

TARTU ÜLIKOOL  
Loodus- ja tehnikateaduskond  
Füüsika Instituut

Jana Pavlenkova

**Divesiniksulfiidi ja vääveldioksiidi kontsentratsioonide  
sõltuvus tuule suunast ja teistest meteoroloogilistest  
suurustest Kohtla-Järve linna õhus**

Magistritöö keskkonnaseire tehnoloogia erialal

Juhendaja: PhD Marko Kaasik

Tartu 2010

## Sisukord

Sisukord .....	2
Sissejuhatus.....	3
1. Uurimisobjektide ülevaade .....	5
1.1. Põlevkivi.....	5
1.2. Põlevkivi keemiline töötlemine, VKG Oil AS tehnoloogilised protsessid, SO <sub>2</sub> ja H <sub>2</sub> S saasteallikad .....	5
1.2.1. Põlevkivi utmine gaasigeneraatorites ja õli tootmine .....	7
1.2.2. Õli ettevalmistuse ja –puhastuse protsess, filtrikoogi saamine.....	8
1.2.3. Põlevkiviõli destilatsioon.....	9
1.2.4. Elektroodkoksi ja bituumeni tootmine.....	9
1.2.5. Petroter-tehas .....	9
1.3. Põlevkivi ja selle töötlemise vaheproduktide põletamine .....	9
1.4. Põlevkiviõlitööstuse jäätmed ja nende ladestuskohad .....	10
1.4.1. Poolkoks.....	11
1.4.2. Fuussid .....	12
1.4.3. Poolkoksiladestu .....	12
1.5. Sulfiidi vormid vees ja õhus.....	15
1.6. Reovee biopuhasti väevliühendite saasteallikana .....	17
1.6.1. Kohtla-Järve piirkonna reoveepuhasti Järve Biopuhasti OÜ iseloomustus.....	17
1.7. Atmosfäärisaaste hajumise seire ja modelleerimine .....	19
1.7.1. Piirkihi paksus ja struktuur .....	19
1.7.2. Õhu liikumise protsessid.....	20
1.7.3. Atmosfääri kihistus .....	23
1.7.4. Tuul piirkihis.....	25
1.7.5. Analüütilised mudelid keskkonnaseisundi kirjeldamiseks .....	27
1.7.6. Numbrilised mudelid .....	28
1.7.7. Õhusaaste hajumise modelleerimine.....	28
2. Metoodika ja algandmed.....	31
2.1. Andmed .....	31
2.2. Metoodika.....	33
3. Tulemused ja arutelu.....	35
3.1. Divesiniksulfiidi ja väävedioksiidi kroonika Kohtla-Järve linnas .....	35
3.2. Divesiniksulfiidi ja väävedioksiidi saastetasemete sõltuvus õhumasside päritolust .....	38
3.3. 2006-2009 aastatel Kalevi seirejaamas mõõdetud tuule suundadel 190-240 andmete analüüs.....	45
3.4. Arutelu.....	49
Kokkuvõte.....	52
Summary .....	54
Tänuõnad .....	55
Kirjandus.....	56

## Sissejuhatus

Kohtla-Järve on Eesti põlevkivikeemiatööstuse keskus, kuhu on koondatud „pruuni kulla“ töötlemise teadmised ja tehnoloogia, aga ka sellega kaasnevad keskkonnaprobleemid.

Pole teada, kes ja kuidas esimesena avastas Eestis põlevkivi ja millal see toimus. Kuna põlevkivi avaneb Kirde-Eestis maapinnal, siis arvatavasti pidi just Alutaguse maarahvas sellega paratamatult kokku puutuma ja saama esimesed teadmised põlevast kivist. Teaduslike uuringute ajalugu ületab 200 aastat ning 2008. aastal möödus 90 aastat põlevkivi kaevandamise ja 80 aastat põlevkiviõli tootmise algusest.

Samas Eesti kukersiit (suhteliselt kõrge kütteväärtus ja õlisaagis, omapärane õli, väike väävlisisaldus ja niiskus) on oma kvaliteedi poolest üks parimaid põlevkive maailmas (Kattai jt, 2000).

Põlevkivi kaevandamise ja töötlemise protsess on seotud intensiivsete keskkonnamõjudega: muundatakse maastikku, tekib suurel hulgal erineva ohutlikkusega jäätmeid, saasteainetega reostatakse hüdro-, lito- ja atmosfääri. Keskkonnareostuse üheks tähtsaks osaks on õhusaaste, sest dünaamilises atmosfääris levivad saasteained kiiresti, otseselt ja tajutavalt halvendades meie elukeskkonda. Kohtla-Järve atmosfääri lenduvad erinevad orgaanilised ühendid, SO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>S ning NO<sub>x</sub> otse põlevkivi töötlemisprotsessidest, keskkonnaohtu kujutavad endast ka emissioonid protsessi-, leostus- ja nõrgvesi tööstusprügilatest ja reoveekäitlemisest (Soone, 2003).

Kuigi Kohtla-Järve linna õhusaaste probleemide algusmomendiks saab määrata aastad 1916–1924, kui piirkonnas algas põlevkivi kaevandamine ja selle gaasistamine gaasigeneraatorites, puuduvad kuni 1950. aastateni andmed emissioonide kohta või on nad väikese usalduväärsusega (Liblik, 2007). Esimesed õhuseisundi väliuuringud Kohtla-Järve linnas teostati 1952–1953 a E.Vagase juhtimisel Eksperimentaalse ja Kliinilise Meditsiini Instituudi poolt (Liblik & Kundel, 1995). Süstematiseeritud õhukontrolli perioodi alguseks saab lugeda 1974 aasta, millal rajati Kohtla-Järvele statsionaarsed õhuvaatluspunktid. Kohtla-Järve põlevkivitöötlemise ettevõtete õhusaasteallikate esmakordset inventariseerimist viidi läbi Põlevkivi Instituudi poolt aastatel 1985–1990. Aastatel 1990–1996 töötas Kohtla-Järvel Eestis esimene automaatne välisõhu seiresüsteem *Opsis*, mis mõõtis pidevalt SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>; fenooli, formaldehüüdi, benseeni, tolueni ja süreeni sisaldust õhus 1,5–3 km kaugusel põhilistest saasteallikatest (Liblik, 2007). Nende andmete alusel peamiseks saasteainete emissiooni ja Ida-Virumaa õhu kvaliteeti uurijaks on Tallinna Ülikooli Ökoloogia Instituudi Kirde-Eesti osakond. Samas, erinevatel põhjustel olid enim huvi pakkunud energiatööstuse statsionaarsetest allikatest õhku paisatavad saasteained, mis moodustavad 85,88% koguemissioonide aastakogustest (Kattai, 2003), aga siis õlitööstusest, jäätmeväljadest ja reoveepuhastusest tulenevale oli pööratud vähem tähelepanu. Vahepeal olid teostatud mitmeid orgaaniliste ühendite problemaatikaga seotud uuringuid. Kuid tänaseks on probleemsed vesiniksulfiid ja vääveldioksiid nii teadlastel kui ka elanikkonnal luubi all.

Keskkonnaministri 22.09.2004 määrusega nr 118 on Kohtla-Järve määratletud tiheasutusega piirkonnaks, kus on põhjendatud välisõhu kvaliteedi hindamise ja kontrolli vajadus, mis tähendab kohustust tihendatud õhuseire teostamiseks. Aastast 2003 peamistest saasteallikatest allatuult paikneb Kohtla-Järvel Kalevi tänaval

automaatne seirejaam, mille mõõtmistulemused iseloomustavad seetõttu küllaltki hästi õhukvaliteedi olukorda linnas tervikuna (EKUK, 2006). Seirejaamas mõõdetatakse vääveldioksiidi, lämmastikdioksiidi, osooni, vesiniksulfiidi, ammoniaagi, peentolmu ja süsinikdioksiidi sisaldust välisõhus. Teostatakse ka pistelisi ja perioodilisi lisauuringuid erinevate projektide raames.

Seiretulemused näitavad viimase kahekümne aasta jooksul saastetasemete pidevat alanemistendentsi, seda tootmishulkade vähenemise ning erinevate keskkonnameetmete tõttu. Kuid jääb oluliseks probleemiks divesiniksulfiidi tunnikontsentratsioonid ja seda just suvel ning varasügisel nõrga edelatuulega, kus saasteainete hajumine on raskendatud. Kuigi valdav väävlisaaste pärineb kindlast suunast on seda raske omistada kindlale tegevusele või ettevõttele, kuna antud suunas paikneb rida erinevaid käitisi (EKUK, 2004). Vesiniksulfiidil on väga madal lõhnalävi –  $1,17\mu\text{g}/\text{m}^3$  ([www.drthrasher.org](http://www.drthrasher.org)), ja väga ebameeldiv lõhn. Kuna tegemist on saasteainega, mis pärineb tõenäoliselt mõnest üksikust ettevõttest, siis on selle emissioonide piiramine teoorias märksa lihtsam, võrreldes näiteks eramajade kütmisest või transpordist pärinevate saasteainete emissioonide piiramisega (EKUK, 2006).

Käesoleva töö eesmärgid on:

1. uurida väävelvesiniku ja vääveldioksiidi saastetasemete dünaamika sõltuvust tuule suunast ja õhusaaste hajumist mõjutavatest meteoroloogilistest parameetritest;
2. sõltuvalt tuule suunast määrata saasteallikad ning hinnata keskkonnalubades antud heitkoguste realistlikkust;
3. seostada saastetasemete muutusi ettevõtetes teostatud keskkonnainvesteeringutega.

# 1. Uurimisobjektide ülevaade

## 1.1. Põlevkivi

Põlevkivi on akvageense (veekeskkonna) tekkega terrigeense või karbonaatse koostisega settekivim, milles sisaldub 10...70% süngeneetilist (üheaegselt settega tekkivat) sapropeelset orgaanilist ainet, mis on halvasti lahustuv orgaanilistes lahustites (enamasti alla 5%), kuid kõrge vesiniku sisaldusega (7..11%) ja utmisel kõrgendatud õlisaagisega (üle 20% orgaanilisest ainest) (Kattai, 2003).

Eestis leiduva ning Kohtla-Järvel kasutatava kukersiit-põlevkivi koosneb kolmest põhikomponendist. Orgaanilisest, karbonaatsest ja terrigeensest materjalist. Viimased kaks moodustavad kivimi mineraalse osa. Orgaanilise aine (edaspidi OA) keskmine elementkoostis on: 77,3% C, 9,8% H, 10,8% O, 0,4% N, 1,7% S, 0,1...0,9% Cl, H/C aatomsuhe 1,5, õlisaagis 66% (Urov, Sumberg, 1992).

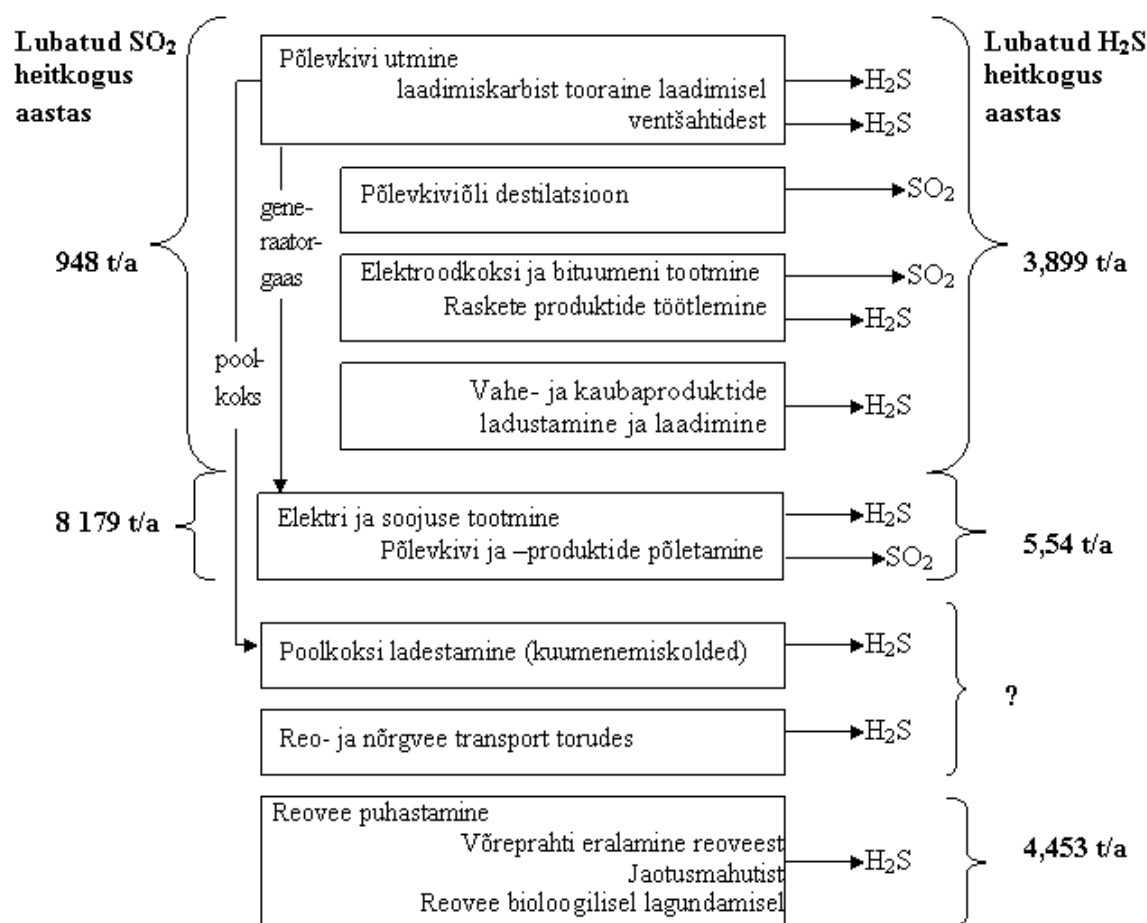
Üldiselt võib öelda, et kõrge mineraalne sisaldusega (tuharikas) põlevkivi on madalakvaliteediline fossiilne kütus, mille põletamise ja termilise töötlemise jäägid võivad moodustada 50..85% kasutatavast põlevkivi kogusest.

Kuigi kukersiidis väävli (S) sisaldus on madal (võrreldes teiste põlevkividega) osutub ta väga kahjulikuks elemendiks nii ökoloogilistel kui tehnoloogilistel kaalutlustel (Kattai, 2005). Ohtlikud väävelühendid (peamiselt SO<sub>2</sub> ja H<sub>2</sub>S) satuvad õhku põlevkivi põletamisel, aga termilisel töötlemisel lähevad nad vedelproduktidesse, gaasi ja poolkoksi, sealt aga erinevate protsesside tagajärjel jällegi lenduvad atmosfääri (vt Joonis 1).

## 1.2. Põlevkivi keemiline töötlemine, VKG Oil AS tehnoloogilised protsessid, SO<sub>2</sub> ja H<sub>2</sub>S saasteallikad

Laboratoorsed uuringud ja katsetused näitavad, et kukersiidis sisalduv kerogeen hakkab lagunema 100...200 °C juures, millega kaasneb veeauru eraldumine ning kummi põletamisele iseloomulik lõhn. Üle 200 °C kuumutamisel lõhn tugevneb ja põlevkivi tumeneb; 300 °C juures helepruunist põlevkivist jääb järele kokkuvajunud must tükk ning ilmuvad lagunemisurud: toimub lagunemise algstaadium, mil hakkavad tekkima põlevkiviõli kergemad (bensiiini) fraktsioonid. Edasise temperatuuri tõstmisega kuni 400 °C muutub põlevkivi orgaaniline aine (OA) poolvedelaks sitkeks massiks – termobituumeniks. Tööstuslikes seadmetes põlevkivitükid kleepuvad omavahel, takistades materjali liikumist ja uttegaaside läbivoolu ning ummistades seadet. Utmisprotsessi häireteta toimumiseks tuleb kiiresti ületada termobituumeni tekkimise temperatuurivahemik, et termobituumen hakkaks lagunema õliauruks (õli raskemad fraktsioonid), gaasiks ja tahkeks poolkoksiks. Lagunemisproduktide eraldumine termobituumenist lõpeb umbes 500 °C juures. Aurud vedeldatakse jahutamise teel nn põlevkivi toorõlks, millest seatakse suure tahkete osakeste sisaldusega nn fuuss, mis sisaldab tuhka, tolmu ja vett. Lisaks õlile saadakse uttegaasi ja järele jääb utmisjääk – poolkoks – must ja poorne mass, mis sisaldab termiliselt muutunud mineraalset ja orgaanilist ainet. Poolkoks sisaldab kuni

10..14% põlevainet, sh 1..2% õli ja ta kütteväärtus on 3000..4200 kJ/kg. (Kattai, V. 2003).



**Joonis 1. Tootmisprotsesside siseste ja väliste divesiniksulfiidi ja väävelvesiniku emissiooniallikad. Kehtivates saastelubades märgitud aastased heitkogused.**

Käesolevas töös vaadeldavate SO<sub>2</sub> ja H<sub>2</sub>S üks saasteallikatest on VKG Oil AS, Viru Keemia Grupp AS kontserni koosseisu kuuluv tütarettevõtte, mille olemasolevad uttegeneraatorid on projekteeritud ja ehitatud erinevatel aegadel (alates 1938 – GGJ-3 kuni 2005 – GGJ-5 laiendus ning 2009 uus Petroter tehas TSK tehnoloogiaga).

VKG Oil AS paikneb Kohtla-Järve Järve linnaosa lääneserval (geograafilise koordinaadid L-EST süsteemis: x = 6587919, y = 683922) Purtse jõe valgatal. Purtse jõe lisajõkke (Kohtla jõgi) suunduvad nii ettevõtte kui ka ümberkaudsete alade dreanažikraavid. VKG Oil AS territooriumi pindala on ~270,2 ha. Kõrge põhjavee taseme ja vähese kaitsekihi tõttu on ülemised veekihiid saastatud kauaaegse tööstustegevuse jooksul. Joogiveeks kasutatakse 247 m sügavusel asuvaid Kambrium-Vendi põhjaveekihte. Põhja ja kirde suunast piirneb VKG Oil AS-iga 78,9 ha pindalaga poolkoksi ladestusala – ligikaudu 100 m suhtelise kõrgusega poolkoksi mägedega. Ladestusala territooriumi piiravad sademevete püüdekraavid, mille vesi suunatakse OÜ Järve Biopuhastusse. Soome laht jääb ettevõtte 4,5 km kaugusele põhja suunas (TLÜ Ökoloogia Instituut, Kirde-Eesti osakond, 2008).

Ettevõtte asend ja H<sub>2</sub>S ja SO<sub>2</sub> saasteallikana identifitseerivad tootmisüksused on näidatud joonisel 2.



**Joonis 2. Kohtla-Järve linna tööstusterritoorium ning SO<sub>2</sub> ja H<sub>2</sub>S peamised saasteallikad.**

VKG Oil AS koosseisu kuuluvad järgmised tehnoloogilised seadmed:

- gaasigeneraatorijaamad (GGJ-3, GGJ-4, GGJ-5 ja 1000 t gaasigeneraator) – H<sub>2</sub>S saasteallikad;
- defenolatsiooniseade;
- õlide ettevalmistamise seade;
- õlide destillatsiooniseade – SO<sub>2</sub> saasteallikas;
- õliladu;
- elektroodkoksi seade – H<sub>2</sub>S ja SO<sub>2</sub> saasteallikas;
- tahke soojuskandjaga seade, TSK seade.

Allpool on toodud tehnoloogiliste protsesside lühikirjeldus VKG Oil AS KMH andmete alusel (TLÜ Ökoloogia Instituut, Kirde-Eesti osakond, 2008)

### **1.2.1. Põlevkivi utmine gaasigeneraatorites ja õli tootmine**

Põlevkivi utmine toimub Kiviter-tüüpi retortides ehk gaasigeneraatorites, kus tehnoloogilise režiimi juhtimine on automatiseeritud, samuti põlevkivi laadimine ja poolkoksi väljaladimine.

Utmisel tekkinud aurugaasisegu, mille temperatuur on vahemikus 170–300 °C (olenevalt generaatorijaamast), läbib kondensatsioonüsteemi (bariljetid, õhkjahutid, vesijahutid, skraberid, dekanterid), kus toimub raske- ja kerge-keskõli fraktsioonide väljakondenseerumine. Jahutusvee kulu vähendamiseks kasutatakse põhiliselt õhkjahuteid.

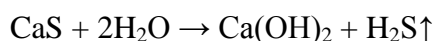
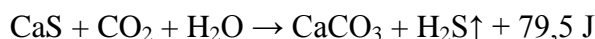
Fuusside esmane eraldamine toimus varem setitajates (koonuselise põhjaga mahutid, dekanterid), kust õlide fraktsioonid pumbati edasi õliettevalmistusseadmesse edasisele puhastamisele. Käesoleval ajal ei kasutata dekantereid. Fenoolvesi pumbatakse defenolatsiooniseadmele (Joonisel 2, allika nr 6 lähedal).

Aurugaasisegu mittekontendseerunud osa, s.o. generaatorigaas, suunatakse ühiskollektorisse, kust see läheb edasi tarbijale (VKG Oil AS omatarbeks ja suurem osa põletamisele OÜ VKG Energia Lõuna ja Põhja soojuselektrijaamadesse), osaliselt ka tagasigaasina gaasigeneraatoritesse. Gaasigeneraatorigaas sisaldab vesinikku, süsivesinikke, lämmastikku, aga ka toksilisi ühendeid nagu väävelvesinik (H<sub>2</sub>S – kuni 6,5 g/Nm<sup>3</sup>) ja süsinikoksiid. Vesiniksulfiid põleb utiliseerimise protsessis vääveldioksiidiks.

Generaatorites tekkinud poolkoksi temperatuuri (800 °C) alandamiseks generaatori alaosas ja tuhaldrikul kasutatakse vett. Jahutatud poolkoks saadetakse linttransportööriga punkrisse, kust see veetakse tootmisjätmete prügilasse.

Antud etapis sattub õhku H<sub>2</sub>S gaasigeneraatori laadimisel põlevkiviga ning ventileerimisšahetidest, kuhu jõuavad kõik heitgaasid tootmishoonest.

Poolkoksi (eriti värske poolkoksi) kokkupuutel veega võivad toimuda järgmised reaktsioonid, kus eraldub divesiniksulfiid:



### **1.2.2. Õli ettevalmistuse ja –puhastuse protsess, filtrikoogi saamine**

Kogu õlide puhastamine toimub õliettevalmistusseadmel filtreerimise teel. Enne filtreerimisseadme täielikku käikulaskmist töötas paralleelselt vana õlide puhastussüsteem, kus toimus summaarse põlevkiviõli setitamine dekanterites mehhaaniliste lisandite (fuussid) ja fenoolvee eemaldamiseks. Tekkiv fenoolvesi suunatakse defenolatsiooniseadmele.

Alates 2007. a IV kvartalist hakkas toimuma õlide puhastamine uue tehnoloogia järgi. Kõik selle süsteemi mahutid on ühendatud ühtsesse hingamissüsteemi: aurud mahutitest juhitakse eraldi mahutisse ja sealt edasi absorberisse, kust puhastatud hingamisaurud suunatakse atmosfääri.

Uue süsteemi rakendamisega tekkiv kõrvalprodukt, tahke jääk (filtrikook) on võimalik vastavalt vajadusele taaskasutada energeetilise toormena energia ja soojuse või tsemendi tootmisel.

Seega lõpeb ohtliku jäägi – vedelate fuusside tekkimine. Filtrikoogi ladustamist ei toimu, see laaditakse otse hoiumahutist (2–3 ööpäevane varu) transpordivahendile.

Käesoleva protsessi käigus H<sub>2</sub>S ega SO<sub>2</sub> emissiooni ei toimu.

### **1.2.3. Põlevkiviõli destilatsioon**

Õli ettevalmistuse läbinud summaarne puhastatud põlevkiviõli suunatakse õlide destillatsiooniseadmesse, mis koosneb kahest järjestikku töötavast kolonnist. Esimeses kolonnis toimub vee ja osaliselt bensiinifraktsiooni eraldumine, teises kolonnis 380 °C-ni kuumutatud õli jaotamine viieks fraktsiooniks. Saadud fraktsioonid suunatakse edasi õlilattu valmisproduktide valmistamiseks.

Toruahju II-3 kütteks kasutatakse küttegaaside (generaatorigaas, poolkoksigaas, koksigaas, separaatorigaas ja looduslik gaas) segu – põletamise käigus generaatorgaasis sisalduv divesiniksulfiid põleb vääveldioksiidiks, mistõttu klassifitseerub antud protsess SO<sub>2</sub> saasteallikaks.

### **1.2.4. Elektroodkoksi ja bituumeni tootmine**

Elektroodkoksi ja bituumenit valmistatakse elektroodkoksi seadmel generaatorõli destillatsioonijärgist samadel seadmetel (koksikuubid – pikkus 10–11 m, diameeter 2,4–2,5 m), kuid erineva temperatuurirežiimi juures.

Destillatsioonijääk pumbatakse kuupidesse temperatuuril 230–280 °C. Elektroodkoksi saamiseks kuumutatakse ja lõõmutatakse koksikuupe püsival temperatuuril 800–850°C kuni 20 tundi, enne koksi väljalaadimist jahutatakse valmisprodukti veega. Koksi tootmise protsess on tsükliline.

Protsessi käigus tekib kerge koksidestillaat, raske koksidestillaat ja koksigaas. Kerge koksidestillaat suunatakse edasisele töötlemisele õlide destillatsiooniseadmele, raske koksidestillaat kasutatakse elektroodkoksi toormena, koksigaasi kasutatakse destillatsiooniseadme toruahjude ja koksikuupide kütmiseks segus generaatorigaasi ja loodusliku gaasiga.

Selles tehnoloogilises protsessil on määratud kaks SO<sub>2</sub> ja üks H<sub>2</sub>S saasteallikas.

### **1.2.5. Petroter-tehas**

Uut TSK-seadet käesolevas töös ei käsitleta, kuna andmed õhusaasteallikate andmebaasis lõpevad peaaegu samaaegselt Petroter tehase avamisega (21.12.2009). Väärib märkimist, et LHK projekti järgi SO<sub>2</sub> heitkoguseks on 169,340 t/a ning otsest H<sub>2</sub>S emissiooni ei tohiks toimuda.

## **1.3. Põlevkivi ja selle töötlemise vaheproduktide põletamine**

Soojuse ja elektri saamiseks olid Kohtla-Järve linnas rajatud kaks põlevkivi baasil töötavat soojuselektrijaama, tänaseks on need VKG AS kontserni tütarettevõtte VKG Energia OÜ halduses. Ettevõtte koosseisu kuuluvad kaks soojuselektrijaama – Põhja SEJ ja Lõuna SEJ. Põhja SEJ-s toimub soojus- ja elektrienergia koostootmine, mille teostamiseks on paigaldatud aurukatlad ja turboagregaadid koos kõigi tootmiseks vajalike abiseadmete ja süsteemidega. Põhikütusena kasutatakse Põhja SEJs põlevkivi ja VKG Oil AS gaasigeneraatorijaamades põlevkivi termilisel töötlemisel saadavat uttegaasi (generaatorigaasi), lisakütuseks on põlevkiviõli. Lõuna SEJ-s kasutatakse põhiliselt generaatorigaasi ja vähesel määral maagaasi. Tahke soojuskandjaga seadme käivitamisel 2009. a lisandub mõlemas jaamas kütusena ka TSK seadme poolkoksigaas. Uue projekti järgi on Põhja SEJ-s kavas hakata põletama koos põlevkiviga VKG Oil AS-is saadavat filtrikooki (endised põlevkivi vedelfuussid tahkel kujul), mis võimaldaks vähendada põlevkivi kulu.

OÜ VKG Energia Põhja SEJ paikneb Kohtla-Järve linna Järve linnaosa lääneserval (Vanalinnas) tööstusrajoonis, Purtse jõe valgatal kohaliku põhjavee lahkemel.

Põhja SEJ korstna (150 m) koordinaadid Est-Lambert süsteemis: X=6588535 ja Y=684111. Korstna 50-kordse kõrguse alasse (R=7,5 km) jäävad Kohtla-Järve linna Järve linnaosa täies ulatuses, Kukruse, Sompa, Kohtla-Nõmme vald, Aa-Saka piirkond. Kohtla-Järve elurajoonide suunal on maapind ühtlaselt tasane, saasteainete hajumistingimusi mõjutavad objektid (kõrghooned jm) puuduvad. SEJst läänesuunal asuvad poolkoksimaed siin olulist mõju ei avalda, kuna suitsukorstna kõrgus on 150 m (TLÜ Ökoloogia Instituut, Kirde-Eesti osakond, 2008 aprill).

Põhja SEJ ja Lõuna SEJ on regiooni olulised SO<sub>2</sub> ja väiksemal määral H<sub>2</sub>S saasteallikad, vääveldioksiidi heitkogused sõltuvad kasutatavast kütusest, mille omadused on toodud Tabelis 1:

**Tabel 1. VKG Energia soojuselektrijaamades kasutatavate kütuste väävliühendite sisaldus (TLÜ Ökoloogia Instituut, Kirde-Eesti osakond, 2008)**

Kütus	H <sub>2</sub> S ja S sisaldus	Ärapõletatud aines H <sub>2</sub> S ja S sisaldus
Põlevkivi	S <sub>üld</sub> S 1,48...1,78 %	
Generaatorgaas	H <sub>2</sub> S 5,57 g/Nm <sup>3</sup> (keskm)	
TSK seadme poolkoksigaas	H <sub>2</sub> S 3,5 g/Nm <sup>3</sup> (keskm)	
Maagaas (looduslik gaas)	-	
Filtrikook (tahked fuussid)	S <sub>üld</sub> 1,1% ... 4,46% <sup>1</sup>	S <sub>üld</sub> 3,1..3,25% S <sub>püriitne</sub> = 1,81%
Põlevkiviõli (avarii- ja reservkütus)	S <sub>üld</sub> S 1,552%	

Põhja SEJ-s lasti 2008 aasta III kvartalist käiku suitsugaaside väävlipuhastusseade, nn NID-reaktor, mille tulemusena vähenesid oluliselt vääveldioksiidi heitmed välisõhku (TLÜ Ökoloogia Instituut, Kirde-Eesti osakond, 2008 apr).

Kuna generaatorgaasi põletatakse ka VKG Oilis (õlide destillatsiooni toruahi, koksiseadme küttekolded) ja Lõuna SEJs, kus pole veel rakendatud tõhusat väävlipuhastust, on paratamatult summarne SO<sub>2</sub> saastetase vahemikus 200-300 µg/m<sup>3</sup>. Arvutuste järgi Põhja SEJ 150m kõrgusest korstnast tulenev maksimaalne maapinnalähedane vääveldioksiidi kontsentratsioon tekib umbes 2 km kaugusel (TLÜ Ökoloogia Instituut Kirde-Eesti osakond, aprill 2008).

Hinnanguliselt võib Kalevi seirejaamas erinevate saasteallikate osatähtsus SO<sub>2</sub> saastetasemes olla järgmistes piirides: Põhja SEJ – 37..39% (koos töötava NID-reaktoriga), Lõuna SEJ – 27..32% ja VKG Oil saasteallikad kokku – 29..35% (TLÜ Ökoloogia Instituut, Kirde-Eesti osakond, 2007).

#### 1.4. Põlevkiviõlitööstuse jäätmed ja nende ladestuskohad

Pidevalt arendades ja täiendades põlevkiviõli tootmistehnoloogiat väheneb tekkivate jäätmete hulk, suurendades protsessi efektiivsust; viimastel andmetel tekib 1 miljoni tonni tükkpõlevkivi kohta umbes 490 tuhat tonni poolkoksi ([www.vkg.ee](http://www.vkg.ee)).

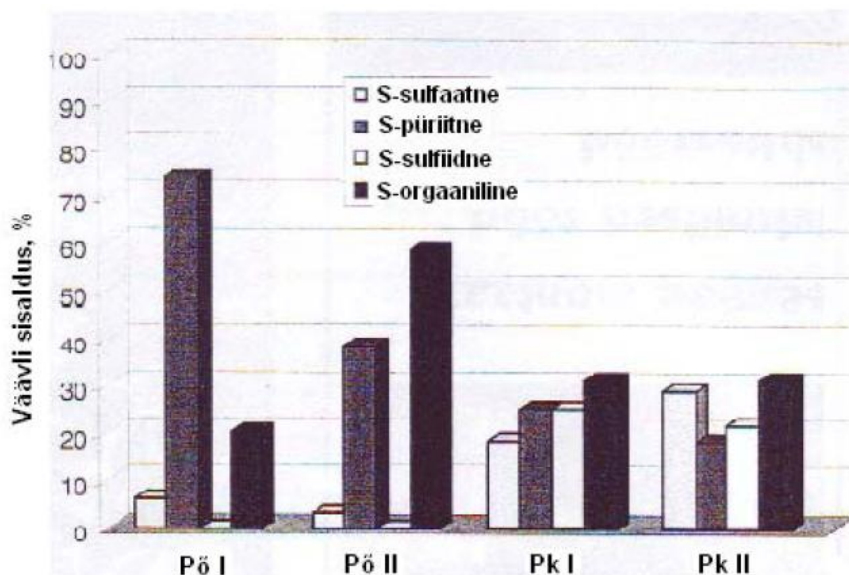
<sup>1</sup> Eesti Geoloogia Keskuse labori katsed

### 1.4.1. Poolkoks

Generaatoritesse tuleva tükkpõlevkivi orgaanilise aine sialdus on ligi 35%, poolkoksi jääb sellest järele 10..13%. 2007 aastal lõppenud tehnilise täiustamise tulemusena on VKG AS poolkoksi OA sisaldus vaid 6 % (www.vkg.ee). Tahke soojuskandjaga utteseadmest väljutatavas mustas tuhas peaks olema OA alla 1%.

Maves AS poolt võeti 03.04.2001 viis poolkoksiproovi Kohtla-Järve põlevkivitööstusest: kaks proovi värsket poolkoksist päras jahutamist ning kolm proovi erineva vanusega poolkoksiladestust. Eesti Geoloogiakeskuse laboris tehtud silikaatanalüüsi seeriasse kuuluva kaalanalüüsi meetodi abil määrati poolkoksisis üldväavli sisaldus, mis värskes, otse generaatorist tulnud poolkoksil oli 2,0-2,1% kuivaine kohta, vanal ladestusnõlval 1,8% ja uuel nõlval 1,7% (Maves AS, 2003).

Osade kirjanduse andmete põhjal ulatub Kiviteri protsessi tulemusena skaneeriva elektronmikroskoopia ja termogravimeetria meetodite abil määratud üldväavli sisaldus poolkoksisis isegi 2,87-3,3%-ni (Kuusik 2003; Kaljuvee 2003; Triikkel, 2004). Sealjuures on sulfiidse väavli osakaal võrreldes toorkivis sisalduvate väavli vormidega tunduvalt tõusnud ning orgaanilise, sulfaatse ja püriitse väavli vormid on omavahel jagunenud üsna ühtlaselt, mida kajastab Joonis 3:



**Joonis 3. Väavlivormide jagunemine põlevkivis (Põ I, Põ II) ning selle poolkoksisis (Pk I, Pk II) (Kaljuvee, 2003)**

Võrdluseks: kui väavli sisaldus poolkoksisis on 2% ja sellest on 30% sulfiidset väavlit, siis on viimase sisaldus 6 g ühe kg poolkoksi kuivaine kohta. Teiste allikate andmete põhjal esineb poolkoksisis peamiselt sulfiidne ja püriitne väävel, mis tähendab eeltoodud arvutuse kohaselt esitatust veel suuremat sulfiidse väavli kogust poolkoksisis (Mölder, 1995; Kattai, 2003; Kaljuvee, 2003). Sulfiidset väavlit peetakse vaieldamatult üheks kahjulikumaks ühendiks poolkoksisis ja üldse keskkonnas.

Sulfiidse väavli (esindatud peamiselt kaltsiumsulfiidina CaS) teke poolkoksisis on tingitud tükkpõlevkivi utmisest kõrgete temperatuuride juures ilma õhu juurdepääsuta: intensiivsel kuumutamisel läheb põlevkivis sisalduv väävel (nii orgaaniline kui püriitne) keemiliste reaktsioonide tulemusena gaasilise divesiniksulfiidi (H<sub>2</sub>S)<sub>g</sub> koosseisu. Osa divesiniksulfiidist reageerib erinevate metallide oksiididega, sh kaltsiumoksiidiga CaO, mis on põlevkivi mineraalosa karbonaatide lagunemise

produktideks (Kaljuvee, 2003; Kuusik, 2003; Tallinna Ülikooli Ökoloogia Instituut, Kirde-Eesti osakond, 2008).

Reostuse ulatuse ja keskkonnariski määrab peamiselt ära ühendi leostumine, mille käigus toimub lahustumine tahkest materjalist veekeskkonda nõrgumise, ka difusiooni teel. Anorgaaniliste komponentide leostumine on tugevalt seotud keskkonna pH ja redokspotentsiaaliga.

2003. aastal läbi viidud Eesti Keskkonnauuringute Keskus OÜ poolt poolkoksi uuringu andmetel veeslahustuvate sulfiidide sisaldus, mis peaks väljendama ladestust läbinõrguva sulfiidide sisaldust, on toodud Tabelis 2:

**Tabel 2. Erineva vanusega poolkoksi proovidest destilleeritud veega väljapestavate sulfiidide sisaldus ja vesileotise pH (Eesti Keskkonnauuringute Keskus OÜ, 2003).**

Proovi nr	Proovi nimetus	Leotise pH	Veeslahustuvate sulfiidide sisaldus (ümbär arvatud H <sub>2</sub> S-le), mg/kg
1	Värske poolkoks	11,8	422,0
2	1 aastat vana poolkoks		244,6
3	2 aastat vana poolkoks		320,0
4	5 aastat vana poolkoks		466,0
5	10 aastat vana poolkoks	10,0	626,0

#### 1.4.2. Fuussid

Fuuss on ohtlik jääde, mis sisaldab polütsüklilisi aroomaatseid süsivesinikke, fenooli jm orgaanilisi aineid. Fuusse tekib kuni 1,6% ümbertöödeldavast põlevkivist (Tallinna Ülikooli Ökoloogia Instituut, Kirde-Eesti osakond, 2008). Fuussi ladestuskohad kujutavad endast poolkoksi mägedele rajatud spetsiaalseid järvi (hoidlaid) pindalaga 1,3 ha ning sügavusega 7..10 m. Nende ladestuskohad ei vasta keskkonnanõuetele, kuna ei ole isoleeritud ümbritsevast keskkonnast ja saasteained võivad levida filtratsiooni teel läbi tammikehade ja üle nende äärte. Vanemates ladestuskohtades on fuus polümeriseerunud ja muutunud pealt tahkeks, jäädes sügaval aga viskoosseks. Uuemates hoidlates on pinnale jäänud suure fenoolisisaldusega õlisegune vesi. Sügavusega väheneb fuussis veesisaldus, suureneb mehaaniliste lisandite ja raske põlevkiviõli sisaldus (Kattai, 2003). Fuusside ladestuskohtadest lenduvad fenoolid ja muud orgaanilised ühendid. Alates 2008. aastast fuusse enam ei ladestata poolkoksiprügilasse – vähesel määral tekkivad fuussid õlitustamisest transporditatakse Kunda tsemenditehasesse põletamiseks.

Projekti „Tööstusjäätmete ja poolkoksi prügila sulgemine Kohtla-Järvel“ raames saneeritakse ka fuusside hoidlad (fusside järved), mis mahutavad kuni 100 000 tonni fuusse (Jaaksoo, 2009).

#### 1.4.3. Poolkoksiladestu

Kohtla-Järve poolkoksimägedesse hakati põlevkivitöötlemise jääke ladestama 1938. aastal ning tänaseks on sinna ladestatud üle 74,1 miljoni tonni poolkoksi. Jäätmed on ladestatud kuni 150 m (170 m üle merepinna) kõrgustesse kuhilatesse, mis nüüdseks moodustab ühise tehismäe pindalaga 1,4 km<sup>2</sup>, millega külgneb ka Kohtla-Järve elektriijaama tuha ladestusplats. Kuni 2002 a. peale termilist protsessi poolkoksi jahutati veega ning transporditi vagonettides jäätmemäele ning uhuti veega laiali (Kattai, 2003). Teistel andmetel 2007. aastal lõpetati Kohtla-Järvel poolkoksi

märgladestu ([www.vkg.ee](http://www.vkg.ee)) ning just viimast väidet kinnitas VKS AS tehnikadirektor Meelis Eldermann (20.07.2010).

Aastased ladestatavad poolkoksikogused ulatuvad Kohtla-Järvel 750 – 800 tuhande tonnini (Veski, 2008), tänapäeval ilmneb ladestatunud poolkoksi koguste kogusel kasvutendents (vt. Tabel 3), mis on tingitud tootmismahdade suurenemisest.

**Tabel 3. Ohtlike jäätmete teke VKG Oil AS-sis ([www.vkg.ee](http://www.vkg.ee))**

	2006	2008	2009
Ohtlike jäätmeid (milj. t)	0,8	1,12	1,11
sh fenoolvesi			
nendest taaskasutatud	0	347 700	336 500
sh fuussid (t)	23 200	19 400	3 200
nendest taaskasutatud	1620	2027	0
sh poolkoks (t)	737 000	748 500	772 600
nendest taaskasutatud	27 600		

Maves AS poolt teostatud Eesti jääkreostuse inventuuri andmetel on Kohtla-Järve poolkoksiladestu 20. kohal kõige ohtlikumate jääkreostuskollete nimistus. See on Kohtla-Järve linna ümbruses aastakümnete jooksul reostanud pinnast, põhjavett ja veekogusid (Maves AS, 2002). Peamiseks reostuse allikaks on minevikus olnud põlevkiviõli ja naftakeemiaproduktide tootmisel tekkivate vedeljäätmete (fuussid, happegudroon, väävlit ja arseeni sisaldavad setted, erinevad destillatsioonijäägid jm.) koosladestamine poolkoksiga, samuti reostunud vee kasutamine poolkoksi laialiuhutamiseks ning jahutamiseks. Reostuskoormust tõstis ka reoveesette (liigmuda) ladustamine poolkoksimägedele. Tänapäevaks on olukord muutunud: lõpetati kõrvaljäätmete ladustamine, kasutusel on kuivladestustehnoloogia ning on valminud ja kasutusse võetud uus nõuetekohane poolkoksi ladestuslala. Kuid praegusel kujul on ladestud ebastabiilsed, sees tekkinud kuumenemiskolletest toimub gaaside (benseeni, tolueni, ksüleeni, väävvvelvesiniku jm) eraldumine. Osaliselt on ladestud kaetud istutatud või looduslikul teel tekkinud metsaga, kuid kohati on nõlvad niivõrd järsud, et taimed sinna ei kinnistu ja aastast aastasse korduvad poolkoksi külmumise-soojenemise tsüklid murendavad pidevalt ladestute ülemist kihti, nii et see variseb alla. Kõrged ja järsud nõlvad on eeltingimuseks kuumenemiseks, gaaside eraldumiseks ja tolmu lendumiseks (Maves AS, 2006).

Uus ladestusala on rajatud olemasolevale poolkoksiladestule, mille põhi tihendati. Kogutav sadevesi suunatakse eeldatavalt puhastusseadmesse. Esmalt rajati ja võeti kasutusele prügila 1. ladestusjärg (lõunapoolne). Uus prügila on ümbritsetud ringvalliga ja –kraavidega, kust ei kogune vana poolkoksiladestu jalamil olemasolevasse kraavi praktiliselt mitte midagi (TLÜ Ökoloogia Instituut, Kirde-Eesti osakond, 2008).

Poolkoksis koheselt algav mineraali ettringiidi  $[Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12} \cdot 26H_2O]$  teke seob poolkoksis oleva niiskuse ja vähendab olulisel määral veefiltreerumist läbi poolkoksi, mistõttu on praktiliselt välistatud sademevee imbumine ladestatunud poolkoksi. Mägede ülaosa filtratsioonimoodul ei ületa 0,1 m/ööp (Kattai V, 2003). Samas on uuringud näidanud, poolkoksi ladestamisel tekkiv tsemendimineraal ettringiit ei ole püsiv, vaid laguneb ja lahustub (Maves AS, 2003). Sademete perioodidel tekivad jäätmemäe pinnal ajutised veevoolud, madalamatel aladel aga veekogud. Arvatakse, et poolkoksimägede alaosa on veel madalma filtratsioonimooduliga, kuna on tihenenud. (Kattai V, 2003). Samas aga uuemad katsed on näidanud, et temperatuuritõus mäes

viib ettringiit-sidemete lõhkumiseni, mistõttu on alahinnatud sademevee filtreerumist läbi jäätmemassi (Maves AS, 2006).

Üksikud veega küllastunud tsoonid ülalpool püsivad veetasel kinnitavad hüpoteesi, et poolkoksimägedes võivad eksisteerida suurema veejuhtivusega tsoonid, mida mööda vesi siiski mäes liigub (Maves AS, 2006).

Vana poolkoksiprügila sulgemise projekti realiseerimisega alustati 2010. aastal, kuid ettevalmistav etapp oli teostatud juba 2006. aastal, kui AS Maves viis läbi vana poolkoksiprügila sulgemise ettevalmistuse keskkonnamõju hindamise. Ladestute osalise katmisega loodetakse vähendada infiltreeruva vee kogust ja seega nõrgvee teket. Kattekihina on kavas kasutada värsket poolkoksi ja kasvukihina poolkoksi segu reoveesetega (Maves AS, 2006). Kui arvesse võtta seda, et poolkoksis moodustuv ettringiit ei ole püsiv ja ei taga sadevee infiltreerumise takistamist, siis tõenäoliselt jätkub nõrgvee imbumine läbi jäätmemassi, sealjuures erinevate ühendite, sh sulfiidide leostumine ning nende migratsioon ümbritsevasse keskkonda (Kulm, 2009).

#### **1.4.3.1. Divesiniksulfiidi lendumine poolkoksimägedelt**

Juba pikema aja vältel on täheldatud poolkoksiladestute „suitsemist“. Oletati, et ladestutes toimub kas põlemine või utmine ehk aeroobsed või anaeroobsed termilised protsessid. Probleem aktualiseerus veelgi, kui Kohtla-Järve ja Kiviõli ladestutel täheldati termilisi protsesse ka praegustel ladestusaladel. Suure tõenäosusega on kuumenemist vältinud poolkoksi jahutamine ja uhtmine veega, tänapäeval rakendatakse ainult poolkoksi kuivladestamist, kuna mõisteti, et uhtmine veega põhjustab tugevat pinna- ja põhjaveereostust (Maves AS, 2006).

Poolkoksiladestute kuumenemiskollete uuringu käigus mõõdeti termograafia meetodil väljuvate gaaside maksimaalseks temperatuuriks 92 °C ning mägede sees temperatuurisondi abil 87,3 °C. Kuna erinevates piirkondades mõõdetud maksimumtemperatuurid olid niivõrd lähedased (kõikumine vahemikus 78,0-87,3°C), siis võib suure tõenäosusega väita, et tegemist on kuumenemisprotsessiga, kus vee olemasolu on kuumenemisreaktsiooniks vajalik eeltingimus ning vee keemistemperatuurist kõrgemal reaktsioon peatub. Kuumenemine tekib juhul, kui energia tootmine ületab selle tarbimise ja ärakande. Kuumenemise tekkemehhanism ei ole siiani lõpuni selge, kuid selle võivad esile kutsuda keemilised reaktsioonid poolkoksi anorgaanilises osas (Maves AS, 2006).

Poolkoksiladestutelt lähtuvate gaaside kogused mõõdeti 2006. Kohtla-Järve poolkoksimäel. Analüüsid teostati gaaskromatograafia meetodil. Ladestu vanadel osadel, kus on kuumenemiskolled, toimub tõenäoliselt sulfaatide redutseerumine, mille lõpptulemuseks on divesiniksulfiidi emissioon. Divesiniksulfiidi eraldumise kiiruseks mõõdeti 0,214 mg/m<sup>2</sup> sekundis. Divesiniksulfiidi eraldumine on kindlasti seotud tuhajäägi enda kõrge sulfiidse väavli sisaldusega, keemiliste protsesside (sulfiidi vees lahustumise, hüdrolüüsi ja sulfiidi erinevate vormide vahel tekkivate tasakaaludega) tõttu toimub selle eraldumine gaasifaasi. Ligikaudse kuumenemiskollete pindala järgi (1000...1200 m<sup>2</sup>) võib divesiniksulfiidi aastane kogus ulatuda ca 8 tonnini (Maves AS, 2006), mis on üle 70% Kohtla-Järve linna ettevõtete kehtivates saastalubades märgitud summaarse H<sub>2</sub>S heitkogusest (vt Joonis 1) ning kaks korda rohkem kui 2008. aastal ettevõtete poolt deklareeritud divesiniksulfiidi saastekogused.

#### 1.4.3.2. Nõrgvesi poolkoksimägedelt

Uuringute kohaselt on Kohtla-Järve poolkoksimägede kohal aasta keskmine sademete hulk 669 mm/a ehk 1431660 m<sup>3</sup>/aastas, aurumise koguseks hinnatakse 430 mm/a ehk 920000 m<sup>3</sup>/aastas, mis on tingitud poolkoksiladestul intensiivsetest eksotermilistest protsessidest (Maves AS, 2006). Teise allika andmel leostub poolkoksimägedest 6000 – 7000 m<sup>3</sup>/päevas (Triikkel & Kuusik, 2006). TTÜ Keskkonnatehnika Instituudi 1998-2000 aastatel läbiviidud projekti tulemustes hinnati nõrgvee keskmiseks koguseks 666 000 m<sup>3</sup>, millest võib õhku eralduda kuni 80 t H<sub>2</sub>S aastas (TTÜ Keskkonnatehnika Instituut, 1998-2000).

Jäätmeladestul moodustuv veehulk on võrreldav kogustega, mis lähevad VKG Oil tootmisterritooriumilt ja jäätmeladestult regionaalpuhastisse. KMH aruandes on märgitud, et 2006. a oli sade-, liig- ja nõrgvee üldine kogus 579 200 m<sup>3</sup>, aga 2007. aastal 809 660 m<sup>3</sup>. Nõrgvesi sisaldas keskmiselt lenduvaid fenooli 0,072 mg/l, kahealuselisi fenooli kuni 0,105 mg/l, naftasaadusi kuni 0,83 mg/l ja sulfiide – kuni 0,36 mg/l (Tallinna Ülikooli Ökoloogia Instituut, Kirde-Eesti osakond, 2008). Tänapäevaks aga on „vanade“ poolkoksiste haldamine üle antud Keskkonnaministeeriumile, seega VKG AS arvele tulev nõrgvesi tuleneb ainult nii-öelda uult poolkoksiladestult, mis kogutatakse settebasseinidesse ning seejärel lastakse otse jõkke (VKG AS tehnikadirektori Meelis Eldermanni sõnul, 20.07.2010). Vanadest poolkoksimägedest kogutavad nõrgveed juhitakse mööda toru 5. pumplast Järve Biopuhastisse.

Poolkoksi prügila nõrgvesi kogutakse valdavalt prügila jalamil paiknevate piirdekraavidega nende lokaalse puhastamise eesmärgil, kuid siiski kandub reostust ka pinnaveekogudesse (Tallinna Ülikooli Ökoloogia Instituut, Kirde-Eesti osakond, 2008). Viimasele viidatakse ka Maves AS poolt tehtud töös, et lisaks ametlikule väljalasule on varasemal ajal esinenud ka mõningaid mitteametlikke väljalaske teiste metsakraavide kaudu Kohtla jõkke (Maves AS, 2004). Käesoleval ajal on reostuse levik pinnaveekogudesse oluliselt vähenenud, tänu tootmisprotsesside korrastamisele ja reostuse pidevale seirele, kuid mitte lõplikult lakanud.

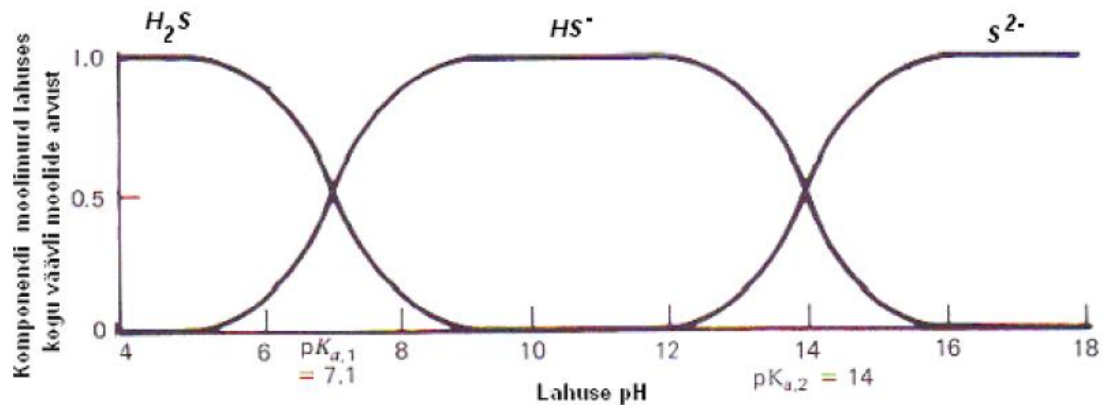
VKG AS territooriumilt juhitakse sade- ja liigvett ära ametliku heitveelasu (väljalasu kood IV002) kaudu Kohtla jõkke (suubub 10 km kaugusel Purtse jõkke).

### 1.5. Sulfiidi vormid vees ja õhus

Sulfiid esineb vesilahustes kolmes erinevas vormis:

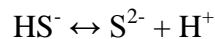
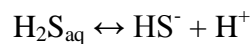
- sulfidioonid (S<sup>2-</sup>)
- vesiniksulfidioonid (HS<sup>-</sup>)
- vees lahustunud divesiniksulfiid (H<sub>2</sub>S)<sub>aq</sub>

Nimetatud vormide vahel tekib dünaamiline keemiline tasakaal, mis sõltub lahuse pH väärtusest, nagu on näha Joonisel 4.



**Joonis 4. Keemiline dünaamiline tasakaal vees lahustunud divesiniksulfiidi ( $\text{H}_2\text{S}_{\text{aq}}$ ), vesiniksulfiidi ( $\text{HS}^-$ ) ja sulfiidiooni ( $\text{S}^{2-}$ ) vahel sõltuvalt veekeskkonna pH-st (Snoeyink, 1980).**

Divesiniksulfiid dissotsieerub vees nõrga happena kahes astmes (Kulm, 2009)



Reovees on esindatud peamiselt divesiniksulfiid ( $\text{H}_2\text{S}_{\text{aq}}$ ) ja vesiniksulfiidioonid ( $\text{HS}^-$ ), kuna tüüpilise reovee pH on vahemikus 6...9. Divesiniksulfiid on ainuke sulfiidi vorm, mis on võimeline lahkuma gaasifaasi, põhjustades juba väga madalatel kontsentratsioonidel teravaid „haisuprobleeme“ (Yongshiri, 2002). Madalatel pH väärtustel on lahuses peamiselt divesiniksulfiid. Mida kõrgem on lahuse pH, seda rohkem on tasakaal nihutatud vesiniksulfiidioonide ( $\text{HS}^-$ ) ja sulfiidioonide ( $\text{S}^{2-}$ ) tekkimise suunas. Väga aluselistes lahustes, nagu näiteks poolkoksi nõrgvees, on domineerivateks vormideks just vesiniksulfiid- ja sulfiidioonid (Kärmas, 2004).

Nagu eelnevalt mainitud, on kahe vesiniku aatomiga seotud väävel võimeline lahkuma veefaasist gaasifaasi. Divesiniksulfiidi tasakaal gaasi- ja veekeskkonna vahel on määratud Henry seadusega,

$$x_g = k_H \times p_g,$$

kus  $x_g$  on gaasi kontsentratsioon lahuses väljendatuna moolimurru kaudu (gaasi moolide arve jagatis kogu lahuse moolide arvuga)

$k_H$  on Henry konstant, gaasi moolimurd lahuses, Mpa

$p_g$  on gaasi osarõhk lahuse korral, MPa

Nagu on valemist näha, sõltub  $\text{H}_2\text{S}$  tasakaal vee kokkupuutepinnast õhuga, turbulentsist, gaasi osarõhust veekeskkonna kohal ja lahuse pH-st (Pomeroy, 1990).  $\text{H}_2\text{S}$  emiteerumine gaasifaasi on suureks probleemiks näiteks sulfaatiderikka reovee puhul, kus sulfaate redutseerivad bakterid orgaanilise aine olemasolu korral efektiivselt seda sulfiidseks väävliks transformeerivad. Reovee tüüpiliste pH väärtuste korral (pH = 6...9) esineb sulfiid vees peamiselt vesiniksulfiidina ning divesiniksulfiidina. Puutudes kokku õhuga, hakkab toimuma divesiniksulfiidi lahkumine gaasifaasi (Yongshiri, 2002). Gaasilise divesiniksulfiidi teke leiab aset eelkõige seal, kus esineb väävel ja valitsevad anaeroobsed tingimused.

Divesiniksulfiid tekib ka reovee- ja kanalisatsioonitorude anaeroobses tsoonis (toru sisepinnal olevas kiles), gaasifaasi eraldunud  $\text{H}_2\text{S}$  põhjustab torude korrosiooni väävelhappe tekkimisega (Pomeroy, 1990). Detailsema ülevaate sulfiidide käitumisest

Kohtla-Järve linna 16 km pikkuses reoveekollektoris leiab K. Kärmase magistriltööst (Kärmas, 2004).

## **1.6. Reovee biopuhasti väevliühendite saasteallikana**

### **1.6.1. Kohtla-Järve piirkonna reoveepuhasti Järve Biopuhasti OÜ iseloomustus**

Kohtla-Järve regionaalne puhastusseade paikneb linna keskusest lääne suunas ja on ümbritsetud madala võsa ja lehtpuudega. Põhjas ja lõunas paiknevad tööstusettevõtted (VKG Oil, AS Nitrofert ja AS Genovique Specialities). Edelas ligikaudu 1 km kaugusel asuvad poolkoksimaed.

Puhastusseadmed alustasid tööd 1978. aastal, eesmärgiga kaitsta Soome lahte tööstuslikust ja kommunaalveest tuleneva saastatuse eest. Puhasti töötas asulapuhastina (vene keeles: РОС – районные сооружения) ning pidi puhastama Kohtla-Järve piirkonna heitveed. Alates 1982. aastast hakkasid puhastisse tulema ka tööstuslikud ja kommunaalveed Püssi alevikust ja Kiviõli linnast.

1985. aastal tehti puhastis teise astme aerotankide rekonstruktsioon, mille käigus vana aeratsioonisüsteem (poorsed plaadid) asendati kindlama ja uuemaga (poorsed torud). 1987. aastal lõpetati puhastit läbinud heitvee hajutamist võimaldava süvalaske ehitus, mis lubab lahjendamiseks kasutada merevett ning sellega pehmemdada heitvee võimalikku negatiivset mõju kalda floorale ja faunale.

Järgmine rekonstrueerimise etapp teostati 1999. aastal. Käivitati uued radiaalsetid, mis tagavad väljalastava heitvee eelpuhastuse halvasti settivast aktiivmudast. Samal aastal hakati puhastama ka Jõhvi linna kommunaalvett.

Kõige ulatuslikum rekonstrueerimisprojekt teostati 2005 – 2007 aastatel, kuid ikkagi jääb puhastusseade oluliseks välisõhusaaste allikaks, selle üheks põhjuseks on puhastusprotsessi tugev sõltuvus sissejuhitava reovee koostisest, mis on Kohtla-Järvel väga mitmekesine ja osaliselt biopuhastuskompleksile raskesti käsitletav.

Puhastusseadme erinevatest tehnoloogilistest etappidest eraldub välisõhku mitmesuguseid saasteaineid. Nendeks on fenoolid, vesiniksulfiidid, lenduvad orgaanilised ühendid ning muud identifitseerimata lõhnaained, mida tajutakse ebameeldivana. 14-15 detsember 2006 ja 25-27. augustil 2009 EKUKi poolt olid teostatud ülalnimetatud saasteainete mõõtmised eesmärgiga määrata Biopuhasti opereeriva puhastusseadme poolt välisõhku suunavate saasteainete heitkogused ja eriheitmed (EKUK, 2009). Mõlemal juhul kasutati tuuletunnelit (ECOMA) ja dünaamilist vookambrit (Odotech). Vookambrit kasutati staatilises režiimis (staatilise vookambrina) ehk ilma lisaõhu pealevooluta, vesiniksulfiidi kontsentratsioone määrati gaasianalüsaatoriga Jerome 631-x (rohkem kasutatud seadmetest ja meetodikast on töödes EKUK, 2007 ja EKUK, 2009).

Ülalpool nimetatud kahe mõõtmiskampaania käigus saadud eriheitmete võrdlus annab hea ülevaate teostatud keskkonnainvesteeringute efektiivsusest ja aitab tõlgendada Kalevi seirejaamas väävelvesiniku saastetasemete alanemist viimastel aastatel. Hetkeliste heitkoguste arvutamist teostatakse järgmise valemiga

$$Q = \frac{c \times V_m}{s}$$

kus  $c$  on saasteaine kontsentratsioon väljuvates gaasides ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

$V_m$  on tuuletunnelist läbi juhitava õhu mahtkiirus ( $\text{m}^3/\text{s}$ )

$s$  on tuuletunneli alune pindala ( $\text{m}^2$ )

Paremaks ülevaadeks on koostatud alljärgnev tabel nr 4.

**Tabel 4. Biopuhasti olulisemate saasteallikate hetkeliste heitkoguste võrdlus 2006. ja 2009. aastatel mõõdetud**

nr	2006			2009		
	Saasteallikas	Pindala, $\text{m}^2$	Heitkogus, $\mu\text{g}/\text{s}$	Saasteallikas	Pindala, $\text{m}^2$	Heitkogus, $\mu\text{g}/\text{s}$
V1	Tööstuslike heitvete vastuvõtukamber	23.2	0.568	Mehaaniline puhasti	1	90
V2	Ühtlustusbasseinid	2160	35.944	Jaotusmahuti	36	48
V3	Aeratsioonibassein	7920	105.229	Protsessimahuti	13125	2.73
V4	Linna reovee vastuvõtukamber	11.6	2.483	Järelsetiti	1256	0.038
V5	Järelsetiti	1256	0.042	Järelsetiti	1256	0.038
V6	Järelsetiti	1256	0.042	Järelsetiti	1256	0.038
V7	Järelsetiti	1256	0.042	Mudakäitlus-hoone		0.017
V8	Mudaväljakud	3268	0.563	Bifilter		0.143
V9				Kompostimis-väljak	10150	-
			<b>144.913</b>			<b>141,004</b>

Eespool toodud andmetest ei saa järeldada, et renoveerimisejärgsed summaarsed heitkogused on märkmisväärselt vähenenud. Summaarsete hetkeliste heitkoguste järgi arvutame aastased heitkogused, mis on 2006. aastal 4,567 t/a ning 2009. aastal 4,446 t/a. Samas aga protsessimahuti (aeratsioonibasseini) eriheide oli väga oluliselt langenud.

Vesiniksulfiidi allikaks reoveepuhastis, nagu juba punktis 1.5. mainitud, on sulfaatiderikas sissetulev reovesi, kus sulfaatide redutseerimise protsessis transformeeritakse see sulfiidseks väävlis, mille emissioon välisõhku sõltub heitvee pH-st. Seda tõestavad ka EKUKi esimese (2006. a) mõõtmiskampaania raames teostatud Kohtla-Järve heitveepuhasti sissevooludest võetud veeproovide analüüsid. Proove võeti ööpäeva jooksul kolmes etapis ajavahemikus 8.00-16.00, 16.00-24.00 ja 24.00-8.00 septembrist detsembrini 2006. a kuuest erinevast sisselaskekollektorist. Ööpäeva keskmistatud andmed on toodud Tabelis 5:

**Tabel 5. Sisselaskekollektoritest võetud veeproovide analüüside päeva keskmised tulemused**

Kollektor	Sulfaatiooni keskmine kontsentratsioon, $\text{mg}/\text{S}/\text{L}$	Sulfiidiooni keskmine kontsentratsioon, $\text{mg}/\text{L}$	pH keskmine väärtus
Nõrgvesi tuhamägedelt	620.97	31.38	10.63
Fenoolistustamine	184.33	21.66	6.63
Kiviõli-Püssi	240.73	5.36	6.77
Keskmistatud veed	246.79	10.55	7.37

Jõhvi linn	154.31	3.38	7.53
Peale 1. puhastusastet	196.25	31.38	7.47

Arvutatud Pearsoni korrelatsioonikoefitsiendid näitasid tuhamägedelt veepuhastusjaama jõudva heitvee sulfiidioone sisalduse tugevat positiivset seost välisõhu mõõdetud vesiniksulfiidi sisaldusega.

Vesiniksulfiidi üleminekut veefaasist gaasifaasi suurendab intensiivne turbulents ja aeratsioon, aga ka heitvee järsk pH muutus, nagu näiteks tuhamägede leeliselise nõrgvee (pH = 10) segunemisel happelisemate heitvetega. Kui heitvee pH viia 7-ni siis on 50% vesiniksulfiidist molekulaarsel kujul ning võimeline tungima gaasifaasi (EKUK, 2007). See toimubki reoveepuhastises – mööda toru tuleva sulfaatiderikka tuhamägede nõrgvee pH on 10,6, kuid juba keskmistis kesmine pH väärtus mõõtmiskampaania jooksul oli 7,37, mis on nõ “ideaalsed“ tingimused H<sub>2</sub>S eraldumiseks õhku. Kahjuks ei ole käesoleva töö autorile kättesaadavad peale rekonstrueerimist teostatud sissetulevate vete mõõtmistulemused.

## 1.7. Atmosfäärisaaste hajumise seire ja modelleerimine

Õhusaaste on kolmedimentsionaalne loodusenähtus ning selle modelleerimine nõuab teadmisi sisendandmetest (meteoroloogia, õhusaaste allikad, piiravad takistused) ning atmosfääri protsessidest, mis mõjutavad saaste levikut, hajuvust ja keemilist transformeerumist (Kimmel, 2002).

Rääkides õhusaastest, vaatleme kõigepealt alumist atmosfääriosa – troposfääri, mis koosneb kolmest kihist: vaba atmosfäär, planetaarne piirkiht ja maalähedane kiht. Planetaarne piirkiht (0,7 – 1,5 km, aga võib ulatuda ka mitme kilomeetrini) on aluspinnaga piirnev kiht, kus turbulentsne sisehõrdejõud on sama suurusjärku Coriolise jõuga (ja viimasega sama suurusjärku oleva horisontaalse rõhujõuga). Planetaarse piirkihi all asub suhteliselt õhuke atmosfäärikiht paksusega 10 – 100 m – maalähedane kiht, kus võib Coriolise jõu jätta tähele panemata (Rööm, 2005).

### 1.7.1. Piirkihi paksus ja struktuur

Maa ja vee kohal on piirkiht üsna erinev. Üldiseks tunnuseks nii merel kui maal on piirkihi paksuse sõltuvus aluspinnarõhust (mis omakorda on tingitud tsüklonaalsest tsirkulatsioonist): kõrgrõhkkonnas on piirkiht üldiselt õhem kui madalrõhkkonnas. Kõige õhem on piirkiht tüüpiliselt kõrgrõhkkonna pilvevabas alas, mis on tingitud süstemaatiliselt laskuvatest õhuvoolutsoonidest.

Madalarõhualas, kus tugev tsüklonaalse skaala tõusev liikumine kannab piirkihi õhu (eriti piirkihi ülaosas) intensiivselt vabasse atmosfääri, on sageli üsna raske määratleda, kus lõpeb piirkiht. Sel juhul loetakse piirkihi tipuks pilvede alapiiri.

Kõrgrõhkkonnas maismaa kohal on piirkihil küllalt selgepiiriline struktuur, mis evolutsioneerub kooskõlas ööpäevatsükliga, mille tüüpilised komponendid on segunenud kiht, jääkkiht ja stabiilne piirkiht.

**Segunenud kiht (SK)** on turbulentsi poolt kõige paremini läbi segatud. SK tekib päevajal, kui alumised maalähedased kihid soojendavad tugevamini ja piirkiht muutub suhteliselt ebastabiilseks. Hästi läbisegatud SK võib tekkida ka tugevate tuulte korral, kui tugev horisontaalne tuule vertikaalgradient annab turbulentsi tekkeks vajaliku energia. Kuid enamasti on piirkihi segunemine tingitud konvektsioonist.

Atmosfäärisaaste kontsentratsioon kahaneb SKs kõrgusega süstemaatiliselt, sest saaste tuleb kõrgrõhkkonna piirkihis aluspinnalt ja transporditakse turbulentsiga ülespoole.

**Jääkkiht** (JK) tekib umbes tund enne loojangut, kui konvektsiooni energiallikad kustuvad ja lõpeb turbulentsi genereerimine. Jääkkihile on tavaline, et sellesse akumuleeruvad päeva jooksul üles segatud saastekomponendid, mis võivad öö jooksul osaleda ka keemilistes reaktsioonides. Kui sama protsess toimub mitmeid päevi, võib piirkihis tekkida kõrge saastetase.

Jääkkiht ei puutu maapinnaga vahetult kokku, sest selle alla tekib samaaegselt jääkkihi tekkega stabiilne piirkiht.

**Stabiilne piirkiht** (SPK) on staatiliselt stabiilse stratifikatsiooniga piirkiht, kus temperatuur  $T$  on konstantne või kahaneb kõrgusega aeglaselt (kuni 0,01 K/m). Tugevalt stabiilse kihistuse ehk temperatuurinversiooni korral temperatuur isegi tõuseb kõrgusega. Selgetel öödel jahtub maapind kiirguslikult kiiresti (kuni 1 K/tunnis), mistõttu jahtub ka kõige alumine õhukiht, turbulents sumbub selles kihis ja formeerub SPK, millele on tüüpiline ka tuule nõrgenemine või peaaegu täielik lakkamine. Vaba atmosfääri tuul ei jõua SPKsse, mis ise pidurdub kokkupuutest aluspinnaga, ja kuna turbulentne sisehõõre SPK ja selle kohal formeeruva JK vahel praktiliselt puudub, siis tekib olukord, kus JK on haaratud vaba atmosfääri horisontaalsest liikumisest ja libiseb mööda SPKd, mis on liikumatu. Sageli võib SPK ja JK piiril (tavaliselt 100..200 m kõrgusel) tekkida ka tuule tugevnemine, kus tuulekiirus võib oluliselt ületada absoluutväärtuselt ja erineda suunalt vaba atmosfääri geostroofilisest tuulest. See nähtus on tuntud kui piirkihi jugavool või õine jugavool. Päris maapinna juures tekib kallakpindadel SPKs katabaatiline tuul, mis kujutab enesest külma ja raskema õhu allamäge voolamist. Katabaatiline tuul tugevusega kuni 1 m/s on jälgitav 1 meetri kõrgusel maapinnast (Rõõm, 2005).

### 1.7.2. Õhu liikumise protsessid

Õhuheitmete liikumine ja hajumine on seotud eelkõige meteoroloogiliste tingimustega, aluspinna iseärasustega ning õhukihtide temperatuuride väärtustega.

Stabiilset atmosfääri iseloomustab nõrk turbulentne õhu segunemine. Sellel juhul saasteained jäävad kauemaks ajaks piirkihti (nimetatakse ebasoodsateks või õhusaaste hajumist pärssivateks ilmastikutingimusteks). Õhukihtide segunemist alumises atmosfääri osas soodustavad mitmed põhjused, kuid märkmisväärsed on püstsuunaline temperatuurigradient ning mehhaaniline turbulents, mis sõltub tuule tugevusest ja aluspinna karedusest.

#### 1.7.2.1. Advektsioon

Õhulisandite (aga ka meteoparameetrite) levikut koos õhumassiga nimetatakse advektsiooniks, mis on saasteaine leviku kõige kiirem viis. Kuna troposfääri ülaosas on tuule kiirus suurem, levivad kõrgemale kantud lisandid kiiremini kui maalähedases kihis. Ajapikku satuvad saasteained kõrgematest õhukihtidest maapinnale tagasi sademete või laskuvate õhuvooludega.

#### 1.7.2.2. Molekulaarne difusioon

Kõige üldisem difusiooni määratlus on aine ülekande protsess kõrgema kontsentratsiooniga alalt madalama kontsentratsiooniga ala suunas. Kui õhus on mingis kindlas kohas kontentsentreeritud saasteaine, siis see hajub tervele välisõhu ruumalale, isegi kui selles ei toimu mingit suunatud liikumist (Boeker & Grondelle,

1995). Kuigi molekulaarne difusioon on kõige aeglasem õhusaaste leviku viis, toimivad samad mehhanismid tugevamale suuremale turbulentssele difusioonile, mis on väga tähtis saaste hajumisel. Difundeeriva aine kontsentratsiooni  $C(x,y,z) = C(\mathbf{r})$  (kus  $x,y,z$  on raadiusvektori  $\mathbf{r}$  komponendid) saab väljendada selle massi  $\Delta M$  jaotuse kaudu ruumalaühikus  $\Delta V$ :

$$C = \frac{\Delta M}{\Delta V}$$

Difusioon on molekulide juhuslike liikumiste protsess, mistõttu difusiooni kiirus on võrdeline molekulide kesmise kiirusega. Gaaside juhul on väiksemate molekulide keskmine kiirus suurem, pöördvõrdeline molekulaarmassi ruutuurega ning kasvab temperatuuriga. Difusiooni kiirus on proportsionaalne aine kontsentratsiooni ja vastava aine difusioonikoefitsiendiga. Difusiooni voog  $F$  on suunatud difundeeruva osakese liikumise suunas ning tähendab osakeste massi, mis läbib pindala mingi ajaühiku jooksul. Kontsentratsiooni ja voo suhe on tuntud Fick seaduse nimega:

$$F = -D\nabla C$$

Kus konstant  $D$  on difusioonikoefitsient, mis sõltub temperatuurist, molekulaarmassist jne, näiteks  $H_2S$  difusiooni koefitsient ( $25^\circ C$ , atmosfäärirõhk) vees on  $1,36 \times 10^{-9} m^2/s$  (Boeker & Grondelle, 1995).

Kontsentratsioon  $C$  võib olla ka funktsioon ajast  $t$ , tulemuseks on  $C = C(\mathbf{r}, t)$ . Massi jäädvuse võrrandit saab siis kirjutada järgmiselt

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \nabla \cdot F = 0$$

Võttes arvesse dispersiooni laminaarses voolus kiirusega  $u$ , mis on sõltumata asukohast  $\mathbf{r}$ , saame voo

$$F = uC - D\nabla C$$

Võrrandi paremal poolel esimene liige  $uC$  kirjeldab voogu kui kontsentratsiooni kiirusega  $u$ , seda efekti kutsutakse osakeste adveksiooniks (Boeker & Grondelle, 1995). Massi jäädvuse saab siis esitada kujul

$$\frac{\partial C}{\partial t} + u \cdot \nabla C - D\nabla^2 C = 0$$

Oletades, et  $\nabla \cdot u = 0$  ja  $D$  on konstantne, saame difusioonivõrrandi

$$\frac{dC}{dt} = D\nabla^2 C,$$

mis on identne soojusülekandevõrrandiga.

### 1.7.2.3. Turbulentne hajumine ehk turbulentsne difusioon

Lisaks suhteliselt püsivale keskmisele tuulele on atmosfääris alati olemas keerised, mille mõõtmed ulatuvad mõnest sentimeetrist sadade meetriteni. Keeriste tekkimist ja arengut gaasis ja vedelikus nimetatakse turbulentsiks. Tuule täppismõõtmised näitavad lühiajalisi muutusi (fluktatsioonid), mis toimuvad sekundi murdosade kuni minutite jooksul. Fluktatsioonideks loetakse tavaliselt muutusi, millel periood on alla tunni, sellest pikemad on juba ööpäevased ja mitmepäevased tsüklonaalse tegevusega seotud muutused, sempoonsed muutused ja pikaajalised kliimatilised kõikumised (Kimmel, 2001).

Turbulentsi tekkimiseks atmosfääris on kaks võimalust: õhu voolamine üle aluspinna takistuste, mille tulemuseks on nn mehhaaniline turbulents ning soojusvoog aluspinnalt, mis põhjustab konvektiivset liikumisest soojenenud aluspinna kohal. Mõlemad tekkemehhanismid esinevad väga tihti koos.

Turbulents tekib siis, kui sisehõõrdejõud keskkonnas on piisavalt väike, et keerised ei sumbu väga kiiresti (Boeker & Grondelle, 1995). Turbulentsi korral segavad õhku keerised ja teevad seda palju kiiremini kui molekulaarse difusiooni protsess. Enamasti võib turbulentses keskkonnas segunemist uurides molekulaarse difusiooni arvestamata jätta, kuid siin on analoogia: molekuli vaba tee pikkuse asemel on keeriste tüüpiline läbimõõt ning turbulentsse difusiooni võrrand on molekulaarse omaga sarnane (Kimmel, 2001):

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( K \frac{\partial C}{\partial z} \right)$$

kus  $K$  on turbulentsse difusiooni koefitsient ehk ülekandekoefitsient.

Erinevalt molekulaarse difusiooni koefitsiendist  $D$  võib turbulentsi korral  $K$  sõltuda ruumikoordinaatidest – difusioonikoefitsiendid eri koordinaatide suunas (tuule suund, ristsuund, vertikaalsuund) erinevad, mis teeb turbulentsse difusiooni molekulaarsest palju keerukamaks (Kimmel, 2001).

#### 1.7.2.4. Turbulentsi mõõtmine

Turbulentsi tekitab õhuvoolus nii kineetiline kui latentne energia, tuule kiiruse mõõtmistest saab infot aga ainult mittelatentse osa kohta. Turbulentsi väljatoomiseks tuule kiiruse mõõtmistest uuritakse selle standardhälbeid (ruutjuur tuule kiiruse dispersioonist). Tuule kiiruse dispersioon iseloomustab sisuliselt voo jagunemist alamvoogudeks – nagu ka optikas dispersioon laine jagunemist mitmeks erineva sagedusega laineks (kui valguskiir on läbinud prisma). Seega iseloomustab turbulentsust ka tuule puhangulisus.

Reaalne atmosfäär on alati turbulentne. Lamnaarset voolamist esineb vaid mikromastaabis, siledade pindade vahetusläheduses.

#### 1.7.2.5. Püstsuunaline temperatuurigradiend

Temperatuuri ööpäevakäik on põhjustatud päikesekiirguse soojendavast toimest, kuid päikese lühilaineline kiirgus ei soojenda piirkihi õhku, vaid aluspinda, mis omakorda annab oma soojuse üle piirkihile kas infrapunakiirguse neeldumise või soojema õhu turbulentsse vertikaalse äraandmise teel. Soojem ja niiskem õhk jahtub rõhu langemisel adiabaatiliselt tõustes aluspinnalt ülespoole, teeb paisudes tööd ning kaotab energiat. Seetõttu troposfääri lõikes temperatuur  $T$  kõrguse  $z$  kasvades langeb ( $dT/dz < 0$ ) – keskmiselt 6,5 C kilomeetri kohta.

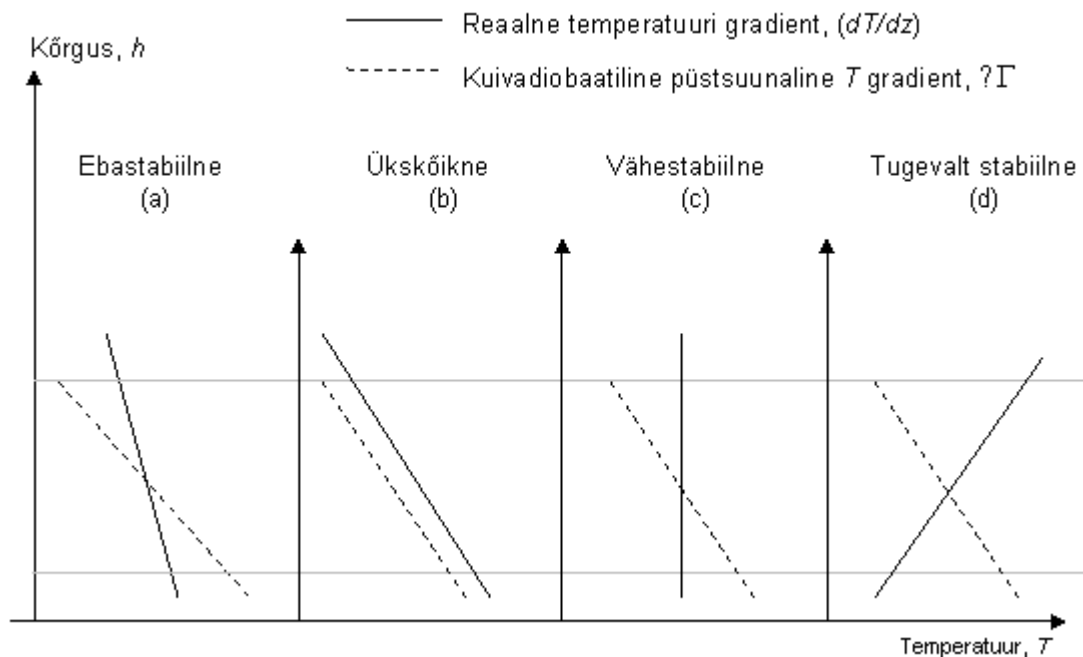
Õhukihtide soojusvahetuse intensiivsust võib hinnata võrreldes reaalselt ning adiabaatilist temperatuuri gradiendi. Viimast saab väljendada järgmiselt

$$\left( \frac{dT}{dh} \right)_{ad} = -g \frac{1}{C_p},$$

Kus  $g$  on raskuskiirendus ja  $C_p$  õhu isobaariline erisoojus. Kui arvestame, et  $g$  ja  $C_p$  muutuvad kõrgusega vähe ning nende arväärtused temperatuuril  $t=18-25$  °C, saame

$$\left( \frac{dT}{dh} \right)_{ad} = -9,806 \times \frac{1}{1005} = -0,0098 \approx 0,01 K / m = \Delta \Gamma$$

Niimoodi väljendatud väärtuse  $\Delta \Gamma$  reaalse temperatuuri gradiendiga  $dT/dz$  toob välja atmosfääri oleku neli varianti, vt Joonis 5 (Trifonov & Devissilov, 2006):



**Joonis 5. Temperatuuri püstsuunaline gradient ja atmosfääri stabiilsus**

Juhul (a) reaalne püstsuunaline gradient ( $dT/dz$ ) on väiksem kui  $\Delta\Gamma$  ning atmosfäär on üleadiabaatilises olekus, mis tähendab et õhuruumala liikumisega vertikaalses suunas kaasneb reaalse ja potentsiaalse gradienti nihkumise tugevdamise tendents ehk atmosfäär on ebastabiilne (labiilne). Järgmisel juhul (b) ( $dT/dz$ ) =  $\Delta\Gamma$  ja atmosfäär on atmosfääri ükskõikses (neutraalses) olekus ehk õhuruumala vertikaalse liikumisega tema algoleku parameetrid ei erine keskkonda parameetritest, sest puudub püstsuunaliste liikumiste edasiviiv jõud - õhuruumala paiknemine sõltumata selle algtemperatuurist on igal kõrgusel võrdselt võimalik. Kui ( $dT/dz$ ) >  $\Delta\Gamma$  (c), siis atmosfäär on ala-adiabaatilises olekus. Sellel juhul on atmosfäär nõrgalt stabiilne (nõrk algolekusse viiv jõud). Kui aga õhutemperatuur tõuseb kõrguse kasvuga ( $dT/dz$ )  $\gg \Delta\Gamma$ , nagu näha (d), esineb inversioon, mille korral õhuruumala igasugune vertikaalne liikumine on takistatud, sest algekõrgusest eemaldunud õhuosakesele mõjub tugev tagasiviiv jõud. (Trifonov, Devissilov, 2006)

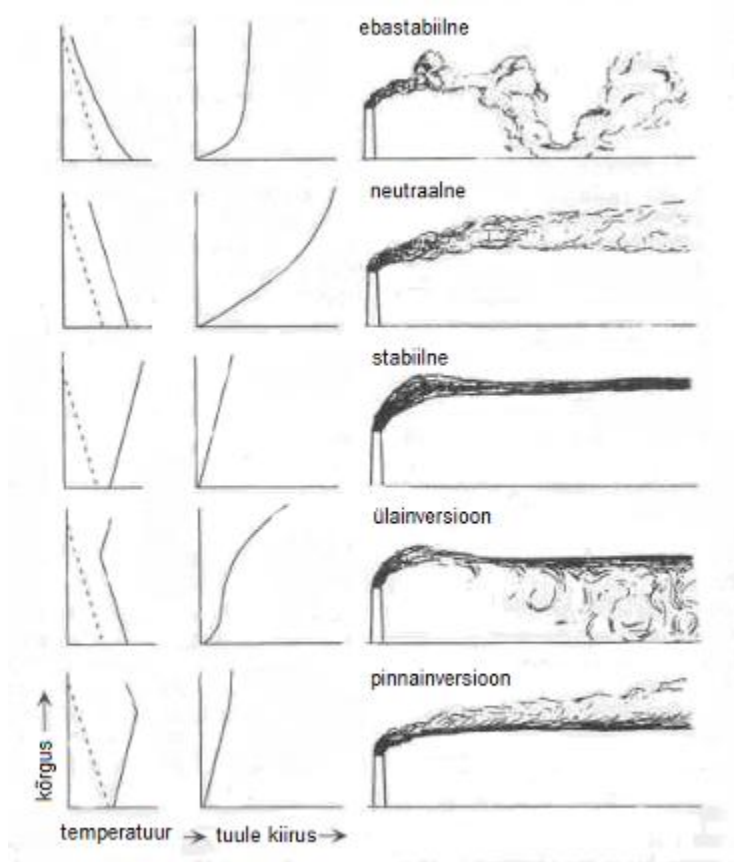
### 1.7.3. Atmosfääri kihistus

Atmosfääri kihistuse mõju õhusaaste liikumisele on võimalik järgida suitsujoa hajumisele pealt erineva kihistuse tingimustes. Joonisel 6 on toodud saasteallikast väljuvate heitgaaside joa kuju areng sõltuvalt temperatuuri vertikaalse gradiendi ning tuule kiiruse profiili muutmisest. Peamiseks tuule kiiruse kujundajateks on rõhu- ja temperatuuriväli. Kõrgrõhkkonnas muutub õhurõhk horisontaalselt keskmiselt aeglasemalt kui madalrõhkkonnas, seega on tuule kiirus kõrgrõhkkonnas tavaliselt väiksem kui madalrõhkkonnas. Esimesel skeemil on toodud labiilne atmosfääri olukord, mille korral kujunevad heitgaasi maapinnalähedased ja maapinnale sadenevad kontsentratsioonid madalaks, sest siin toimuv tugev konvektsioon on ühtlustatud ka tuulekiiruse vertikaalset komponenti. Kõrgusega ühtlase temperatuuri saavutamiseks kasvab tuule kiirus kõrgusega seda kiiremini maapinnalähedases kihis, kuna liikuva õhu hõõrdumise tõttu aluspinna elementidega läheneb tuule kiirus

aluspinna lähedal nullile. Seega labiilse kihistusega atmosfääri tingimustes on tuul standardkõrgusel, muude tingimuste võrdsuse korral, kõige tugevam.

Neutraalse kihistuse korral õhutemperatuur kõrgusega ei erine adiabaatilise gradiendiga määratud õhutemperatuurist (potentsiaalne gtemperatuur kõrgusega ei muutu) ning seega sõltub ideaalsetes tingimustes tuule kiiruse muut ainult kõrgusest aluspinnast ja eemaldumisel sellest kasvab kogu piirkihi ulatuses logaritmiliselt.

Kõrguse vahemikus, milles temperatuur kõrgusega kasvab, esineb stabiilne kiht ehk inversioon. Kuna aluspinnal on õhk külmem kui kõrgemal ning soojusvoog on maapinnalt negatiivne, esineb sel juhul tasasem pinnalähedane tuul madalama kineetilise energia tõttu. Inversioonikihi võimsust iseloomustab temperatuuri kasvu määr kihi paksuse kohta ( $dt/dz$ ). Inversioonikihis levib suitsujuga lehviku kujuliselt, vertikaalne hajumine on väike. Saasteainete levik on selles olukorras raskendatud, nende kontsentratsioonid tõusevad esmalt vastaval kõrgusel õhus, hiljem maapinna lähedal ja sademetes.



**Joonis 6. Suitsujoa hajumine sõltuvalt temperatuurist ja tuule kiiruse profiilist (Arya, 1999)**

Kahel viimasel skeemil kujutatud olukorrad tekivad juhul kui temperatuuri gradient muudab kõrgusega suunda ning korstna tipp jääb inversioonikihist kas kõrgemale või madalamale. Inversioonikihis ülemisest piirist kõrgemal asuvast korstnatipust väljuvad heitgaasid on aluspinnast eraldatud, hajudes väga hästi kõrgematesse õhukihtidesse (pinnainversioon). Ülaversiooni ajal pärsib temperatuuri stratifikatsioon õhusaaste hajumist: saasteained ei pääse kõrgematesse õhukihtidesse, vaid hajuvad takistamatult aluspinna suunas. Viimane olukord võib olla kõrgrõhkkonna korral sooja aluspinna kohal. Kõrgrõhkkonnast tingitud selge taeva tõttu (suvepäeval) arenenud konvektiooni mõjul on aluspinna kohal vertikaalselt hästi ühtlustunud

õhukiht. Aluspinna lähedal, maalähedases kihis kasvab tuule kiirus kõrgusega ruttu, samuti ka päris kõrgel stabiilses kihis. Eelviimane skeem kujutab vastupidist olukorda – selline tuuleprofiil võib esineda madalrõhkkonna tingimustes arenenud kiirgusliku inversiooni korral. Pinnainversiooni mõjul on standardkõrgusel tuule kiirus väike, piirikihi kohal jääb aga kõrgusega muutumatuks.

Tuulevaikus iseenesest soodustab stabiilse kihistuse teket külmema aluspinna korral (näiteks öösel), kuna tuule puudumisel ahenevad madalamad õhukihiid kõrgematest kiiremini. Tuulevaikus pärsib stabiilsuse teket soojema aluspinna korral (päeval), kuna vastasel juhul tugevam tuul segaks aluspinna kōetud maalähedast õhku hõlpsamini kõrgemate kihtidega (Pasquill & Smith, 1979).

#### 1.7.4. Tuul piirkihis

Horisontaalne õhuliikumine on kiirem kui vertikaalne, mis on tingitud tuule horisontaalsest iseloomust. Tuule kiirem horisontaalne komponent soodustab õhuosakeste allatuult hajumist (Ahrens, 2002). Saasteainete vertikaalne transport on siiski kiirem molekulaarsest difusioonist, põhjustatuna konvektsioonist ja tuulehõõrdest.

Kõige lihtsama tasakaalulise voolamise juhul liigub õhuruumala piki sirget, siis on omavahel tasakaalus Coriolise jõud ja rõhugradientjõud ning sellist voolamist nimetatakse geostroofiliseks (Keevallik, 2004). Seetõttu saab geostroofilist tuult defineerida järgmiselt: geostroofiline tuul  $v^g$  on õhuosakeste ühtlane horisontaalne ringjooneline liikumine (Rõõm, 2005), mille korral Coriolise jõud on tasakaalustatud horisontaalse rõhujõuga ehk kehtib tasakaal

$$\frac{1}{\rho} \nabla \rho + f \mathbf{z} \times \mathbf{v}^g = 0,$$

Kus  $\rho$  on õhu tihedus ja  $f$  Coriolise parameeter. Geostroofilise tasakaalu võrrandit saab kasutada, et hinnata tegelikku tuulevektorit vabas atmosfääris rõhuvälja kaudu, kui rõhuvälja jaotus on mõõdetud või mudelist tuletatud. Geostroofiline tuul on vaba atmosfääri nähtus ning maapinna lähedal on reaalne tuul pöörduanud geostroofilise tuule suhtes kindla nurga võrra. Piirikihi tuule komponentide suhe geostroofilisse tuulde väljendub valemitega

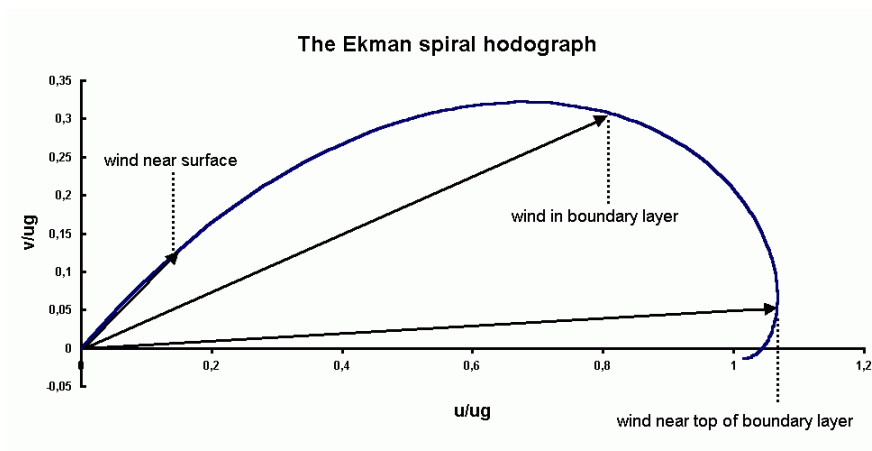
$$\frac{v^x(z)}{v^g} = 1 - e^{-z/z_0} \cos(z/z_0)$$

$$\frac{v^y(z)}{v^g} = e^{-z/z_0} \sin(z/z_0),$$

kus  $z$  on kõrgus maapinnast,  $z_0$  aluspinna karedusparameeter ning  $v^x$  ja  $v^y$  tuule kiiruse komponendid. Seejures on eeldatud, et  $x$ -telg ühtib geostroofilise tuule suunaga vaba atmosfääri alapiiril. Kui kanda suhtelise tuule vektori  $\mathbf{v}(z)/v^g$  otspunkti trajektoori kõrguse  $z$  funktsioonina  $x$ ,  $y$ -tasandile nii nagu see järeldub valemist, saame kõvera (vt Joonis 7), mis on tuntud Ekmani spiraalina (Rõõm, 2005).

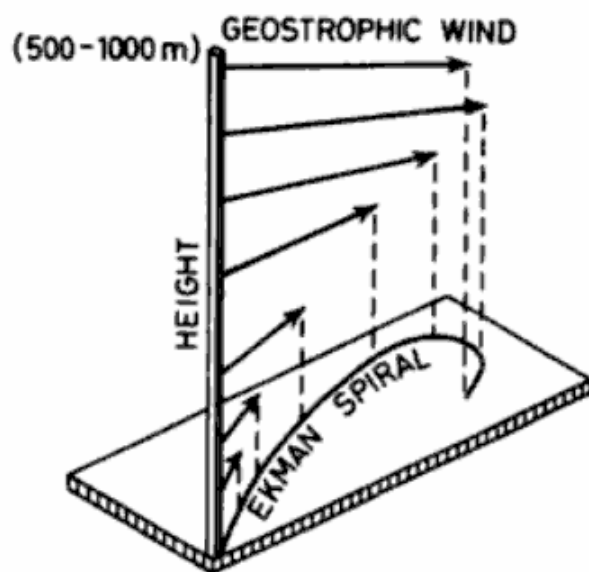
Ekmani spiraal kirjeldab tuule suunda ja kiirust piirkihis geostroofilise tuule suhtes. Jooniselt 8 on näha, et põhjapoolkeral on tuul piirkihis pööratud geostroofilise tuule suunas ülalt vaadates vasemale ehk vastassuunas kellaosuti liikumise suunale. Pööre on seda suurem, mida väiksem on  $z$ , mis tähendab, et maksimaalne tuule pööre on

maapinnal. Teoreetiliselt maksimaalne võimalik tuule pöördnurk  $\alpha_0 = 45^\circ$ , kuid tegelik pööre atmosfääris on väiksem, nimelt  $\alpha_0 \approx 20^\circ \dots 40^\circ$  maapinna ja  $\alpha_0 \approx 15^\circ \dots 30^\circ$  merepinna kohal (Rõõm, 2005).



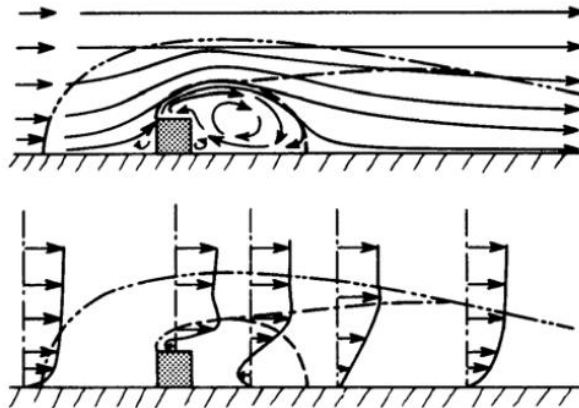
**Joonis 7. Ekmani spiraal (<http://www.zamg.ac.at/>)**

Joonis 8 illustreerib eelpool käsitletud tuulesuuna ja -kiiruse muutmist sõltuvalt kõrgusest. Ekmani spiraaliga kirjeldavat pööret on näha ka meteomastide erinevatel tasemetel mõõdetud tuulesuuna muutumises.



**Joonis 8. Tuule Ekmani spiraal koos tuulekiirusega (Barry & Chorley, 2003)**

Maalähedases piirkihis toimuvad mikroliikumised, mis tähendab, et planetaarse piirkihi tuuli ja turbulentsi ei saa arvestamata jätta. Maalähedases kihis takistuste tõttu (kas looduslik kõrgendik või kõrgem hoone) tekivad keerised muudavad tuule voo (suuna) ja kiiruse profiili, Joonis 9.



Joonis 9. Voog (üleväl) ja tuule profiil (all) teravakujuliste rajatiste ümber ja kohal (Halitski, 1963)

### 1.7.5. Analüütilised mudelid keskkonnaseisundi kirjeldamiseks

On olemas neli põhilist lähenemist hajumise kirjeldamiseks gaasikeskkonnas (Jegorov & Savitskaja, 2004):

1. Otsene eksperimentaalne uuring, kasutades mõõteriistu heitmete vormi ning leviku trajektoori kirjeldamiseks.
2. Sarnasusteooriat kasutatakse juhul, kui tihe või keeruline hoonestus, ei võimalda objektiivselt hinnata õhuvoolude suunda.
3. Saasteaine difusiooni teooria baseerub massi jäädvuse seadusel. Antud juhul oletatakse, et peamine levik koordinaattelgi mööda on homogeenne ning kasutatakse turbulentsi keskmistamise võtteid, mis põhinevad keskmistel ja fluktuatsioonidel. Antud lahendust kasutatakse laialdaselt saasteainete hajumisarvutustes.
4. Statistiline teooria – ei anna atmosfääri turbulentsi intensiivsuse ja spektraalsete omaduste kirjeldust, vaid võimaluse uurida saasteainete liikumise dünaamikat ning määrata statistilisi karakteristikuid difusiooni kirjeldamiseks.

Eristatakse pikema- ja lühiajalisi prognoose. Pikemaajaliste arvutuste tegemiseks kasutatakse turbulentsel difusioonil põhinevaid mudeleid. Operatiivsema prognoosi teostamiseks on levinud ka staatilised regressioonmudelid ning euharistlikud iseorganiseerimise mudelid (Jegorov & Savitskaja, 2004).

Arusaamise ja arvutamise lihtsustamise eesmärgil on saadud pidevat keskkonda kirjeldavatel diferentiaalvõrranditel analüütilised lahendid, kuid nagu iga lihtsustamine, tähendab ka analüütiliste mudelite kasutamine kõlblikkust ainult kitsastele erijuhtudele (Kaasik, 2005).

Üks levinumatest analüütiste kohaliku õhusaastelevi arvutus põhineb Gaussi jaotusega saastejoa mudelil ehk Gaussi mudelil, mis lähtub järgmisest difusiooni-advoktsioonvõrrandist:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \text{div}(vC) - \frac{\partial}{\partial z} \left( K_y \frac{\partial C}{\partial x} \right) - \frac{\partial}{\partial z} \left( K_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) - \frac{\partial}{\partial z} \left( K_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) = S$$

kus  $C$  on saasteaine kontsentratsioon õhus,  $v$  tähistab tuule kiiruse vektorit ja  $S(x,y,z,t)$  saasteallikaid (Kaasik, 2000).

Gaussi valemi lähend on võimalik ainult mõnede eeldustega:

- olukord on statsionaarne
- tuule kiirus ja suund ei muutu kõrgusega ega horisontaalsihis, kiiruse vertikaalne komponent on kaduvväike
- turbulentsse ülekande koefitsiendid  $K_x$ ,  $K_y$ ,  $K_z$  on konstantsed
- allikaks on üks punktallikas koordinaatidega  $x=0$ ,  $y=0$ ,  $z=H$ .

Siis saame:

$$u \frac{\partial C}{\partial x} - K_y \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} - K_z \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} = Q \delta(x) \delta(y) (z - H)$$

kus  $Q$  on punktallika tugevus ja  $\delta$  on Diraci deltafunktsioon. Selle võrrandi analüütiline lahend avaldub kujul:

$$C = \frac{Q}{2\pi\sigma_x\sigma_y u} \exp\left[-\frac{y^2}{2\sigma_x^2} - \frac{(z-H)^2}{2\sigma_z^2}\right]$$

kus  $\sigma_y = (2K_y x/y)^{1/2}$  ja  $\sigma_z = (2K_z x/y)^{1/2}$ . Valem näitab, et saaste hajub punktallikast kaugenemisel vertikaalmõõtmes ja tuule suunaga ristuvast mõõtmes kahemõõtmelise Gaussi jaotusena, mille standardhälbed (hajumisparameetrid) on võrdelised ruutjuurega allatuult levimise ajast (Kaasik, 2000).

### 1.7.6. Numbrilised mudelid

Kui kõik diferentsiaalid asendada lõplike vahedega, siis kaob võrrandite matemaatiline elegantsus ning pideva keskkonna käsitus asendub algebraliste võrranditega iga võrgupunkti jaoks eraldi (Kaasik, 2005).

Konkreetsete võrrandite tõlgendamisel tuleb alati tähele panna, kas ajaline muut arvutatakse fikseeritud taustsüsteemis paigal seisva ruumielemendi jaoks nagu seda Euleri mudelis või keskkonnaga kaasa liikuva osakese jaoks – Lagrange mudel (Kaasik, 2005).

### 1.7.7. Õhusaaste hajumise modelleerimine

Rakenduslikud õhusaaste leviku mudelid jagunevad allikale ja vastuvõtjale orienteeritud mudeliteks (Kaasik, 2005; Kimmel, 2001).

Allikale orienteeritud mudelid lähtuvad allika emissioonidest ja atmosfääri dünaamikale toetudes arvutavad välja kontsentratsioonid ja sadenemisvood etteantud ruumipunktide (regulaare võrk) jaoks (Kaasik, 2005).

Vastuvõtjale orienteeritud mudelid lähtuvad kindlates kohtades (vastuvõtjad) mõõdetud kontsentratsioonidest (võimalik ka sadenemisvoogudest) ja otsivad selle järgi allikate emissioone ja asukohti. See on allikale orienteeritud mudeli pöördülesanne, mida saab lahendada nii lähtudes atmosfääri dünaamikast kui ka statistilisest analüüsist või mõlemaid meetodeid kombineerides (Kaasik, 2005).

Mõõdetud saastetasemete ja meteoroloogilise mudeli järgi olemasoleva saasteallika identifitseerimise meetodit nimetatakse trajektooride tagasijälgituseks. Ülesanne on arvutuslikult lihtne, sest ei arvesta difusiooni. Meetod annab häid tulemusi sünoptilises skaalas ja mesoskaalas allika määramiseks, kuid ei võimalda hinnata selle tugevust. Kui mitme teineteisest küllalt kaugel asuva vastuvõtja poolt määratud

sarnase koostisega saaste trajektoorid koonduvad, siis võib oletada, et selles punktis asub allikas (Kaasik, 2005).

Turbulentse hajumise pöördülesande lahendamiseks käsitletakse vastuvõtjat allikana, millest lähtuva „lisandi” hajumine koos „tagasisuunas adveksiooniga” annab allika paiknemise tõenäosustiheduse antud ruumipunktis. Mitme vastuvõtja tagasihajumispilvi koos arvestades saab allika paiknemise tõenäosusjaotuse ja hinnangu allika tugevuse kohta (Kaasik, 2005).

Kohaliku õhusaaste modelleerimiseks on juba aastakümneid kasutatud turbulentse difusiooni-adveksioonivõrrandi lahendeid valemi kujul, millest levinuim on Gaussi jaotusega saastejuga. Venemaal on kasutusel ОНД-86 meetodikal põhinevad tarkvarad nagu Эколог. Tartu Ülikoolis välja töötatud mudel AEROPOL ja Eestis praegu väga laialdaselt kasutatav AirViro ning AirMod põhinevad Gaussi jaotusel.

Viimasel ajal on maailmas üha enam hakatud kasutama numbrilisi lahendusmeetodeid, mis on füüsikalisealt täpsemad ja paindlikumad ning seetõttu annavad hea väljatöötatuse korral paremaid tulemusi. Mikroskaala, nagu näiteks linna- ja tootmisalade mudelite jaoks on numbriline lahenduskaik ainuvõimalik hoonete, puude jms keeruliste ruumiliste elementide ja asendi tõttu. Suuremates linnades ja tootmisaladel on „tavaliste“ hajumismudelite rakendamine komplitseeritud juba sellega, et on raskendatud usaldusväärsete meteoandmete hankimine, sest need on väga suuresti erinevate takistustega muundatud (Oke, 2004).

#### 1.7.7.1. AEROPOL

AEROPOL mudeli detailid on kajastatud (Kaasik, 2000).

Nagu eelpool oli mainitud, põhineb AEROPOL mudeli Gaussi suitsujoa kontseptsioonil ning võttes arvesse joa peegeldamist aluspinnalt ning inversiooni, mudelis kasutatav joa võrrand on

$$C = \frac{Q}{2\pi\sigma_x\sigma_y u} \exp\left[-\frac{y^2}{2\sigma_z^2}\right] G_z$$

kus

$$G_z = \sum_{n=-2}^2 \left\{ a_n \exp\left[-\frac{(z-H+2nl)^2}{2\sigma_z^2}\right] + a_{n+1} \exp\left[-\frac{(z+H+2nl)^2}{2\sigma_z^2}\right] \right\}$$

kus  $n$  on peegelduste arv ning  $a_n$  vastav peegeldamise koefitsient. Seega negatiivne peegeldamine tähendab, et suitsujuga kõigepealt peegeldus inversioonikihilt (Kaasik, 2000).

AEROPOL arvutab kontsentratsioone, kuiv- ja märgsadenemise vooge; arvesse võetakse ka kõrgusest sõltuv hajumine ning hoonestuse efektid. On võetud arvesse punkt-, joon- ja pindallikad. On võimalik arvutada kindlat meteoroloogilist situatsiooni, ajavahemikku ning klimatoloogilist levikut (Kimmel, 2002).

Ilmastiku klassifikatsioon põhineb Pasquill stabiilsusklassidel. Samuti on kasutusel Ekmani spiraali tuulepööre (Kaasik, 2000).

#### 1.7.7.2. SILAM

Õhukvaliteedi ja avariide modelleerimise süsteem SILAM oli arendatud eesmärgiga lubada kasutada erinevat tüüpi hajuvuse mudeleid ning olla laialdaselt kasutatav.

SILAM hajuvusmudel lahendab mitmeid allikale ja vastuvõtjale suunatud hajuvusülesandeid (Sofiev jt., 2006). Hajuvuse tööriistad annavad võimaluse valida Euleri ja Lagrange'i koordinaatsüsteemide vahel. Mudel on rakendatav õhukvaliteedi hindamiseks ning ka prognoosimiseks ([silam.fmi.fi](http://silam.fmi.fi)).

Keemilisfüüsikalised moodulid lubavad arvutada radioaktiivset saastet, peamist õhusaaste keemiat ( $\text{SO}_x$ - $\text{NO}_x$ - $\text{NH}_x$ - $\text{O}_3$ ), erineva suurusega aerosooliosakesi, looduslike allergeenide saastetaset; meresoolade taset; tõenäosuslik suitsujoa hajuvus on väljendatud riskiruumala ja –pindala järgi.

SILAM-i võimaluste hulka kuuluvad ka meteoroloogiliste parameetrite eeltöötlus, sisend-väljund andmete konvertor, interpoleerimise valemid jne.

SILAM süsteem hangib meteoroloogilisi andmeid otse numbrilistest ilmaennustuse meteomudelist HIRLAM või Euroopa Keskpikkade Ilmaprognooside keskuse ECMWF mudelist (Sofiev jt., 2006).

SILAM mudeli matemaatilistest aspektidest ning selle testimise ülevaate annab artikkel (Sofiev jts 2006). Kõige uuemaid andmeid ja rakendusvõimalusi saab vaadata veebressursil <http://silma.fmi.fi> .

## 2. Metoodika ja algandmed

Käesolev töö põhineb avalikult kättesaadavatel andmetel, mis pärinevad Eesti Keskkonnauuringute Keskuse (EKUK) hallatavast õhuseirevõrgust, Eesti Meteoroloogia ja Hüdroloogia Instituudi (EMHI) ning TÜ atmosfäärifüüsika labori koostöös toodetud meteoroloogilisest andmestikust ja Keskkonnalubade andmebaasisit KLIS.

### 2.1. Andmed

Käesoleva töö eesmärkide täitmiseks väljastati EKUK-i poolt valikuline Kalevi seirejaama andmestik SO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>S mõõtetulemuste, tuule suuna ja kiiruse kohta ajavahemikus 2004 – 2009 a.

Kohtla-Järve Kalevi tänaval asuva seirejaama asukoht (L-Est koordinaadid X = 6590293 m Y = 686128 m) vastab EL direktiivides toodud nõuetele ning Euroopa Keskkonnaagentuuri õhuseire mõõtevõrgu kriteeriumitele “*Criteria for EUROAIRNET - The EEA AIR Quality Monitoring and Information Network*” (EEA, Copenhagen, 1999). Seirejaam kuulub Euroopa Keskkonnaagentuuri mõõtevõrku EUROAIRNET (EKUK, 2010a).

Õhusaaste mõõtmised Kohtla-Järvel viiakse läbi aastaringselt (01.jaan-31.dets). Pidevmõõtmised toimuvad iga viie minuti järel, tulemused salvestatakse mõõtejaamas paiknevasse salvestusseadmesse ja kantakse tunnise intervalliga üle Eesti Keskkonnauuringute Keskuse serverisse. Värsked andmed edastatakse tunnise nihkega internetiväljundisse ([www.klab.ee](http://www.klab.ee)). Kuu lõppedes korrigeeritakse kõik andmed vastavalt kalibreerimistulemustele.

Tabelis 6 on välja toodud seirejaamas käesoleva töö jaoks aktuaalsed teostatavad mõõtmised, vastavate mõõtmiste läbiviimiseks kasutatavad standardmeetodid ning mõõteseadmed.

**Tabel 6. Käesolevas töös kasutatud komponentide hindamiseks Kalevi seirejaamal kasutusel olevad meetodid ja mõõteriistad (EKUK, 2010)**

Seiretavad näitajad	Meetod	Mõõteriist
Pidevanalüsaator	SO <sub>2</sub>	EN 14212:2005
	H <sub>2</sub> S	ultraviolett-fluorestsents
Meteoroloogilised parameetrid	Tuulesuund ja kiirus, temperatuur, õhuniiskus	anemomeeter

Käesolevas töös analüüsitakse Kalevi seirejaamas (vt Joonis10) mõõdetud H<sub>2</sub>S (ppb), SO<sub>2</sub> (ppb), tuule suuna ja kiiruse tunnikeskmi ajavahemikus 1.01.2003 – 31.12.2009 (H<sub>2</sub>S on mõõdetud alates 3. september 2004), muutumisi ja sõltuvusi meteoroloogilistest parameetritest.



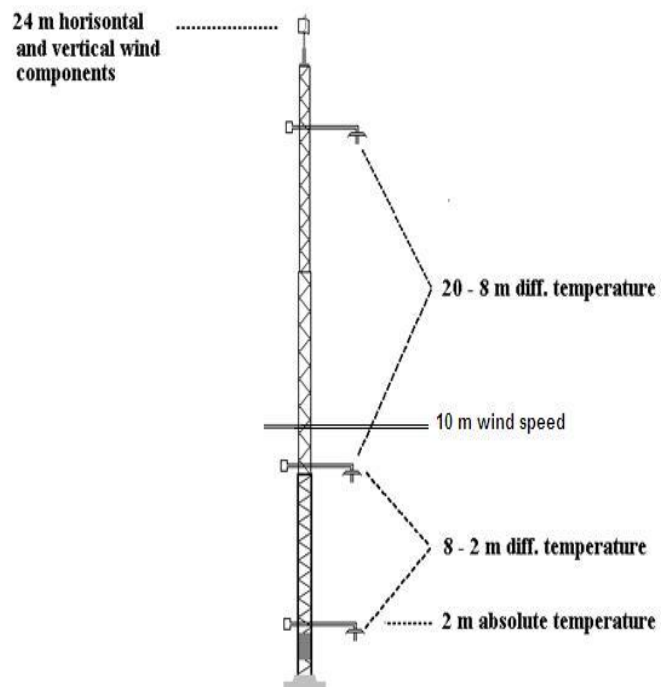
**Joonis 10. Kalevi seirejaam (vaade 220 kraadi suunas). Autori foto**

Kasutusel on ka liikuva laboriga Mobair (vt Joonis 11) teostatud mõõtmete ajavahemikul 29.11.2005 kell 13:00 kuni 17.01.2006 kell 00:00: andmed H<sub>2</sub>S (ppbv), SO<sub>2</sub> (ppbv), tuule suuna ja kiiruse tunnikeskiste kohta.



**Joonis 11. Mobair, liikuv õhulabor (Marko Kaasiku foto)**

Aseri meteomasti (vt Joonis 12) andmed olid kättesaadavad alates 18. juuni 2005 kella 10st, ning sisaldasid järgmist: temperatuur 2 m kõrgusel, tuule kiirus 10m ja 24 m kõrgusel, tuule suund 10m ja 24 m kõrgusel, maksimaalsed puhangud 24 m kõrgusel, õhurõhk, temperatuuri erinevused 8-2 m ja 20-8 m vahel; vertikaalse tuulekomponendi standardhälve kõrgusel 10 ja 24 m.



**Joonis 12. Aseri meteomasti foto (autori foto) ja skeem**

## 2.2. Metoodika

Käesolevas töös opereeritakse põhiliselt mitte saasteainete kontsentratsioonidega õhus, vaid horisontaalsete voogudega (ajaühikus tuulega risti olevat pinnaühikut läbiva lisandi mass,  $\mu\text{g}/\text{m}^2$  sekundis), sest see suurus iseloomustab paremini ülekandeprotsessi atmosfääris. Voog (maapinna lähedal) on arvatud seirejaamas mõõdetud kontsentratsiooni ja tuule kiiruse korrutisena. Saasteainete voogude arusaadavamaks esitamiseks teisendati EKUK-i poolt esitatud  $\text{H}_2\text{S}$  ja  $\text{SO}_2$  segusuhted (ppbv) kontsentratsioonideks ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) järgmiselt:

$$C_x = 0,12 \times 10^{-3} \times C_{ppb} \times M \times P/T$$

kus  $C_x$  on saasteaine kontsentratsioon  $\mu\text{g}/\text{m}^3$   
 $C_{ppb}$  on etteantud kontsentratsioon ppb-s  
 $M$  – saasteaine molaarmass  
 $P$  – õhurõhk Pa  
 $T$  – õhutemperatuur K

Lisaks, arvestati, et  $M_{\text{H}_2\text{S}} = 34,08 \text{ g/mol}$   
 $M_{\text{SO}_2} = 64,063 \text{ g/mol}$

Kohtla-Järve ettevõtete poolt statistilistes aruannetes esitatud aastaste heitmete koguste alusel vaadati saastekoguste üldist dünaamikat aastatel 2002-2009 ning püüati hinnata teostatud keskkonnainvesteeringute efektiivsust.

Analüüsiti saastetasemete aegridasid, uuriti sõltuvust kellaajast, tuulesuunast, tuule standardhälbest ning temperatuuri vertikaalsest gradiendist kõikide andmetega kaetud aastate kaupa. Seejärel eraldati andmestkust kõrgemaid saastetasemeid põhjustanud tuulesuunad ning uuriti korrelatsioone saastevoogude ja meteoroloogiliste parameetrite

vahel. Vaadeldi ka inversiooni statistikat aastatel 2005-2009 seoses tuule suundadega vahemikus 195-240 kraadi.

Eraldatud tuulesuundade vahemikus 195-240 seoste uurimiseks ja hindamiseks tehti faktoranalüüs, mis võimaldab hästi korreleeritud tunnuste hajuvust kirjeldada väiksema arvu uute tunnuste kaudu, vähendades niimoodi analüüsitava andmehulga mahtu. Faktoranalüüsi ülesande lahendamiseks on mitmeid erinevaid meetodeid. Käesolevas töös oli kasutatud peakomponent-faktoranalüüsi, mille esimeseks sammuks on peakomponentide leidmine.

Detailsemalt on vaadeldud 2005-2006 mõõtmiskampaaniat, võrreldud Kalevi seirejaama ja Mobair andmeid Aseri meteomastis mõõdetud ning meteomudelist HIRLAM (SILAM-i vahendusel) saadud meteoparameetrite väärtustega samal perioodil.

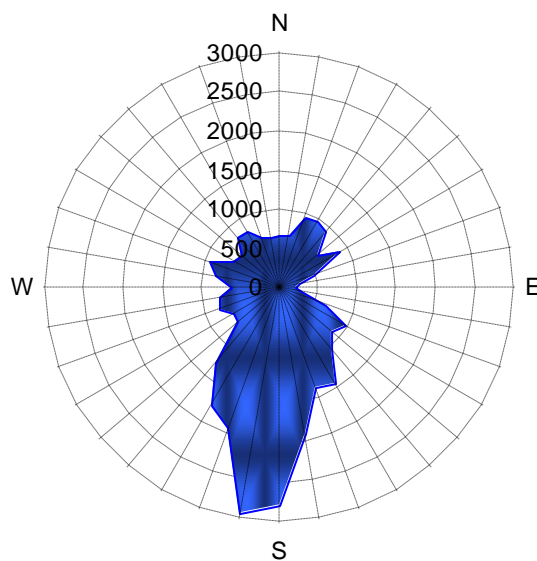
Andmetöötlust viidi läbi Microsoft Excel 2003 ja StatSoft Statistica 8.0 tarkvarapakettidega.

Kaartide valmistamisel ja tulemuste visualiseerimiseks kasutati Google Earth rakendust ja GIMP 2 tarkvara.

### 3. Tulemused ja arutelu

Mõõtmisandmestik koosnes nelja ja poole aasta mõõtmistulemustest, millele lisati ka kaheksanädalane andmete rida Mobair liikuva õhulaborist.

Kohtla-Järvele on iseloomulik mõõdukalt mereline kliima, sest linn paikneb mererannikust ligikaudu 4,5 km kaugusel. Linna ja ranniku vahele jääv ala on tasane ja seal puuduvad suuremad geograafilised objektid, mis võiksid takistada saasteainete hajumist. Peamiselt puhuvad piirkonnas edela- ja lõunakaarte tuuled, nagu seda on näha tuulte sagedusgraafikul (Joonis 13).

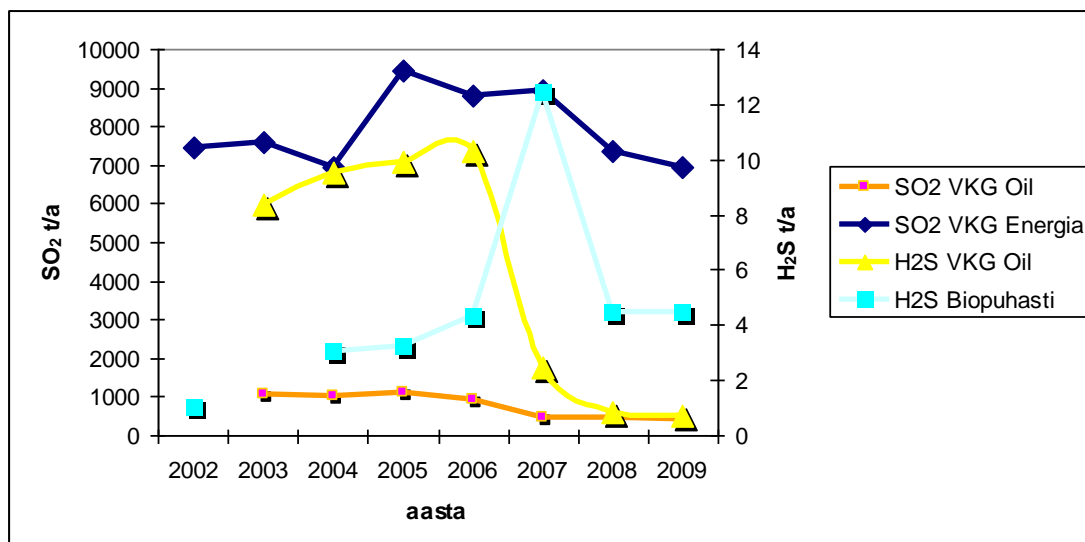


Joonis 13. 2006-2009 tuulte esinemissagedused

#### 3.1. Divesiniksulfiidi ja väävedioksiidi kroonika Kohtla-Järve linnas

Kohtla-Järve linnas Kalevi seirejaamas mõõdetud väävliühendite tunnikeskised kontsentratsioonid on teiste linnadega võrreldes tunduvalt kõrgemad. Seda põhjustavad ilmselt kohaliku põlevkivitööstuse tootmisprotsessis tekkivad vääveldioksiidi ja divesiniksulfiidi emissioonid. Pikaajaline aastate trend näitab heitgaaside pidevat vähenemist (vt Joonis 14).

Kuna andmed on kohati puudulikud, siis illustratiivsuse parandamiseks lisan järgmised andmed: 2004 puudusid Põhja SEJ opereeriva Fortum Termest SO<sub>2</sub> andmed, graafikul on selle asemel 2003 aasta heitkogus; H<sub>2</sub>S emissioonid 2007-2009 biopuhastist (mis on siin märgitud saasteallika nimetusena, mitte operaatorfirma nimega) on võetud kehtivast LHKst ning neid heitkogused olid tõendatud Eesti Keskkonnauuringute Keskuse poolt teostatud mõõtmiskampania tulemustega (EKUK, 2009).



**Joonis 14. H<sub>2</sub>S ja SO<sub>2</sub> saasteainete aastased heitkogused Kohtla-Järve linna suuremates ettevõtetes**

SO<sub>2</sub> emissioonide suurenemine aastal 2005 on seotud eelkõige elektri ja sooja tootmismahdade suurenemisega, edaspidine langus on kooskõlas VKG AS poolt alustatud keskkonnapoliitikaga, mis hakkas juba mõjuma. Eriti märgatav oli see 2008 aastal, mil Põhja SEJ suitsukorstnale paigutati väävlipüüdmissüsteem n n NID-reaktor, mis tagas SO<sub>2</sub> kuni 65% eemaldamiseefektiivsuse. Sarnase seadme plaanib VKG paigutada ka VKG Energia Lõuna SEJ-sse. 2003. aastast kasvama hakanud VKG Oil AS vääveldioksiidi heide annab märku tootmise intensiivistamisest, alates 2006. aastast jälgitav heitkoguste kahanemise tendents näitab samamoodi keskkonnameetmete rakendamist: mõningate saasteallikate likvideerimist, suitsugaaside paremat eelpuhastamist jne. VKG Oil vesiniksulfiidi emissioonid 2007. aastal, mil algas H<sub>2</sub>S vähenemise tendents, olid 2,3 tonni aastas, mis on ligi 5 korda vähem kui sama näitaja 2006. aastal. Viimane asjaolu on seletatav firma mahutipargi renoveerimise ning ühtse hingamissüsteemi ja absorberitega paigaldamisega .

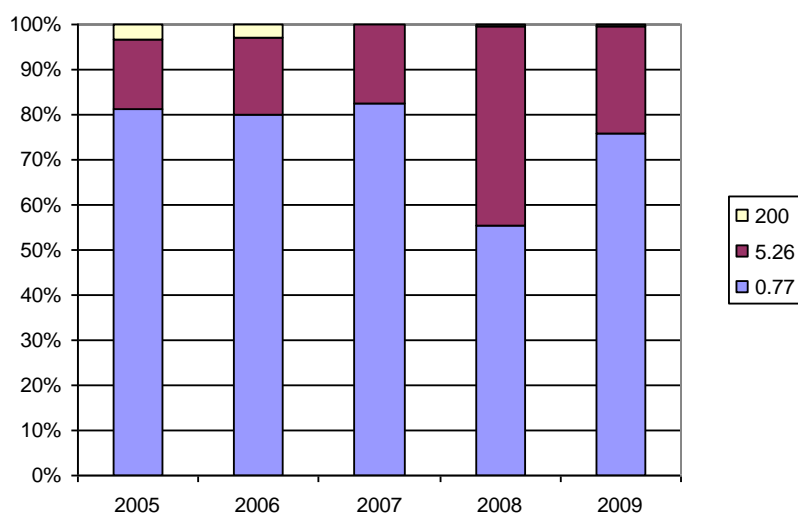
Biopuhasti praegune operaatorfirma on Järve Biopuhasti OÜ, aga kuni 31.12.2006 oli selleks VKG Viru Vesi AS. Omaniku vahetusega võivad olla seotud bürokratilised asjaolud ning 2007. aastal KLIS andmete järgi on heitkogused järsult tõusnud saasteallikast „Biopuhasti”. Samas 2007. aastal oli teostamisel Kohtla-Järve reoveepuhastuse ulatuslik renoveerimine.

Kuna aruandesse jõudvad aastased arvutuslikud heitkogused on üldiselt vähenenud, siis positiivne tendents peaks olema leitav ka mõõdetud kontsentratsioonide mustris. Alates 2004. aastast Kalevi seirejaamas mõõdetud SO<sub>2</sub> ja H<sub>2</sub>S saastekontsentratsioonid näitavad suunda vähenemisele, mis tähendab, et ettevõtetes teostatud keskkonnameetmed on efektiivsed Kohtla-Järve linnaõhu parendamiseks. Juba aastast 2002 ei olnud Kalevi seirejaamas mõõdetud tunnikesmise piirkontsentratsiooni 350 µg/m<sup>3</sup> ületamist, vaadeldud aastate maksimaalne tunnikeskmine kontsentratsioon oli fikseeritud 8. novembril 2002 aastal 290,5 µg/m<sup>3</sup>. Tabelis 7 on näha SO<sub>2</sub> keskmiste ja maksimaalsete kontsentratsioonide jaotus 2004-2009 aastate kaupa.

**Tabel 7. Väeveldioksiidi saastetasemete sagedusjaotus, keskmised ja maksimaalsed väärtused aastate kaupa**

SO <sub>2</sub> kontsentratsioonid	2004	2005	2006	2007	2008	2009
< 20 ppbv	8364	7858	8275	8310	8244	8252
20 - 40 ppbv	272	309	325	227	249	272
40 - 60 ppbv	74	108	78	38	45	79
60 - 80 ppbv	10	20	9	4	5	8
80 - 110 ppbv	0	2	4	0	2	1
Keskmine (ppbv)	2,53	3,61	3,50	2,34	2,61	2,92
Maksimaalne (ppbv)	101,92	88,31	101,59	79,75	112,34	84,58

Väga tõsiseks probleemiks linna elanikele osutub vesiniksulfiidi lõhna levik, sest sellel toksilisel ainel on väga madal lõhnalävi – ainult 1,17 µg/m<sup>3</sup> (www.drthrasher.org), st isegi kui seadusega kehtestatud tunnikeskmine piirnorm 8 µg/m<sup>3</sup> ei ole ületatud, on ebameeldivat lõhna juba ammu tunda. Ka H<sub>2</sub>S saastetasemed vähenevad vaadeldud aastate jooksul, väheneb ka piirnormati ületamise juhtude arv aastas. Vaadeldud aastate kõige kõrgem saastetaseme kontsentratsioon oli mõõdetud 23. septembril 2006 väärtusega 123,42 ppbv (179,86 µg/m<sup>3</sup>), mis ületas kehtestatud piinormi 23,5 korda. Allpool esitatud joonis nr 15 näitab lõhnaläve ja piirnormati saastetasemete ületamiste sagedusjaotust vaadeldavatel aastatel. Nagu näha, positiivseks tendentsiks on väga kõrgete kontsentratsioonide täielik kadumine peale 2006. aastat ning lõhnalävest väiksemate saastetasemete esinemissageduste suurenemine.



**Joonis 15. H<sub>2</sub>S esinemissagedused aastate kaupa**

Sagedustabel nr 8 täiendab eelpool toodud graafikut, näidates, et alates 2007 on järsult langenud Kalevi seirejaamas registreeritavate H<sub>2</sub>S saastetasemete tunnikeskmesed, mis on kooskõlas heitkoguste vähendamisega, mis on toodud Joonisel 11.

**Tabel 8. H<sub>2</sub>S sagedustabel ja aastate tunnikeskmised ja -maksimumid**

H <sub>2</sub> S kontsentratsioon	2005	2006	2007	2008	2009
< 0,77 ppbv	6851	6950	7117	4762	6581
0,77 - 5,26 ppbv	1303	1493	1495	3812	2066
5,26 - 200ppbv	286	248	12	49	51
Keskmine (ppbv)	1,01	1,04	0,55	0,93	0,59

Maksimaalne (ppbv)	116,08	123,42	7,50	17,00	14,30
--------------------	--------	--------	------	-------	-------

### 3.2. Divesiniksulfiidi ja väävedioksiidi saastetasemete sõltuvus õhumasside päritolust

Kõigepealt analüüsiti empiirilisel  $H_2S$  ja  $SO_2$  kontsentratsioonide sõltuvust tuulesuunast aastate kaupa. Selleks arvatati kontsentratsioonide põhjal saastevood (kontsentratsioon korda tuule kiirus, ühik seega  $\mu g/m^2 s^{-1}$ ), mis iseloomustavad paremini vastavate saasteallikate tugevust, sest on kõrvaldatud piki tuulesuunda hajumise mõju. Edaspidi toodud vood on alati arvatatud seirejaamas mõõdetud tuule kiiruste põhjal, ka siis, kui neid kõrvutatakse mujal mõõdetud tuultega.

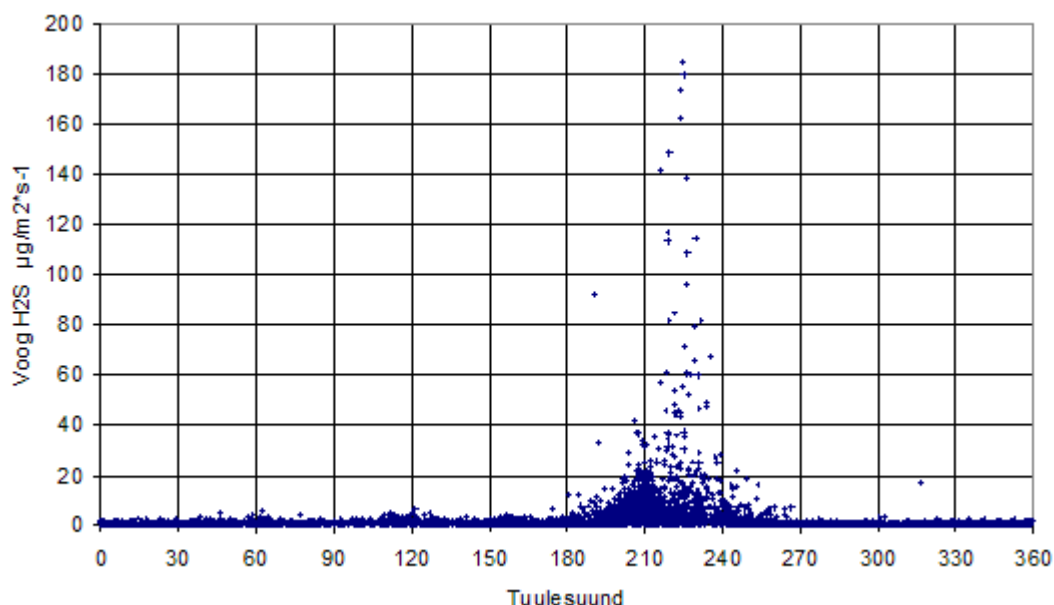


**Joonis 16. Tööstusterritooriumi kaart, seirejaamade asukohad ja nende suhtes problemaatiline tuulesuuna sektor**

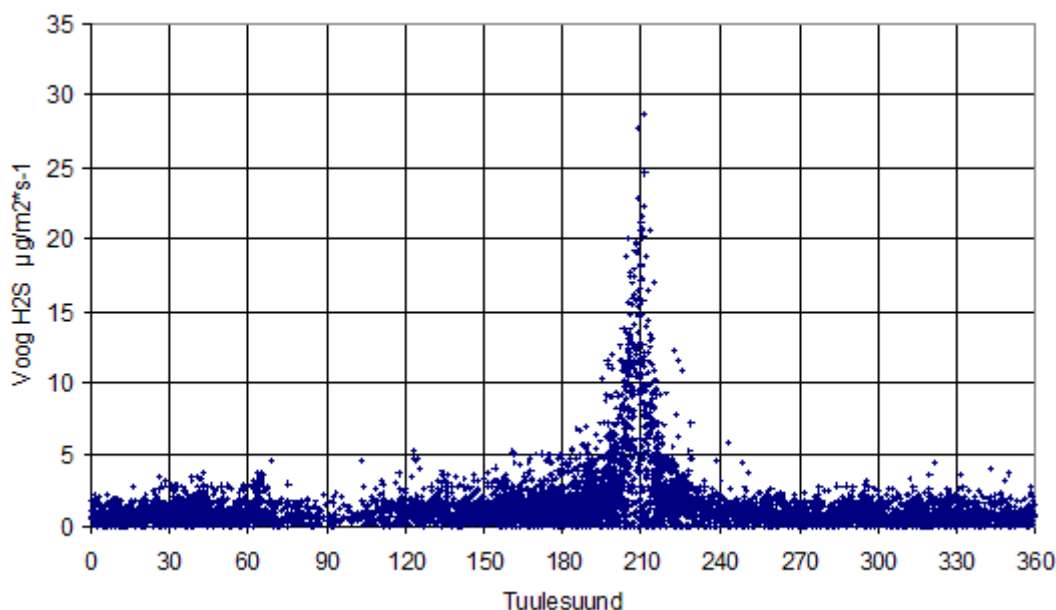
$SO_2$  voo sõltuvus tuule suunast näitab kõrgeenenud saastetasemeid tuule suuna vahemikus 195 – 225 kraadi (umbes edelast), mis aastatega ei muutu, järevalt pärinevad saasteained kindlast paiksest saasteallikast või lähestikuste saasteallikate rühmast.

Automaatne  $H_2S$  seire hakkaks Kalevi seirejaamas toimuma 3. septembrist 2004. Vesiniksulfiidi kõrgeenenud voogude väärtused on koondunud tuule suuna vahemikku

190-250 kraadi, milles on 2006. aastal eristatavad kaks piiki, millest kõrgem (parempoolne) on vahemikus 220-235 kraadi. 2007. aastast muutus piik kitsamaks, jäädes 195 – 225 kraadide vahele, püsides nii 2009. aastani. (Joonis 17 ja 18).



**Joonis 17. H<sub>2</sub>S jaotus Kalevi seirejaamas mõõdetud tuulesuuna järgi aastal 2006**

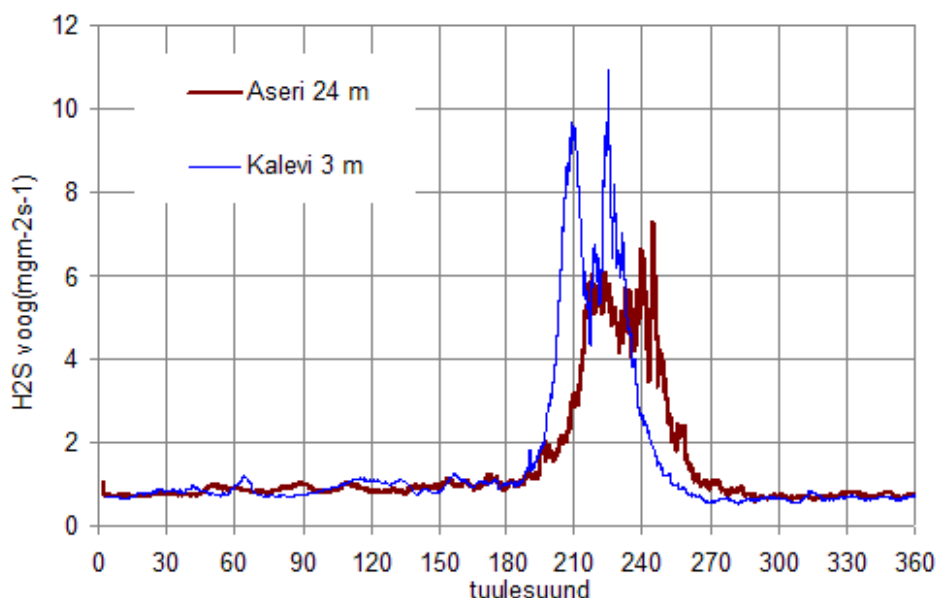


**Joonis 18. H<sub>2</sub>S jaotus Kalevi seirejaamas mõõdetud tuulesuuna järgi aastal 2007**

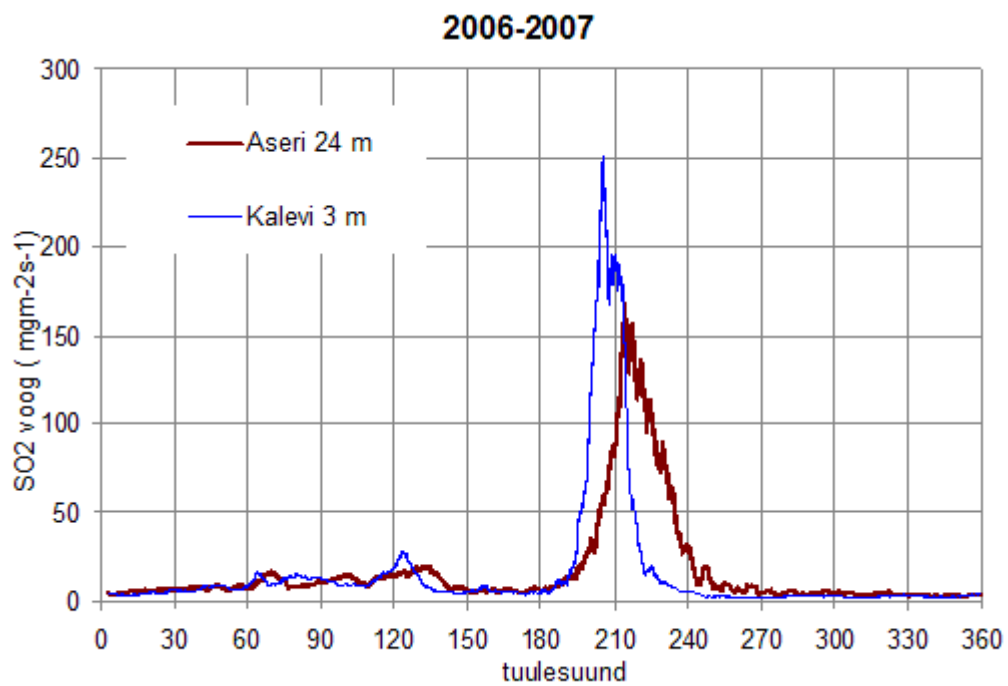
Seirejaama mõõtmiste põhjal pärineb mõlema väevliühendi kõrge saastekoormus kitsast suunavahemikust  $210 \pm 15^\circ$ , kuid vesiniksulfiidi voo suurimate väärtustega suunavahemikus  $225 \pm 15^\circ$  ei ole väeveldioksiidi vood suured. Eeldades, et 210 kraadi piik pärineb VKG Oil ja Energia tööstusterritooriumitelt ning 225 kraadi piiki põhjustab kohalik reoveepuhasti, on lihtne seletada H<sub>2</sub>S parempoolse piigi kadumist – 2007 aastal teostati reoveepuhasti ulatuslikum rekonstrueerimine. Samal ajal biopuhastist tulenev SO<sub>2</sub> väga väike kogus ei mõjuta väeveldioksiidi voo mustrit. Kuid kaardi põhjal (Joonis 16) eespool toodud tuule suunad ei ole kooskõlas

saasteallikate tegelike suundadega Kalevi seirejaama suhtes, mis on 215-230 kraadi VKG ning 240-250 Järve Biopuhasti jaoks. Kaardilt võetud tuulesuunad ei näita oluliselt kõrgeenenud väevliühendite vahemikke. Kuid nii Kalevi seirejaama kui ka liikuva õhulaboriga Mobair teostatud mõõtmised mõõdavad tuulesuunad madalal, umbes 3 m kõrgusel, kus õhumasside liikumine on tugevalt mõjutatud aluspinna, poolkoksimäe, kõrgemate tööstushoonete ning korterelamute poolt. Õhumassi ülekande suund ei ühti täpselt maapinnalähedase tuulega, sest saasteallikast mitme kilomeetri kaugusel on atmosfääri õhk segunenud palju paksemas kihis kui 3 m. Selle kitsaskoha ületamiseks ning tuule paremaks analüüsimiseks kasutati Kalevi seirejaamast 29,5 km kaugusel asuva Aseri meteoroloogilise masti andmeid. Tuleb pöörata tähelepanu sellele, et vaatamata piikide mõnevõrra suuremale hajumisele üldine muster ja struktuur (kaasa arvatud H<sub>2</sub>S kaks piiki) jääb endiseks. Tähtis on see, et Aseri tuulesuunaga määratud piigid kattuvad geograafiliste suundadega palju paremini võrreldes Kalevi seirejaama omadega. Joonistel 19 - 22 toodud graafikud on tugevasti (200 mõõtmise libiseva keskmisega) silutud, mistõttu üksikud voogude tippväärtused on mitu korda kõrgemad kui graafikult näeme.

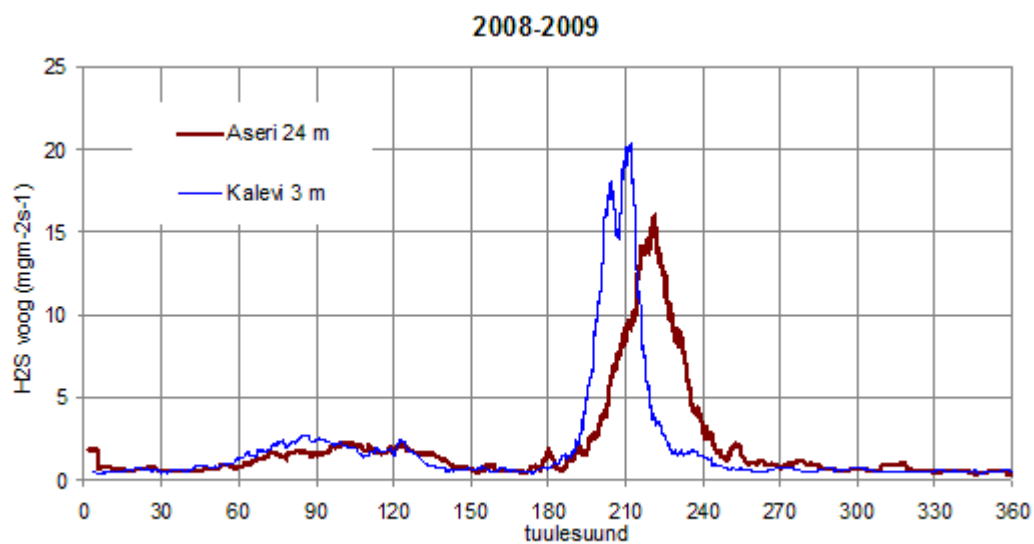
### 2006-2007



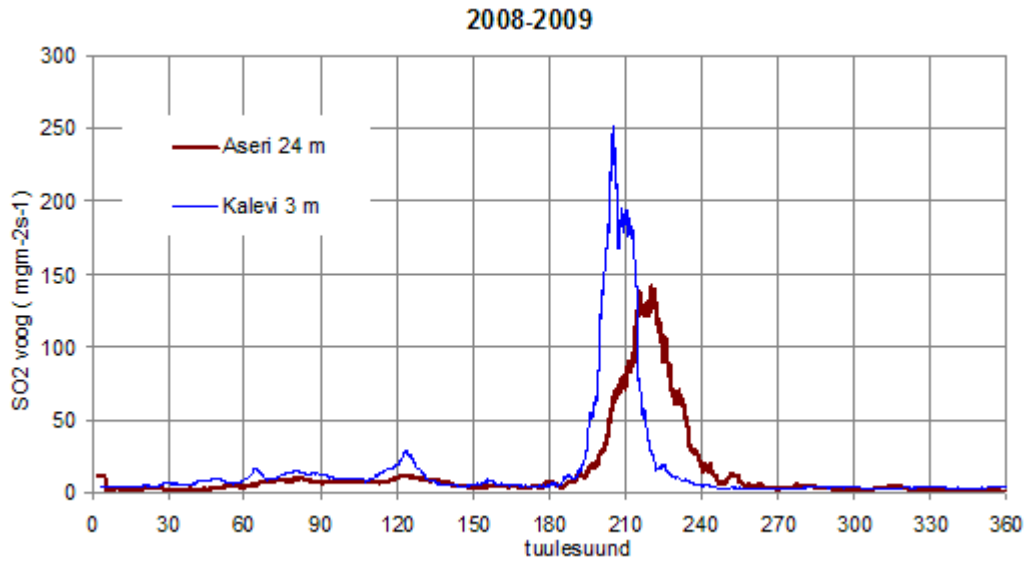
Joonis 19. H<sub>2</sub>S voogude jaotus Kalevi ja Aseri tuulesuundade järgi



**Joonis 20. SO<sub>2</sub> voogude jaotus Kalevi ja Aseri tuulesuundade järgi**

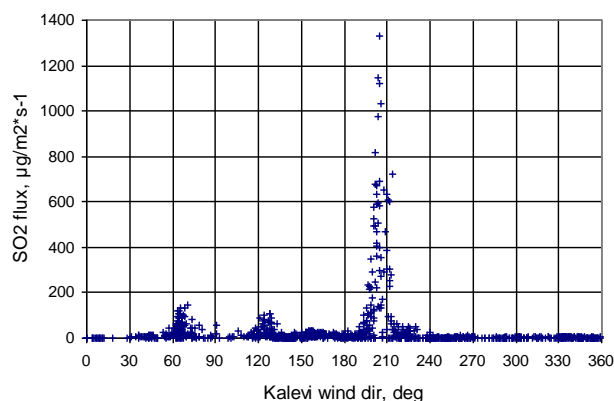


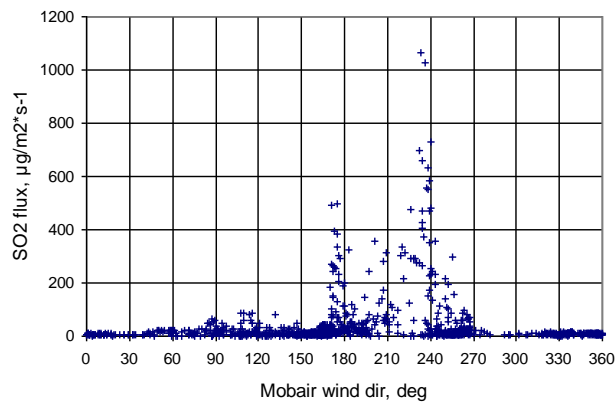
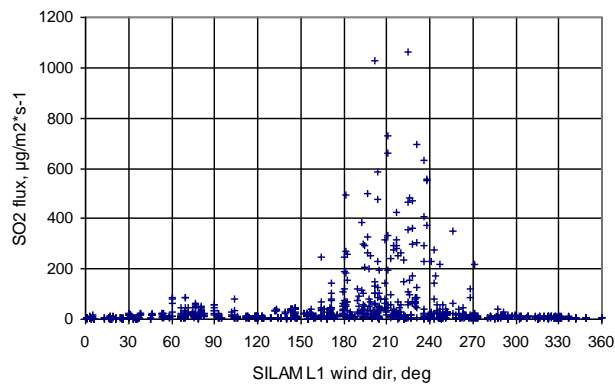
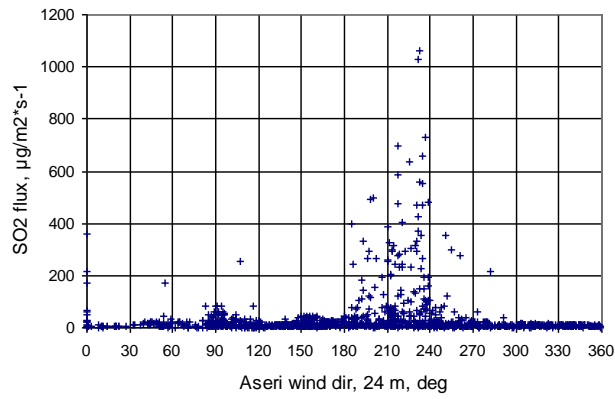
**Joonis 21. H<sub>2</sub>S voogude jaotus Kalevi ja Aseri tuulesuundade järgi**



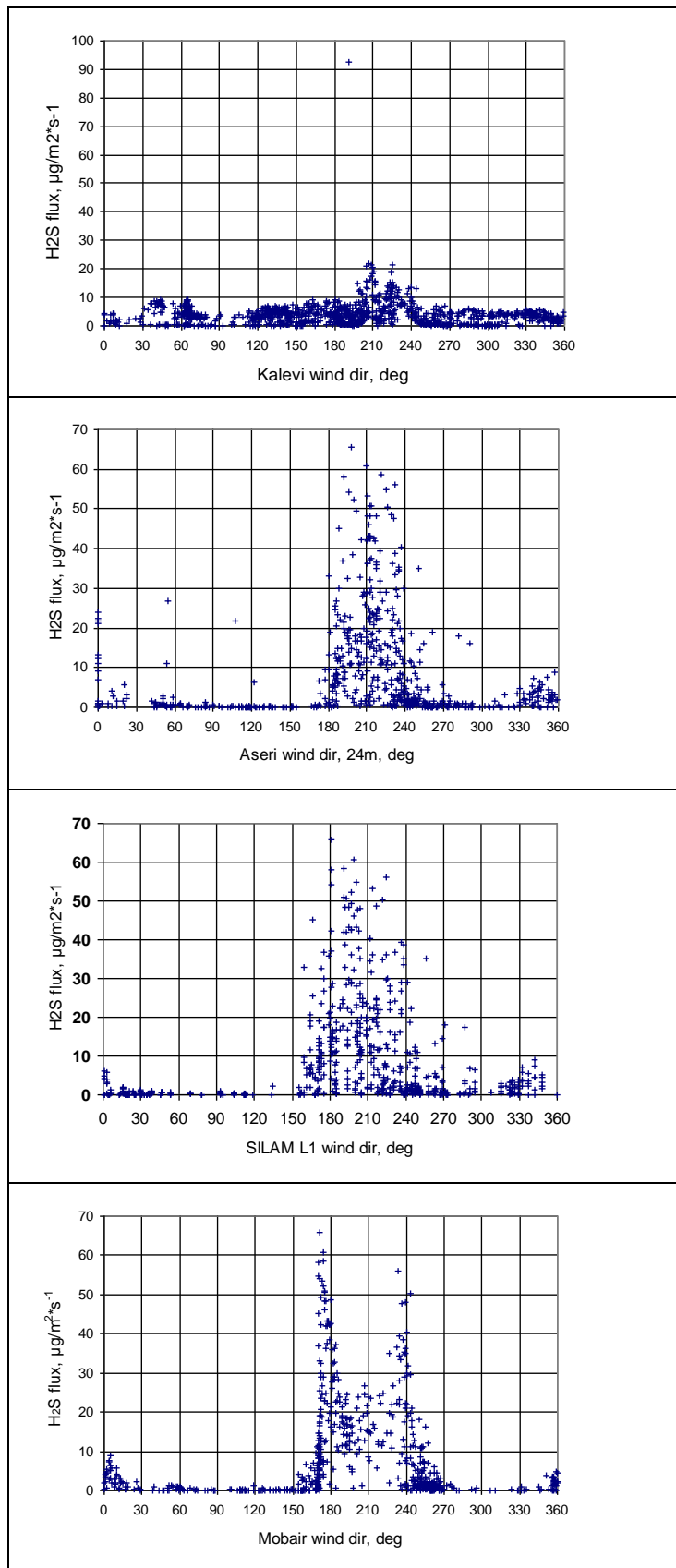
**Joonis 22. SO<sub>2</sub> voogude jaotus Kalevi ja Aseri tuulesuundade järgi**

Eraldi analüüsi saastevoogude sõltuvust tuule suunast EKUK-i poolt liikuva õhulaboriga Mobair läbiviidud mõõtmiskampaania 29.11.2005 – 17.01.2006 tulemuste alusel. Liikuv õhulabor seisis VKG AS peapääsle ees olevas parklas (vt Joonis 16). Samamoodi nagu pikaajalised trendid, annab ka mõõtmiskampaania jooksul jaotus Kalevi seirejaama tuulesuundade järgi ühe SO<sub>2</sub> tipptaseme (vt joonis 23) ning kahe tipuga H<sub>2</sub>S mustri (joonis 24). Mobair tulemuste põhjal reastatud SO<sub>2</sub> saastevoogudes eristub kaks piiki vt joonis 23 (4 graafik), kuid Mobair saastevoogude sõltuvuses Aseri meteomastis mõõdetud tuule suundadest kõrgusel 24 m on vaid üks lai piik. Sama mustrit saab jälgida ka vääveldioksiidi saastevoogude jaotumises mudelist (HIRLAM+SILAM) võetud tuulesuundade järgi. Vesiniksulfiidi vood vastavalt Kalevi tuulesuunale näitavad samamoodi kahte eraldi piiki, mis ühtib ja nihkub paremale Aseri tuulesuundadega, sama kehtib ka mudelil põhinevate tuulesuundade kohta (vt Joonis 23 ja 24).





**Joonis 23. Mobair SO<sub>2</sub> voog sõltuvalt Kalevi seirejaamas, Aseri meteomastil 24 m, arvatud SILAM L1 ja Mobair fikseeritud tuulesuunast**



**Joonis 24. Mobair H<sub>2</sub>S voog sõltuvalt Kalevi seirejaamas, Aseri meteomastil 24 m, arvutatud SILAM L1 ja Mobair fikseeritud tuulesuunast**

Mõlema saasteainete juhul annab tuulesuund Aseri meteomastis 24 m kõrgusel võrreldes Kalevi seirejaama tuulega piigi nihkumise 13° päripäeva standardhälbe

11°. Meteoroloogilise mudeli väljundist saadud tuulesuunad pööravad kõrguse kasvuga päripäeva 1°, 4°, 9° ja 23° võrra vastavalt tasemetele kõrgustel 15, 55, 130 ja 305 meetrit. Nende suundade standardhälve on suurem, 15 kuni 28 kraadi.

Mobair õhulaboriga mõõdetud tuulesuunad näitavad kõrgemaid kontsentratsioone vahemikus 170 – 250 kraadi, kahe selgesti eristatava piigiga 170-185° ja 225 - 245°. Mobairi asukoha lähedal on mitmeid mõõtmiskõrgusest palju kõrgemaid tootmisrajatisi ja puid, seega on moonutused kohapeal mõõdetud tuule suundades võrreldes ümberkaudse keskmise vooluga oodatud. Kõrgemad saastetasemed pärinevad arvatavasti lähedal asuvalt VKG Oil tootmisterritooriumilt: SO<sub>2</sub> allikaks võivad olla õli destillatsiooni ja elektroodkoksi seade, kagusuunaline piik tõenäoliselt pärineb Lõuna SEJ-st. H<sub>2</sub>S emissioonid suunas 215-270 võivad olla gaasigeneraatoritest ja elektroodkoksi seadamest. Palju madalam põhjapoolne piik pärines arvatavasti regionaalsest reoveepuhastist.

### 3.3. 2006-2009 aastatel Kalevi seirejaamas mõõdetud tuule suundadel 190-240 andmete analüüs

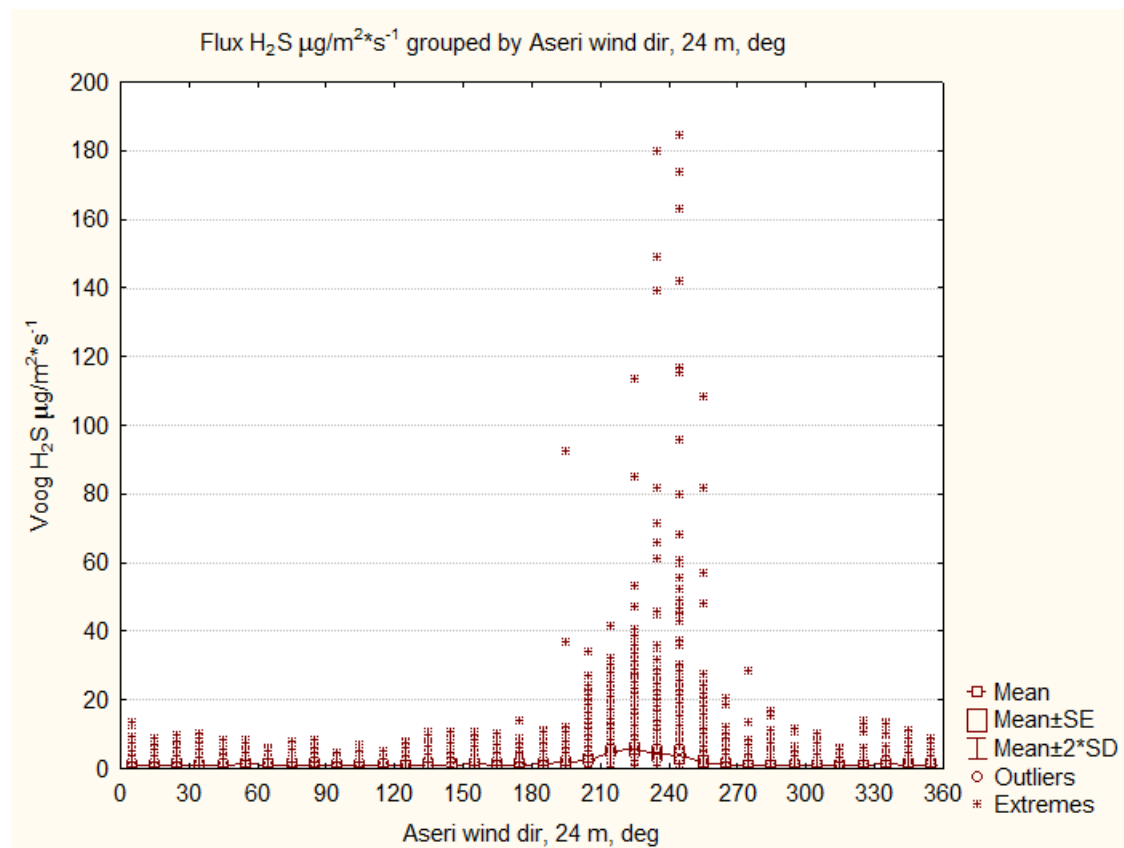
Nüüd, kui on välja selgitatud madalal ja kõrgemal tasemel mõõdetud tuulesuundade erinevused, saab kindlamalt määratleda väävliühendite saasteallikate asukohad. Eesmärgiga täpsealt uurida vaadeldavas kohas ja ajavahemikus olnud mikrometeoroloogilisi parameetreid, eraldati üldisest andmestikust „probleemne” tuulesuundade vahemik 195 – 240 kraadi, et vähendada foonimüra statistilises analüüsis.

**Tabel 9. Valimi Kalevi 190-240 kraadi tuulesuund, peamised statistikud**

Muutuja	Kirjeldav statistika (190-240 °, 2006-2009 a)				
	Valid N	Keskmine	Miinumum	Maksimum	St hälve
H <sub>2</sub> S, µg/m <sup>3</sup>	9243	2.848	0	179.862	7.3019
Voog H <sub>2</sub> S, µg/m <sup>2</sup> *s <sup>-1</sup>	9243	4.656	0	184.383	8.2767
SO <sub>2</sub> , µg/m <sup>3</sup>	9243	21.82	-0.0441	301.207	32.1143
Voog SO <sub>2</sub> , µg/m <sup>2</sup> *s <sup>-1</sup>	9243	70.126	-0.0267	1327.696	129.1699
Kalevi tuulesuund, kraadi	9268	211.063	189.997	249.993	16.053
Kalevi tuulekiirus, m/s	9268	2.327	0	8.971	1.477
Temp 2m, C	9243	8.2	-25.22	31.8	7.3013
Tuulekiirus, 10 m, m/s	9243	4.4	0.227	12.38	1.8922
Tuulesuund, 10 m, kr	9243	222.21	1.417	358.7	28.5364
Tuule kiirus, 24 m, m/s	9228	5.423	0	77.7	2.3961
Tuulesuund 24m, deg	9228	222.022	0	359.9	31.6823
Puhangud, 24 m, m/s	9226	7.855	0	96.6	3.9672
Rõhk, 1 m, mbar	9243	1003.581	963	1040	10.7214
Temp vahe, 8-2 m, C	9243	0.182	-1.922	6.817	0.6372
Temp vahe, 20-8 m, C	9243	0.141	-1.29	6.803	0.5983
Vert temp gradient, dT/dz	9243	0.018	-0.1359	0.473	0.0645
Vert tuule std, 10 m, m/s	9243	0.751	0	2.737	0.3978
Vert tuule std, 24 m, m/s	9228	0.403	0	41.94	0.5754

Nagu näha Tabelist 9, suundade vahemikus 190 – 240 kraadi on Kalevi ja Aseri 24 m tuulesuuna keskmiste väärtuste erinevus peaaegu 11 kraadi. Püstsüüaliste

temperatuuride keskmised erinevused ja vertikaalne gradient on positiivsed väärtused, järelikult antud tuulesuundadega on seotud ja stabiilne atmosfääri stratifikatsioon. Temperatuuride miinimum ja maksimum võivad viidata sellele, et tegu on valdavalt kontinetaalsete õhumassidega. Valimi H<sub>2</sub>S keskmine on voog peaaegu 3 korda kõrgem, kui üldine aastate 2006-2009 keskmine ning SO<sub>2</sub> keskmine 2,6 korda suurem aastate keskmisest.



**Joonis 25. Pikaajaline H<sub>2</sub>S jaotus Aseri meteomasti tuulesuundade järgi**

Joonistel on näha, et piikidele on iseloomulikud üksikud väga kõrged kontsentratsioonid, mis võib viidata sellele, et just tipud (seda eriti H<sub>2</sub>S puhul, vt Joonis 25) ei saa olla seotud püsiva allikaga, vaid muutuva protsessiga, kus võivad esineda äkkheited. Nelja aasta H<sub>2</sub>S keskmised väärtused ei näita väga suurt erinevust üldisest keskmisest antud tuulesuundade vahemikus, seega oletus, et divesiniksulfiidi peamiseks saasteallikaks on poolkoksimägi, peab leidma tõendust mikrometeoroloogiliste parameetrite süvauuringus, mida järgnevalt teostatakse.

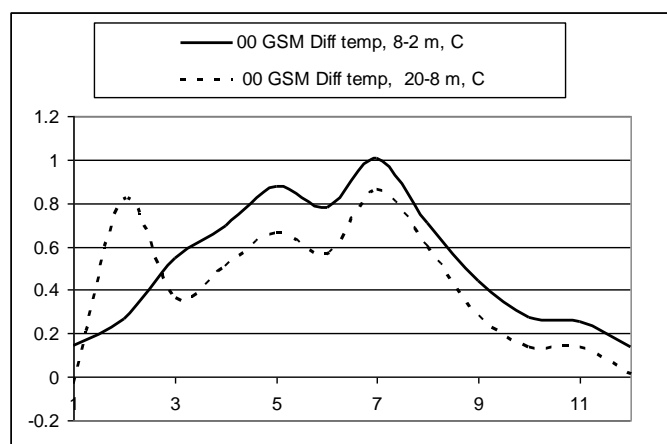
Kõigepealt vaadeldi peamiste parameetrite omavahelisi korrelatsioone (Tabel 10), mis näitavad, et tugevas seoses on omavahel tuule suunad, tuule kiirus 24 m kõrgusel ja tuule kiiruse standardhälve 10 m kõrgusel, positiivses korrelatsioonis on tuule standardhälve 10 m kõrgusel ja SO<sub>2</sub> voog, tuule 10 m standardhälve ja temperatuuri vertikaalne gradient. Kõige huvitavam on SO<sub>2</sub> voo positiivne korreleerumine tuule vertikaalse standardhällbega 10 m kõrgusel ning negatiivne püstsuunalise temperatuurgradiendiga, mis annab võimaluse oletada, et SO<sub>2</sub> jõuab Kalevi seirejaama labiilse atmosfääri kihistusega (seda suurem voog, mida kiiremini langeb temperatuur kõrgusega). Kuna andmestikus on püstsuunaline temperatuuri gradient ainult 2 - 20 meetrini, siis on mõistetav, et viimane omab väiksemat seost 24 m kõrgusel mõõdetud tuule vertikaalse standardhällbega kui 10 m kõrgusel mõõdetuga. Ei esine divesiniksulfiidi voo märkmisväärsed korrelatsioone ühegi meteoroloogilise

suurusega, mis võib veelkord viidata muutlikul tootmisprotsessil põhinevale saasteallikale.

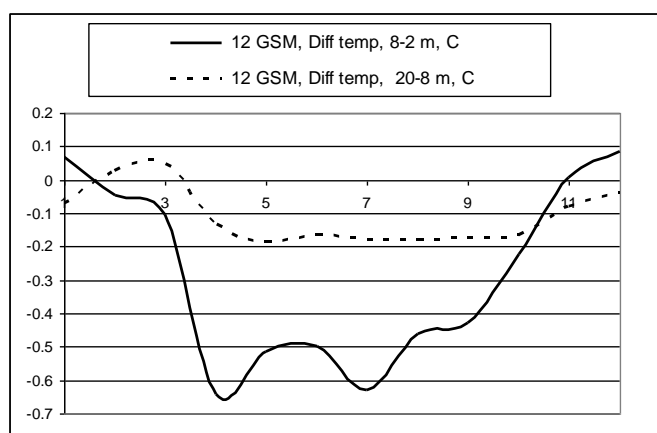
**Tabel 10. Valimi (Kalevi seirejaamas mõõdetud tuule suundadel 190-240, aastatel 2006-2009) peamised korrelatsioonid**

Variable	Voog H <sub>2</sub> S, $\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$	Voog SO <sub>2</sub> , $\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$	Kalevi tuulesuund, kraadi	Tuule kiirus, 24 m, m/s	Vert temp gradient, dT/dz	Vert tuule std, 10 m, m/s	Vert tuule std, 24 m, m/s
Voog H <sub>2</sub> S, $\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$	1	0.24	0.06	0.12	-0.05	0.09	0.02
Voog SO <sub>2</sub> , $\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$	0.24	1	-0.15	0.38	-0.19	0.45	0.14
Kalevi tuulesuund, kraadi	0.06	-0.15	1	-0.11	0.07	-0.15	-0.02
Tuule kiirus, 24 m, m/s	0.12	0.38	-0.11	1	-0.29	0.78	0.38
Vert temp gradient, dT/dz	-0.05	-0.19	0.07	-0.29	1	-0.52	-0.18
Vert tuule std, 10 m, m/s	0.097	0.45	-0.15	0.78	-0.52	1	0.31
Vert tuule std, 24 m, m/s	0.027	0.14	-0.02	0.38	-0.18	0.31	1

Valimi temperatuuri vertikaalse gradiendi lahtimõismiseks ning tema mõju uurimiseks vaadeldi eraldi ka püstsuunalisi temperatuurimuutusi kõrgusvahemikus 2 kuni 8 m ning 8 kuni 20 m sõltuvalt kõrguselt öösiti ja päeval. Nagu Joonisel 26 on näha, öösel temperatuur kasvab kõrgusega, mis viitab inversioonikihi tekkimisele, eriti tugev on see suviti, kui ööpäevased temperatuuride erinevused on kõige suuremad. Madalama ja kõrgema mõõtmiskihtide temperatuuride erinevused muutuvad sünkroonselt alates kevadest, veebruaris aga kõrgem vaadeldav kiht 8 kuni 20 m maapinnast on tugevalt suurema inversiooniga kui madalam kuni 8 meetrit. Päeval ajal valitud tuulesuundade vahemikus tekkivad inversioonid ainult talvel (vt Joonis 27). Samas aga on suvepäevadel atmosfäär kõige labiilsem, mis on tingitud aluspinna tugevamast soojendamisest Päikese poolt, kuid kõrgemad kihid on neutraalselt stratifitseeritud. Saastevoogude väärtused on madalamad nii päeviti kui öösiti, seda eriti SO<sub>2</sub> puhul. Suvised madalamad väevliühendite saastetasemed võivad olla seotud nii kütteperioodi lõppemisega (Lõuna ja Põhja SEJ, mis on eeskätt soojatootjad) kui ka öise pinnainversiooniga, mis takistab saaste hajumist maapinna lähedale.



**Joonis 26. Öised temperatuuride vahed kõrgusvahemikkudes 2-8 ja 8-20 m**



**Joonis 27. Päevased temperatuuride vahed kõrgusvahemikkudes 2-8 ja 8-20 m**

Uuriti ka nende muutuste korrelatsioone nii saasteainete voogudega kui ka kontsentratsioonidega. Päevaste vertikaalsete temperatuurierinevustega ei korreleeru ükski saastetase ega voog, seevastu öiste temperatuurierinevustega on keskmise tugevusega positiivses korrelatsioonis H<sub>2</sub>S saastetase (vt Tabel 11) ning tugevamas negatiivses korrelatsioonis SO<sub>2</sub> nii saastetaseme kui ka voogudega. Divesiniksulfiidi kontsentratsioonide tõus aluspinnalähedases kihis on seotud inversiooniga, seetõttu ka halvema hajuvusega, millest võib oletada, et saasteallikad on lähedal ja madalad.

**Tabel 11. Öiste temperatuuri muutuste korrelatsioon väävlühendite saastetasemetega**

	H <sub>2</sub> S, µg /m <sup>3</sup>		SO <sub>2</sub> , µg /m <sup>3</sup>	SO <sub>2</sub> , µg /m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	Vahe t 8-2 m, C	Vahe t, 20-8 m, C	Vert t gradient t
H <sub>2</sub> S, µg /m <sup>3</sup>	1						
H <sub>2</sub> S, µg /m <sup>2</sup> *s <sup>-1</sup>		1					
SO <sub>2</sub> , µg /m <sup>3</sup>	-0.25		1				
SO <sub>2</sub> , µg /m <sup>2</sup> *s <sup>-1</sup>	-0.25		0.97	1			
Vahe t, 8-2 m, C	0.45		-0.61	-0.59	1		
Vahe t, 20-8 m, C	0.38		-0.53	-0.52	0.77	1	
Vert t gradient, dT/dz	0.43		-0.60	-0.59	0.93	0.95	1

Väävedioksiidi negatiivsed korrelatsioonid püstsuunalise temperatuurierinevusega näitavad, et SO<sub>2</sub> saastetase ja voog öösiti on seda suurem, mida labiilsem on maalähedane atmosfäär. Arvatavasti saasteallikad on kõrged, pinnainversiooni korral on aluspind isoleeritud ning saaste hajub kõrgemale.

Hindamiseks saastetaseme kujunemise meteoroloogilisi põhjusi, tehti faktoranalüüs, mille tulemused on toodud Tabelis 12, kus on toodud esialgsed muutujad, faktorite omaväärtused ja faktorite kirjeldusvõimed, mis näitavad, mitu protsenti andmestiku koguhajuvusest iga faktor kirjeldab. Faktoranalüüs lubab grupeerida omavahel tugevasti korreleerunud muutujaid. Faktorkaalude suured väärtused (> 0,7) Tabelis 12 näitavad, milliste mõõdetud muutujatega on antud faktor tugevasti seotud. Oletades, et samade saasteainete levikut mõjutavad kindlad meteoroloogilised parameetrid, saame faktoranalüüsiga hinnata, mis ilmastikutingimused avaldasid saasteainete levikule suuremat mõju.

Faktoranalüüsis saadi 4 faktorit, mille väärtused olid ühest suuremad, kokku need faktorid kirjeldavad 71,12% valimi hajuvusest. Seoste otsimiseks teostati koordinaatteljestiku pöörded – Varimax pööramise tulemusena saadud faktorid ei

muutunud enam teiste pööramisprotseduuride tagajärjel märkmisväärselt, seega jäädi nende väärtuste juurde.

**Tabel 12. Faktoranalüüsi tulemused (Varimax pööramisega)**

	Faktor 1	Faktor 2	Faktor 3	Faktor 4
Voog H <sub>2</sub> S, µg/m <sup>2</sup> *s <sup>-1</sup>	0.002903	0.092975	0.146525	0.806779
Voog SO <sub>2</sub> , µg/m <sup>2</sup> *s <sup>-1</sup>	-0.099954	0.530133	-0.152884	0.549860
Kalevi tuulesuund, kraadi	0.020034	-0.125959	0.847935	-0.020906
Kalevi tuulekiirus, m/s	-0.370324	0.717393	-0.338975	0.239249
Temp 2m, C	-0.389415	-0.313572	-0.145553	0.292993
Aseri tuule kiirus, 24 m, m/s	-0.198584	0.842132	-0.041677	0.104497
Aseri tuulesuund 24 m, kraadi	0.024426	-0.047955	0.790828	0.130820
Temp vahe, 8-2 m, C	0.935570	-0.097653	0.020216	-0.018132
Temp vahe, 20-8 m, C	0.900264	-0.176391	0.021359	-0.016266
Vert temp gradient, dT/dz	0.977773	-0.144549	0.022111	-0.018341
Vert tuule std, 24 m, m/s	-0.134431	0.628812	0.086213	-0.275893
Expl.Var	2.999096	2.086967	1.535858	1.201841
Prp.Totl	0.272645	0.189724	0.139623	0.109258

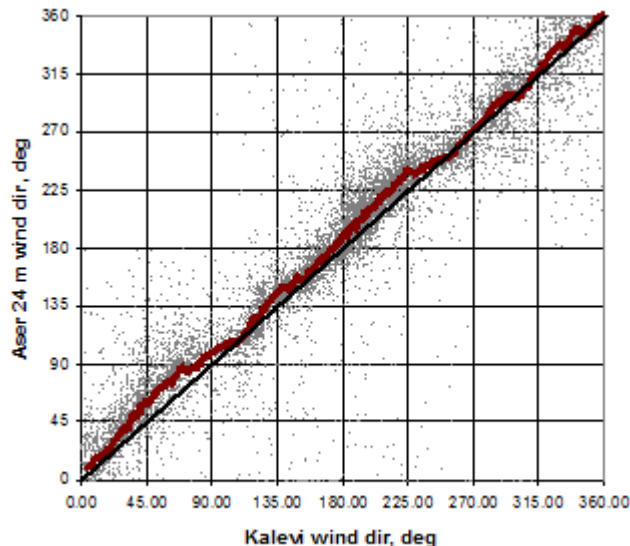
Esimene faktor on seotud temperatuuri muutusega kõrgusega, kuna need on kolm peaaegu üht ja sama muutujat, siis tugev sarnasus ongi oodatav. Samamoodi on ka Kalevi seirejaamas ja Aseri meteomastis mõõdetud tuule kiirustega, kolmas faktor kirjeldab Kalevi jaamas ja Aseris mõõdetud tuule suunda. Neljas faktor kirjeldab divesiniksulfiidi hajuvust, millega seostub ka vääveldioksiidi voog, mis näitab, et arvatavasti osa H<sub>2</sub>S ja SO<sub>2</sub> saastevoost pärinevad samadest allikatest (näiteks VKG Oil väävliühendite saasteallikad).

Kui kõrvaldada statistilisest andmestikust erinevatel kõrgustel mõõdetud temperatuuride vahed, siis ilmneb juba teadaolev positiivne seos tuule vertikaalse standardhälbe, tuule kiiruse ja SO<sub>2</sub> voo vahel.

### 3.4. Arutelu

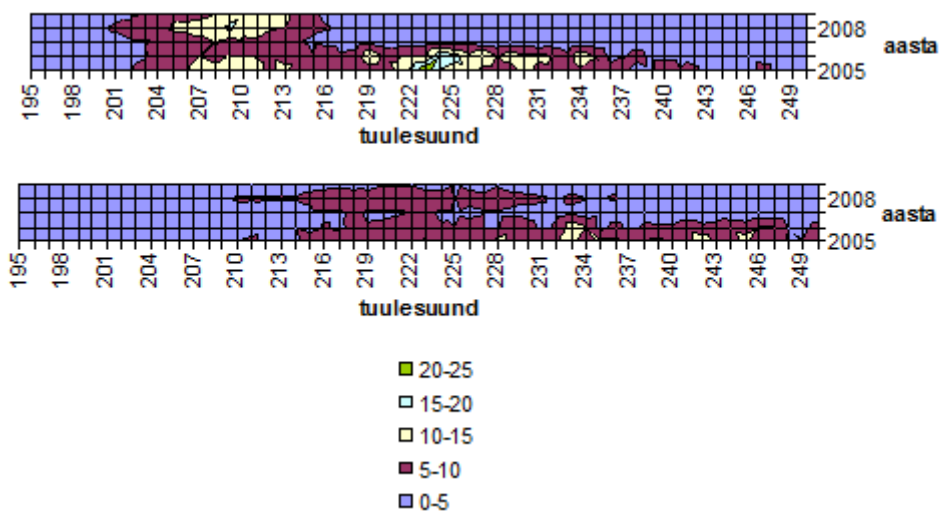
Käesolevas töös on vaadeldud Kohtla-Järve linna peamisi H<sub>2</sub>S ja SO<sub>2</sub> saasteallikaid ning kohalikke meteoroloogilisi tingimusi, eesmärgiga leida nendevahelisi seoseid. Emissioonide hajumine ja levik atmosfääris sõltub väga mitmetest atmosfääri liikumise seaduspärasustest, seetõttu on väga keeruline täpselt määrata saasteallika asukohta, toetudes ainult madalal mõõdetud meteoroloogilistele andmetele (tuule suund jm), sest need on oluliselt mõjutatud aluspinna kohalikest omadustest nagu pinnavormid, pinnakaredus, hooned ja rajatise.

Uuriti saasteainete horisontaalsete voogude mustrite seoseid erinevatel kõrgustel 3 – 24 m mõõdetud tuulesuundadega, aga samuti ka meteoroloogiliste ennustuste jaoks välja arvatud kõrgemate tasemetel (15, 55, 130, 305 m) tuulesuundadega. Kalevi seirejaamas ja Aseri meteomastis 24 m kõrgusel mõõdetud tuulesuunad on erinevad (vt Joonis 28) – kõrgusega toimub tuule süstemaatiline pöördumine päripäeva ning ilmnevad kohalikud nihkumised kindlates tuulesuundade vahemikes. Hõõrdudes aluspinna vastu pöördub tuul madalama rõhu ala suunas, milles avaldub rõhugradient- ja Coriolise jõudude tasakaal. Teoreetilise Ekmani spiraali järgi aluspinna lähedal pöördub geostroofilise tuule suund 45 kraadi (pealtvaates) vasakule, võrreldes tema suunaga vabas atmosfääris (Rõõm, 2005). Reaalsuses aga tingituna atmosfääri vertikaalsetest ebahomogeensustest, on pöördnurk tavaliselt väiksem.



**Joonis 28. Aseri meteomastil 24 m kõrgusel ja Kalevi seirejaamas mõõdetud tuulesuunad, 2008-2009 aastad**

Ekmani spiraali toimimist Kohtla-Järve linnas illustreerivad saastevoogude 10 – 15 kraadi erinevad suunad Kalevi ja Aseri tuuleandmete põhjal. Võrreldes saastevooge 3 m kõrgusel (Kalevi seirejaamas) ning 24 m kõrgusel (Aseri meteomastil) mõõdetud tuulesuunaga, nihkub saastevoogude muster 2006-2009 aastat andmetel 10-15 kraadi lääne poole (vt Joonis 29).

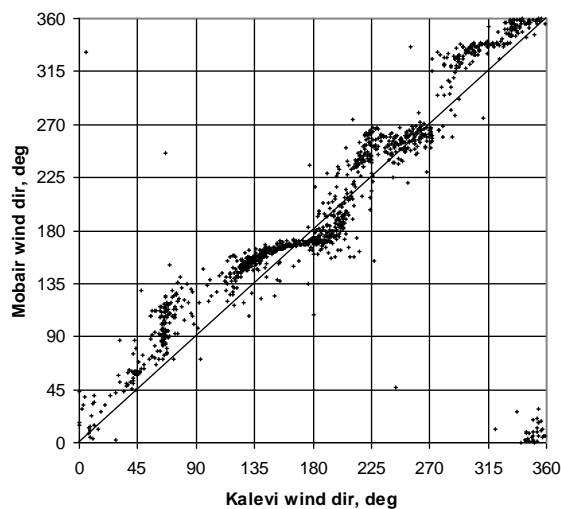


**Joonis 29. Divesiniksulfiidi voogude ( $\mu\text{g} / \text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ) sõltuvus Kalevi seirejaamas ja Aseri meteomastil 24 m kõrgusel mõõdetud tuulesuundadest**

Uuringud näitasid, et õhusaastemudel SILAM, tuginedes meteoroloogilise mudeli HIRLAM väljundile, tuulesuunda arvutamisel ülehindab Ekmani spiraalist tingitud pööret, lähtudes vaba troposfääri tuultest ja arvutades niiviisi aluspinna tuuli. Käesolevas töös kättesaadavad madalamate kui 100 m tuulesuundade andmed näitasid süstemaatilist vastupäeva pöördumist, võrreldes mõõdetud tuulesuundade andmetega.

Ainult 3 km kaugusel üksteiselt asuvate kahe mõõtmispunkti – Mobair ja Kalevi seirejaam – tuulesuunad on erinevad (Vt Joonis 30). Arvatavasti kajastub siin kuni 150 meetri kõrguse poolkoksi ladestu mõju, millega kohtudes moondub

tuuletrajektoor. Väiksemas ruumimastaabis osutuvad takistusteks (seda eriti näha Mobair ja Aseri tuulte võrdlemisel) ka kõrgemad hooned. Kõrgendike mõju tuuleväljale on teada nii teoreetiliselt kui ka empiiriliselt. Atmosfääri dünaamika teoreetilised mudeli arvutused näitavad et juba 100 – 300 m kõrgused künkad ja ahelikud võivad tekitada arvestatavaid lainetaolisi häireid, kuni mõned kilomeetrid allatuult ning lisaks ka külgsuundades (Zirk & Rõõm, 2005).



**Joonis 30. Mobair ja Kalevi seirejaamas mõõdetud tuulesuunad, nov 2005 - jaan 2006**

Järelkult saastevoogude tuulesuundade järgi koostatud jaotusi uurides ei saa määrata saasteallika tuulesuunda lineaarse trajektooriga tagasisjälitamisega, ei piisa ka Ekmani spiraali arvestamisest. Keeruline topograafiline aluspind nõuab hoolikat mitmetasemelist tuulevälja mõõtmist, lisaks annavad vajalikku teavet ka meteoroloogiline ning atmosfääri piirkihi modelleerimine. Kohtla-Järvel mõjutavad saastehajumist poolkoksi ladestu, mis on 170 m üle merepinna kõrge, märkmisväärset tööstuhooned ja metsaalad, koostoimes moodustades mikroskaalas keerulise takistuste mustri.

Erinevatel kõrgustel mõõdetud tuulesuundade kättesaadavate andmete omavaheline korreleerimine ja jaotusgraafikute empiiriline ülevaade andis võimaluse parandada ettekujutust Kalevi seirejaamas registreeritava õhusaaste trajektooridest (vt Joonis 28). Aseri meteomastis 24 m kõrgusel ja Kalevi seirejaamas mõõdetud tuulesuundade vaheline korrelatsioon  $R=0,7$ , Ekmani pöördele lisaks on ka ilmsed kohalike takistuste mõjud: 65 – 135 kraadi vahel võivad osutada takistusteks selles suunas Kalevi jaamast asuvad kõrged majad ja metsaala, teine nihkekoht 225 – 270 kraadide vahel viitab võibolla poolkoksiladestu mõjule.

## Kokkuvõte

Kohtla-Järve linna õhk on olnud alates põlevkivi töötlemise algusest kohalikele elanikele mureküsimuseks, kuid ega „pruuni kulda“ teise kohta ümber paigutada ei ole võimalik ning kindlustamaks Eesti Vabariigi majanduslikku iseseisvust juba vabariigi esimesel perioodil, hakkasid Ida-Virumaal arenema põlevkivi tootmis- ja töötlemisgigandid. Tänu paljudele inimestele, kes on võtnud endale ülesandeks leida kompromiss tööstuse ja õrna elukeskkonna vahel, on tänaseks olukord Kohtla-Järve regioonis drastiliselt paremaks muutunud ja loodame, et pareneb veelgi, kui me areneme kooskõlas looduseadustega.

Viimase kahekümne aasta õhu-uuringud ja saasteainete kontsentratsioonide mõõtmised näitavad pidevat õhukvaliteedi parenemistendentsi, mis ei ole juhtunud iseenesest, vaid tänu ulatuslikele keskkonnameetmetele. Tänapäeva suuremaks õhuprobleemiks jäävad ajuti piirväärtust ületavad divesiniksulfiidi kontsentratsioonid linnaõhus, probleemi süvendavad selle ühendi väga ebameeldiv lõhn ja madal lõhnalävi, mis on mitu korda väiksem kehtivast tunnikeskmisest piinormist.

Põlevkivi on suhteliselt väävlirikas kivim, mistõttu tema termilisel lagundamisel (koksistamisel) ja põletamisel, aga samuti ka järelproduktide käitlemisel, tekivad lenduvad väävliühendid, sealhulgas divesiniksulfiid ja vääveldioksiid. Kohtla-Järve põlevkivitööstus ja sellega seotud probleemsed saasteallikad on koondatud väga kompaktselt linna lääneossa, mis teeb keeruliseks konkreetsete saasteallikate määramise seireandmete põhjal.

Käesoleva töö peamiseks eesmärkideks oli uurida divesiniksulfiidi- ja vääveldioksiidisaaste päritolu, hajumist ja levikut mõjutavaid atmosfääridünaamika protsesse.

Töö käigus uuriti Kohtla-Järve linnas Kalevi tänaval asuvas seirejaamas registreeritud SO<sub>2</sub> ja H<sub>2</sub>S tunnikeskmi saastetasemeid ning nende seoseid mikrometeoroloogiliste parameetritega, mis olid saadud 29,5 km kaugusel asuvast Aseri meteomastist ning õhusaaste leviku mudelist SILAM. Kõige kõrgemate kontsentratsioonidega märgistatud tuulesuunade vahemikus uuriti saaste hajumist mõjutavaid meteoroloogilisi suursi, eesmärgiga leida tugevamaid seoseid, tehti ka faktoranalüüsi. Eraldi uuriti 2005-2006 Eesti Keskkonnauuringute Keskuse poolt liikuva õhulaboriga Mobair teostatud mõõtmiskampaania tulemusi.

Töö peamiseks saavutuseks on kohalike mikroskaala meteoparameetrite ja topograafiliste takistuste mõju hindamine saastevoogude liikumisele.

1. On tõestatud, et kõige olulisemad H<sub>2</sub>S ja SO<sub>2</sub> saasteallikad Kohtla-Järve linnaõhu kvaliteeti arvestades on VKG Oil tootmisseadmed, poolkoksi ladestu ning VKG Energia soojuselektrijaamad. VKG Oil tootmisterritooriumi vahetusläheduses seisnud liikuva õhulabori mõõtmised näitavad kordades kõrgemaid kontsentratsioone kui Kalevi seirejaamas samal perioodil.
2. 2007. aastast kadunud kõrgemad divesiniksulfiidi kontsentratsioonid õhus tulenesid arvatavasti regionaalsest biopuhastist ja nende kadumine on seletatav puhasti renoveerimisega.

3. Tõenäoliselt pärineb vääveldioksiid küllaltki kõrgel (mitte vahetult maapinnal) paiknevatest saasteallikatest, vastupidiselt divesiniksulfiidile, mis tuleneb pigem madalamatest allikatest.
4. Ajavahemikus 2004-2009 AS VKG poolt teostatud keskkonnainvesteeringud on oluliselt vähendanud saastetasemeid linna õhus

# **Dependence of concentrations of hydrogen sulphide and sulphur dioxide on wind direction and other meteorological parameters in the air of Kohtla-Järve city**

## **Summary**

Air pollution problems for Kohtla-Järve inhabitants are the same famous and old as oil shale industry in this region. Unfortunately it is not possible to relocate the brown gold and in order of economical independence of Estonia, in the time of first Republic it has begun to install the Oil Shale production and treatment Giants in Ida-Viru.

Last twenty years of air pollution researching and pollutants' concentrations measurements present the positive trend of air quality improvement, what did not happen by chance but thanks to environmental investments made by local enterprises. But still Kohtla-Järve has often to deal with enhanced concentrations of H<sub>2</sub>S and SO<sub>2</sub> in ambient air, H<sub>2</sub>S sometimes exceeding the maximal permitted concentration, 8 µg/m<sup>3</sup>. Three main enterprises known as remarkable emission sources of sulphuric compounds are the VKG Oil oil-shale semicoking plant, VKG Energia thermal power stations (oil-shale and generator gas combustion is significant sources of SO<sub>2</sub>) and the municipal wastewater treatment (WT) plant that treats both residential and oil shale processing sulphur-reach wastewater.

The paper is intended to identify the origins of periodically high H<sub>2</sub>S and SO<sub>2</sub> concentrations in Kalevi monitoring station as well as possible correlations and influences for H<sub>2</sub>S and SO<sub>2</sub> distribution in the air.

Air quality monitoring data from Kalevi street monitoring station in Kohtla-Järve and mobile station Mobair operated by Estonian Environment Research on territory of VKG oil in November 2005 – January 2006 was analysed. Meteorological data were gathered from monitoring stations, Aseri meteorological mast operated by Estonian Environment Research, and meteorological (weather forecast) modelling results.

The main achievement of the study is an empirical assessment of the effects of local- and micro scale obstacles and atmospheric processes on diffusion of H<sub>2</sub>S and SO<sub>2</sub> in Kohtla-Järve town.

1. It is proven that the most enhanced sulphur dioxide and hydrogen sulphide levels in Kohtla-Järve (Kalevi) monitoring station originate from the direction of VKG Oil production units, semicoke dumps and VKG Energia thermal power plants. Much higher concentrations measured at territory of VKG Oil during episodic measurements suggest rather efficient dilution in the atmosphere when transported towards the town.
2. The secondary (but until 2007 or 2007 most intense) peak of hydrogen sulphide originates from direction of municipal wastewater treatment plant.
3. It is probable that the sulphur dioxide measured in Kalevi station, originates from elevated rather than ground-level sources, e.g. power plant stacks and aggregates with height in tens of meters. Hydrogen sulphide, in contrary, may originate from lower level sources.
4. It is evident that reconstruction of technological processes in both VKG and wastewater treatment plant had reduced the levels of sulphuric pollutants in the air of Kohtla-Järve town.

## **Tänuõnad**

Käesoleva magistritöö valmimise eest tänan eelkõige juhendaja Marko Kaasikut. Tänan ka Eesti Keskkonnauuringute Keskust, VKG AS ja Järve Biopuhasti OÜ lahkelt edastatud andmete eest.

Samuti soovin tänada Mäetaguse Vallavalitsuse vallavanem Aivar Survat mõistliku suhtumise eest. Ning suured tänud oma perekonnale toetamise eest.

## Kirjandus

- Arya S., *Air Pollution Meteorology and Dispersion*, Oxford University Press, 1999
- Rõõm, R., *Atmosfääridünaamika*, loengukonspekt, TÜ, 2005
- Barry, R., Chorley, R.; *Atmosphere, weather, and climate*, Routledge, 2003, 421 p
- Boeker E., Grondelle R., *Environmental physics*, 1995, 448 lk
- Businger J., *Основные понятия и уравнения*, Nieuwstadt F., Dop van H., *Атмосферная турбулентность и моделирование распространения примесей*, tõlk Jaglom A., Leningrad, 1985, lk 18-40
- Coastal convergence – Meteorological Physical background  
<http://www.zamg.ac.at/docu/Manual/SatManu/main.htm?/docu/Manual/SatManu/CMs/CoConv/backgr.htm> , 28.07.2010
- Eesti Keskkonnauuringute Keskus OÜ, *Õhuseire Kalevi tänava seirejaamas*, (Teinema E.), Tallinn 2004
- Eesti Keskkonnauuringute Keskus OÜ, *Välisõhu uuringud Ida-Virumaal*, (Paulkin T, Teinema E.), Tallinn 2006
- Eesti Keskkonnauuringute Keskus OÜ, *Õhusaaste uuringud Ida-Virumaal II etapp*, (Paulkin T, Teinema E., Kesanurm K.), Tallinn 2007
- Eesti Keskkonnauuringute Keskus OÜ, *OÜ Järve Biophasti emissioonide mõõtmised ja lubatud heitkoguste projekt*, (Paulkin T, Teinema E., Maasikmets M), Tallinn 2009
- Halitsky, J., 1963, *Gas diffusion near buildings*. Trans. Amer. Soc. Heat. Refrig. Air-condit. Engin., 69, 464-485
- Jegorov A., Savitskaja T., *Управление безопасностью химических производств на основе новых информационных технологий*, Moskva, 2004, lk 43-136
- Kaasik M., *Parametrisation of atmospheric boundary layer in the numerical model of air pollution transport*, Tartu, 2000, 69 lk
- Kaasik, M., *Keskkonnaseire*, TÜ, loengukonspekt 2005
- Kaljuvee T., Kuusik R., Trikkel A., Maljukova N., *Behaviour of Sulphur Compounds at Combustion of Oil Shale Semicoke*, Oil Shale 20/2003, lk 113-125
- Kattai, V., Saadre, T., Savitski L., *Eesti põlevkivi (geoloogia, ressurs, kaevandamistingimused)*, Tallinn, 2000, 1-226
- Kattai, V., *Põlevkivi – õlikivi: levik, koostis, omadused, ressurs, kasutamine*, Tallinn 2003, 1-162
- Kimmel V., *Atmosfääri hügieen ja saastelevi*, loengute konspektid, TÜ Türi Kolledž, 2001
- Kimmel V., *Analyses of methods of air quality assesment. Applications in Estonia*, Tartu, 2002, 35-42
- Kuusik R., Kaljuvee T., *Vääveldioksiidi emissioon põlevkivi poolkoksi põletamisel*, Keskkonnatehnika, 3/2003, lk 22-26

- Liblik V, Kundel H., *Ida-Virumaa atmosfääriõhu seisund. Ülevaade saasteallikatest, emissioonikoguste ja õhukvaliteedi muutustest aastatel 1991-1995*, Jõhvi, 1995
- Liblik V., Rätsep A., *Pollution sources and the distribution of pollutants*, Ökoloogia Instituut, Eesti Teaduste Akadeemia, publikatsioonid 2/1994, lk 70-93
- Liblik V., Kundel H., Maalma K., *Saasteainete emissioon ja õhu kvaliteedi muutuste dünaamika Ida-Virumaal aastatel 1995-1998*, Tallinna Pedagoogikaülikooli Ökoloogia Instituudi publikatsioonid 6/1999, lk 45-64
- Liblik V, *Õhusaaste ajalised trendid Ida-Virumaal ja mõju looduskeskkonnale. Uuringute ülevaade 1990-2005*, Tallinna Ülikooli Ökoloogia Instituudi publikatsioonid 10/2007, lk 173-208
- Maves AS, *Ohtlike jääkrostuskollete järelvalve ja kontroll, too nr 1077*, aruanne, Tallinn, 2002
- Maves AS, *Tööstusjäätmete ja poolkoksi ladestuspaikade sulgemise ettevalmistus Kohtla-Järvel ja Kiviõlis 2003/EE/16/P/PA/012 KMH*, Tallinn, Eesti Geoloogiakeskus, 2006, 1-95
- Pasquill F., Smith F., *Atmospheric diffusion*, 1979, 334-341
- Pomeroy D., Boon A., *The problem of Hydrogen Sulphide in Sewers*, 1990, [www.cpda.co.uk/techn/clay/w2253.pdf](http://www.cpda.co.uk/techn/clay/w2253.pdf), 31.07.2010
- SILAM, *Air Quality and Emergency Modelling System*, silam.fmi.fi, 29.07.2010
- Snoeyink L., Jenkins D., *Water Chemistry*, New York, 1980, lk 86-97, 134-135
- Soone, J., Doilov, S., *Sustainable utilization of oil shale resources and comparison of contemporary technologies used for oil shale processing*, Oil Shale, 2003, Vol. 20, No 3, pp. 311-323
- Sofijev M., Siljamo ., Valkama I., Ilvonen M., Kukkonen J., *A dispersion modelling system SILAM and its evaluation against ETEX data*, Atmospheric Environment 40/2006, 674-685
- TLÜ Ökoloogia Instituuti, Kirde-Eesti osakond, *OÜ VKG Energia keskkonnamaterjalide taotluse materjalid välisõhu saastamise osas. Töö nr 101-07-energia*, Jõhvi, 2007 juuli
- TLÜ Ökoloogia Instituuti, Kirde-Eesti osakond, *VKG Oil AS tehnoloogiliste protsesside keskkonnamõju hindamise (KMH) aruanne*, Jõhvi, 2008 august, 1-95
- TLÜ Ökoloogia Instituuti, Kirde-Eesti osakond, *Põlevkiviõli puhastamisel tekkivate fuusside (filtrikoogi) põlevkiviga koospõletamisel OÜ VKG Energia Põhja SEJs eeldatava keskkonnamõju hindamise (KMH) aruanne*, Jõhvi, 2008 aprill, 1-129
- TTÜ Keskkonnatehnika Instituut, *Keskkonna saaste vähendamine Eesti keemiatööstuses ja üleminek säästvale tehnoloogiale*, projektijuht Munter R., kestus 1998-2000, teadusliku uuringu nr 0140218s98
- Trifonov K., Devissilov V., *Физико-химические процессы в техносфере*, Moskva, 2007, 229 lk
- Trikkel A., Kuusik R., Maljukova N., *Distribution of organic and inorganic ingredients in Estonian Oil shale semicoke*, Oil Shale, 21/2004, lk 227-235

Trikkel A., Kuusik R., *Utilisation of Estonian Oil shale retorting solid waste*, International Conference of Oil Shale, Jordan, 2006, paper No rtos-A110

Urov, K., Sumberg A., *Характеристика горючих сланцев и сланцеподобных пород известных месторождений и проявлений*, Tallinn, 1992, 1-62

VKG AS ametlik veeblehekülg [www.vkg.ee](http://www.vkg.ee) juuli 2010

Yongshiri C., Hvitved-Jacobsen T., Vollersten J., Tanaka N., *Introducing the emission of Hydrogen Sulfide to a Process Model (WATS)*, Water Science and Technology, 47/2002, lk85-92

Zirk, M., Rõõm, R. (2005). Exact solution of the linear, 4D-discrete, implicit, semi-Lagrangian dynamic equations with orographic forcing. Geophysical Research Abstracts:, 00723.

*Главные компоненты и факторный анализ*,  
<http://www.statsoft.ru/home/textbook/modules/stfacan.html>, 27.07.2010