

Оценка интегральной эмиссии окислов азота (NO_x) с территории Санкт-Петербурга на основе мобильных DOAS-измерений и дисперсионного моделирования

Ионов Д. В.¹, Макарова М. В.¹, Косцов В. С.¹, Фока С. Ч.¹, Макаров Б. К.²

¹ Санкт-Петербургский государственный университет, физический факультет

² НИТИ им. А. П. Александрова, г. Сосновый Бор

e-mail: d.ionov@spbu.ru

Аннотация

В период проведения международной измерительной кампании EMME-2019, нацеленной на экспериментальное определение антропогенных эмиссий парниковых газов с территории Санкт-Петербурга, была выполнена серия мобильных DOAS-измерений тропосферного содержания (ТС) диоксида азота (NO_2). Эти наблюдения проводились на замкнутой кольцевой автодороге (КАД), огибающей большую часть города, и служили средством объективного контроля местоположения шлейфа антропогенного воздушного загрязнения и его эволюции в период измерительной кампании. В настоящей работе данные DOAS-измерений, выполненных в течение 9 дней марта-апреля 2019 года, использованы для определения интегральной антропогенной эмиссии NO_x с территории мегаполиса города Санкт-Петербург. Моделирование пространственно-временной эволюции шлейфа городского загрязнения осуществлялось с помощью модели HYSPLIT. На основе сопряжения результатов моделирования с данными мобильных измерений DOAS получена экспериментальная оценка суммарного выброса NO_x в атмосферу в размере 80 ± 30 килотонн в 2019 году.

Ключевые слова: антропогенная эмиссия, окислы азота, двуокись азота, DOAS, HYSPLIT

Введение

Загрязнение приземной атмосферы вблизи крупных городов и промышленных центров в значительной мере связано с антропогенной эмиссией различных газовых примесей, в том числе окислов азота ($\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$). Дистанционные спектроскопические измерения, осуществляемые в видимой области спектра, дают информацию о содержании двуоксида азота (NO_2) на трассе распространения солнечного излучения. Относительно стабильное соотношение между NO_2 и NO в городском воздухе позволяет судить о мощности эмиссии NO_x на основе данных измерений NO_2 .

Измерительные кампании EMME (Emission Monitoring Mobile Experiment) были организованы в 2019 и 2020 гг. в рамках международного проекта VERIFY (<https://verify.lsce.ipsl.fr>). Главная цель EMME — определение антропогенных эмиссий парниковых газов CO_2 и CH_4 с территории Санкт-Петербурга. Основным инструментом кампании служил портативный инфракрасный (ИК) Фурье-спектрометр (FTIR) Bruker EM27/SUN, используемый для наземных дистанционных измерений общего содержания (ОС) CO_2 и CH_4 в вертикальном столбе атмосферы. В целом, концепция EMME базировалась на дневных FTIR-измерениях ОС ключевых газовых составляющих в двух точках, располагаемых внутри и вне городского шлейфа антропогенного воздушного загрязнения — т. е. с подветренной и с наветренной внешних сторон границ мегаполиса. В период кампании 2019 года объективный контроль местоположения шлейфа и его эволюции осуществлялся благодаря мобильным DOAS (Differential Optical Absorption Spectroscopy [1]) измерениям тропосферного содержания (ТС) NO_2 , выполняемым на замкнутой кольцевой трассе (КАД), огибающей большую часть Санкт-Петербурга. Основываясь на методе баланса масс и учитывая преимущественное направление и скорость ветра, а также классификацию подстилающей поверхности, были получены оценки удельных потоков измеряемых атмосферных газов в центральной части Санкт-Петербурга [2]. В частности, средняя величина антропогенного потока NO_x составила 66 ± 28 тонн/км² в год, что довольно близко к данным официальной инвентаризации городских загрязнений за 2019 год (~ 70 тонн/км² [3]).

Настоящая работа направлена на определение интегральной эмиссии NO_x на основе данных DOAS-измерений кампании EMME-2019 и расчётов дисперсионной модели HYSPLIT (HYbrid

1. Измерительная аппаратура, данные наблюдений и численного моделирования

Для проведения мобильных DOAS-измерений использовался комплекс спектральной аппаратуры и алгоритм интерпретации данных наблюдений, разработанные и ранее апробированные при реализации мобильных измерений тропосферного содержания NO_2 в районе Санкт-Петербурга [5, 6]. Основой измерительного комплекса является компактный USB-спектрометр (Ocean-Optics HR4000), обеспечивающий регистрацию спектров рассеянного из зенита солнечного излучения в интервале $\sim 400\text{--}610$ нм с спектральным разрешением ~ 0.6 нм.

Мобильные DOAS-измерения выполнялись в течение 9 дней марта-апреля 2019 года. В результате каждого такого полевого эксперимента получена серия данных о содержании NO_2 в нижней тропосфере (в пограничном слое атмосферы) на замкнутом кольцевом маршруте КАД. Все измерения выполнялись в будние дни, с понедельника по четверг. Пример результата мобильных DOAS-измерений TC NO_2 в точках маршрута 24 апреля представлен на рис. 1а. Наиболее низкие значения ($\sim 4 \times 10^{15}$ молекул см^{-2}) были зарегистрированы в этот день в северо-западной части маршрута (акватория Невской губы), а максимальные — в восточной (до $\sim 40 \times 10^{15}$ молекул см^{-2}). Такое пространственное распределение обусловлено преобладающим западным ветром, формирующим смещение интегрального шлейфа городского воздушного загрязнения в восточном направлении.

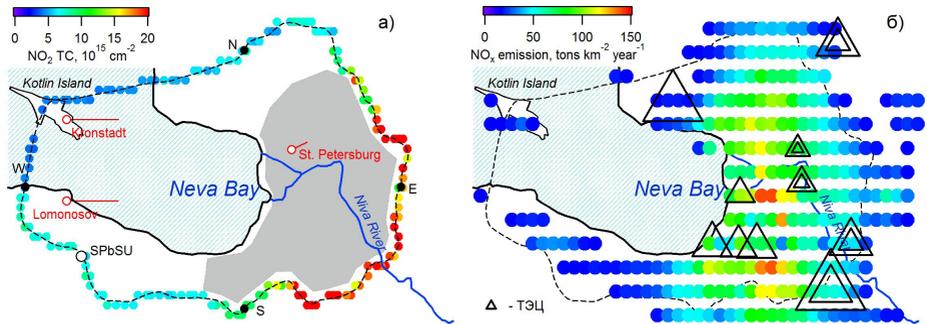


Рис. 1. *а)* Данные мобильных DOAS-измерений TC NO_2 вокруг Санкт-Петербурга по трассе КАД 24 апреля 2019 года. Красными линиями обозначено направление и сила приземного ветра на 12:00 по данным наблюдений метеорологических станций. *б)* Априорное пространственное распределение антропогенной эмиссии NO_x с территории Санкт-Петербурга, сформированное на основе данных глобальной инвентаризации об антропогенных эмиссиях CO_2 (ODIAC). Треугольные символы обозначают расположение основных городских теплоэлектроцентралей (ТЭЦ); двойными треугольниками обозначены ТЭЦ, влияние которых наиболее заметно сказывается в результатах мобильных DOAS-измерений.

Численное моделирование распространения загрязнений выполнялось на основе модели HY-SPLIT в офлайн версии, сконфигурированной для территории Санкт-Петербурга и его окрестностей по аналогии с [7]. С помощью дисперсионного блока модели проводился расчет 3-мерного поля антропогенного воздушного загрязнения. Размер ячейки пространственного домена составляет $0.05^\circ \times 0.05^\circ$ широты и долготы; вертикальная сетка модели задана 10 уровнями на высотах от поверхности до 1500 метров. За основу априорной информации о пространственном распределении источников городской эмиссии NO_x были взяты данные глобальной инвентаризации эмиссий ODIAC: Open-source Data Inventory for Anthropogenic CO_2 [8]. Поскольку антропогенная эмиссия NO_x , как и эмиссия CO_2 в существенной мере обусловлены сжиганием топлива (транспорт, теплоэнергетика), пространственные распределения источников этих газовых примесей предполагались схожими (см. рис. 1б). Значения интенсивностей эмиссии в ячейках,

характеризующие в оригинальных данных ODIAC эмиссию CO_2 , были масштабированы таким образом, чтобы суммарная годовая эмиссия составляла ~63 тыс. тонн (официальная инвентаризация эмиссии NO_x с территории Санкт-Петербурга в 2019 году [3]).

2. Сопоставление результатов мобильных измерений с данными моделирования

Большая часть маршрутов мобильных экспериментов демонстрирует качественно близкое согласие между результатами DOAS-измерений и расчётами модели в воспроизводстве общего характера вариации содержания NO_2 — плавный рост и спад при пересечении городского шлейфа. Вместе с тем, в отдельные дни в результатах измерений наблюдаются участки локального роста NO_2 , не воспроизводимые моделью. Детальный анализ пространственных распределений содержания NO_2 по маршрутам измерений и соответствующих им полей приземного ветра позволяет предположить влияние мощных локальных эмиссий NO_x , не представленных в используемой нами инвентаризации источников. Наиболее вероятной причиной таких выбросов может быть работа крупных городских теплоэлектроцентралей (ТЭЦ), находящихся в черте города и на его ближайшей периферии. Расположение основных 10 ТЭЦ, обслуживающих население и промышленность Санкт-Петербурга, показано на рис. 1б. Для проверки предположения о детектировании вклада эмиссий ТЭЦ в данных мобильных DOAS-измерений содержания NO_2 была выполнена серия специальных расчётов HYSPLIT с учётом дополнительных источников в точках расположения ТЭЦ. Интенсивность эмиссий NO_x подбиралась так, чтобы с одной стороны в результатах расчётов воспроизводились наблюдаемые в данных измерений локальные максимумы содержания NO_2 , а с другой — не появлялись новые, отсутствующие в измерениях. Полученная таким образом конфигурация источников состоит из пяти ТЭЦ с равными интенсивностями эмиссии (~5 тыс. тонн в год, см. рис. 1б).

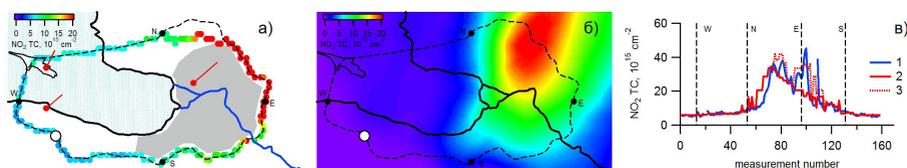


Рис. 2. Сравнение данных DOAS-измерений TC NO_2 вокруг Санкт-Петербурга с результатами численного моделирования 4 апреля 2019 года: а) Данные мобильных DOAS-измерений по трассе КАД. б) Расчёт дисперсионной модели HYSPLIT на срок 13:00. в) TC NO_2 на маршруте по данным измерений (1) и результатам моделирования, без учёта эмиссий NO_x ТЭЦ (2) и с учётом (3).

На рис. 2 наряду с данными DOAS-измерений на трассе КАД, выполненными 4 апреля 2019 года (а), представлено модельное пространственное распределение TC NO_2 в этот день, рассчитанное на срок 13:00 (б), а также сопоставление результатов измерений по маршруту движения с данными моделирования с учётом и без учёта эмиссий NO_x основными городскими ТЭЦ (в). Модельные расчёты, выполненные с учётом дополнительных эмиссий ТЭЦ, демонстрируют более близкое согласие с результатами мобильных DOAS-измерений (см. рис. 2в).

3. Оценка интегральной эмиссии NO_x с территории Санкт-Петербурга

Для корректного сопряжения данных измерений с результатами расчётов рассматривались средние значения содержания NO_2 по трассе наблюдений, полученные для каждого из экспериментов — как в данных мобильных DOAS-измерений, так и в результатах расчётов HYSPLIT (см. рис. 3). Сравнение данных измерений с результатами моделирования показывает, что в среднем модель заметно занижает наблюдаемый уровень загрязнения атмосферы окислами азота. Более низкое, по сравнению с измеренным, содержание NO_2 в результатах модельных расчетов указывает на недооценку заданной в модели интенсивности антропогенной эмиссии NO_x .

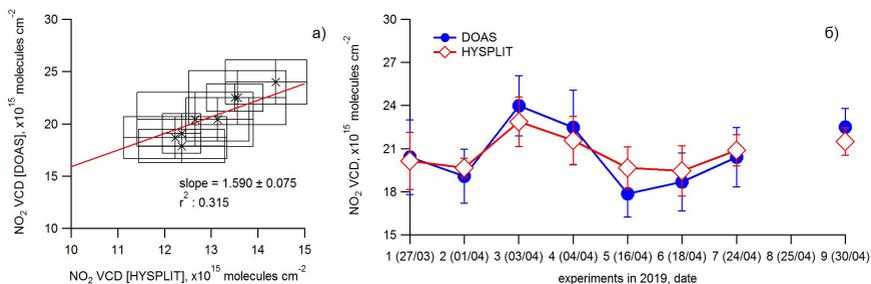


Рис. 3. а) Сопоставление средних значений содержания NO_2 в шлейфе городского загрязнения, полученных для каждого из мобильных экспериментов из данных DOAS-измерений и результатов расчётов HYSPLIT. б) Вариация среднего значения измеренного содержания NO_2 от эксперимента к эксперименту, в сравнении с данными моделирования, приведёнными к результатам измерений (используя коэффициент линейной регрессии на графике слева).

Приближенная оценка интегральной эмиссии NO_x может быть получена исходя из величины коэффициента линейной регрессии между расчётом модели и результатами измерений. Так, коэффициенту 1.590 ± 0.075 , приведённому на рис. 3а, соответствует эмиссия NO_x равная 100 ± 5 тыс. тонн в год. Эта величина заметно превышает официальные данные о суммарном антропогенном выбросе NO_x с территории города (~63 тыс. тонн за 2019 год [3]). Частично, расхождения между данными инвентаризаций о среднегодовых эмиссиях и результатами анализа мобильных экспериментов могут быть связаны с ограниченным временем проведения измерений — как в течение суток, так и в течение года. Все наши мобильные измерения были выполнены в весеннее время года, в будние дни и вблизи полудня. Используя простые предположения об известных суточном, недельном и годовом циклах городского антропогенного загрязнения, окончательная «оценка снизу» суммарного выброса NO_x в атмосферу составила 77 ± 27 тыс. тонн в год.

Исследования проведены с использованием оборудования ресурсного центра Научного парка СПбГУ «Геомодель» за счёт гранта Российского научного фонда (проект № 23–27–00019).

Литература

1. Platt U. and J. Stutz. Differential Optical Absorption Spectroscopy (DOAS), Principles and Applications // ISBN978–3–540–21193–8, Springer, Berlin-Heidelberg, <https://doi.org/10.1007/978-3-540-75776-4>, 2008.
2. Makarova, M. V., Alberti, C., Ionov, D. V., Hase, F., Foka, S. C., Blumenstock, T., Warneke, T., Virolainen, Y., Kostsov, V., Frey, M., Poberovskii, A. V., Timofeyev, Y. M., Paramonova, N., Volkova, K. A., Zaitsev, N. A., Biryukov, E. Y., Osipov, S. I., Makarov, B. K., Polyakov, A. V., Ivakhov, V. M., Imhasin, H. Kh., and Mikhailov, E. F. Emission Monitoring Mobile Experiment (EMME): an overview and first results of the St. Petersburg megacity campaign 2019 // Atmos. Meas. Tech., 14, 1047–1073, <https://doi.org/10.5194/amt-14-1047-2021>, 2021.
3. Беляев Д. С., Серебрицкий И. А. Доклад об экологической ситуации в Санкт-Петербурге в 2019 году // СПб.: ООО «Типография Глори», 180 с, 2020.
4. Draxler, R. R. and Hess, G. D. An overview of the HYSPLIT_4 modelling system for trajectories, dispersion, and deposition // Aust. Meteor. Mag., 47, 295–308, 1998.
5. Ionov, D. V. and Poberovskii A. V. Quantification of NO_x emission from St. Petersburg (Russia) using mobile DOAS measurements around the entire city // Int. J. Remote Sensing, 36 (9), 2486–2502, <https://doi.org/10.1080/01431161.2015.1042123>, 2015.
6. Ионов Д. В., Пoberовский А. В. Двуокись азота в воздушном бассейне Санкт-Петербурга: дистанционные измерения и численное моделирование // Известия РАН, Физика атмосферы и океана. 2012. Т. 48. N.4. С. 422–433.
7. Ionov, D. V., Makarova, M. V., Hase, F., Foka, S. C., Kostsov, V., Alberti, C., Blumenstock, T., Warneke, T. The CO_2 integral emission by the megacity of St. Petersburg as quantified from ground-based FTIR

- measurements combined with dispersion modelling // *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 10939–10963, <https://doi.org/10.5194/acp-21-10939-2021>, 2021.
8. Oda, T. and Maksyutov, S. A very high-resolution (1 km × 1 km) global fossil fuel CO₂ emission inventory derived using a point source database and satellite observations of nighttime lights // *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 543–556, <https://doi.org/10.5194/acp-11-543-2011>, 2011.

Assessment of nitrogen oxides (NO_x) integral emission from the territory of St. Petersburg based on mobile DOAS measurements and dispersion modeling

Ionov D. V.¹, Makarova M. V.¹, Kostsov V. S.¹, Foka S. C.¹, Makarov B. K.²

¹ St. Petersburg State University, Faculty of Physics

² Federal state unitary enterprise “Alexandrov Research Institute of Technology”
e-mail: d.ionov@spbu.ru

Abstract

During the international measurement campaign EMME-2019 aimed at experimental determination of anthropogenic greenhouse gas emissions from the territory of St. Petersburg, a series of mobile DOAS-measurements of tropospheric nitrogen dioxide (NO₂) content (TC) was performed. These observations were carried out on a circular highway, enclosing most of the city, and served as a means of independent control of the location of the plume of anthropogenic air pollution and its evolution during the measurement campaign. In the present paper, the data from mobile DOAS measurements taken over 9 days in March-April 2019 are used to determine the integral anthropogenic NO_x emissions from the metropolitan area of the city of St. Petersburg. Modeling of the spatial and temporal evolution of the urban pollution plume was performed using the HYSPLIT model. By means of coupling the simulation results with DOAS mobile measurement data, an experimental estimate of total NO_x emissions to the atmosphere of 80 ± 30 kilotons in 2019 was obtained.

Keywords: anthropogenic emissions, nitrogen oxides, nitrogen dioxide, DOAS, HYSPLIT