

TENDENCJE ZMIAN STĘŻEŃ SO₂ W POWIETRZU W GÓRACH IZERSKICH

JERZY ZWOŹDZIAK, ARTUR GZELLA, ANNA ZWOŹDZIAK

Politechnika Wroclawska, Instytut Inżynierii Ochrony Środowiska, Wybrzeże Wyspiańskiego 27,
50-370 Wrocław

Keywords: statistical analysis, trend detectability, annual cycle, exponential smoothing, SO₂.

Streszczenie

Analiza serii czasowych średnich dobowych i średnich miesięcznych stężeń dwutlenku siarki w powietrzu posłużyła do wyodrębnienia trendu i cyklu zmian długookresowych stężeń, będących odzwierciedleniem zastosowanych strategii ograniczenia emisji w Regionie Czarnego Trójkąta. Wykorzystując model serii czasowej oceniono różne składniki szeregu. Na podstawie danych stężeń SO₂ ze stacji monitoringu atmosfery w Czerniawie w Górach Izerskich z lat 1993–1998 wykazano istnienie tendencji spadkowej stężeń. Średnia roczna zmiana stężeń wynosiła 14,1% w okresie tych sześciu lat. Z kolei zastosowany model wyrównywania wykładniczego uwzględniający składnik sezonowy i trend dostarczył trafnych prognoz stężeń średnich miesięcznych SO₂ w powietrzu.

TRENDS IN ATMOSPHERIC SO₂ DATA IN IZERY MOUNTAINS

Time series analysis of monthly and daily SO₂ data were considered for the detection of trends in SO₂ due to possible effect of the emission abatement strategy in the Black Triangle region. Using a time series model, the main components were extracted from the original SO₂ time series. Based on SO₂ monitoring data from Czerniawa in Izery Mountains in Poland over the period 1993–1998, our findings showed evidence of declining trends in SO₂. A mean annual change of 14.1% was recorded in a 6-year record. It has also appeared that the exponential smoothing which considers a seasonal component and trends provided a reasonable fit to monthly mean SO₂ values.

WPROWADZENIE

Wśród publikowanych danych na temat ograniczenia emisji zanieczyszczeń w Regionie Czarnego Trójkąta istnieją tylko dane dotyczące elektrowni węglowych przy granicy polsko-niemieckiej [8]. W obu tych krajach opracowano

programy restrukturyzacji zakładów, przy czym niektóre obiekty zamknięto. Dlatego też interesująca wydaje się ocena, czy ograniczenia emisji mają swoje odzwierciedlenie w zmniejszeniu stężeń SO_2 w powietrzu.

Opracowanie tendencji zmian stężeń zanieczyszczeń w powietrzu wiąże się z koniecznością prowadzenia pomiarów w systemie ciągłym przez dłuższy okres (kilku lat). W Górach Izerskich, w których po raz pierwszy w Polsce zauważono zjawisko masowego wymierania lasów, istnieją dwie automatyczne stacje monitoringu powietrza, z których jedna, w Czerniawie, spełnia powyższe wymagania. W Czerniawie dane zbierane są od 1993 roku, natomiast na Rozdrożu Izerskim dopiero od 1996 roku.

W pracy, na podstawie analizy serii czasowych średniodobowych i średnich miesięcznych stężeń dwutlenku siarki w powietrzu, wyodrębniono trend i cykl zmian długookresowych oraz wskaźniki sezonowe. Podjęto również próbę symulacji przebiegu średnich miesięcznych oraz średnich dobowych stężeń SO_2 za pomocą prostego wyrównania wykładniczego.

METODYKA BADAŃ

Stacja monitoringu atmosfery w Czerniawie podlega Terenowemu Inspektoratowi Ochrony Środowiska w Jeleniej Górze i zlokalizowana jest w Górach Izerskich na wysokości 645 m n.p.m. między Świeradowem Zdrój a Czerniawą Zdrój. Pomiary stężeń zanieczyszczeń prowadzone są w sposób ciągły od 1993 roku za pomocą automatycznych mierników firmy Environment. Dane pomiarowe, tzn. średnie stężenia godzinne, zbierane są w formacie tekstowym.

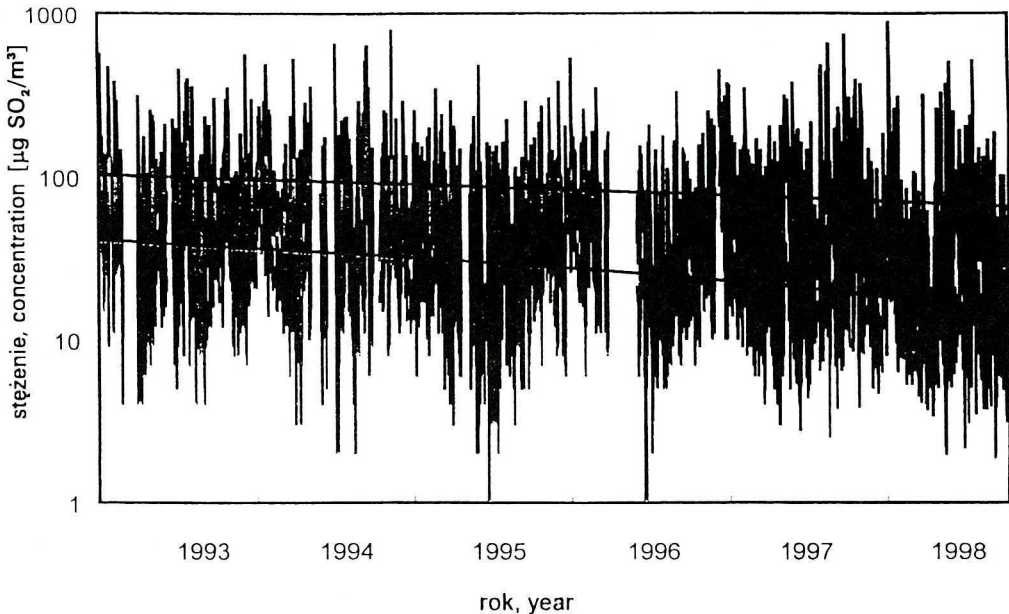
Po konwersji danych i ich uporządkowaniu wyliczono dla każdej doby stężenia minimalne, maksymalne, średnie stężenia dobowe, a także stężenia średnie miesięczne i średnie roczne. Dodatkowo wyznaczono maksymalne i minimalne wartości stężeń średnich dobowych SO_2 w poszczególnych miesiącach, uzyskując w ten sposób obraz zmienności stężeń w kolejnych miesiącach. Zinventaryzowano także braki danych w bazie z całego okresu. W analizie nie brano pod uwagę tych dni lub miesięcy, dla których liczba akceptowalnych wyników pomiarów do obliczania średniej nie przekraczała 70% liczby wyników możliwych do uzyskania.

Średnie miesięczne stężenia SO_2 oraz 98 percentylu w każdym roku obliczono na podstawie uporządkowanego zbioru średnich stężeń dobowych. Średnie roczne stężenia SO_2 obliczono na podstawie uzupełnionego zbioru średnich stężeń miesięcznych, po przypisaniu poszczególnym miesiącom wag – w zależności od liczby dni w danym miesiącu. W analizie uwzględniono średnie roczne stężenia SO_2 oraz 98 percentylu dla lat 1990–1992, pochodzących z bazy danych utworzonej na podstawie pomiarów manualnych [7].

WYNIKI BADAŃ I ICH DYSKUSJA

SERIE CZASOWE STĘŻEŃ ZANIECZYSZCZEŃ W POWIETRZU

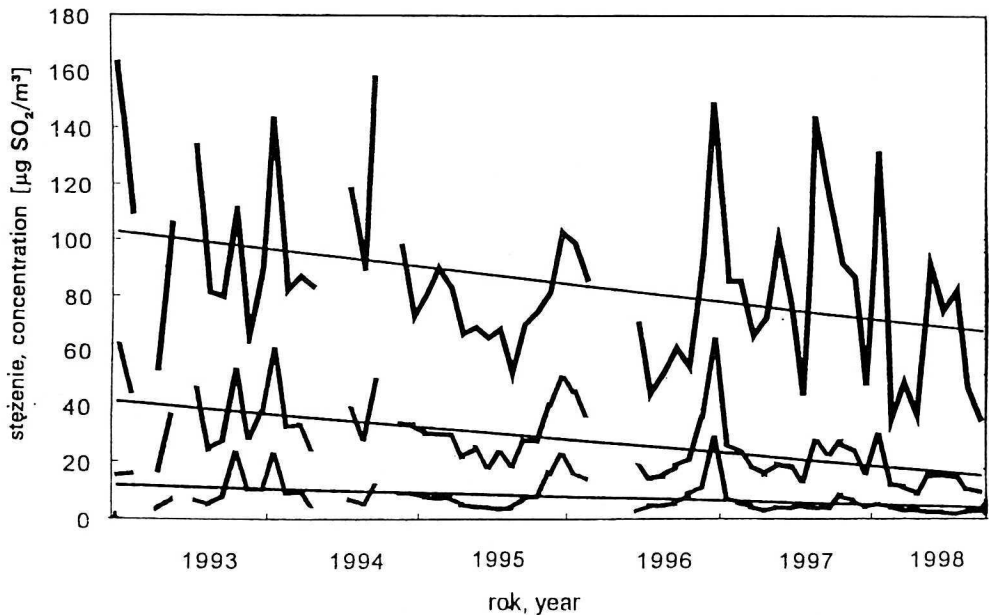
Na rysunku 1 zamieszczono przebieg czasowy średnich dobowych stężeń SO₂ oraz stężeń maksymalnych (1-godzinnych) dobowych zarejestrowanych w okresie luty 1993 roku – październik 1998 roku. Analizując przedstawione dane, zauważyć można wyraźne obniżenie się stężeń średnich dobowych.



Rys. 1. Przebieg stężeń średnich dobowych SO₂ i maksymalnych 1-godzinnych w dobie w Czerniawie w latach 1993–1998. Linia prosta odpowiada oszacowanemu trendowi liniowemu

Time plot of the daily averages and daily maximum 1-h SO₂ concentrations in Czerniawa from 1993 to 1998. The straight line represents the estimated linear trend

Podobną tendencję rejestrowano w przypadku stężeń średnich miesięcznych (Rys. 2). Wszystkie stężenia podlegały wyraźnym wahaniom sezonowym, tj. najwyższe stężenia były notowane w okresach zimowo-wiosennym i jesienno-zimowym. Wzrost stężeń w tych okresach jest powodowany z jednej strony zwiększonym zużyciem nośników energii stosowanych do celów grzewczych, z drugiej zaś pogorszeniem się warunków rozprzestrzeniania zanieczyszczeń w atmosferze w związku z przewagą stanów równowagi obojętnej lub stałej.



Rys. 2. Przebieg stężeń średnich miesięcznych SO_2 , minimalnych i maksymalnych dobowych w miesiącu w Czerniawie w latach 1993–1998. Linia prosta odpowiada oszacowanemu trendowi liniowemu

Time plot of the monthly averages, monthly maximum and minimum daily SO_2 concentrations in Czerniawa from 1993 to 1998. The straight line represents the estimated linear trend

STĘŻENIA ŚREDNIE MIESIĘCZNE

Dane surowe (z brakami) nie spełniały testów normalności, a analiza wykazała możliwość przybliżenia ich za pomocą rozkładów log-normalnego i gamma. Do dalszych badań dane uzupełniono metodą interpolacji. Dane po uzupełnieniu można było już przybliżyć rozkładem normalnym (spełniony test normalności K-S), chociaż lepsze dopasowanie osiągnięto dla rozkładów log-normalnego i gamma.

Dopasowanie rozkładów probabilistycznych do zbioru danych pozwala na szybkie określanie częstości przekraczania wybranych wartości stężeń zanieczyszczeń. W celu ich określenia można wprawdzie obliczyć wybrane percentyle bezpośrednio ze zbioru danych, jednak – ze względu na często występujące braki w bazach danych – metoda ta nie zawsze jest w pełni wiarygodna.

Jako rozkład miarodajny do oceny częstości przekroczeń wybrano rozkład log-normalny. Na podstawie rozkładów log-normalnych o określonych parametrach można było stwierdzić np., że 98% średnich miesięcznych stężeń SO_2 mieściło się w zbiorze danych surowych poniżej $39,5 \mu\text{g SO}_2/\text{m}^3$, a w zbiorze uzupełnionym – poniżej $39,3 \mu\text{g SO}_2/\text{m}^3$. Wartość 98 percentylu obliczona dla zbioru stężeń średnich miesięcznych wynosiła natomiast $61 \mu\text{g SO}_2/\text{m}^3$. Duże rozbieżności w uzyskanych wartościach (35%) mogą świadczyć o bezużyteczności stosowania 98 percentylu dla tego czasu uśredniania stężeń.

Analiza widmowa

Analiza widmowa (Fouriera) służy do badania struktury harmonicznej szeregu czasowego, tj. do identyfikacji wahań okresowych o różnej długości fali. Jej celem jest dekompozycja oryginalnego szeregu na podstawowe funkcje sinus i cosinus o różnych częstotliwościach. Jeżeli stwierdzona zostanie duża korelacja funkcji sinusoidalnych z obserwowanymi danymi, to wówczas można wnioskować, że w danych istnieje wyraźna okresowość o danej częstotliwości.

Analizie widmowej poddano szereg czasowy średnich miesięcznych stężeń SO₂ w powietrzu. Wyniki w postaci 5 największych wartości periodogramu i gęstości widmowej w porządku malejącym przedstawiono w tabeli 1. Wyraźnie widać, że największa wartość periodogramu odpowiada częstotliwości 0,083 (lub okresowi 12 – jedna obserwacja wypełnia 1/12 pełnego cyklu, a pełny cykl kończy się co 12 obserwacji). Tak więc w tym szeregu występuje okres o długości 12 miesięcy.

Tabela 1. Wartości periodogramu i gęstości widmowej szeregu czasowego SO₂
Periodogram values and spectral density of the original SO₂ time series

Obs. numer No obs.	Częstość Frequency	Okres Period	Periodogram	Gęstość Density
14	0,083	12,0	814,349	623,916
13	0,077	12,9	583,209	516,417
15	0,089	11,2	455,823	451,451
18	0,107	9,3	259,607	195,232
29	0,173	5,8	217,409	157,638

Dekompozycja i korekcja sezonowa

Szereg czasowy składa się z czterech różnych składników: 1) składnika sezonowego, 2) składnika trendu, 3) składnika cyklicznego oraz 4) składnika losowego, błędu lub nieregularności. Składnik sezonowy pojawia się w regularnych (sezonowych) odstępach, podczas gdy czynniki cykliczne mają zwykle dłuższy, niekiedy zmieniający się okres. Trend i wahania cykliczne są często łączone w składnik wahań długookresowych i trendu (trend – cykl). Do analizy szeregu czasowego wybrano metodę Census II [5, 6], która pozwala na uwzględnianie zróżnicowania długości miesiący, modyfikację wartości ekstremalnych przez stosowanie „zasad kontroli statystycznej” i poprawki wielokrotne. Do dekompozycji sezonowej zastosowano model sezonowości multiplikatywnej, tzn. założono, że wielkość wahań sezonowych jest zmienna w zależności od ogólnego poziomu zjawiska (są one proporcjonalne do trendu). Uzasadniono to następująco:

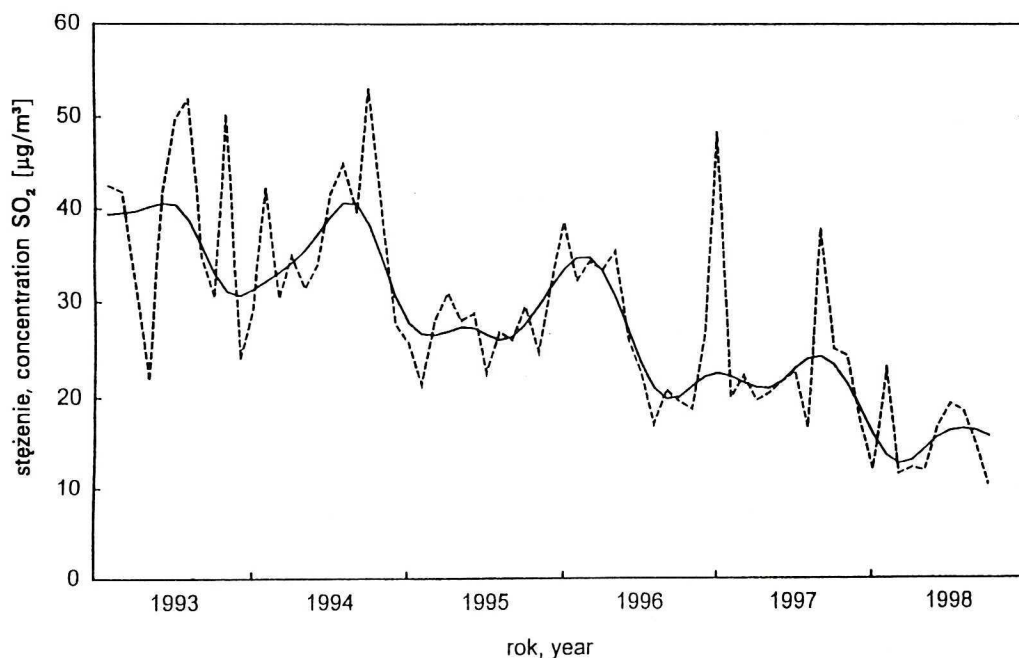
– założono spadkową tendencję zmian stężeń SO₂ (trend) spowodowaną ograniczaniem emisji zanieczyszczeń przez elektrownie;

– na podstawie analizy przebiegów czasowych stężeń stwierdzono fluktuacje sezonowe – wzrost stężeń SO_2 w okresach jesienno-zimowych i zimowo-wiosennych wywołany zarówno wzmożoną emisją z elektrowni, jak i niską emisją;

– według informacji uzyskanych z Urzędu Miasta i Gminy Świeradów Zdrój, od 1995 roku w Świeradowie i Czerniawie Zdrój prowadzi się modernizacje lokalnych kotłowni, mające na celu ograniczenie niskiej emisji zanieczyszczeń (przechodzenie na ogrzewanie gazowe).

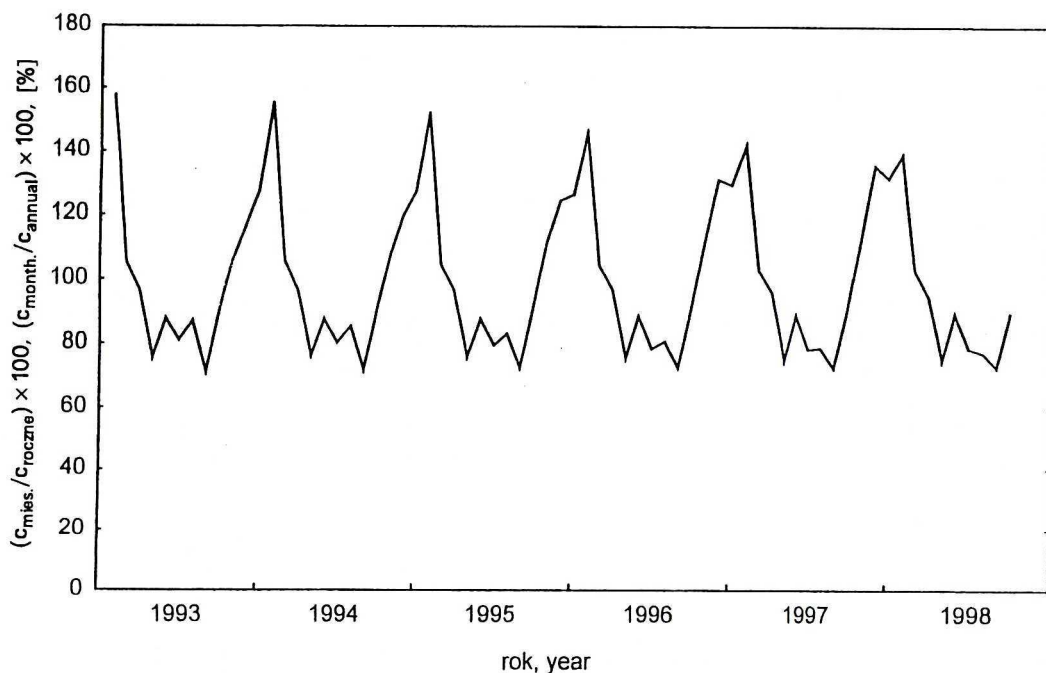
Wobec powyższego założono osłabianie fluktuacji sezonowych wraz z opadającą linią trendu. W tym przypadku zatem wskaźniki sezonowości są stałe dla poszczególnych lat, ale po wymnożeniu przez wyznaczony trend dają różne wartości wahań dla kolejnych lat.

Wyodrębniony trend i cykl zmian długookresowych oraz szereg skorygowany i wskaźniki sezonowe średnich miesięcznych stężeń SO_2 przedstawiono na rysunkach 3 i 4.



Rys. 3. Szereg skorygowany sezonowo oraz trend i cykl zmian długookresowych
Seasonally adjusted time series and the trend cycle

Ponieważ założono sezonowość multiplikatywną, poszczególne składowe szeregi zostały wyodrębnione z niego m.in. w operacjach dzielenia. Dlatego wskaźniki sezonowe podane są jako wartości procentowe. Uzyskane w analizie wskaźniki sezonowe wyraźnie sugerują występowanie wyższych wartości stę-



Rys. 4. Wskaźnik sezonowy w szeregu czasowym średnich miesięcznych stężeń SO₂
Seasonal component in SO₂ time series data

żeń SO₂ w okresach zimowym oraz przejściowych – jesienno-zimowym i zimowo-wiosennym. Ze skojarzenia danych z rysunków 4 i 3 wynika, że choć względna amplituda zmian sezonowych jest stała w czasie, to jednak wahania sezonowe zmieniają się zgodnie z trendem. Multiplikatywny charakter sezonowości, który został założony, okazał się więc słuszny.

Wyodrębniony z szeregu czasowego danych składnik losowy nie wykazywał normalności, co świadczyłoby o niedoskonałości modelu. Dalsza analiza potwierdziła jednak, że regularna składowa składnika losowego szeregu czasowego była mało istotna. Uzyskane miary opisowe składników szeregu czasowego danych przedstawiono w tabelach 2–4. W tabeli 2 uwidoczniła jest tendencja spadkowa stężeń w każdym miesiącu (z roku na rok). Oszacowany okres dominacji cyklicznej (MCD – ang. *month for cyclical dominance*), czyli średnia rozpiętość (w miesiącach), przy której zmiany składnika losowego są równe zmianom składnika trendu i wahań długookresowych, wynosił MCD = 6 miesięcy.

W tabeli 3 zestawiono średnie procentowe zmiany i ich odchylenia standardowe dla składnika trendu. Wraz z wydłużaniem rozważanego okresu wzrasta ujemna średnia procentowa zmiana składnika trendu – od –1,16% dla 1 miesiąca do –14,07% dla roku. W tabeli 4 przedstawiono wskaźniki sezonowości dla końca roku 1998 i dla roku 1999.

Tabela 2. Średnia ruchoma, okres dominacji cyklicznej MCD = 6 miesięcy
 Moving averages, month for cyclical dominance MCD = 6 months

	Styczeń January	Luty February	Marzec March	Kwiecień April	Maj May	Czerwiec June	Lipiec July	Sierpień August	Wrzesień Sept.	Paździer. Oct.	Listopad Nov.	Grudzień Dec.	Razem Sum
$\mu\text{g SO}_2/\text{m}^3$													
1993					38	40	39	38	43	40	37	35	311
1994	34	35	32	34	36	36	38	41	42	41	38	34	441
1995	32	29	27	27	27	28	27	27	26	27	30	30	337
1996	32	32	34	33	31	28	26	24	21	21	25	26	332
1997	26	26	26	25	21	21	23	24	25	24	22	23	287
1998	19	17	15	15	16	15	16	15					127
Średnia Average	29	28	27	27	28	28	28	28	31	31	30	30	

Tabela 3. Oszacowane trendy (w % zmian w poszczególnych okresach) wraz z odchyleniem standardowym

Trend estimates (in % change per periods) and standard deviations

Okres (miesiące) Period (months)	Trend – średnia Trend – average	Trend – odchylenie standardowe Trend – standard deviation
	%	
1	-1,16	5,87
2	-1,99	11,04
3	-2,69	15,24
4	-3,46	18,37
5	-4,46	20,46
6	-5,80	21,62
7	-7,43	22,01
9	-10,73	21,71
11	-13,08	20,88
12	-14,07	19,91

Wyrównywanie wykładnicze

Wyrównywanie wykładnicze stało się bardzo popularne jako metoda prognozowania dla wielu typów danych szeregów czasowych [5, 6]. I chociaż metody rozwinięte przez Boxa i Jenkinsa [2] zyskały większą popularność w prognozowaniu przebiegów czasowych stężeń zanieczyszczeń w powietrzu [1, 3, 4, 9, 10], to jednak często okazuje się, że już proste wyrównanie wykładnicze może dostarczyć trafnych prognoz.

Prosty model szeregu czasowego polega na rozważeniu każdej obserwacji jako składającej się ze stałej (b) i składnika losowego (ϵ), to jest: $X_t = b + \epsilon_t$. Wyznaczenie stałej b , która może się jednak powoli zmieniać w czasie, polega na obliczeniu pewnego rodzaju średniej ruchomej, gdzie starszym obserwacjom zostają przypisane wykładniczo mniejsze wagi. Proste wyrównanie wykładnicze dokonuje takiego ważenia (wprowadzając do analizy tzw. parametr wygładzania α).

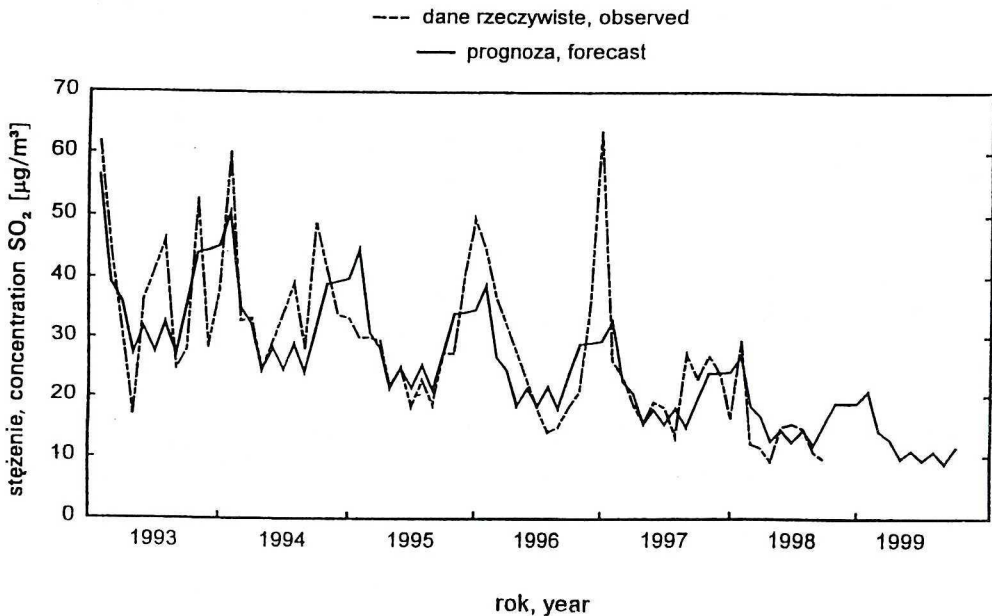
Oprócz prostego wyrównania wykładniczego rozwinięte zostały bardziej złożone modele, przystosowane do szeregów czasowych ze składnikami sezonowymi i trendem. W analizie szeregu czasowego średnich miesięcznych stężeń SO₂ zastosowano model potrójnego wyrównywania wykładniczego (metodę Wintera), w której uwzględniono zarówno składnik trendu liniowego (niezależnie wyrównywany za pomocą parametru γ), jak i multiplikatywny składnik sezonowy (wyrównywany za pomocą parametru λ). W analizie zastosowano sieciowe poszukiwanie najlepszych parametrów: wygładzania (α), wyrównywania sezonowego (λ) i wyrównywania trendu (γ). Najlepszy okazał się model potrójnego wyrównywania wykładniczego – z parametrami: $\alpha = 0$, $\lambda = 0$, $\gamma = 0$. Wartości przyjętych parametrów oznaczają, że wszystkie wartości wygładzane są równe początkowej wartości wygładzanej szeregu, zmodyfikowanej

Tabela 4. Wskaźniki sezonowości na rok 1999
Seasonal components for 1999

	Styczeń January	Luty February	Marzec March	Kwiecień April	Maj May	Czerwiec June	Lipiec July	Sierpień August	Wrzesień Sept.	Paździer. Oct.	Listopad Nov.	Grudzień Dec.	Średnia Average
	%												
1998											112	138	125
1999	133	138	103	94	75	90	79	76	73	89			95

za pomocą składnika trendu stałego dla wszystkich wartości szeregu czasowego oraz niezmiennego składnika sezonowego. Wyniki modelowania przedstawiono na rysunku 5.

Za pomocą wyrównywania wykładniczego uzyskano prognozę na 12 miesięcy ze średnim absolutnym błędem prognozy wynoszącym $\pm 21\%$. Wyodrębnione z modelu reszty spełniały testy normalności, co świadczyło o poprawności przyjętego modelu.



Rys. 5. Średnie miesięczne stężenia SO₂ w powietrzu w Czerniawie obserwowane i przewidywane
Forecast vs observed SO₂ concentrations (monthly averages) in Czerniawa from 1993 to 1999

STĘŻENIA ŚREDNIE DOBOWE

W tym przypadku zarówno dane surowe (z brakami), jak i dane uzupełnione metodą interpolacji nie wykazywały normalności. Zbiory danych surowych i po uzupełnieniu można było przybliżyć tylko rozkładem log-normalnym.

Na podstawie rozkładów log-normalnych o określonych parametrach stwierdzono, że 98% wartości średnich dobowych stężeń SO₂ mieściło się w zbiorze danych surowych poniżej 83 µg SO₂/m³, a w zbiorze uzupełnionym — poniżej 91 µg SO₂/m³. 98 percentyl wynosił w tym przypadku 103 µg SO₂/m³. Rozbieżności w uzyskanych wartościach (od 12 do 20%) były mniejsze niż dla stężeń średnich miesięcznych, świadczyły jednak o znacznym wpływie liczby danych na poziom 98 percentyla.

W tabeli 5 przedstawiono średnie roczne stężenia SO_2 w powietrzu oraz 98 percentyl stężenia średniego dobowego wyznaczony dla Czerniawy i kolejnych lat od 1990 do 1998. Dopełnienie do 100% wartości 98 percentyla określa częstości przekraczania danej wartości stężenia. Oznacza to, że w 1990 roku przez 2% czasu w roku przekraczane były stężenia SO_2 – $173 \mu\text{g}/\text{m}^3$, a w 1996 roku odpowiednio już tylko $82 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Mimo iż należy spoglądać na te dane krytycznie, to jednak wyraźny spadek poziomu stężeń średniorocznych może świadczyć o zmniejszeniu się emisji SO_2 , a więc i o efektywności zastosowanych strategii ograniczenia emisji zanieczyszczeń w rejonie Czarnego Trójkąta.

Tabela 5. Średnie roczne stężenia SO_2 (S_a) i 98 percentyl (S_{98}) średnich dobowych stężeń SO_2 w powietrzu w Czerniawie

Annual averages of SO_2 (S_a) and 98 percentile (S_{98}) of daily SO_2 averages for Czerniawa monitoring station

Rok Year	Średnie roczne stężenia SO_2 Annual average SO_2 concentr.	98 percentyle stężeń SO_2 98 percentyles of SO_2 conc.
	$\mu\text{g SO}_2/\text{m}^3$	
1990	48	173
1991	45	198
1992	38	182
1993	35	111
1994	37	126
1995	27	86
1996	29	82
1997	25	105
1998	14	49

Analiza widmowa

Celem analizy było, podobnie jak poprzednio, wyodrębnienie potrzebnego do dalszych badań opóźnienia sezonowego. Okazało się jednak, że nie można dla tych danych wyodrębnić dominującego okresu zmienności. Uwidocznily się liczne silne oscylacje o okresach około 2,5 miesiąca, pół roku, 10 miesięcy i 2 lat. Ostatecznie do dalszej analizy zaproponowano opóźnienie sezonowe o wartości 300 dób.

Dekompozycja i korekcja sezonowa

Z racji nietypowego dla dekompozycji sezonowej charakteru danych (sezon = doba) zastosowano klasyczną dekompozycję sezonową Census I [5, 6]. Przyjęto opóźnienie sezonowe o wartości 300 dób i sezonowość multiplikatywną. Uzyskany wygładzony szereg trendu i wahań długookresowych poddano dalszej dekompozycji. Dekompozycję powtórzono 8 razy dla kolejno wyodrębnianych składników trendu. Składnik losowy wyróżniony w dekompozycji klasycznej średnich stężeń dobowych SO_2 nie wykazywał normalności i nie udało się go przybliżyć żadnym z dostępnych rozkładów.

WNIOSKI

Wyniki analiz serii czasowych średnich dobowych i średnich miesięcznych stężeń dwutlenku siarki w powietrzu potwierdzają utrzymywanie się tendencji spadkowej stężeń SO₂ na obszarze, dla którego reprezentatywne są pomiary ze stacji w Czerniawie. Wartości stężeń średnich dobowych SO₂ w Czerniawie wykazywały dużą amplitudę zmian i wyodrębnienie w tym przypadku wyraźnego składnika trendu okazało się trudne. Dlatego zdecydowano, iż w analizie uwzględniony został czas uśredniania o długości 1 miesiąca.

Wykorzystując model serii czasowej dla średnich miesięcznych stężeń SO₂ oceniono różne składniki szeregu i wyodrębniono trend i cykl zmian długookresowych stężeń. Średnia roczna zmiana stężeń wynosiła (-)14,1% w okresie 1993–1998.

Sezonowość zmian wartości średnich miesięcznych stężeń o okresie około 1 roku świadczyła o dużym wpływie niskiej emisji na zawartość SO₂ w powietrzu, zważywszy na równomierną, w aspekcie sezonów, pracę dużych źródeł emisji, takich jak elektrownie. Multiplikatywny charakter sezonowości, który został założony, ale okazał się słuszny, wskazał na znaczący wpływ prac modernizacyjnych w Świeradowie i Czerniawie Zdrój, mających na celu ograniczenie niskiej emisji, na poziom stężeń SO₂ w tym rejonie.

Zastosowany model wyrównywania wykładniczego uwzględniający składnik sezonowy i trend dostarczył trafnych prognoz stężeń średnich miesięcznych SO₂ w powietrzu.

LITERATURA

- [1] Benarie M.M.: *Urban Air Pollution Modelling*, Macmillan, London 1980.
- [2] Box G.E.P., G.M. Jenkins: *Time series analysis: Forecasting and control*, Holden-Day, San Francisco 1976.
- [3] Finzi G., P. Zannetti, G. Fronza, S. Rinaldi: *Real-time prediction of SO₂ concentration in the Venetian Lagoon Area*, Atmosph. Environ., **13**, 1249–1255 (1979).
- [4] Finzi G., G. Tebaldi: *A mathematical model for air pollution forecast and alarm in an urban area*, Atmosph. Environ., **16**, 2055–2059 (1982).
- [5] Makridakis S.G., S.C. Wheelwright, V.E. McGee: *Forecasting: Methods and applications* (2nd ed.), Wiley, New York 1983.
- [6] Makridakis S.G., S.C. Wheelwright: *Forecasting methods for managements* (5th ed.), Wiley, New York 1989.
- [7] PIOŚ, Raport o stanie środowiska w województwie jeleniogórskim w 1993 roku. Biblioteka Monitoringu Środowiska, Jelenia Góra 1994.
- [8] Raport Polsko-Niemieckiej Komisji ds. Współpracy Sąsiedzkiej w Dziedzinie Ochrony Środowiska: Elektrownie i kopalnie po obu stronach granicy polsko-niemieckiej, Berlin/Warszawa 1995.
- [9] Reinsel G., G.C. Tiao, M.N. Wang, R. Lewis, D. Nychka: *Statistical analysis of stratospheric ozone data for the detection of trends*, Atmosph. Environ., **15**, 1569–1577 (1981).
- [10] Zinsmaister A.R., T. Redman: *A time series analysis of aerosol composition measurements*, Atmosph. Environ., **14**, 201–215 (1980).