

УДК 551.510

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЭМИССИЙ В ГОРОДЕ ПО СКОРОСТИ ИЗМЕНЕНИЯ ИНТЕГРАЛЬНОГО СОДЕРЖАНИЯ ПРИМЕСЕЙ В ПОГРАНИЧНОМ СЛОЕ АТМОСФЕРЫ

© 2022 г. С. А. Захарова^{1,*}, член-корреспондент РАН Н. Ф. Еланский^{2,**}, Я. М. Веревкин^{2,***}, М. А. Давыдова^{1,****}

Поступило 08.12.2021 г.

После доработки 27.12.2021 г.

Принято к публикации 11.01.2022 г.

Предложен новый подход к задаче определения плотности эмиссионных потоков антропогенных примесей от распределенных городских источников по скорости роста интегрального содержания примеси в вертикальном столбе атмосферы в утренние часы. Метод основан на использовании сингулярно возмущенной модели типа реакция–диффузия, описывающей вертикальное распределение примеси (оксида углерода) над городом, в сочетании с данными измерений содержания СО в атмосфере над Москвой. Рассчитан вертикальный профиль коэффициента турбулентной диффузии по данным измерений на телевизионной башне “Останкино” и восстановлены вертикальные профили концентрации СО для разных сезонов. С использованием модельных данных рассчитаны среднегодовые эмиссии СО со всей территории г. Москвы. Достоверность полученных значений эмиссий подтверждают сравнения с данными инвентаризации выбросов.

Ключевые слова: загрязнение воздуха, турбулентная диффузия, эмиссии антропогенных примесей, коэффициент турбулентной диффузии, эмиссии оксида углерода

DOI: 10.31857/S268673972205019X

ВВЕДЕНИЕ

Практически для всех крупных городов мира актуальной задачей является улучшение качества воздуха. Несмотря на повсеместно действующие системы мониторинга состава атмосферы и развитие численных методов, используемых для усвоения данных наблюдений, до сих пор остаются нерешенными две основные задачи: разработка системы квотирования выбросов от промышленных предприятий и прогнозирование образования на территории города и в его шлейфах экстремальных экологических ситуаций, способных оказать неблагоприятное воздействие на состояние окружающей среды и здоровье людей. Созданные по аналогии с моделями прогноза по-

годы химико–транспортные модели в принципе позволяют реконструировать поля газовых и аэрозольных примесей в атмосфере городов и целых регионов, идентифицировать их источники, оптимизировать систему квотирования выбросов и прогнозировать изменения состава приземного воздуха на 1–2 сут вперед. Но как показывает опыт, в частности, полученный в ходе многолетних международных компаний в Мехико и Париже [1], результаты численного моделирования пока не могут использоваться для практического применения из-за большой степени неопределенности, особенно в случае значительных изменений метеорологических условий и режима работы объектов городской инфраструктуры.

Основным источником неопределенности результатов в расчетах является недостаточно точная используемая в моделях информация о величине, составе, пространственном распределении и временной изменчивости эмиссий химически активных примесей в атмосфере, попадающих с городской территории. Задаваемые в моделях эмиссии берутся из баз инвентаризационных данных, наиболее полные из которых рассчитаны для 40 видов источников и только для ограниченного числа основных загрязняющих веществ [2]. В базы данных вносятся часто несогласующиеся

¹Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова, Физический факультет, Москва, Россия

²Институт физики атмосферы им. А.М. Обухова Российской академии наук, Москва, Россия

*E-mail: sa.zakharova@physics.msu.ru

**E-mail: n.f.elansky@mail.ru

***E-mail: yarver@gmail.com

****E-mail: m.davydova@physics.msu.ru

результаты лабораторных и теоретических исследований, и при этом используются различные косвенные оценки состояния и режима работы источников. Как результат, расхождения в оценках эмиссий ключевых загрязняющих примесей в европейских городах по разным инвентаризациям достигают 200–400% [2], а в Москве, например, для окислов азота ($\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$) – 300–400% и для метана (CH_4) – 400–800% [3].

Многообразие источников и большое количество вовлеченных в химическую трансформацию газов и видов аэрозолей сильно затрудняют, а часто делают невозможным, проведение прямых измерений эмиссий от каждого конкретного источника. В работах [1, 3, 4] предложен и успешно реализован для Мехико и Москвы метод измерений эмиссий окиси углерода (CO) по скорости ее накопления в вертикальном столбе атмосферы в утренние часы. Метод позволяет получать удельную плотность потока примесей с единицы площади в окрестности места наблюдения. Недостатком метода является необходимость проведения дистанционных спектроскопических измерений общего содержания примеси в толще атмосферы, что для большинства химически активных соединений и, в особенности, летучих органических соединений представляет собой практически нерешаемую задачу. Кроме того, такие измерения могут проводиться только в солнечную погоду, на их результаты сильно влияют городская аэрозольная дымка и изменчивость содержания примеси в свободной тропосфере и стратосфере. Другой подход к оценке эмиссий – применение бокс-модели для усвоения данных наблюдений приземной концентрации примесей на всей сети городских станций и расчета содержания примеси в проходящей через город воздушной массы – представлен в [3]. Но в этом случае можно получить только среднегодовые суммарные по всей территории города значения эмиссий.

В настоящей работе предложен метод определения плотности эмиссионных потоков по скорости изменения содержания примесей в приземном слое атмосферы (ПСА), рассчитанных с помощью сингулярно возмущенных моделей типа реакция–диффузия, описывающих распределения примесей по вертикали [5], и данных наблюдений концентраций примесей на станциях сети Мосэкомониторинга (МЭМ). Применение данного метода позволяет получать ежедневные эмиссии консервативных и химически активных примесей в окрестности каждой станции (количество станций достигло 56 в 2020 г.), необходимого для определения и прогнозирования качества воздуха. Использование численно-асимптотического подхода в сочетании с натурными данными доказало свою эффективность для решения задач переноса консервативной и химиче-

ски активной примеси от локального антропогенного источника [6, 7] а также при решении других обратных задач [8–10].

МЕТОДИКА ОПРЕДЕЛЕНИЯ ЭМИССИЙ

С целью определения плотности эмиссионных потоков примесей в атмосферу от распределенных городских источников и суммарной эмиссии от города в целом, может быть использован градиентный метод, применение которого основано на практически непрерывных измерениях вертикальных структур концентраций примесей над территорией города в период, когда происходит интенсивное накопление выбросов в ПСА. Обычно структура вертикального распределения примеси устанавливается с использованием данных наблюдений на высотных мачтах или с помощью шаров-зондов. В Москве круглосуточные измерения вертикальных профилей CO, NO, NO₂ и некоторых других малых примесей в течение многих лет ведутся на телевизионной башне (ТБ) “Останкино” на высотных уровнях 10, 130, 248 и 348 м, а на расположенной вблизи станции МЭМ измерения проводятся на стандартном “нулевом” уровне. Описание приборов и методов измерений представлено в [3]. Определяя изменение интегрального накопления примесей в ПСА в первые утренние часы активизации источников антропогенных выбросов, в частности, в районе “Останкино”, можно рассчитать плотность эмиссионного потока с единицы площади. Если основные источники примесей (транспорт, промышленные предприятия, коммунальные службы и жилой сектор) на территории города распределены равномерно, то плотность потоков можно экстраполировать на всю территорию и оценить интегральные эмиссии от города в целом. Как показал анализ осредненных за год данных измерений на сети станций МЭМ [11], перемешивание примесей в воздушном бассейне Москвы достигается в дневное время в течение 2–3 ч (в среднем за год), и допущение о равномерности распределения может быть использовано для оценки среднегодовых эмиссий от Москвы. На основании этого вывода в [4] рассчитаны среднегодовые эмиссии примесей от Москвы с использованием бокс-модели и данных измерений приземных концентраций.

Однако диагностические и прогностические модели требуют задания эмиссий с высоким пространственным и временным разрешением. В Москве заметного продвижения в этом направлении позволяет добиться использование диффузионной модели для восстановления вертикального распределения оксида углерода (CO) в ПСА по данным наблюдений на телевизионной вышке “Останкино” и на сети станций МЭМ [11]. Очевидно, что для оценки скорости накопления примеси в вертикальном столбе атмосферы и опреде-

ления высоты слоя перемешивания данных наблюдений на 4 уровнях недостаточно. Поскольку СО в данной ситуации можно считать консервативной примесью (время жизни СО в ПСА составляет около одного месяца), то непрерывные по высоте профили его концентрации можно рассчитывать с помощью диффузионной модели [5], не учитывая при этом функцию источника и полагая нижнее граничное условие в виде значения концентрации на уровне земли.

Диффузионная модель [5], используемая при решении обратной задачи восстановления вертикальных профилей коэффициента турбулентной диффузии и вертикального распределения консервативной примеси, имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} \frac{\partial c}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial z} \left(k(z,t) \frac{\partial c}{\partial z} \right), \quad z_0 < z < H(t) \quad t > 0, \\ c(z, 0) &= c^0(z), \quad z_0 \leq z \leq H(0), \\ c(z_0, t) &= c_1(t), \quad \frac{\partial c}{\partial z}(H(t), t) = 0, \quad t \geq 0, \end{aligned} \quad (1)$$

где $c(z, t)$ – концентрация вещества, $k(z, t) > 0$ – вертикальный коэффициент турбулентной диффузии, $c^0(z)$ – распределение концентрации в момент времени $t = 0$, $c_1(t)$ – распределение концентрации на высоте $z = z_0$, $H(t)$ – ширина АПС. Зависимостью коэффициента $k(z, t)$ от времени на временном интервале в несколько часов можно пренебречь, а в качестве границы $z = H(t)$ выбрать среднее значение \bar{H} функции $H(t)$ на указанном интервале.

В утренние часы в условиях устойчивой или нейтральной стратификации ПСА происходит интенсивное накопление примесей от источников, расположенных в окрестностях пункта наблюдений. Для минимизации влияния адвективного переноса примесей от удаленных источников на окраине и за пределами города, а также горизонтального турбулентного перемешивания, выбирались дни, когда скорость ветра не превышала 2.5 м/с. На основе численно-асимптотического подхода в сочетании с данными измерений концентрации оксида углерода на уровне земли и на четырех высотных уровнях получено решение обратной задачи по восстановлению коэффициента турбулентной диффузии путем использования параметризованного асимптотического приближения решения уравнения (1) в качестве решения прямой задачи (подробное описание алгоритма приведено в [5]). Валидация полученного таким образом распределения $k(z)$ проводится путем сравнения отклонений между данными наблюдений СО на 4 уровнях ТБ “Останкино” и данными, рассчитанными на основе использования асимптотического приближения

Таблица 1. Количество дней в Москве со скоростью ветра не более, чем 2.5 м/с в утренние часы

Год	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014
Кол-во дней	88	65	99	98	86	78	90	100

решения задачи (1) с восстановленным профилем $k(z)$. Найденный профиль $k(z)$ для устойчивой или нейтральной утренней стратификации ПСА может быть распространен на всю территорию города, так как величина коэффициента турбулентной диффузии в данных условиях в большей степени зависит от мезометеорологических условий, чем от городской инфраструктуры и состояния подстилающей поверхности. С использованием полученного вертикального профиля коэффициента турбулентной диффузии, данных измерений и асимптотического приближения решения задачи (1) восстановлен вертикальный профиль распределения оксида углерода в окрестности пункта наблюдений. Заметим, что в утренние часы (с 6.00 до 10.00 местного времени) из-за слабого прогрева поверхности земли верхняя граница слоя перемешивания не поднимается выше 348 м.

Для получения пространственного распределения эмиссий над территорией всего города использовались данные со всех станций, входящих в сеть МЭМ и модельные данные. Для анализа были выбраны только рабочие дни недели, поскольку в выходные и праздничные дни величина эмиссий довольно изменчива, и дней с выбранными метеорологическими условиями недостаточно для получения надежных оценок эмиссий. Основываясь на данных недельного цикла концентраций, переведенного в недельный цикл эмиссий, рассчитывались средние эмиссии за теплый (май–сентябрь) и холодный (октябрь–апрель) сезоны, а также среднегодовые их значения. В табл. 1 дано распределение количества дней со слабым ветром (не более, чем 2.5 м/с) в утренние часы (с 6.00 до 12.00) в Москве по годам по данным ближайшей к Останкино метеостанции ВДНХ [12].

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ

При восстановлении вертикального профиля коэффициента турбулентной диффузии использовались измерения на четырех высотных уровнях ТБ “Останкино” за период 2007–2014 гг. (без периода задымления города летом 2010 г.) на высотах: 0, 130, 248, 348 м. С целью определения пространственного распределения оксида углерода использовались данные с наземных станций МЭМ [11] и модельные данные, полученные на основе диффузионной модели (1).

Анализ сезонной изменчивости вертикального распределения СО показал, что характер рас-

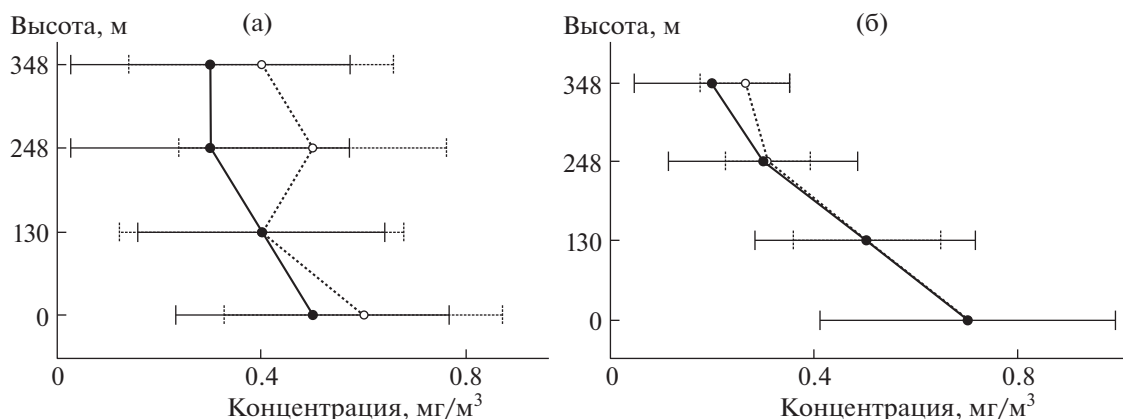


Рис. 1. Средние за период 2007–2014 гг. вертикальные профили концентрации СО на ТБ “Останкино” для теплого (толстая линия) и холодного (тонкая линия) периодов года (а). Сравнение средних значений концентрации СО по натурным (толстая линия) и модельным (тонкая линия) данным (б).

пределения – диффузионный (рис. 1а). В теплый период в утренние часы после разрушения температурной инверсии концентрация СО быстро уменьшается с высотой за счет вертикального перемешивания. В холодный период более продолжительные и частые приземные температурные инверсии способствуют накоплению примесей в приземном воздухе, а повышенные зимой выбросы СО из высоких труб 22 московских ТЭЦ могут приводить к увеличению его концентрации над инверсией, что отражается в осредненных профилях СО (рис. 1а) в виде увеличения концентрации с высотой в слое 130–248 м. Сравнение данных измерений и результатов восстановления вертикального распределения концентрации СО на основе использования диффузионной модели для ТБ “Останкино” приведено на рис. 1б. На ри-

сунке видно, что при выбранных условиях результаты расчетов хорошо согласуются с данными измерений.

В устойчивой малоподвижной воздушной массе в утренние часы (6–8:30 ч) верхняя граница перемешивания не достигает 348 м даже в летнее время, и накопление консервативной примеси в слое 0–348 м вызвано только эмиссиями от городских источников, расположенных в окрестности ТБ “Останкино”. На рис. 2 на участках графика 6:20–8:20 в теплый и 7:00–9:00 в холодный периоды отмечается линейный рост интегрального содержания СО в вертикальном столбе атмосферы, полностью обусловленный работой автотранспорта и других городских источников [1–4]. Но ближе к середине дня активизируются процессы перемешивания в атмосфере, приводящие к поступлению в приземный слой чистого воздуха с более высоких уровней, и начинает сказываться адвективный перенос из-за пределов Москвы, что ведет к снижению концентрации СО в приземном воздухе.

Зная скорость роста содержания СО в столбе в период времени, когда она определяется только действием городских источников, можно определить величину эмиссионного потока F. В табл. 2 приведены осредненные за 2007–2014 гг. значения эмиссионных потоков для теплого и холодного периодов года, полученные по диффузионной модели и по данным измерений на 4 уровнях ТБ “Останкино”. Результаты обработки данных измерений дают заметно большие значения потоков, чем рассчитанные по модели. Но надо учитывать их значительную погрешность, связанную с интерполяцией данных между 4 уровнями, на которых они были получены. Между сезонами различия в утренние часы также небольшие, что заметно и по рис. 2.

Таблица 2. Средние за период 2007–2014 гг., эмиссионные потоки СО в утренние часы в теплый и холодный периоды (F, мг/м² час) по данным измерений на 4 уровнях ТБ “Останкино” и рассчитанные по диффузионной модели, а также средние за период 2007–2017 гг. интегральные эмиссии СО за теплый и холодный периоды года со всей площади г. Москвы (Q, Ггр)

	Май–сентябрь	Октябрь–апрель
Время линейного роста	6:20–8:20	7:00–9:00
F, по данным измерений	36.3 ± 3.6	37.1 ± 4.2
F, по диффузионной модели	33.1 ± 0.8	33.7 ± 1.2
Q, по данным измерений	185 ± 15	237 ± 13
Q, по диффузионной модели	177 ± 11	227 ± 8

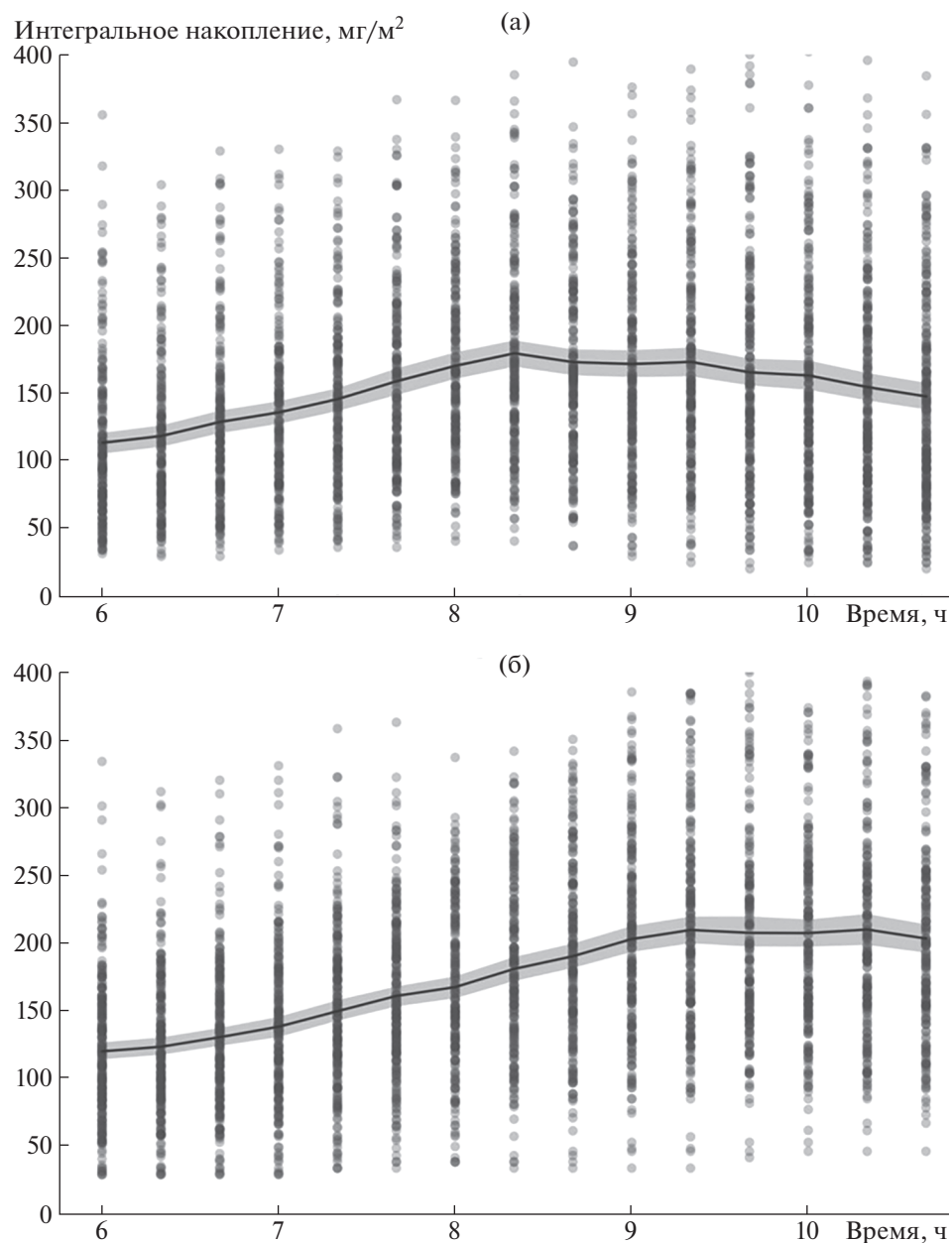


Рис. 2. Утренний временной ход интегрального содержания CO в слое 0–348 м на ТБ “Останкино”: (а) теплый период (май–сентябрь), (б) холодный период (октябрь–апрель) 2007–2014 гг., сплошная линия – среднее интегральное содержание примеси.

Чтобы проследить пространственное распределение эмиссий, были проведены расчеты по диффузионной модели для 20 станций Мосэкомониторинга, расположенных в разных районах Москвы и проводивших измерения CO [11]. Полученные потоки варьируют от 28 до 42 мг/м² ч для теплого и холодного периодов, но радиальное осреднение их говорит о малом изменении от центра города к окраинам. Таким образом, предполагая распределение источников CO, близкое к однородному, можно получить оценку инте-

гральных эмиссий от всего города Москвы в разные периоды года и среднегодовое значение. Для этого необходимо экстраполировать эмиссионные потоки в утренние часы на полные сутки и на всю территорию Москвы.

Для получения среднесуточных значений используется средний суточный ход концентрации CO в теплое и холодное время года и активность автотранспорта в течение суток – его основного источника. Эти оценки сделаны в [4]. Переводной коэффициент от среднечасового потока к

среднесуточному для Москвы равен 16.2 ± 1.6 . Примерно такое же значение получается из анализа инвентаризационных данных TNO [13]. Территория Москвы с прилегающей к Московской кольцевой дороге застроенной территорией Московской области примерно равна 1100 км^2 . Тогда интегральные от города эмиссии для теплого и холодного периодов будут равны 177 ± 11 и 227 ± 8 Ггр, соответственно, а среднегодовые эмиссии 404 ± 19 Ггр. Для сравнения среднегодовая эмиссия для Москвы, рассчитанная с применением бокс-модели по накоплению примеси в проходящей через город воздушной массе для периода 2005–2014 гг., равна 380 Ггр (см. [3]). Похожие значения для Москвы дают расчетные инвентаризации EDGAR v 4.2, EMEP и последняя версия EDGAR v 4.3.1, соответственно, 720, 430 и 440 Ггр в год [14]. Такое совпадение эмиссий обеспечивает валидацию предложенного метода.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Применение численно-асимптотического подхода к решению обратной задачи переноса примеси в сочетании с данными измерений на сети станций мониторинга атмосферы позволяет в короткое время получить достоверную информацию о вертикальных профилях коэффициента турбулентной диффузии и вертикальных профилях распределения ключевых примесей над городом с высоким пространственным и временным разрешением. На основе этого разработан универсальный метод определения плотности эмиссионных потоков, как антропогенного, так и природного происхождения, пригодный для использования на любых территориях. Метод опробован на решении задачи оценки эмиссий наиболее точно измеряемой консервативной примеси CO, преимущественным источником которого является автотранспорт, более или менее равномерно распределенный по всей территории Москвы. Однако метод применим для решения обратных задач переноса химически активных примесей таких, как озон, оксиды азота, летучие органические соединения и др. Особый интерес он представляет для оценки эмиссий от локализованных источников, в том числе для интерпретации данных наблюдений, проводимых на карбоновых полигонах.

БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы благодарны руководству и сотрудникам ГПБУ “Мосэкомониторинг” за предоставленный доступ к результатам многолетних наблюдений на сети станций мониторинга атмосферы и помощь в обработке и систематизации данных.

ИСТОЧНИКИ ФИНАНСИРОВАНИЯ

Работа выполнена при финансовой поддержке РНФ № 21-17-00210 (анализ данных) и РФФИ № 18-29-10080 (разработка модели).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Stremme W., Grutter M., Rivera C., Bezanilla A., Garcia A.R., Ortega I., George M., Clerbaux C., Coheur P.F., Hurtmans D., Hannigan J.W., Coffey M.T.* Top-down Estimation of Carbon Monoxide Emissions from the Mexico Megacity Based on FTIR Measurements from Ground and Space // *Atmospheric Chemistry and Physics*. 2013. V. 13. № 3. P. 1357–1376.
2. *Kuenen J.J.P., Visschedijk A.J.H., Jozwicka M., Denier van der Gon H.A.C.* Tnomacc ii Emission Inventory; a Multi-year (2003–2009) Consistent High-resolution European Emission Inventory for Air Quality Modeling // *Atmos. Chem. Phys.* 2014. № 14. P. 10963–10976.
3. *Elansky N.F., Ponomarev N.A., Verevkin Y.M.* Air Quality and Pollutant Emissions in the Moscow Megacity in 2005–2014 // *Atmospheric Environment*. 2018. V. 175. № 2. P. 54–64.
4. *Elansky N.F.* Air Quality and Co-emissions in the Moscow Megacity // *Urban Clim.* 2014. № 8. P. 42–56.
5. *Давыдова М.А., Еланский Н.Ф., Захарова С.А.* О новом подходе к задаче восстановления вертикального коэффициента турбулентной диффузии в пограничном слое атмосферы // *ДАН*. 2020. Т. 490. С. 51–56.
6. *Zakharova S.A., Davydova M.A., Lukyanenko D.V.* Use of Asymptotic Analysis for Solving the Inverse Problem of Source Parameters Determination of Nitrogen Oxide Emission in the Atmosphere // *Inverse Problems in Science and Engineering*. 2021. V. 29. № 3. P. 365–377.
7. *Давыдова М.А., Еланский Н.Ф., Захарова С.А., Постыляков О.В.* Применение численно-асимптотического подхода в задаче восстановления параметров локального стационарного источника антропогенного загрязнения // *Доклады РАН. Математика, информатика, процессы управления*. 2021. Т. 496. С. 34–39.
8. *Davydova M., Zakharova S.* Multidimensional Thermal Structures in the Singularly Perturbed Stationary Models of Heat and Mass Transfer with a Nonlinear Thermal Diffusion Coefficient // *Journal of Computational and Applied Mathematics*. 2021. V. 400. P. 113731.
9. *Lukyanenko D.V., Prigorniy I.V., Shishlenin M.A.* Some Features of Solving an Inverse Backward Problem for a Generalized Burgers Equation // *Journal of Inverse and Ill-Posed Problems*. 2020. V. 28. № 5. P. 641–649.
10. *Lukyanenko D.V., Borzunov A.A., Shishlenin M.A.* Solving Coefficient Inverse Problems for Nonlinear Singularly Perturbed Equations of the Reaction-diffusion-advection Type with Data on the Position of a Reaction Front // *Communications in Nonlinear Science and Numerical Simulation*. 2021. V. 99. 105824.
11. Мосэкомониторинг. 2021. <https://mosecom.mos.ru/>.
12. <https://rp5.ru/>.
13. TNO. 2020. url: <http://www.air.sk/tno/cepmeip/>.
14. <https://eccad3.sedoo.fr/>.

DETERMINATION OF EMISSIONS IN THE CITY BY THE RATE OF CHANGE OF THE INTEGRAL CONTENT OF IMPURITIES IN THE BOUNDARY LAYER OF THE ATMOSPHERE

**S. A. Zakharova^{a,#}, Corresponding Member of the RAS N. F. Elansky^{b,##},
Y. M. Verevkin^{b,###}, and M. A. Davydova^{a,####}**

^a*Lomonosov Moscow State University, Moscow, Russian Federation*

^b*A.M. Obukhov Institute of Atmospheric Physics, Russian Academy of Sciences, Moscow, Russian Federation*

[#]*E-mail: sa.zakharova@physics.msu.ru*

^{##}*E-mail: n.f.elansky@mail.ru*

^{###}*E-mail: yarver@gmail.com*

^{####}*E-mail: m.davydova@physics.msu.ru*

A new approach to the problem of determining the density of emission fluxes of the anthropogenic impurities from the distributed urban sources based on the growth rate of the integral content of impurities in the vertical column of the atmosphere in the morning hours is proposed. The method is based on the use of a singularly perturbed reaction-diffusion model describing the vertical distribution of an impurity (carbon monoxide) over a city, in the combination with measured data on the content of carbon monoxide in the atmosphere over Moscow. The vertical profile of the turbulent diffusion coefficient was calculated based on the measurements on the Ostankino television tower, and the vertical profiles of carbon monoxide concentration were reconstructed for different seasons. Using the model data, the total average annual CO emissions from the entire territory of the city of Moscow were calculated. The reliability of the obtained emission values is confirmed by comparisons with the emission inventory data.

Keywords: air pollution, turbulent diffusion, emissions of the anthropogenic impurities, turbulent diffusion coefficient, carbon monoxide emissions