

АТМОСФЕРНАЯ РАДИАЦИЯ, ОПТИЧЕСКАЯ ПОГОДА И КЛИМАТ

УДК 551.510

## Применение химико-транспортных моделей атмосферы для валидации эмиссий загрязняющих примесей в Москве

Н.А. Пономарев<sup>1</sup>, Н.Ф. Еланский<sup>1</sup>, А.А. Кирсанов<sup>2</sup>, О.В. Постыляков<sup>1</sup>,  
А.Н. Боровский<sup>1</sup>, Я.М. Веревкин<sup>3\*</sup>

<sup>1</sup> Институт физики атмосферы им. А.М. Обухова РАН  
119017, г. Москва, пер. Пыжевский, 3

<sup>2</sup> Гидрометцентр России  
123242, г. Москва, пер. Большой Предтеченский, 11–13

<sup>3</sup> Университет Дэлхаузи  
6310, Канада, Новая Шотландия, Галифакс, Кобург Роуд, ВЗН 4R2

Поступила в редакцию 18.07.2019 г.

По данным многолетних наблюдений на сети станций «Мосэкомониторинг» рассчитаны эмиссии CO, NO, NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>, PM<sub>10</sub> от городских источников, их пространственное распределение и временная изменчивость. Полученная эмиссионная матрица использована в химико-транспортной модели SILAM для оценки качества воздуха в Московском мегаполисе. По результатам сравнения расчетов с данными наблюдений, проведенных с применением корреляционных соотношений и критерия Стьюдента, выполнена коррекция эмиссионной матрицы. Для оптимизации пространственного распределения источников и величины эмиссий в Московском мегаполисе были вычислены поля примесей для летнего и зимнего месяцев по химико-транспортным моделям SILAM и COSMO-ART с использованием как рассчитанных, так и взятых из базы данных инвентаризации TNO эмиссий. Сопоставление результатов этих расчетов позволило снизить неопределенности оценки качества воздуха в Московском регионе.

*Ключевые слова:* мегаполис, состав атмосферы, малые газовые составляющие, эмиссии, численное моделирование, качество воздуха; megacity, atmospheric composition, trace gases, emissions, numerical modeling, air quality.

### Введение

Москва входит в число наиболее быстро развивающихся мегаполисов мира. Как и в других мегаполисах, в ней с 2002 г. действует система мониторинга загрязнения атмосферного воздуха «Мосэкомониторинг» (МЭМ) (<http://www.mosecom.ru>). В настоящее время ~40 станций МЭМ, в соответствии с рекомендациями ВОЗ, ведут непрерывные измерения содержания в приземном слое атмосферы 20 химических соединений, определяющих качество воздуха. Система мониторинга обеспечивает контроль состояния атмосферного воздуха на всей территории мегаполиса, а также его изменений, вызванных выбросами загрязняющих веществ от городских источников. Анализ получаемой на сети станций МЭМ информации позволил выявить характерные особенности пространственной и временной изменчивости приземных концентраций за-

грязняющих примесей, формирующейся под влиянием метеорологических и антропогенных факторов (см., например, [1–4]).

Эффективная работа сети станций МЭМ делает возможным решение задачи прогнозирования изменений качества воздуха и образования экстремальных экологических ситуаций, потенциально опасных для здоровья жителей Москвы и Московского региона.

Первые попытки прогнозирования поведения отдельных консервативных примесей (например, оксида углерода CO) сделаны с помощью химико-транспортных моделей (ХТМ) CHIMERE, COSMO-ART, WRF и международных баз данных об эмиссиях химически активных соединений EDGAR, MACC и TNO, рассчитанных для Москвы на основе косвенных сведений о состоянии и интенсивности их городских источников [5–8]. Но различия в параметризации сложных процессов переноса и фотохимических взаимодействий в городском пограничном слое атмосферы, используемых в разных моделях, и большие неопределенности в значениях антропогенных эмиссий значительно снижают эффективность прогностических оценок и возможность их распространения на химически активные составляющие атмосферы. В этой связи представляет интерес сравнение результатов моделирования

\* Николай Андреевич Пономарев (na.ponomarev@physics.msu.ru); Николай Филиппович Еланский (n.f.elansky@mail.ru); Александр Андреевич Кирсанов (heu3becteh@mail.ru); Олег Вадимович Постыляков (oleg.postylyakov@gmail.com); Александр Николаевич Боровский (alexander.n.borovski@gmail.com); Ярослав Михайлович Веревкин (yarver@gmail.com).

полей концентраций не только консервативных, но и реакционно-активных газов с помощью разных моделей и эмиссионных баз данных.

Целью настоящей работы является оценка применимости двух баз эмиссионных данных — часто используемой инвентаризации TNO-2011 ([www.tno.nl/en](http://www.tno.nl/en)) и эмиссионной матрицы Института физики атмосферы (ИФА) — для прогноза изменения состава атмосферы Московского мегаполиса с помощью двух химико-транспортных моделей — SILAM и COSMO-ART. Будут рассмотрены результаты расчетов в зимний и летний сезоны, включающие в себя периоды с устойчивой стратификацией атмосферы, приводящей к значительному повышению уровня городского загрязнения. В качестве эмиссий ИФА были использованы значения, рассчитанные по результатам многолетних наблюдений состава атмосферы сети станций МЭМ и научной станции Института физики атмосферы им. А.М. Обухова РАН [9].

## 1. Описание моделей

Химико-транспортная модель (XTM) COSMO-Ru7-ART разработана в Технологическом институте Карлсруэ (Германия) и состоит из мезомасштабной негидростатической метеорологической модели COSMO и блока атмосферной химии ART. Важная особенность COSMO-ART — совместный расчет метеорологических величин и химических преобразований на каждом шаге по времени, что позволяет учитывать обратное влияние газов и аэрозолей на радиационный и метеорологический режим атмосферы [7, 10].

Химико-транспортная модель COSMO-ART адаптирована к использованию на суперкомпьютере Главного вычислительного центра Росгидромета в рамках системы COSMO-Ru7-ART для территории Центрального федерального округа (ЦФО). Расчетная модельная сетка имеет 40 уровней по вертикали, размер по горизонтали — 135 на 150 узлов, расстояние между узлами — 7 км, шаг расчетов по времени — 40 с. Как и система прогноза погоды COSMO-Ru7, COSMO-Ru7-ART использует сферическую систему координат со смещенным Северным полюсом.

Региональная XTM SILAM v.5.2 была разработана в Финском метеорологическом институте [11]. Сетка модели имеет разрешение  $0,1^\circ$  по долготе и  $0,05^\circ$  по широте, 69 высотных уровней для описания метеорологических параметров и 9 — для описания химических преобразований. Динамический блок включает уравнения диффузии и адвекции в эйлеровых или лагранжевых координатах (в настоящей работе использовались эйлеровы координаты) и учитывает сухое осаждение примесей. Химический блок модели представлен механизмом DMAT [12], описывающим газофазные процессы на основе алгоритма CB-4 [13] и гетерогенные взаимодействия в атмосфере. DMAT позволяет моделировать любые типы взаимодействия не только между

газовыми составляющими атмосферы, но и между другими типами частиц (радионуклиды, инертные аэрозоли, биологические материалы).

## 2. Параметризация эмиссий

Наиболее распространенный метод определения эмиссий примесей в атмосфере — инвентаризация природных и антропогенных источников. При этом устанавливаются их пространственное и временное распределение и на основе статистических данных, например о плотности населения, составе и состоянии транспортной системы, промышленности, коммунальных служб и т.д., рассчитываются величина и состав выбросов, их временные и пространственные вариации. Виды источников устанавливаются номенклатурой SNAP, ее современную версию можно найти в [14].

Существует большое количество разнообразных инвентаризаций. Самыми популярными для Европы являются TNO и EDGAR (<http://edgar.jrc.ec.europa.eu>), однако эти и другие инвентаризации достаточно произвольны при выборе обоснований соотношения между интенсивностями различных видов источников. Результаты выполнения европейского проекта MEGAPOLI (<http://www.megapoli.info>), посвященного оценке эффективности методов инвентаризации, говорят о существенных различиях в значениях эмиссий (по отдельным компонентам — в разы), содержащихся в базах данных всех основных инвентаризаций, включая TNO и EDGAR [15–17]. В целом, исходя из результатов выполненных ранее исследований [7, 8], применение инвентаризации TNO для моделирования загрязнения атмосферного воздуха в Москве дает результаты, наилучшим образом согласующиеся с данными наблюдений по сравнению с другими инвентаризациями. Для оценки достоверности базы данных инвентаризации TNO мы использовали значения эмиссий ключевых загрязняющих примесей CO, NO, NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> и суммы неметановых углеводородов, рассчитанные по данным измерений концентрации примесей в приземном воздухе на сети станций МЭМ и их вертикального распределения в пограничном слое атмосферы. Наблюдения вертикального распределения примесей ведутся на Останкинской телебашне в слое 0–348 м в условиях устойчивой стратификации атмосферы [1, 18]. Метод определения эмиссий по данным измерений был предложен и реализован в ИФА РАН [1, 4]. Он позволяет рассчитывать интегральные эмиссии на всей территории мегаполиса и определять их среднесуточные значения. Рассчитанные эмиссии большинства веществ мало отличаются от данных TNO, но существенно меньше тех, которые содержатся в других инвентаризациях, в частности, в наиболее часто используемой EDGAR v.4.2.

Значения эмиссий загрязняющих веществ, полученные с учетом их суточной и сезонной изменчивости, были распределены по узлам сетки с разрешением  $0,1^\circ$  по долготе и широте и от 0 до 350 м по высоте. Для этого использовалась информация о концентрациях примесей в приземном слое атмо-

сферы на территории Москвы и ее окрестностей, полученная по многолетним регулярным наблюдениям сети из 35 станций МЭМ в 2005–2014 гг., а также по наблюдениям вертикального распределения примесей на Останкинской башне. На основе этих данных было сконструировано первое приближение распределения эмиссий по ячейкам модели. Для коррекции и оптимизации эмиссионной матрицы было проведено 64 численных эксперимента с моделью SILAM для января 2014 г. и 16 — для июля 2014 г., при этом исходное распределение варьировалось с целью достижения наилучшего согласования с данными наблюдений. Сравнение рассчитанных концентраций с измеренными для каждого варианта задания эмиссий на территории города и минимизация отклонений между данными наблюдений и результатами расчетов проводились с использованием критерия Стьюдента и корреляционных соотношений. Полученный таким образом оптимальный вариант задания эмиссий (эмиссии ИФА) был использован в расчетах XTM COSMO-ART и SILAM.

### 3. Постановка численных экспериментов

Для исследования способности моделей воспроизводить реальные значения приземных концентраций примесей и их вертикальное распределение на территории Московского региона была проведена серия численных экспериментов. Чтобы результаты расчетов наиболее информативно объясняли причины возможных расхождений между результатами моделирования и данными наблюдений, концентрации примесей рассчитывались для зимнего (январь 2014 г.) и летнего (июль 2014 г.) месяцев. Во-первых, такой выбор давал возможность проверить способность моделей воспроизводить сезонную изменчивость состава атмосферы и активности городских источников загрязнений. Во-вторых, в эти месяцы в течение примерно полутора недель Москва находилась в центре блокирующих антициклонов, что обычно сопровождается накоплением загрязнений в приземном воздухе. В-третьих, наблюдения в течение четырех недель зимой и летом могут дать некоторое представление о недельных циклах концентраций примесей и их эмиссий. Расчеты по каждой модели проводились как для эмиссий ИФА (задавались эмиссионные матрицы для CO, NO, NO<sub>2</sub> и SO<sub>2</sub>), так и по данным инвентаризации TNO для Москвы 2009 г.

Для COSMO-ART в качестве метеорологических начальных и граничных условий использовались данные реанализа ERA-Interim, пересчитанные метеорологической моделью COSMO с горизонтального шага сетки 0,7° до горизонтального шага сетки 13 км. Биогенные эмиссии оцениваются с помощью данных Global Land Cover 2000 Project (<https://ec.europa.eu/jrc/en/scientific-tool/global-land-cover>). В качестве граничных условий в модели COSMO-ART для полей концентраций загрязняющих веществ

взяты климатические значения, в качестве начальных — поле прогноза концентраций на 24 ч; в модели SILAM используются значения, полученные в результате оперативного прогноза полей концентраций сотрудниками Финского метеорологического института для Европы и европейской части России с шагом по времени 1 ч (<http://silam.fmi.fi/thredds/catalog.html>). В модели SILAM метеорологические параметры задавались на основе данных оперативного прогноза модели HIRLAM (the High Resolution Limited Area Model, <http://hirlam.org>), спроецированные на сетку модели SILAM с шагом по времени 3 ч. Границы области расчетов были заданы координатами 50,75–60,7° с.ш. и 32,6–42,5° з.д. В случае использования эмиссий ИФА область за пределами Московского мегаполиса (55,5–56,7° с.ш. и 37,6–37,9° в.д.) описывалась данными TNO.

Эмиссии NMHC (летучие органические соединения) были заданы с помощью данных инвентаризации MACCity (<https://eccad3.sedoo.fr>). Вещества, входящие в NMHC, разделены на семейства [13], например, семейство PAR, с помощью которого описываются химические процессы алканов, алкильных радикалов и др. в соответствии с алгоритмом CB-4. Соотношение относительного содержания представителей этих семейств для каждого типа источника, выделяемого номенклатурой SNAP [14], задавалось составителями инвентаризации MACCity.

Оптимальные значения эмиссий ИФА оценивались на основе среднегодовых эмиссий, полученных в работе [4]. Эти значения нам было необходимо распределить по территории Московского мегаполиса с разрешением по времени 1 ч. Мы использовали относительные веса для сезонного хода концентраций примесей, недельного цикла концентраций [4] и для суточного хода эмиссий (взяты из инвентаризации TNO для Московского мегаполиса). Для распределения эмиссий по территории были использованы относительные веса, полученные из зависимости концентраций примесей от расстояния от центра, а также из секторной структуры их распределения по территории Москвы, рассчитанные и проанализированные в [4]. Дополнительно в ячейках модели, где расположены городские ТЭЦ, было выбрано другое высотное распределение эмиссий оксидов азота. Наши варианты пространственных весов задания эмиссий по высоте и секторной структуре Москвы приведены в табл. 1 и 2. Эти веса выбирались с учетом данных анализа измерений [4], о пространственной и временной изменчивости эмиссий, а также на основе тестовых расчетов модели SILAM. Часть эмиссий была перераспределена из секторов, где наблюдалось завышение концентраций, в сектора, где, согласно модели, наблюдалось их занижение.

В качестве критерия оценки результатов из разности средних концентраций для каждой ячейки, где были измерения хотя бы одной станции «Мосэкомониторинга», рассчитывался критерий Стьюдента  $Z$ , после чего его модуль усреднялся по всему мегаполису.

Критерий Стьюдента оценивался следующим образом:

$$Z = \frac{N_{av}(SILAM) - N_{av}(MЭМ)}{(\sigma^2(SILAM) + \sigma^2(MЭМ))^{0,5}},$$

где  $N_{av}$  – средняя концентрация в ячейке;  $\sigma$  – ошибка средней концентрации в ячейке; (SILAM) – по модели SILAM; (MЭМ) – по станциям.

Также определялся коэффициент корреляции между временными рядами средних значений концентраций по городским ячейкам, где в период расчетов проводились измерения станциями «Мосэкомониторинга», вычисленные с помощью модели SILAM и по измерениям.

Таблица 1

Распределение эмиссий по высотам (%), закладываемое в модель SILAM при уточнении эмиссий января 2014 г.

Номер распределения	Высота, м		
	0–45	45–100	100–150
СО			
1	85	0	15
2	25	45	30
<b>3</b>	<b>40</b>	<b>45</b>	<b>15</b>
4	55	15	30
NO <sub>x</sub>			
1	40	30	30
2	40	45	15
3	20	40	40
<b>4</b>	<b>40</b>	<b>20</b>	<b>40</b>
NO <sub>x</sub> , ячейки с ТЭЦ			
1	30	0	70
2	15	0	85
3	20	10	70
4	40	0	60

Примечание. Полужирным выделены оптимальные высотные распределения.

Таблица 2

Коэффициенты относительных весов эмиссий  $K$ , %, по секторам

Номер распределения	Сектор				
	ЮЗ	ЮВ	Центр	СЗ	СВ
	СО				
1	73,8	81,9	94,4	128,1	120,0
<b>2</b>	<b>78,8</b>	<b>76,9</b>	<b>99,4</b>	<b>128,1</b>	<b>115,0</b>
3	76,8	76,9	98,4	131,1	115,0
4	74,8	71,9	102,4	134,1	110,0
	NO <sub>x</sub>				
1	80,5	88,9	93,7	114,1	122,6
2	85,5	83,9	98,7	114,1	117,6
<b>3</b>	<b>83,5</b>	<b>83,9</b>	<b>97,7</b>	<b>117,1</b>	<b>117,6</b>
4	81,5	78,9	101,7	120,1	112,6

Примечание. Формула учета секторной структуры распределения эмиссий:  $Q_1 = Q \cdot K$ , где  $Q_1$  – эмиссия в ячейке с учетом секторной структуры,  $Q$  – эмиссия в ячейке без учета секторной структуры; полужирным выделены оптимальные высотные распределения.

Критерий Стьюдента и коэффициент корреляции характеризуют расхождение между результатами наблюдений и модельными расчетами. Нашей

целью было минимизировать критерий Стьюдента и повысить коэффициент корреляции с данными наблюдений за счет варьирования задания эмиссий СО, NO<sub>x</sub> в Москве. Далее для полученных значений коэффициента корреляции (Cor) и параметра  $Z$  рассчитывался параметр  $D$  с учетом нормировки:

$$D = (Cor + 1 / Z) / 2.$$

За оптимальное распределение эмиссий брался вариант с наибольшим значением  $D$ . В итоге, чтобы найти оптимальное распределение эмиссий СО и NO<sub>x</sub> по пространству, было произведено 16 «запусков» (запуск – проведение расчетов модели за рассматриваемый период времени на исследуемой территории с одним из вариантов задания городских эмиссий загрязняющих примесей) для различных распределений эмиссий СО (4 вариации по секторам и 4 – по высоте) и 64 «запуска» для различных распределений эмиссий NO<sub>x</sub> (4 вариации по секторам, 4 – по высоте, 4 – по высоте в тех ячейках, где находятся ТЭЦ). Это позволило увеличить значение параметра  $D$ , усредненное для зимнего периода расчетов, с  $1,45 \pm 0,27$  до  $2,15 \pm 0,31$  для СО и с  $0,92 \pm 0,21$  до  $1,5 \pm 0,16$  для NO<sub>x</sub>. В качестве погрешностей указаны среднеквадратические отклонения, полученные для временной изменчивости параметра  $D$ . Для летнего периода результаты получились несколько хуже, возможные причины этого будут рассмотрены ниже. Летом параметр  $D$  удалось увеличить с  $0,76 \pm 0,24$  до  $0,97 \pm 0,23$  для СО и с  $0,63 \pm 0,25$  до  $0,91 \pm 0,20$  для NO<sub>x</sub>.

#### 4. Результаты численных экспериментов

Прогноз на соответствующий момент времени в ближайшем узле сетки на нижнем модельном уровне (слой от 0 до ~10 м над поверхностью) был сопоставлен с каждым измеренным на станциях МЭМ значением с шагом по времени 1 ч. Рассчитанные концентрации СО в январе 2014 г. при использовании эмиссий ИФА несколько завышены (табл. 3), однако это позволяет лучше воспроизвести часть максимумов (рис. 1, цв. вклейка), связанных с наличием устойчивой воздушной массы над городом, которые в случае использования эмиссий TNO оказываются заниженными. С 18 по 31 января 2014 г. скорость ветра в Москве была слабой, значительную часть времени наблюдался штиль. Также отмечались приземные инверсии температуры. Такие погодные условия, характерные для блокирующего антициклона, приводят к значительному повышению среднесуточных концентраций загрязняющих примесей, а следовательно, к ухудшению качества воздуха в городе [19]. Обычно подобные события регистрировались в летний период.

Летом 2010 г. блокирующий антициклон, находившийся над европейской территорией России в течение двух месяцев, способствовал росту концентрации СО в первый месяц с 0,5 до 1,5 мг/м<sup>3</sup>, а возникшие затем лесные и торфяные пожары

Средняя разница (средняя ошибка), стандартное отклонение средней ошибки и коэффициент корреляции между рассчитанной и измеренной концентрациями CO, NO и NO<sub>2</sub> в январе и июле 2014 г.

Примесь Модель		Январь 2014			Июль 2014		
		Средняя ошибка	СКО ср. ошибки	Коэф. кор.	Средняя ошибка	СКО ср. ошибки	Коэф. кор.
CO	SILAM	0,025	0,255	0,755	-0,143	0,139	0,342
	COSMO-ART	0,016	0,129	0,572	-0,103	0,221	0,308
NO	SILAM	-0,018	0,028	0,653	-0,012	0,026	0,298
	COSMO-ART	-0,014	0,008	0,565	-0,010	0,016	0,075
NO <sub>2</sub>	SILAM	-0,011	0,021	0,606	-0,004	0,014	0,390
	COSMO-ART	-0,006	0,014	0,643	-0,008	0,012	0,698

привели к рекордному для Москвы значению – 16 мг/м<sup>3</sup>, что в 5 раз превышает среднесуточную ПДК [20]. Зимние блокинг пока не привлекли внимание исследователей, но, как следует из рис. 1, увеличение содержания CO в подобной ситуации также имеет место. Можно отметить высокие значения стандартного отклонения средней ошибки, которые, впрочем, вполне ожидаемы для величины с такой высокой изменчивостью, как концентрации загрязняющих веществ в границах города. Для более подробной верификации величин с высокой изменчивостью и во избежание проблемы больших расхождений с данными наблюдений могут быть использованы пространственные методы [21], что может стать отдельной задачей последующих исследований.

В январе 2014 г. коэффициент корреляции является значимым при использовании эмиссий ИФА и в среднем по городу равен 0,57 и 0,75 для COSMO-ART и SILAM соответственно (табл. 3), что выше, чем при использовании инвентаризации эмиссий TNO. В целом обе модели при использовании эмиссий ИФА лучше воспроизводят ситуации в нормальных и аномальных погодных условиях зимой, когда данные о прогнозе загрязнения представляют наибольшую ценность как для городского населения, так и для государственных учреждений, ответственных за состояние окружающей среды.

Непродолжительный расчетный период позволяет лишь качественно проследить наличие недельной гармоник во временных рядах средних по Москве концентраций загрязняющих примесей, главным источником которых является автотранспорт. В зависимости от скорости и направления ветра, а также атмосферной стратификации протяженность и направление шлейфов загрязнений от городских источников, расположенных высоко над поверхностью земли, например ТЭЦ, могут изменяться. Так, если в течение рабочих дней основная часть шлейфа перекрывает лишь те ячейки, где проводятся измерения, а в выходные дни за счет изменения направления ветра число ячеек, попадающих в шлейф, резко увеличивается или уменьшается, то это приводит к понижению или повышению амплитуды недельного цикла. Описание таких эффектов приводится в [22]. Влияние метеорологических факторов на недельный цикл концентраций примесей в атмосфере Московского мегаполиса на основе большого объема данных системы «Мосэкомониторинг» было продемонстрировано в [23]. Чтобы разделить влияние этих факторов, необхо-

димы продолжительные ряды данных наблюдений на многих станциях, обеспечивающих высокое временное и пространственное разрешение. Тем не менее проведенные расчеты позволяют заметить, что в недельном цикле CO для января 2014 г. при использовании эмиссий ИФА отчетливо проявляется снижение концентраций в выходные дни, в то время как при использовании эмиссий TNO, наоборот, выделяется завышение рассчитанных концентраций в воскресенье. В июле 2014 г. недельный цикл слабо прослеживается как в данных наблюдений, так и в результатах расчетов, что можно связать с блокирующим антициклоном и резкими изменениями вертикальной стратификации пограничного слоя атмосферы в остальные дни месяца.

Рассчитанные концентрации CO в июле 2014 г. занижены по сравнению с наблюдениями как в экспериментах с эмиссиями ИФА, так и с эмиссиями TNO (табл. 3). Однако при использовании эмиссий ИФА это занижение выражено заметно слабее, чем при использовании эмиссий TNO. Станции с завышенными и заниженными концентрациями CO (рис. 2, цв. вкладка) при использовании эмиссий ИФА более равномерно распределены по городу, в отличие от эксперимента с использованием эмиссий TNO, где величина и характер ошибки ближе к концентрическим зонам (такую структуру можно наблюдать и в [8]), что может свидетельствовать о наибольшей близости пространственного распределения эмиссий ИФА к реальному.

Определение концентрации окислов азота NO и NO<sub>2</sub> осложнено их высокой химической активностью и коротким временем жизни – от 10 ч до нескольких суток в зависимости от сезона и широты места. Таким образом, их рассчитанная концентрация определяется не только правильностью задания городских источников, но и работой химического блока моделей, описывающих фотохимические трансформации окислов азотов, на которые оказывает значительное влияние содержание NMHC и озона. Эти трудности привели к тому, что рассчитанные концентрации NO как в январе, так и в июле занижены при использовании эмиссий ИФА (табл. 3). При этом с использованием данных NMHC из инвентаризации MACCity (<http://www.gmes-atmosphere.eu>) наибольшие концентрации NO получаются при расчетах не вдоль основных автомагистралей (воспроизвести которые можно очень грубо при горизонтальном шаге сетки 7 км), а ближе к центру города, и изолинии их концентрации имеют круговую форму.

Коэффициент корреляции рассчитанных значений концентрации  $\text{NO}$  с измеренными для экспериментов в январе 2014 г. составляет 0,56 и 0,65 при использовании COSMO-ART и SILAM соответственно (см. табл. 3). Однако в июле 2014 г. результаты расчетов хуже согласуются с наблюдениями, коэффициент корреляции значительно снижается при использовании данных ИФА и TNO, что может быть связано как с неправильным описанием временной изменчивости эмиссий NMHC в инвентаризации MACCity в вегетационный период (май–август) [24], так и с проблемой параметризации процессов перемешивания, активность которых существенно возрастает в летнее время.

Концентрации  $\text{NO}_2$  завышаются при использовании данных TNO в январе, а в июле средняя ошибка близка к нулю. При использовании данных об эмиссиях ИФА концентрации  $\text{NO}_2$  занижаются как в январе, так и в июле. В январе коэффициент корреляции составил, соответственно, 0,61 и 0,64 при использовании SILAM и COSMO-ART, а в июле – 0,39 и 0,7 (см. табл. 3). В суточном ходе  $\text{NO}_2$  по данным измерений наблюдается снижение концентраций в выходные дни, слабо выраженное в модельных расчетах (рис. 3, цв. вкладка). Пространственное распределение ошибок рассчитанных концентраций  $\text{NO}_2$  неоднородно, что может говорить о трудности воспроизведения локальных особенностей моделью с горизонтальным шагом сетки 7 км.

Для оценки воспроизведения моделями процессов вертикального перемешивания на рис. 4 (цв. вкладка) приведены вертикальные профили концентраций  $\text{CO}$ ,  $\text{NO}_2$ , рассчитанные с помощью системы COSMO-ART и модели SILAM, а также измеренные на нескольких высотных уровнях на Останкинской телебашне. Общий характер изменчивости концентраций с высотой достаточно точно воспроизводится моделями для высот от 0 до 150 м, об этом свидетельствует совпадение значений концентраций и величин их среднеквадратических отклонений. Однако на вышележащих уровнях рассчитанные концентрации получились ниже измеренных. Это можно связать как с недооценкой фоновых концентраций (чтобы оценить вклад городских эмиссий в профиль концентрации, требуется сравнить измерения в городе и за городом, что может стать отдельной задачей), так и с заниженными значениями эмиссий ИФА на высотах с недостаточно активным выносом примесей в вышележащие слои в моделях, когда приземные значения выше измеренных. Описание диффузионных процессов обмена между вертикальными слоями в моделях является одной из основных проблем для каждой модели. Наибольшие трудности заключаются в подборе правильной параметризации профиля коэффициента диффузии, который может существенно изменяться в зависимости от погодных условий и шероховатости подстилающей поверхности [25]. Наличие городской застройки и особый тепловой баланс сильно усложняют параметризацию макротурбулентного перемешивания в атмосфере Москвы.

Выбросы загрязняющих примесей в Москве оказывают значительное воздействие на состояние

региональной атмосферы. По наблюдениям в экспериментах TROICA, шлейф загрязненного воздуха распространяется в среднем на 100–150 км [26]. При наложении на местные выбросы загрязняющих примесей могут возникнуть условия для формирования экстремальных экологических ситуаций в населенных пунктах, находящихся на значительном расстоянии от Москвы.

На рис. 5 показаны результаты измерения интегрального содержания (ИС)  $\text{NO}_2$  в тропосфере на Звенигородской научной станции (ЗНС) ИФА им. А.М. Обухова РАН в сравнении с данными моделирования. Станция находится на расстоянии 53 км к юго-западу от центра Москвы. Из-за преобладающих ветров западного направления лишь в 20% случаев московские источники загрязняющих примесей существенно влияли на показание приборов ЗНС. Измерения выполнялись в светлое время суток методом дифференциальной спектроскопии (аналогично измерениям ИС формальдегида [27]). Для оценивания ИС  $\text{NO}_2$  в тропосфере использовались также данные годового содержания  $\text{NO}_2$  в стратосфере, полученные по наблюдениям на ЗНС, которые ведутся с 1991 г. [28].

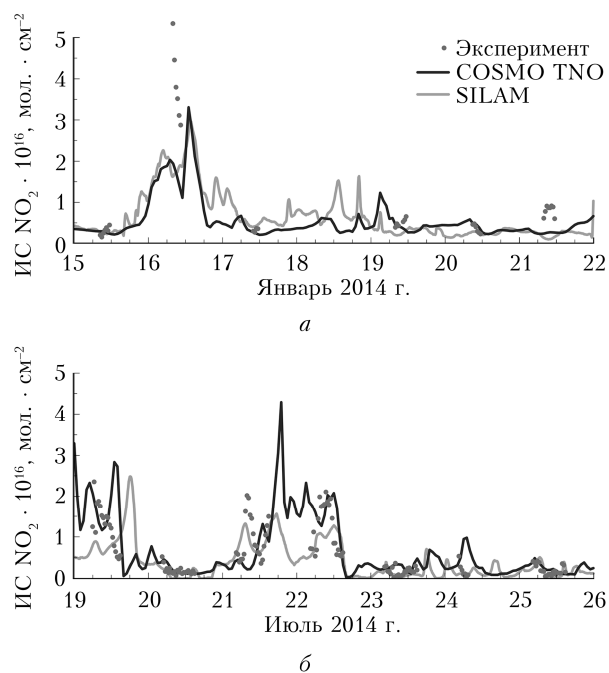


Рис. 5. Сравнение данных об ИС  $\text{NO}_2$  в тропосфере по данным измерений на ЗНС и моделирования

В фоновых условиях, когда воздушная масса не загрязнена антропогенными выбросами от Москвы, ИС  $\text{NO}_2$  в тропосфере, рассчитанное с помощью моделей SILAM и COSMO-ART, демонстрирует обоснованное согласие с экспериментальными данными. Непродолжительные, но резкие увеличения ИС  $\text{NO}_2$  совпадают по времени с поступлением загрязненного воздуха из Москвы. Это показано на рис. 5 для января и июля 2014 г. Обе модели также показывают увеличение ИС  $\text{NO}_2$ , когда станция находится в шлейфе Москвы. Обращает на себя

внимание количественное совпадение амплитуд максимумов ИС  $\text{NO}_2$ , рассчитанных и наблюдаемых для ЗНС в эти периоды. Поскольку наблюдения ИС  $\text{NO}_2$  велись в 2014 г. только в дневное время и в безоблачных условиях, тонкую структуру временной изменчивости ИС  $\text{NO}_2$  в шлейфе Москвы проанализировать не удается. Однако проведенное сравнение показывает, что обе модели дают согласующиеся с наблюдениями результаты. Хотя при этом выявляются неточности в заданных эмиссиях (в основном NMHC) и, возможно, в параметризации макротурбулентного перемешивания в приземном слое атмосферы.

Рассматривая поля концентраций и сопоставляя их с данными измерений на станциях МЭМ (рис. 1–4), можно отметить неоднородность распределения измеренных концентраций по пространству (станции находятся в зонах наблюдения разных типов): для каждого соединения и каждого эксперимента средняя ошибка имеет разный знак на различных станциях. При этом модели согласуются между собой. Также можно отметить занижение концентраций загрязняющих веществ за пределами города (на примере Зеленограда), что может говорить о недооценке выбросов загрязняющих веществ в атмосферу в сельской местности.

## Заключение

Концентрации загрязняющих веществ, рассчитанные с использованием полученных по результатам оптимальной оценки эмиссий загрязняющих веществ в атмосферу (эмиссии ИФА) в общем не уступают значениям, рассчитанным с использованием данных инвентаризации TNO, а в некоторых отношениях даже лучше согласуются с измерениями. Важно отметить, что полученные эмиссии корректировались с помощью модели SILAM, но дают удовлетворительные результаты и в системе COSMO-ART. Концентрации загрязняющих веществ, рассчитанные SILAM и COSMO-Ru7-ART, имеют схожее распределение по пространству и времени. При этом следует учесть более широкие возможности для коррекции и уточнения эмиссий ИФА с использованием данных измерений на сети автоматических станций контроля загрязнения МЭМ, в том числе и с учетом результатов моделирования. В целом результаты расчетов моделей с использованием эмиссий ИФА говорят о способности моделей правильно воспроизводить временную и пространственную изменчивости содержания загрязняющих примесей в атмосфере Московского мегаполиса.

Повысить успешность расчетов с применением эмиссий ИФА, в частности для химически активных примесей  $\text{NO}$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{NO}_2$ , может как уточнение сезонного, недельного, суточного циклов, так и расширение области оценки эмиссий на сельскую местность. При уточнении пространственного распределения выбросов могут быть использованы результаты моделирования. Также можно рассмотреть возможность добавления «виртуальных» станций, использования «актуальных» эмиссий, как это сделано в [8]. Дальнейшее уточнение эмиссий продол-

жается, в том числе и с применением расчетов химико-транспортных моделей.

Авторы выражают благодарность Р. Кузнецову и М. Софиеву за предоставление исходного кода модели SILAM, данных о граничных и начальных условиях, а также за ценные советы и помощь при проведении численных экспериментов, сотрудникам Технологического института Карлсруэ (Германия) V. Vogel, H. Vogel и их коллегам за полезные предложения и ценные консультации в рамках использования блока ART, сотрудникам Нидерландской организации прикладных научных исследований (TNO) H.D. van der Gon и его коллегам за предоставление данных об эмиссиях и сотруднику Швейцарской федеральной лаборатории материаловедения и технологии (EMPA) D. Brunner, который перевел эти ежегодные данные в ежечасные на сетке COSMO-ART. Мы также благодарны сотрудникам МЭМ, предоставившим огромный объем данных наблюдений, без которых выполнение этой работы не представляется возможным.

Исследования выполнены при поддержке РФФИ (проект № 16-17-10275) и РФФИ (проект № 19-05-00352). Процедуры анализа качества данных разработаны при поддержке РФФИ (проект № 17-35-05102).

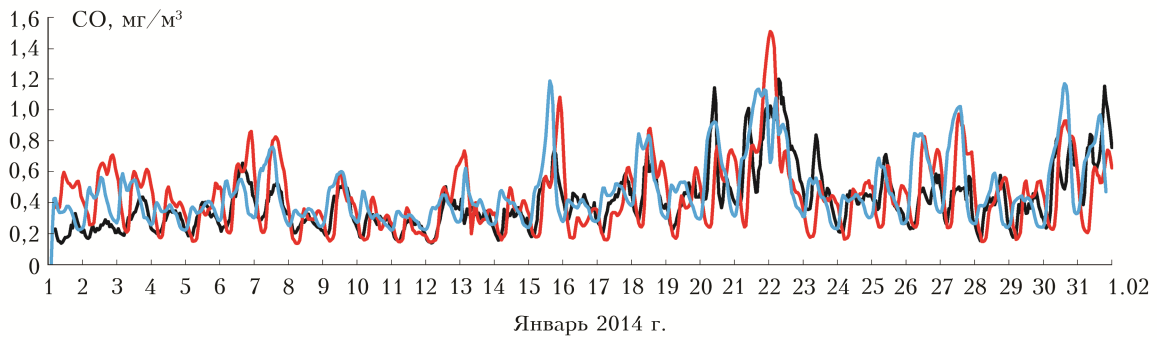
1. *Elansky N.F.* Air quality and CO emissions in the Moscow megacity // *Urban Clim.* 2014. V. 8. P. 42–56. URL: <https://doi.org/10.1016/j.uclim.2014.01.007> (last access: 18.06.2019).
2. *Горчаков Г.И., Свириденков М.А., Семутникова Е.Г., Чубарова Н.Е., Холбен Б.Н., Смирнов А.В., Емиленко А.С., Исаков А.А., Копейкин В.М., Карпов А.В., Лезина Е.А., Задорожная О.С.* Оптические и микрофизические характеристики аэрозоля задымленной атмосферы Московского региона в 2010 году // Докл. АН. 2011. Т. 437, № 5. С. 686–690.
3. *Кадыров Е.Н., Кузнецова И.Н.* Методические рекомендации по использованию данных дистанционных измерений профилей температуры в атмосферном пограничном слое микроволновыми профиломерами: теория и практика. Долгопрудный: Физматкнига, 2015. 171 с.
4. *Elansky N.F., Ponomarev N.A., Verevkin Y.M.* Air quality and pollutant emissions in the Moscow megacity in 2005–2014 // *Atmos. Environ.* 2018. V. 175. P. 54–64.
5. *Нахаев М.И., Березин Е.В., Шалыгина И.Ю., Кузнецова И.Н., Коновалов И.Б., Блинов Д.В., Лезина Е.А.* Экспериментальные расчеты концентраций  $\text{PM}_{10}$  и  $\text{CO}$  комплексом моделей CHIMERE и COSMO-RU7 // Оптика атмосф. и океана. 2015. Т. 28, № 6. С. 569–578.
6. *Зарипов Р.Б., Коновалов И.Б., Кузнецова И.Н., Беликов И.Б., Звягинцев А.М.* Использование моделей WRF ARW и CHIMERE для численного прогноза концентрации приземного озона // Метеорол. и гидрол. 2011. № 4. С. 48–60.
7. *Вильфанд Р.М., Курсанов А.А., Ривин Г.С., Ревокатова А.П., Суркова Г.В.* Прогноз перемещения и трансформации загрязняющих веществ в атмосфере с помощью модели COSMO-ART // Метеорол. и гидрол. 2017. № 5. С. 31–40.
8. *Revokatova A.P., Kislov A.V., Surkova G.V., Kirsanov A.A., Rivin G.S., Vogel B., Vogel H.* Short-term forecast of the carbon monoxide concentration over the Moscow region by COSMO-ART // *Pure Appl. Geophys.* 2018. P. 1–15.

9. Еланский Н.Ф., Локощенко М.А., Трифанова А.В., Беликов И.Б., Скороход А.И. О содержании малых газовых примесей в приземном слое атмосферы над Москвой // Изв. РАН. Физ. атмосфер. и океана. 2015. Т. 51, № 1. С. 39–51.
10. Кирсанов А.А., Кострова У.В., Ревокатова А.П., Ривин Г.С., Суркова Г.В. Прогноз концентраций загрязняющих веществ в атмосфере на основе системы COSMO-Ru-ART // Турбулентность, динамика атмосферы и климата. М.: Физматкнига, 2018. С. 356–362.
11. Sofiev M. Extended resistance analogy for construction of the vertical diffusion scheme for dispersion models // J. Geophys. Res.: Atmos. 2002. V. 107. ACH 10-1–10-8.
12. Sofiev M. A model for the evaluation of long-term airborne pollution transport at regional and continental scales // Atmos. Environ. 2000. V. 34. P. 2481–2493.
13. Gery M., Whitten G., Killus J., Dodge M. A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale computer modeling // J. Geophys. Res. 1989. V. 94, N 10. P. 12925–12956.
14. EMEP/EEA air pollutant emission inventory guidebook. 2016. DOI:10.2800/247535.
15. Denier van der Gon H.A.C., Kuenen J., Butler T. A base year (2005) MEGAPOLI global gridded emission inventory // MEGAPOLI Scientific Report 10-13 (1st Version). 2010. MEGAPOLI-16-REP-2010-06. 20 p. URL: [http://megapoli.dmi.dk/publ/MEGAPOLI\\_sr10-13.pdf](http://megapoli.dmi.dk/publ/MEGAPOLI_sr10-13.pdf) (last access: 10.06.2019).
16. Kuenen J., Denier van der Gon H.A.C., Visschedijk A., van der Brugh H., Finardi S., Radice P., d'Allura A., Beevers S., Theloke J., Uzbasich M., Honore C., Perrussel O. MEGAPOLI Scientific Report 10-17. A base year (2005) MEGAPOLI European gridded emission inventory (Final Version). Utrecht, Netherlands. 2010. 39 pp.
17. Butler T.M., Lawrence M.G., Gurjar B.R., van Aardenne J., Schultz M., Lelieveld J. The representation of emission from megacities in global emission inventories // Atmos. Environ. 2008. V. 42. P. 703–719.
18. Stremme W., Grutter M., Rivera C., Bezanilla A., Garcia A.R., Ortega I., George M., Clerbaux C., Coheur P.-F., Hurtmans D., Hannigan J.W., Coffey M.T. Top-down estimation of carbon monoxide emissions from the Mexico Megacity based on FTIR measurements from ground and space // Atmos. Chem. Phys. 2013. V. 13. P. 1357–1376.
19. Пономарев Н.А., Еланский Н.Ф., Захаров В.И., Веревкин Я.М. Оптимизация эмиссий загрязняющих примесей для моделирования качества воздуха в Москве // Процессы в геосредах. 2019. № 1. С. 65–73.
20. Еланский Н.Ф., Мохов И.И., Беликов И.Б., Березина Е.В., Елохов А.С., Иванов В.А., Панкратова Н.В., Постыляков О.В., Сафронов А.Н., Скороход А.И., Шумский Р.А. Газовые примеси в атмосфере над Москвой летом 2010 г. // Изв. РАН. Физ. атмосфер. и океана. 2011. Т. 47, № 6. С. 1–10.
21. Dorninger M., Gilleland E., Casati B., Mittermaier M., Ebert E., Brown B., Wilson L. The set-up of the Mesoscale Verification Inter-Comparison over Complex Terrain (MesoVICT) Project // Bull. Am. Meteorol. Soc. 2018 (in press). DOI:10.1175/BAMS-D-17-0164.1.
22. Pierce T., Hogrefe C., Rao S.T., Porter P.S., Ku J.-Y. Dynamic evaluation of a regional air quality model: Assessing the emissions-induced weekly ozone cycle // Atmos. Environ. 2010. V. 44. P. 3583–3596.
23. Еланский Н.Ф., Шилкин А.В., Семутникова Е.Г., Захарова П.В., Ракитин В.С., Пономарев Н.А., Веревкин Я.М. Недельный цикл содержания загрязняющих примесей в приземном воздухе г. Москвы // Оптика атмосфер. и океана. 2018. Т. 31, № 10. С. 829–836; Elansky N.F., Shilkin A.V., Semutnikova E.G., Zaharova P.V., Rakitin V.S., Ponomarev N.A., Verevkin Y.M. Weekly cycle of pollutant concentrations in near-surface air over Moscow // Atmos. Ocean. Opt. 2019. V. 32, N 1. P. 85–93.
24. Palmer P.I., Jacob D.J., Fiore A.M., Martin R.V., Chanc K., Kurosu T.P. Mapping isoprene emissions over North America using formaldehyde column observations from space // J. Geophys. Res. D. 2003. V. 108, N 6. P. 41–80.
25. Jeričević A., Kraljević L., Grisogono B., Fagerli H., Večenaj Ž. Parameterization of vertical diffusion and the atmospheric boundary layer height determination in the EMEP model // Atmos. Chem. Phys. 2010. V. 10. P. 341–364.
26. Еланский Н.Ф., Лаерова О.В., Ракитин А.А., Скороход А.И. Антропогенные возмущения состояния атмосферы в Московском регионе // Докл. АН. 2014. Т. 454. С. 456–460.
27. Borovski A., Grechko E., Djola A., Elokho A., Postylyakov O., Kanaya Y. First measurements of formaldehyde integral content at Zvenigorod Scientific Station // Int. J. Remote Sens. 2014. V. 35, N 15. P. 5609–5627. DOI:10.1080/01431161.2014.945011.
28. Gruzdev A.N., Elokho A.S. Variability of stratospheric and tropospheric nitrogen dioxide observed by the visible spectrophotometer at Zvenigorod, Russia // Internat. J. Remote Sens. 2011. V. 32, N 11. P. 3115–3127. DOI:10.1080/01431161.2010.541524.

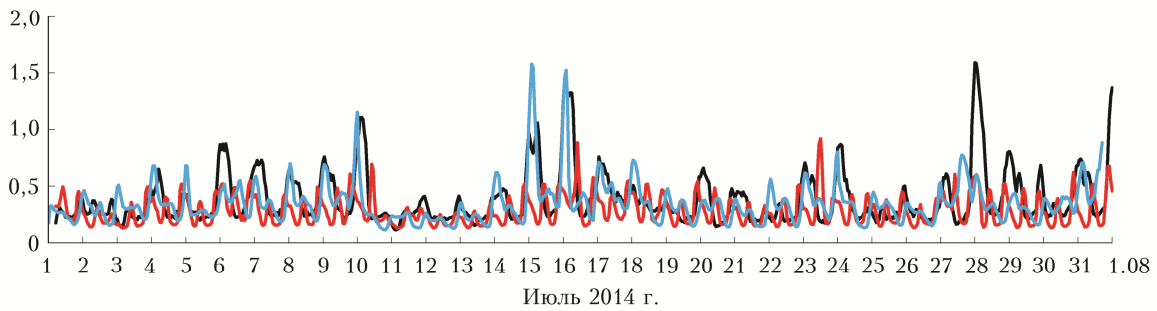
*N.A. Ponomarev, N.F. Elansky, A.A. Kirsanov, O.V. Postylyakov, A.N. Borovski, Y.M. Verevkin.*  
**The application of atmospheric chemical transport models to the validation of pollutant emissions in Moscow.**

According to long-term observations at the network of “MosEcoMonitoring” stations operating since the beginning of 2000s, CO, NO, NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>, and PM<sub>10</sub> emissions from urban sources and their spatial distribution and temporal variability were calculated. The resulting emission matrix was used in the SILAM chemical transport model to assess air quality in the Moscow megacity. Based on the comparison of the calculations with the observation data using correlation relations and Student’s criterion, the emission matrix was corrected. To optimize the spatial distribution of sources and the magnitude of emissions in the Moscow megacity, air pollutant fields for the summer and winter months were calculated using two chemical transport models SILAM and COSMO-ART, as well as calculated emissions and those taken from the TNO inventory database. Comparison of the calculation results for the two models using two emission matrices allowed us to reduce the uncertainties of air quality assessment in the Moscow region.



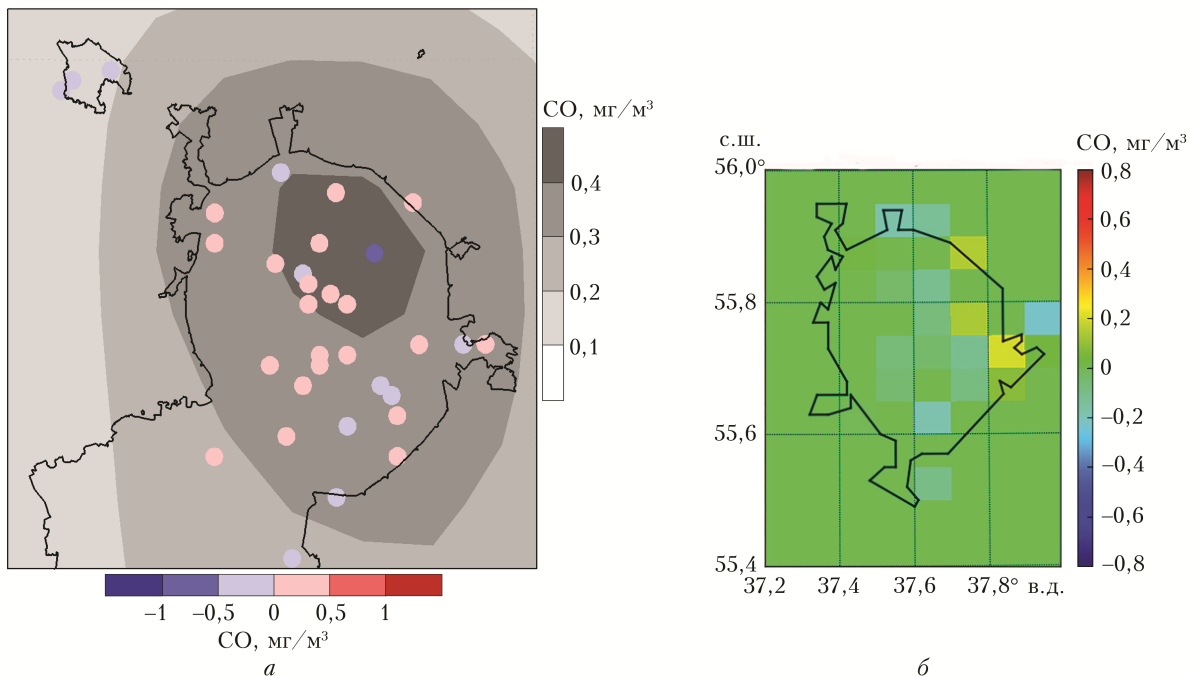


*a*



*б*

Рис. 1. Графики средней по Москве концентрации CO, полученные в результате расчетов XTM COSMO-ART (красная кривая) и SILAM (голубая кривая), а также измерений МЭМ (черная кривая): *a* – для января; *б* – июля 2014 г., при использовании оптимального распределения эмиссий ИФА в модельных расчетах



*a*

*б*

Рис. 2. Поле среднемесячной концентрации CO, рассчитанной XTM COSMO-ART на нижнем модельном уровне (серый цвет), а также разница рассчитанной концентрации CO, с измерениями МЭМ (синие и красные точки) для Москвы в январе 2014 г. (*a*); разница концентраций CO, между расчетами XTM SILAM и измерениями МЭМ (синий и красный) для Москвы в январе 2014 г. (*б*); расчеты были произведены при использовании оптимального распределения эмиссий ИФА

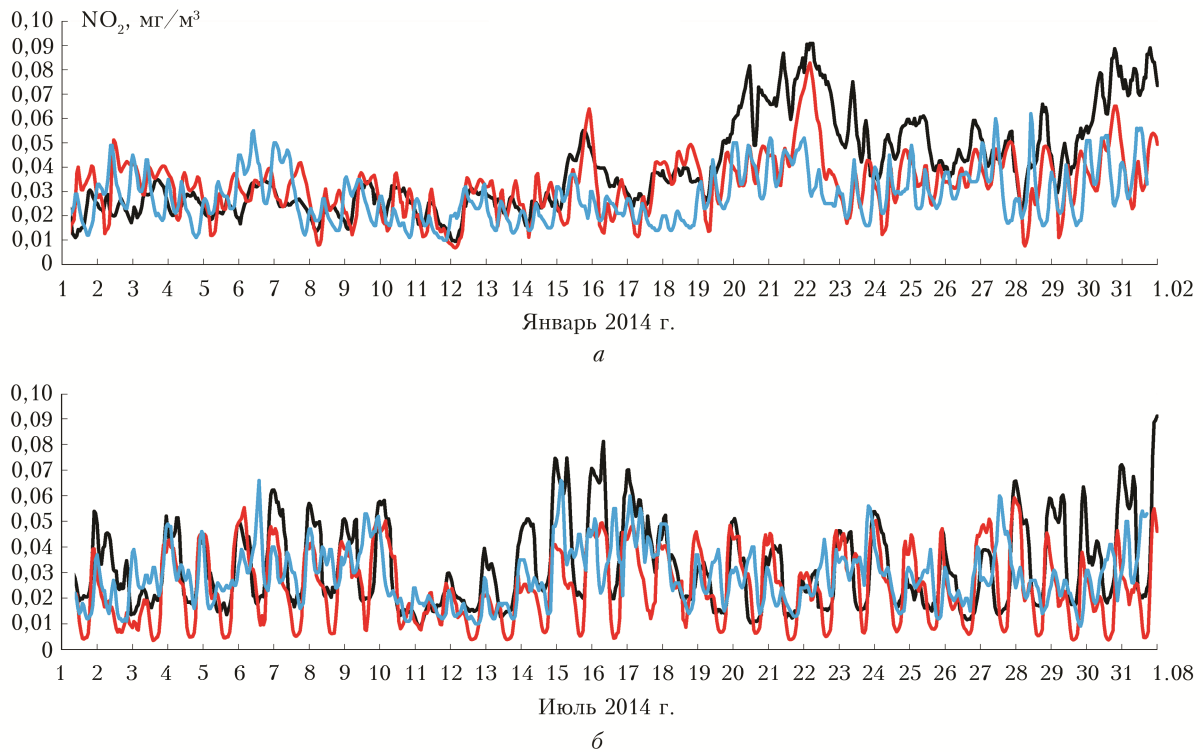


Рис. 3. Графики средней по Москве концентрации  $\text{NO}_2$ , полученные в результате расчетов XTM COSMO-ART (красная кривая) и SILAM (голубая кривая), а также измерений МЭМ (черная кривая): *а* – для января; *б* – июля 2014 г., при использовании оптимального распределения эмиссий ИФА в модельных расчетах

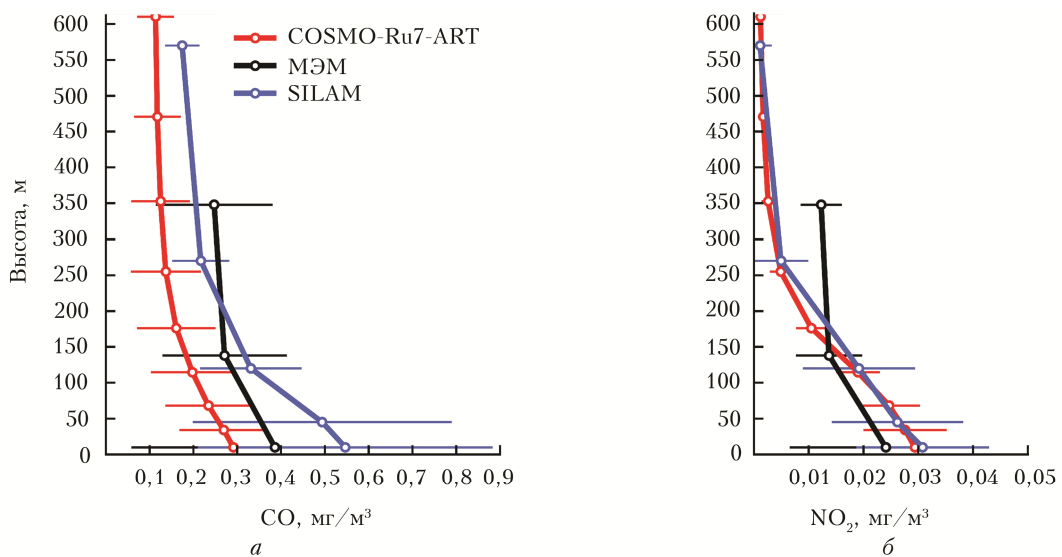


Рис. 4. Вертикальные профили концентраций  $\text{CO}$  (*а*) и  $\text{NO}_2$  (*б*), измеренных на ТБ «Останкино» сети МЭМ (черная кривая) и рассчитанных в ближайшем узле сетки XTM COSMO-ART (красная кривая) и SILAM (синяя кривая), осредненные для июля 2014 г., при использовании оптимального распределения эмиссий ИФА в модельных расчетах