

Napovedovanje kakovosti zraka z modelom WRF/Chem

Rahela Žabkar^{1,2}, Luka Honzak²

Povzetek

V prispevku je predstavljen opis in verifikacija eksperimentalnega sistema za operativno napovedovanje kakovosti zraka v realnem času, ki uporablja sklopljen način modeliranja meteoroloških in kemijsko transportnih procesov v ozračju. Rezultati vrednotenja za obdobje dveh poletnih mesecev so pokazali razmeroma dobro kvalitativno ujemanje napovedi z meritvami. Napovedane koncentracije delcev PM10 v zraku v obravnavanem obdobju dveh mesecev v povprečju zelo malo odstopajo od izmerjenih vrednosti, kar omogoča realistično analizo vpliva aerosolov na sevalno bilanco in s tem na napoved meteoroloških spremenljivk.

Ključne besede: ozon, trdni delci, kakovost zraka, model WRF/Chem, napovedovanje, sklopljeno modeliranje

Keywords: ozone, particulate matter, air quality, WRF/Chem, forecasting, coupled modelling

Uvod

Napovedovanje kakovosti zraka je razmeroma novo področje med atmosferskimi znanostmi. Prvi modeli za napovedovanje kakovosti zraka so se pojavili v sedemdesetih letih. To so bili razmeroma preprosti statistični in empirični modeli, ki za izračun napovedi na posameznih merilnih mestih uporabljajo pretekle meteorološke meritve, meritve koncentracij onesnaževal ter napovedi meteorološkega modela. Od devetdesetih let dalje se za napovedovanje kakovosti zraka uporabljajo tudi 3D numerični deterministični modeli, ki vsebujejo matematični opis vseh pomembnih meteoroloških, fizikalnih in kemijskih procesov, ki povezujejo emisije in končne koncentracije različnih onesnaževal v ozračju. V primerjavi s statističnimi in empiričnimi modeli so numerični modeli bistveno kompleksnejši, seveda tudi računsko mnogo bolj zahtevni in za izračune potrebujejo veliko količino podatkov o začetnem stanju atmosfere in o dogajanju na robovih računskega območja. V primeru, da so atmosferski procesi v teh modelih dovolj dobro predstavljeni, oziroma, da so ustrezno obravnavani vsi odločilni vplivi, dajejo numerični modeli za napovedovanje kakovosti zraka srednje do zelo dobre rezultate. Kljub temu, da so statistični in empirični modeli preprostejši in hitrejši, ter za posamezna merilna mesta pogosto dajejo boljše rezultate v primerjavi z numeričnimi, je velika prednost determinističnih modelov v tem, da omogočajo napovedovanje kakovosti zraka tudi v netipičnih vremenskih ali emisijskih razmerah, da je z njimi mogoče določati vzroke ter oceniti posledice onesnaženja, preučevati različne scenarije in predvideti učinkovitost ukrepov za izboljšanje kakovosti zraka.

Zadnja leta se med determinističnimi modeli vse bolj uveljavlja pristop, ki omogoča sklopljeno modeliranje atmosferskih procesov, kot alternativa običajnega pristopa, ki za napovedovanje kakovosti zraka uporablja dva ločena modela, meteorološkega in kemijsko-transportnega (CT). V sklopljenih meteorološko-kemijsko-transportnih modelih se meteorološki in kemijsko-transportni procesi računajo v vsakem računskem koraku hkrati,

¹ Univerza v Ljubljani, Fakulteta za matematiko in fiziko, Jadranska ul. 19, Ljubljana

² Center odličnosti Vesolje-SI

obenem pa ti modeli omogočajo tudi upoštevanje povratnih učinkov onesnaževal na fizikalne procese v ozračju, ki so sicer tradicionalno v meteoroloških modelih prezrti. Sklopljeni modeli tako predstavljajo bolj realističen pristop k opisovanju atmosferskih pojavov, še posebej v razmerah, ko so koncentracije onesnaževal v ozračju visoke in je s tem potencialno visok tudi njihov učinek na fizikalne procese.

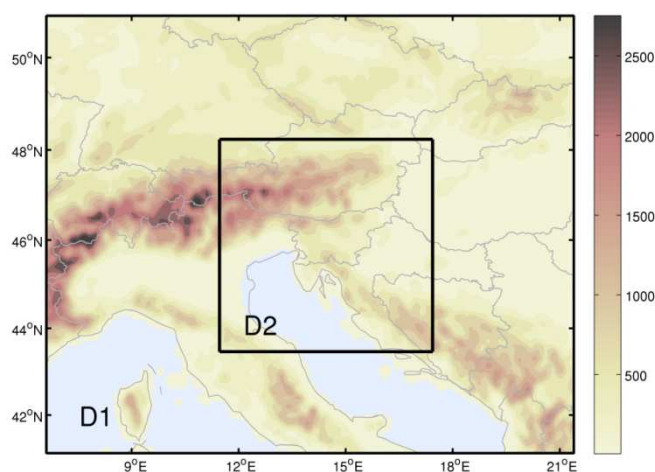
V prispevku predstavljamo primer uporabe sklopljenega meteorološko-kemijsko-transportnega modela WRF/Chem za namen operativnega napovedovanja kakovosti zraka na območju Slovenije. Poleg verifikacije modelskih rezultatov za obdobje dveh poletnih mesecev je predstavljen tudi vpliv, ki ga ima sklopljen način modeliranja na napovedana polja meteoroloških spremenljivk.

Opis modelskega pristopa

Model WRF/Chem (Grell idr., 2005) je s kemijskim modulom sklopljena razširitev mezo-meteorološkega modela WRF (Weather Research and Forecast; Skamarock idr., 2008), ki omogoča hkratno sklopljeno modeliranje meteoroloških procesov, kemijskih pretvorb in transporta onesnaževal v ozračju. Sklopljeno modeliranje predstavlja trenutno najbolj izpopolnjen pristop k opisovanju kompleksnega med-delovanja fizikalnih in kemijskih procesov v ozračju. Poleg vplivov fizikalnih parametrov ozračja na disperzijo in kemijske pretvorbe onesnaževal, se v tovrstnem modelskem pristopu lahko upošteva tudi vplive, ki jih ima prisotnost onesnaževal v ozračju na meteorološke oziroma na fizikalne procese v ozračju, kot so sevalna bilanca, tvorba oblakov in nastanek padavin. Sklopljen način računanja tako po eni strani omogoča, da se pri računanju transporta in kemijskih pretvorb onesnaževal v vsakem računskem koraku upošteva maksimalna količina informacije o meteorološkem stanju atmosfere, istočasno pa se v izračunih meteorološke napovedi lahko upošteva tudi vpliv prisotnosti onesnaževal v ozračju na fizikalne procese v atmosferi.

V napovedi kakovosti zraka za območje Slovenije, predstavljeni v tem prispevku, z modelom WRF/Chem (različica 3.4.1) računamo tako meteorološko napoved kot napoved koncentracij onesnažil v ozračju. Območje numeričnega modeliranja je sestavljeno iz dveh gnezdenih računskih območij (slika 1), od katerih ima zunanje območje ločljivost 11,1 km in 151x100 mrežnih točk, notranje računsko območje pa ločljivost 3,7 km in 181x145 mrežnih točk. Naše območje zanimanja je notranje računsko območje (D2 na sliki 1) z višjo prostorsko ločljivostjo, medtem ko izračune v zunanjih računskih območjih potrebujemo za zagotavljanje dobrih kemijskih in meteoroloških robnih pogojev na robovih notranjega računskega območja. Po vertikali imamo atmosfero razdeljeno na 42 modelskih nivojev, pri čemer so nivoji bistveno gostejši blizu tal na območju planetarne mejne plasti (15 nivojev v spodnjih 2 km atmosfere), vertikalna ločljivost modela neposredno nad tlemi pa je 25 m. Za začetne in stranske meteorološke robne pogoje uporabljamo napovedi globalnega modela GFS (Global Forecast System). Napovedi kakovosti zraka globalnega kemijskega transportnega modela MOZART-4/ GEOS-5 (Model for OZone And Related chemical Tracers) uporabljamo kot vir podatkov o koncentracijah onesnažil na stranskih robovih modeliranja, medtem ko koncentracije onesnažil ob začetnem času modeliranja preberemo iz rezultatov predhodne simulacije. Antropogene emisije (7 primarnih onesnaževal, 5 podskupin delcev ter 48 podskupin hlapnih organskih spojin) računamo za območje Slovenije iz podrobnih letnih podatkov o emisijskih virih za leto 2009 (vir: ARSO), medtem ko za območja izven Slovenije uporabljamo emisije TNO/MACC-II, prav tako za leto 2009. Za izračun biogenih emisij je z modelom WRF/Chem sklopljen model MEGAN (Model of Emissions of Gases and

Aerosols from Nature), ki v izračunih upošteva rabo tal ter trenutne lokalne meteorološke pogoje. Za ocenjevanje morskega aerosola ter dvigovanja prahu uporabljamo module v modelu WRF/Chem, ki prav tako omogočajo ocenjevanje teh emisij v odvisnosti od rabe tal in trenutnih lokalnih meteoroloških pogojev. Kemijske pretvorbe med plinastimi onesnaževali se računajo z uporabo mehanizma RADM2, za delce pa imamo vklopljen kemijski mehanizem MADE/SORGAM. Parametrizacijske sheme v modelu za mikrofizikalne procese, za oceno pretokov med tlemi in atmosfero, za turbulenco v planetarni mejni plasti, za fotolizo in parametrizacijo konvektivne oblačnosti smo izbrali kot je prikazano v Tabeli 1. Za potrebe operativnega napovedovanja je model konfiguriran tako, da se od povratnih učinkov, ki jih ima prisotnost onesnažil na meteorološke procese, upoštevajo vplivi aerosola na sevalno bilanco, oziroma t.i. direktni povratni učinki.



Slika 1: Območji modeliranja, uporabljeni pri operativnem napovedovanju kakovosti zraka z modelom WRF/Chem. Prikazana je topografija (v metrih) v ločljivosti zunanjega računskega območja (11,1 km).

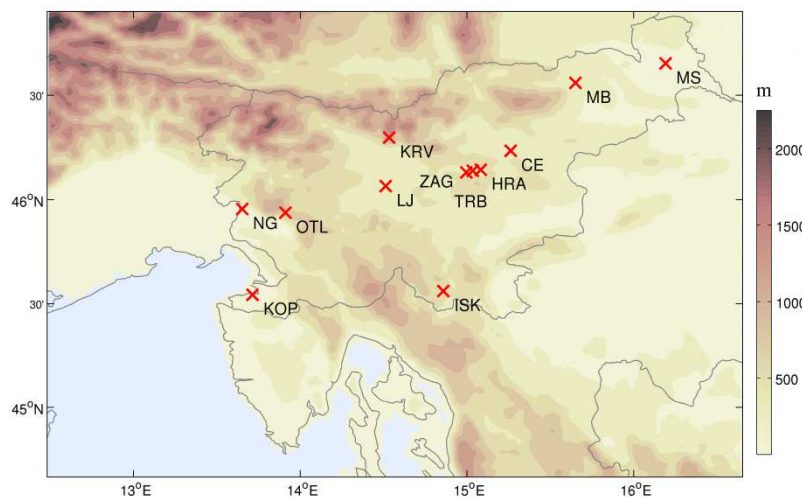
Tabela 1: Parametrizacijske sheme, uporabljene v konfiguraciji modela WRF/Chem (podrobnosti: http://ruc.noaa.gov/wrf/WG11/Users_guide.pdf).

Proces	Izbrana shema
Planetarna mejna plast	YSU
Površinska plast	Monin-Obukhov
Procesi na površju tal	Noah
Kratkovalovno sevanje	RRTMG
Dolgovalovno sevanje	RRTMG
Mikrofizikalni procesi	Morrison
Konvekcija	G3
Fotoliza	Fast-J

Vrednotenje rezultatov napovedovanja kakovosti zraka

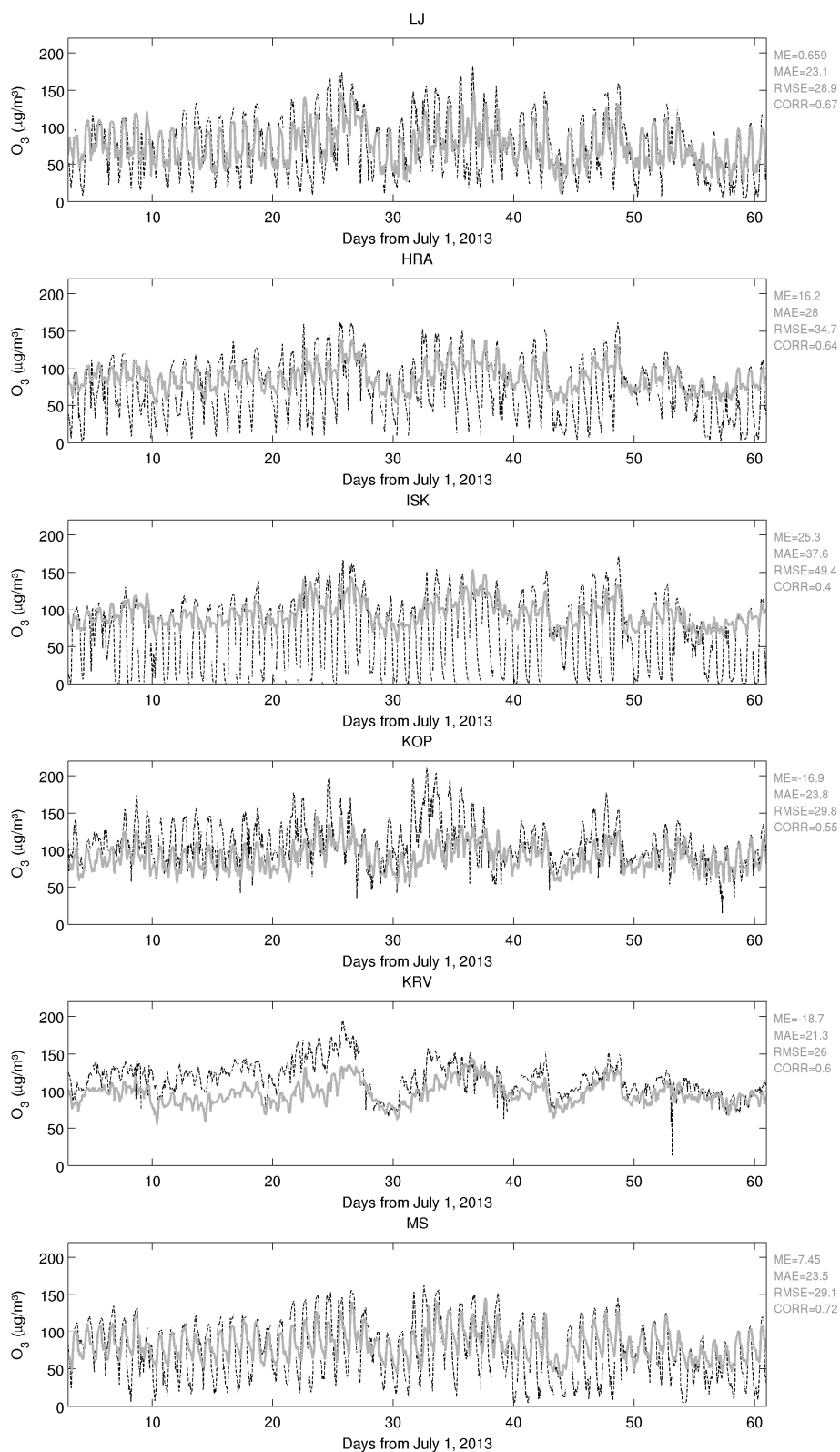
Vrednotenje rezultatov napovedi kakovosti zraka je bilo narejeno za obdobje dveh poletnih mesecev (julij in avgust 2013). Za primerjavo modelskih napovedi z dejansko izmerjenimi koncentracijami so bile uporabljene meritve 12 postaj državne merilne mreže,

prikazane na sliki 2. V poletnem obdobju so koncentracije večine onesnaževal v Sloveniji običajno nizke, izjema je le ozon, za katerega je v primeru zelo visokih temperatur zraka velika verjetnost, da bo na območju Slovenije prišlo do epizod prekomernih koncentracij ozona. V verifikaciji modelske napovedi za obdobje poletnih mesecev nas tako zanima predvsem napoved ozona, čeprav smo v postopkih vrednotenja modelskih rezultatov pregledali tudi napovedi ostalih onesnaževal. V obdobju obravnavanih dveh mesecev sta bili v Sloveniji izmerjeni dve epizodi prekomerne onesnaženosti zraka z ozonom, prva med 23. in 28. julijem 2013 ter druga med 2. in 7. avgustom 2013.

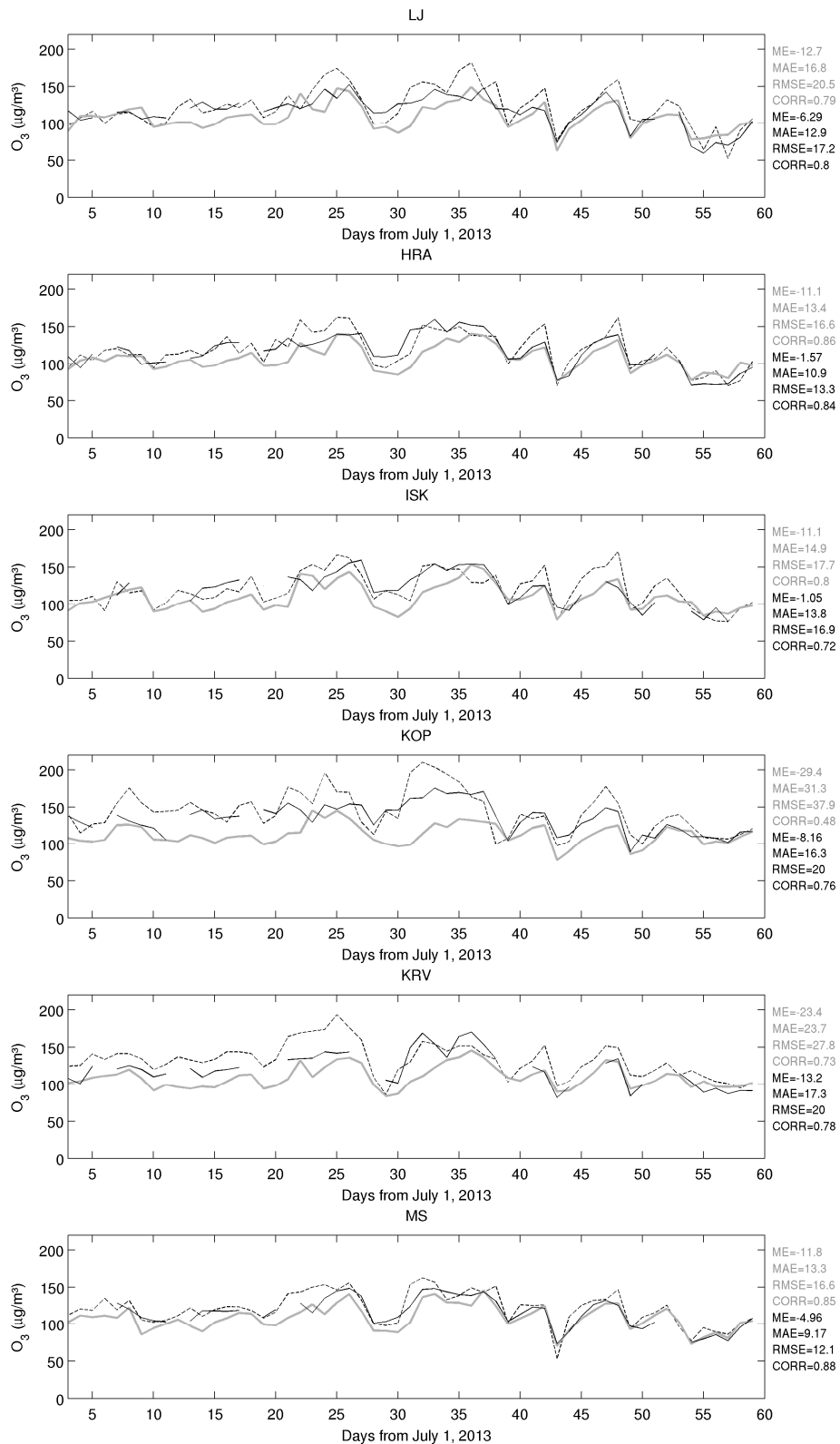


Slika 2: Lokacije postaj državne merilne mreže (ARSO), uporabljene v verifikaciji modelske napovedi kakovosti zraka. KOP – Koper, NG – Nova Gorica, OTL – Otlica, LJ – Ljubljana, ISK – Iskrba, KRV – Krvavec, ZAG – Zagorje, TRB – Trbovlje, HRA – Hrastnik, CE – Celje, MB – Maribor, MS – Murska Sobota.

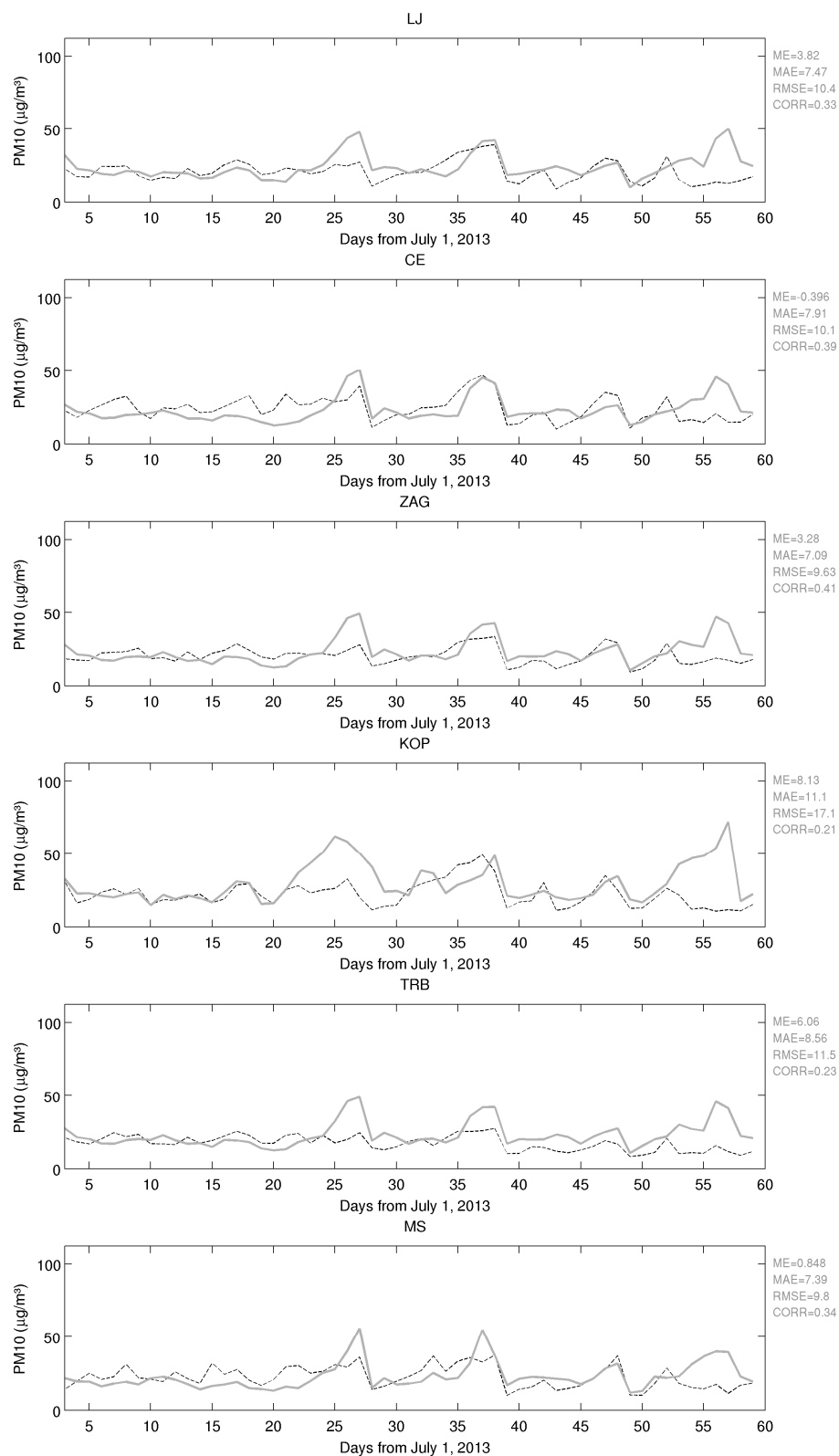
Primerjava enodnevne napovedi urnih vrednosti ozona z meritvami je prikazana na sliki 3. Čeprav model kvalitativno lepo sledi meritvam, ima za večino merilnih mest manjši dnevni hod, običajno značilno podceni dnevne maksimume ozona in preceni nočne minimume, kar je v skladu z rezultati predhodnih testiranj modela na izbrani epizodi (Žabkar idr., 2013). V povprečju za obravnavano obdobje model preceni ali podceni urne vrednosti ozona med -22 in $28 \mu\text{g}/\text{m}^3$, odvisno od merilne postaje. Na primer, na višje ležečem merilnem mestu Krvavec opazimo značilno sistematično podceni vseh urnih vrednosti (povprečni odklon $-22,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$), v Ljubljani so v povprečju izmerjene urne koncentracije enako visoke kot napovedane, v Iskrbi so zaradi precenitve nočnih koncentracij v povprečju napovedane urne koncentracije ozona previsoke (povprečni odklon $24,7 \mu\text{g}/\text{m}^3$), medtem ko so v Kopru zaradi podceni dnevnih maksimumov povprečne urne koncentracije ozona prenizke (povprečni odklon $-19,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Posledica sistematičnih podceni ali preceni urnih vrednosti ozona, povezanih med drugim z lego merilnega mesta in ločljivostjo modela, so tudi ustrezno visoke vrednosti ostalih statističnih mer napake modela, na primer korena povprečne kvadratne napake (RMSE; med 24 in $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Koeficient korelacije, izračunan iz urnih vrednosti ozona, zavzema vrednosti med $0,48$ in $0,71$.



Slika 3: Primerjava enodnevne napovedi urnih vrednosti ozona z meritvami za nekaj postaj državne merilne mreže. S črno črtkano črto so prikazane meritve, s sivo pa napovedi modela WRF/Chem. ME – povprečna napaka, MAE – povprečna absolutna napaka, RMSE – koren povprečne kvadratne napake, CORR – koeficient korelacije.



Slika 4: Primerjava enodnevne napovedi dnevnega maksimuma ozona z izmerjenimi vrednostmi za nekaj postaj državne merilne mreže. S črno črtkano črto so prikazane meritve, s sivo napovedi modela WRF/Chem, s polno črno črto pa napovedi statističnega modela. ME – povprečna napaka, MAE – povprečna absolutna napaka, RMSE – koren povprečne kvadratne napake, CORR – koeficient korelacije.



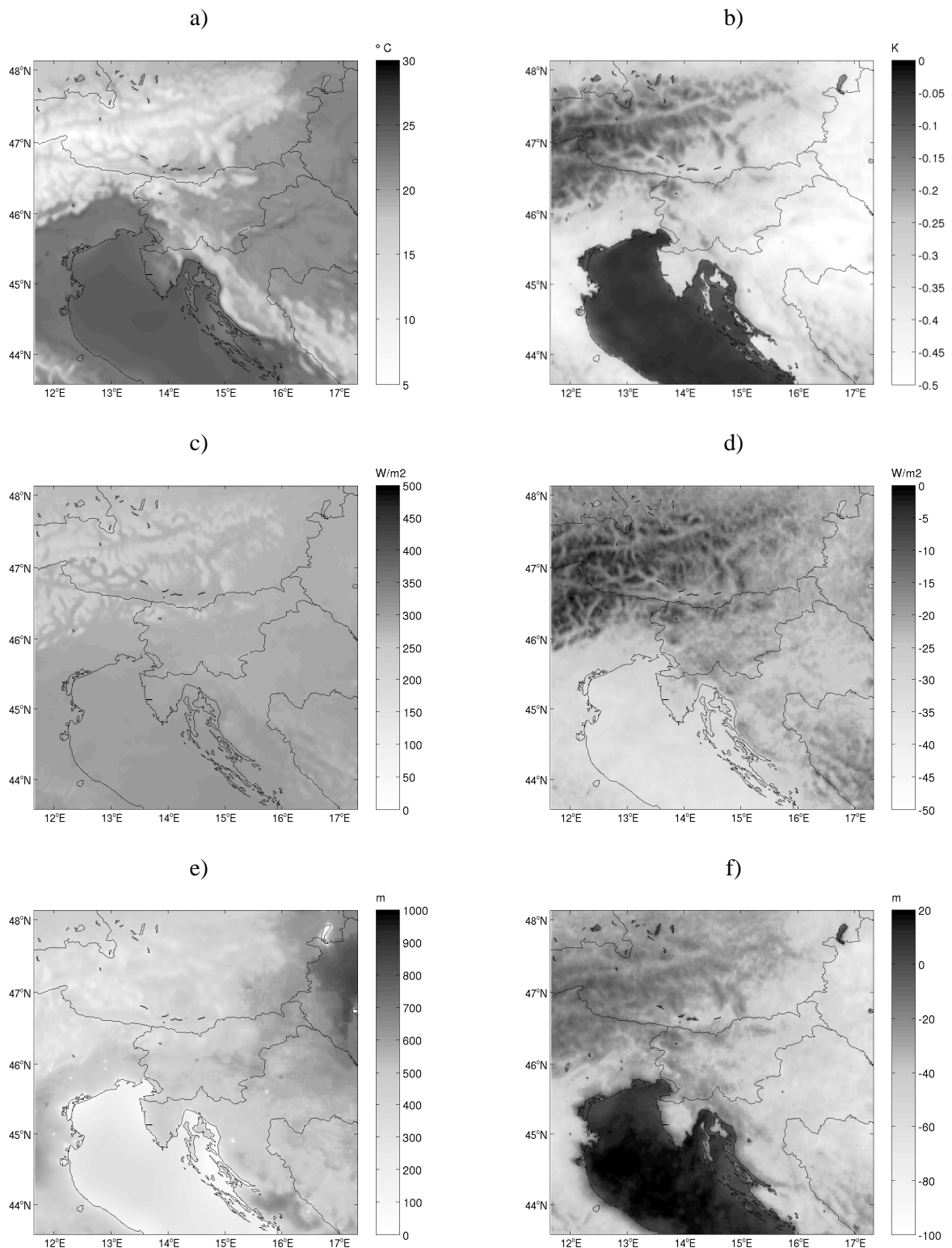
Slika 5: Primerjava enodnevne napovedi povprečnih dnevni koncentracij delcev PM10 z meritvami za nekaj postaj državne merilne mreže. S črno črtkano črto so prikazane meritve, s sivo pa napovedi modela WRF/Chem. ME – povprečna napaka, MAE – povprečna absolutna napaka, RMSE – koren povprečne kvadratne napake, CORR – koeficient korelacije.

V praksi nas bolj kot ujemanje urnih vrednosti zanimajo najvišje dnevne koncentracije ozona. V ta namen je na sliki 4 prikazana primerjava napovedanih in izmerjenih dnevnih maksimumov ozona, pri čemer je poleg napovedi modela WRF/Chem, prikazana tudi enodnevna napoved statističnega modela, ki se uporablja na Agenciji RS za okolje (ARSO) za napovedovanje dnevnih maksimumov ozona na 8 merilnih mestih po Sloveniji. Sistematične podcenitve dnevnih maksimumov, opažene pri primerjavi urnih vrednosti sicer ostajajo (povprečni odklon med -28 in $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$), vendar pa se izkaže, da so vrednosti koeficienta korelacije sedaj visoke, med $0,54$ in $0,87$. Zanimivo je, da so praktično za vse postaje korelacije med modelsko napovedjo in meritvami višje za model WRF/Chem kot za statistični model, čeprav so statistične napovedi vezane na posamezno merilno mesto in torej upoštevajo lokalne značilnosti merilne postaje. To potrjuje na pomembnost modeliranja procesov, ki vplivajo na koncentracije onesnaževal, ki v statističnih modelih ni vključeno. Primerjava uspešnosti modela med merilnimi mesti pokaže, da so modelske napovedi najslabše za merilna mesta na Primorskem (Nova Gorica, Koper), kjer niso bile opažene le največje podcenitve dnevnih maksimumov, pač pa so tudi koeficienti korelacije najnižji. Ker se ob enem najvišje koncentracije ozona pojavljajo ravno na Primorskem, bi bilo potrebno za namen natančnejšega napovedovanja koncentracij na tem območju dodatno raziskati razloge za izrazito večja neujemanja na Primorskem. Pri tem je potrebno poudariti, da model pravilno napove višje koncentracije nad območjem severnega Jadrana, medtem ko na samih lokacijah merilnih mest na Primorskem daje prenizke vrednosti, ki so razmeroma slabo korelirane z dejansko izmerjenimi dnevnimi maksimumi.

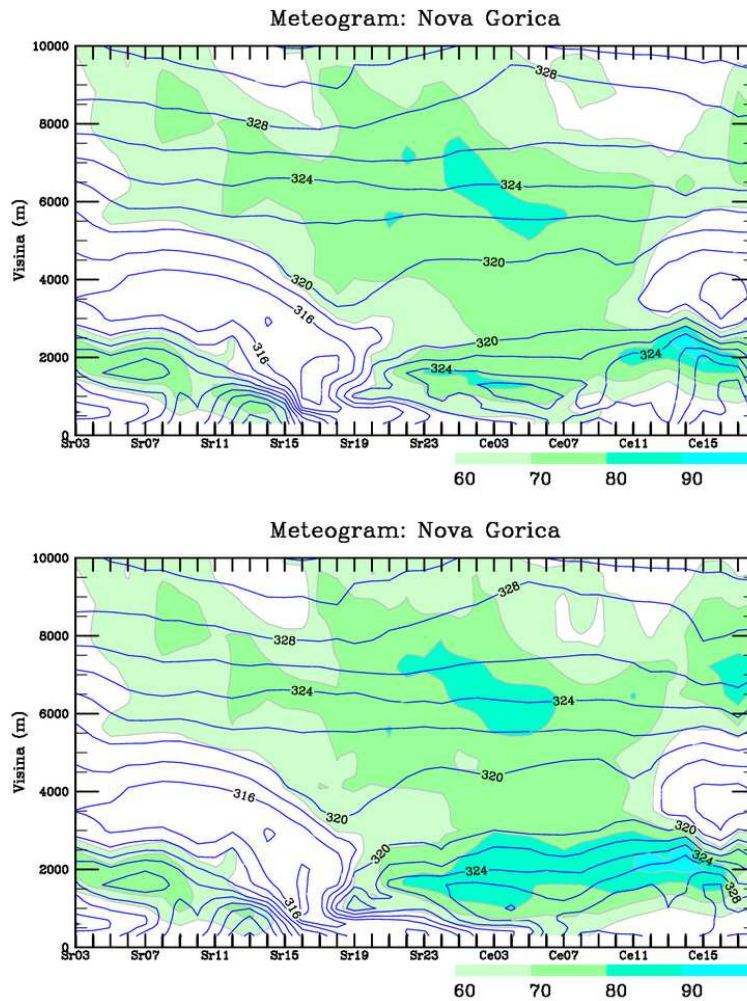
Primerjava napovedanih in izmerjenih dnevnih koncentracij delcev PM10 je prikazana na sliki 5. Ker v obravnavanem obdobju poletnih mesecev v Sloveniji ni bilo izmerjenih visokih koncentracij delcev in je bilo nihanj v dnevnih koncentracijah delcev razmeroma malo, primerjava koeficientov korelacije med modelom in meritvami nima večje teže. Zelo zanimiva pa je ugotovitev, da je praktično na vseh merilnih mestih po Sloveniji sistematično odstopanje modelske napovedi od izmerjenih vrednosti zelo majhno (med $-1,6$ in $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$, odvisno od merilne postaje). To je presenetljivo zaradi dejstva, da imajo numerični modeli za modeliranje koncentracij delcev v zraku v splošnem težave z visokimi podcenitvami koncentracij delcev, običajno za faktor 2 ali celo več. Koncentracije delcev v zraku, ki se po velikostnem redu v povprečju dobro ujemajo z izmerjenimi koncentracijami delcev, nam tako omogočajo realistično študijo vplivov, ki jih ima prisotnost aerosolov na fizikalne procese v ozračju, oziroma na meteorološko napoved.

Vpliv sklopljenega modeliranja na meteorološko napoved

S sedanjo konfiguracijo modela WRF/Chem je v numeričnih izračunih upoštevan vpliv prisotnosti aerosolov na sevalne procese v atmosferi. Da bi lahko preučili vpliv zaradi aerosolov spremenjene sevalne bilance na meteorološko napoved, smo za zgoraj obravnavano obdobje dveh mesecev (julij in avgust 2013) operativno napoved računali vzporedno še z modelom WRF/Chem, z izklopljenim kemijskim modulom. Tako smo dobili dve napovedi za obdobje dveh mesecev, s primerjavo katerih lahko preučujemo vpliv prisotnosti onesnažil na meteorološko napoved. Povzetek primerjave obeh napovedi na celotnem računskem območju za obdobje dveh mesecev je prikazan na sliki 6.



Slika 6: Dvomesečna povprečja spremenljivk (levi stolpec, rezultati simulacije z modelom WRF) in povprečne razlike zaradi vpliva aerosolov (desni stolpec, razlika WRF/Chem - WRF). Prikazani so rezultati za temperaturo zraka 2m nad tlemi (a,b), sončno sevanje pri tleh (c,d) in višino planetarne mejne plasti zraka (e,f).



Slika 7: Časovni razvoj vertikalnega preseka relativne vlage in potencialne temperature nad Novo Gorico za napoved dne 3.7.2013. Zgoraj: WRF/Chem, vključen vpliv aerosolov. Spodaj: WRF, brez prisotnosti aerosolov.

V primeru jasnega neba prisotnost aerosolov v ozračju zmanjša količino globalnega sončnega sevanja, ki doseže tla, kar ima za posledico znižanje temperature zraka pri tleh. V primerih, ko je prisotna oblačnost, pa se temu direktnemu vplivu aerosolov na sevalno bilanco pridruži še vpliv sprememb v vodnatosti oblakov, do katerega pride zaradi sprememb v termodinamiki atmosfere. Majhne spremembe v sevalnem ravnovesju in zaradi tega v prizemni temperaturi zraka in termalni stratifikaciji nad tlemi, namreč vplivajo na razvoj oblakov, kar pa ima večji vpliv na sevalno bilanco kot sam prvotni vpliv aerosolov na sevalne tokove. Povprečni vpliv aerosolov na temperaturo, količino sončnega sevanja in na višino planetarne mejne plasti, prikazan na sliki 6, je razmeroma enostavno razložiti. Zaradi vpliva aerosolov se več sevanja v spodnji troposferi siplje nazaj, kar povzroči v povprečju nekoliko nižje temperature povsod na območju modeliranja in nižjo višino planetarne mejne plasti nad kopnim. V povprečju nekoliko višja višina premešane plasti zraka nad morjem je težje razumljiva in je posledica kompleksnega meddelovanja procesov, še posebej v situacijah, ko je prisotna oblačnost. Podrobnejša analiza rezultatov po dnevih namreč pokaže, da se lahko količina sončnega sevanja lokalno v modelskih rezultatih v prisotnosti aerosolov tudi poveča, enako velja posledično npr. za temperaturo zraka pri tleh, pri čemer se to običajno dogaja ob prisotnosti oblakov. Zaradi spremenjenih

sevalnih razmer se namreč spremeni tudi temperaturna stratifikacija pri tleh in s tem termodinamika atmosfere, kar vpliva na nastanek in trajanje oblačnosti. Povprečna oblačnost se v primeru vključitve vpliva aerosolov v model v povprečju v obdobju analiziranih dveh mesecev nekoliko zmanjša.

Kot primer vpliva aerosolov na relativno vlago in s tem posledično tudi na oblačnost, je na sliki 7 prikazan časovni razvoj vertikalnega preseka relativne vlage in potencialne temperature za izbrano dvodnevno napoved za 3.7.2013 za eno od merilnih mest. Izbran je dan, ko so bile simulirane koncentracije aerosolov v zraku sicer precej visoke (pri tleh precej precejšene v primerjavi s prizemnimi meritvami), vendar je zato vpliv aerosolov na rezultate toliko bolj razločen. V simulaciji brez prisotnosti aerosolov je predvsem tekom drugega simuliranega dne potencialna temperatura zraka v plasti pri tleh nekoliko višja, v višinah med približno 1000 m in 3000 m pa imamo v tem primeru tudi precej večjo relativno vlago.

Zaključki

V prispevku obravnavamo eksperimentalno operativno napoved kakovosti zraka s sklopljenim meteorološko-kemijsko-transportnim modelom WRF/Chem. Pri vrednotenju modelskih rezultatov nam je poleg kvantitativnega ujemanja modelskih izračunov z meritvami enako pomembno tudi kvalitativno ujemanje, ki pove kako dobro modelski izračuni sledijo dejanski dinamiki obravnavanih epizod. Zavedati se je namreč potrebno, da v numeričnih modelih ni mogoče s poljubno natančnostjo opisati vseh procesov, ki potekajo v naravi. Vzrok je v včasih pomanjkljivem poznavanju kompleksnih procesov in mehanizmov, v nepopolnih informacijah o začetnem stanju atmosfere in na robovih modelskega območja ter v omejenih računalniških zmogljivostih.

Rezultati vrednotenja so pokazali razmeroma dobro kvalitativno ujemanje napovedi z meritvami. Na nekaterih merilnih mestih je bilo ujemanje v primeru dnevnih maksimumov ozona zelo dobro, medtem ko so bile najslabše napovedi dosežene na merilnih postajah na Primorskem, kjer so običajno izmerjene najvišje dnevne koncentracije ozona. Ugotovili smo, da je korelacija med napovedanimi in zmerjenimi dnevnimi maksimumi ozona višja v primeru uporabe modela WRF/Chem, kot v primeru statističnega modela, čeprav je le ta vezan na posamezno merilno mesto. Ta ugotovitev kaže na pomembnost vključitve procesov v model za napovedovanje kakovosti zraka. Napovedane koncentracije delcev PM10 v zraku na obravnavanem obdobju dveh mesecev so zelo malo odstopale od izmerjenih vrednosti, zaradi česar rezultati napovedi predstavljajo dobro osnovo za študijo vpliva aerosolov na napoved meteoroloških spremenljivk, katere prve rezultate predstavljamo v prispevku. Za namen boljšega razumevanja medsebojne povezanosti različnih procesov v ozračju, še posebej v razmerah, ki vključujejo prisotnost oblakov, pa v prihodnosti načrtujemo nadaljnje podrobne analize.

Zahvala

Prispevek je bil pripravljen v okviru Centra odličnosti Vesolje-SI, ki je financiran s sredstvi Evropskih strukturnih skladov in Ministrstva za izobraževanje, znanost, kulturo in šport. V prispevku smo za verifikacijo modelske napovedi uporabili meritve državne merilne mreže Agencije RS za okolje.

Literatura

- Agencija RS za okolje (ARSO): statistična napoved dnevnih maksimumov ozona, podatki o emisijah za Slovenijo, meritve postaj državne merilne mreže.
- Grell, G.A., Peckham, S.E., Schmitz, R., McKeen, S.A., Frost, G., Skamarock, W.C., Eder, B., 2005. Fully coupled online chemistry within the WRF model. *Atmospheric Environment* 39, 6957-6975.
- Skamarock, W.C., Klemp, J.B., Dudhia, J., Gill, D.O., Barker, D.M., Duda, M.G., Huang, X.Y., Wang, W., Powers, J.G., 2008. A Description of the Advanced Research WRF Version 3, NCAR Technical Note, NCAR/TN-475+STR, 113 p.
- Žabkar, R., Koračin, D., Rakovec, J., 2013. A WRF/Chem sensitivity study using ensemble modelling for a high ozone episode in Slovenia and the Northern Adriatic area. *Atmos. environ.* vol. 77, str. 990-1004.