)

Atmosfääri piirkihi adekvaatne käsitus on mudeli täpsuse jaoks kriitilise tähtsusega. SILAM kasutab piirkihi vertikaalsete energia-, impulsi ja ainevoogude arvutamiseks ilmamudeli väljundit temperatuuri, tuule, õhuniiskuse jt. hästi verifitseeritud parameetrite osas (Sofiev *et al.*, 2010), kuid kuna määravaks protsessiks piirkihis on turbulentne segunemine, siis tuleb kasutada mitmesuguseid poolempiirilisi parametrizeeringuid, mille täpsus on eri olukordades erinev. Selles töös uuritakse mudeli toimimist pinnainversiooni korral, millest on oodata abi parametrizeeringute täiustamisse.

SILAMi väljund on saasteaine kontsentratsioonide 4D (kolm ruumimõõdet ja aeg) andmestik, mis reeglina esitatakse NetCDF formaadis, aga võimalik on ka väljund GRIB failina. Hoomatavam viis väljundi visuaalseks esitamiseks on kontsentratsiooni kujutamine värvidega ja/või samajoontega konkreetsetes õhukihis (sageli vahetult maapinnalähedane kiht), mida saab ajalise muutuse jälgimiseks animeerida. Levikuprotsessi mõistmiseks on kasulik teha ka vertikaalseid läbilõikeid ning kontsentratsiooni ja arvutatud meteoroloogiliste parameetrite aegrea graafikuid konkreetsetes asukohtas.

Väljundi kuvamiseks kasutatakse selles töös vabavaralist programmi OpenGrads (Grads). Programm võimaldab kliima, ilma ja atmosfääri seisundi andmeid geograafilisel kaardil suhteliselt lühikese ajaga visualiseerida, lisaks on võimalik teha animatsioone. SILAMi väljundfaili suudab Grads lugeda, see on talle sisendiks. Fikseerides ajahetke, joonistab programm SILAMi arvutatud kontsentratsioonijaotuse (ajas edasi arvutus) või tõenäosuspilve (ajas tagasi arvutus) selle ajahetke kohta. Kui genereerida Grads abil skriptiga iga ajahetke kohta pilt, on võimalik kolmanda programmiga (näiteks vabavaralise Windows Movie Makeriga) teha vaadeldava perioodi kohta animatsioon. Grads võimaldab teha ka graafikuid ruumilistest läbilõigetest ja ajalistest käikudest.

2.2 Võrdlusmõõtmised

Peamine taustaandmete allikas selles töös on SMEAR Estonia (*Station for Measuring Ecosystem-Atmosphere Relations*) seirejaam Tartumaal Kastre vallas Järvelja Õppe- ja Katsemetskonnas (seirejaama kaardil vaata Lisa 2). See on üks viiest SMEAR mõõtejaamast,

ülejäanud jaamad (SMEAR I–IV) asuvad Soomes ning järgivad põhja-lõuna suunalist gradienti. SMEAR jaamade võrk põhineb Helsingi Ülikoolis loodud kontseptsioonil (metsa)ökosüsteemi ning atmosfääri vaheliste aine- ja energiavoogude mõõtmiseks, mille rakenduslik eesmärk on kliima- ja ilmamudelite täpsustamine. SMEAR Estonia jaama, mis kuulub Eesti Keskkonnaobservatooriumi objektide hulka, käitavad ühiselt töörühmad Eesti Maaülikooli põllumajandus- ja keskkonnainstituudist ning TÜ füüsika instituudist.

Jaam asub suurematest linnadest ning tööstuspiirkondadest kaugel, seetõttu jaama õhukvaliteet vastab puhta õhuga taustaala tingimustele. Atmosfäärimõõtmistega alustati 2012. aastal, need toimuvad peamiselt kahes mõõtekohas: Apna mõõtealal ühe 130-meetrise ja kahe 30-meetrise mastiga ning Liispõllu mõõtealal 24-meetrise mastiga. Mõõdetakse mitmesuguseid atmosfääriparameetreid kasvuhoonegaasidest päikesekiirguse ja maapinna soojuskiirguseni. Selles töös kasutatakse atmosfääri lisandgaaside SO₂ (vääveldioksiid) ja NO_x mõõtmistulemusi 130-meetrises mastis, mis on küllalt kõrge enamikul juhtudel temperatuuriinversiooni vertikaalse ulatuse väljaselgitamiseks, ning meteoroloogilistest mõõtmistest temperatuuri mõõtmistulemusi, mõõdetud samas mastis. Saadaval on andmed ajavahemikust 2016–2020. a. kõrgustel 30, 50, 70, 90 ja 110 meetrit maapinnast. Vaadeldavaid andmeid kogutakse sagedusega 10 Hz, standardselt keskmistatakse andmeid pooletunnise sammuga (Noe *et al.*, 2015). Kõrgsageduslikud mõõtmised on vajalikud turbulentsete soojus- ja ainevoogude väljaselgitamiseks, milleks kasutatakse tuulevektori komponentide, temperatuuri ja lisandite kontsentratsioonide kovariatsioone. Selles töös kasutatakse üksnes keskmistatud andmeid. Vaadeldud SO₂ ja NO_x piigi episoodide ajal olid keskmised kontsentratsiooni foonitasemed vastavalt 0,6 ja 1,3 µg m⁻³.

2.3 Toetav andmestik

Lisaks Järveljal mõõdetule kasutasin töös ka kolme madalama masti temperatuuri mõõtmistulemusi, et välja selgitada, kui laialdased olid inversioonid ja kinnitada, et Järveljal saadud inversiooni olukorrad polnud juhus. Kasutusel olid Eesti Keskkonnauuringute keskuse (EKUK) hallatavad Aseri (Lääne-Viru maakond, Viru-Nigula vald), Uulu (Pärnu Maakond, Häädemeeste vald) ja Külitse (Tartu maakond, Kambja vald) 24 m kõrgused mastid (andmeallikaid kaardil vaata Lisa 2). Veebilehel ohuseire.ee on valmis kujul kättesaadavad järgnevad andmed: temperatuuride erinevus 2 m ja 8 m vahel ning temperatuuride erinevus 8 m ja 22 m vahel, need andmed on inversiooni indikaatoriteks: kui erinevus on positiivne, on tegu (vähemalt nõrgalt) stabiilse atmosfääriga, mis öösel tähendab inversiooni. Tegin andmete

väljavõtte (aegread) kõigi episoodide jaoks ning selgitasin välja, kui laialdased inversioonid olid.

2.4 Andmete eeltöötlus ja piikide sobivuse esmane kontroll

Kogu Järvelja andmestikust (2016-2020) eraldati tuule suundade, temperatuuri ning saasteaine kontsentratsioonide ajalise ja kõrgusliku käigu põhjal välja huvitavamad episoodid, mil Kirde-Eesti allikate mõju oli tõenäoline. Episoodide – igas episoodis üks või rohkem sündmust ja igas sündmuses kuni kaks (ehk SO₂ ja NO_x) kontsentratsiooni piiki – eraldamine ning töösse valimine toimus eksperthinnangu põhimõttel, töö autor sai need juhendajalt valmiskujul. Huvitava episoodi kriteeriumiks on see, et kontsentratsioon mastis kõrgematel mõõteasemetel oli märgatavalt kõrgem kui allpool ja selgelt rohkem tavalisest taustatasemest, mis püsib suurema osa ajast.

Esmase õhulisandite päritolu kontrolli teostas in veebipõhise õhumassi trajektoiride mudeliga HYSPLIT (*Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory*), mida haldab USA ilmateenistus NOAA (NOAA, 2022). Mudel lähtub arhiveeritud ilmaandmete globaalsest järelanalüüsist (töös on kasutatud järelanalüüsi REANALYSIS ja GDAS 1) ja atmosfäärifüüsikast. Sisendiks on vaja vaid seirejaama koordinaate ja järelanalüüsi andmeid. Mudeli väljund on soovitud ajavahemikul kindla perioodi tagant joonistatud õhumassi tagasijälgituse (kuni 72 tundi ajas tagasi) trajektoorid, mis kuvatakse geograafilisel kaardil.

Teostasin mudeli HYSPLIT abil õhumassi trajektoiride ajas tagasi arvutused lähtuvalt Järvelja seirejaamast, et kontrollida, kas mõõdetud kontsentratsiooni piik võis pärineda Kirde-Eesti tööstustest, kitsendades nii SILAM-iga uuritavate episoodide valikut. HYSPLIT on SILAMist palju lihtsamini käsitletav mudel, mistõttu sobis see andmete eelanalüüsiks hästi. Arvutatud ajavahemikeks olid piigi kestvus koos ajalise puhvriga tavaliselt kuni 12 tundi enne ja pärast piiki. Enamasti jälgitasin trajektoore tagasi 72 tundi (maksimaalne võimalik mitme trajektoori jaoks), vajadusel ka vähem, et näha täpsemini Eesti alal toimuvat, või rohkem (kuni 150 tundi), et näha kaugemate allikate mõju, kui kahtlus nende mõjuks oli. Metoodika miinus on see, et SO₂ eluiga atmosfääris võib olla pikem kui kolm päeva, kuid kaugemalt allikast saabunud piikide mõju on arvatavasti väike. Võimalikud kaugemad saasteallikad on Koola poolsaare tööstuspiirkond, elektrijaamad ja tööstus Kesk-Euroopas ning lämmastiku oksiidide puhul ka lähemad suurlinnad. Iga piigi jaoks arvutati trajektoorid sellise perioodi tagant, et piigi sisse jääks 5-10 trajektoori (tavaliselt oli perioodiks 3-5 tundi). Kujuteldava vastuvõtja, kuhu trajektoorid koondusid, seadsin mudelis maapinnast 500 m

kõrgemale mõõtmiskoha kohale, sest HYSPLIT ei arvesta õhumassi vertikaalset segunemist turbulentsi tõttu maapinna lähedal. Nii kõrgelt joonistatud trajektoore ei mõjuta märkimisväärselt atmosfääri piirkihis esinev turbulents ega tuule kiiruse järsk kõrguskäik, õhulisandite leviku kiirus vastab ligikaudu tuule kiirusele sellel kõrgusel. HYSPLIT arvestab õhumassi vertikaalselt suunatud liikumist, mistõttu tagasi arvutatud trajektoor võib tõusta või laskuda. Kui vaadeldud aja jooksul joonistusid HYSPLIT trajektoolid üle Kirde-Eesti, arvestati see sündmus SILAMiga uuritavate piikide hulka.

2.5 Modelleerimine: arvutused ajas tagasi

Selles töös kasutasin SILAMi versiooni 5.7 SO₂ ja NO_x leviku modelleerimiseks Eesti alas. Mudeli elementaarraku suurus oli umbes 5,5x5,5 km, mis vastab geograafilistes koordinaatides laiusse vahemikule 0,05° põhja-lõuna sihis ja pikkuse vahemikule 0,1° idalääne sihis. Vaadeldi perioode, kui Järvelja taustajaama mõõdetud saasteainete kontsentratsioonides oli märgata suuri erinevusi eri kõrgustel, nii et saasteainete kontsentratsioonid olid maapinna lähedal madalamad, kui ülemistes õhukihtides. Kõikidel juhtudel esines mõõtmistega kaetud õhukihis temperatuurinversiooni. Kokku uurisin läbi seitse inversiooni episoodi, mis jäid töösse pärast eelanalüüsi. Arvutused SILAMiga teostas EKUKi (Eesti Keskkonnauuringute Keskus) serveris, kus SILAM on kättesaadav. Tulemusi visualiseerisin Gradsil abil.

SILAM-iga oli sobiv teha teine eelkontroll: iga episoodi jaoks Järveljalt lähtuvad arvutused ajas tagasi, võttes aluseks mõõdetud SO₂ kontsentratsioonid. Tahame olla kindlad Kirde-Eesti saasteallikate mõjus vaadeldavas kontsentratsiooni piiki. Vajaliku kontroll- ja allikafaili (kindla formaadiga SILAMi loetav fail, kus asub kontsentratsiooni ajaline käik ja muu info) genereerisin peatükis 2.7 kirjeldatud programmiga, tolles peatükis kirjeldatakse ka veidi põhjalikumalt allikafaili. Mudelis seadsin Järvelja punktallika 110 m kõrgusele maapinnast, kus mõõdeti kõrgemaid saastetasemeid. Kasutasin vastavat kontsentratsioonide aegrida, mõõdetud sellel kõrgusel. Vaatlesin mõõtemasti andmete põhjal arvutatud tundlikkusjaotuse levikut 10 m kõrgusel maapinnast, sest siis võime olla kindlad, et saaste tuli just sellelt alalt. Kui tõenäosuspilv liikus üle Kirde-Eesti, võis öelda, et tööstuspiirkonna mõju Järveljal mõõdetud piiki on olemas. Lisaks teostas tundlikkusuuringu: arvutasin tundlikkusjaotuse kõikide episoodide ajal ka punktallikaga 0–50 m kõrgusel maapinnast, kasutades samu SO₂ kontsentratsioone mõõdetud Järvelja mastis 110 m kõrgusel. Tundlikkusjaotuse jaoks pole kontsentratsiooni absoluutväärtusel suurt vahet, ajaline käik on sarnane. Taoliselt viisil sai

teada, kui erinev on mudeli väljund (tõenäosuspilve levik) sellise kõrguste vahe puhul (110 m vs 0–50 m), mis võiks olla oluline saaste prognoosimiseks maapinnal. Vertikaalse turbulentse segunemise tõttu ei tohiks punkt 110 m kõrgusel ja sammas (troposfääriga võrreldes) õhukeses kihis 0-50 m anda drastiliselt erinevaid tulemusi. Kasutasin vaid SO₂ kontsentratsioone, sest NO_x kontsentratsioonide abil saadud tõenäosuspilv ei oleks erinenud suurel määral: atmosfääris levivad NO_x ja SO₂ sarnaselt, vähemalt tõenäosuspilve arvutamiseks piisava täpsusega. Õhumassi geograafiline päritolu ei põhjustanud erinevusi saastetasemetes eri kõrgustel.

2.6 Saasteallikate andmed, ajaline dünaamika

Töö eesmärgi täitmiseks on vaja võrrelda mõõdetud uuritavate saasteainete (NO_x, SO₂) kontsentratsioone SILAMi arvutatuga. SILAMiga vaadeldavate saasteainete leviku arvutamiseks sain vajalikud NO_x (NO₂ ekvivalendina) ja SO₂ heitmeandmed riiklikust õhusaasteallikate andmebaasist, täpsemalt andmebaasidest OSIS2016, OSIS2017 ja KOTKAS. Algandmed põhinesid keskkonnalubadel ja olid ühikutes tonni aastas, need teisendasin ühikutesse g s⁻¹. Valisin andmebaasi kaardirakenduse abil kõik allikad, mis jäid Ida-Viru maakonda, ning lisaks Kunda tööstuspiirkonna (kõik andmeallikad kaardil vaata Lisa 2). Modelleerimiseks kasutasin vaid allikaid, mille NO₂ või SO₂ heitmed olid üle 1 g s⁻¹, kusjuures tüüpilise allika heitmed jäid suurusjärku kümned g s⁻¹, suurimad kuni 300 g s⁻¹. Alla ühe g s⁻¹ heitmed annaksid SILAMi arvutatud kontsentratsioonidesse tühise panuse. Mudeli sisendis kasutasin lisaks heitmetele ka muid korstna parameetreid: korstna diameeter ja kõrgus (meetrites, viimane tavaliselt suurusjärgus 100 m, Eesti Elektriijaama kaks kõrgeimat korstnat 250 m) ning heitgaasi vertikaalkiirus (m s⁻¹) ja temperatuur (°C) korstnast väljumisel. Korstnast väljumisel tõuseb saaste kõrgematesse õhukihtidesse, ka kuni 500 m kõrgusele gaasi kõrge temperatuuri tõttu.

Heitmete päevane, nädalane ja aastane varieeruvus polnud mõõtmisandmetest teada. Varieeruvuse mudeldamiseks saab SILAMis määrata lisavõimalusena koefitsiente, mis näitavad, mitu korda suurem või väiksem mingil hetkel korstnast väljunud heide on, võrreldes teadaoleva aastakeskmise heitmega g s⁻¹ ('User-guide for SILAM chemical transport model', no date). Heitmete päevase, nädalase ja aastase käigu saamisel eristasin elektriijaamu ja kolme vahetusega tööstust (keemiatööstused). Päevane käik tähendab 24 koefitsienti iga tunni jaoks, nädalane käik seitset koefitsienti iga päeva jaoks, ning aastane 12 koefitsienti iga kuu jaoks. Elektriijaama jaoks kasutasin osaliselt Eesti õhukvaliteedi juhtimissüsteemi andmebaasis

olevat malli katlamaja jaoks: sobis päevane ja nädalane käik. Aastase käigu sain juhendajalt: koefitsiendid saadi keskmistades mõõteperioodi aastatel 2016–2020 Statistikaametist saadud andmeid elektrienergia tootmise kohta (GWh). Kuukeskmised normeeriti vastavalt kõigi kuude keskmisele elektri tarbimise väärtusele. Algne aastane käik ei sobinud, sest soojuse tarbimise aastane käik on elektri tarbimisest erinev (soojust tarbitakse talvel rohkem, suvel väga vähe, kuid elektritarbimise sõltuvus aastaajast on laugem). Heitkogused anti SILAM-ile ette aasta keskmisena, kõik ajalised koefitsiendid normeeritud ühele. Pideva tootmistsükliga ettevõtetes (näiteks põlevkivikeemia tehased) käib töö ligikaudu samas mahus ööpäev läbi. Heitmete ajaline varieeruvus pole suur, seetõttu kolme vahetusega tööstuse puhul heitmeid ajaliselt ei varieeritud. Lisaks võeti arvesse, et koefitsiendid on vööndiajas UTC +2, kuid SILAM arvutab kõike UTC ajas. Tabel 1 toob välja elektrijaamade jaoks kasutatud päevased, nädalased ja kuised koefitsiendid. Metoodikal on ilmne miinus: heitmeandmed ei vasta alati sellisele mudeldatud ajalisele käigule (võib esineda lühemaid või pikemaid seisakuid ja lühiajalisi suuremaid heitkoguseid taaskäivitamisel). See on parim, mida teha sain, kuna täpsemaid heitmeandmeid pole.

Tabel 1. Modelleerimisel kasutatud koefitsiendid elektrijaama jaoks, osaliselt Eesti õhukvaliteedi juhtimissüsteemi andmebaasist. Kõik vastavad koefitsiendi väärtused kolme vahetusega tööstuse jaoks olid võrdsed ühega.

Kuu/päeva/tunni number	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Aastane käik (kuukoefitsiendid)	1,30	1,03	1,08	0,96	0,86	0,79	0,85	1,02	1,00	1,04	1,10	0,98
Nädalane käik (päevakoefitsiendid)	1	1	1	1	1	1	1					
Päevane käik (tunnikoefitsiendid, 12:00–00:00 UTC)	1,10	1,10	1,04	1,04	1,04	1,04	0,98	0,98	0,93	0,93	0,87	0,87
Öine käik (tunnikoefitsiendid, 00:00–12:00 UTC)	0,87	0,87	0,87	0,87	0,93	0,93	1,04	1,10	1,16	1,16	1,16	1,16

Kui valisin välja heitmed, ilmnes veel nüansse. Mõnedesse korstnatesse oli suunatud kahe või enama seadme heide. Aasta jooksul seadmed võisid, aga ei pruukinud töötada samal ajal (näiteks põhikatel ja reservkatel). SILAMi tehniline piirang ei luba kasutada sama nimega allikaid, lisaks sellele tundus kõige õigem heitmed kokku liita üheks allikaks. See aspekt lisab heitmeandmetesse veelgi määramatust, kuid muud (lihtsat) moodust heitmete hindamiseks polnud, sest eri seadmete kasutusaegu andmebaasis ei eristata. Võimalus oleks olnud kasutada

börsiandmeid elektrienergia müügi kohta ning sealtkaudu mingil moel arvutada heitmed, kuid see lisanuks tööle keerukust üle bakalaureusetöö mahupiiride. Kõigis andmebaasides polnud valmis kujul allikatüüpi iga allika jaoks (elektrijaam või kolme vahetusega tööstus), need määrasin kaardirakenduste abil ise. Allikadena valituks osutunud elektrijaamad olid Sillamäe soojuselektrijaam, Balti ja Eesti Elektrijaam ning VKG Energia. Keemiatööstused olid VKG Oil, Kiviõli Keemiatööstus ja Kunda tsemenditehas.

2.7 Programm andmete töötlemiseks

Heitmeandmed tuli viia SILAMile loetavasse formaati: kindla vormistusega allikafail, mis sisaldab kõikide heitallikate nime, koordinaate (geodeetilised), kõrgust ja diameetrit (m), vertikaalkiirust (m s^{-1}), temperatuuri (K), heidet (NO_x NO_2 massiekvivalendis või SO_2 , g s^{-1}) ja modelleeritavat perioodi. Sama allikafaili formaati kasutati ka ajas tagasi arvutustes, kuid seal oli tegu vaid ühe allikaga. Temperatuur, „korstna“ mõõtmised ja saasteaine vertikaalkiirus võeti sel juhul võrdseks nulliga, allikast väljuv juga ei tõuse, vaid levib mudelis arvutatud tuulega. Peatükis 2.5 on kirjeldatud „korstna“ (masti) kõrguse valik ajas tagasi arvutuste („tagasiarvutuste“) jaoks. SILAMi allika- ja kontrollfailide kiireks genereerimiseks kirjutasin Java programmeerimiskeskkonnas asjakohase programmi, mida hetkel saab küll vaid programmeerimiskeskkonnas kasutada. Programmi kogupikkus on 994 rida koodi, osa sellest on ka allikafail, mis on koodi sisse kirjutatud. See võtab sisendiks tekstifaili, mis on eeltöödeldud MS Excelis, kuid on väga sarnane riiklikust õhusaasteallikate andmebaasist saadava .csv väljundiga. Ise tuleb vaid teisendada koordinaadid L-Est koordinaatsüsteemist geograafilisse (pikkuskraad, laiuskraad) koordinaatsüsteemi, määrata iga allika tüüp, et saaks ajalise käigu koefitsiente kasutada ja asendada vaadeldava saasteaine nimi SILAMile loetavaga. Sisendfail ise on .txt formaadis. Lisaks on vaja kasutajal täpsustada näiteks väljundfailide nimed ja vaadeldav periood. Programm väljastab soovitud hulga mudeli jooksude jaoks standardse kontrollfaili, heitmete põhjal tehtud allikafaili, ja ka käsklused SILAMi jooksutamiseks EKUKi serveris. Link terviklikule koodile on toodud Lisas 1.

Võimekus tagasiarvutuse failide tegemiseks on samuti olemas: sel juhul võtab programm sisendiks kontsentratsiooni aegrea (kindlal masti kõrgusel, $\mu\text{g m}^{-3}$) ja väljastab samad failid ja käsud. Lisaks väljastatakse käsklus SILAMi väljundandmetes aegrea pööramiseks (et tagasiarvutuse animatsioonide ajatelg oleks õigetpidi ja tõenäosuspilv suubuks Järvelja mõõtejaama, mitte ei väljuks sealt).

Lisaks tuli töös välja võtta andmeid kindlatelt koordinaatidelt (edasiarvutuse puhul). Algselt polnud väljavõtted MS Exceliga kiiresti manipuleeritavad. Seetõttu on osal kirjutatud programmist vastav funktsioon, mis loeb andmete väljavõtte paremini veergudesse ning teisendab SILAMi väljundiks oleva kontsentratsiooni ühikutest mol m^{-3} ühikutesse $\mu\text{g m}^{-3}$. SILAM annab väljundis NO ja NO₂ kontsentratsioonid eraldi, need tuli ümber arvutada NO_x-ks NO₂ ekvivalendina. Tulemusena sai arvutatud ja mõõdetud SO₂ ja NO_x kontsentratsioone võrrelda. Andmete väljavõtte ning aegrea pööramine tehti käsurea programmiga CDO (Climate Data Operators), mis oli saadaval EKUKi serveris.

2.8 Modelleerimine: arvutused ajas edasi

Lähtusin Kirde-Eesti saasteallikatest ning teostasin („tavalise“) ajas edasi arvutuse: punktallikateks olid Kirde-Eesti ettevõtete korstnad, sisendiks NO₂ (NO_x-i ekvivalendi) ja SO₂ heitkogused (g s^{-1}) koos teiste olemasolevate korstna ja heitme parameetritega (kirjeldatud punktis 2.6). SILAMiga arvutati saasteainete kontsentratsiooni jaotus ajas (see oli mudeli väljundiks, ühikutes mol kg^{-1}), samuti temperatuur ning potentsiaalne temperatuur (vt järgmine punkt). Arvutused teostati üheteistkümnnes kihis, mille kesktasemed on kõrgusel 10, 30, 50, 70, 90, 110, 160, 300, 600, 1400 ja 3000 meetrit maapinnast. Viis väärtust (loetelus teine kuni kuues) vastavad Järvelja masti mõõtmistasemetele. Kõrgemad kihid on vajalikud hajumisprotsessi adekvaatseks mudeldamiseks. Saasteallikatest kõrgemal paiknevad kihid on arvutusmahu optimeerimise huvides paksemad, sest saastetasemed kõrgemates õhukihtides ei ole selle töö eesmärk. Samas ei saa ülespoole hajumist ignoreerida, sest ülemisest kihist väljuv lisand läheb SILAM-is jäädavalt kaduma.

2.9 Arvutatu ja mõõdetu võrdlus

Töös võrreldakse omavahel muuhulgas ka potentsiaalse temperatuuri vertikaalprofiile. Potentsiaalne temperatuur on suurus atmosfäärifüüsikas, mis eemaldab temperatuuri sõltuvuse õhurõhust (kui rõhk kõrgusega langeb, siis temperatuur samuti langeb). Õhu portsjoni temperatuur oleks võrdne potentsiaalse temperatuuriga, kui see tuua adiabaatiliselt standardsele rõhule 1000 hPa, mis vastab ligikaudu tavalisele rõhule merepinnal. Maapinna lähedal kirjeldab õhku piisava täpsusega kuivadiabaat, mis põhineb eeldusel, et veeaur välja ei kondenseeru. Potentsiaalne temperatuur on atmosfääri stabiilsuse mõõt: see annab praeguses töös vastuse küsimusele, milline oli atmosfäär mõõdetud või arvutatud piigi ajal kindlal kõrgusel (stabiilne, neutraalne või ebastabiilne). Stabiilse atmosfääri korral potentsiaalne temperatuur tõuseb kõrgusega ja vertikaalne õhu segunemine on pärsitud, neutraalse

atmosfääri korral on potentsiaalne temperatuur kõrgusega konstantne (tavaline temperatuur oleks kõrgusega veidi langev), ebastabiilse atmosfääri korral potentsiaalne temperatuur kõrgusega langeb ja konvektsioon on võimalik. Kui atmosfäär on stabiilne, võib tegu olla temperatuuriinversiooniga.

SILAMi arvutatud potentsiaalne temperatuur oli olemas valmiskujul, mõõdetud potentsiaalse temperatuuri θ (°C) arvutasin valemi

$$\theta = T \left(\frac{P_0}{P} \right)^{R/c_p} - 273,15 \text{ K}$$

abil, kus T – mõõdetud temperatuur (K), P_0 – standardne rõhk (1000 hPa), P – õhurõhk (hPa) baromeetrilisest valemist (kehtib piisava täpsusega maapinnalähedases kihis), R/c_p – konstant õhu jaoks on 0,286. Baromeetrilise valemi kuju oli

$$P = P_0 \exp \left(- \frac{Mgz}{RT_b} \right)$$

kus $T_b = 288,15 \text{ K}$ on nn. standardtroposfääri referentstemperatuur. $RT/Mg = 8,4 \text{ km}$ troposfääri jaoks, see on kõrgus, kus rõhk on vähenenud e korda. z – kõrgus maapinnast (m). Kokkuvõtlikult

$$\theta = T \exp(z \cdot 3,405 \cdot 10^{-5} \text{ m}^{-1}) - 273,15 \text{ K.}$$

Tegin SILAMi väljundandmetest väljavõtted Järvelja asukohas ning viisin need loetavamasse formaati kasutades punktis 2.7 kirjeldatud programmi. Võrdlesin arvutatud kontsentratsiooni aegridu, täpsemalt piigi maksimume. Arvutatud piigi maksimum loeti hästi ennustatuks, kui üle viie mõõtemasti kõrguse keskmistatud kontsentratsioon ei erinenud vastavast mõõdetud keskmisest rohkem kui kaks korda. SO_2 ja NO_x jaoks sai kasutada suhtarvu, mis näitas hästi ennustatud piikide osakaalu kõikidesse vastava aine piikidesse. Suhtarvu nimi on „fraction in factor two“ või lühendina FA2. Aegridade puhul sai jälgida ka piigi maksimumi hetke ja piigi kestvust. Piigi algus ja lõpp määratakse töös kontsentratsiooni lokaalse miinimumi, foonitasemelt lahkumise/sinna jõudmise või hetkede järgi, kui tase on 95% maksimumist madalam. Erinev metoodika oli kasutusel, sest piigid olid kujult erinevad.

Piigi maksimumis vaatlesin, kas SILAM enamasti ala- või ülehindab inversiooni tugevust. Inversiooni tugevus on selles töös defineeritud kui temperatuuride vahe 30 ja 70 m kõrgusel,

sest sel kõrgusel oli enamasti kujunenud inversioon, 30 meetrist allpool oli mets ja puuvõrad, seda ala ei uuritud.

Võrdlesin SILAMi arvutatud vertikaalprofiile – saasteainete kontsentratsioon ning potentsiaalne temperatuur – Järveljal mõõdetud profiilidega (vastavatel masti kõrgustel). Vertikaalprofiilid võtsin piigi maksimumi hetkest, kui mingil masti kõrgusel (tavaliselt 110 m) oli kontsentratsioon kõrgem kõigist ülejäänud mastis mõõdetud kontsentratsioonidest. Kuna arvutatud piigi maksimum ei vastanud ajaliselt alati mõõdetud piigi maksimumile, võtsin profiilid kahe piigi maksimumi ajal ja võrdlesin profiile omavahel. Kui mõõdetule vastavat arvutatut piiki ei saanud määrata näiteks arvutatud piikide rohkuse tõttu, siis ka vertikaalprofiile ei võrreldud. See on parim viis, kuidas võrrelda mudeli tööd seirejaamas mõõdetuga lisaks kontsentratsiooni absoluutväärtuste ning aegride võrdlusele. Profiilide puhul on tähtis võrrelda just profiili kuju, mitte ilmtingimata kontsentratsioonide absoluutväärtusi profiilis, sest heitmeandmete määramatus on suur. Arvutatud kontsentratsioonide üle- või alahindamine on seega oodatud tulemus. Arvestasin, et SILAM sai profiilide hindamisega rahuldavalt hakkama, kui oli näha sarnast profiilijoone tõusu. Näide: SILAM saab rahuldavalt hakkama, kui ennustab alumistes kihtides õigesti kõrgusega tõusvat suurust (potentsiaalne temperatuur või kontsentratsioon), mis kõrgemates kihtides asendus konstantse suurusega. Töös uurisin ka, milliseks arvab SILAM olevat kontsentratsiooni ja potentsiaalse temperatuuri vertikaalprofiili kõrgemates õhukihtides. Soov on saada aimu, kui hästi hajub mudelarvutuses saaste vertikaalselt.

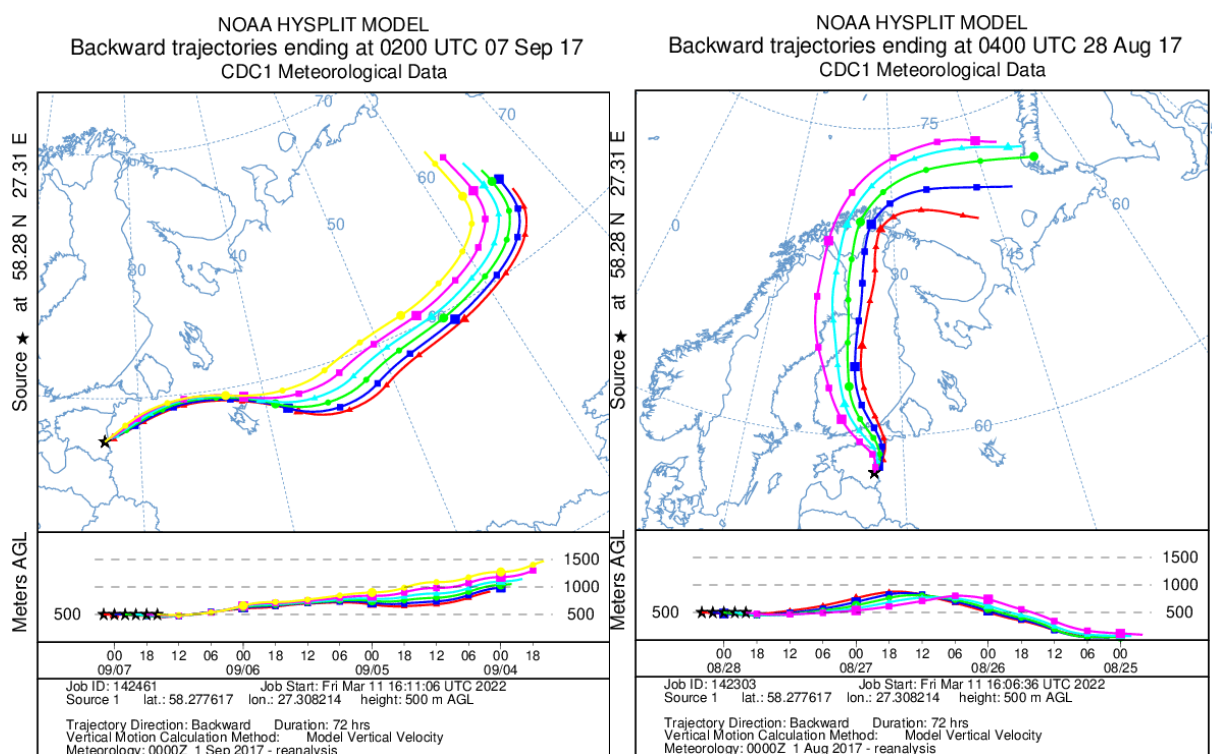
3 Tulemused

3.1 Eelanalüüs: HYSPLIT, SILAM

Kahekümnest episoodist vaadeldaval perioodil 2016–2020 (eksperthinnangu tulemus: oli võimalus, et saaste pärineb Kirde-Eestist) saadi HYSPLITiga modelleerimise järel teada, et Kirde-Eestist pärineb neist kaksteist episoodi. Joonis 1 on näitlikud HYSPLITi õhumassi trajektoorid. Selgus, et uurida ei saadud aasta 2020 piike, sest SILAMi jaoks polnud EKUKi serveris ilmamudeli andmeid. Samuti jäid vaatluse alt välja kaks 2019 aastal mõõdetud piiki (01.08.19), kuna ei suudetud määrata, milline SILAMi arvutatud piik vastab mõõdetule. Seega vaatluse alla jäi 17 kontsentratsiooni piiki, mõõdetud kuue inversiooniepisoodi ajal. Tabel 2 kirjeldab arvesse võetud episoodide üldandmeid.

Tabel 2. Kontsentratsiooni piikide esmane iseloomustus ja päritolu kirjeldus. Sulgudes olevad õhulisandi tähised tähendavad madalamaid piigi kontsentratsioone. Piike, kust muude allikate mõju oli võimalik, ei välistatud siiski analüüsist, et piikide valimit suurendada.

Episood	Tuule suund (ilmakaared)	Mis piigid	Stratifikatsioon	Õhumassi päritolu (HYSPLIT)
13.10.2016	N, NE	SO ₂ , (NO ₂)	Andmed lünklikud	Mõned trajektoorid lähevad üle Peterburi, mõni ka üle Koola poolsaare, kuid 1800 m kõrguselt ja 6 päeva varem, mõju on vähetõenäoline.
16./17.05.2017	N, NE	SO ₂ , NO ₂	Inversioon u. 4 °C	Puhtalt Kirde-Eesti piik: kõrged trajektoorid liiguvad üle Venemaa, linnadest mööda.
24.07.2017	N, NE	SO ₂ , NO ₂	Inversioon u. 3 °C	Trajektoorid lähevad kitsalt üle Koola ps. ja madalalt (400 m), võimalik mõju on olemas.
27./28.08.2017	NW, N, NE	SO ₂ , (NO ₂)	Inversioon u. 3 °C	Trajektoorid liiguvad üle Soome ja Rootsi, puhas Kirde-Eesti piik.
04/05.03.2018	NE, N, NW	SO ₂ , NO ₂	Inversioon u. 4 °C	Trajektoorid riivavad Peterburi 500 m kõrguselt. Mõned trajektoorid liiguvad üle Moskva.
24.01.2019	S	SO ₂ , NO ₂	Inversioon u. 1 °C	Pooled trajektooridest läbivad Kirde-Eestit, pärit Baltikumi ja Skandinaavia piirkonnast.
01./02.08.2019	N, NE	SO ₂ , (NO ₂)	Inversioon u. 2 °C	Koola ps. mõju võimalik, trajektoorid 800 m kõrgusel liiguvad sealt üle.



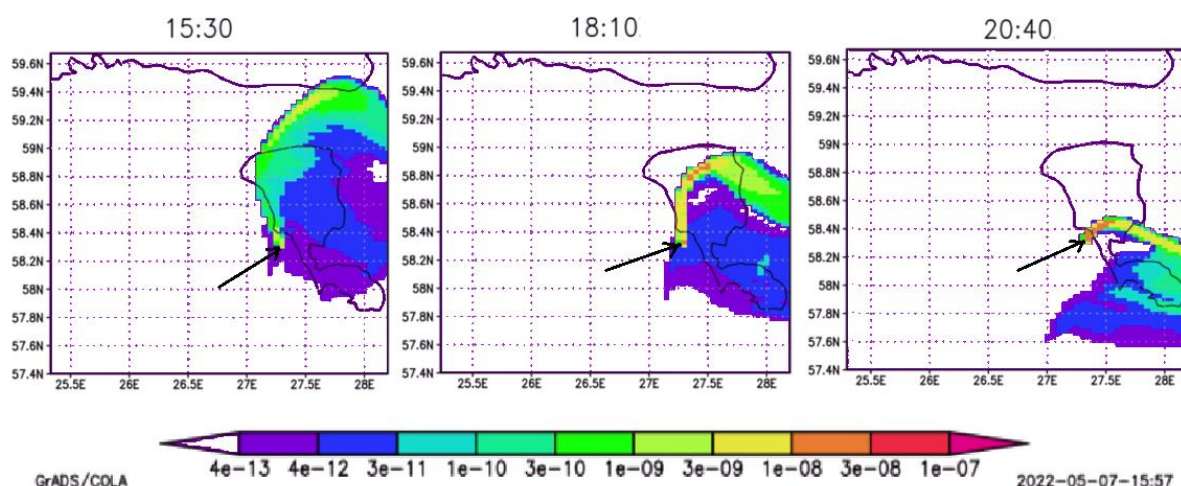
Joonis 1. Mudeli HYSPLIT väljund. Vasakul on näitlikud trajektoorid episoodist, mille kontsentratsiooni piik Kirde-Eestist ei pärinenud. Kontsentratsiooni piik mõõdeti 07.09.2017 20:00–22:00. Paremal on näitlikud trajektoorid episoodist, mis pärines Kirde-Eestist, tegu on 27.07.2017 23:00–28.07.2017 01:00 mõõdetud kontsentratsiooni piigiga. Kõik ajad on maailmaajas (UTC). Geograafiliste kaartide all on toodud ka õhumasside kõrguskäik, meetrites maapinnast.

SILAMi SO₂ piikide tagasiarvutus kinnitas, et kõigi kuue episoodi puhul on Kirde-Eesti tööstuspiirkonna mõju olemas. Näitlikuid kaadreid tagasiarvutuse tõenäosuspilvedest (nimetan nii tundlikkusjaotuse visuaalset pilti) kujutab Joonis 2.

3.2 Tundlikkusuuring

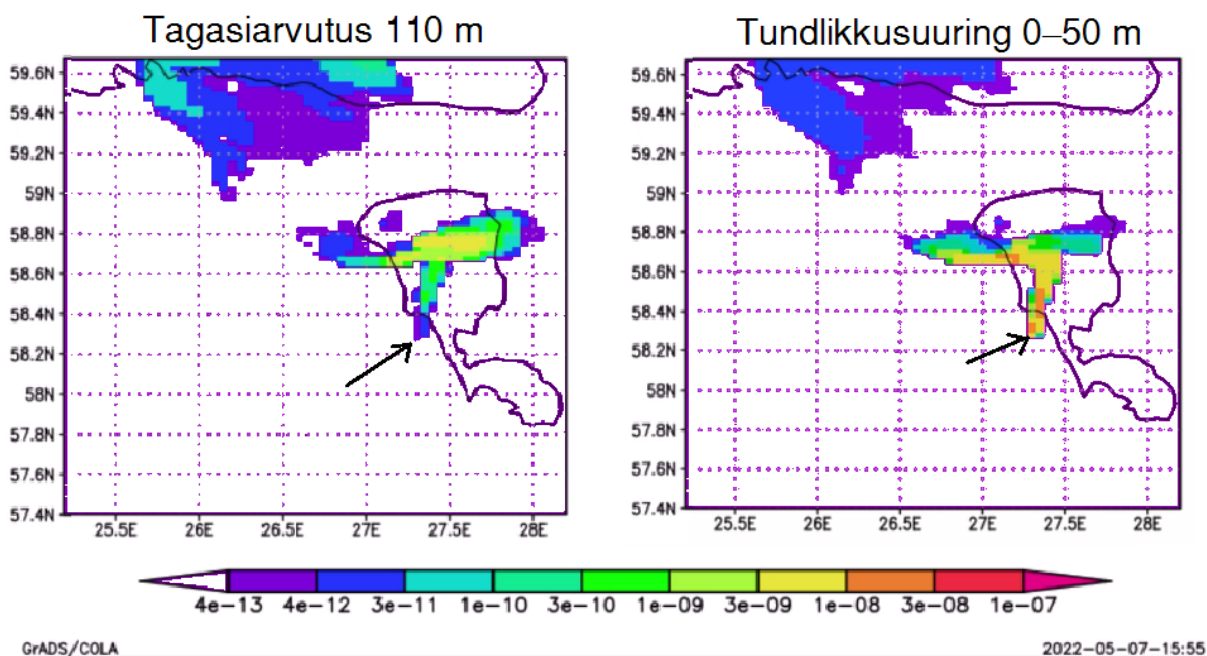
Tundlikkusuuringus arvatud tõenäosuspilvede (seitsme episoodi jaoks, sealhulgas ka veel 01.08.2019) võrdlemisel tagasiarvutuse tõenäosuspilvedega leidsin, et enamuse ajast olid tõenäosuspilved sarnased. Siiski, viiel episoodil seitsmest täheldati vaadeldud ajavahemikus vähemalt kahe tunni jooksul veidi erinevaid tõenäosuspilvi. Erinevus seisnes tundlikkusuuringu puhul tõenäosuspilve koondumises Järvelja jaama lähedale, jaamast kaugemal (sh Kirde-Eestis) oli tõenäosus piigi pärinemiseks sealt madalam. Näitlikku võrdlust kirjeldab Joonis 3. Mõnel juhul, kui tundlikkusuuring näitas jaotust jaama lähedal, ei näidanud tagasiarvutus üldse, et saaste oleks võinud jaama lähedalt pärineda. Kirde-Eesti allikate mõju vaadeldavasse piiki need erinevused ei mõjuta.

Tagasiarvutus Järvselja SO₂, 16. MAI 2017



Joonis 2. Kolm kaadrit tagasiarvutusest SILAMiga SO₂ kontsentratsiooni piigi jaoks, visualiseeritud on maapinnalähedast kihti 10 m kõrgusel, noolega on tähistatud Järvselja. Kõik ajad on maailmaajas (UTC). Ruumi kokkuhoiu mõttes pole tervet modelleeritavat ala (Eesti) välja toodud. Värvikoodiga tähistatud (normeerimata) suhtelises ühikutes tõenäosuspilv suubub üle Kirde-Eesti ja Peipsi kella 22:00-ks Järvselja mõõtejaama. Kell 15:30 on näha Kirde-Eesti kohal kõrgemat tõenäosuse väärtust. Vastav mõõdetud piigi maksimum oli kell 23:45. Tegu oli episoodiga kuupäeval 16.05.2017.

Järvselja SO₂, 17:10 12.OKT 2016



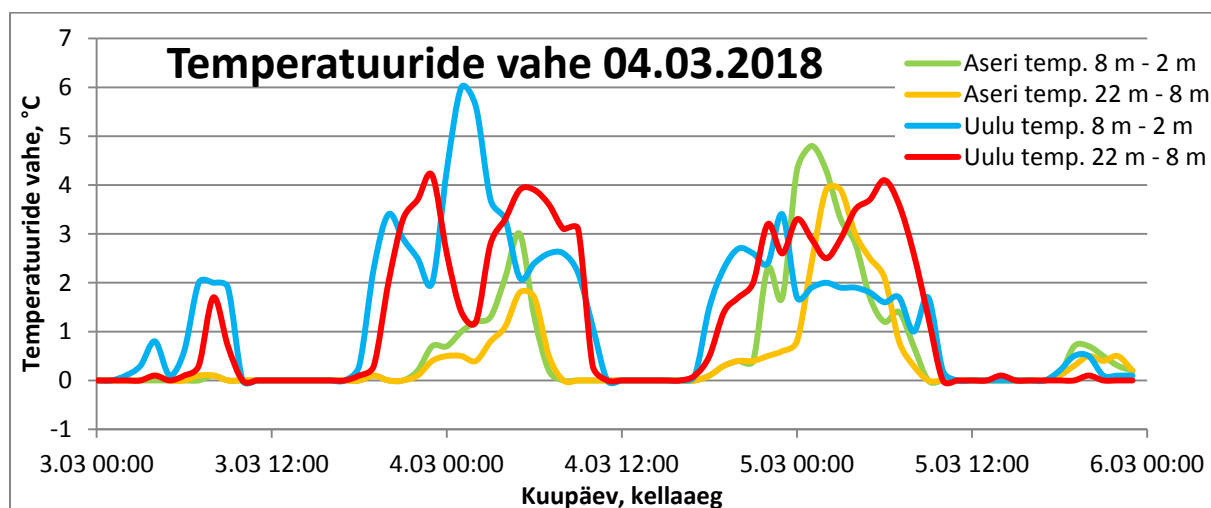
Joonis 3. 110 m kõrguselt tehtud SO₂ piigi tagasiarvutuse ja 0–50 m kõrgusel tehtud tundlikkusuuringu võrdlus, noolega on tähistatud Järvselja. Tundlikkusuuringu puhul on võrreldes tagasiarvutusega märgata tihedamat tõenäosuspilve mõõtejaama lähedal ning hõredamat tõenäosuspilve jaamast kaugemal. Värvikood on normeerimata suhtelises ühikutes.

3.3 Inversiooni ulatus

Aseri, Uulu ja Külitse madalate mastide mõõtmistest selgus, et kõik töös vaadeldud inversiooni sündmused olid laialdased, arvatavasti kogu õhumassi trajektooriga. Andmete olemasolu korral oli peaaegu alati näha temperatuuride erinevust vastavate kõrguste vahel. Vaid Aseri mast 13.10.2016 ja Külitse mast 24.01.2019 episoodi ajal ei näidanud üldse inversiooni. Kokkuvõtlik Tabel 3 toob välja kõik andmed. Joonis 4 on näitlik temperatuuride vahe ajaline käik 04.03.2018 episoodi ajal, teised graafikud olid sarnased.

Tabel 3. Temperatuuride erinevused toodud kõrgustel vaadeldud madalates mastides. Näidatud on kas temperatuuri erinevus või vahemik, juhul kui inversiooni ajal erinevus varieerus. Kriipsuga on tähistatud andmete puudumine.

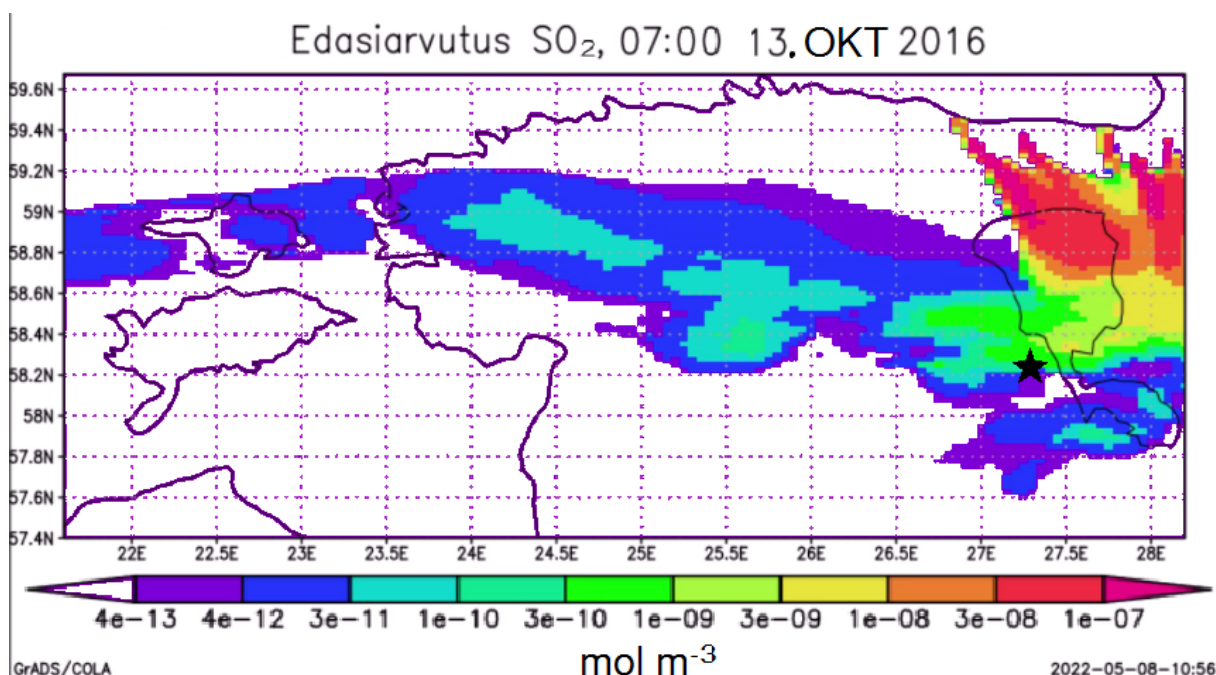
Episood	Aseri 8 m-2 m	Aseri 22 m-8 m	Uulu 8 m-2 m	Uulu 22 m-8 m	Külitse 8 m-2 m	Külitse 22 m-8 m
13.10.2016	0	0	1,5	0,5...2	-	-
16.05.2017	3	2,5	1...2	3...4,5	-	-
24.07.2017	-	-	2,5	2,5	-	-
27.08.2017	1...2	1,5...2	0,2...0,6	0,2	-	-
4.03.2018	1...2	0,5...1,5	2,5...5	2...3,5	-	-
24.01.2019	-	-	-	-	0	0



Joonis 4. Temperatuuri erinevused 8 m ja 2 m vahel ja 22 m ja 8 m vahel. Olemas olid kahe masti, Uulu ja Aseri andmed. Piigi ajal olid ka neis jaamades inversioonid. Vastavad mõõdetud piigi maksimumid Järvelja mõõtejaamas olid 4.03 kell 6:45, 13:15 ja 14:45 (Järveljal kõrgemates kihtides inversioon ka päeval täielikult ei hajunud). Kõik ajad on maailmaajas UTC.

3.4 Arvutused ajas edasi

Ka ajas edasi arvutuste („edasiarvutuste“) jaoks tehti animatsioonid, et jälgida saastepilve liikumist üle Järvselja jaama. Tulemustena pole neil kvantitatiivset väärtust, kuid animatsioonid aitasid kaasa protsessi mõistmisele. Põhirõhk töös oli edasiarvutusest saadavate andmete võrdlusel mõõdetud andmetega. Joonis 5 näitab kaadrit edasiarvutusest, kui saastejuga on minemas üle Järvselja mõõtejaama.



Joonis 5. Kirde-Eesti allikatest lähtuva edasiarvutuse kaader, musta tähega on tähistatud Järvselja mõõtejaama. Hetkel arvutatakse SO₂ kontsentratsioone. Värvilise skaala (arvutatava kontsentratsiooni) ühikuks on mol m⁻³, sest selline on SILAMi väljund. Järvselja mõõtejaama koordinaatidelt andmete väljavõtet tehes ühikud teisendati.

3.5 Arvutatu ja mõõdetu võrdlus

Kontsentratsiooni piigi maksimumide võrdlus näitas, et SILAM saab SO₂ kontsentratsioonide arvutamisega hakkama palju paremini, kui NO_x omadega. SO₂ jaoks tuli FA2 väärtuseks 5/9, mis tähendab, et üheksast uuritud SO₂ piigist viis olid hästi hinnatud. NO_x jaoks oli vastav FA2 väärtus vaid 1/8. Tuleb ka mainida, et kolmel juhul viiest hästi hinnatud SO₂ kontsentratsiooni maksimumist oli tegu nõrga inversiooniga, samuti oli ainuke NO_x õigesti hinnatud maksimum nõrga inversiooni ajal. Alla 1 °C mõõdetud inversiooni (30–70 m vahel) lugesin nõrgaks. Detailsed tulemused toob Tabel 4. Aegridade vaatlusel täheldati, et arvutatud piigi maksimumi hetk võib mõõdetust erineda -2...+4 tundi. Piik oli SO₂ puhul ajaliselt keskmiselt 2,7 tundi lühem, NO_x puhul 3,3 tundi lühem. Standardhälbed olid vastavalt 1,7 ja 2,1 tundi.

Tabel 4. FA2 suhtarvu määramine, välja on toodud kontsentratsioonid $\mu\text{g m}^{-3}$. Kollasega on tähistatud sündmused, kui inversioon oli nõrk. „1“ tähistab hästi hinnatud piiki, muul juhul on toodud, kas piik hinnati üle või alla. Kokkuvõtvad tulemused vaata ka Tabel 6.

Sündmus	SO ₂ mõõdetud	SO ₂ arvutatud	SO ₂ hinnang	NO _x mõõdetud	NO _x arvutatud	NO _x hinnang
13.10.2016 1	3,2	1,1	alla	1,8	0,1	alla
13.10.2016 2	3,2	0,8	alla	3,2	0,1	alla
13.10.2016 3	11,1	3,2	alla	8,2	0,4	alla
16.05.2017	5,9	1,5	alla	2,8	1,1	alla
24.07.2017	24,5	12,8	1	6,1	14,7	üle
27.08.2017	6,5	8,4	1	2,0	4,0	üle
4.03.2018 1	-	-	-	24,5	1,5	alla
4.03.2018 2	10,5	8,0	1	-	-	-
4.03.2018 3	5,3	5,0	1	-	-	-
24.01.2019	5,8	8,5	1	8,5	6,8	1
FA2			0,556			0,125

Maksimumis jäid mõõdetud temperatuuriinversiooni tugevused 30–70 m vahel vahemikku 0,3–3,4 °C, arvutatud tugevused (mida sai mõõdetuga võrrelda) jäid vahemikku -0,4 – 1,6 °C. Miinusemärk näitab, et alati ei suutnud SILAM inversiooni ette näha, vaid pidas atmosfääri neutraalseks (potentsiaalse temperatuuri väärtus oleks veidi suurem, ehk nulli lähedal). SILAM hindas inversiooni tugevust vaadeldavas kõrguste vahemikus 0,6–3,1 °C alla, keskmiselt 1,3 °C. Tabel 5 toob välja arvulised väärtused. Temperatuuri aegridade vaatlusel täheldati, et SILAMis kahe inversiooni maksimum hilineb 3 tundi (16.05.17, 27.08.17), pärast kahte inversiooni jõuab temperatuur päevasele tasemele umbes 4 tundi hiljem (27.08.17, 04.03.2018) ning kahe episoodi puhul ei näita SILAMi arvutus üldse inversiooni (24.07.2017, 24.01.2019), vt ka Tabel 6.

Tabel 5. Inversiooni tugevuste võrdlus toodud kõrguste vahe juures. 13.10.2016 olid andmed poolikud ja ebausaldusväärsed.

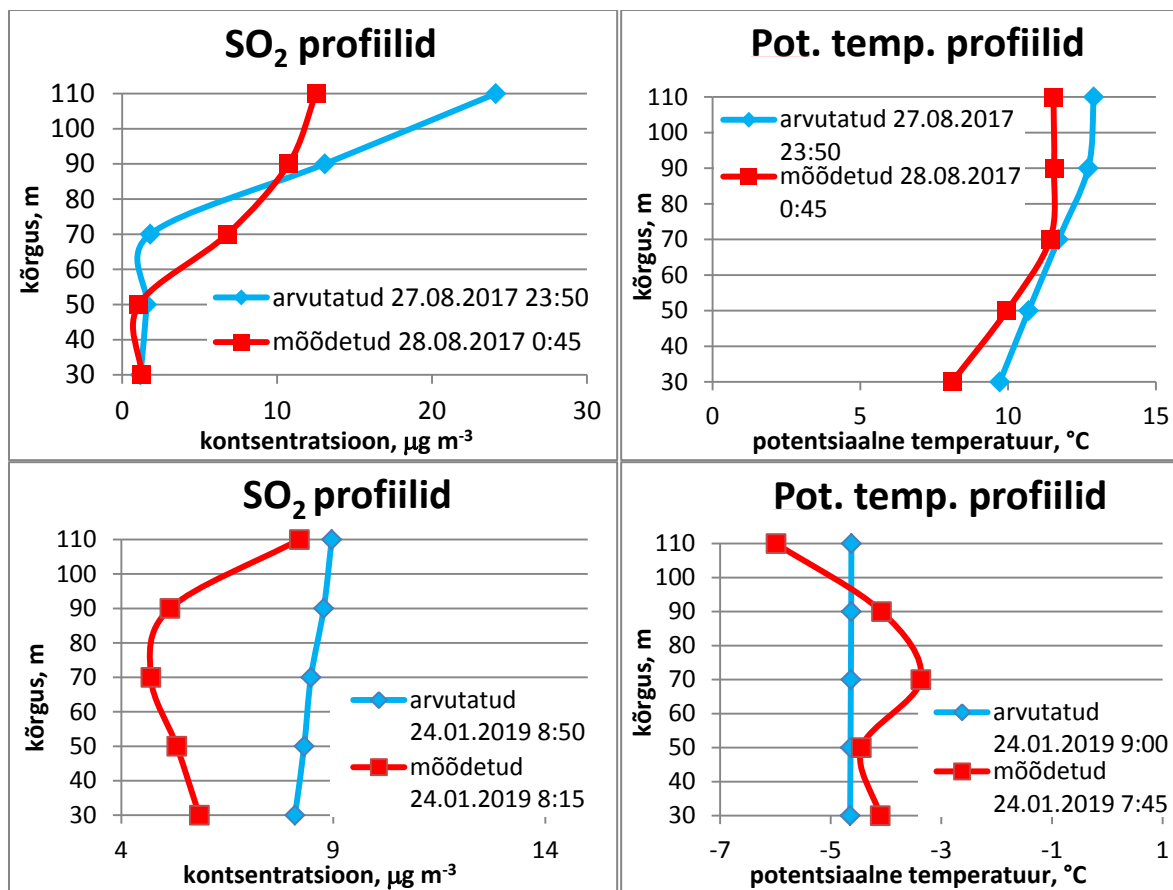
Sündmus	Mõõdetud inversiooni tugevus 30-70 m (°C)	Arvutatud inversiooni tugevus 30-70 m (°C)	Inversiooni tugevus alahinnatud (°C)
13.10.2016 1	lüngad andmetes	2,1	-
13.10.2016 2	lüngad andmetes	0,8	-
13.10.2016 3	lüngad andmetes	-0,2	-
16.05.2017	3,4	0,4	3,1
24.07.2017	1,5	-0,1	1,6
27.08.2017	2,9	1,6	1,3
4.03.2018 1	0,4	-0,4	0,8
4.03.2018 2	0,3	-0,4	0,7
4.03.2018 3	0,7	-0,2	0,9
24.01.2019	0,3	-0,3	0,6

Potentsiaalse temperatuuri profiilide analüüsimisel leiti, et SILAM on hinnanud hästi neli profiili kaheksast. Kolmel juhul ennustas siis SILAM hästi ka kõik kontsentratsiooni profiilid. Ühel juhul ei vastanud potentsiaalse temperatuuri profiil mõõdetule, kuid kontsentratsiooni piik oli sellegipoolest hästi ennustatud. Kokkuvõtlik Tabel 6 toob välja sündmuste tähtsaima võrdluse koos profiilide analüüsiga, Joonised 6 on näitlikud hästi ja halvasti hinnatud vertikaalprofiilid.

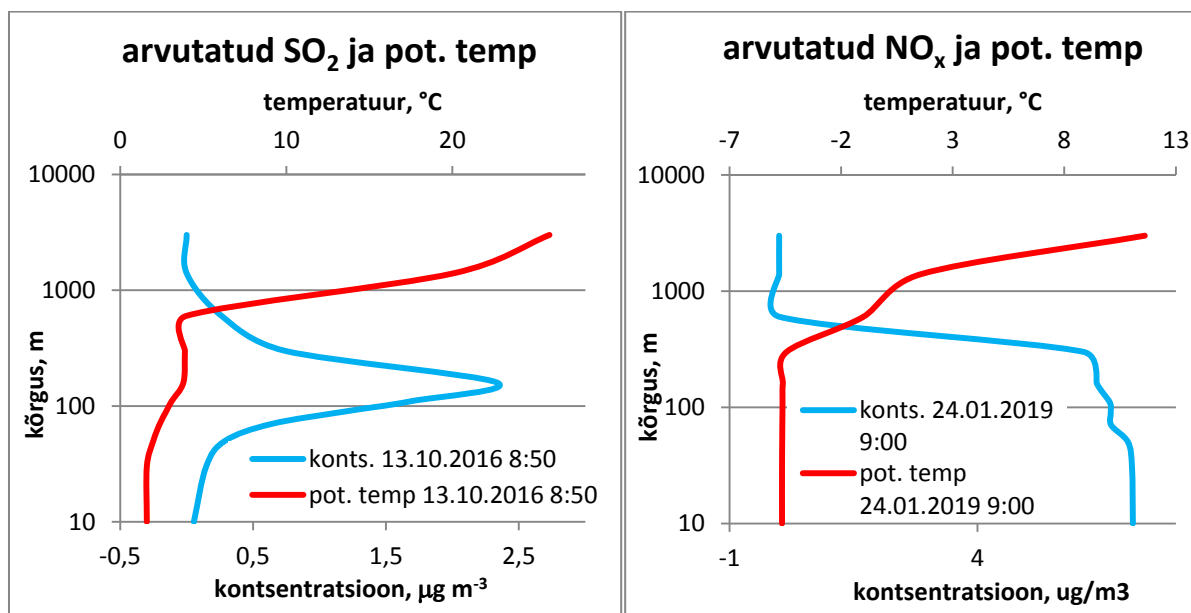
Tabel 6. Kokkuvõtlik tähtsamate tulemuste tabel. θ on potentsiaalne temperatuur, c on kontsentratsioon.

Sündmus	Inversiooni kirjeldus	Mõõdetud inversiooni tugevus 30-70 m (°C)	Inversiooni tugevus alahinnatud (°C)	θ profiil õige?	c profiil õige?		Piik maksimumis hinnatud	
					SO ₂	NO _x	SO ₂	NO _x
13.10.2016 1	lüngad andmetes	lüngad andmetes	-	-	0	1	alla	alla
13.10.2016 2	lüngad andmetes	lüngad andmetes	-	-	1	0	alla	alla
13.10.2016 3	lüngad andmetes	lüngad andmetes	-	-	0	1	alla	alla
16.05.2017	maksimum 2 tundi hiljem	3,4	3,1	0	0	0	alla	alla
24.07.2017	kõik temperatuurid üle hinnatud	1,5	1,6	1	0	0	hästi	üle
27.08.2017	maksimum 3 tundi hiljem, temperatuur päevasele tasemele 5 tundi hiljem	2,9	1,3	1	1	1	hästi	üle
4.03.2018 1	temperatuur päevasele tasemele 3 tundi hiljem	0,4	0,8	1	-	1	-	alla
4.03.2018 2	sama inversioon	0,3	0,7	0	0	-	hästi	-
4.03.2018 3	sama inversioon	0,7	0,9	1	1	-	hästi	-
24.01.2019	maapinnalähedased temperatuurid üle hinnatud	0,3	0,6	0	0	1	hästi	hästi

Viimasena vaadeldi SILAMi väljundit kõikidel mudeli kõrgustel. Tulemused jagunesid kaheks juhuks: kui mudel hindas atmosfääri maapinna lähedal kas neutraalseks või stabiilseks. Neutraalse atmosfääri juhul oli maapinna lähedal kontsentratsioon kõrgusega konstantne kõrguseni 50–300 m, saastejoa telge ei saanud määrata. Kui ülal, tüüpiliselt 30–160 m kõrgusel esines inversioon, oli hästi näha joa telge veidi kõrgemal mastist, 110–600 m kõrgusel. Joonised 7 toovad välja näitlikud olukorrad. Punktallikast pärinevas vähe hajunud saastejoas on eristatav kõrgeima kontsentratsiooniga keskosa ehk mõtteline telg, mis vastab saasteallika kõrgusele koos joa esialgse soojusliku tõusuga allikast väljudes. Tõusvates või laskuvates õhuvooludes võib telje kõrgus ka allatuult levides muutuda.



Joonised 6. Näitlikud kontsentratsiooni (vasakul) ja potentsiaalse temperatuuri (paremal) vertikaalprofiilid. Ülemised profiilid on SILAMi poolt metoodika järgi hästi hinnatud, alumised ebapiisavalt hinnatud.



Joonised 7. Kõikidel kõrgustel arvutatud suurused. Vasakul on inversiooniga, paremal neutraalse atmosfääriga juht. Kõrgustelg on logaritmiline, et nii pinna lähedal kui kõrgemal toimuv oleks eristatav.

4 Arutelu

Tundlikkusuuring näitas, et õhumassi päritolus pole olulist vahet nende kõrguste vahel, mida mastis mõõdeti. Kogu saaste tuleb ühelt ja samalt maa-alalt, ehkki väliste allikate mõju on siiski vähesel määral võimalik. Tundlikkusuuring ei kajasta tegelikkust detailselt: maapinnast vähemalt 30 m kõrguseni on Järveljal puuvõrad ning SILAM neid arvesse ei võta, sest poorse kihi mudelit tal ei ole. Sellises mudelis saaks teha eelduse, et vahetult võrade kohal olev kontsentratsioon difundeerub ka võrade vahele, sest võrad põhjustavad isegi nõrga tuulega mõningast hõõrdeturbulentsi.

See, et paljusid piigi maksimumi keskmisi kontsentratsioone alahinnatakse, võib tähendada, et mudelis on saaste vertikaalne hajumine alahinnatud. Kindlalt seda väita ei saa, kuna heitmeandmed võivad olla ebatäpsed: näiteks pool aastat töötanud korstna aastakeskmise heide on ühel poolel aastast üle hinnatud, teisel poolel aastast alahinnatud.

Märgatav on, et kontsentratsiooni arväärtuse ja profiili hindamise õigsust tuleb hinnata sõltumatult, nende vahel ühene seos puudub. NO_x puhul ennustati õigesti üks arväärtus, kuid viis profiili, SO_2 puhul aga vastupidiselt olid õiged viis arväärtust, kuid kolm profiili. See viitab veelgi, et heitmeandmed pole parima täpsusega.

Piikide lühem kestvus mudelis võib tähendada ka saaste horisontaalse hajumise alahindamist. Kui saaste hajuks horisontaalselt rohkem, oleks ka piik rohkem laiali määratud, sest piigi ajaline kestus iseloomustab aega, mille jooksul saastega libiseb üle mõõtekoha. Mõnel juhul võib mitme saasteallika liitunud juga tekitada kestvama ja lamedama piigi (tüüpiline levikumuster vt. Joonis 5).

Piikide ajaline varieeruvus on arvatavasti põhjustatud ilmamudeli sisendist. Piigi tekkimiseks liigub saastega tavaliselt üle seirejaama. Millal see täpselt üle seirejaama liigub, sõltubki ilmamudelist, täpsemalt tuultevälja ja selle ajalise muutlikkuse täpsusest ilmamudeli väljundis. Ilmamudeliga saaks tõenäoliselt seletada ka mõningaid inversiooni maksimumi ja lõpu hilinemisi. SILAMi kasutatavad Eesti HIRLAMi meteoroloogilised väljad sõltuvad omakorda Euroopa Keskpika Ilmaprognoosi Keskuse (ECMWF) ääreväljadest. Ilmaprognoosi seisukohalt väikesed erinevused tuule suundades järjestikustel ajasammudel võivad põhjustada silmnähtavaid erinevusi inversiooniolukorrale omaste suhteliselt kitsaste saastegade liikumises. Teine võimalus inversioonide hilinemise seletamiseks võib olla

puudus päevase ja öise piirkihi vaheldumise parametriseringutes, mida komplitseerib omakorda metsa mikrokliima.

Inversiooni tugevuste uuring toob välja, et SILAM ei saa kõige paremini hakkama inversiooni tugevuse hindamisega ning alahindab viimast. Valikusse jäänud episoodides oli ka väga nõrku inversioone. Sellist täpsust oleks mudelilt palju nõuda, kuid ka tugevamate inversioonide tugevused oli SILAM alahinnanud. Lõpuks jäi inversiooniolukordi valikusse vähe, kahjuks ka 2016 aastat ei saanud arvesse võtta inversiooni tugevuse hindamisel, sest katkestused masti mõnedel mõõtekõrgustel võivad viidata ka ülejäänud andmete ebatäpsusele. SILAMi piirangute põhjus on arusaadav: ilnamudeli väljundis, mis suuresti põhineb sondpalli andmetel, polegi infot nii madalatest atmosfääri kihtidest. Ilmaprognoosi mudelite arendamisel ei panda suurt rõhku atmosfääri piirkihi detailsele kirjeldusele, sest sel ei ole reeglina otsustavat mõju prognoositud ilmale. Rolli mängib ka siin metsase koha iseärasus: metsaladvad ulatuvad 30 m tasemeni ja mõjutavad õhukihte kõrgemalgi.

Selgus aga, et SILAM saab siiski pooltel juhtudest potentsiaalse temperatuuri profiili hindamisega rahuldavalt hakkama. Viimase korrektne hindamine on (võrreldavate andmete ulatuses) eelduseks, et kontsentratsiooni profiil oleks hästi ennustatud. Üks piik, mille kontsentratsiooni profiil oli üsna õigesti hinnatud potentsiaalset temperatuuri õigesti hindamata, võis olla juhus ja veidi ka profiili klassifitseerimise küsimus. Kontsentratsioon oli mõlemal juhul kõrgusega peaaegu konstantne.

SILAMi vertikaalprofiilid kõikidel kõrgustel näitavad, et mudel annab ka keerulises inversiooniolukorras enamasti realistlikke tulemusi, kuid kuna mast (tugevama inversiooni ajal) saastejoa teljeni enamasti ei küüni, siis seal me mudeli tööd hinnata ei saa. Kõrge joa telg on adekvaatne, sest allikast väljumisel tõuseb saastepilv tema kõrge temperatuuri tõttu tavaliselt 200–400 m kõrgusele.

Kokkuvõte

Temperatuuri maapinnalähedane inversioon on nähtus, millel on õhusaastega koostoimel arvestatav mõju inimesele. Nähtus pärssib välisõhu vertikaalset segunemist, mis tähendab, et inversioonikihti sattuv saaste koguneb inversiooni tekkimisel maapinna lähedale, tekitades linnades sudu. Inversiooni kohal oleva kõrge allikast pärineva saaste jõudmine maapinnale on aga raskendatud. Atmosfääri keemia-transpordi mudelid suudavad üldjuhul saastetasemeid prognoosida, lisaks on nad kasutusel saaste leviku modelleerimisel keemia- ja tuumapihkumiste korral. On teada, et pinnainversioon on mudelite jaoks keeruline olukord, sest maapinna lähedal transpordimudeli sisendiks oleva ilmamudeli andmeid neil kõrgustel napib. Tarvilikud on lisauuringud, et ka sellises olukorras mudel ennustaks saasteaine kontsentratsioone hästi.

Selle töö eesmärk oli välja uurida, kui usaldusväärne on Soome Ilmateenistuse arendatav keemia-transpordi mudel SILAM, kasutades selleks ära head võimalust: teadaolevast allikast saab kaugemal, seirejaamades, detekteerida lühiajalisi saasteaine kontsentratsiooni tõuse ehk piike. Kirde-Eesti kõrgetest korstnatest pärinevaid vääveldioksiidi (SO_2) ja lämmastiku oksiidide (NO_x) piike detekteeriti SMEAR Estonia Järvelja 130-meetrises mõõtemastis, vaatluse all oli periood 2016–2020. Kirde-Eesti põlevkivitööstuse saasteallikate mõju kindlaks väljaselgitamiseks kasutati kahte kontrollimeetodit: lihtsam mudel HYSPLIT, mis näitas seirejaama jõudnud õhumasside päritolu (trajektoore), ning seejärel SILAMi arvutus ajas tagasi, mis andis tundlikkusjaotuse (asukoha läbimise „tõenäosuspilve“) geograafilisel kaardil. Kui mõlemad kontrollid näitasid Kirde-Eesti mõju, teostas autor SILAMiga ajas edasi arvutused, kasutades Kirde-Eesti saasteallikate aastakeskmisi heiteandmeid. Väljundist saadud arvutatud kontsentratsioone võrreldi Järvelja mõõtemastis mõõdetuga: mudeli tööd hinnati kontsentratsiooni ning potentsiaalse temperatuuri aegridadele ja vertikaalprofiilidele tuginedes.

Tulemustest selgub, et piigi maksimumi hetkel üle kõrguste keskmistatud kontsentratsioone hindab SILAM hästi alla poolte juhtudest, paremini hindab SO_2 piike, kui NO_x omi. Halvemini hinnatud kontsentratsioone hindab mudel peaaegu alati alla. Üks põhjustest võib olla, et mudel hindab saaste vertikaalset hajumist alla, kuid seda kindlalt väita ei saa heitmeandmete suure määramatuse tõttu (aastakeskmised). Paremate heitmeandmete saamiseks tulevikus tehakse koostööd Eesti Keskkonnauuringute Keskusega. Piikide keskmine kestvus osutus mudelis lühemaks, põhjus võib olla (lisaks vertikaalsele hajumisele)

ka saaste horisontaalse hajumise alahindamine inversiooni ajal. Inversiooni tugevust 30-70 m kõrgusel SILAM alahindab, põhjuste täpsemaks väljaselgitamiseks on vaja läbi vaadata mudelis kasutatavaid piirkihi parametrizeeringud, selles osas tehakse koostööd Soome Ilmateenistusega.

Tänuavaldused

Autor avaldab tänu Eesti Keskkonnauuringute Keskuse õhukvaliteedi- ja kliimaosakonna juhatajale Erik Teinemaale SILAMi mudeleksperimentide võimaldamise eest Eesti Keskkonnauuringute Keskuse serveris ja tõhusate nõuannete eest selles vallas. Töö panustab mudeli SILAM juurutamisse Eesti õhukvaliteedi seiresüsteemis.

Kasutatud kirjandus

Ahrens, C.D. (2009), *Meteorology Today: An Introduction to Weather, Climate, and the Environment*. 9th edn. Brooks/Cole, Cengage Learning.

Harmonie wiki (no date), 'HARMONIE Vertical Model Level Definitions'. Available at: <https://hirlam.github.io/HarmonieSystemDocumentation/dev/ExperimentConfiguration/VerticalGrid/> (Accessed: 27 May 2022).

Keskkonnaagentuur (2017), *SO₂ heitkogused Eestis*. Available at: <https://keskkonnaagentuur.ee/uudised/so2-heitkogused-eestis> (Vaadatud: 2. mai 2022).

Liu, F., Beirle, S., Zhang, Q., Dörner, S., He, K. and Wagner, T. (2016), 'NO_x lifetimes and emissions of cities and power plants in polluted background estimated by satellite observations', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(8), pp. 5283–5298. doi:doi.org/10.5194/acp-16-5283-2016.

Lyamani, H., Fernández-Gálvez, J., Pérez-Ramírez, D., Valenzuela, A., Antón, M., Alados, I., Titos, G., Olmo, F.J., Alados-Arboledas, L. (2012), 'Aerosol properties over two urban sites in South Spain during an extended stagnation episode in winter season', *Atmospheric Environment*, 62, pp. 424–432. doi:10.1016/j.atmosenv.2012.08.050.

NOAA (2022), 'HYSPLIT'. National Oceanic and Atmospheric Administration. Available at: <https://www.ready.noaa.gov/HYSPLIT.php> (Accessed: 22 April 2022).

Noe, S.M., Niinemets, Ü., Krasnova, A., Krasnov, D., Motallebi, A., Kängsepp, V., Jõgiste, K., Hörrak, U., Komsaare, K., Mirme, S., Vana, M., Tammet, H., Bäck, J., Vesala, T., Kulmala, M., Petäjä, T., Kangur, A. (2015), 'SMEAR Estonia: Perspectives of a large-scale forest ecosystem–atmosphere research infrastructure', *Forestry Studies*, 63, pp. 56–84. doi:10.1515/fsmu-2015-0009.

NRC (US) Committee on Toxicology (1984), *Emergency and Continuous Exposure Limits for Selected Airborne Contaminants*. Washington (DC): National Academies Press (US). Available at: <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/books/NBK208295/>.

Orru, H., Teinemaa, E., Lai, T., Merisalu, E., Tamm, T., Kaasik, M., Kimmel, V., Orru, K., Forsberg, B. (2010), 'Particulate matter in outdoor air and related health impacts in five major Estonian towns', *Eesti Arst*, 89(4), pp. 242–250. doi:10.1289/ehp.0901220.

Pohjola, M.A., Rantamäki, M., Kukkonen, J., Karppinen, A., Berge, E. (2004), 'Meteorological evaluation of a severe air pollution episode in Helsinki on 27–29 December 1995', *Boreal Environment Research*, 9, pp. 75–87.

'Põletusseadmetest välisõhku eralduvate saasteainete heitkoguste määramise kord ja määramismeetodid' (2003). Riigi Teataja. Saadaval: <https://www.riigiteataja.ee/akt/615828> (Vaadatud: 27. mai 2022).

Prasad, P., Basha, G. and Ratnam, M.V. (2022), 'Is the atmospheric boundary layer altitude or the strong thermal inversions that control the vertical extent of aerosols?', *Science of the Total Environment*, 802, p. 149758 [13 p]. doi:10.1016/j.scitotenv.2021.149758.

- Rantamäki, M., Pohjola, M.A., Tisler, P., Bremer, P., Kukkonen, J., Karppinen, A. (2005), 'Evaluation of two versions of the HIRLAM numerical weather prediction model during an air pollution episode in southern Finland', *Atmospheric Environment*, 39(15), pp. 2775–2786. doi:10.1016/j.atmosenv.2004.12.050.
- Romieu, I., Samet, J.M., Smith, K.R., Bruce, N. (2002), 'Outdoor air pollution and acute respiratory infections among children in developing countries', *Journal of occupational and environmental medicine*, 44(7), pp. 640–649. doi:10.1097/00043764-200207000-00010.
- Seinfeld, J.H. and Pandis, S.N. (2016), *Atmospheric Chemistry And Physics*. 3rd edn. John Wiley & Sons, Inc.
- 'SILAM v5.7' (2014). Finnish Meteorological Institute. Available at: <https://silam.fmi.fi/> (Accessed: 18 February 2022).
- Sofiev, M., Genikovich, E., Keronen, P., Vesala, T. (2010), 'Diagnosing the Surface Layer Parameters for Dispersion Models within the Meteorological-to-Dispersion Modeling Interface', *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 49(2), pp. 221–233. doi:10.1175/2009JAMC2210.1.
- Sofiev, M., Vira, J., Kouznetsov, R., Prank, M., Soares, J., Genikhovich, E. (2015), 'Construction of an Eulerian atmospheric dispersion model based on the advection algorithm of M. Galperin: dynamic cores v. 4 and 5 of SILAM v. 5.5.', *Geoscientific Model Development Discussions*, 8(3). doi:10.5194/gmdd-8-2905-2015.
- Sofiev, M. and Silijamo, P. (2004), 'Forward and Inverse Simulations with Finnish Emergency Model Silam.', in *Borrego, C., Incecik, S. (eds) Air Pollution Modeling and Its Application XVI*. Boston, MA: Springer. doi:10.1007/978-1-4419-8867-6_38.
- 'temperature inversion' (2020), *Encyclopedia Britannica*. Available at: <https://www.britannica.com/science/temperature-inversion>.
- Trinh, T. T., Trinh, T.T., Le, T.T., Tu, B.M., Nguyen, T.D.H. (2019), 'Temperature inversion and air pollution relationship, and its effects on human health in Hanoi City, Vietnam', *Environmental geochemistry and health*, 41(2), pp. 929–937. doi:10.1007/s10653-018-0190-0.
- U.S. EPA (2016), *Integrated Science Assessment (ISA) for Oxides of Nitrogen – Health Criteria (Final Report, Jan 2016)*. Washington, DC: U.S. Environmental Protection Agency.
- U.S. EPA (2017), *Integrated Science Assessment (ISA) for Sulfur Oxides – Health Criteria (Final Report, Dec 2017)*. Washington, DC: U.S. Environmental Protection Agency.
- 'User-guide for SILAM chemical transport model' (no date). Finnish Meteorological Institute. Available at: https://silam.fmi.fi/doc/SILAM_v5_userGuide_general.pdf (Accessed: 18 February 2022).
- WHO (2006), *Air quality guidelines: global update 2005: particulate matter, ozone, nitrogen dioxide and sulfur dioxide*. World Health Organization. Regional Office for Europe. Available at: <https://apps.who.int/iris/handle/10665/107823>.

Lihtlitsents lõputöö reprodutseerimiseks ja üldsusele kättesaadavaks tegemiseks

Mina, Raido Kiss,

1. annan Tartu Ülikoolile tasuta loa (lihtlitsentsi) minu loodud teose

Atmosfääri keemia-transpordi mudeli SILAM usaldusväärsuse hindamine temperatuuri maapinnalähedase inversiooni tingimustes

mille juhendaja on Marko Kaasik,

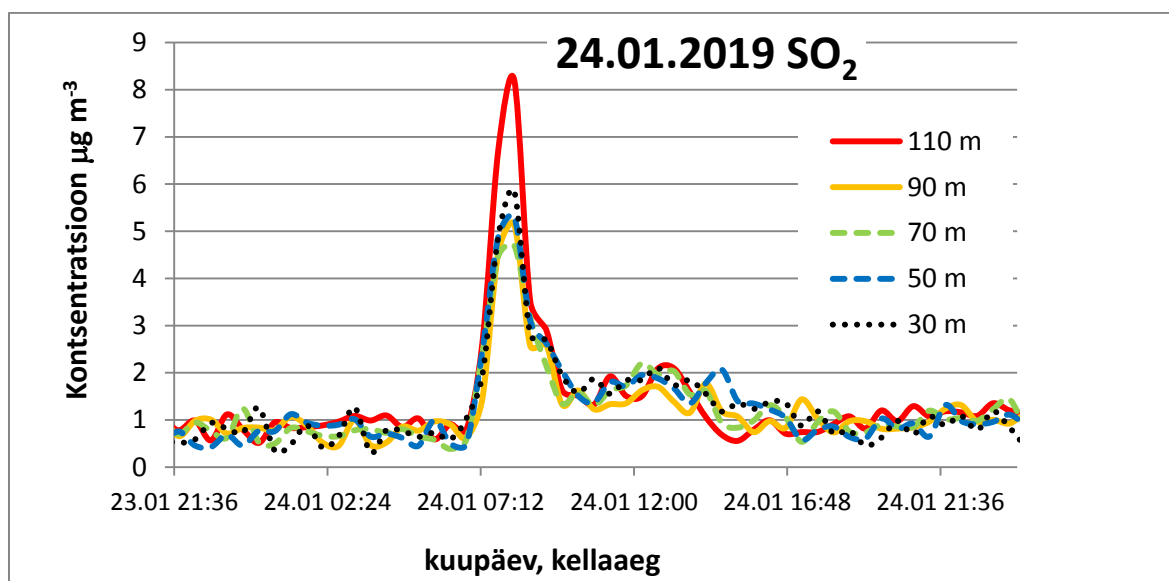
reprodutseerimiseks eesmärgiga seda säilitada, sealhulgas lisada digitaalarhiivi DSpace kuni autoriõiguse kehtivuse lõppemiseni.

2. Annan Tartu Ülikoolile loa teha punktis 1 nimetatud teos üldsusele kättesaadavaks Tartu Ülikooli veebikeskkonna, sealhulgas digitaalarhiivi DSpace kaudu Creative Commons'i litsentsiga CC BY NC ND 4.0, mis lubab autorile viidates teost reprodutseerida, levitada ja üldsusele suunata ning keelab luua tuletatud teost ja kasutada teost ärieesmärgil, kuni autoriõiguse kehtivuse lõppemiseni.
3. Olen teadlik, et punktides 1 ja 2 nimetatud õigused jäävad alles ka autorile.
4. Kinnitan, et lihtlitsentsi andmisega ei riku ma teiste isikute intellektuaalomandi ega isikuandmete kaitse õigusaktidest tulenevaid õigusi.

Raido Kiss
27.05.2022

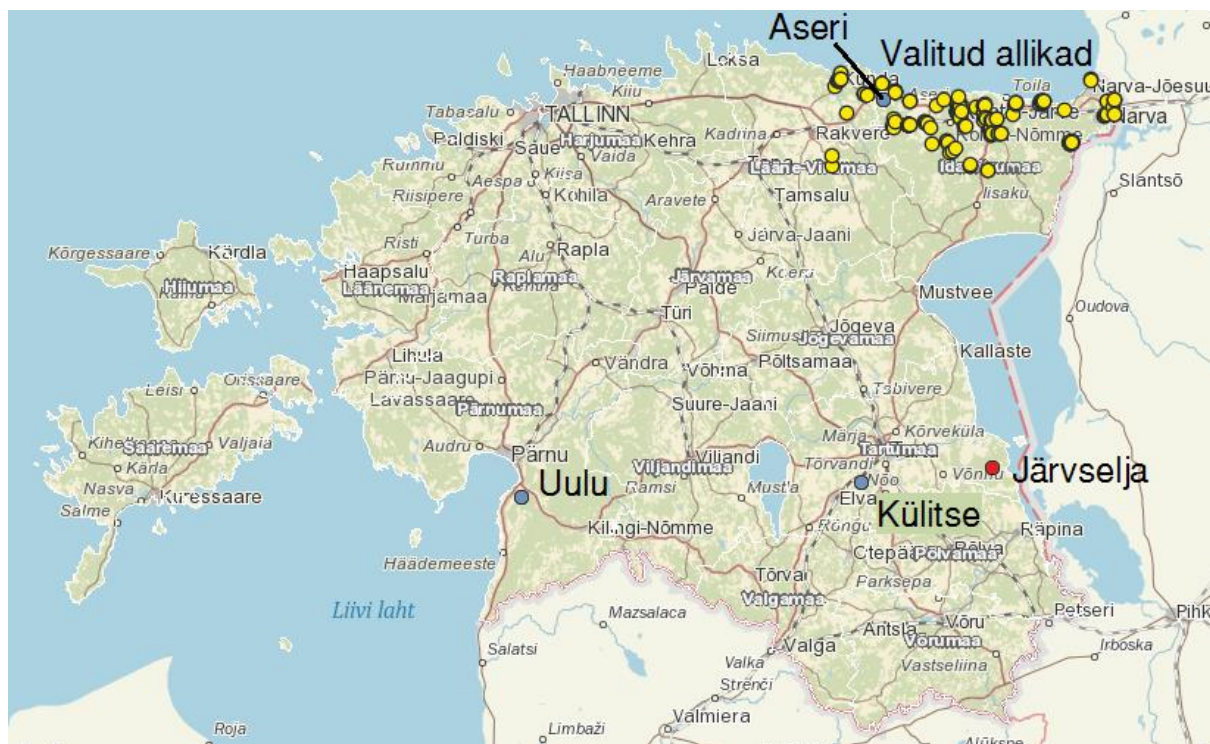
Lisad

Lisa 1



Lisa 1. Järvelja mastis mõõdetud SO₂ kontsentratsiooni piik. Eri värvidega on mõõtmiskõrgus Järvelja mastis, meetrites.

Lisa 2



Lisa 2. Kollasega on tähistatud heitmeandmete valik andmebaasidest OSIS või KOTKAS. Kollasega on kõik algselt valitud allikad, arvutustes kasutati vaid heitmeid, mis olid üle

1 g s^{-1} . Tumesinisega kasutatud Eesti Keskkonnauuringute Keskuse lühemad mastid. Punasega on Järvelja mõõtemast.

Lisa 3

Töös koostatud andmetöötlusprogrammi terviklik lähtekood on saadaval järgneval aadressil:

https://github.com/raidokiss/SILAM_forward_inverse_runs.