

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт физики атмосферы им. А.М. Обухова РАН

На правах рукописи



Иванов Виктор Александрович

**Содержание двуокиси азота в нижней
тропосфере над урбанизированными районами**

25.00.29 – Физика атмосферы и гидросферы

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва – 2012

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институт физики атмосферы им. А.М. Обухова РАН.

Научный руководитель: член-корреспондент РАН, профессор,
доктор физико-математических наук,
Еланский Николай Филиппович.

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук,
зав. лаб. в ИФА им А.М. Обухова РАН,
Семенов Анатолий Иванович;
кандидат физико-математических наук,
с.н.с. в НИФХИ им Л.Я. Карпова,
Обвинцева Людмила Алексеевна.

Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное учреждение « Научно-производственное объединение «Тайфун»».

Защита состоится 12 апреля в 11 часов на заседании диссертационного совета Д 002.096.01 при Институте физики атмосферы им. А.М. Обухова РАН, расположенном по адресу: 119017, г. Москва, Пыжевский пер., д. 3.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Института физики атмосферы им. А.М. Обухова РАН.

Автореферат разослан 1 марта.

Ученый секретарь

диссертационного совета Д 002.096.01,

кандидат географических наук



Краснокутская Л.Д.

Общая характеристика работы

Актуальность работы. Двуокись азота (NO_2) относится к химически активным газовым составляющим атмосферы. В основном ее количество сосредоточено в пограничном слое атмосферы и в стратосфере. Двуокись азота играет ключевую роль в каталитическом цикле разрушения озона (O_3). Поэтому, когда в 70-х гг прошлого века остро встала проблема разрушения стратосферного озонового слоя атмосферы, начались регулярные наблюдения содержания NO_2 в стратосфере [Noxon, 1979; Solomon & al., 1987]. Одна из первых станций мониторинга стратосферного содержания NO_2 начала действовать в СССР на Северном Кавказе - Кисловодская высокогорная научная станция ИФА РАН [Еланский, Арабов и др. 1982, 1986]. В конце 80-х – начале 90-х годов в СССР была сформирована уникальная сеть из 5 станций, которая являлась ключевым элементом глобальной системы наблюдения содержания NO_2 в стратосфере [McElroy & al., 1997; Голицын и др., 1996]. В конце 90-х годов, когда содержание озона в стратосфере практически восстановилось до климатически среднего уровня, наибольшее беспокойство стало вызывать быстрое увеличение концентрации тропосферного озона и ухудшение качества приземного воздуха в урбанизированных районах. Для изучения причин и механизмов таких изменений необходима была информация о содержании NO_2 в тропосфере и, в особенности, в пограничном слое атмосферы (ПСА), где NO_2 играет важную роль в системе взаимодействий экосистем и атмосферы. Двуокись азота вносит вклад в образование кислотных дождей [Platt, 2008]. Кислотные дожди оказывают отрицательное воздействие на поверхностные и грунтовые воды — повышая их кислотность до такого уровня, который вызывает деградацию и гибель флоры и фауны. Высокая концентрация NO_2 может приводить к хроническим заболеваниям дыхательных путей. Клинические испытания показали, что высокое содержание NO_2 вызывает ги-

поксемию, ацидоз (кислотную интоксикацию) и отек легких [Schedin, 1999]. Есть данные, что NO_2 обладает мутагенными свойствами [Isomura, 1984]. Для уменьшения риска заболеваемости населения, всемирная организация здравоохранения рекомендует устанавливать предельно допустимую среднегодовую концентрацию (ПДК_{год}) NO_2 на уровне 40 мкг/м³, а для кратковременного воздействия установить среднечасовую ПДК_{час} на уровне 200 мкг/м³ [WHO, 2005]. В России такие значения ПДК были установлены в 2006 году. Поскольку не менее 45% тропосферных эмиссий NO_2 имеют антропогенное происхождение, NO_2 является хорошим индикатором локального и регионального загрязнения атмосферы антропогенными газами. И хотя в глобальном масштабе NO_2 не является парниковым газом, внося у поверхности земли в среднем в радиационный баланс атмосферы только 0.05 Вт/м² [Vasilkov, 2009], в загрязненных регионах вклад NO_2 в радиационный баланс достигает 2-4 Вт/м² [Vasilkov, 2009], а в кратковременный период до 30 Вт/м² [Solomon, 1999].

Существующие дистанционные / контактные методы измерения интегрального содержания / концентрации NO_2 в нижней тропосфере имеют ряд недостатков, ограничивающих область их применения. Например: 1) методы измерения ИС NO_2 в нижней тропосфере, основанные на измерении спектров в ультрафиолетовой и видимой областях, некорректно работают при наличии облачности; 2) использование данных со спутников затруднено из-за того, что пространственное разрешение спутниковых приборов намного больше характерных размеров антропогенных источников NO_2 , а время между пролетами спутников превышает время жизни NO_2 ; 3) в контактных методах измерения концентрации NO_2 анализируется лишь небольшой объем воздуха, прокачиваемый через прибор, поэтому контактные измерения чувствительны к влиянию близкорасположенных источников. Это затрудняет получение представления пространственной структуры загрязнения.

Таким образом, актуальность работы была связана с необходимостью:

- 1) разработки метода восстановления содержания NO_2 в пограничном слое атмосферы, работающего в более широком диапазоне условий наблюдений и устойчивого для работы в условиях большого числа источников NO_2 ;
- 2) исследования причин и механизмов влияющих на изменчивость NO_2 в пограничном слое атмосферы над урбанизированными районами, в которых образуется и находится основная доля NO_2 в нижней тропосфере.

Цель диссертационной работы состояла в разработке спектрального метода определения содержания NO_2 в пограничном слое атмосферы, проведении наблюдений и анализе влияния антропогенных источников на пространственное распределение и временную изменчивость содержания NO_2 в урбанизированных районах.

Научная новизна:

1. Разработан спектральный метод восстановления интегрального содержания NO_2 в ПСА по рассеянному в зените солнечному излучению, который позволяет проводить измерения как в безоблачных условиях, так и при сплошной облачности. Из-за выбранной геометрии наблюдения, метод получил название *зенитного*.
2. Впервые, на основе данных наземных измерений, получены численные характеристики суточных, недельных и сезонных вариаций интегрального содержания NO_2 в ПСА для г. Москвы.
3. Впервые, на основе зенитного метода, сделаны количественные оценки эмиссий NO_2 от автотранспорта в г. Москве.
4. Впервые, сделано и обосновано предположение, о том, что причиной наблюдения сверхвысоких наклонных содержаний NO_2 в г. Москве может быть сильный дождь либо снегопад.

5. Выявлены факторы влияющие на накопление и изменчивость содержания NO_2 в ПСА в условиях длительного антициклонического блокинга и в период задымления от лесных пожаров летом 2010 года.

Практическая значимость. Созданные средства измерений, методы и алгоритмы, могут быть использованы на сети станциях мониторинга состояния окружающей среды. Полученные характеристики пространственной и временной изменчивости содержания NO_2 в городском воздухе могут быть использованы для прогнозирования качества воздуха, разработки рекомендаций и мероприятий по предотвращению образования экстремальных экологических ситуаций.

На защиту выносятся следующие основные положения:

1. Спектральный метод восстановления интегрального содержания NO_2 в пограничном слое атмосферы (ПСА) по рассеянному в зените солнечному излучению, который позволяет проводить наблюдения как в безоблачных, так и в облачных условиях. Ошибка метода не превышает 25% в отсутствии облачности и не превышает 36% при наличии облачности, не совпадающей по положению со слоем NO_2 . Для случая совпадения предложена методика учета и коррекции данных.
2. Аппаратно-программный комплекс для наблюдения интегрального содержания NO_2 в ПСА и методология проведения сетевых наблюдений.
3. Характерные особенности пространственной и временной изменчивости содержания NO_2 в воздушном бассейне Московского мегаполиса, г. Минска и других крупных городов, расположенных вдоль транссибирской магистрали.

4. Оценки эмиссии NO_2 от автотранспорта в г. Москве. Выбросы автотранспорта преобладают над эмиссиями от других источников и составляют примерно 90 ктонн/год или 65% от суммарных выбросов NO_2 на территории города.
5. Характеристика процессов, определяющих накопление и изменение содержания NO_2 в ПСА в условиях длительного антициклонического блокинга и в период задымления от лесных пожаров летом 2010 года.

Апробация работы. Основные результаты диссертации докладывались на следующих конференциях: на конференции молодых ученых «Состав атмосферы. Атмосферное электричество. Климатические процессы.» (Нижний Новгород, 2008; Звенигород 2009; Борок 2011), Международный симпозиум «Атмосферная радиация и динамика» (Петергоф, 2009, 2011), на рабочей группе «Аэрозоли Сибири» (Томск, 2009, 2010, 2011), на международной школе по атмосферным наукам «European research course on the atmospheric» (Гренобль, Франция, 2010), на всероссийской открытой конференции «Современные проблемы дистанционного зондирования земли из космоса» (Москва, 2009, 2010), на международной конференции «Естественные и антропогенные аэрозоли» (Петергоф, 2010), на конференции молодых специалистов в НПО Тайфун (Обнинск, 2010), на 5-ом международном семинаре «5-th international DOAS Workshop» (Майнц, Германия, 2011). Также материалы диссертации докладывались на Озонном семинаре в ИФА РАН (Москва, 2010) и на рабочем совещании в японском агентстве по наукам о земле и океане «JAMSTEC» (Йокогама, Япония, 2011).

Публикации. Материалы диссертации опубликованы в 26 печатных работах, из них 5 статей в журналах, рекомендованных ВАК, и 21 тезисов докладов. Одна статья сдана в редакцию журнала.

Личный вклад автора. Автор внес основной вклад в разработку метода восстановления содержания NO_2 в ПСА по рассеянному в зените солнечному излучению, участвовал в создании сети наблюдений NO_2 , в части подготовки приборов и создания программного обеспечения. Проведение наблюдений, анализ данных и публикация результатов выполнялась совместно с соавторами, причем вклад диссертанта был определяющим. Все представленные в диссертации результаты получены лично автором.

Благодарности. Автор выражает глубокую благодарность своему научному руководителю д.ф.-м.н., профессору Н.Ф. Еланскому за неизменное внимание, ценные советы и конструктивные замечания в течение всего периода работы над диссертацией. Большое влияние на направление и уровень исследований, а также консультации и полезные рекомендации оказали сотрудники Лаборатории газовых примесей атмосферы Института физики атмосферы им. А.М. Обухова. Особо автор хочет отметить неоценимую помощь ученых и специалистов, с которыми автор имел плодотворные контакты по теме диссертации: к.ф.-м.н. И.Б. Беликов, А.Н. Боровский, И. Бручковский, к.ф.-м.н. А.С. Елохов, д.ф.-м.н. А.Н. Груздев, к.ф.-м.н. О.В. Постыляков, к.ф.-м.н. А.Н. Сафронов, Р.А. Шумский, Н. Irie, Y. Kanaya. Автор выражает им искреннюю благодарность и особую признательность за помощь при написании диссертации.

Содержание работы

Во Введении обоснована актуальность диссертационной работы, сформулирована цель и аргументирована научная новизна исследований и практическая значимость полученных результатов, представлены выносимые на защиту научные положения.

В первой главе описаны основные источники, методы измерения, пространственное распределение и временная изменчивость, а также, химическая трансформация окислов азота ($NO_x = NO + NO_2$) в тропосфере.

Окислы азота играют одну из ключевых ролей в химии атмосферы, поэтому изложены в *разделе 1.1.1* основные химические взаимодействия с участием NO_x , большая часть из которых носит циклический характер.

В *разделе 1.1.2* подробно описаны тропосферные источники эмиссий NO_x . Особое внимание уделяется высокотемпературному (выше 1800 К) горению топлива на промышленных установках и в двигателях автотранспортных средств, на которое приходится более половины выбросов NO_x в нижней тропосфере. В городах и промышленных центрах, доля выбросов NO_x от сгорания топлива может еще выше, достигая 80 %. Мощными источниками NO_x , также, являются грозы и лесные пожары. Грозы приводят к сильному, но кратковременному и локальному повышению концентрации NO_x , а эмиссия NO_x от природных пожаров сильно зависит от типа горящей биомассы (лесные, степные, торфяные пожары, сжигание отходов сельского хозяйства и т.д.)

Раздел 1.2 посвящен описанию и сравнительному анализу методов измерения интегрального содержания (ИС) NO_2 в нижней тропосфере. Существующие методы измерения ИС NO_2 в нижней тропосфере имеют ряд недостатков, ограничивающих область их применения. Например, методы измерения ИС NO_2 в нижней тропосфере, основанные на измерении спектров в ультрафиолетовой и видимой областях, не дают корректные результаты при наличии оптически плотной облачности. Поэтому для исследования содержания NO_2 в нижней тропосфере был разработан метод восстановления ИС NO_2 в пограничном слое атмосферы из спектров рассеянного в зените солнечного излучения. Этот метод получил название *зенитного*. Он позволя-

ет проводить измерения, как в безоблачных условиях, так и при сплошной облачности. Описание зенитного метода приводится в главе 3.

В *разделе 1.3* даны характерные черты пространственного распределения и временной изменчивости ИС NO_2 в нижней тропосфере. Промышленные регионы США, западной Европы, восточного Китая, а также, мегаполисы являются основными местами, где наблюдается повышенный фон ИС NO_2 в нижней тропосфере. В этих регионах, отмечаются суточная, недельная и сезонная цикличность ИС NO_2 , связанная с жизнедеятельностью населения, а также с метеорологическими и климатическими процессами, происходящими в атмосфере. В окрестности крупных городов и промышленных районов, т.е. в среднем на расстоянии 40 – 80 км от них, ИС NO_2 в нижней тропосфере испытывает значительные временные вариации, в зависимости от социально-экономической значимости области из которой осуществляется трансфер воздушной массы (город/предприятие либо сельская местность).

В *разделе 1.4* сформулированы основные задачи, решению которых посвящена диссертационная работа.

В **главе 2** представлено описание созданной совместной российско-белорусской сети, включающей 5 наблюдательных пунктов, оборудованных автоматическими измерительными комплексами мониторинга интегрального содержания (ИС) NO_2 .

Раздел 2.1 посвящен описанию характеристик аппаратной части приборного комплекса и мест установки приборов сети. Сеть состоит из однотипных спектрометров Oriel MS-260i и Oriel MS-257i, установленных в Минске, Москве (центр, юго-запад) и в Звенигороде, находящемся в 50 км западнее Москвы. В 2011 году дополнительно к этим станциям была оборудована передвижная измерительная платформа на базе автомобиля. В качестве базового спектрального прибора в ней используется спектрометр нового поколения

Shamrock SR-163i. Также, с 2006 по 2010 гг. измерения интегрального содержания NO_2 проводились с вагона-лаборатории TROICA.

В *разделе 2.2* дано поэтапное описание подготовки прибора для работы в сети наблюдения.

Работа сети обсуждается в *разделе 2.3*. Большая часть этого раздела, содержит описание специально разработанного программного обеспечения, поддерживающего работу измерительного комплекса. В режиме реального времени оно обеспечивает контроль работы электромеханических приводов комплекса, подстраивание алгоритма работы под условия наблюдения и обработку измеряемых спектров.

Глава 3 посвящена методу восстановления содержания NO_2 в пограничном слое атмосферы по рассеянному солнечному излучению при наблюдениях в зенит (зенитный метод). Измерения с помощью данного метода проводятся в дневное время и в сумерки при зенитном угле Солнца не превышающем 96° .

В *разделе 3.1* описан алгоритм работы метода, который раскрывается в *разделах 3.2-3.4*. Алгоритм зенитного метода восстановления содержания NO_2 в ПСА включает несколько блоков:

1. Определение наклонного содержания NO_2 ($X_{\text{атм}}$) во всей толще атмосферы днем и в сумерки с помощью метода дифференциальной спектроскопии DOAS.
2. Восстановление профиля содержания NO_2 в стратосфере по сумеречным наблюдениям ($n_{\text{стр}}$).
3. Расчет наклонного содержания NO_2 в стратосфере $X_{\text{стр}}$, из полученного на предыдущем этапе профиля содержания NO_2 :

$$X_{\text{стр}} = \sum m_{\text{стр}} \cdot n_{\text{стр}},$$

где $m_{\text{стр}}$ — коэффициент воздушной массы для слоя стратосферы.

4. Аппроксимация стратосферного содержания NO_2 между утренними и вечерними сумерками с помощью фотохимической модели $chem(\dots)$:

$$X_{\text{стр}}^{\text{день}} = chem(X_{\text{стр}}^{\text{утро}}, X_{\text{стр}}^{\text{вечер}}).$$

5. Решение основного уравнения зенитного метода, относительно содержания NO_2 в пограничном слое атмосферы ($n_{\text{ПСА}}$):

$$X_{\text{атм}} - X_{\text{стр}}^{\text{день}} = X_{\text{ПСА}} = \int m_{\text{ПСА}}(h, A, h_{\text{cld}}, \tau) \cdot n_{\text{ПСА}}(h) dh, \quad (1)$$

где $m_{\text{ПСА}}$ — воздушная масса для ПСА, рассчитываемая с использованием данных об атмосфере и поверхности Земли; h - высота ПСА, A - альbedo земной поверхности, h_{cld} - высота нижней границы облачности, τ - оптическая толщина облачности.

6. Восстановление вертикального содержания NO_2 в ПСА:

$$V_{\text{ПСА}} = \int n_{\text{ПСА}}(h) dh.$$

В разделе 3.2 приводится схема восстановления наклонного содержания NO_2 по методу дифференциальной спектроскопии DOAS. Точность восстановления наклонного содержания NO_2 на приборах сети составляет порядка $5 \cdot 10^{14}$ мол/см² или 2% от среднего, наблюдающегося в Москве интегрального количества NO_2 в толще атмосферы.

В *разделе 3.3* дано описание модифицированной методики для восстановления вертикального профиля содержания NO_2 в стратосфере и свободной тропосфере. Она отличается от подобных методик более строгим математическим подходом к использованию априорной информации и оценке качества данных. Для слоя 20-40 км высотное разрешение методики составляет около

7 км. Ошибка восстановления профиля NO_2 по ней около 10% или примерно 4% от общего атмосферного содержания NO_2 .

Раздел 3.4 посвящен восстановлению вертикального содержания (ВС) NO_2 в ПСА из наклонного содержания (НС) NO_2 в ПСА. Для этого по модели переноса излучения (МПИ) рассчитывается коэффициент послойной воздушной массы (ПВМ), равный отношению НС NO_2 к ВС NO_2 .

В текущей версии алгоритма зенитного метода, используются следующие входные параметры модели МПИ для расчета ПВМ:

- Высотный профиль NO_2 . В нашей работе – это профиль с постоянным по высоте отношением смеси NO_2 до высоты верхней границы слоя перемешивания. Выше этой границы предполагается, что NO_2 отсутствует. Высота слоя перемешивания для измерения заимствуется из банка-данных Global Data Assimilation System (GDAS) и линейно интерполируется на время измерения.
- Альbedo подстилающей поверхности. Для задания значения величины альbedo, используются данные спутникового прибора MODIS (продукт MCD43A3). Этот продукт, содержит усредненные за 16 дней значения альbedo земной поверхности с пространственным разрешением в 0.5 км и точность 10% для видимого спектрального диапазона.
- Облачность. Источником метеорологической информации о балльности нижнего яруса облачности и его нижней границы является интернет-архив <http://meteo.infospace.ru>. При измерениях в облачный день, оптическая толщина облачности во всех случаях восстановления содержания NO_2 в ПСА полагается равной 16.

Ошибка расчета ПВМ для ПСА, преимущественно, связана с неопределенностью входных параметров МПИ. С учетом наличия погрешностей в выше сказанных параметрах МПИ, ошибка расчета ПВМ для ПСА не превышает 20% при отсутствии снежного покрова или при установившемся снежном

покрове (в сезон) и 30%, если снег лежит местами и временами (межсезонье) в том случае, если слой NO_2 ниже слоя облачности (см. Таблицу 1).

Таблица 1. Максимальная возможная ошибка расчета коэффициента послойной воздушной массы для пограничного слоя атмосферы в некоторый сезон. h [м] - высота слоя NO_2 , a - альбеде земной поверхности, τ - оптическая толщина облачности, h_{cld} [м] – высота нижней границы облачности. Для расчета ошибки в условиях облачности, предполагалось, что средняя величина оптической толщины облачности равна 16 и может изменяться в пределах от 0 – 32. В столбце «сезон года» даны средние для сезона значения альбеде и высоты слоя перемешивания, а в столбце «значение неопределенности» – интервал неопределенности для соответствующего параметра модели переноса излучения.

Сезон года	Значение неопределенности	Ошибка расчета ПВМ в ПСА %	
		без облачности	с облачностью $\tau = 16, h_{cld} = 1000$ м
Нет снега $a = 0.05$ $h = 2000$ м	Альбеде (a) $a = 0.05 \pm 0.005$	1.8	3.2
	Высота слоя перемешивания (h) $h = 2000 \pm 200$ м	2.7	2.0
Снег местами и временами $a = 0.2$ $h = 400$ м	Альбеде (a) $a = 0.2 \pm 0.15$	25	30
	Высота слоя перемешивания (h) $h = 400 \pm 100$ м	1.8	2.0
Снежный покров установился $a = 0.35$ $h = 400$ м	Альбеде (a) $a = 0.35 \pm 0.035$	7.8	18.0
	Высота слоя перемешивания (h) $h = 400 \pm 100$ м	5.0	0.4

В таком случае, общая ошибка метода восстановления содержания NO_2 в пограничном слое атмосферы (ПСА), состоящая из ошибки расчета ПВМ для ПСА (не более 20% от общего содержания NO_2 в атмосфере в сезон и не более 30% в межсезонье), ошибки восстановления стратосферного содержания NO_2 (менее 4%) и ошибки измерения наклонного содержания (менее 2%) составляет менее 26% при отсутствии снежного покрова или при установившемся снежном покрове (сезон) и 36%, если снег лежит местами и временами (межсезонье), при условии, что слой NO_2 не совпадает по высоте со слоем облачности (см. *раздел 3.5*). При расчете общей ошибки метода полагалось, что содержание NO_2 в ПСА и стратосфере равно $1.5 \cdot 10^{16}$ мол/см² и $0.5 \cdot 10^{16}$ мол/см², соответственно.

В случае совпадения слоев облачности и слоя NO_2 ошибка восстановления может быть значительно выше, из-за уменьшения горизонтальной дальности видимости атмосферы. Для таких условий наблюдения, был разработан специальный подход для коррекции данных восстановления см. *раздел 3.6*.

Как и любой метод измерения, зенитный метод требует проведения валидационных исследований. В *разделе 3.7* сравниваются данные восстановления ИС NO_2 в ПСА полученные с помощью зенитного метода и другими методами. Коэффициент корреляции между данными, полученными по зенитному методу и по сумеречному методу (Елохов, Груздев, 2000) составил 0.95, соответствующий коэффициент с данными наземного спектрометрического метода MAX-DOAS равен 0.86, а коэффициент корреляции с данными спутникового прибора OMI (продукт ColumnAmount NO_2 Polluted) примерно равен 0.55 для летнего периода (май - август).

Глава 4 посвящена исследованию пространственного распределения и временной изменчивости содержания NO_2 в атмосфере над городами Северной Евразии. В данном исследовании были использованы данные о содержа-

нии NO_2 в ПСА, полученные в период с июля 2010 по сентябрь 2011 года, кроме данных эксперимента ТРОЙКА.

В разделах 4.1 и 4.4 даны характерные особенности пространственно распределения NO_2 в ПСА над Северной Евразией. Наибольшее содержание NO_2 в ПСА отмечается в г. Москве. В среднем содержание NO_2 над Москвой в несколько раз превышает содержание NO_2 наблюдаемое над другими крупными городами, где проводились измерения NO_2 , и более чем на порядок превышает содержание NO_2 , наблюдаемое над фоновыми областями Северной Евразии.

В городах пространственное распределение и временная изменчивость содержания NO_2 в ПСА связана с городской жизнедеятельностью и расположением потенциальных источников NO_2 . К основным источникам NO_2 в городах относятся промышленные предприятия, предприятия энергетики и автотранспорт. Это выявлено с помощью эксперимента проведенном 6 ноября 2011 года на автомобиле-лаборатории. Из сравнения экспериментальных содержаний NO_2 в ПСА, полученных на станциях наблюдения, с модельными содержаниями NO_2 в ПСА, рассчитанными по модели переноса примеси, получены оценки выбросов NO_2 от автотранспорта в г. Москве (см. раздел 4.2). Автотранспорт является основным источником NO_2 в Москве, мощность выбросов которого, составляет порядка 90 ктонн NO_2 в год или 65% от суммарной эмиссии NO_2 в городе. Поэтому в Москве отмечается значительная положительная корреляция между длиной автомобильных пробок и содержанием NO_2 в ПСА.

В разделе 4.1 приводятся численные характеристики суточного и недельного циклов, а также сезонного хода содержания NO_2 в ПСА над г. Москвой.

Недельный цикл содержания NO_2 характеризуется повышенными содержаниями NO_2 с понедельника по пятницу и пониженными с субботы по воскресенье. Амплитуда недельного цикла составляет $1.8 \cdot 10^{16}$ мол/см² или 45%

от максимального значения содержания NO_2 . Уровень статистической значимости, так называемой, нулевой гипотезы недельного цикла менее 5%. Суть нулевой гипотезы заключалась в том, что средние содержания во все дни недели совпадают. По-видимому, существование недельной цикличности содержания NO_2 связано с режимом работы автотранспорта. По данным аналитического центра «яндекс пробки», такая же относительная недельная цикличность наблюдается и в длине автомобильных пробок для временного интервала с 16 до 20 часов вечера по Московскому времени.

Дневной ход содержания NO_2 в ПСА характеризуется повышением содержания NO_2 с утренних сумерек до 10 часов утра, когда наблюдается промежуточный максимум в дневном ходе содержания NO_2 , затем спадом содержания NO_2 с 10 до 16 часов дня и резким ростом содержания NO_2 с 16 часов до 20 часов вечера. Уровень статистической значимости, так называемой, нулевой гипотезы суточного хода менее 1%. Суть нулевой гипотезы суточного хода заключалась в том, что среднечасовые значения содержания NO_2 , совпадают. Амплитуда суточного хода NO_2 равна $1.2 \cdot 10^{16}$ мол/см² или 40% от максимального значения содержания NO_2 . Размах промежуточного максимума суточного хода содержания NO_2 (9-14 часов) составляет $0.4 \cdot 10^{16}$ мол/см² или 12% от максимального значения содержания NO_2 . Уровень статистической значимости, так называемой, второй нулевой гипотезы суточного хода, также, составляет менее 1%. Вторая нулевая гипотеза подразумевала равенство среднечасовых значений содержания NO_2 во временном интервале с 6 до 15 часов, т.е. она характеризовала значимости промежуточного максимума в суточном ходе. Из всего сказанного следует, что как на недельный цикл, так и на суточный ход содержания NO_2 , оказывает влияние режим работы городского автотранспорта.

В сезонном ходе содержания NO_2 в ПСА над г. Москвой в период с июля 2010 года по август 2011 года, можно выделить несколько характерных особенностей:

1. В холодный сезон года, когда температура воздуха ниже $0^\circ C$, над Москвой формируется смоговая ситуация с характерным содержанием NO_2 в ПСА не ниже $1 \cdot 10^{16}$ мол/см². Формирование смога связано с превышением времени жизни NO_2 над ночной паузой в работе автотранспорта.

2. Если холодный сезон, совпадает с периодом интенсивного режима работы автотранспорта, то возникает постоянный положительный тренд возрастания содержания NO_2 в ПСА. Например, с 25 ноября по 29 декабря 2010 года, в Москве наблюдалось нарастание ИС NO_2 с $2 \cdot 10^{16}$ мол/см² до $6 \cdot 10^{16}$ мол/см². Резкое снижения автомобильного движения после новогодней ночи, привело к значительному уменьшению ИС NO_2 до $1 \cdot 10^{16}$ мол/см².

3. Особые метеорологические условия наблюдения, такие как сильный снег, могут приводить к наблюдению сверхвысоких наклонных содержаний NO_2 в период межсезонья. Например, такая ситуация наблюдалась 13 апреля 2010 года в г. Москве (см. раздел 3.6.2.)

4. В жаркий сезон года с температурой воздуха выше $20^\circ C$, из-за значительной адвекции воздушных масс из города, наблюдаются минимальные среднемесячные значения содержания NO_2 в ПСА.

В разделе 4.3 анализируется изменение содержания NO_2 в атмосфере Московского мегаполиса в период длительного антициклонического блокинга и задымления от лесных/торфяных пожаров летом 2010 года в Москве. В это время не наблюдалось значительного повышения уровня содержания NO_2 в ПСА над его средними значениями. Так, мода и форма распределения содержания NO_2 по частоте наблюдения для лета 2010 практически совпадает с соответствующей модой и формой распределения для лета 2011 года, когда торфяные пожары отсутствуют. Отмечавшееся, в период лесных пожаров,

резкое повышение концентрации NO_2 вблизи поверхности Земли, связано с особой динамикой вертикальной стратификации атмосферы в этот период.

По наблюдениям, проведенным в ходе международных экспериментов TROICA, получены характерные особенности пространственного распределения NO_2 в ПСА над Северной Евразией (см. *раздел 4.4*). Проезд вагоном городов и крупных промышленных центров России отмечался повышением регистрируемого содержания NO_2 в ПСА относительно фоновых значений. Содержание NO_2 в шлейфе загрязненного воздуха от Москвы в 5-10 раз превышало содержание NO_2 в других промышленных зонах и городах, расположенных вдоль Транссибирской магистрали. Значительное влияние на распределение NO_2 оказывает трансграничный перенос NO_2 с территории Китая. На Дальнем Востоке, в загрязненной воздушной массе, перешедшей с территории Китая, содержания NO_2 в ПСА превышало фоновые значения на порядок.

В заключении представлены основные результаты диссертации.

1. Разработан зенитный метод восстановления интегрального содержания NO_2 в пограничном слое атмосферы (ПСА), который позволяет проводить наблюдения, как в безоблачных, так и в облачных условиях наблюдения. Ошибка метода составляет менее 26% при известном альбедо и менее 36% при использовании средних климатических значений альбедо.
2. Разработан и создан аппаратно-программный комплекс для наблюдения интегрального содержания NO_2 в ПСА.
3. По наблюдениям, проведенным в Московском регионе, в г. Минске и в экспедициях вдоль Транссиба (эксперименты ТРОЙКА), получены характерные особенности пространственно-временного распределения

NO_2 в ПСА над Северной Евразией. Для г. Москвы выявлены характерные особенности суточных, недельных и сезонных вариаций интегрального содержания NO_2 в ПСА.

4. По данным наблюдений рассчитаны эмиссии NO_2 от автотранспорта в г. Москве, которые превалируют над эмиссиями от других источников и составляют примерно 90 ктонн NO_2 в год или 65% от общих выбросов NO_2 .
5. Некоторые восстанавливаемые экстремально высокие значения содержания NO_2 в ПСА над г. Москвой могут быть связаны с недостаточным точным учетом процесса переноса излучения в атмосфере в период выпадения осадков. Предложена методика учета и коррекции таких данных.
6. В период антициклонического блокинга и задымления от лесных пожаров летом 2010 г. интегральное содержание NO_2 в ПСА варьировала меньше, чем концентрация NO_2 в приземном воздухе. В этот период, из-за присутствия значительного количества аэрозоля, были особо длительные и мощные атмосферные инверсии, которые приводили к накоплению NO_2 в более тонком слое, из-за чего достигались высокие концентрации NO_2 у поверхности Земли. В отличие от приземной концентрации, интегральное содержание газов в столбе в пределах пограничного слоя атмосферы в меньшей степени связано с температурными инверсиями.

Список публикаций

Журнальные статьи:

1. В.А. Иванов, О.В. Постыляков. Оценка интегрального содержания NO_2 в пограничном слое атмосферы по наблюдениям рассеянной в зените солнечной радиации. // Оптика атмосферы и океана. Том 23. 2010. № 06. С. 471-474.

2. В.А. Иванов, И.Б. Беликов, А.С. Елохов, О.В. Постыляков. Предварительные результаты наблюдения интегрального содержания двуокси азота в приземном слое земной атмосферы в московском мегаполисе. // Сб. статей конференции «Современные проблемы дистанционного зондирования Земли из космоса». Том 7. № 1. 2010. С. 92-98.

3. В.А. Иванов, А.С. Елохов, О.В. Постыляков. О восстановлении вертикального профиля двуокси азота в атмосфере Земли по сумеречным измерениям рассеянного в зените солнечного излучения. // Сб. статей конференции «Современные проблемы дистанционного зондирования Земли из космоса». Том 8. № 3. 2011. С. 263-268.

4. Н.Ф. Еланский., чл.-корр. И.И. Мохов, И.Б. Беликов, Е.В. Березина, А.С. Елохов, В. Иванов, Н.В. Панкратова, О.В. Постыляков, А.Н. Сафронов, А. И. Скороход, Р.А.Шумский. Газовый состав атмосферного воздуха в Москве в экстремальных условиях лета 2010 г. // Доклады академии наук. Том 437. № 1. 2011. С. 90-96.

5. Н.Ф. Еланский, чл.-корр. И.И. Мохов, И.Б. Беликов, Е.В. Березина, А.С. Елохов, В.А. Иванов, Н.В. Панкратова, О.В. Постыляков, А.Н. Сафронов, А.И. Скороход, Р.А.Шумский. Газовые примеси в атмосфере над Москвой летом 2010г. // Известия РАН. Физика атмосферы и океана. Том 47. № 6. 2011. С. 729-738.

6. В.А. Иванов, А.С. Елохов, О.В. Постыляков О возможности оценки объема выбросов NO_2 в городах по зенитным спектральным наблюдениям рассеянной солнечной радиации вблизи 450 нм. // Оптика атмосферы и океана. 2012. № 06. В печати.

Тезисы докладов:

1. Иванов В.А. Сравнение наклонных содержаний двуокиси азота получаемых из различных программ расчёта по модели DOAS. // Тезисы 13-ой школы-конференции «Состав атмосферы. Атмосферное электричество. Климатические процессы». Россия. Звенигород. 19-22 мая 2009. С. 98.

2. Иванов В.А. Временные вариации содержания NO_2 в атмосфере над Москвой. // Тезисы 13-ой школы-конференции «Состав атмосферы. Атмосферное электричество. Климатические процессы». Россия. Звенигород. 19-22 мая 2009. С. 96-97.

3. Иванов В.А. Анализ наклонных содержаний NO_2 и O_4 получаемых по измерениям MAX-DOAS. Тезисы 13-ой школы-конференции «Состав атмосферы. Атмосферное электричество. Климатические процессы». Россия. Звенигород. 19-22 мая 2009. С. 99.

4. В.А. Иванов, А.С. Елохов, О.В. Постыляков. Исследование влияния облачности на оценки содержания NO_2 в тропосфере по наблюдениям рассеянной в зените солнечной радиации. // Тезисы Международного Симпозиума стран СНГ по Атмосферной Радиации «МСАРД-2009». Россия. С. Петербург. 22 - 26 июня 2009 г. С. 49.

5. O.V. Postylyakov, V.A. Ivanov. Linearized vector spherical radiative transfer model MCC++ and its applications for remote sensing in UV and VIS. // Abs. 36th Annual European Meeting on «Atmospheric Studies by Optical Methods». Kyiv. Ukraine. 17-22 August 2009. P. 93.

6. V.A. Ivanov, A.S. Elokhov, O.V. Postylyakov. Investigation of cloud effect on tropospheric NO_2 estimations based on spectral observations of scattered in

zenith radiance. // Abs. 36th Annual European Meeting on «Atmospheric Studies by Optical Methods». Kyiv. Ukraine. 17-22 August 2009. P. 76.

7. O.V. Postylyakov, A.S. Elokhov, V.A. Ivanov. Cloud and albedo effects in tropospheric NO_2 estimations using zenith observations. // Abs. «ESA Atmospheric Science» Conference. Spain, Barcelona. 7-12 September 2009.

<http://earth.esa.int/cgi-bin/confatmos09.pl?abstract=945>.

8. V.A. Ivanov, I.B. Belikov, N.F. Elansky, A.S. Elokhov, O.V. Postylyakov, R.A. Shumskiy. The spatial and temporal variations of NO_2 during TROICA experiments. // Abs. «Atmospheric physics. Climate and Environment.». Russia. Saint-Peterburg. 2010. С. 28.

9. V.A. Ivanov, A.S. Elokhov, O.V. Postylyakov. Lower troposphere NO_2 column densities from zenith scattering sunlight observations at Moscow region. // Abs. «European Research Course on Atmospheres -2010». France, Grenoble. 10 January - 14 February 2010.

10. Иванов В.А., Беликов И.Б., Боровский А.Н., Еланский Н.Ф., Елохов А.С, Постыляков О.В, Шумский Р.А. Временные вариации вертикального содержания NO_2 в пограничном слое атмосферы московского мегаполиса в период лесных пожаров 2010 года. // Тезисы VIII Всероссийской конференции «Современные проблемы дистанционного зондирования Земли из космоса». Россия, Москва. 15 – 19 ноября 2010. С. 140.

11. Иванов В.А., Беликов И.Б., Боровский А.Н., Еланский Н.Ф., Елохов А.С, Постыляков О.В, Шумский Р.А. Временные вариации вертикального содержания NO_2 в пограничном слое атмосферы московского мегаполиса в период лесных пожаров 2010 года. // Тезисы VII Международной конференции «Естественные и антропогенные аэрозоли». Россия, Санкт-Петербург. 27 сентября - 2 октября 2010.

12. Иванов В.А., Беликов И.Б., Постыляков О.В. Возможности определения интегральных оптических характеристик аэрозоля по зенитным спек-

тральным наблюдениям. // Тезисы XVII Рабочая группа «Аэрозоли Сибири». Россия, Томск. 23 - 26 ноября 2010 г.

13. Иванов В.А., Беликов И.Б., Боровский А.Н., Еланский Н.Ф., Елохов А.С., Постыляков О.В., Шумский Р.А. Пространственно-временные вариации вертикального содержания NO_2 в пограничном слое атмосферы московского мегаполиса в период лесных пожаров 2010 года. // Тезисы конференции молодых специалистов НПО «Тайфун». Россия, Обнинск. 24-26 ноября 2010. С. 71 - 76.

14. Постыляков О.В., Елохов А.С., Иванов В.А., Груздев А.Н. О новом методе восстановления вертикального распределения NO_2 в атмосфере в условиях антропогенного загрязнения по сумеречным наблюдениям. // Тезисы Международного Симпозиума стран СНГ по Атмосферной Радиации «МСАР-2011». Россия, С. Петербург. 21 - 24 июня 2011 г. С. 52.

15. Иванов В.А., Елохов А.С., Постыляков О.В. О новом методе восстановления интегрального содержания NO_2 в пограничном слое атмосферы и его использование на сети. // Тезисы Международного Симпозиума стран СНГ по Атмосферной Радиации «МСАР-2011». Россия, С. Петербург. 21 - 24 июня 2011 г. С. 51.

16. Иванов В.А., Беликов И.Б., Боровский А.Н., Еланский Н.Ф., Елохов А.С., Джола А.В., Шумский Р.А., Постыляков О.В. Пространственно-временная изменчивость содержания NO_2 в пограничном слое атмосферы по наблюдениям на сети станций ИФА. // Тезисы Международного Симпозиума стран СНГ по Атмосферной Радиации «МСАР-2011». Россия, С. Петербург. 21 - 24 июня 2011 г. С. 72.

17. Postylyakov O.V., Elokhov A.S., Ivanov V.A., Gruzdev A.N. A new method for retrieval of NO_2 vertical distribution in atmosphere in polluted areas using twilight observations. // Abs. «5-th international DOAS Workshop». Germany, Mainz. 13-15 July 2011.

18. V.A. Ivanov, I.B. Belikov, A.N. Borovsky, N.F. Elansky, A.S. Elokhov, A.V. Dzhola, R.A. Shumsky, O.V. Postylyakov, I.I. Bruchkovsky, H. Irie, Y. Kanaya, H. Takashima Analysis of tropospheric NO_2 spatial and temporal variability using observations at Russian DOAS network. // Abs. «5-th international DOAS Workshop». Germany, Mainz. 13-15 July 2011.

19. V.A. Ivanov, A.S. Elokhov, O.V. Postylyakov A new method for retrieval of NO_2 integral column in atmosphere boundary layer and its application at Russian DOAS network. // Abs. «5-th international DOAS Workshop». Germany, Mainz. 13-15 July 2011.

20. Иванов В.А, Елохов А.С, Постыляков. О.В Метод восстановления профиля двуокиси азота в атмосфере по измерению рассеянного в зените солнечного излучения в сумерки. // Тезисы 13-ой школы-конференции «Состав атмосферы. Атмосферное электричество. Климатические процессы», Россия, Борок. 2011. С. 36.

21. Иванов В.А, Елохов А.С, Постыляков. О возможности оценки эмиссии NO_2 в городских условиях // XVIII Рабочая группа «Аэрозоли Сибири». Томск, Россия. 29 ноября-02 декабря 2011. С. 18.