

*Федеральное государственное образовательное учреждение
высшего профессионального образования
«Санкт-Петербургский государственный университет»*

199034, Санкт-Петербург, Университетская наб., д.7/9

У Т В Е Р Ж Д А Ю:

Проректор по НИР СПбГУ

_____ (*Горлинский И.А.*)

“ ___ ” _____ 2011 г.

М.П.

ОТЧЕТ

по научно-исследовательской работе за 2011 год

в рамках соглашения об информационном обмене и сотрудничестве между Комитетом по природопользованию, охране окружающей среды и обеспечению экологической безопасности и физическом факультетом Федерального государственного образовательного учреждения высшего профессионального образования «Санкт-Петербургский государственный университет» от 24.07.2007

*«Комплексный мониторинг пространственно-временных вариаций содержания
двуокиси азота (NO_2) и озона (O_3) в атмосфере»*

Исполнитель работ
к.ф.-м.н., с.н.с.

_____ (*Ионов Д.В.*)

**Санкт-Петербург
2011**

Отчет о выполненной работе в рамках соглашения об информационном обмене и сотрудничестве между Комитетом по природопользованию, охране окружающей среды и обеспечению экологической безопасности и физическом факультетом ФГУ ВПО “Санкт-Петербургский государственный университет” от 24.07.2007, с.29, рис.26, табл.6, источников 24, приложений нет.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: спутниковый мониторинг атмосферы, наземные спектроскопические измерения, двуокись азота, озон, антропогенное загрязнение атмосферы, тропосфера.

Объект исследования:

Данные долговременных дистанционных наземных и спутниковых спектроскопических измерений содержания двуокиси азота (NO_2) и озона (O_3) в атмосфере, данные регулярных прямых измерений приземных концентраций NO_2 в атмосфере Санкт-Петербурга, численные модели атмосферы.

Цель работы:

Исследование суточных, недельных, сезонных и долговременных многолетних вариаций содержания двуокиси азота (NO_2) в атмосфере мегаполиса, с оценкой возможного тренда, обусловленного ростом антропогенного загрязнения. Численное моделирование процесса распространения газового антропогенного загрязнения в приземном слое. Разработка системы мобильных спектроскопических измерений содержания NO_2 в тропосфере.

Новизна:

Проинтерпретированы данные наземных наблюдений за содержанием NO_2 и O_3 в атмосфере Санкт-Петербурга в 2004-2011 гг.; проведено сопоставление данных сумеречных наземных измерений содержаний NO_2 и O_3 в стратосфере, а также данных дневных измерений содержания NO_2 в тропосфере, с данными одновременных спутниковых измерений различной аппаратурой (GOME, SCIAMACHY, OMI). Продолжены регулярные измерения стратосферных содержаний NO_2 и O_3 , и тропосферного NO_2 (видимая область спектра), а также дневных стратосферных содержаний O_3 (УФ область спектра) с помощью аппаратуры OceanOptics. Проинтерпретированы результаты измерений инфракрасного фурье-интерферометра Bruker в 2009-2011 гг. (начаты в НИИФ СПбГУ весной 2009 года); получены новые дополнительные данные о содержании NO_2 в стратосфере, на основе наземных измерений прямого солнечного ИК излучения. Получены оценки вариаций содержания тропосферного NO_2 , как на основе данных наземных спектроскопических измерений НИИФ СПбГУ, так и данных дистанционного спутникового зондирования, а также прямых измерений приземных концентраций NO_2 автоматизированной системой мониторинга атмосферного воздуха. На основе данных многолетних спутниковых измерений GOME, SCIAMACHY и OMI (1995-2011) получена уточненная оценка положительного линейного тренда тропосферного NO_2 в районе Санкт-Петербурга, составляющая 4% за 10 лет. Изучено пространственное распределение источников загрязнения NO_x в Санкт-Петербурге на основе официальных данных инвентаризации выбросов. Рассмотрены примеры численного моделирования (дисперсионная модель HYSPLIT) и мобильных спектроскопических измерений (спектрометр OceanOptics) поля приземного NO_2 в Санкт-Петербурге.

Эффективность:

Совместное использование результатов наземного и спутникового дистанционного зондирования газового состава атмосферы, данных автоматизированных локальных наземных измерений и результатов регионального численного моделирования.

Область применения:

Долговременный региональный мониторинг уровня антропогенного загрязнения атмосферы вблизи мегаполиса.

СОДЕРЖАНИЕ

стр.

ВВЕДЕНИЕ	01
1. ДАННЫЕ ИЗМЕРЕНИЙ СОДЕРЖАНИЯ NO ₂ И O ₃ В СТРАТОСФЕРЕ	01
2. ДАННЫЕ ИЗМЕРЕНИЙ СОДЕРЖАНИЯ NO ₂ В ТРОПОСФЕРЕ (ПЕТЕРГОФ)	06
3. ДОЛГОВРЕМЕННЫЙ ТРЕНД СОДЕРЖАНИЯ NO ₂ В ТРОПОСФЕРЕ	11
4. ИЗМЕРЕНИЯ ТРОПОСФЕРНОГО СОДЕРЖАНИЯ NO ₂ В САНКТ-ПЕТЕРБУРГЕ	14
5. РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ИСТОЧНИКОВ ЗАГРЯЗНЕНИЯ NO _x В САНКТ-ПЕТЕРБУРГЕ	21
6. ИЗМЕРЕНИЯ ОБЩЕГО СОДЕРЖАНИЯ NO ₂ ПО ПРЯМОМУ ИК-ИЗЛУЧЕНИЮ	22
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	27
СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ	28

КОМПЛЕКСНЫЙ МОНИТОРИНГ ПРОСТРАНСТВЕННО-ВРЕМЕННЫХ ВАРИАЦИЙ СОДЕРЖАНИЯ ДВУОКИСИ АЗОТА (NO₂) И ОЗОНА (O₃) В АТМОСФЕРЕ

ВВЕДЕНИЕ

В 2011 году продолжались непрерывные измерения рассеянного излучения с помощью двух автоматических спектрометров высокого разрешения OceanOptics HR4000 [1] в видимой и УФ-областях спектра, с разрешением ~0.6 нм в интервале 398-607 нм и ~0.3 нм в интервале 279-421 нм. По техническим причинам аналогичные регулярные измерения видимого излучения автоматизированным спектральным комплексом "КСВУ" [2], в интервале 428-515 нм с разрешением 1.3 нм, были прерваны в феврале 2010 года и в 2011 году не возобновлялись. По измерениям спектрометра OceanOptics в видимой области спектра, в период с января по ноябрь 2011 г. было зарегистрировано около 70 тысяч спектров и успешно проинтерпретированы данные 279 дней наблюдений (содержания озона и NO₂). Кроме того, спектрометром OceanOptics в УФ области спектра за тот же период зарегистрировано около 89 тысяч спектров, соответствующих 218 дням наблюдений.

Наряду со стационарными измерениями в НИИФ СПбГУ (Петродворец), в 2011 г. осуществлялись также эпизодические измерения в Василеостровском районе Санкт-Петербурга, с астрономической башни факультета географии и геоэкологии СПбГУ (10-я линия, д.33/35). Всего в мае и августе 2011 г. с помощью спектрометра OceanOptics (видимая область спектра) было зарегистрировано 2959 спектров, соответствующих 13 дням таких наблюдений. Кроме того, в мае и августе той же аппаратурой проводились мобильные измерения с борта легкового автомобиля по маршруту на юго-западном участке кольцевой автодороги, общей протяженностью около 115 км (всего 189 спектров за 3 дня наблюдений).

В 2011 году проинтерпретирован массив измерений прямого солнечного излучения в 2009-2011 гг., начатых весной 2009 г. с помощью наземного инфракрасного Фурье-интерферометра высокого спектрального разрешения Bruker-IFS125 HR. Эти измерения позволяют извлекать дополнительную информацию о содержании NO₂ в стратосфере. Всего в 2011 году было зарегистрировано 511 спектров прямого ИК излучения в течение 73 дней наблюдений.

На основе анализа глобальных данных многолетних спутниковых измерений получены статистически значимая оценка линейного роста содержания тропосферного NO₂ в районе города Санкт-Петербург. Проанализированы официальные данные инвентаризации выбросов воздушного загрязнения; построено пространственное распределение источников загрязнения NO_x в Санкт-Петербурге.

1. ДАННЫЕ ИЗМЕРЕНИЙ СОДЕРЖАНИЯ NO₂ И O₃ В СТРАТОСФЕРЕ

В сопоставлении с данными спутниковых измерений использовались результаты ежедневных наземных сумеречных измерений рассеянного излучения в видимой области, выполняющихся аппаратурой "КСВУ" (2004-2010 гг.) и OceanOptics (2008-2011 гг.) на восходе и заходе солнца. При интерпретации измерений в НИИФ СПбГУ, для уменьшения влияния тропосферного загрязнения городскими источниками Санкт-Петербурга этот диапазон осреднения по зенитному углу солнца сужен до 90-91° (это позволяет снизить чувствительность сумеречных измерений к вариациям газового состава в нижних слоях атмосферы). Для согласования с данными дневных спутниковых измерений, выполняемых с околополярных солнечно-синхронных орбит, данные всех сопоставляемых измерений NO₂ – как спутниковых, так и наземных – пересчитывались с использованием фотохимической модели ко времени местного полдня. Данные дневных спутниковых измерений озона (O₃) сравнивались с полусуммой утреннего и вечернего наземного измерения. Были рассмотрены

данные измерений таких спутниковых систем, как ERS-2 GOME, Envisat SCIAMACHY и Aura OMI.

Поскольку начиная с марта 2010 года измерения рассеянного видимого излучения осуществляются только аппаратурой OceanOptics (в связи с выходом из строя спектрометра "КСВУ"), в обработку измерений OceanOptics были внесены поправки, обеспечивающие однородность объединенного ряда наблюдений двумя этими приборами в период с начала 2004 года по настоящее время. Соответствующие поправочные коэффициенты для данных измерений OceanOptics (стратосферное содержание O_3 и NO_2) были рассчитаны ранее на основе сопоставлений результатов синхронных измерений приборов OceanOptics и "КСВУ" в 2008-2010 гг..

Пример сопоставления результатов наземных измерений содержания NO_2 в стратосфере (видимая область спектра) с данными измерений аппаратуры SCIAMACHY в 2004-2011 гг., приведен на Рисунке 1. Данные спутниковых и наземных измерений демонстрируют относительно хорошее согласие – среднее и среднеквадратичное отклонения составляют 2% и 48%, соответственно; коэффициент корреляции – 0.74. Вместе с тем, результаты наземных измерений заметно превышают данные SCIAMACHY в последние годы наблюдений – 2010 и 2011 гг.. (причины этого увеличивающегося расхождения пока неясны). Аналогичным образом были проведены сравнения с данными спутниковых измерений приборами GOME и OMI. Полученные для всех спутниковых данных оценки расхождений с результатами наземных измерений приведены в Таблице 1. Как видно из таблицы, наилучшее согласие с результатами наземных измерений достигается в данных SCIAMACHY, и несколько хуже – в данных GOME; данные OMI систематически ниже результатов наземных измерений, в среднем на 17%. В целом, с учетом значительной сезонной изменчивости содержания NO_2 в стратосфере (порядка $\pm 70\%$ на широте Санкт-Петербурга), полученные оценки точности спутниковых данных можно считать удовлетворительными.

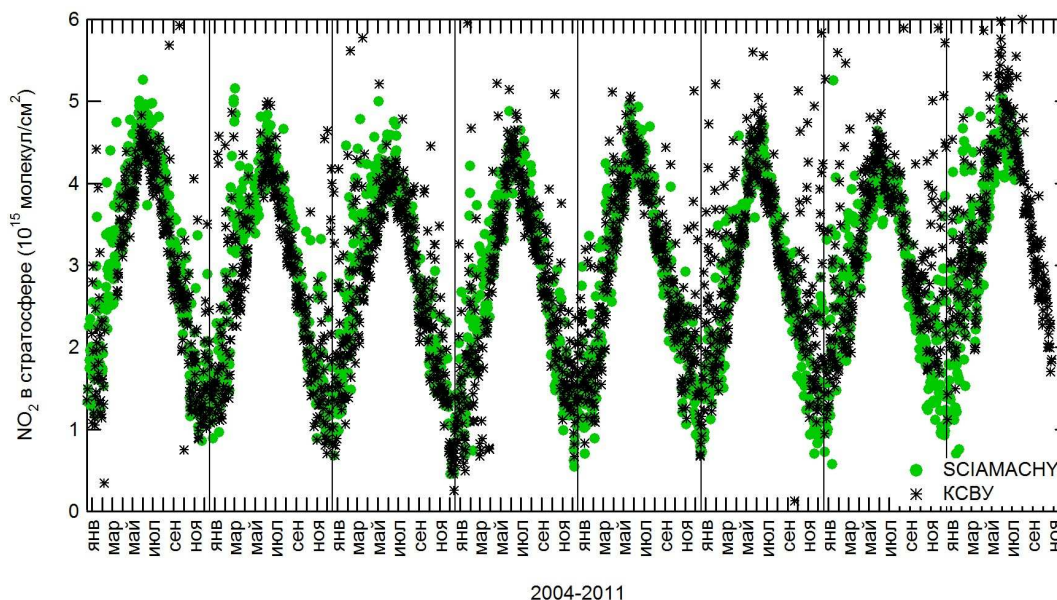


Рисунок 1 Сопоставление данных сумеречных наземных (видимая область спектра) и дневных спутниковых (“SCIAMACHY”) измерений содержания NO_2 в стратосфере, выполненных в районе Санкт-Петербурга в 2004-2011 гг.

Пример сопоставления результатов наземных измерений содержания озона (O_3) в стратосфере с данными измерений аппаратуры OMI (алгоритм TOMS) в 2004-2011 гг., приведен на Рисунке 2. Данные спутниковых и наземных измерений заметно отличаются – среднее и среднеквадратичное отклонения составляют 10% и 25%, соответственно;

коэффициент корреляции – 0.86. Аналогичным образом были проведены сравнения с данными спутниковых измерений прибором GOME, а также данными OMI (алгоритм DOAS) и SCIAMACHY (алгоритм TOSOMI). Полученные для всех спутниковых данных оценки расхождений с результатами наземных измерений приведены в Таблице 2. Результаты сумеречных наземных измерений оказываются систематически ниже спутниковых данных, причем величина этого расхождения для разных спутниковых приборов (алгоритмов) очень близка и составляет 10-12%. Для данных об общем содержании (ОС) озона это довольно большая ошибка, которая может свидетельствовать о недостатках в используемой методике наземных сумеречных измерений. Кроме того, как и в данных наблюдений за содержанием стратосферной NO₂, данные наблюдений стратосферного озона демонстрируют постепенный рост систематического расхождения между результатами спутниковых и наземных измерений.

Таблица 1 Оценки расхождений между данными спутниковых и наземных измерений содержания NO₂ в стратосфере, выполненных в районе Санкт-Петербурга в 2004-2011 гг. Приведены значения среднего (Δ) и среднеквадратичного (σ) отклонений для разницы “спутник – наземный прибор” в относительных единицах (%), а также коэффициент корреляции R .

	Δ	σ	R
ERS-2 GOME	+6	53	0.61
Envisat SCIAMACHY	+2	48	0.75
Aura OMI	-17	49	0.72

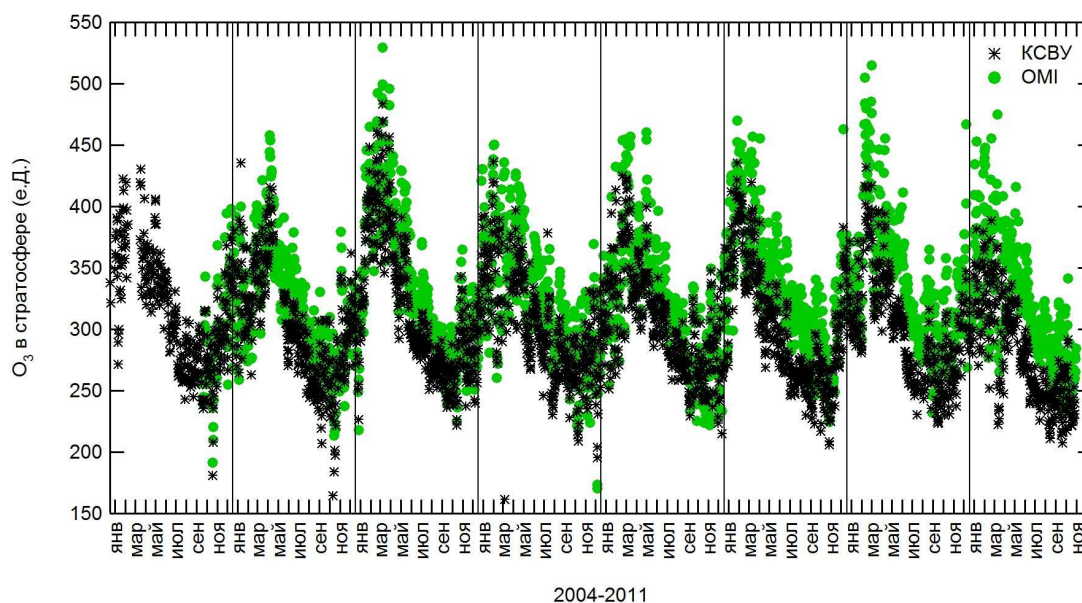


Рисунок 2 Сопоставление данных сумеречных наземных (видимая область спектра) и дневных спутниковых (“ОМІ”) измерений содержания озона в стратосфере, выполненных в районе Санкт-Петербурга в 2004-2011 гг.

Таблица 2

Оценки расхождений между данными спутниковых и наземных измерений (видимое излучение, сумерки) содержания озона в стратосфере, выполненных в районе Санкт-Петербурга в 2004-2011 гг. Приведены значения среднего (Δ) и среднеквадратичного (σ) отклонений для разницы “спутник – наземный прибор” в относительных единицах (%), а также коэффициент корреляции R .

	Δ	σ	R
ERS-2 GOME	+11	27	0.86
Aura OMI (TOMS)	+10	25	0.85
Aura OMI (DOAS)	+12	26	0.84
SCIAMACHY	+12	33	0.86

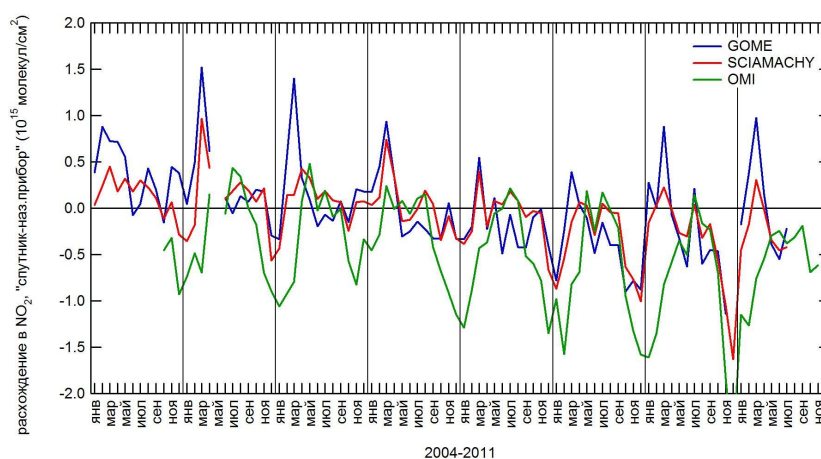


Рисунок 3

Среднемесячные значения расхождений между данными спутниковых и наземных измерений содержания NO_2 в стратосфере, выполненных в районе Санкт-Петербурга в 2004-2011 гг.

Были также рассмотрены среднемесячные значения расхождений, рассчитанные для различных спутниковых приборов. Так, на Рисунке 3 представлены расхождения в данных измерений NO_2 , рассчитанные для GOME, SCIAMACHY и OMI. Любопытно, что во всех трех рядах, на фоне сезонной изменчивости, проявляется тенденция уменьшения абсолютной величины расхождения – со средней линейной скоростью $0.08 \div 0.11 \cdot 10^{15}$ молекул/см² в год. Поскольку этот тренд наблюдается в сопоставлении с разными спутниковыми приборами, причиной его не могут быть ошибки спутниковых измерений. Аналогичные расчеты среднемесячных расхождений для данных измерений озона аппаратурой GOME, SCIAMACHY, а также двух версий интерпретации данных OMI (алгоритмы TOMS и DOAS), представлены на Рисунке 4. Эти результаты, помимо сезонной зависимости расхождений, демонстрируют заметную тенденцию роста среднего расхождения со средней линейной скоростью $\sim 1 \div 2\%$ в год. Как и в сопоставлении результатов измерений NO_2 , этот долговременный тренд расхождений в данных об ОС озона не может быть связан с ошибками спутниковых измерений. Возможно, такие систематические расхождения обусловлены принципиальными различиями в вертикальной чувствительности наземного и спутникового методов зондирования, а наблюдаемый тренд может указывать на долговременные изменения вертикального распределения характеристик атмосферы (газовый и аэрозольный состав, температура). При этом, поскольку начиная с июня 2008 года

измерения осуществлялись одновременно двумя разными спектрометрами (“КСВУ” и OceanOptics), а с марта 2010 только прибором OceanOptics – наблюдаемые долговременные вариации вряд ли связаны с изменениями характеристик используемой измерительной аппаратуры.

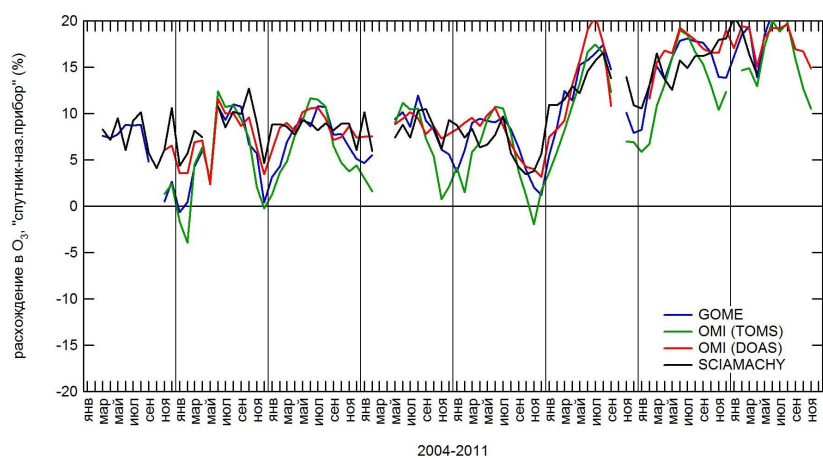


Рисунок 4 Среднемесячные значения расхождений между данными спутниковых и наземных измерений содержания O_3 в стратосфере, выполненных в районе Санкт-Петербурга в 2004-2011 гг.

По сравнению с наземными DOAS-измерениями в видимой области, аналогичные измерения в УФ части спектра обладают потенциально более высокой точностью определения содержания озона, обусловленной более сильными полосами поглощения Хартлея-Хеггинса по сравнению с полосами Шапюи. Такие измерения в НИИФ СПбГУ выполняются начиная с июня 2009 года с помощью УФ-спектрометра OceanOptics, одновременно с аналогичными измерениями в видимой области спектра. Результаты измерений OceanOptics в УФ-диапазоне спектра, вместе с данными дневных спутниковых измерений аппаратурой OMI, выполненных за те же дни в районе Санкт-Петербурга, представлены на рисунке 5.

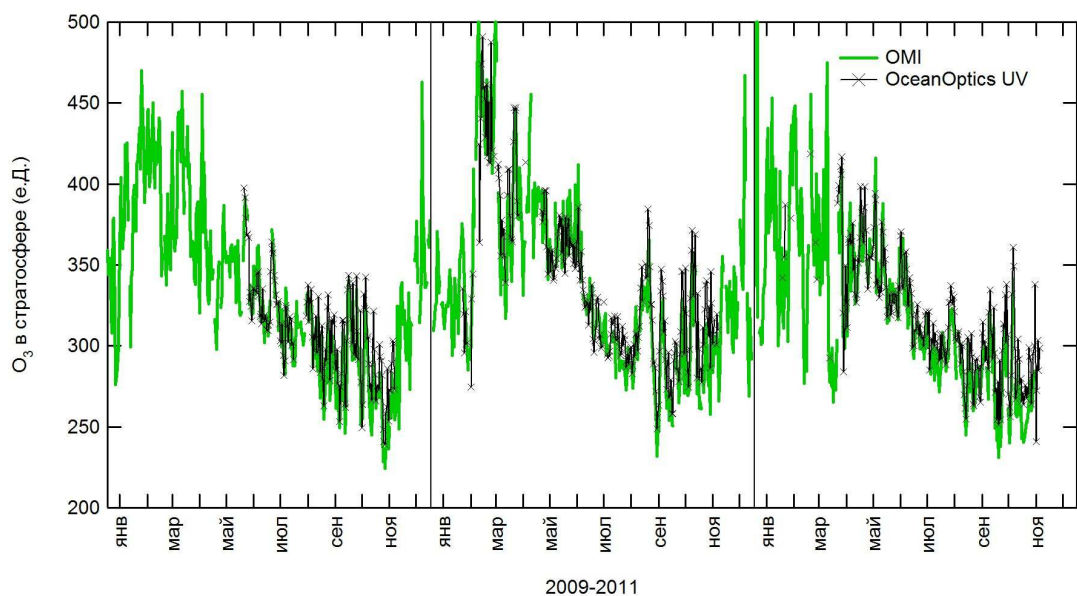


Рисунок 5 Данные наземных дневных измерений содержания озона в стратосфере, выполненных УФ-спектрометром OceanOptics и спутниковой аппаратурой OMI (алгоритм TOMS) в районе Санкт-Петербурга в 2009-2011 гг.

Оценки расхождений для представленных данных (OMI-OceanOptics) составили -2.4% и 4.3% для среднего и среднеквадратичного расхождений, соответственно (коэффициент корреляции 0.95). Аналогичным образом были проведены сравнения с данными спутниковых измерений прибором GOME, а также данными OMI (алгоритм DOAS) и SCIAMACHY (алгоритм TOSOMI). Полученные для всех спутниковых данных оценки расхождений с результатами наземных измерений приведены в Таблице 3. Среднемесячные значения расхождений, рассчитанные для различных спутниковых приборов, представлены на Рисунке 6. Все сопоставления демонстрируют характерную сезонную изменчивость величины расхождений – наилучшее согласие между данными наземных и спутниковых измерений наблюдается в весенне-летнее время ($\pm 2\%$), тогда как в осенне-зимний сезон результаты наземных измерений превышают спутниковые данные ($\sim 4\div 6\%$).

Таблица 3 Оценки расхождений между данными спутниковых и наземных измерений (УФ излучение, день) содержания озона в стратосфере, выполненных в районе Санкт-Петербурга в 2009-2011 гг. Приведены значения среднего (Δ) и среднеквадратичного (σ) отклонений для разницы “спутник – наземный прибор” в относительных единицах (%), а также коэффициент корреляции R .

	Δ	σ	R
ERS-2 GOME	-0.4	4.7	0.94
Aura OMI (TOMS)	+2.4	4.3	0.95
Aura OMI (DOAS)	-1.2	6.3	0.92
SCIAMACHY	-1.3	4.5	0.94

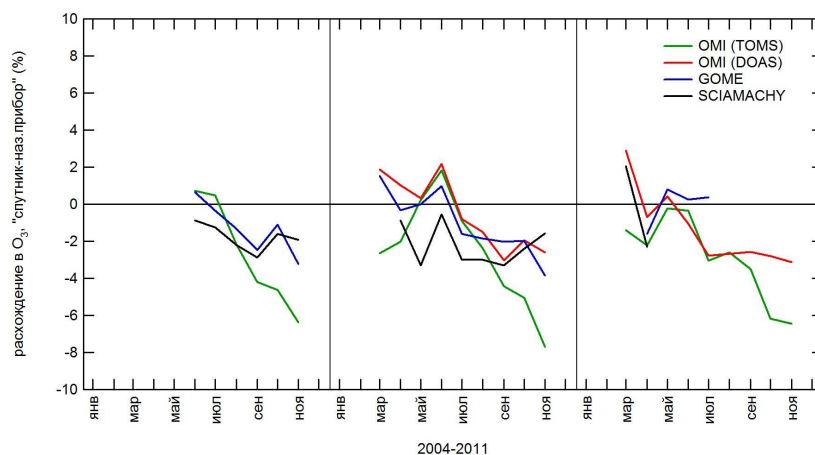


Рисунок 6 Среднемесячные значения расхождений между данными спутниковых и наземных измерений (УФ излучение, день) содержания O_3 в стратосфере, выполненных в районе Санкт-Петербурга в 2009-2011 гг.

2. ДАННЫЕ ИЗМЕРЕНИЙ СОДЕРЖАНИЯ NO_2 В ТРОПОСФЕРЕ (ПЕТЕРГГОФ)

Результаты всех наземных измерений тропосферного NO_2 , выполненных аппаратурой “КСВУ” (2004-2010 гг.) и OceanOptics (2008-2011 гг.) в дневное время и осредненных в период с 10:00 до 14:00 местного времени, представлены на рисунке 7. Отдельной кривой на

том же рисунке нанесены данные спутниковых измерений тропосферного содержания NO_2 в районе Санкт-Петербурга, выполненные аппаратурой OMI (спутник AURA). Следует отметить тенденцию роста тропосферного содержания NO_2 в данных наземных измерений, не выявленную, однако, в данных одновременных спутниковых измерений. Помимо этого, результаты наземных измерений в отдельные годы демонстрируют заметную сезонную изменчивость, отсутствующую в данных спутниковых наблюдений – повышенные содержания в летнее время и пониженные зимой. Подобный годовой цикл характерен для вариаций стратосферного содержания и может указывать на недостаточную компенсацию стратосферной компоненты общего вертикального содержания NO_2 при выделении его тропосферной части из данных дневных наземных измерений. Таким образом, наблюдаемый в наземных измерениях рост тропосферного NO_2 возможно связан с ростом стратосферной части общего содержания (истинным или инструментальным) отмеченным выше. В целом, согласие результатов наземных измерений с данными OMI очень низкое, что обусловлено, по-видимому, значительными пространственно-временными вариациями тропосферного NO_2 в данном районе сопоставлений – вблизи такого мощного источника антропогенного загрязнения, как мегаполис города Санкт-Петербург.

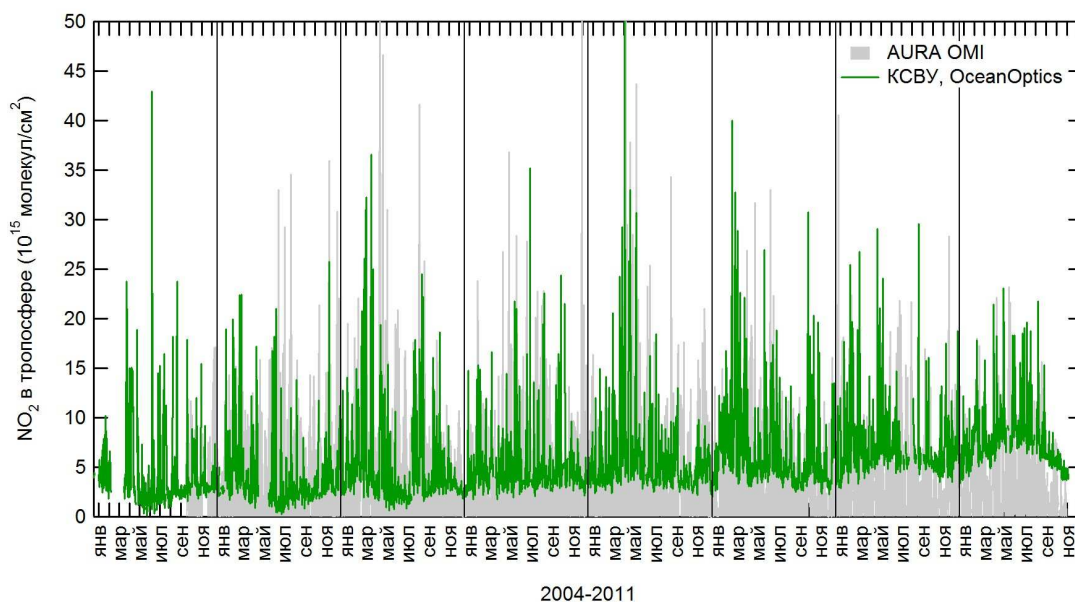


Рисунок 7 Данные о тропосферном содержании NO_2 в Санкт-Петербурге по результатам дневных спектроскопических измерений НИИФ СПбГУ в 2004-2011 гг. (данные измерений ОС NO_2 усреднены с 10:00 до 14:00 местного времени). Отдельной кривой (сплошная заливка) представлены данные спутниковой аппаратуры OMI.

Традиционный анализ данных многолетних спутниковых и наземных измерений выявляет ряд характерных закономерностей временных вариаций содержания NO_2 в тропосфере вблизи мегаполиса Санкт-Петербурга – таких, например, как недельный цикл. Так, результаты расчета средних содержаний NO_2 в тропосфере для каждого дня недели, полученные по данным измерений спутниковой аппаратуры OMI и наземных измерений в районе НИИФ СПбГУ в период с октября 2004 по ноябрь 2011 года, представлены на Рисунке 8. Подобный анализ проводился, в частности, в районе крупных мегаполисов западной Европы [3] и в районе Москвы [4], обычно выявляя наличие недельного цикла содержания NO_2 в тропосфере, обусловленного интенсивностью работы промышленности и транспорта. Характерный для урбанизированных районов минимум тропосферного NO_2 в выходные дни недели, имеет сугубо антропогенное происхождение и обусловлен

циклическостью деловой активности городского населения. Для района Санкт-Петербурга эта особенность также ранее уже наблюдалась в данных долговременных спутниковых и наземных измерений (см., например [5, 6]). Как видно из настоящего анализа, минимальное содержание тропосферного NO_2 в данных спутниковых измерений наблюдается в воскресенье – на ~21% ниже, чем в будни (см. Рисунок 8). В результатах измерений наземной аппаратуры НИИФ СПбГУ воскресное содержание тропосферного NO_2 также оказывается существенно ниже среднего значения в будние дни – на ~19%. Следует отметить, что данные спутниковых измерений тропосферного NO_2 существенно превышают результаты наземных измерений НИИФ СПбГУ – в среднем, более чем вдвое. Такое различие может быть связано с более слабым загрязнением тропосферы в районе Петродворца, по сравнению с центральной частью Санкт-Петербурга, попадающей в поле зрения спутниковой аппаратуры. При этом, в отличие от спутниковых данных, результаты наземных измерений в Петродворце достигают минимума в понедельник – на ~20% ниже среднего содержания в будни. Эту особенность можно объяснить удаленностью места измерений от основных источников воздушного загрязнения (центральной части города). Поскольку время жизни NO_2 в тропосфере составляет около суток (в зимнее время и больше), недельный цикл ее антропогенной эмиссии может “с опозданием” проявляться в данных измерений, т.к. воскресные значения могут содержать “след” более высоких концентраций предыдущего, субботнего дня [7]. Вместе с тем, этот эффект не наблюдается в результатах осреднения данных спутниковых измерений. Причиной этого может быть экранирование приземного слоя облачностью (и более короткое время жизни NO_2 в свободной тропосфере), а также фиксированное время спутниковых измерений (13:45 для OMI), в отличие от наземных измерений, которые выполняются в течение всего дня и чувствительны к вариациям NO_2 в подоблачном слое. Следует также исключить сезонную составляющую в вариациях тропосферного NO_2 в данных наземных дистанционных измерений, связанную с некорректным учетом стратосферной компоненты ОС (см. выше). В целом, более детальный анализ недельного цикла в данных спутниковых и наземных измерений, с привлечением расчетов транспортно-химической модели, может позволить независимо определить время жизни NO_2 в тропосфере.

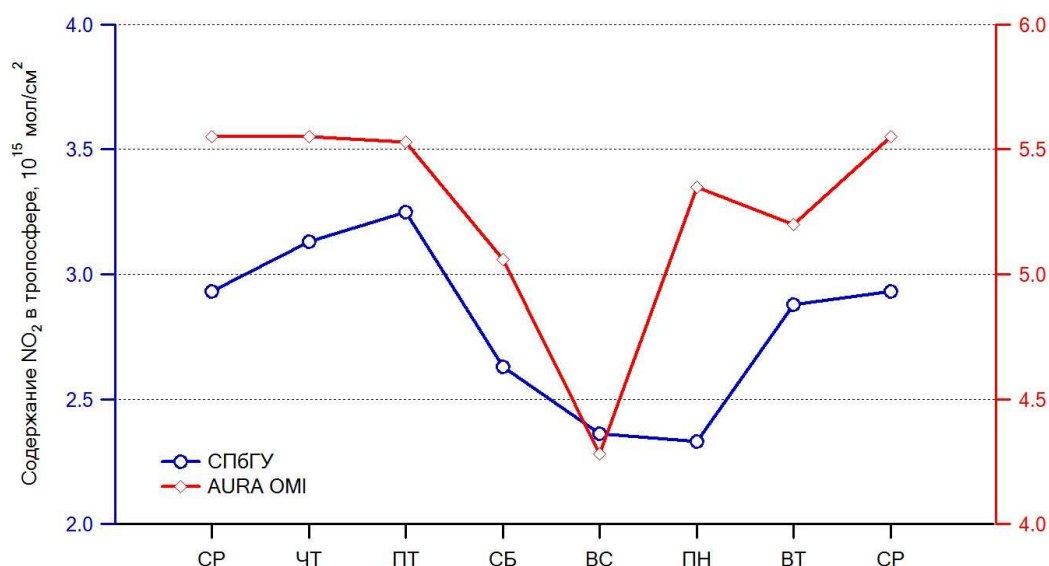


Рисунок 8

Недельный цикл тропосферного содержания NO_2 в районе Санкт-Петербурга по данным спутниковых (AURA OMI, ~14:00) и наземных дистанционных измерений (10:00-14:00) в 2004-2011 гг..

Данные ежечасных измерений концентраций NO_2 , полученные благодаря “Автоматической системе мониторинга атмосферного воздуха Санкт-Петербурга”, позволяют также оценить суточный цикл вариаций этой газовой компоненты. Такая цикличность обусловлена в первую очередь вариациями интенсивности использования автотранспорта, а также работой энергетических установок некоторых предприятий, осуществляющих сжигание топлива. Данные о приземных концентрациях NO_2 , осредненные по измерениям 4-х станций – №5 (Василеостровский район), №6 (Кировский район), №15 (Кронштадт) и №21 (Ломоносов), в 2004-2010 гг.. представлены на Рисунке 9. Как видно из рисунка, наблюдаемые вариации концентрации NO_2 в центральной части города (станции №5 и №6) качественно воспроизводят суточный цикл интенсивности автотранспорта. Два максимума в концентрациях NO_2 в будние дни примерно соответствуют утреннему и вечернему времени “часа пик” – около 9:00 и 19:00 – смещенные к более позднему времени, особенно вечером. Наблюдаемые концентрации NO_2 в Кронштадте (№15) и Ломоносове (№21) оказываются существенно ниже ($\sim 20 \text{ мкг/м}^3$ и $\sim 15 \text{ мкг/м}^3$, соответственно) и не испытывают заметного суточного цикла, поскольку уровень антропогенного загрязнения здесь существенно ниже, чем в центре Санкт-Петербурга.

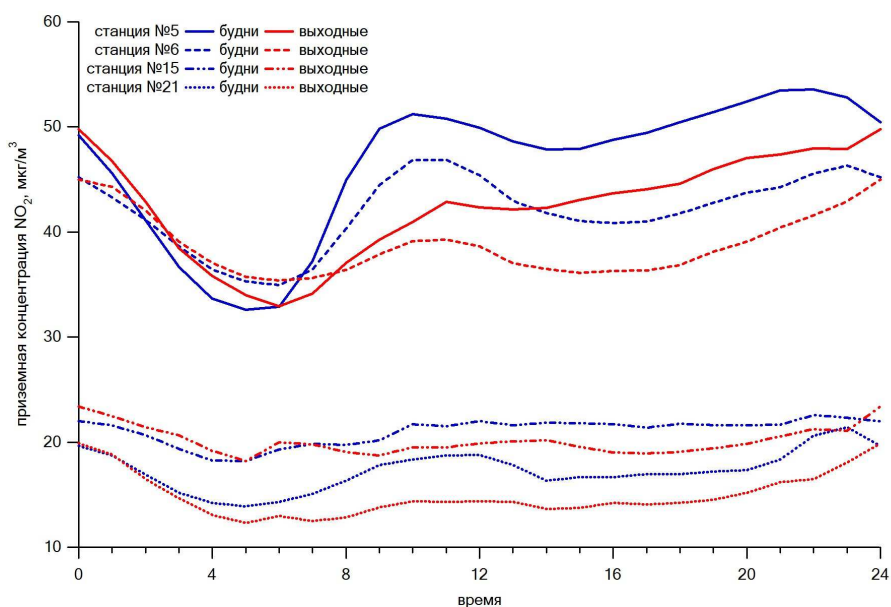


Рисунок 9 Суточный цикл приземных концентраций NO_2 в Санкт-Петербурге по данным измерений “Автоматической системы мониторинга атмосферного воздуха” на двух станциях (№5, №6, №15 и №21) в 2004-2010 гг..

Данные ежечасных измерений приземных концентраций на ближайших к НИИФ СПбГУ станциях использовались для эпизодических сравнений с результатами дистанционных спектроскопических измерений в 2010 году. Взаимное расположение НИИФ и задействованных в сопоставлениях станций изображено на Рисунке 10. Станция №15, находящаяся на острове Котлин (г. Кронштадт), расположена на расстоянии чуть больше 10 км к северу от НИИФ, а станция №21 находится всего в 2-3 км к северо-западу (г. Ломоносов). Как видно из приведенного выше Рисунка 9, содержание NO_2 в Кронштадте (№15) характеризуется чуть более высоким уровнем измеренных приземных концентраций, чем в Ломоносове (№21), несмотря на одинаковое удаление от центральной части Санкт-Петербурга. Для сравнения данных этих наблюдений с результатами измерений НИИФ СПбГУ было выбрано несколько дней, характеризующихся ясной погодой и повышенными содержаниями NO_2 в 2010 году, когда были доступны данные одновременных измерений обеих станций, №15 и №21 – это один день в январе и три дня в мае. Результаты

сопоставления в виде графиков дневных вариаций приземных концентраций и тропосферного содержания NO_2 представлены на Рисунке 11.

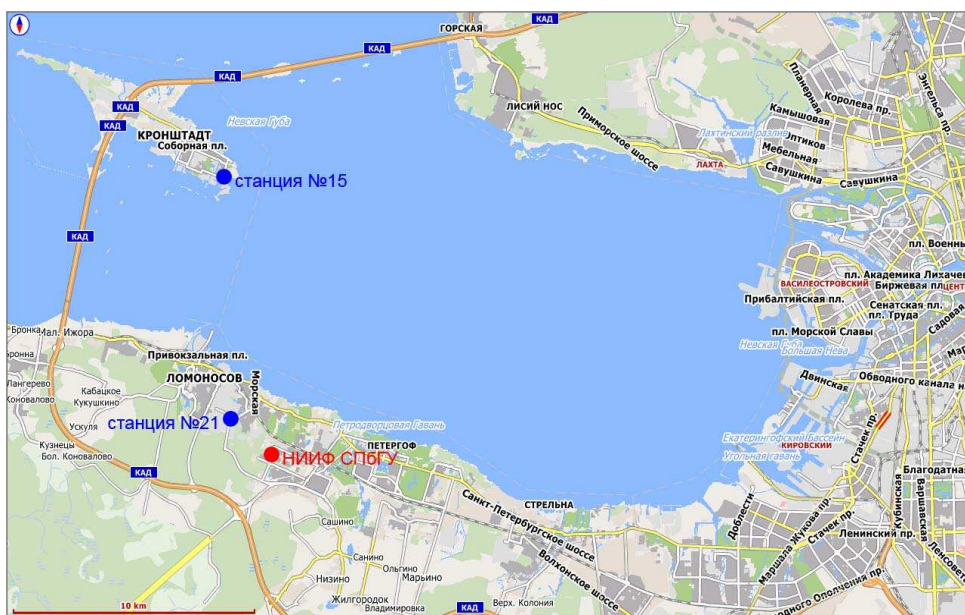


Рисунок 10 Схема расположения НИИФ СПбГУ и двух ближайших станций городской системы мониторинга качества воздуха в г. Ломоносове (№21) и г. Кронштадте (№15)

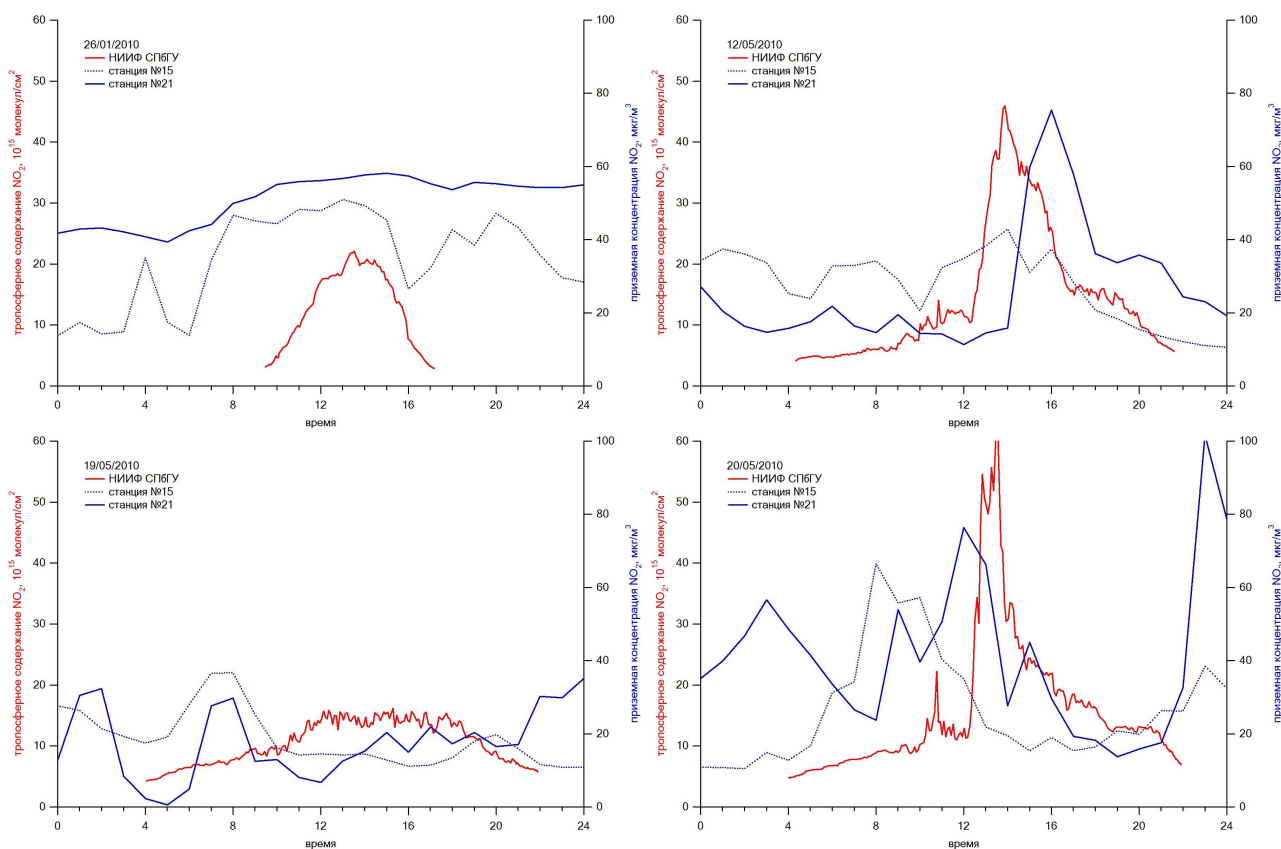


Рисунок 11 Результаты одновременных измерений тропосферного содержания NO_2 в НИИФ СПбГУ и приземных концентрация на двух ближайших станциях городской системы мониторинга качества воздуха в г. Ломоносове (№21) и г. Кронштадте (№15)

Как видно из приведенных графиков, приземные концентрации на ближайшей к НИИФ СПбГУ станции (№21) сопоставимы по уровню или превышают результаты аналогичных измерений на более удаленной станции (№15), что косвенно подтверждает локальное повышение атмосферного содержания NO_2 в районе НИИФ в эти дни. Вместе с тем, качественно результаты дистанционных измерений тропосферного NO_2 плохо согласуются с данными ежечасных измерений приземных концентраций, за исключением может быть сопоставлений 12-го и 20-го мая, когда наблюдались самые высокие концентрации и тропосферные содержания NO_2 . Однако даже для этих дней положения максимумов, наблюдаемых в данных измерений приземных концентраций и тропосферного содержания, не совпадают во времени. Причины этих значительных расхождений пока неясны. Одно из возможных объяснений – особенности вертикальной чувствительности наземных дистанционных измерений, более высокой к вариациям содержания NO_2 в вышележащих от приземного уровня слоях.

3. ДОЛГОВРЕМЕННЫЙ ТРЕНД СОДЕРЖАНИЯ NO_2 В ТРОПОСФЕРЕ

Оценки линейного тренда содержания тропосферного NO_2 в районе Санкт-Петербурга, обусловленного ростом загрязнений, были получены ранее в работах [2, 5, 6, 8]. В настоящей работе этот анализ был расширен на объединенный массив спутниковых измерений приборами GOME в 1996-2003 гг., SCIAMACHY в 2002-2011 гг. и OMI в 2004-2011 гг.. Используемые данные представляют собой глобальные поля среднемесячных содержаний тропосферного NO_2 , рассчитанные по единому для всех спутниковых измерений алгоритму интерпретации в Королевском Национальном Институте Нидерландов (www.temis.nl). Для единообразия, данные GOME и SCIAMACHY, представленные на пространственной сетке $0.25^\circ \times 0.25^\circ$, и данные OMI, представленные на пространственной сетке $0.125^\circ \times 0.125^\circ$, были приведены к общей сетке $1^\circ(\text{широта}) \times 2^\circ(\text{долгота})$. Сформированный из данных измерений трех приборов единый однородный ряд, охватывающий 16-летний период непрерывных измерений тропосферного NO_2 в районе Санкт-Петербурга (см. рисунок 12).

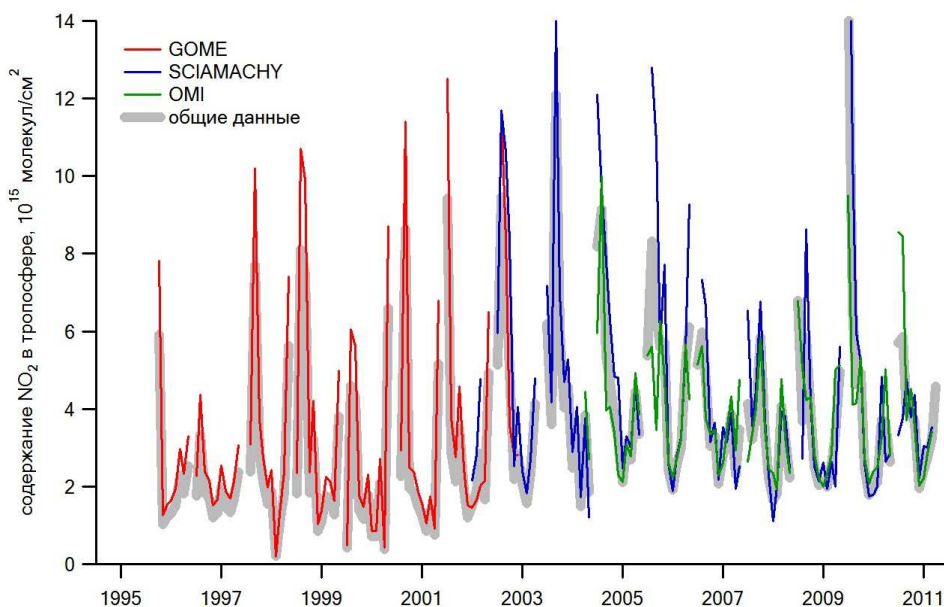


Рисунок 12

Временной ряд среднемесячных тропосферных содержаний NO_2 в районе Санкт-Петербурга по данным спутниковых измерений аппаратурой GOME, SCIAMACHY и OMI в 1996-2011 гг.. Отдельной кривой (“общие данные”) показан единый ряд, полученный совмещением измерений всех трех приборов.

По аналогии с [5, 6], для аппроксимации временного ряда среднемесячных значений тропосферного NO₂ использовалась простая модельная функция, состоящая из линейного тренда и сезонного хода:

$$Y_t = A + BX_t + C\mu_t + N_t$$

где Y_t – значение содержания озона для месяца t , X_t – порядковый номер месяца с января 1996 г., N_t – остаток ряда (отклонение от аппроксимации), A – начальное значение ряда, B – линейный тренд, а C – коэффициент компоненты сезонного хода μ_t . Для определения μ_t использовались оценки среднемесячных значений тропосферного NO₂ за весь период измерений. Полученная сезонная вариация представлена на рисунке 13. Максимальные содержания тропосферного NO₂ наблюдаются в зимой и ранней весной, что может быть связано с большим временем жизни NO₂ в холодный период, а также с более интенсивной эмиссией NO_x системами центрального городского отопления.

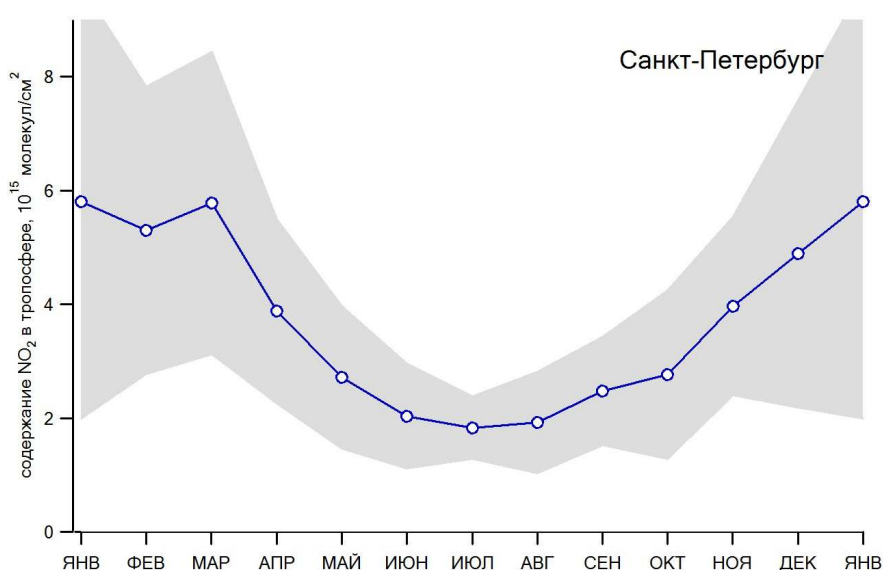


Рисунок 13 Годовые вариации среднемесячных тропосферных содержаний NO₂ районе городов Санкт-Петербург, Москва, Новосибирск и Париж, по данным многолетних спутниковых измерений аппаратурой GOME, SCIAMACHY и OMI.

Временной ряд среднемесячных значений по данным комбинированных спутниковых измерений (GOME, SCIAMACHY и OMI) в районе Санкт-Петербурга, с аппроксимирующей его функцией и компонентой линейного тренда, представлен на рисунке 14. Таким образом, проведенный анализ данных спутниковых измерений указывает на заметный статистически значимый рост тропосферного содержания NO₂ в районе Санкт-Петербурга – $3.7 \pm 0.9\%$ в год. Этот рост NO₂ может свидетельствовать о пропорциональном росте антропогенной эмиссии NO_x в Санкт-Петербурге, что косвенно подтверждается анализом независимой информации. Так, по официальным данным Правительства Санкт-Петербурга [<http://infoeco.ru>] количество зарегистрированных в городе автомобилей увеличилось с ~1 миллиона в 2001 г. до ~1.8 миллиона в 2010 г. (и растет со скоростью ~6% в год, см. рисунок 15).

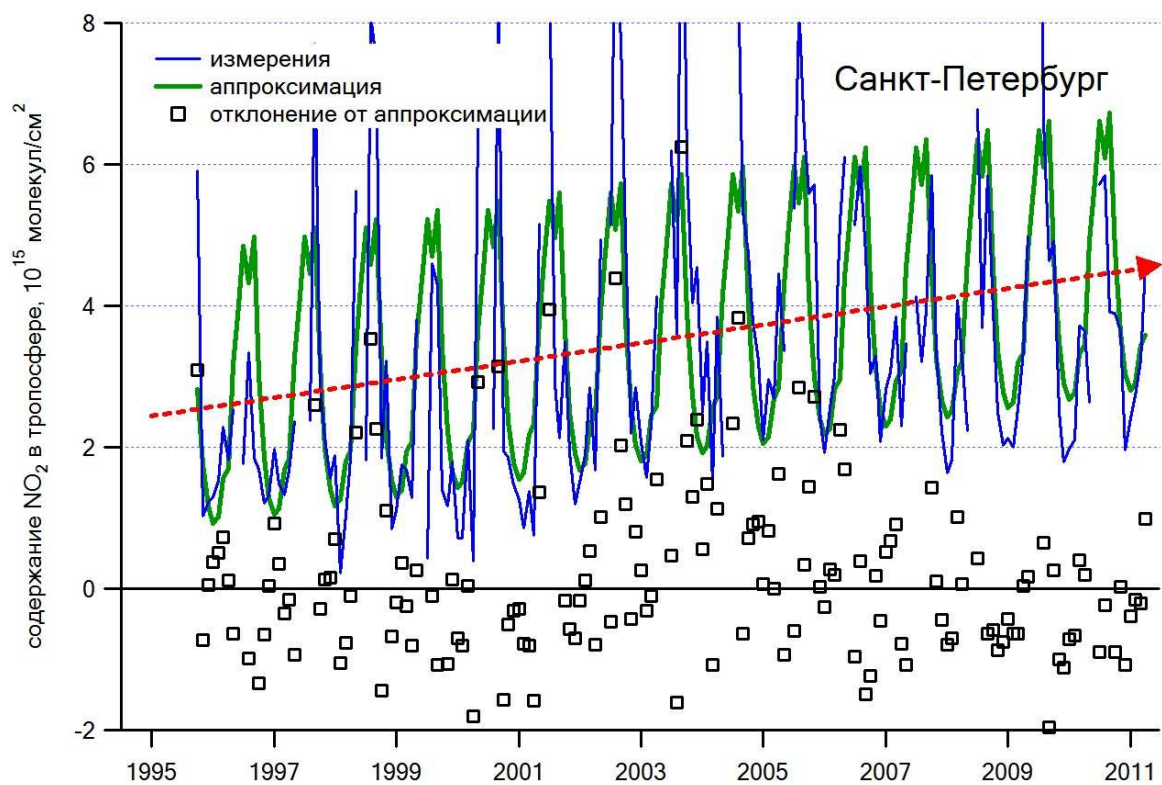


Рисунок 14 Анализ тренда содержания NO_2 в тропосфере, по данным многолетних спутниковых измерений в 1996-2011 гг. (GOME, SCIAMACHY и OMI).

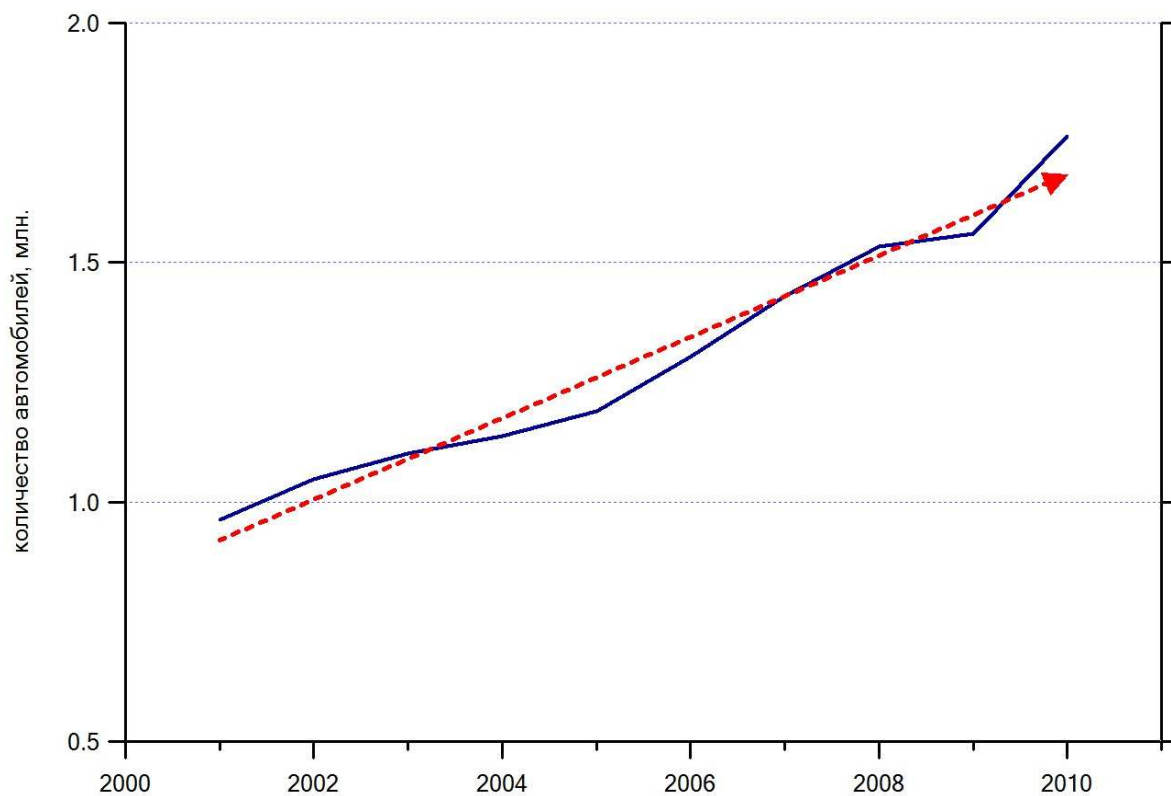


Рисунок 15 Данные о количестве транспортных средств, официально зарегистрированных в Санкт-Петербурге

4. ИЗМЕРЕНИЯ ТРОПОСФЕРНОГО СОДЕРЖАНИЯ NO₂ В САНКТ-ПЕТЕРБУРГЕ

В мае и августе 2011 г. были продолжены тестовые измерения тропосферного содержания NO₂ в центральной части Санкт-Петербурга, аналогично экспериментам, проводившимся в августе-сентябре 2010 г.. Измерения осуществлялись с помощью спектрометра OceanOptics HR4000 (видимая область), установленного в помещении астрономической башни здания факультета географии и геоэкологии СПбГУ, расположенного в Василеостровском районе (10-я линия, д.33/35). Измерения выполнялись полностью автоматически, в течение нескольких дней 21-23 и 27-30 мая, а также 11-15 августа 2011 г. (всего 12 полных дней). Результаты измерений, представленные в виде дневных тропосферных содержаний NO₂ (± 2 часа от местного полдня), приведены на рисунке 16. Для сравнения, на том же рисунке представлены данные аналогичных измерений в 2009 и 2010 гг., а также результаты многолетних средних по измерениям в Петродворце (НИИФ СПбГУ) в 2004-2011 гг. Как видно из рисунка, содержания NO₂ в центральной части Санкт-Петербурга существенно превышают данные аналогичных измерений в Петродворце, что характерно для всех периодов наблюдений – в 2009, 2010 и 2011 гг..

Кроме того, в мае и августе 2011 г. были продолжены мобильные измерения содержания тропосферного NO₂, начатые 2009-2010 гг.. Измерения осуществлялись спектрометром OceanOptics HR4000 в течение 3-х дней с борта легкового автомобиля (см. рисунок 17), по маршруту на юго-западном участке кольцевой автодороги Санкт-Петербурга. Предварительные результаты интерпретации измерений, выполненных 24 и 31 мая, и 16 августа 2011 г., представлены на рисунке 18. Как видно из приведенных на рисунке карт, большая часть мобильных измерений выявляет повышенное содержание NO₂ в восточной части маршрута наблюдений, расположенной ближе к центральной части города и, очевидно, более загрязненной (южные окраины Московского и Красносельского районов). Измерения, выполненные на участке КАД от Красносельского до Гостилицкого шоссе, как правило не выявляют повышенных значений содержания NO₂. Следует также отметить, что по данным всех мобильных измерений, проводившихся в 2009-2011 гг., наблюдавшиеся в 2011 г. тропосферные содержания NO₂ характеризовались обычным уровнем (заметно ниже, чем в 2010 г. и несколько выше, чем в 2009 г.) – средние содержания NO₂ составили $\sim 7 \div 9 \times 10^{15}$ молекул/см², а максимальные $\sim 15 \div 16 \times 10^{15}$ молекул/см² (см. таблицу 4).

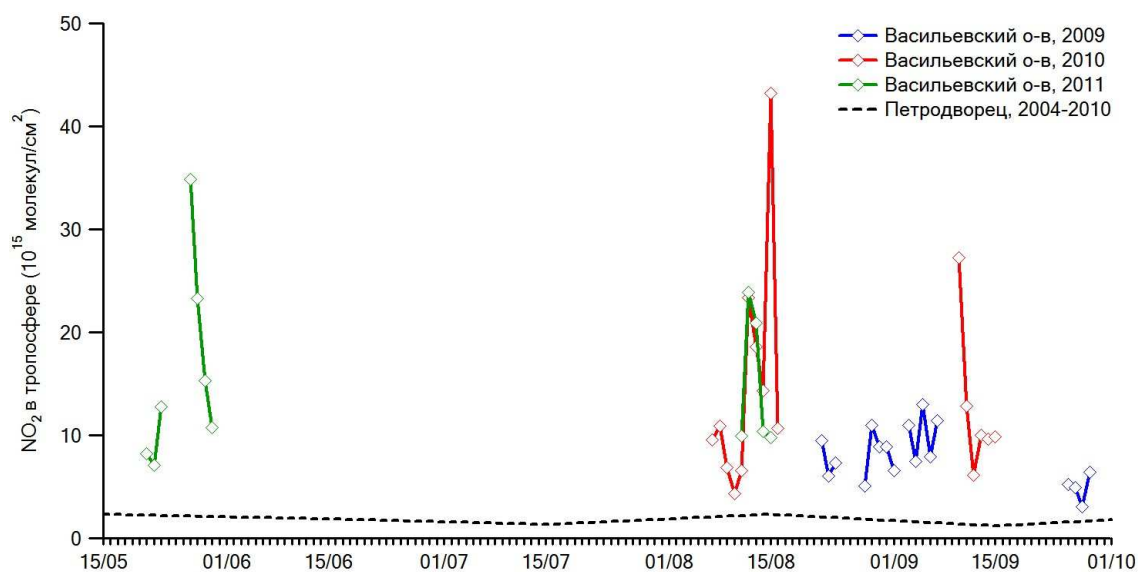


Рисунок 16

Результаты наземных спектроскопических измерений содержания NO₂ в тропосфере, выполненных в Петродворце (2004-2010 гг.) и Василеостровском районе Санкт-Петербурга (2009, 2010 и 2011 гг.).

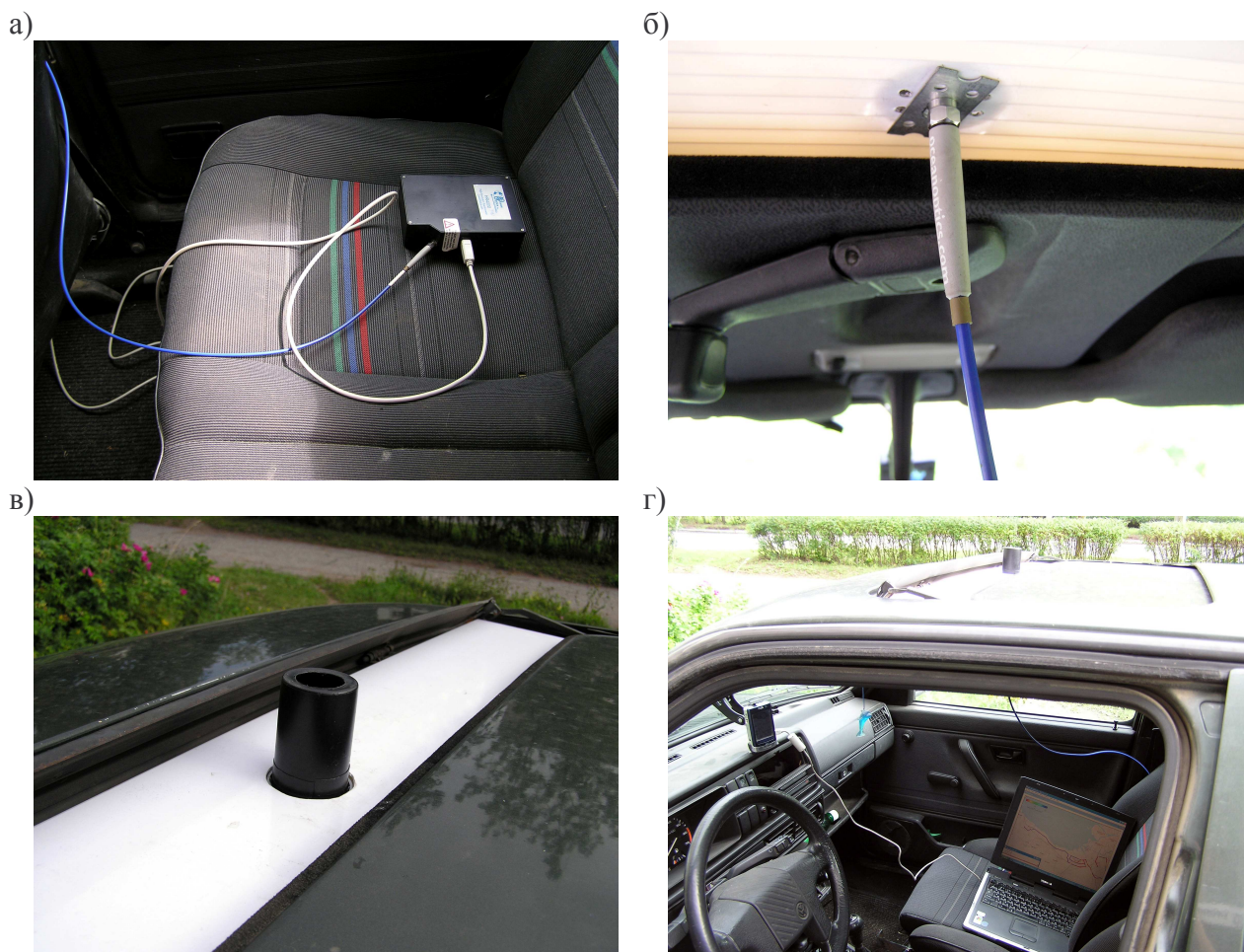


Рисунок 17 Конфигурация мобильных спектроскопических измерений тропосферного NO_2 с борта легкового автомобиля: а) спектрометр OceanOptics, USB-кабель к управляющему компьютеру, оптоволоконный кабель; б) оптоволоконный кабель, зафиксированный вертикально в крышке люка; в) ограничитель поля зрения входного отверстия оптоволоконного кабеля; г) управляющий компьютер, соединенный с GPS-навигатором.

Таблица 4 Оценки среднего и максимального значений содержания NO_2 в тропосфере (10^{15} молекул/см²), зарегистрированных в ходе мобильных спектроскопических измерений в Санкт-Петербурге летом-осенью 2009, 2010 и 2011 гг.

дата	среднее	максимальное
10/09/2009	7.57	12.38
29/09/2009	6.94	13.66
03/10/2009	7.32	14.84
06/10/2009	7.04	13.32
27/07/2010	15.98	33.11
17/08/2010	14.13	19.26
27/08/2010	22.08	92.20
16/09/2010	9.01	18.18
24/05/2011	7.58	15.10
31/05/2011	9.05	16.34
16/08/2011	7.67	14.70

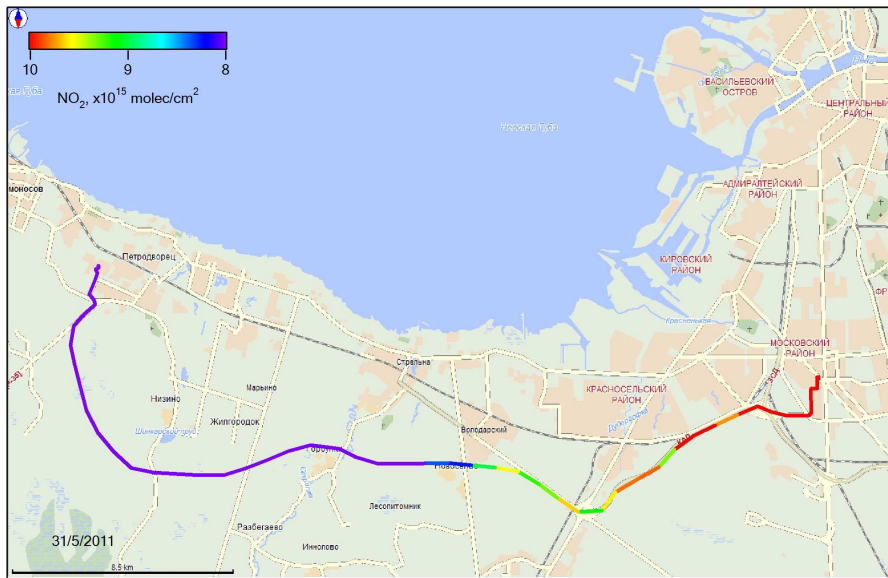
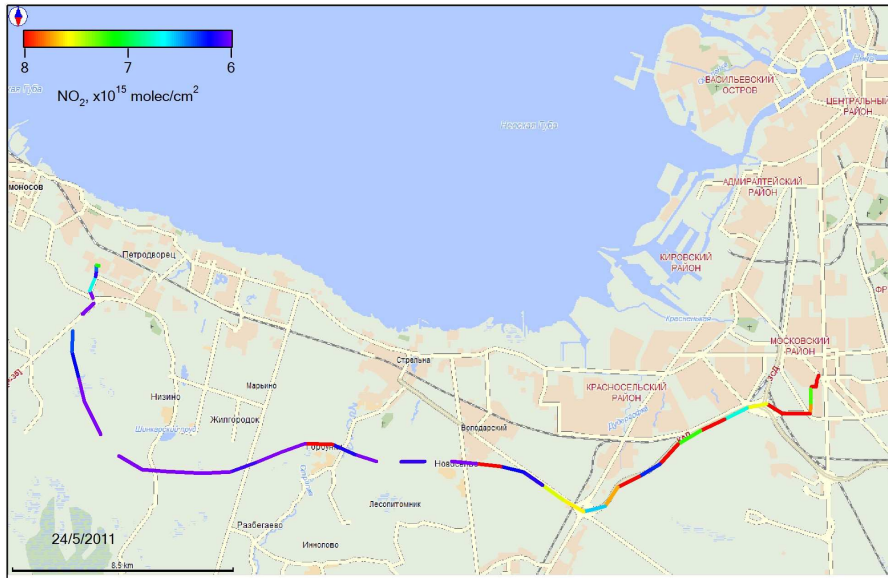


Рисунок 18

Мобильные спектроскопические измерения содержания тропосферного NO_2 в Санкт-Петербурге

Для более детального анализа результатов мобильных измерений, проведенных в 2010 г., использовались численные расчеты поля приземных концентраций и тропосферных содержаний NO_2 в районе Санкт-Петербурга, а также данные ближайших к Санкт-Петербургу измерений спутниковой аппаратуры OMI. Численное моделирование пространственного распределения NO_2 в воздушном бассейне Ленинградской области выполнялось в предположении о сосредоточении основных источников эмиссии NO_x в центральной части мегаполиса Санкт-Петербурга. Для проведения расчетов использовалась известная дисперсионная модель HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectories, [9]), позволяющая в частности осуществлять трехмерное моделирование процесса формирования и распространения облака воздушных загрязнений от заданного источника. Конфигурация модели и общая схема расчетов идентичны описанным в [10]. Входная метеорологическая информация, необходимая для HYSPLIT, заимствовалась из данных NCEP GDAS, представленных на глобальной пространственной сетке $1^\circ \times 1^\circ$ широты и долготы, с шагом по времени 3 часа [11].

Модель HYSPLIT использовалась для расчета полей концентраций NO_2 на территории, ограниченной координатами $54.8\text{-}61.6^\circ$ с.ш., $23.7\text{-}37.8^\circ$ в.д., с шагом пространственной сетки 0.05° по широте и долготе. Рассматривались результаты расчетов на 7 вертикальных уровнях: 1, 25, 50, 100, 150, 250 и 350 метров. Поскольку точное расположение и интенсивность источников антропогенного выброса NO_x неизвестны, а основной вклад в загрязнение приземного воздуха предположительно вносит городской автотранспорт, эмиссия NO_2 моделировалась площадным источником, заданным в HYSPLIT набором из 49 равноудаленных точечных, охватывающих большую часть дорожной сети и городской застройки Санкт-Петербурга. Все источники помещались на высоте 1 м., площадь каждого из них устанавливалась равной шагу сетки $0.025^\circ \times 0.025^\circ$, а их интенсивность масштабировалась по результатам сопоставления рассчитанных приземных концентраций с данными прямых измерений. Для учета циклического характера городских загрязнений, обусловленного главным образом суточной периодичностью в интенсивности автотранспорта, в ночное время (с 21:00 до 9:00 местного времени) эмиссия принималась равной 1/4 от эмиссии в дневное время. Оценка суммарной эмиссии Санкт-Петербурга, полученная в [10] в пересчете на годовую величину, составила ~ 2400 тыс. тонн NO_2 (при условии, что выброс NO_x осуществляется со всей площади городской застройки, принятой в модели равной ~ 400 кв. км). Эта оценка носит условный характер и служит лишь для грубого согласования расчетов модели с данными наблюдений, поскольку количество и местоположение всех источников заданы произвольно и они, очевидно, сосредоточены более локально, на гораздо меньшей площади (так, например, принимая во внимание только автомобильные выбросы и исходя из суммарной протяженности городской дорожной сети ~ 2500 км со средней шириной полотна ~ 10 м, получим уже более реалистичную оценку эмиссии – 161 тыс. тонн).

Возможности моделирования регионального поля содержания NO_2 (в масштабе Санкт-Петербурга и его пригородов) с помощью HYSPLIT оценивались на примере нескольких дней летом и осенью 2010 года, когда выполнялись мобильные спектроскопические измерения (см. выше). В частности, были выполнены расчеты поля приземной концентрации NO_2 на срок 14:00 местного времени, результаты которых представлены на рисунке 19. Как видно из рисунка, концентрации NO_2 , рассчитанные для 4-х рассматриваемых дней, существенно отличаются как по абсолютной величине, так и по конфигурации пространственного распределения. Минимальные значения приземных концентраций получены 27 июля (54 мкг/м^3), а максимальные – 27 августа (166 мкг/м^3). При этом конфигурация пространственного распределения соответствует полю приземного ветра на срок расчетов: северо-восточный/западный 27/07/2010, восточный 17/08/2010, северный/северо-восточный 27/08/2010 и южный 16/09/2010. На рисунке 20 приведены также данные ежечасных приземных концентраций NO_2 по измерениям автоматических станций №15 (Кронштадт) и №21 (Ломоносов) в сравнении с результатами модельных расчетов HYSPLIT.

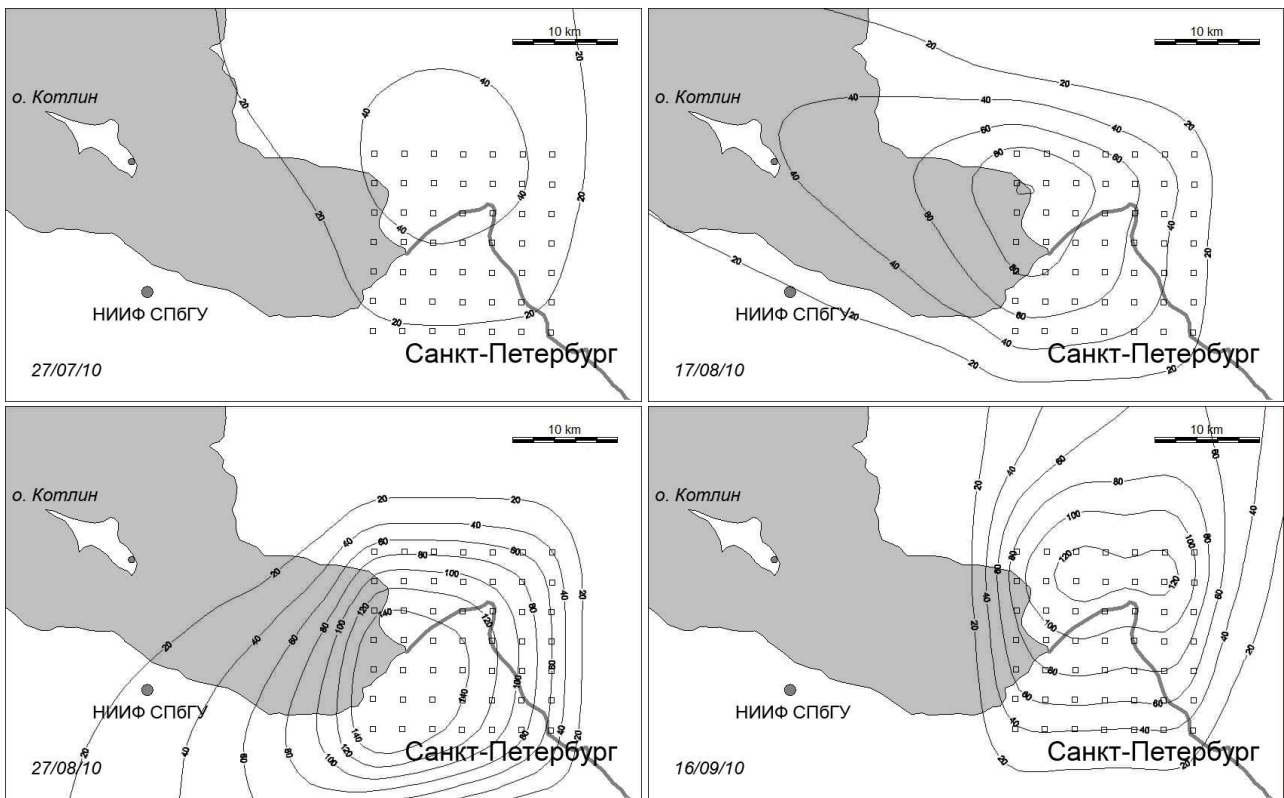


Рисунок 19 Результаты модельных расчетов приземной концентрации NO₂ в окрестностях Санкт-Петербурга (дисперсионная модель HYSPLIT, мкг/м³)

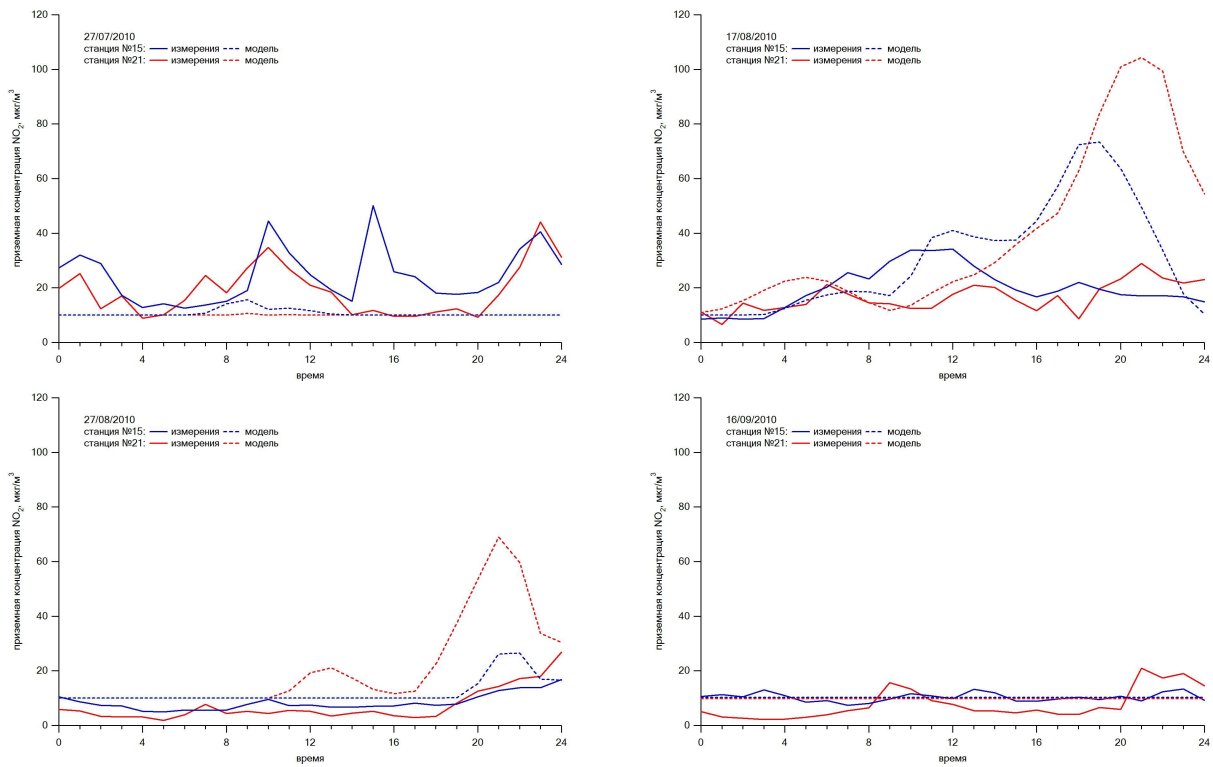


Рисунок 20 Данные ежечасных приземных концентраций NO₂ по измерениям автоматических станций №15 (Кронштадт) и №21 (Ломоносов) в сравнении с результатами модельных расчетов HYSPLIT (уровень 10 мкг/м³ – минимальная, фоновая концентрация)

Рассчитанные для этих точек концентрации в целом соответствуют направлению ветра (максимальные концентрации – 17/08/2010 и 27/08/2010, когда преобладает ветер со стороны Санкт-Петербурга), однако данные прямых приземных измерений, выполненных на автоматических станциях, этого не воспроизводят. Последнее может указывать на сильную локальную изменчивость приземных концентраций в условиях контактных измерений вблизи городской застройки, в отличие от более сглаженных данных модельных расчетов. С другой стороны, плохая согласованность результатов модельных расчетов с данными измерений может быть связана с известными недостатками модели – например, грубое пространственное разрешение, произвольно заданные источники эмиссии NO_x .

Для сравнений с данными спутниковых измерений тропосферного NO_2 (Aura OMI), выполненных в эти дни в районе Санкт-Петербурга, рассчитанные с помощью модели HYSPLIT концентрации NO_2 были проинтегрированы по всем уровням (~0-500 м). Полученные таким образом пространственные распределения тропосферного NO_2 представлены на рисунке 21, где также обозначены ближайшие к Санкт-Петербургу пиксели спутниковых измерений OMI с максимальными для этого дня значениями содержания NO_2 . Как видно из рисунка, рассчитанные поля тропосферного NO_2 качественно повторяют модельные пространственные распределения приземной концентрации (см. рисунок 19). Здесь следует отметить, что выбранные спутниковые измерения характеризуются существенно разной пространственной протяженностью – от ~10 км до ~100 км (номинальные горизонтальные размеры пикселя сканирования OMI в надире составляют $13 \times 24 \text{ км}^2$, однако в высоких широтах и на краях скана поперечный размер пикселя существенно превышает номинальные 24 км). Из результатов моделирования поля NO_2 ясно, что поле содержания NO_2 существенно неоднородно внутри зоны пространственного разрешения спутниковых измерений, что затрудняет прямые сопоставления данных этих измерений с независимой информацией – экспериментальной или рассчитанной. В тоже время можно сразу отметить, что каждый из выбранных пикселей спутниковых измерений, характеризующихся максимальным значением NO_2 , хотя бы частично перекрывает область наиболее высоких рассчитанных содержаний. В таблице 5 приводятся оценки максимальных значений приземной концентрации и тропосферного содержания NO_2 в районе Санкт-Петербурга, рассчитанных с помощью модели и измеренных со спутника, а также зарегистрированных в ходе мобильных спектроскопических измерений. Однозначную взаимосвязь между данными модели и результатами измерений проследить трудно, и в целом, рассчитанные содержания превышают измеренные со спутника, что объяснимо с учетом грубого пространственного разрешения этих измерений (см. рисунок 21). При этом, максимальные для рассмотренных дней содержания NO_2 регистрируются со спутника 27/07/10 ($15.7 \cdot 10^{15}$ молекул/ см^2), когда данные моделирования демонстрируют наиболее низкие значения приземной концентрации (53.9 мкг/м^3) и общего содержания ($27.2 \cdot 10^{15}$ молекул/ см^2). Напротив, в тот день когда по результатам модельных расчетов содержание NO_2 являются максимальным (27/08/10: 166.0 мкг/м^3 , $81.0 \cdot 10^{15}$ молекул/ см^2), измеренные со спутника максимальные значения оказываются минимальны ($1.9 \cdot 10^{15}$ молекул/ см^2). Возможно спутниковый прибор регистрирует высокие значения 27/07/10, поскольку в этот день выбранный пиксел OMI был наиболее близок к номинальному высокому разрешению и помещался весь внутри шлейфа городских загрязнений, тогда как 27/08/10 поле загрязнений хотя и характеризовалось более высоким уровнем, но выбранный пиксел OMI имел существенно большие геометрические размеры и лишь одним своим краем перекрывал область высоких содержаний NO_2 .

Содержания NO_2 , измеренные в эти дни с борта автомобиля, характеризуются более высокими, по сравнению с данными спутниковых измерений, значениями, и более близки по уровню к результатам моделирования – максимальное содержание было зарегистрировано 27/08/10 и составило $92.2 \cdot 10^{15}$ молекул/ см^2 (см. таблицу 5). Более детально сравнение результатов моделирования поля тропосферного содержания NO_2 с данными мобильных

измерений для рассматриваемых дней можно увидеть на рисунке 22. В целом, количественно результаты мобильных измерений с данными модели согласуются плохо, но качественно, рассчитанное пространственное распределение воспроизводится в данных измерений – повышенные содержания NO_2 ближе к центральной части Санкт-Петербурга. Исключение составляет 17/08/10, когда относительно высокие содержания регистрировались также и на маршруте в районе Петродворца. Однако для этого дня и данные моделирования демонстрируют примерно одинаковый уровень загрязнений на большей части маршрута (см. рисунок 22).

Таблица 5 Оценки максимальных значений приземной концентрации (ПК) и тропосферного содержания (ТС) NO_2 в районе Санкт-Петербурга, рассчитанных с помощью модели (HYSPLIT), измеренных со спутника (ОМІ) и зарегистрированных в ходе мобильных спектроскопических измерений

дата	HYSPLIT ПК, $\text{мкг}/\text{м}^3$	HYSPLIT ТС, 10^{15} молекул/ см^2	ОМІ ТС, 10^{15} молекул/ см^2	моб.изм-ния ТС, 10^{15} молекул/ см^2
27/07/2010	53.9	27.2	15.7	33.1
17/08/2010	99.6	46.6	5.5	19.3
27/08/2010	166.0	81.0	1.9	92.2
16/09/2010	126.8	51.6	6.6	18.2

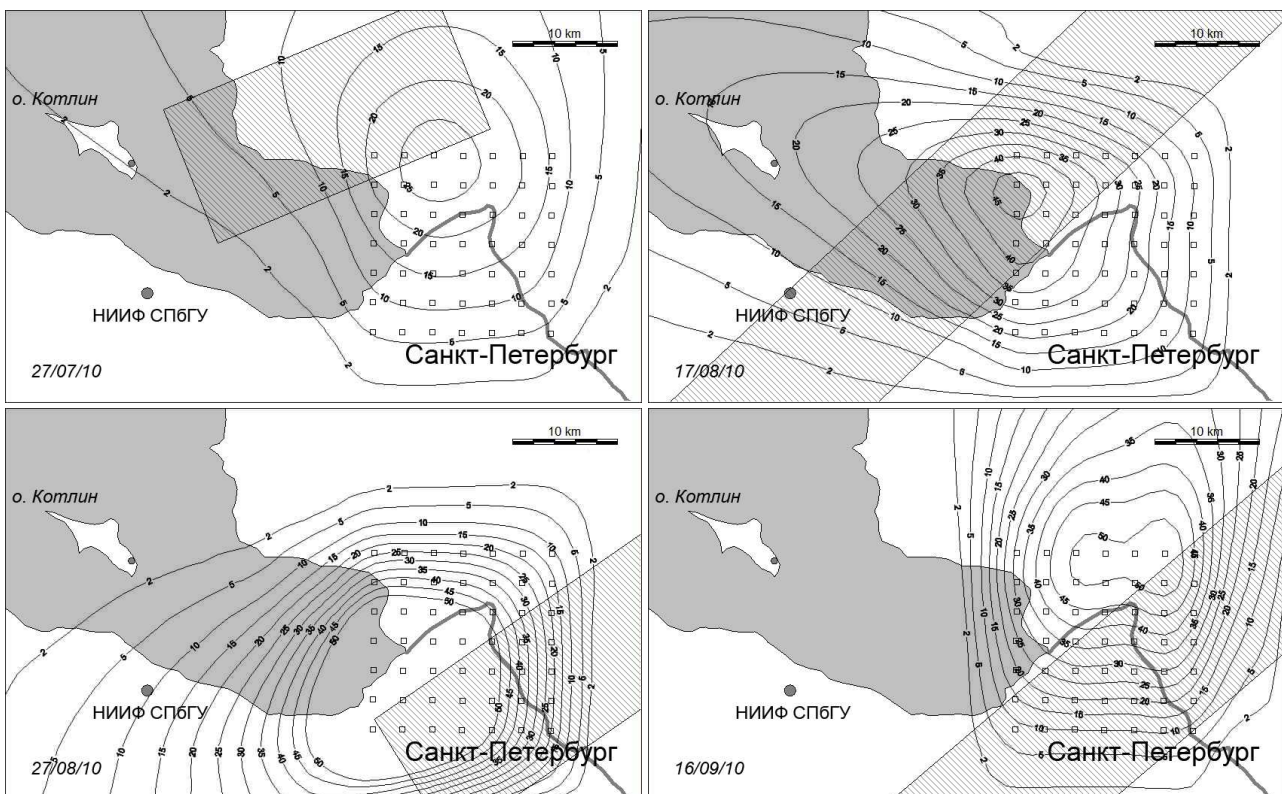


Рисунок 21 Результаты модельных расчетов тропосферного содержания NO_2 (~0-500 м) в окрестностях Санкт-Петербурга (дисперсионная модель HYSPLIT). Заштрихованный прямоугольники демонстрируют ближайший к Санкт-Петербургу пиксел спутниковых измерений прибора ОМІ (~14:00).

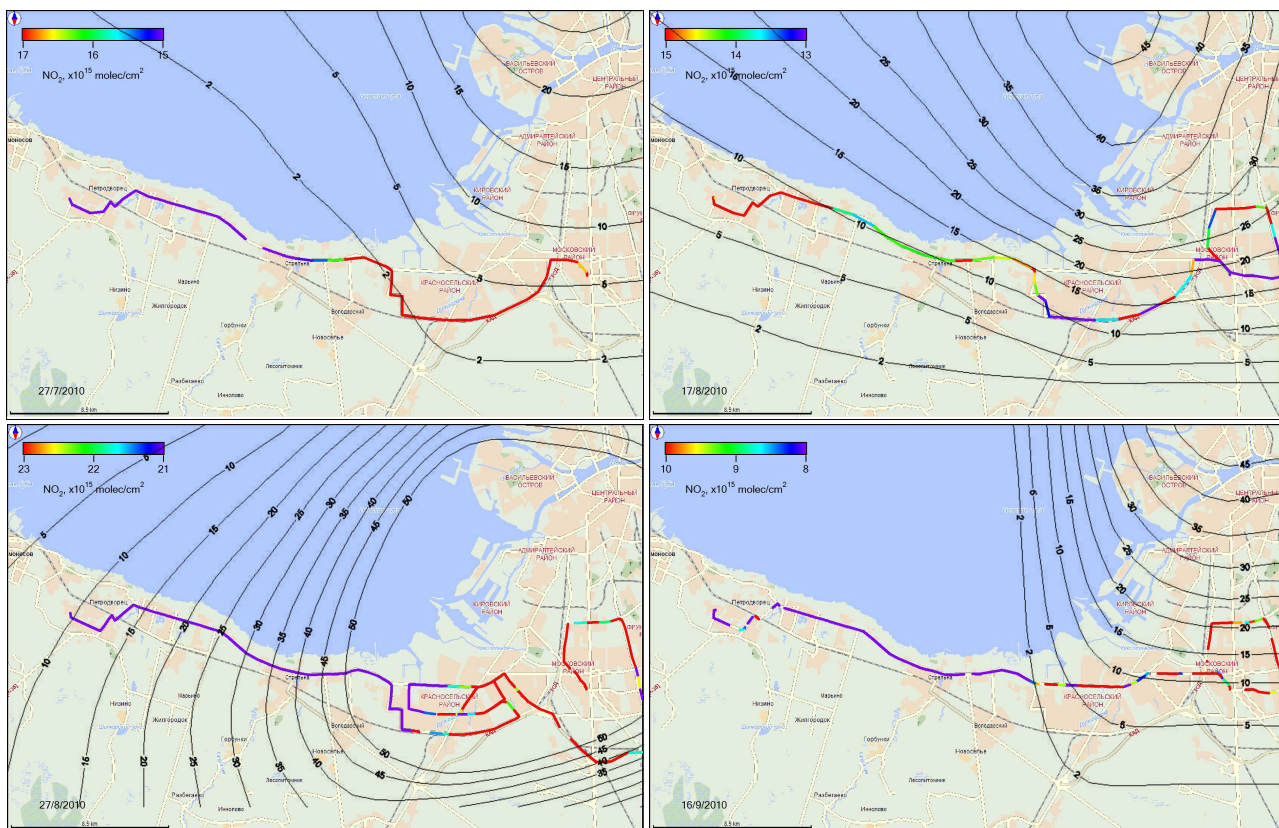


Рисунок 22 Сравнение результатов модельных расчетов тропосферного содержания NO_2 (~0-500 м) в окрестностях Санкт-Петербурга (дисперсионная модель HYSPLIT) с данными мобильных спектроскопических измерений.

5. РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ИСТОЧНИКОВ ЗАГРЯЗНЕНИЯ NO_x В С.-ПЕТЕРБУРГЕ

Для анализа пространственного распределения источников антропогенного загрязнения NO_x в Санкт-Петербурге были использованы данные по инвентаризации выбросов загрязняющих веществ, переданные НИИФ СПбГУ Комитетом по природопользованию охране окружающей среды и обеспечению экологической безопасности Администрации Санкт-Петербурга, в рамках действующего соглашения об информационном обмене и сотрудничестве. Полученная от Комитета информация представлена в виде географической базы данных о расположении зарегистрированных стационарных и передвижных источников, сопряженной с контекстными данными, характеризующими параметры источника, объем и состав его выброса. Стационарные источники представлены набором полигональных, линейных и точечных классов, а передвижные – набором полигональных классов пространственных объектов. Все пространственные данные представлены в координатной системе СК-64. Контекстная информация о стационарных источниках содержит код предприятия, высоту источника, температуру выбрасываемых газов, код вещества (согласно перечня [12]) и величину выброса (тонн/год); для передвижных источников – код вещества и величину выброса.

Всего, анализируемая база данных стационарных источников включает в себя информацию о 17730 точечных объектах (638 предприятий), 67 линейных объектах (13 предприятий) и 3783 полигональных объектах (667 предприятий). База данных передвижных источников насчитывает 1252 полигональных объекта. Чтобы использовать эти данные в качестве входной информации для расчетов численных моделей атмосферы, все линейные и

полигональные объекты были преобразованы к точечному представлению с помощью процедуры растеризации соответствующих векторных объектов (линий и полигонов). Размер ячейки раstra был задан равным 20 метрам, что позволяет идентифицировать городскую дорожную сеть при разумном количестве точечных объектов, необходимых для ее описания. Так, количество точечных источников для описания мобильных выбросов составило 37214, а для описания стационарных линейных и полигональных объектов пришлось ввести еще 423 и 70383 точечных источника, соответственно.

Данные инвентаризации выбросов, загрязняющих атмосферный воздух в Санкт-Петербурге, содержат информацию о целом ряде веществ – в частности, CO (угарный газ), SO₂ (диоксид серы), NO_x (окислы азота), NH₃ (аммиак), а также различные летучие органические соединения (VOC) и компоненты пыли (PM). Результаты вновь сформированной базы данных городских выбросов окислов азота (NO_x), адаптированной для использования в численных моделях в виде набора точечных источников, представлены в виде карт распределения стационарных и передвижных выбросов на рисунке 23. Полная база данных, представленная на рисунке, содержит 125750 точечных объектов.

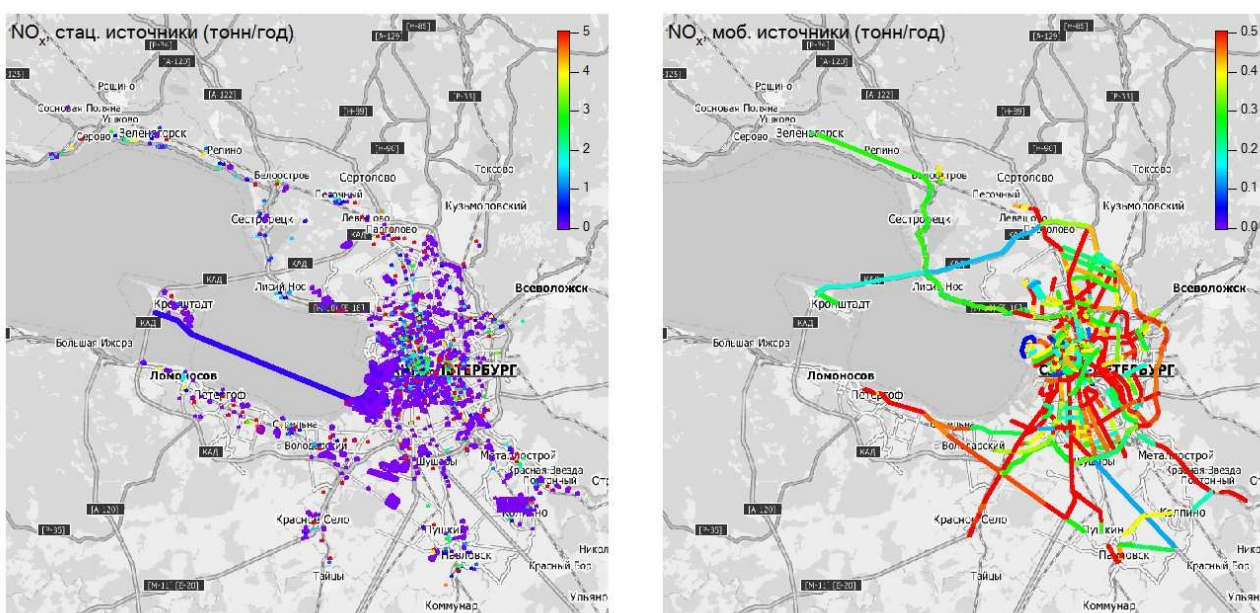


Рисунок 23 Распределение стационарных (слева) и передвижных (справа) источников источников загрязнения атмосферного воздуха в Санкт-Петербурге (согласно данным инвентаризации; информация Комитета по природопользованию охране окружающей среды и обеспечению экологической безопасности Администрации Санкт-Петербурга).

6. ИЗМЕРЕНИЯ ОБЩЕГО СОДЕРЖАНИЯ NO₂ ПО ПРЯМОМУ ИК-ИЗЛУЧЕНИЮ

Помимо традиционных спектроскопических измерений NO₂, осуществляемых в НИИФ СПбГУ на основе непрерывных наблюдений рассеянного в зените видимого солнечного излучения, весной 2009 года были начаты также периодические измерения общего содержания NO₂ с помощью наземного ИК метода. Для определения содержания NO₂ в атмосфере используются спектры прямого солнечного излучения, регистрируемые в дневное время в отсутствие (или частичной) облачности. Результаты этих измерений сравнивались с независимой информацией – данными измерений аппаратуры КСВУ (2009-2010 гг.) и OceanOptics (2009-2011 гг.), а также данными спутниковых измерений (приборы GOME, GOME-2, SCIAMACHY и OMI).

Измерения прямого солнечного излучения осуществлялись созданным в НИИФ СПбГУ спектральным комплексом, на базе спектрометра высокого разрешения Bruker-IFS125 HR и солнечной следящей системы для наведения на диск солнца. Прибор Bruker-IFS125 представляет собой инфракрасный (ИК) Фурье-интерферометр с спектральным разрешением до 0.002 см^{-1} в спектральной области 1-15 мкм [13]. Для определения атмосферного содержания NO_2 использовались измерения в спектральном микроокне $2914.6\text{-}2914.7 \text{ см}^{-1}$, которое включает в себя двойную колебательно-вращательную линию поглощения NO_2 с центрами при ~ 2914.6434 и $\sim 2914.6520 \text{ см}^{-1}$. Интерпретация спектров выполнялась с помощью программного обеспечения SFIT2 v3.93 [14], специально разработанного для решения обратных задач по восстановлению вертикальных распределений различных газов из наземных измерений ИК Фурье-интерферометров. Алгоритм SFIT2 основан на методе т.н. оптимальной оценки (или статистической регуляризации) и включает в себя прямой подход к расчету спектров пропускания в атмосфере (line by line). Необходимые для расчетов параметры тонкой структуры полос молекулярного поглощения были взяты из [15]. Априорная информация о состоянии атмосферы (профиль температуры и давления) на каждый день измерений заимствовались из данных ежедневного радиозондирования на станции Главной Геофизической Обсерватории в поселке Воейково [16].

Всего в период с апреля 2009 г. по октябрь 2011 г. было зарегистрировано и обработано 1052 спектра ИК-излучения с полосой поглощения NO_2 при $\sim 2914 \text{ см}^{-1}$, в течение 182 дней наблюдений (53 дня – в 2009 г., 56 дней – в 2010 г. и 73 дня – в 2011 г.). Основная масса измерений приходится на весенне-летний период (апрель-июль) и определяется благоприятными погодными условиями. Количество дней наблюдений в эти месяцы максимально (~ 30 дней в месяц за весь период 2009-2011 гг.); минимальное количество наблюдений выполнено в ноябре и декабре (по 3 дня за весь период 2009-2011 гг.). Количество спектров, зарегистрированных в течение дня, составляло от 1 до 16 (в среднем ~ 5). Все измерения выполнялись в дневное время: время записи самого раннего из зарегистрированных спектров – 09:17, время самого позднего – 20:26 (время местное, летнее). Среднее время наблюдений примерно соответствует местному полудню, 14:08. Максимальная продолжительность наблюдений в течение дня составляла до 9.5 часов, в среднем ~ 3 часов. Измерения выполнялись в широком диапазоне высоты солнца над горизонтом – зенитный угол составлял от 36° до 86° (в среднем $\sim 54^\circ$).

Используемая для определения содержания NO_2 в атмосфере полоса поглощения в микроокне $\sim 2914 \text{ см}^{-1}$ представлена на рисунке 24. Рисунок содержит пример интерпретации спектра прямого солнечного излучения, зарегистрированного в НИИФ СПбГУ 11 апреля 2010 г.. В решении соответствующей обратной задачи минимизируется расхождение (residual) между измеренным (measurement) и рассчитанным на основе модели радиационного переноса спектром излучения (simulation). Помимо NO_2 , в расчете учитывались также незначительные вклады молекулярного поглощения некоторыми другими компонентами – водяной пар (H_2O), метан (CH_4) и полутяжелая вода (HDO). Поиск решения (содержания NO_2) представляет собой итерационный процесс, критерием завершения которого является сходимость задачи – т.е. соответствие спектральной невязки (residual) величине шума измерений прибора. Поэтому оценка этой величины имеет важное значение при интерпретации измерений, и учитывается в алгоритме решения как параметр отношения сигнал/шум. Для измерения, представленного на рисунке, это отношение составило 921. В целом, отношение сигнал/шум менялось от 44 до 1247 и в среднем составляло 546. При этом, оценки случайной погрешности единичного измерения вертикального содержания NO_2 варьировались от 7.8% до 17.9%, составляя в среднем 8.4%.

Реализованная в алгоритме SFIT схема интерпретации измерений предполагает варьирование профиля вертикального распределения NO_2 в атмосфере относительно априорного. В качестве последнего использовался профиль из стандартной среднегодовой модели U.S. Standard [17]. Априорная неопределенность этого профиля была задана в форме модельной ковариационной матрицы с радиусом корреляции 5 км и величиной

неопределенности 50% на каждом уровне. Вертикальные профили других компонент – H₂O, CH₄ и HDO – не варьировались, менялось только общее содержание, т.е. профиль масштабировался по всей высоте.

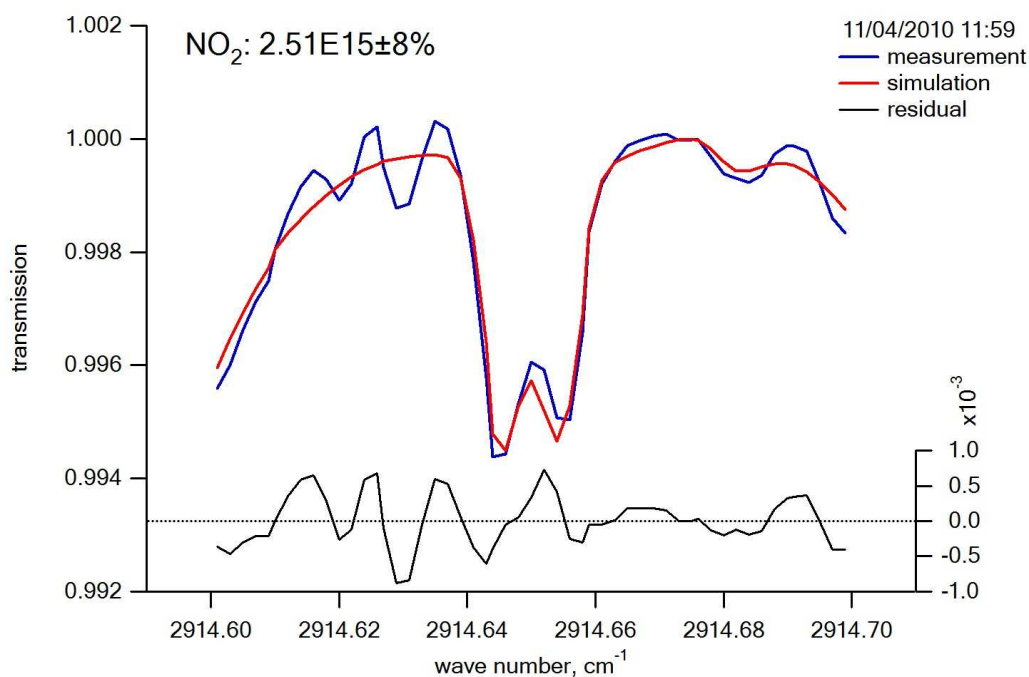


Рисунок 24 Спектральное микроокно с полосой поглощения NO₂ (двойная линия), используемое для восстановления общего вертикального содержания NO₂ в атмосфере. Измерение выполнено с помощью спектрометра Bruker-IFS125 HR в Петродворце. Полученная величина вертикального содержания NO₂ составила $2.51 \cdot 10^{15}$ молекул/см² (зенитный угол солнца ~58°).

Следует отметить, что реальное вертикальное распределение NO₂ в атмосфере по видимому существенно отличается от выбранного нами априорного профиля, главным образом – в тропосфере, особенно в приземном слое. Вблизи Санкт-Петербурга содержание NO₂ в нижней тропосфере может существенно превышать фоновые значения, что подтверждается результатами независимых наземных и спутниковых измерений (см. выше). Однако, проведенные нами многочисленные тесты и численные эксперименты с использованием различных видов априорного профиля с повышенным тропосферным содержанием NO₂ выявили отсутствие хоть сколько-нибудь достоверной чувствительности данного метода измерений к вариациям содержания NO₂ в тропосфере. В качестве иллюстрации, на рисунке 25 приведены рассчитанные на основе моделей переноса излучения т.н. усредняющие ядра различных методов, используемых для измерений общего вертикального содержания NO₂ в атмосфере. Для расчетов усредняющих ядер в видимой области спектра использовалась радиационная модель SCIATRAN [18], а ядра измерений ИК излучения рассчитывались средствами алгоритма SFIT. Как видно из рисунка, все три метода измерений демонстрируют хорошую чувствительность к вариациям содержания NO₂ в стратосфере (ядра близки к 1 на высотах ~20-30 км), но в тропосфере с уменьшением высоты эта чувствительность падает, и особенно быстро – для наземных измерений FTIR. Таким образом, можно считать, что результаты наземных измерений FTIR, как и сумеречных DOAS, несут в себе информацию о стратосферной компоненте общего вертикального содержания и нечувствительны к вариациям NO₂ в тропосфере.

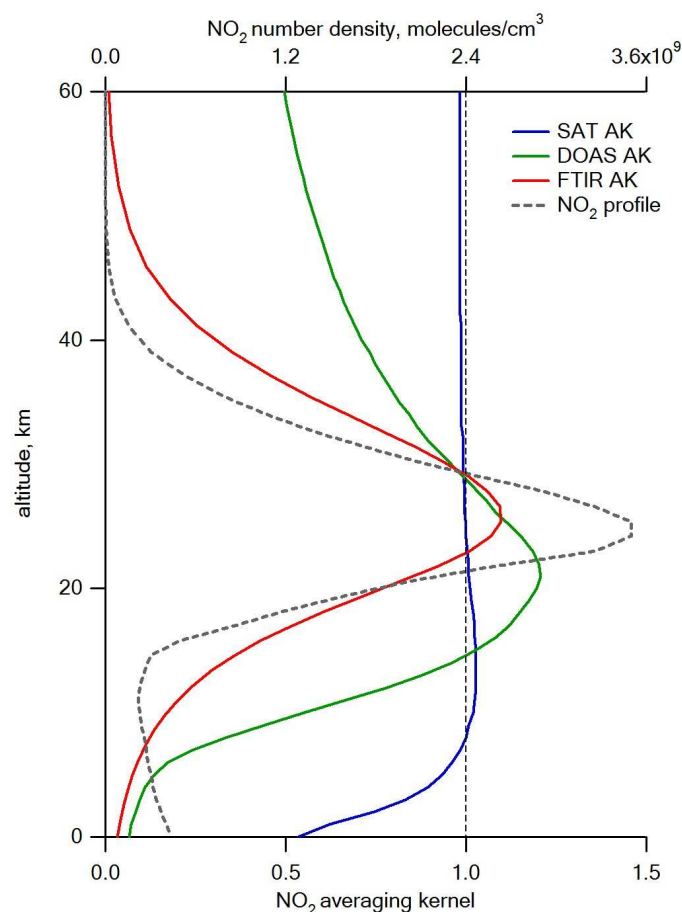


Рисунок 25 Усредняющие ядра (averaging kernel, АК) обратной задачи по определению общего вертикального содержания NO_2 в атмосфере, рассчитанные для различных методов измерений: рассеянного видимого излучения – наземных сумеречных (DOAS) и дневных спутниковых (SAT), и дневных наземных измерений прямого ИК излучения (FTIR).

Проинтерпретированные данные измерений содержания NO_2 были сопоставлены с результатами независимых измерений: это собственные наземные сумеречные измерения НИИФ СПбГУ (аппаратура OceanOptics), а также данные синхронных спутниковых измерений, выполненных вблизи Санкт-Петербурга различными приборами – ERS-2 GOME, Envisat SCIAMACHY и Aura OMI. Для сравнений использовались среднедневные значения содержания NO_2 по измерениям Bruker, полученные как средневзвешенное с учетом случайной погрешности каждого единичного измерения. Результаты наземных сумеречных измерений (DOAS) с помощью т.н. боксовой фотохимической модели суточного цикла NO_2 [19] приводятся ко времени местного полудня (в качестве среднедневного значения используется полусумма приведенных к полудню утреннего и вечернего измерений). Эта же модель используется и для приведения к полудню дневных измерений спутниковых приборов, время пролета которых над Санкт-Петербургом может отличаться для разных аппаратов на несколько часов. Данные среднедневных вертикальных содержаний NO_2 , полученных из измерений Bruker в 2009-2011 гг., представлены на рисунке 26; здесь же изображены данные всех независимых измерений – наземных (DOAS) и спутниковых (GOME, SCIAMACHY и OMI). Численные оценки результатов сопоставления в виде средних расхождений и коэффициента корреляции, приведены в таблице 6. Количество сравниваемых между собой среднедневных значений содержания NO_2 составило от 140 до 180, в зависимости от источника независимых данных. Согласно данным таблицы, наиболее близко данные измерений Bruker согласуются с результатами наземных сумеречных измерений DOAS и данными дневных спутниковых измерений OMI и SCIAMACHY

(среднеквадратичное расхождение $\sim 13\div 15\%$, коэффициент корреляции $\sim 0.84\div 0.91$), поскольку эти данные, как и Bruker, представляют собой оценку вертикального содержания NO_2 отдельно в стратосфере. С данными измерений спутникового прибора GOME результаты измерений Bruker согласуются существенно хуже (среднеквадратичное расхождение 28%, коэффициент корреляции 0.43), так как используемые нами данные GOME дают оценку вертикального содержания NO_2 во всей толще атмосферы, включая загрязненную тропосферу; кроме того пространственное разрешение измерений GOME существенно хуже (~ 300 км), по сравнению с приборами OMI и SCIAMACHY ($\sim 20\div 40$ км).

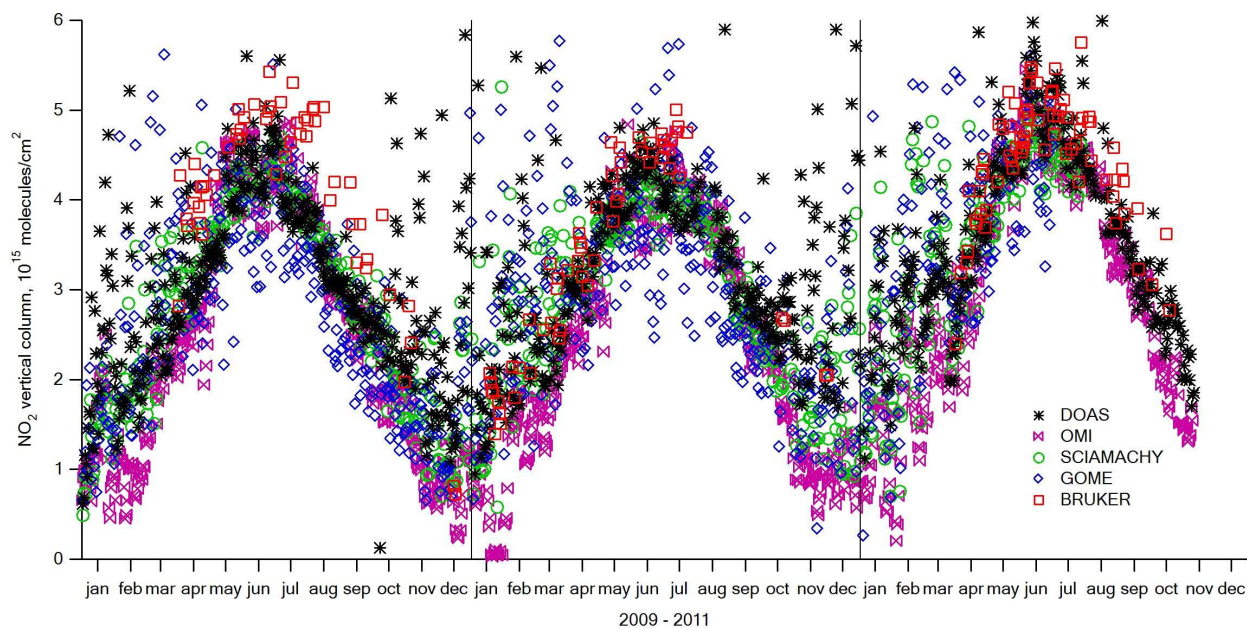


Рисунок 26 Среднедневное вертикальное содержание NO_2 в атмосфере, полученное по результатам наземных измерений FTIR (Bruker) в НИИФ СПбГУ, а также наземным сумеречным измерениям (DOAS) и дневным спутниковым измерениям приборами GOME, SCIAMACHY и OMI.

Таблица 6 Оценки расхождений между результатами измерений FTIR (Bruker) и данными независимых измерений вертикального содержания NO_2 , выполненных в районе Санкт-Петербурга в 2009-2011 гг. Приведены значения среднего (Δ) и среднеквадратичного (σ) отклонений для разницы “Bruker – другой прибор” в относительных единицах (%), а также коэффициент корреляции R .

	Δ	σ	R
DOAS	+9	13	0.88
ERS-2 GOME	+6	28	0.43
Envisat SCIAMACHY	+9	15	0.84
Aura OMI	+18	14	0.91

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В рамках представленной научно-исследовательской работы проинтерпретированы данные наземных наблюдений за содержанием NO_2 и O_3 в атмосфере на основе измерений рассеянного в зенит видимого солнечного излучения в Санкт-Петербурге в 2004-2011 гг. Все измерения обработаны по единой стандартной методике WinDOAS, разработанной для международной сети станций NDACC (<http://www.ndacc.org>). Результаты интерпретации – данные ежедневных сумеречных измерений стратосферных содержаний NO_2 и O_3 , а также дневных измерений тропосферного содержания NO_2 доступны в сети Интернет в реальном времени (http://troll.phys.spbu.ru/Personal_pages/Ionov/welcome.html). В 2011 году продолжались начатые в июне 2008 г. одновременные DOAS-измерения содержания NO_2 и O_3 с помощью компактного автоматического спектрометра высокого разрешения OceanOptics HR4000 в видимой области спектра, а также аналогичные измерения содержания O_3 спектрометром OceanOptics HR4000 в УФ области спектра (с мая 2009 г.).

Проведены сопоставления данных сумеречного зондирования стратосферных содержаний NO_2 и O_3 в районе Санкт-Петербурга с данными дневных измерений различной спутниковой аппаратурой – ERS-2 GOME, ENVISAT SCIAMACHY, AURA OMI. В среднем, отмечено хорошее согласие между данными согласованных спутниковых и наземных измерений – так, средние расхождения составили $\sim 2 \div 17\%$ и $\sim 10 \div 12\%$ для NO_2 и O_3 , соответственно. Результаты наземных измерений O_3 (в видимой области спектра) оказываются систематически ниже спутниковых данных. Кроме того, в результатах многолетних сопоставлений отмечено постепенное изменение (тренд) величины расхождения между данными спутниковых и наземных измерений – со средней скоростью $\sim 3 \div 4\%$ и $\sim 1 \div 2\%$ для стратосферного NO_2 и O_3 , соответственно. Такой тренд может указывать либо на долговременные изменения вертикального распределения характеристик атмосферы, либо на неучтенные изменения характеристик наземной измерительной аппаратуры.

Изучены вариации содержания тропосферного NO_2 в Санкт-Петербурге, как на основе данных наземных спектроскопических измерений НИИФ СПбГУ, так и данных дистанционного спутникового зондирования (аппаратура GOME, SCIAMACHY, OMI), а также прямых измерений приземных концентраций NO_2 Автоматизированной системой мониторинга атмосферного воздуха Санкт-Петербурга. Получены согласованные оценки недельного цикла вариаций NO_2 вблизи мегаполиса Санкт-Петербурга по имеющимся данным дистанционных и прямых измерений, с характерным минимумом содержания NO_2 в выходные дни, $\sim 20\%$ от максимума в будни (в данных спектроскопических измерений НИИФ СПбГУ в Петродворце минимальное значение смещено от воскресенья к понедельнику). Более детальный анализ недельного цикла в данных спутниковых и наземных измерений, с привлечением расчетов транспортно-химической модели, может позволить независимо определить время жизни NO_2 в тропосфере.

Проанализирован многолетний ряд спутниковых наблюдений содержания NO_2 в тропосфере России в 1996-2011 гг. по данным измерений аппаратуры GOME, SCIAMACHY и OMI. Выявлен заметный рост тропосферного содержания NO_2 в районе города Санкт-Петербург – оценка линейной скорости роста составляет около 4% в год. Наблюдаемый рост NO_2 в районе Санкт-Петербурга может свидетельствовать о пропорциональном росте антропогенной эмиссии NO_x , что косвенно подтверждается анализом независимой информации.

С помощью спектрометра OceanOptics осуществлены эпизодические измерения тропосферных содержаний NO_2 в центральной части города (Васильевский остров), демонстрирующие существенно более высокие тропосферные содержания NO_2 , по сравнению с аналогичными измерениями в Петродворце. Разработана, реализована и апробирована полностью автоматизированная система дистанционных спектроскопических измерений тропосферного NO_2 на основе аппаратуры OceanOptics, для мобильных измерений в реальном масштабе времени. Эта система может быть, в частности,

использована для независимой объективной оценки интегрального выброса NO_x всем мегаполисом Санкт-Петербурга (при измерениях на замкнутых кольцевых маршрутах).

Продемонстрированы возможности моделирования регионального поля содержания NO_2 с помощью дисперсионной модели HYSPLIT, на примере нескольких дней летом и осенью 2010 года, когда выполнялись также мобильные спектроскопические измерения в районе Санкт-Петербурга. Суммарная городская эмиссия NO_x была задана в модели на основе приближенной оценки, полученной ранее в [10]. Были выполнены модельные расчеты полей приземной концентрации и интегрального содержания NO_2 в приземном слое 0-500 метров; результаты сопоставлены с данными городской системы автоматизированного мониторинга качества воздуха (приземные концентрации NO_2), данными спутниковых и мобильных наземных спектроскопических измерений содержания NO_2 в тропосфере. Зачастую, согласие между сравниваемыми системами наблюдений неудовлетворительное, что можно объяснить существенными различиями в их пространственном разрешении, на фоне сильной локальной изменчивости приземных концентраций NO_2 . Следует отметить, что в представленных модельных расчетах количество, расположение и интенсивность источников воздушного загрязнения были заданы произвольно. В дальнейшем планируется учесть существующую объективную информацию об основных источниках эмиссии NO_x .

Выполнен предварительный анализ пространственного распределения источников антропогенного загрязнения NO_x в Санкт-Петербурге на основе официальных данных инвентаризации выбросов загрязняющих веществ. Для использования этой информации в качестве входных данных расчетов численной модели атмосферы, существующее векторная база данных источников была преобразована к точечному представлению с помощью процедуры растеризации соответствующих векторных объектов (линий и полигонов).

Проинтерпретированы результаты наземных измерений прямого солнечного излучения с помощью установленного в Петродворце спектрометра высокого разрешения Bruker-IFS125 HR, позволяющие получить новую дополнительную информацию о содержании NO_2 в стратосфере. Выполнены сравнения полученных данных с результатами независимых наземных и спутниковых измерений в 2009-2011 гг.

По результатам проведенных исследований подготовлен настоящий научно-технический отчет, подготовлена к публикации одна статья [10], сделано 5 сообщений на международных конференциях [20-24].

ЛИТЕРАТУРА

1. HR4000 High-Resolution Spectrometer, <http://www.oceanoptics.com/Products/hr4000.asp>
2. Поберовский А.В., Шашкин А.В., Ионов Д.В., Тимофеев Ю.М. Вариации содержания NO_2 в районе Санкт-Петербурга по наземным и спутниковым измерениям рассеянного солнечного излучения // Известия РАН, Физика атмосферы и океана. 2007. Т.43. N.4. С.547-556.
3. Beirle S., Platt U., Wenig M., Wagner T. Weekly cycle of NO_2 by GOME measurements: a signature of anthropogenic sources // Atmos. Chem. Phys., 3, 2225-2232, 2003.
4. Ситнов С.А. Анализ спутниковых наблюдений тропосферного содержания NO_2 над Московским регионом // Известия РАН, Физика атмосферы и океана. 2011. Т.47. N.2. С.184-203.
5. Ионов Д.В., Тимофеев Ю.М. Региональный космический мониторинг содержания двуокси азота в тропосфере // Известия РАН, Физика атмосферы и океана. 2009. Т.45. N.4. С.467-476.
6. Ionov D.V. Tropospheric NO_2 trend over St. Petersburg (Russia) as measured from space // Russ. J. Earth. Sci., 11, ES4004, doi:10.2205/2010ES000437, 2010.
7. Beirle S., and Wagner T. Weekly cycle of NO_2 revisited // EGU General Assembly 2009, Vienna, Austria, 19-24 April 2009, Geophysical Research Abstracts, Vol. 11, 12633, 2009.

8. Ионов Д.В. Проблема валидации данных спутниковых измерений газового состава атмосферы на примере задачи глобального мониторинга общего вертикального содержания озона и двуокси азота // Юбилейный сборник: "Физика атмосферы: наука и образование", 11-13 сентября 2007, Санкт-Петербург, с.66-80
9. Draxler, R.R. and G.D. Hess, An overview of the HYSPLIT-4 modelling system for trajectories, dispersion and deposition // Australian Meteorological Magazine, 47(4), 295-308, 1998.
10. Ионов Д.В., Поберовский А.В. Двуокись азота в воздушном бассейне Санкт-Петербурга: дистанционные измерения и численное моделирование // Известия РАН, Физика атмосферы и океана. 2012. в печати.
11. NCEP Global Data Assimilation System, <http://ready.arl.noaa.gov/gdas1.php>
12. Перечень и коды веществ, загрязняющих атмосферный воздух, НИИ Атмосфера, Санкт-Петербург, 2005.
13. Поберовский А.В. Наземные измерения ИК-спектров солнечного излучения с высоким спектральным разрешением // Оптика атмосферы и океана. 2010. Т.23. N.1. С.56-58.
14. Rothman L.S., et al. The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database // J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer., 96, 139-204, 2005.
15. Hase F., Hannigan J.W., Coffey M.T., Goldman A., Hopfner M., Jones N.B., Rinsland C.P., and Wood, S.W. Intercomparison of retrieval codes used for the analysis of high-resolution groundbased FTIR measurements // J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer., 87, 25-52, 2004.
16. University of Wyoming, Upper Air Data, Soundings, <http://weather.uwyo.edu/upperair>
17. U.S. Standard Atmosphere, http://modelweb.gsfc.nasa.gov/atmos/us_standard.html
18. Rozanov V.V., M. Buchwitz, K.-U. Eichmann, de Beek R., and J.P. Burrows SCIATRAN – a new radiative transfer model for geophysical applications in the 240-2400 nm spectral region: the pseudo-spherical version // Adv. Space Res., 29 (11), 1831-1835, 2002.
19. Denis L., H.K. Roscoe, M.P. Chipperfield, M. Van Roozendal, and F. Goutail, A new software suite for NO₂ vertical profile retrieval from ground-based zenith-sky spectrometers // J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 92 (3), 321-333, 2005.
20. Virolainen Y., Timofeyev Y., Rakitin A., Poberovsky A., Makarova M., Polyakov A., Ionov D., Kostsov V. Ground-based spectroscopic studies of atmospheric gaseous composition // EGU General Assembly 2011, Vienna, Austria, 3-8 April 2011, Geophysical Research Abstracts, Vol. 13, 5591, 2011.
21. Тимофеев Ю.М., Поберовский А.В., Макарова М.В., Поляков А.В., Ионов Д.В., Виролайн Я.А., Ракитин А.В., Кшевецкая М.А., Яговкина И.С., Осипов С.И., Имхасин Х.Х. Комплексные наземные исследования газового состава атмосферы в Петергофе // Материалы конференции: Международный Симпозиум стран СНГ "Атмосферная Радиация и Динамика", 21-24 июня 2011, Санкт-Петербург, с.13
22. Кшевецкая М.А., Поберовский А.В., Тимофеев Ю.М., Макарова М.В., Ионов Д.В. Наземные ИК измерения общих содержаний оксидов азота в атмосфере вблизи Санкт-Петербурга // Материалы конференции: Международный Симпозиум стран СНГ "Атмосферная Радиация и Динамика", 21-24 июня 2011, Санкт-Петербург, с.55
23. Ионов Д.В., Кшевецкая М.А., Поберовский А.В., Тимофеев Ю.М. Сравнения наземных и спутниковых измерений вертикального содержания двуокси азота в районе Санкт-Петербурга // Материалы конференции: Международный Симпозиум стран СНГ "Атмосферная Радиация и Динамика", 21-24 июня 2011, Санкт-Петербург, с.53
24. Ионов Д.В., Поберовский А.В. Мобильные наземные измерения тропосферного содержания двуокси азота в районе Санкт-Петербурга // Материалы конференции: Международный Симпозиум стран СНГ "Атмосферная Радиация и Динамика", 21-24 июня 2011, Санкт-Петербург, с.73