

УДК 551.506 + 551.510.41 + 551.510.42

Численное исследование процессов переноса и трансформации газовых и аэрозольных примесей в шлейфе выбросов Норильского промышленного района

В.Ф. Рапута¹, Д.В. Симоненков², Б.Д. Белан², Т.В. Ярославцева^{3*}

¹ *Институт вычислительной математики и математической геофизики СО РАН
630090, г. Новосибирск, пр. Академика Лаврентьева, 6*

² *Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН
634055, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1*

³ *Новосибирский НИИ гигиены Федеральной службы по надзору
в сфере защиты прав потребителей и благополучия человека
630108, г. Новосибирск, ул. Пархоменко, 7*

Поступила в редакцию 19.01.2018 г.

Предложены модели оценивания средних и максимальных концентраций химически активных примесей в поперечных сечениях шлейфа их выноса от удаленного стационарного источника. Апробация моделей проведена на данных самолетного зондирования многокомпонентного загрязнения зимней атмосферы Норильского промышленного района. Численно исследован процесс активного перехода газ → частица, наблюдаемый на удалении 58–103 км от источника выбросов. Получены средние и максимальные оценки скоростей окисления серы в зимней полярной атмосфере, которые составили 0,027–0,034 и 0,055–0,07 ч⁻¹ соответственно.

Ключевые слова: атмосфера, загрязнение, модель, параметр, оценка, трансформация примеси; atmosphere, pollution, model, parameter, assessment, impurity transformation.

Введение

Атмосферные выбросы загрязняющих веществ Норильского промышленного района оказывают значительное влияние на окружающие территории. Деграция растительности наблюдается на расстояниях до 200 км от промышленной зоны. Это подтверждается как данными наземного мониторинга, так и самолетными и спутниковыми наблюдениями [1–4].

Для описания процессов переноса и трансформации примесей от промышленных источников могут быть использованы различные модели гидротермодинамики атмосферы. При наличии необходимой входной информации они дают возможность провести численное моделирование полей гидрометеорологических элементов и полей концентраций примесей [5–10]. В противном случае эти расчеты приобретают сценарный характер и не позволяют устанавливать однозначную связь с реальными процессами загрязнения территорий.

В такой ситуации представляется целесообразным применение компромиссного подхода, основанного на использовании модельных описаний процессов переноса примесей и данных наблюдений в рамках постановок обратных задач анализа и планирования эксперимента [11–13]. Для получения корректных математических постановок этих задач необходимо проведение дополнительного комплекса аналитических и численных исследований, которые направлены на получение стилизованных описаний процессов загрязнения, соответствующих данным мониторинга и совместимых с экспериментальными возможностями.

При анализе процессов загрязнения пограничного слоя атмосферы на значительном удалении от источников примеси допустимы существенные упрощения. Зависимость концентрации примеси от расстояния определяется сравнительно небольшим числом параметров. Наиболее значимыми являются: интенсивность источника, высота слоя перемешивания и средняя скорость ветра в нем, поперечная дисперсия, коэффициенты химической трансформации примесей. Использование методов теории подобия, асимптотических методов позволяет получать эффективные модели оценивания полей концентраций примесей по данным наблюдений [12, 14, 15].

* Владимир Федотович Рапута (raputa@sccc.ru); Денис Валентинович Симоненков (simon@iao.ru); Борис Денисович Белан (bbd@iao.ru); Татьяна Владимировна Ярославцева (tani-ta@list.ru).

Цель работы – определение количественных характеристик переноса и трансформации примесей по результатам комплексного зондирования зимней атмосферы Норильского промышленного района с использованием самолета-лаборатории Ан-30 «Оптик-Э» [16].

Объекты и методы исследований

Объектом исследования являлся суммарный шлейф аэрозольно-газовых выбросов трех основных заводов Норильского горно-металлургического комбината, два из которых расположены на окраинах непосредственно г. Норильска, а один – в городе-спутнике Кайеркан между Норильском и аэропортом Алыкель. Измерение концентраций газов и отбор аэрозольных примесей выполнялись 10.11.2002 г. по основному направлению сноса воздушной массы на удалении от 20 до 140 км на запад-юго-запад от Норильска на нескольких высотных площадках от 400 до 1200 м над ур. м. равноудаленными галсами (от 3 до 6 на каждой высотной площадке), перпендикулярными основному направлению распространения шлейфа. Исследование площадок 600 м и выше показало быстрое приближение концентраций газов и аэрозольных примесей к фоновым с высотой. Основная часть шлейфа концентрировалась на уровне 400 м. Маршрут зондирования на этом высотном горизонте изображен на рис. 1. Измерение газовых компонентов велось непрерывно, аэрозольные пробы отбирались на фильтры АФА-ХП-20 – на каждом прямолинейном участке маршрута отбиралась отдельная проба. Первый галс (прямолинейный участок маршрута) располагался по нормали к среднему направлению ветра на расстоянии 58 км от Норильска, последний (шестой) – на расстоянии 103 км.

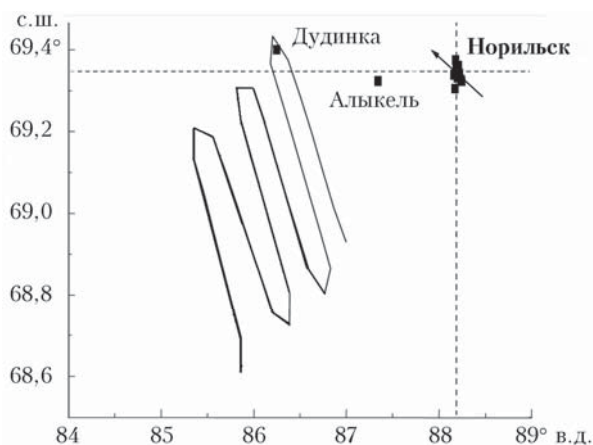


Рис. 1. Схема выполнения самолетного зондирования 10.11.2002 г. в шлейфе выноса примесей от Норильского промышленного района на высоте 400 м

Методика эксперимента, характеристики газоанализаторов и методов количественного физико-химического анализа аэрозольного вещества на фильтрах подробно приведены в пионерном описа-

нии данного летного эксперимента [16]. Там же отмечалось, что основной вклад в загрязнение воздуха Норильского промышленного района дают выбросы от добычи и переработки сульфидных руд цветных металлов. Обжиг руды приводит к окислению сульфидной серы до газообразного сернистого ангидрида, который составляет 96% массы от общих выбросов, т.е. главными компонентами, выносимыми из города по атмосферному каналу, являются кислотные оксиды серы в газовой фазе. Согласно теории [17–19] процессы химической трансформации серы происходят по схеме $H_2S \rightarrow SO_2 \rightarrow H_2SO_3 \rightarrow H_2SO_4 \rightarrow M(HSO_4)_m \rightarrow M_2(SO_4)_m$, где M^{m+} – катион любого металла.

В утренние часы 10.11.2002 г. погоду в районе Норильска определяла центральная часть заполняющегося циклона с приземными фронтами, затем наблюдалось малоградиентное поле пониженного давления. Воздушная масса была арктическая. Более подробно метеосиноптическое описание эксперимента также представлено в [16].

Результаты измерений на высоте 400 м приведены в таблице и на рис. 2.

Средние концентрации отдельных химических компонентов аэрозоля, сернистого ангидрида и суммарная концентрация всех определявшихся в аэрозоле ионов элементов на маршрутных площадках в районе Норильска

| Расстояние от города, км | Средняя концентрация, мкг/м ³ | | | | | | | Сумма всех ионов и элементов |
|--------------------------|--|------|-----------------|-----------------|-------|-------------------------------|-----------------|------------------------------|
| | Pb | Ni | Cl ⁻ | Br ⁻ | Ca | SO ₄ ²⁻ | SO ₂ | |
| 58 | 1,42 | – | 2,14 | 0,71 | 45,59 | 2,85 | 71,9 | 71,2 |
| 65 | 1,53 | – | 4,08 | 0,51 | 31,75 | 7,53 | 62,5 | 51,0 |
| 73 | – | 1,25 | 1,99 | 0,99 | 12,56 | 6,60 | 64,3 | 24,9 |
| 82 | 0,83 | 0,62 | 1,87 | 0,83 | 5,93 | 8,97 | 72,8 | 20,8 |
| 92 | 0,68 | 0,68 | 1,60 | 0,68 | 1,03 | 5,75 | 103,4 | 11,4 |
| 103 | – | – | – | – | 16,86 | 5,69 | 123,2 | 25,75 |

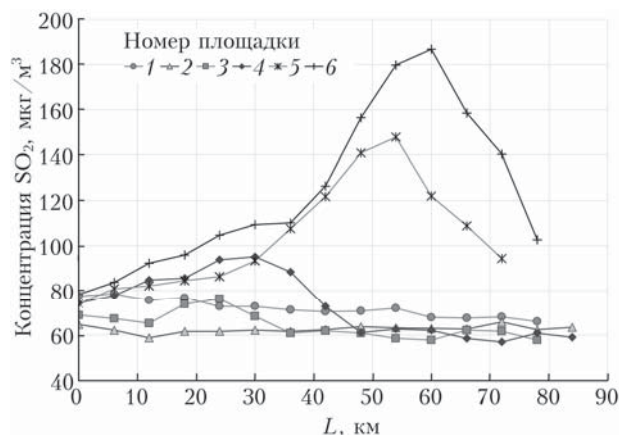


Рис. 2. Изменение концентрации SO₂ на площадках 1–6 (расстояние L для всех площадок указано от момента установки или снятия фильтропроб на южных разворотах самолета-лаборатории)

Модели оценивания полей концентраций в шлейфе выброса

В основу моделей оценивания полей концентраций по данным наблюдений положено следующее соотношение баланса массы слабооседающей пассивной и химически активной примеси, поступающей из стационарного точечного источника в пограничный слой атмосферы [14, 15]:

$$u(z) \frac{\partial q}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial y} \mu(z) \frac{\partial q}{\partial y} + \frac{\partial}{\partial z} v(z) \frac{\partial q}{\partial z} - \alpha q \quad (1)$$

со следующими граничными условиями:

$$v(z) \frac{\partial q}{\partial z} \Big|_{z=0, z=h} = 0, \quad q \rightarrow 0 \text{ при } |y| \rightarrow \infty. \quad (2)$$

$$u(z)q \Big|_{x=0} = M\delta(y)\delta(z-H), \quad (3)$$

где ось x ориентирована в направлении горизонтального ветра; ось y — в поперечном направлении; $u(z)$ — скорость ветра; $\mu(z)$, $v(z)$ — коэффициенты горизонтального и вертикального турбулентных обменов; α — коэффициент химической трансформации; M , H — мощность и высота источника примеси. Полагая

$$\mu(z) = k_0 u(z), \quad (4)$$

можно показать [15], что

$$q(x, y, z) = p(x, y)q'(x, z), \quad (5)$$

где $p(x, y) = \frac{1}{2\sqrt{\pi k_0 x}} \exp\left(-\frac{y^2}{4k_0 x}\right)$, а функция $q'(x, z)$

является решением уравнения

$$u(z) \frac{\partial q'}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial z} k(z) \frac{\partial q'}{\partial z} - \alpha q' \quad (6)$$

с соответствующими граничными условиями. Интегрируя уравнение (6) по z от 0 до h с учетом граничных условий (2), получим соотношение

$$\frac{d}{dx} \int_0^h u(z)q'(x, z) dz = -\alpha \int_0^h q'(x, z) dz. \quad (7)$$

Применяя к обеим частям уравнения (7) обобщенную интегральную теорему о среднем значении функции [20], приходим к соотношению

$$\frac{d}{dx} \{q'(x, \xi_1) \int_0^h u(z) dz\} = -\alpha h q'(x, \xi_2), \quad (8)$$

где $\xi_1, \xi_2 \in (0, h)$. Учитывая, что на достаточном удалении от источника (7–10 км) концентрация легкой примеси в слое перемешивания выравнивается по высоте [14], из (8) вытекает следующая асимптотическая формула:

$$q'(x, \xi) \rightarrow C e^{\frac{\alpha x}{\bar{U}}} \text{ при } x \rightarrow \infty, \quad \xi \in (0, h), \quad (9)$$

где C — константа интегрирования; $\bar{U} = \frac{1}{h} \int_0^h u(z) dz$ — средняя скорость ветра в слое перемешивания. То-

гда с учетом (5), (9) получим следующее соотношение для оценивания интегральной концентрации в поперечном к факелу выноса примеси направлении:

$$P(x, \theta) = C e^{\frac{\alpha x}{\bar{U}}} \int_{-\infty}^{\infty} p(x, y) dy = \theta_1 e^{\theta_2 x}, \quad (10)$$

где $\theta_1 = C$; $\theta_2 = -\frac{\alpha}{\bar{U}}$.

Замечание. С учетом (5), (6) соотношение для оценивания максимальных концентраций в поперечных к факелу выноса примеси направлениях имеет вид

$$q(x, \mathbf{S}) = \frac{S_1}{x} e^{-S_2 x}. \quad (11)$$

Оценка параметров θ_1 , θ_2 , S_1 , S_2 в регрессионных зависимостях (10), (11) проводится по данным наблюдений методом наименьших квадратов [21].

Результаты и обсуждение

Анализ данных измерений, приведенных в таблице, показывает, что в рассматриваемом диапазоне расстояний от источника происходят направленные изменения концентраций кальция, суммарного аэрозоля и двуокиси серы. Эти изменения связаны с процессом активного перехода газ \rightarrow частица. Очевидно, что для описания полей концентраций этих компонентов модель распространения пассивной примеси в данном случае не пригодна.

Для других компонентов химического состава изменения выражены менее определенно. Концентрации хлоридов, бромидов и сульфатов на площадках 1–6 в целом меняются относительно слабо. Динамика снижения концентраций свинца и никеля с расстоянием от источника менее значительна по сравнению с кальцием.

На рис. 3 представлены результаты численного восстановления концентраций кальция и сернистого газа на основе зависимостей (10), (11) по измерениям на двух опорных площадках. В рассматриваемом диапазоне расстояний модели оценивания вполне адекватно описывают процессы трансформации изучаемых примесей в атмосфере. Согласно рис. 3, б, в на расстоянии 65 км концентрация двуокиси серы в результате химической трансформации достигала минимального значения. При этом до расстояния 92 км (рис. 3, а) происходило довольно быстрое уменьшение концентрации кальция. Оценка параметров θ_2 , S_2 по моделям (10), (11) для средних и максимальных концентраций двуокиси серы составила 0,019 и 0,039 км⁻¹ соответственно. По литературным данным [18], средняя скорость ее окисления в атмосфере составляет 0,027 ч⁻¹.

Для сравнения полученных нами оценок с литературными данными необходимо учитывать скорость перемещения воздушной массы (ВМ) и самолета вдоль потока. Исходя из метеосиноптического описания эксперимента [16], время перемещения ВМ от норильских источников выбросов до квадрата измерений составляло 25–30 ч, т.е. скорость перемещения ВМ со шлейфами лежала в пределах

1,9–2,3 км/ч. С учетом того, что средняя разница экспозиции проб и измерений между галсами достигала 14 мин, реальная скорость перемещения ВМ в инерционной системе зондирования (относительно положения самолета на медианах галсов) составляла 1,4–1,8 км/ч. В этом случае скорости окисления двуокиси серы в атмосфере, рассчитанные по оценкам параметров θ_2 , S_2 моделей (10), (11), будут находиться в пределах 0,027–0,034 и 0,055–0,07 ч⁻¹ соответственно.

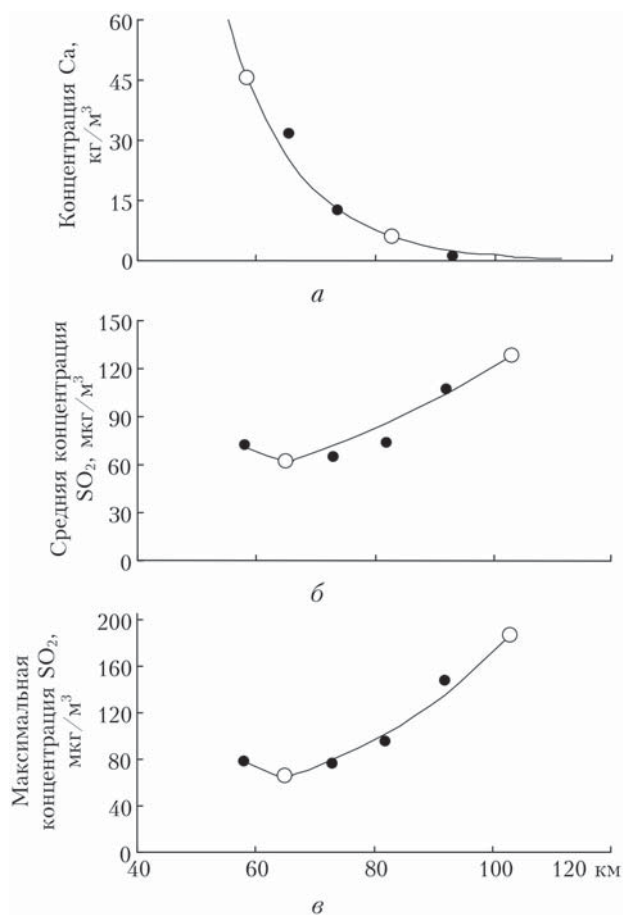


Рис. 3. Измеренные и восстановленные концентрации Ca (а), средних (б) и максимальных (в) концентраций SO_2 на площадках 1–6 в шлейфе выброса; о, • – опорные и контрольные точки измерений соответственно

Таким образом, средняя скорость окисления двуокиси серы в реальной атмосфере, полученная для области средних концентраций на основе самолетного зондирования, находится в удовлетворительном согласии с оценкой, установленной с использованием кинетической модели [18].

Заключение

На основе стационарных моделей оценивания полей регионального переноса и трансформации примесей выполнен численный анализ данных самолетного зондирования загрязнения зимней атмосферы Норильского промышленного района. Показано,

что построенная двухпараметрическая модель трансформации на определенных расстояниях от источников вполне адекватно описывает изменение полей средних концентраций кальция, средних и максимальных концентраций диоксида серы в поперечных к шлейфу выноса примесей направлениях.

Будучи основой аэрозольной массы, оксид кальция промышленного происхождения является главным контрагентом связывания SO_2 в процессах сухой гетерогенной конденсации. Его наличие ускоряет процесс трансформации и выведения диоксида серы из полярной атмосферы.

В условиях проведенных исследований активный переход газ → частица был экспериментально зафиксирован на удалении 58–103 км от источника выбросов. Получены средние и максимальные оценки скоростей окисления серы в зимней полярной атмосфере: 0,027–0,034 и 0,055–0,07 ч⁻¹ соответственно.

Авторы статьи выражают благодарность к.ф.-м.н. Н.Н. Щелканову (ИОА СО РАН) за участие в обсуждении полученных результатов.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 17-47-540342), а также проекта Президиума РАН № 51 0315-2018-0016.

1. Аршинов М.Ю., Белан Б.Д., Ивлев Г.А., Краснов О.А., Рассказчикова Т.М., Симоненков Д.В., Толмачев Г.Н., Фофонов А.В. Комплексная оценка состояния воздушного бассейна Норильского промышленного района. Ч. 3. Распространение примесей // Оптика атмосфер. и океана. 2006. Т. 19, № 9. С. 798–805.
2. Онуцин А.А., Буренина Т.А., Зубарева О.Н., Трефилова О.В., Данилова И.В. Загрязнение снежного покрова в зоне воздействия предприятий Норильского промышленного района // Сиб. экол. журн. 2014. № 6. С. 1025–1037.
3. Харук В.И., Винтербергер К., Цибульский Г.М., Яхимович А.П. Анализ техногенной деградации при-тундровых лесов по данным съемки из космоса // Исслед. Земли из космоса. 1995. № 4. С. 91–97.
4. Антохина О.Ю., Антохин П.Н., Аршинова В.Г., Аршинов М.Ю., Белан Б.Д., Белан С.Б., Давыдов Д.К., Ивлев Г.А., Козлов А.В., Nedelec Ph., Paris J.-D., Рассказчикова Т.М., Савкин Д.Е., Симоненков Д.В., Скляднева Т.К., Толмачев Г.Н., Фофонов А.В. Вертикальное распределение газовых и аэрозольных примесей воздуха над Российским сектором Арктики // Оптика атмосфер. и океана. 2017. Т. 30, № 12. С. 1043–1052.
5. Алоян А.Е. Моделирование динамики и кинетики газовых примесей и аэрозолей в атмосфере. М.: Наука, 2008. 405 с.
6. Алоян А.Е., Ермаков А.Н., Арутюнян В.О., Загайнов В.А. Динамика газовых примесей и аэрозолей в атмосфере с учетом гетерогенных процессов // Изв. РАН. Физ. атмосфер. и океана. 2010. Т. 46, № 5. С. 657–671.
7. Шлычков В.А., Мальбахов В.М., Леженин А.А. Численное моделирование атмосферной циркуляции и переноса загрязняющих примесей в Норильской долине // Оптика атмосфер. и океана. 2005. Т. 18, № 5–6. С. 490–496.
8. Оболкин В.А., Потемкин В.Л., Макухин В.Л., Ходжер Т.В., Чипанина Е.В. Дальний перенос шлейфов

- атмосферных выбросов региональных угольных ТЭЦ на акваторию Южного Байкала // Оптика атмосфер. и океана. 2017. Т. 30, № 1. С. 60–65; *Obolkin V.A., Potemkin V.L., Makukhin V.L., Khodzher T.V., Chirpanina E.V.* Long-Range transport of plumes of atmospheric emission from regional coal power plants to the south Baikal water basin // Atmos. Ocean Opt. 2017. V. 30, N 4. P. 360–365.
9. *Алоян А.Е., Арутюнян В.О., Ермаков А.Н.* Математическое моделирование конвективной облачности в полярных регионах // Оптика атмосфер. и океана. 2017. Т. 30, № 3. С. 222–226.
 10. *Шалыгина И.Ю., Нахаев М.И., Кузнецова И.Н., Березин Е.В., Коновалов И.Б., Блинов Д.В., Курсанов А.А.* Сравнение рассчитанных с помощью химических транспортных моделей приземных концентраций загрязняющих веществ с данными измерений в Московском регионе // Оптика атмосфер. и океана. 2017. Т. 30, № 1. С. 53–59.
 11. *Pitovranov S.E., Fedorov V.V., Edwards L.L.* Optimal sampler siting for atmospheric tracer experiments taking into account uncertainties in the wind field // Atmos. Environ. 1993. V. 27A, N 7. P. 1053–1059.
 12. *Рапута В.Ф., Олькин С.Е., Резникова И.К.* Методы численного анализа данных наблюдений регионального загрязнения территорий площадным источником // Оптика атмосфер. и океана. 2008. Т. 21, № 6. С. 558–562.
 13. *Рапута В.Ф., Шлычков В.А., Леженин А.А., Романов А.Н., Ярославцева Т.В.* Численный анализ данных аэрозольных выпадений примесей от высотного источника // Оптика атмосфер. и океана. 2014. Т. 27, № 8. С. 713–718.
 14. *Бызова Н.Л., Гаргер Е.К., Иванов В.Н.* Экспериментальные исследования атмосферной диффузии и расчеты рассеяния примеси. Л.: Гидрометеоздат, 1991. 278 с.
 15. *Берлянд М.Е.* Прогноз и регулирование загрязнения атмосферы. Л.: Гидрометеоздат, 1985. 273 с.
 16. *Аршинов М.Ю., Белан Б.Д., Давыдов Д.К., Ивлев Г.А., Пирогов В.А., Рассказчикова Т.М., Симоненков Д.В., Толмачев Г.Н., Фофонов А.В.* Экспериментальное исследование трансформации примесей в шлейфах предприятий // Оптика атмосфер. и океана. 2005. Т. 18, № 4. С. 335–343.
 17. *Рябошапка А.Г.* Модель химических превращений и выведения из атмосферы соединений серы и азота при дальнем атмосферном переносе // Тр. ИПГ. 1988. Вып. 71. С. 25–32.
 18. *Израэль Ю.А., Назаров И.М., Прессман А.Я.* Кислотные дожди. Л.: Гидрометеоздат, 1989. 269 с.
 19. *Исидоров В.А.* Органическая химия атмосферы. Л.: Химия, 1985. 265 с.
 20. *Камынин Л.И.* Курс математического анализа. М.: Изд-во МГУ, 1995. Т. 2. 624 с.
 21. *Успенский А.Б., Федоров В.В.* Вычислительные аспекты метода наименьших квадратов при анализе и планировании регрессионных экспериментов. М.: Изд-во МГУ, 1975. 168 с.

V.F. Raputa, D.V. Simonenkov, B.D. Belan, T.V. Yaroslavtseva. **A numerical research of processes of transfer and transformation of gas and aerosol impurities in plumes of emissions of the Norilsk industrial region.**

Models of estimation of average and maximum concentrations of chemically active impurities in cross sections of plumes from remote stationary sources are suggested. Approbation of the models is carried out on data of aircraft sounding of multicomponent pollution of the winter atmosphere of the Norilsk industrial region. Process of active transition gas → particle, observed at a distance of 58–103 km from a source of emissions, is numerically studied. Average and maximum sulfur oxidation rates in the winter polar atmosphere are estimated as 0.027–0.034 h⁻¹ and 0.055–0.07 h⁻¹, respectively.