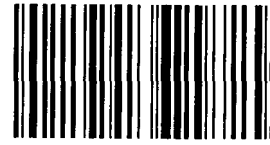
На правах рукописи

КОНОВАЛОВ Игорь Борисович

МОДЕЛИРОВАНИЕ ЭВОЛЮЦИИ И ПРОСТРАНСТВЕННЫХ РАСПРЕДЕЛЕНИЙ МАЛЫХ ПРИМЕСЕЙ АТМОСФЕРЫ НА ОСНОВЕ ПРИМЕНЕНИЯ НЕЛИНЕЙНЫХ И ВЕРОЯТНОСТНЫХ МЕТОДОВ

25.00.29 – Физика атмосферы и гидросферы



АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
доктора физико-математических наук

26 АПР 2012

Нижний Новгород
2012

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки (ФГБУН) Институт прикладной физики РАН

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук,
профессор
Ларин Игорь Константинович
ФГБУН Институт энергетических проблем химической физики РАН

доктор физико-математических наук,
профессор
Некоркин Владимир Исаакович
ФГБУН Институт прикладной физики РАН

доктор физико-математических наук,
профессор
Смышляев Сергей Павлович
Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего профессионального образования Российский государственный гидрометеорологический университет

Ведущая организация: ФГБУН Институт физики атмосферы РАН

Защита состоится "14" мая 2012 г. в 14:00 часов на заседании диссертационного совета Д 002.069.01 при ФГБУН Институт прикладной физики РАН по адресу: 603950, г. Нижний Новгород, ул. Ульянова, 46

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Института прикладной физики РАН по адресу: 603950, г. Нижний Новгород, ул. Ульянова, 46

Автореферат разослан "9" апреля 2012 г.

Ученый секретарь диссертационного совета
кандидат физико-математических наук А.И. Малеханов

Общая характеристика работы

Актуальность темы диссертации

Необходимость решения ряда насущных практических проблем, связанных с обеспечением устойчивости и улучшения состояния окружающей среды, стимулирует развитие методов моделирования комплексных процессов, определяющих концентрации малых составляющих атмосферы. К числу таких проблем относится прогнозирование изменений климата, выработка мер по защите озонового слоя атмосферы Земли, контроль уровня загрязнения приземного слоя атмосферы. Эволюция важнейших малых составляющих атмосферы (таких как озон, оксиды азота, летучие углеводороды, соляная и азотные кислоты, аэрозоль) определяется совокупностью химических процессов (включая процессы фотолиза), а также процессов переноса. Указанные взаимосвязанные процессы образуют атмосферные фотохимические системы (ФХС), которые являются основным объектом исследования и моделирования в данной диссертационной работе.

Можно выделить, по крайней мере, две взаимодополняющие позиции, с которых может рассматриваться и изучаться поведение атмосферных ФХС. С одной стороны, для понимания наблюдаемого поведения малых примесей и для выработки прогнозов их поведения при различных изменениях внешних условий требуется знание закономерностей, определяющих динамическое поведение этих систем. Для этого, принимая во внимание, что атмосферные ФХС являются нелинейными динамическими системами, требуется их изучение с позиции нелинейной динамики. В частности, особое внимание необходимо уделить выявлению ситуаций, когда в силу бифуркаций, происходящих в системе при сравнительно малых изменениях ее параметров, возможны резкие количественные изменения состава атмосферы.

С другой стороны, построение адекватных моделей ФХС требует правильного задания значений параметров этих систем. Значения части параметров не могут быть получены непосредственно из измерений. Ввиду нелинейности ФХС неправильное задание их параметров может привести как к значительным количественным, так и к качественным расхождениям между поведением реальной системы и ее модели. Задачи, возникающие в данной связи, требуют развития методов комбинированного использования атмосферных моделей и данных измерений и особенно актуальны для исследований тропосферной ФХС. В представленной диссертационной работе атмосферные ФХС рассматриваются с обеих указанных позиций.

Исследования нелинейно-динамических свойств атмосферных ФХС были начаты довольно давно, однако они проводились в основном на основе произвольным образом упрощенных моделей. И поэтому, несмотря на обнаружение у этих моделей интересных и важных свойств, таких как мультистабильность [1-3] и автоколебания [8], вопрос о том может ли «химическая» нелинейная динамика проявиться в реальных атмосферных явлениях

оставался открытым. Ввиду чрезвычайной громоздкости современных моделей атмосферных ФХС [см., напр. 5,6], нацеленных на наилучшее количественное воспроизведение атмосферных процессов, актуальной проблемой являлась разработка метода построения корректным образом упрощенных моделей, сохраняющих основные нелинейно-динамические свойства исходных полных моделей. Такой метод предлагается в диссертации и применяется для исследования конкретных атмосферных ФХС: мезосферной и высокоширотной нижнестратосферной.

Исследование мезосферной ФХС, демонстрирующей широкий спектр режимов динамического поведения [8,9], было направлено, в частности, на выявление индикаторов возможности бифуркаций, аналогичных наблюдаемым в этой системе, в других атмосферных ФХС при наличии периодических параметрических воздействий. Эта задача актуальна в связи с тем, что такие воздействия (связанные, например, с суточными и сезонными вариациями освещенности) испытывают все без исключения атмосферные ФХС, а возможные бифуркации в них могут привести к сильным изменениям в химическом составе атмосферы.

Высокоширотная нижнестратосферная (ВШС) ФХС определяет существование такого важного и угрожающего явления, как антарктическая озонная дыра [10], и именно с этим связана актуальность исследования этой системы. В то же время, ввиду комплексного характера большинства атмосферных явлений и неопределенностей, органически присущих даже самым лучшим моделям, важно уметь выявлять проявления химических нелинейностей непосредственно из данных измерений. В диссертации сделан важный шаг также и в этом актуальном направлении.

Комбинированное использование моделей и данных измерений состава атмосферы лежит в основе известных методов ассимиляции данных и обратного моделирования [11,12]. Исследования на основе таких методов в последние годы получили мощный стимул в контексте проблем, связанных с загрязнением воздуха в приземном слое атмосферы. Этим стимулом явилось появление качественно новых данных спутниковых измерений состава нижней атмосферы [12]. Ввиду появления таких данных, во-первых, требовалось исследовать возможности их использования совместно с атмосферными моделями как для получения новой практически полезной информации, так и для улучшения самих моделей и модельных расчетов. И, во-вторых, требовалось развить новые методы, позволяющие в максимальной степени реализовать эти возможности. В диссертации представлены пионерские исследования, направленные на достижение указанных целей, с фокусом на комбинированное использование данных спутниковых измерений тропосферного содержания диоксида азота и современной региональной химическо-транспортной модели с целью получения оценок эмиссий оксидов азота. Оксиды азота играют ключевую роль в фотохимии нижней атмосферы, и их эмиссии являются важным параметром современных хи-

мическо-транспортных моделей. В диссертации рассматриваются задачи обратного моделирования по оценке как пространственных распределений, так и долговременной временной изменчивости источников оксидов азота. Основная общая проблема, возникающая в процессе решения указанных задач, связана с отсутствием или недостатком информации о характере и величине неопределенностей входных данных (включая данные измерений и априорные оценки эмиссий) [12]. Соответственно, в большинстве ранее выполненных работ по обратному моделированию использовались субъективные оценки соответствующих параметров, что, в свою очередь, могло приводить к появлению неконтролируемых ошибок в результатах. В диссертации предлагаются достаточно общие способы преодоления указанной проблемы.

Возможности использования данных спутниковых измерений совместно с региональной моделью также рассматриваются в контексте актуальной практической задачи моделирования и прогноза возмущений состава атмосферы вследствие природных пожаров. Несмотря на важность данной задачи, описанные в литературе [14-16] попытки включения в региональные атмосферные модели эмиссий загрязняющих веществ от пожаров имеют единичный характер, а качество расчетов зачастую является неудовлетворительным. Такое состояние исследований в данной области определяет актуальность важных методологических инноваций, предложенных в связи с указанной задачей в рамках данной диссертационной работы и позволивших впервые достичь удовлетворительного согласия между рассчитанными и измеренными межсуточными вариациями приземных концентраций основных загрязняющих примесей в условиях интенсивных пожаров.

Основными целями диссертационной работы являются:

(1) развитие методов исследования нелинейных динамических свойств атмосферных ФХС,

(2) нелинейно-динамический анализ высокоширотной нижнестратосферной ФХС (ВШС ФХС), включая анализ феномена антарктической озонной дыры,

(3) анализ динамического поведения мезосферной ФХС (МФХС),

(4) развитие оригинального метода диагностики нелинейных свойств атмосферных ФХС путем построения и анализа нелинейных статистических моделей на основе искусственных нейронных сетей,

(5) развитие метода оценки пространственных распределений источников оксидов азота на основе данных спутниковых измерений содержания диоксида азота в тропосфере,

(6) разработка и применение оригинальных методов оценки многолетних изменений эмиссий оксидов азота по данным спутниковых измерений,

(7) исследование возможностей совместного использования данных расчетов и измерений взвешенного вещества для улучшения точности прогнозов качества воздуха,

(8) развитие метода расчета загрязнения атмосферы вследствие природных пожаров на основе ассимиляции данных спутниковых и наземных измерений химическо-транспортной моделью.

Достоверность и обоснованность. Выводы диссертационной работы обоснованы аналитическими и численными расчетами, сопоставлением результатов компьютерного моделирования с данными натурных измерений, выполненными как наземными мониторами, так и приборами, установленными на спутниках. Основные положения диссертации опубликованы в ведущих российских и международных журналах, докладывались на российских и международных конференциях и хорошо известны среди специалистов, как в России, так и за рубежом. Ряд опубликованных статей активно цитируется в работах других авторов.

Научная новизна

- Впервые продемонстрирована законность исследования нелинейных динамических свойств атмосферных ФХС с помощью упрощенных "базовых" динамических моделей этих систем; предложен и обоснован метод корректного построения таких моделей на базе современных сложных аэрономических моделей.
- Впервые выполнено исследование нелинейно-динамических свойств высокоширотной нижнестратосферной ФХС, в результате которого обнаружена возможность мультистабильности данной системы при значениях параметров, характерных для реальной высокоширотной нижней стратосферы, а также возможность автоколебательного режима.
- На примере явления антарктической озонной дыры впервые продемонстрированы возможности существенного влияния нелинейно-динамических свойств атмосферных ФХС на наблюдаемую эволюцию малых газовых составляющих атмосферы.
- На примере мезосферной ФХС впервые проанализированы механизмы возникновения сложного динамического поведения в химической системе, параметры которой испытывают периодическую модуляцию. В результате этого анализа выявлен новый химический механизм нестабильности химических систем при наличии параметрического периодического воздействия.
- Впервые на основе анализа данных натурных измерений выявлены существенно нелинейные связи между концентрациями вторичных загрязнителей атмосферы (в частности, озона и вторичного аэрозоля) и их химических предшественников (оксидов азота и углеводородов).

- Впервые выполнено систематическое сравнение данных по тропосферному содержанию диоксида азота, рассчитанного в рамках региональной химическо-транспортной модели и восстановленного из данных спутниковых измерений, и продемонстрировано разумное соответствие между этими данными (в том числе, для восточной Европы).
- Впервые продемонстрировано, что имеющиеся данные спутниковых измерений тропосферного содержания диоксида азота могут использоваться для улучшения современного знания об источниках оксидов азота на сравнительно мелких масштабах, разрешимых типичной региональной химическо-транспортной моделью.
- Впервые обнаружены статистически значимые нелинейности изменений эмиссий NO_x в мегаполисах на масштабах нескольких лет.
- Впервые продемонстрирована возможность достижения удовлетворительного количественного согласия между измеренными межсуточными вариациями концентраций ряда основных загрязнителей атмосферы (монооксида углерода, взвешенного вещества и озона) и расчетами загрязнения атмосферы в условиях интенсивных природных пожаров.

Практическая значимость. Развиваемый в диссертации метод исследования нелинейно-динамических свойств атмосферных ФХС может найти применение при решении широкого круга прогностических задач, связанных с рассмотрением динамики малых газовых составляющих в атмосфере при естественных и антропогенных изменениях параметров атмосферы, а также для более глубокого изучения фотохимических процессов в различных областях атмосферы. Результаты исследования мезосферной ФХС дают возможность целенаправленного планирования экспериментов с целью изучения возможностей сложного динамического поведения этой системы в условиях реальной атмосферы, а также могут быть полезными при исследовании нелинейно-динамических свойств других атмосферных ФХС. Результаты исследования высокоширотной нижнестратосферной ФХС могут быть использованы при выработке прогноза поведения озонного слоя в высоких широтах на ближайшие годы и десятилетия. Предложенный метод исследования нелинейных связей в тропосферной фотохимической системе может быть полезен для выработки практических мер по улучшению качества воздуха. Выполненная в рамках диссертации работа по адаптации и валидации химическо-транспортной модели CHIMERE для восточной Европы обеспечивает основу многочисленных практических приложений данной модели в задачах диагностики и прогноза загрязнения атмосферы. Развитые методы обратного моделирования источников оксидов азота на основе данных спутниковых измерений могут быть использованы для верификации и коррекции данных традиционных инвентаризаций эмиссий, широко используемых в различных атмосферных моделях. Предложенный и апробированный метод статистической коррекции результатов модель-

ных расчетов может быть применен в системах прогноза загрязнения атмосферы с целью повышения точности вырабатываемых прогнозов концентрации взвешенного вещества. Развитый метод расчета эмиссий загрязняющих веществ от природных пожаров может быть использован для выработки прогнозов загрязнения атмосферы в условиях интенсивных природных пожаров и выработки эффективных мер по его снижению.

Апробация работы. Результаты диссертации докладывались на XXI генеральной ассамблее Международного Союза Геодезии и Геофизики (Боулдер (США), 1995 г.), конференциях молодых ученых "Атмосферный озон" (Москва, 1995, 1997 гг.), Генеральной ассамблеи Всероссийской научной конференции "Физические проблемы экологии" (Москва, 1997 г.), III Нижегородской сессии молодых ученых (1998 г.), семинаре "Атмосферный озон" (ИФА РАН, Москва, 1995 г.), международном рабочем совещании "Tropospheric Ozone Research -2" (Москва, 2002 г.), VII всероссийской конференции молодых ученых "Малые примеси, атмосферное электричество и динамические процессы в атмосфере", (Нижний Новгород, 2003 г.), Совещания по программе фундаментальных исследований ОФН и ОНЗ РАН "Физика атмосферы: Электрические процессы, радиофизические методы исследований" (Нижний Новгород, 2003, 2005 гг.), Генеральной ассамблеи Европейского союза по наукам о Земле (Ницца, 2004 г.; Вена, 2005, 2006, 2010, 2011 гг.), Симпозиумах ACCENT "The Changing Chemical Climate of the Atmosphere" (Урбино (Италия), 2005, 2007 гг.), международных рабочих совещаниях "Global and regional atmospheric modeling" (Париж, 2006 г., Антверпен, 2008 г.), международном рабочем совещании "Chemical data assimilation for the observation of the Earth's atmosphere" (Женева, 2006 г.), международном рабочем совещании "Air Quality in Eastern Europe" (Рига, 2006 г., в виде приглашенного доклада), X-ой Всероссийской конференции молодых ученых "Состав атмосферы. Климатические эффекты. Атмосферное электричество" (Москва, 2006 г., в виде приглашенной лекции), международном рабочем совещании "Tropospheric NO_2 measured by satellites" (Де Билт, Нидерланды, 2007), Всероссийской конференции "Развитие системы мониторинга состава атмосферы" (Москва, 2007 г., в виде заказного доклада), международной конференции "The 2009 GEIA-ACCENT Open Conference on Emissions of Gases and Aerosols" (Осло, 2009 г.), XIII-ой международная конференция молодых ученых (Звенигород, 2009 г., в виде приглашенной лекции), международном рабочем совещании "Using satellite and in situ data to improve sustainability" (Киев, 2009, в виде приглашенного доклада), XIV Всероссийской школы - конференции молодых ученых "Состав атмосферы. Атмосферное электричество. Климатические эффекты" (Нижний Новгород, 2010, в виде приглашенной лекции), международной конференции "Frontiers of nonlinear physics. IV international conference" (Н. Новгород-С.Петербург, 2010 г., в виде приглашенного док-

лада), а также на семинарах в Главной Геофизической Обсерватории (С.-Петербург), Межуниверситетской лаборатории атмосферных систем (LISA/CNRS, Франция) и ИПФ РАН.

Публикации. Основные результаты диссертации опубликованы в 20 статьях в реферируемых научных журналах (включая 12 статей в международных журналах, включенных в систему цитирования Web of Science, и 8 статей в ведущих российских журналах из Перечня ВАК), трех препринтах, 16 статьях в сборниках, одной монографии и 24 тезисах докладов.

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, девяти глав, разделенных на две части, заключения, 6 приложений и списка литературы. Общий объем диссертации составляет 329 страницы, включая 98 рисунков и 22 таблиц. Список литературы содержит 317 наименований.

Личный вклад автора. Вклад автора в получение основной части материалов, содержащихся в диссертации, является определяющим. В частности, работы [15-19,24,40,54,59] были выполнены И.Б. Коноваловым самостоятельно. В работах [8,14,20,23,26,28,30,31,34-39,41-45,47,48,50,53,55] И.Б. Коновалову принадлежат постановка задач, развитие методов исследования, планирование и выполнение численных экспериментов, участие в анализе и интерпретации полученных результатов. Остальные работы выполнены на паритетных началах.

Основные положения, выносимые на защиту

1. Совместное применение процедур разделения переменных в соответствие с характерными временами изменения их величин и разложения правых частей динамических уравнений, описывающих эволюцию малых газовых составляющих атмосферы, позволяет получать упрощенные модели атмосферных фотохимических систем, сохраняющих основные нелинейнодинамические свойства соответствующих исходных полных моделей.
2. Обнаруженная химическая нестабильность высокоширотной нижнестратосферной фотохимической системы (ВШС ФХС), проявляющаяся в наличии автоколебательных режимов и возможности существования в базовой модели данной системы одновременно нескольких состояний равновесия, является фундаментальным свойством данной системы, определяемым совокупностью химических процессов, обеспечивающих возможность самоускоряющегося роста концентраций ключевых реагентов данной системы.
3. Наблюдаемое быстрое нарастание истощения концентрации озона в области среднесезонного максимума антарктического озонного слоя год от года в середине 80-х годов могло быть обусловлено бифуркациями в дина-

мическом поведении ВШС ФХС, вызванными накоплением в стратосфере неорганических хлорных соединений.

4. Анализ данных многолетних измерений концентраций озона, взвешенного вещества, оксидов азота и углеводородов путем построения нелинейных статистических (эмпирических) моделей на базе искусственных нейронных сетей позволяет выявлять и оценивать нелинейные связи между концентрациями этих веществ в реальной атмосфере.

5. Комбинация спутниковых и наземных измерений состава атмосферы при решении задачи обратного моделирования эмиссий оксидов азота позволяет получить самосогласованную оценку неопределенностей исходных данные измерений и априорных оценок эмиссий.

6. Имеющиеся данные спутниковых измерений диоксида азота позволяют получать независимые и сравнительно точные оценки многолетних изменений антропогенных эмиссий оксидов азота как на регулярной пространственной сетке, так в отдельных высокоурбанизированных регионах (мегаполисах).

7. Оптимальная комбинация детерминистских прогнозов, вырабатываемых химическо-транспортной моделью, и статистических прогнозов позволяет существенно улучшить детерминисткие прогнозы концентрации взвешенного вещества (PM_{10}) на один день вперед.

8. Расчет эмиссий от пожаров на основе данных спутниковых измерений интенсивности теплового излучения в рамках химическо-транспортной модели позволяет достичь удовлетворительного количественного согласия между измеренными межсуточными вариациями приземных концентраций ряда основных загрязнителей атмосферы (монооксида углерода, взвешенного вещества и озона) и соответствующими модельными расчетами загрязнения атмосферы в условиях интенсивных природных пожаров.

Краткое содержание работы

Во введении определена тематика диссертационного исследования и обсуждается ее актуальность. Обозначены общие задачи работы и приведено краткое содержание отдельных глав диссертации. Сформулированы основные положения, выносимые на защиту, и приведены сведения об апробации работы.

В первой главе представлен оригинальный метод исследования нелинейно-динамических свойств атмосферных фотохимических систем, основанный на построении так называемых базовых динамических моделей. Эти модели являются результатом существенного упрощения соответствующей исходной полной модели, сохраняя при этом ее основные динамические свойства. В разделе 1.1 предложена пошаговая процедура построения базовой модели. Эта процедура опирается на накопленный в науке опыт моделирования и исследования нелинейных динамических систем и, в то же время, учитывает специфику атмосферных фотохимических систем (в

частности, существование так называемых химических семейств [17, 18]). В результате ее применения получаются максимально компактные динамические уравнения относительно переменных, описывающих существенные степени свободы системы.

Для развития нелинейно-динамического подхода к исследованию атмосферных ФХС представлялось полезным продемонстрировать законность и возможности применения метода базовых динамических моделей на достаточно простом и наглядном примере. Эта задача была решена в диссертации (раздел 1.2) путем построения базовой динамической модели мезосферной фотохимической системы и сравнения ее динамических свойств с полной моделью, послужившей основой для создания базовой. В данном случае полная модель, аналогичная используемой в работах [8,9], является сравнительно простой и включает в себя "жесткую" систему пяти обыкновенных дифференциальных уравнений для концентраций следующих специй: O, O_3, H, OH и HO_2. При учете периодической параметрической модуляции, определяемой суточными вариациями освещенности, эти модель демонстрирует широкий спектр режимов динамического поведения, а именно, различные субгармонические колебания и хаос.

Динамика построенной БДМ мезосферной ФХС описывается системой всего лишь двух дифференциальных уравнений для медленных переменных системы - концентраций атомарного кислорода и атомарного водорода. Концентрации остальных специй являются быстрыми переменными системы и определяются как заданные функции медленных. Система не является жесткой.

Выполнено сравнение динамических свойств полной и базовой моделей. В частности, были рассмотрены следующие характеристики: (1) бифуркационные диаграммы, (2) корреляционные размерности хаотических аттракторов, (3) минимальные размерности вложения хаотических реализаций и (4) собственные числа систем, линеаризованных вблизи состояний равновесия. Сравнение показало, что качественные динамические свойства полной и базовой моделей в области применимости последней совпадают.

В разделе 1.3 описывается БДМ высокоширотной стратосферной (ВШС) ФХС. Эта модель также получена в результате применения общей процедуры, описанной в разделе 1.1. Роль полной модели играл набор газофазных и гетерогенных химических процессов с участием кислородных, водородных, азотных и галогенных соединений, традиционно применяемых для моделирования поведения озона в высоких широтах (см., напр., [19,21]). На основе этих процессов была записана система уравнений химической кинетики, которая и являлась предметом упрощения. В результате была получена модель, адекватно описывающая динамику озона и 18 основных химически связанных с ним специй посредством системы всего лишь трех дифференциальных уравнений первого порядка относительно концентраций озона, азотной и соляной кислот. Именно столь низкий порядок системы динами-

ческих уравнений обусловил возможность достаточно подробного исследования нелинейно-динамических свойств ВШС ФХС, результаты которого представлены в третьей главе диссертации. Химическая схема базовой модели включает в себя 49 реакций, в том числе 4 гетерогенные реакции, протекающие на частицах полярных стратосферных облаков (ПСО), и считающиеся ключевым звеном в химических процессах, ведущих к разрушению озона в высокоширотной нижней стратосфере [19,20].

Базовая модель используется в двух режимах: в автономном, в котором значения параметров модели неизменны во времени, и в неавтономном, в котором задается зависимость перечисленных параметров от времени, отражающая их изменения в реальной атмосфере. Автономный режим позволяет выявить нелинейно-динамические свойства ВШС ФХС, рассматриваемой вне конкретных внешних условий. Проведение расчетов в неавтономном режиме позволяет определить роль нелинейно-динамических свойств ВШС ФХС в реальной наблюдаемой эволюции озона.

С целью валидации БДМ ВШС ФХС было выполнено сравнение рассчитанной эволюции концентраций озона и оксида хлора в области нижней стратосферы, соответствующей среднесезонному максимуму озонного слоя в высоких широтах (высота 17-18 км), в период развития антарктической озонной дыры (конец августа - середина октября) с озонозондовыми и самолетными наблюдениями. Сравнение показало способность модели достаточно адекватно описывать реальную эволюцию озона и, тем самым, возможность ее использования для исследования нелинейно-динамических свойств ВШС ФХС и их роли в явлении антарктической озонной дыры.

Во второй главе диссертации рассматривается задача по определению механизмов, ответственных за сложное динамическое поведение мезосферной ФХС. Данная система являет собой уникальный пример, когда модель атмосферной фотохимической системы демонстрирует сложное динамическое поведение вследствие периодического воздействия. Этот пример тем более важен, если принять во внимание, что периодическое параметрическое воздействие вследствие сезонных и суточных вариаций освещенности испытывают все без исключения атмосферные фотохимические системы. В этой связи важно попытаться понять фундаментальные причины возникновения сложного динамического поведения данной системы, обнаруженного в работах Фихтельмана и Зоннемана [8,9].

С этой целью, в частности, в разделе 2 анализируются факторы, обеспечивающие возможность положительности показателя Ляпунова (а, тем самым, бифуркаций, в том числе приводящих систему к хаотическим осцилляциям). В результате показано, что сложное динамическое поведение системы может рассматриваться как следствие разновидности параметрического резонанса. Показано также, что положительность показателя Ляпунова предопределяется процессом очень быстрых изменений значений переменных в конце ночной эволюции. В результате анализа точечного ото-

бражения установлено, что в основе сложного динамического поведения мезосферной ФХС лежит универсальный механизм того типа, который впервые был описан Фейгенбаумом [23]. В разделах 2.2 и 2.3 анализируются соответственно особенности структуры динамических уравнений модели и учитываемых в ней химических процессов, обусловливающие наличие сложного динамического поведения мезосферной ФХС: в частности, показывается, что ключевую роль в механизмах возникновения сложного динамического поведения играет каталитический цикл разрушения одного из реагентов (атомарного кислорода), особенностью которого является независимость скорости разрушения от концентрации разрушаемого вещества. Результаты этого анализа позволили нам предположить, что существование подобных циклов, характеризующихся независимостью скорости разрушения вещества от его концентрации, в других химических системах свидетельствует о возможности их сложного динамического поведения при наличии подходящего периодического параметрического воздействия. В п. 2.4 на основе выполненного анализа выводятся приближенные выражения, определяющие область сложного динамического поведения МФХС в пространстве ее параметров. Эти выражения могут быть использованы для предварительного определения условий, при которых сложное динамическое поведение может наблюдаться в реальной мезосфере.

В **третьей главе** диссертации исследуются нелинейные динамические свойства ВШС ФХС и их роль в явлении антарктической озонной дыры. В разделе 3.1 дается обзор применяемых методов исследования. В частности, отмечается, что в основе исследования лежит использование базовой динамической модели ВШС ФХС, построенной в первой главе диссертации. В разделе 3.2 описываются обнаруженные в ходе диссертационной работы нелинейные динамические свойства ВШС ФХС. Показано, что в определенной области значений параметров в системе могут существовать одновременно три состояния равновесия (мультистабильность). Существование мультистабильности (см. рис.1) сильно зависит, в частности, от величины такого параметра системы как суммарная концентрация неорганических хлорных соединений (Cl_y): значительный прирост этой величины, произошедший за последние десятилетия, обычно рассматривается в качестве основной причины регистрируемого существенного зимне-весеннего истощения озонного слоя в полярных регионах Земли [19]. В ходе исследования динамических свойств ВШС ФХС обнаружены также автоколебательные режимы ее динамического поведения. Автоколебания связаны с глубокой (вплоть до нескольких порядков величины) модуляцией концентраций химических специй, в частности, озона. Показано, что существование автоколебаний определяется наличием устойчивого предельного цикла в фазовом пространстве ВШС ФХС. Численные эксперименты показали, что автоколебания могут существовать в очень широкой области значений параметров системы, характерных для атмосферы как в настоящем, так и в прошлом, и

сосуществовать как с несколькими состояниями равновесия, так и с единственным состоянием равновесия в системе.

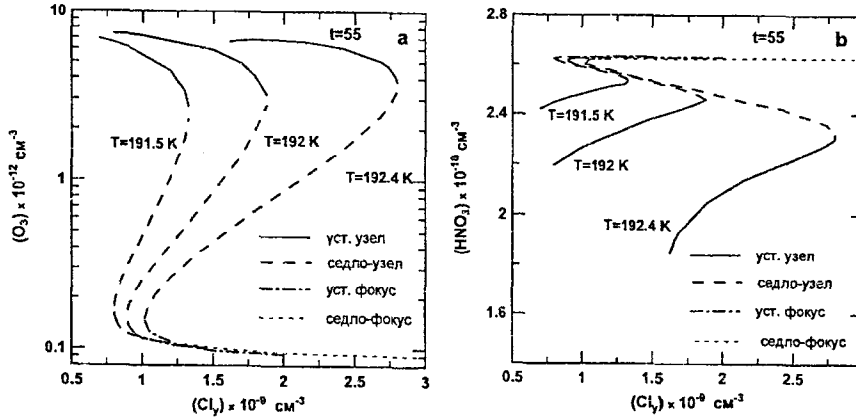


Рис. 1. Зависимости равновесных концентраций (a) O_3 и (b) HNO_3 от суммарной концентрации неорганических хлорных специй, для различной температуры воздуха.

В последнем случае состояние равновесия может быть как устойчивым, так и неустойчивым. Показано, что с существованием предельного цикла связан ярко выраженный эффект "бифуркационной памяти", когда при отсутствующем предельном цикле структура фазового пространства, а значит и поведение системы, сохраняют качественные особенности, присущие ситуации, когда предельный цикл действительно существует.

В разделе 3.3 выполнено исследование с целью определения особенностей химических процессов, ответственных за химическую нестабильность системы, проявляющуюся в существовании обнаруженных нелинейно-динамических свойств. Продемонстрировано, что химическая нестабильность модельной системы определяется не какими-то приближениями, использованными при построении модели, но существенными особенностями реальной фотохимии. Установлено, что эти особенности заключаются, во-первых, в существовании особых цепочек реакций, определяющих положительную обратную связь между концентрациями вовлеченных в них реагентов. Результатом существования таких цепочек является возможность самоускоряющегося роста (автокатализа) или разрушения озона и суммарной концентрации специй, входящих в семейство реактивного хлора. Во-вторых, производство азотной кислоты в процессе гетерогенных реакций и тот факт, что скорость гетерогенных реакций пропорциональна площади поверхности ПСО, определяют цепочку положительной обратной связи между приростом концентрации HNO_3 и скоростью ее производства, иными словами, автокатализ HNO_3.

В разделе 3.4 результаты анализа ВШС ФХС, полученные при исследовании модели этой системы в автономном режиме, применяются для исследования роли нелинейно-динамических свойств ВШС ФХС в явлении антарктической озонной дыры. Проанализирована ситуация, соответствующая условиям, при которых в середине антарктической весны наблюдается практически полное разрушение озона в рассматриваемой области (ситуация с развитой озонной дырой, наблюдаемая с 1987 года). Кроме того, рассмотрена "динамическая предыстория" феномена антарктической озонной дыры, т.е. изменение степени истощения озона год от года в период до 1987 года. В результате установлено, в течение значительной части зимне-весенней эволюции ВШС ФХС в период до 1985 года данная система обладала мультистабильностью. При этом динамика ВШС ФХС определялась "верхними" состояниями равновесия (одно из которых соответствует наибольшему значению равновесной концентрации озона (из трех возможных) и устойчиво, а другое - промежуточному, и неустойчиво). В период между 1985 и 1987 годами в связи с увеличением значения Cl_y произошло "переключение" ВШС ФХС из режима, в котором динамика озона в середине весны определялась "промежуточным" (неустойчивым) состоянием равновесия с относительно высокой концентрацией озона и характеризуемого, соответственно, сравнительно малым уменьшением концентрации озона, в режим, в котором динамика ВШС ФХС определяется топологическими особенностями фазового пространства, связанными с возможным автоколебательным процессом, и обеспечивающий очень низкие концентрации озона. Показано, что это переключение определяло острую чувствительность ВШС ФХС к значению (Cl_y) и может рассматриваться в качестве причины значительного различия между концентрациями озона, зарегистрированными в рассматриваемой области в 1985 и 1987 годах.

Четвертая глава посвящена развитию методов анализа нелинейных свойств фотохимической системы приземного слоя атмосферы на основе применения искусственных нейронных сетей. Метод предполагает построение нелинейных статистических (эмпирических) моделей на базе искусственных нейронных сетей и их последующий специальный анализ. Использование нейронных сетей придает методу достаточную универсальность, поскольку нейронные сети могут, в принципе, аппроксимировать любые гладкие зависимости без ограничения и при отсутствии априорного знания реального вида нелинейности. Возможности метода продемонстрированы на примере анализа долговременных рутинных измерений концентраций озона (O_3), оксидов азота (NO_x), летучих органических соединений (VOC) и взвешенного вещества (PM) на станциях контроля загрязнения атмосферы в Калифорнии (США).

В разделе 4.1 приводится формулировка эмпирических моделей, описываются методы их построения и использования. В частности, модель, опи-

сывающая соотношение между концентрациями озона и его предшественников выглядит следующим образом:

$$O_3 = f(NO_x, VOC, T, H, U, V, TC) + \delta, \quad (1)$$

где NO_x, VOC, T, H, U, V, TC – измеренные суточно-усредненные величины отношения смеси NO_x, VOC, абсолютной влажности, горизонтальных компонент ветра и полной облачности, соответственно. Мы предполагаем, что f может быть аппроксимирована посредством искусственных нейронных сетей $p(\mathbf{X})$ типа многослойного перцептрона [24] с одним скрытым слоем. Математически такая сеть может быть представлена следующим образом:

$$p(\mathbf{X}) = \sum_{j=1}^{N_N} \left(w_j g_j(\mathrm{X}) + w_0 \right), \quad g_j(\mathrm{X}) = \frac{1}{1 + exp[-\sum_{i=1}^{n} (\overline{w_{ij}} x_i + \overline{w_{0j}})]}, \quad (2)$$

где $\mathbf{X}=(x_1,\ldots, x_n)$ – вектор входных величин (предикторов) (в рассматриваемом частном случае n=7), w_j, w_0, $\overline{w_{ij}}$, $\overline{w_{0j}}$ - весовые коэффициенты, N_N – число нейронов в сети. С целью уменьшения зависимости получаемой эмпирической зависимости от выбора параметров нейронных сетей, функция f аппроксимируется как линейная суперпозиция нескольких нейронных сетей с разным числом нейронов и с разными начальными значениями весовых коэффициентов.

Основной предлагаемый способ использования эмпирических моделей заключается в расчете частных производных функции f по (NO_x) и (VOC) для каждого из измерений с целью анализа соотношений между этими производными путем статистического анализа.

В разделе 4.2. описываются данные, использованные для создания эмпирических моделей и демонстрации предлагаемого метода. В частности, были использованы данные рутинных измерений озона, взвешенного вещества оксидов азота (NO_x) и суммарных летучих углеводородов, сделанные на трех станциях мониторинга качества воздуха в Калифорнии [25] в период с 1980 по 1995 гг. Этим измерениям сопоставлялись метеорологические данные Центра предсказания климата Национальной администрации океана и атмосферы США.

Полученные эмпирические модели для приземного озона анализируются в разделе 4.3. В частности, показано, что свойства эмпирических моделей качественно согласуются со свойствами известной упрощенной фотохимической модели [26] тропосферной ФХС. Важным результатом является обнаруживаемое эмпирическими моделями "переключение" фотохимии с режима с низкой концентрацией NO_x летом (когда $\partial O_3/\partial NO_x>0$) в режим с высокой концентрацией NO_x (когда $\partial O_3/\partial NO_x<0$) поздней осенью и зимой (рис. 2). Такое переключение было теоретически предсказано в работах [27,28], однако прямого экспериментального подтверждения этого эффекта

не было. Данный эффект воспроизводится и фотохимической моделью (см. рис. 2).

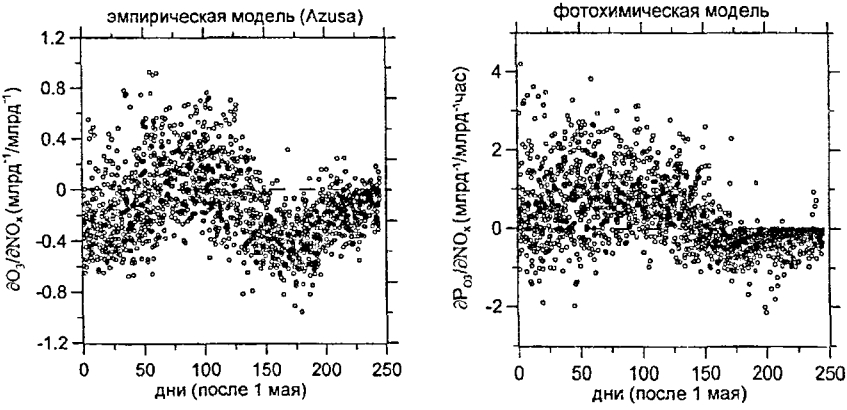


Рис. 2. Сезонные изменения значений производной отношения смеси (скорости образования) O_3 по NO_x, оцененных при использовании эмпирической модели и фотохимической модели

В разделе 4.4 исследуются нелинейные связи в системе приземного аэрозоля. Поскольку считается известным, что скорость образования вторичного аэрозоля в основном определяется процессами с участием гидроксилрадикала и примерно пропорциональна его концентрации, можно ожидать, что любого рода изменения концентрации OH при прочих равных условиях будут приводить к соответствующим изменениям концентрации аэрозоля, и наоборот. Хорошо известно, что как и озон, в равновесии OH зависит от NO_x существенно нелинейным образом [29]. Поэтому существует теоретическая возможность, что увеличение концентрации NO_x (или VOC) может приводить к уменьшению концентрации аэрозоля. Такие возможности действительно были обнаружены в ходе анализа эмпирических моделей и продемонстрированы в диссертации. Показано, что большинство качественных особенностей нелинейных соотношений между концентрациями взвешенного вещества, NO_x и VOC в теплый сезон могут быть объяснены на основе упрощенной фотохимической модели тропосферной фотохимии.

Пятая глава диссертации (открывающая вторую часть диссертации) посвящена обзору трехмерной химическо-транспортной модели (XTM) CHIMERE, которая является основным инструментом исследования в задачах, рассматриваемых в последующих главах второй части диссертации. Данная модель была создана сотрудниками нескольких французских лабораторий изначально для западной Европы, а затем в рамках данной диссертационной работы была адаптирована для восточной Европы (включая Европейскую часть России). Наряду с общим кратким описанием модели, в пятой главе диссертации приводятся некоторые оригинальные результаты,

полученные в ходе работы по валидации ее версии, адаптированной к России, с использованием данных наземных и спутниковых измерений.

Краткое описание модели CHIMERE приведено в разделе 5.1. CHIMERE является эйлеровой мультимасштабной моделью, созданной для изучения различных вопросов, связанных с загрязнением атмосферы на городских и континентальных масштабах. Она состоит из нескольких блоков, отвечающих за параметризацию различных процессов, в частности, адвективного переноса, турбулентного перемешивания, химических превращений, фотолиза, осаждения, вымывания, и отдельно для аэрозолей – нуклеации, конденсации, коагуляции и сальтации. Результатом вычислений являются почасовые трехмерные поля концентраций рассматриваемых газовых веществ и аэрозолей. Подробное описание модели, список основных публикаций с ее использованием, а также программный код (распространяемый свободно) могут быть найдены на официальном сайте модели (http://www.lmd.polytechnique.fr/chimere/). В ходе распространения модели на восточную Европу были модифицированы модельные интерфейсы для расчета антропогенных и биогенных эмиссий.

В разделе 5.2 обсуждается валидация модельных расчетов для восточной Европы на основе их сравнения с данными как наземных (п. 5.2.1), так и спутниковых измерений (п. 5.2.2). В частности, рассматривались измерения озона, выполненные более чем на ста станциях международной сети EMEP в 1997 и 2001, а также на станциях научного мониторинга в г. Москва, г. Долгопрудный, и рядом с г. Кисловодск. Кроме этого, использовались измерения взвешенного вещества (PM_{10}) и оксида углерода (CO). Сравнение качества расчетов модели отдельно для западной и восточной частей Европы показывает, что различия между этими регионами с точки зрения нормированной среднеквадратичной ошибки и среднего отклонения весьма незначительны. Примеры рассчитанных временных серий озона в сравнении с данными измерений, выполненными в Москве и Долгопрудном летом 2006 г. показаны на рис. 3. Достигнутые значения коэффициента корреляции расчетов и измерений (около 0.8) являются типичными для лучших моделей в западной Европе. В целом удовлетворительное качество расчетов было достигнуто также и в случае CO и PM_{10}.

В отличие от данных наземных измерений, которые имеют точечный характер, спутниковые измерения равномерно охватывают всю рассматриваемую территорию и потому позволяют сделать более обоснованные выводы об общем качестве модельных расчетов. Пространственные распределения усредненного содержания диоксида азота, которые, с одной стороны, были рассчитаны моделью для большого региона, охватывающего всю Европу, и части Азии и Африки, и, с другой стороны, получены из данных измерений, выполненных спутниковыми приборами GOME, демонстрируют высокую степень подобия.

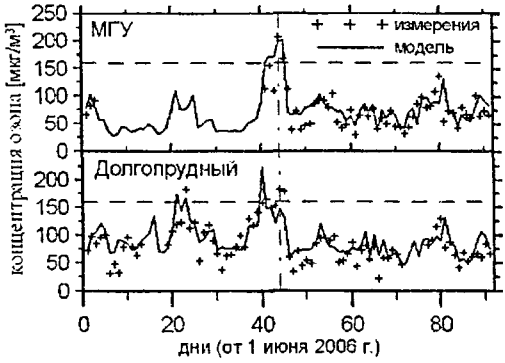


Рис. 3. Измерения концентрации приземного озона в сравнении с результатами моделирования. Горизонтальная штриховая линия отмечает максимальную разовую ПДК озона 160 мкг $м^{-3}$, установленную для населенных мест России. Вертикальным штрих-пунктиром помечен озонный эпизод 14 июля.

Наиболее сильная пространственная корреляция (r=0.91) обнаружена в Западной Европе; в восточной Европе корреляция (r=0.76). В принципе, разница коэффициентов корреляции может быть вызвана различиями в диапазоне вариаций содержания NO_2 в указанных регионах. С целью более объективного сравнения качества модельных расчетов в западной и восточной Европе в диссертации предпринят дополнительный статистический анализ среднеквадратичной разности рассчитанных и измеренных данных в зависимости от величины рассчитанного или измеренного содержания диоксида азота. В результате оказалось, что уровень суммарных ошибок в данных расчетов и измерений в восточной Европе оказался, в среднем, меньшим, чем в западной Европе. Это довольно неожиданный результат, и можно предположить, что он обусловлен, прежде всего, тем обстоятельством, что пространственное распределение NO_2 в западной Европе гораздо более неоднородно, чем в восточной Европе, что накладывает более жесткие ограничения на точность как спутниковых измерений, так и модельных расчетов.

В шестой главе диссертации представлен оригинальный метод обратного моделирования пространственных распределений источников оксидов азота. Эмиссии оксидов азота являются ключевыми параметрами тропосферной фотохимической системы и соответствующих атмосферных моделей, и их знание важно, в том числе, в контексте практических задач контроля и снижения загрязнения атмосферы. Особенностями предложенного метода являются вычислительная эффективность и сниженная зависимость результатов от субъективных априорных предположений за счет совместного использования спутниковых и наземных данных измерений диоксида азота. Метод применен для исследования потенциала применения имею-

щихся спутниковых измерений совместно с региональной химико-транспортной моделью с целью оценки неопределенности и уточнения имеющихся данных по эмиссиям оксидов азота в Западной Европе.

В разделе 6.1 формулируется постановка задачи, а также представлено подробное описание метода. Полагается, что имеются априорные оценки суммарных эмиссий оксидов азота (NOx) для каждой ячейки модельной сетки, сезонно-усредненные (за летние месяцы) данные по содержанию NO_2 в тропосфере, полученные из спутниковых измерений, и база данных для околоповерхностных концентраций диоксида азота. Кроме того, и содержание NO_2, и приземные концентрации NO_2 могут быть предсказаны моделью как функции скоростей эмиссий. Все эти оценки могут быть отличны от истинных значений соответствующих характеристик, но ошибки по существу неизвестны. Задача заключается в том, чтобы оценить неопределенности и получить более точные оценки эмиссий. Решение задачи основано на вероятностном подходе, который в случае задач обратного моделирования является довольно традиционным [12]. А именно, в качестве первого шага задаются распределения вероятностей априорных оценок эмиссий и данных по содержанию NO_2 , которые описывают два независимых независимых источника информации об эмиссиях окислов азота. Следующий шаг состоит в применении известной теоремы Байеса и в результате максимально правдоподобные апостериорные оценки эмиссий, ê, могут быть найдены путем решения следующей системы уравнений:

$$\sum_{i=1}^{N}\left[(c_o^i - c_m^i(\hat{\mathrm{e}}) - \delta_c^i)\frac{\partial c_m^i(\hat{\mathrm{e}})}{\partial \hat{e}^j}\right] + \varphi^2(\hat{e}^j - e_a^j) = 0\,,\ \mathrm{j}=1,\ldots,\mathrm{N}, \qquad (3)$$

где c_0 и c_m- натуральные логарифмы измеренного и рассчитанного содержания NO_2, N- полное число ячеек модельной сетки, δ_c – систематическая ошибка, оцениваемая отдельно, и φ-отношение стандартных отклонений ошибок в данных по содержанию NO_2 и в априорных оценках эмиссий (σ_c и σ_e, соответственно). Наряду с чисто технической трудностью, связанной с необходимостью оценки частных производных $\partial c/\partial e$ (для чего требуется провести N+1 модельных расчетов, каждый из которых требует нескольких часов процессорного времени), решение вышеприведенного уравнения наталкивается на необходимость задания конкретного значения φ, притом, что никакая достоверная информация о величинах σ_c и σ_e априори неизвестна. В большинстве публикуемых работ по обратному моделированию величины σ_c и σ_e задаются на основе чисто субъективных оценок. Но очевидно, что, задавая различные значения этих параметров даже в рамках разумного диапазона, можно получать весьма различные результаты. Принимая это во внимание, в диссертации предложен регулярный способ решения проблемы неопределенностей на основе использования дополни-

тельных независимых наблюдательных данных. А именно, φ рассматривается в качестве еще одной неизвестной величины, получение наилучшей (максимально правдоподобной) оценки которой также основывается на вероятностном подходе. Идея заключается в том, что максимально правдоподобная оценка φ должна дать наилучшее согласие рассчитанных и измеренных поверхностных концентраций NO_2. Формально записывается распределение вероятности для этого параметра, и находится его максимум, соответствующий максимально правдоподобной оценке. В результате совместного решения уравнений для максимально правдоподобных оценок эмиссий и параметра φ находятся оптимальные значения эмиссий, которые более не зависят от неизвестных параметров. Особо отметим, что для оценки производных $\partial c/\partial e$ в работе был использован оригинальный приближенный метод.

Предложенный метод был протестирован с использованием синтетических данных и затем применен для моделирования эмиссий NO_x в Западной Европе на основе реальных данных спутниковых и наземных измерений. Общие характеристики этих данных представлены в разделе 6.2. В частности, в работе использовались величины тропосферного содержания NO_2, полученные из измерений, выполненных спутниковым прибором GOME (Global Ozone Monitoring Experiment) [30], установленного на борту спутника ERS-2 и спутниковым прибором SCIAMACHY (Scanning Imaging Absorption spectroMeter for Atmospheric ChartograpHY) [31] на борту спутника Envisat. В работе использовались также данные измерений приземных концентраций NO_2 на 21 станции мониторинга состава атмосферы международной сети EMEP для лета 2001 года. Данным измерений сопоставлялись данные расчетов, выполненные с использованием химико-транспортной модели CHIMERE на модельной сетке, имеющей разрешение 0.5 градусов и состоящей из 1800 ячеек. В качестве априорных оценок эмиссий использовались данные EMEP.

Результаты решения рассматриваемой обратной задачи представлены в разделе 6.3. В частности, было найдено, что априорные эмиссии, вероятно, завышены для Великобритании, северо-восточной части Франции, севера Германии и Нидерландов, но занижены для северной Италии, южной Франции, западной Германии и Испании. Также можно отметить вероятную недооценку эмиссий в зонах интенсивного судоходства. В качестве важного результата необходимо также отметить полученную оценку величины неопределенности в данных EMEP по эмиссиям оксидов азота (~1.9 в терминах геометрического отклонения). Эти данные широко используются в различных атмосферных моделях и знание неопределенностей в данных по эмиссиям важно как с точки зрения дальнейшего совершенствования этих моделей, так и их практических приложений. Согласно полученным результатам, величина неопределенностей апостериорных оценок эмиссий значительно меньше (~1.4). Показано, что использование в модели апосте-

риорных эмиссий ведет к значительному улучшению согласия рассчитанных данных по содержанию NO_2 с измерениями (см. рис. 4). Важно отметить также, что статистически значимое улучшение согласия имеет место и в случае приземных концентраций диоксида азота.

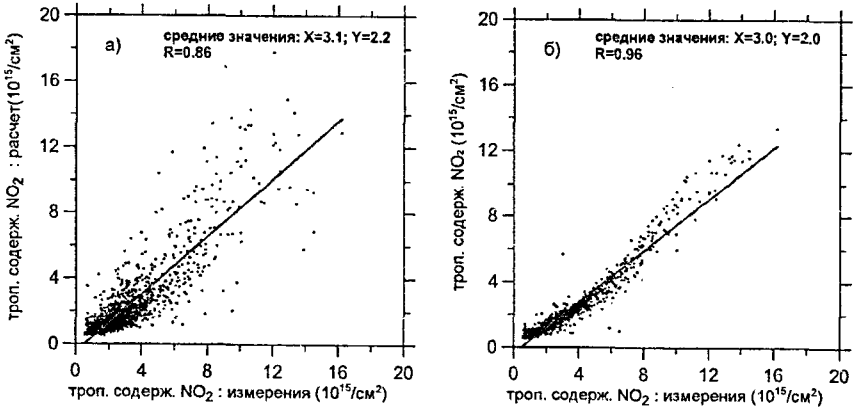


Рис. 4. (а) Сравнение величин содержания NO_2, восстановленных из спутниковых измерений, с соответствующими результатами расчетов, выполненных (а) с априорными и (б) с апостериорными оценками эмиссий NO_x.

Седьмая глава диссертации посвящена исследованию долговременных (многолетних) изменений эмиссий оксидов азота путем "обращения" данных спутниковых измерений тропосферного содержания диоксида азота. В рамках этих исследования развиваются два оригинальных метода, взаимодополняющих друг друга. Первый метод нацелен на получение пространственных распределений оценок линейных трендов. Применение этого метода позволило исследовать изменения эмиссий оксидов азота в Европе и странах Ближнего востока в период с 1996 по 2005 гг., подтвердить эффективность дорогостоящих мер по снижению эмиссий оксидов азота, предпринятых в странах Западной Европы, а также выявить значительные неточности имеющихся данных по эмиссиям в странах СНГ. Второй метод позволяет оценивать многолетние изменения эмиссий в крупных городских агломерациях (мегаполисах). "Сердцевиной" метода является оригинальный универсальный алгоритм, обеспечивающий возможность построения оптимальных нелинейных аппроксимаций временных серий зашумленных данных на основе искусственных нейронных сетей. В результате применения этого метода были выявлены и оценены нелинейные тренды эмиссий оксидов азота в ряде мегаполисов, которые затем были частично подтверждены при использовании независимых данных наземного мониторинга.

В разделе 7.1 описываются использованные в исследовании данные спутниковых и наземных измерений, а также данные модельных расчетов.

В частности, были использованы данные многолетних измерений, выполненные спутниковыми приборами GOME (1996-2002 гг.) и SCIAMACHY (2003-2008 гг.). Расчеты выполнялись на основе химическо-транспортной модели CHIMERE с пространственным разрешением $1^0 x 1^0$ для большого домена, покрывающего всю Европу, а также страны Средиземноморья и Ближнего Востока.

Предложенные и примененные в данной работе методы обратного моделирования описываются в разделе 7.2. В частности, подраздел 7.2.1 посвящен описанию линейного подхода, в основе которого лежит следующее условное распределение вероятностей для межгодичных изменений эмиссий, полученное после линеаризации модельных соотношения между эмиссиями NO_x и содержанием NO_2 и в предположении, что ошибки в данных модели и измерений являются гауссовыми:

$$p(\Delta \mathbf{E} \mid \Delta \mathbf{C}_o) \propto$$
$$exp\left(-\frac{1}{2}\sum_{i=1}^{N}\left[\left(\sum_{j=1}^{N}\Delta E_j \left.\frac{\partial(C_{mi}^{n+1}+C_{mi}^{n})}{2\partial E_j}\right|_{\mathbf{E}=\mathbf{E}_0} - \Delta(C_{io} - C_{im}\big|_{\mathbf{E}=\mathbf{E}_0}) \right)^2 \sigma_{ci}^{-2}\right]\right) p_a(\Delta \mathbf{E}), \quad (4)$$

где $\mathbf{E}$ – вектор скоростей эмиссий NO_x ($\mathbf{E}_0$ – неизменные во времени эмиссии, соответствующие "базовому" сценарию, определенному ниже), $\mathbf{C}_o$ и $\mathbf{C}_m$ – измеренное и рассчитанное тропосферное содержание NO_2, усредненное за летние месяцы соответствующего года, σ_c –стандартное отклонение, характеризующее суммарные ошибки как $\mathbf{C}_o$, так и $\mathbf{C}_m$, i и n – порядковые индексы ячеек модельной сетки и номера года соответственно, Δ - оператор межгодичной вариации (например, $\Delta\mathbf{E}^n = \mathbf{E}^{n+1} - \mathbf{E}^n$) и p_a - априорное распределение для изменений эмиссий, определяемое ниже. В распределении (4) предполагается, что различие межгодовых вариаций измеренного и рассчитанного содержания NO_2, вероятно, определяется соответствующими изменениями эмиссий NO_x. Максимально правдоподобное решение ищется в виде суперпозиции линейного относительного тренда и отклонений от него, и алгоритм отыскания решения состоит из двух соответствующих этапов. Важно отметить, что априори не предполагаются какие-либо конкретные значения трендов, и возможные оценки ограничиваются только сверху и снизу, основываясь на данных известного кадастра EMEP. В результате получаемое пространственное распределение трендов эмиссий является практически независимым от каких-либо априорных эмиссий. И в этом состоит основная новизна предложенного метода.

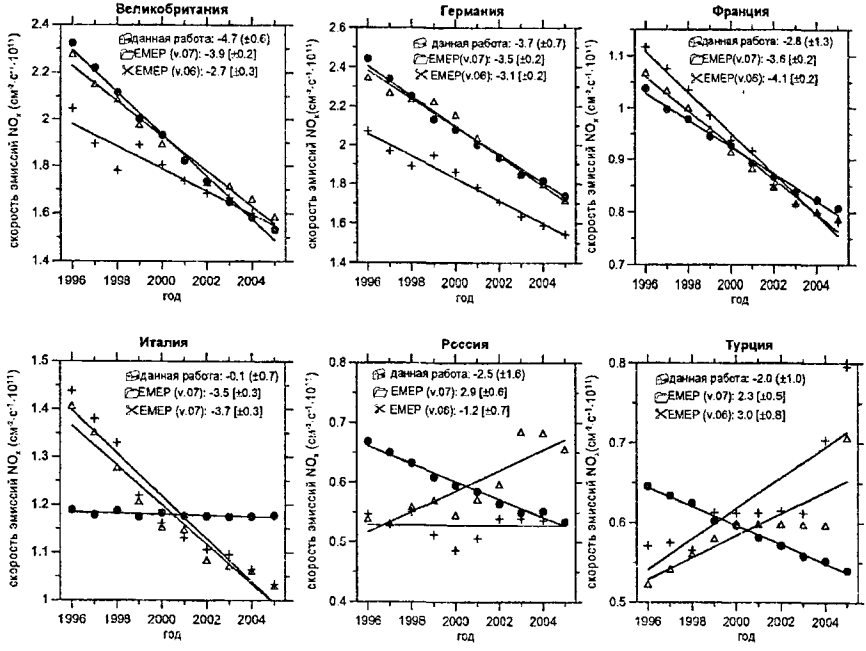


Рис. 5. Временные серии и линейные тренды антропогенных эмиссий NO_x, усредненные по территориям нескольких стран. Величины в квадратных скобках представляют собой статистическую неопределенность линейной аппроксимации данных EMEP и не включают в себя возможные систематические ошибки этих данных.

Нелинейный подход описывается в подразделе 7.2.1. Основные идеи разработанного алгоритма аппроксимации неизвестного нелинейного тренда по зашумленной серии данных – это, во-первых, использование искусственных нейронных сетей для аппроксимации неизвестного тренда. Во-вторых, это вероятностный подход, примененный на этот раз для оценки весовых коэффициентов нейронной сети. При этом априори ограничивается только максимальная величина этих параметров, что позволяет ограничить абсолютную величину тренда. В-третьих, это использование кросс-валидации для оценки уровня шума и его последующей фильтрации. На этом шаге при построении аппроксимации последовательно исключается одно из измерений одно из измерений и затем минимизируется разница между неиспользованными измерениями и построенными аппроксимациями. В результате определяются оптимальные ограничения весовых коэффициентов, а оценивается уровень шума.

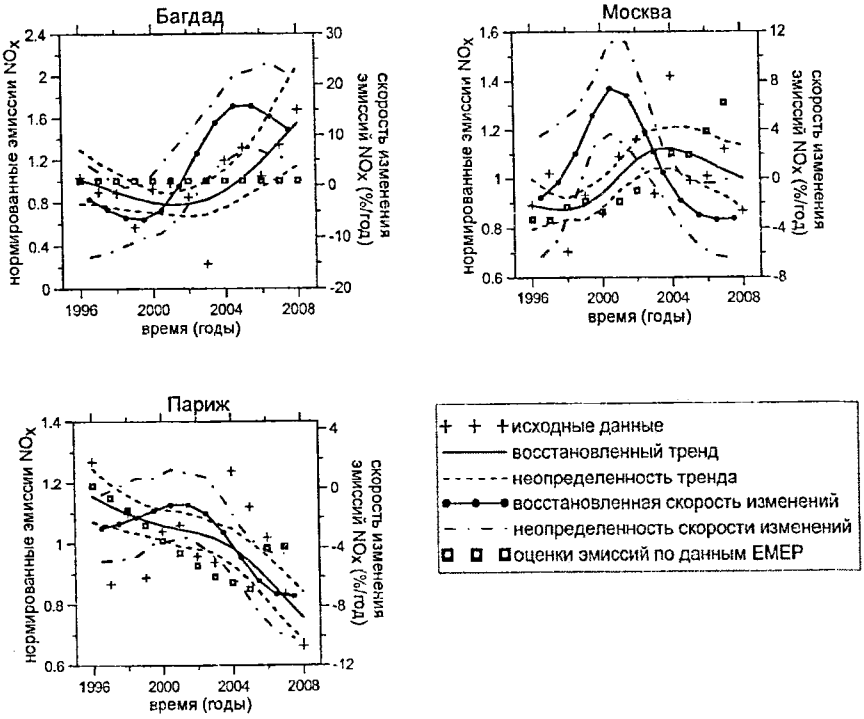


Рис. 6. Нелинейные изменения эмиссий оксидов азота в мегаполисах, восстановленные из спутниковых измерений, в сравнении с аналогичными оценками, основанными на данных EMEP.

Результаты применения описанных выше методов представлены в разделе 7.3. В частности, в разделе 7.3.1 обсуждаются полученные оценки линейных трендов эмиссий NO_x в десятилетний период с 1996 по 2005 гг. в сравнении с данными международного кадастра EMEP. Наибольшее сходство между полученными оценками и данными EMEP имеется в Западной Европе, тогда как различия максимальны вне Западной Европы, что может свидетельствовать о большой неопределенности данных EMEP для соответствующих регионов. Примеры трендов усредненных эмиссий NO_x для нескольких стран показаны на рис. 5.

Результаты применения метода оценки нелинейных трендов эмиссий NO_x в мегаполисах представлены в подразделе 7.3.2. Статистически значимые нелинейности обнаружены в аппроксимациях изменений эмиссий NOx для пяти городских агломераций. Обнаруженные нелинейности в Милане, Мадриде и Париже проявляются в существенном изменении скорости межгодовых изменений эмиссий NO_x, а в Багдаде и Москве - в изменении на-

правления тренда. Примеры полученных нелинейных аппроксимаций показаны на рис. 6.

Валидация полученных оценок изменений эмиссий обсуждается в разделе 7.3.3. В частности, показано, что использование в модели оптимизированных эмиссий обеспечивает почти идеальное согласие (с учетом неопределенности линейных аппроксимаций) между линейными трендами в расчетах и измерениях содержания диоксида азота, тогда как в случае использования эмиссий EMEP согласие хуже. Кроме того, проведено сравнение результатов обратного моделирования с независимыми данными наземных измерений. В частности, для валидации оценок трендов эмиссий NO_x в период с 1996 по 2005 гг. использовались данные наземного мониторинга качества воздуха в Великобритании, а также измерения озона на станциях международной сети EMEP. Полученные результаты сравнения модельных расчетов с данными измерений подтверждают, что полученные оценки изменений эмиссий являются адекватными и в целом более точными, чем имеющиеся данные традиционных инвентаризаций эмиссий. Для валидации нелинейных аппроксимаций трендов в мегаполисах рассматривались данные измерений оксидов азота в Мадриде, Милане и Париже. Показано, что во всех трех случаях изменения измеренных приземных концентраций оксидов азота лучше описываются моделью при использовании нелинейных аппроксимаций изменений эмиссий NO_x, чем при использовании аналогичных линейных аппроксимаций.

Восьмая глава диссертации посвящена развитию метода, нацеленного на улучшение точности прогнозов приземной концентрации взвешенного вещества. Концентрация взвешенного вещества является одной из основных характеристик качества воздуха. При этом во многих регионах оперативно прогнозируется суммарная концентрация частиц с диаметром меньше 10 мкм, эта характеристика обозначается как PM_{10}. Однако задача прогнозирования PM_{10} является сложной, и качество прогнозов требует дальнейшего улучшения. Предлагаемый в диссертации метод может рассматриваться в качестве варианта пассивной ассимиляции данных, при которой корректируются только результаты модели, а ее параметры остаются неизменными. В принципе, идея такой корректировки [32] не является новой, и она довольно часто применяется в метеорологии, но эффективность этого метода в случае прогнозов концентрации взвешенного вещества впервые продемонстрирована именно в рамках данной диссертационной работы. Важным отличительным моментов предлагаемого метода является то, что он позволяет улучшать прогнозы не только в непосредственной близости от измерительных станций, но и на значительном удалении от них. В работе используются типичные статистические регрессионные модели (описанные в разделе 8.1), которые предсказывают среднесуточную концентрацию PM_{10} на следующий день в зависимости от значений ряда предикторов в текущий день. Оптимальные значения параметров находятся методом наименьших

квадратов. Рассмотрены как линейные регрессии, так и нелинейные регрессии на основе нейронных сетей. С целью комбинации статистических и детерминистских прогнозов концентрация PM_{10}, предсказываемая химическо-транспортной моделью, использует в качестве одного из предикторов статистической модели. Для изучения возможностей метода были выполнены расчеты на XTM CHIMERE за период четырех полных лет. Этим расчетам сопоставлялись среднесуточные измерения PM_{10}, выполненные на 445 станциях наземного мониторинга. Для создания моделей использовались ряд метеорологических параметров, перечисленных здесь. Качество прогнозов оценивалось на основе метода кросс-валидации. Были подробно рассмотрены пять конфигураций моделей, отличающиеся набором предикторов, которые соответствовали как классическим статистическим прогнозам, так и комбинированным прогнозам, учитывающим результаты модельных расчетов. Качество прогнозов оценивалось в терминах среднеквадратичной ошибки и коэффициента определенности.

Результаты, рассмотренные в п. 8.2, показывают, что статистические модели дают в целом лучшие прогнозы, чем химическо-транспортная модель. При этом комбинированные прогнозы показывают заметно лучшие результаты, чем классические статистические прогнозы, особенно в случае, когда текущее измерение PM_{10} недоступно. Довольно неожиданно оказалось, что нейронные сети не показали сколько-нибудь лучших результатов по сравнению с линейными моделями.

Очевидным достоинством детерминистских прогнозов является то, что они равномерно охватывают всю нужную территорию. При этом вопрос о пространственной репрезентативности статистических и комбинированных моделей нуждался в особом исследовании. Этот момент проведенного исследования является важным новым шагом, который оказалось возможным сделать благодаря тому, что статистические модели создавались одновременно для сотен измерительных сайтов, тогда как в предыдущих исследованиях статистические модели рассматривались только для нескольких выделенных сайтов [см., напр., 33-35]. Идея исследования заключалась в следующем. Модель, созданная с данными одного из мониторов, использовалась с целью прогноза PM_{10} в окрестности другого монитора, находящегося от первого на известном расстоянии d и затем оценивалась разность величин среднеквадратичных ошибок статистической и химическо-транспортной моделей:

$$< \Delta RMSE^2(d) >= \frac{1}{N}\sum_{k=1}^{N}\frac{1}{L_k(d)}\sum_{l=1}^{L_k(d)}[RMSE_{kl}^2 - RMSE_l^{2\,CTM}], \qquad (5)$$

где k и l - индексы обучающего и проверочного мониторов, $RMSE_{kl}$ – среднеквадратичная ошибка, рассчитанная для проверочного сайта l при использовании прогнозов (или прогностической модели) для обучающего сайта k. $RMSE_l^{CTM}$ - это ошибка детерминисткого прогноза для проверочно-

го сайта l, и $L_k(d)$ – число проверочных сайтов в поясе $[d+\Delta_d/2, d-\Delta_d/2]$ вокруг монитора k, и N – полное число мониторов. Отрицательные значения этой величины соответствуют лучшим статистическим или комбинированным прогнозам по сравнению с детерминисткими прогнозами. Оказалось, что масштаб области, для которой комбинированные прогнозы являются лучшими, почти в два раза превышает соответствующий масштаб классических статистических прогнозов.

Девятая глава диссертации посвящена развитию методов моделирования состава атмосферы загрязнения атмосферы в условиях интенсивных природных пожаров. Данное направление исследований является весьма актуальным в частности в виду его значительной практической важности. Следует отметить при этом, что работы, в которых предприняты попытки учета эмиссий от пожаров в рамках региональных ХТМ носят единичный характер, а результаты этих попыток не являются однозначно положительными.

В диссертационной работе развивается метод учета эмиссий от пожаров в рамках ХТМ на основе спутниковых измерений FRP, а также представляются результаты его применения для моделирования экстремального эпизода загрязнения атмосферы в регионе Московского мегаполиса летом 2010. В основе развиваемого метода расчета эмиссий от пожаров лежит предполагаемое линейное соотношение между скоростью эмиссий в данной модельной ячейке и соответствующим потоком инфракрасного излучения, измеряемым со спутников. Идея такого подхода была предложена сравнительно недавно в работе [36]. Основные особенности разработанного метода, подробно описываемого в разделе 9.1, это (1) оптимизация соотношения между эмиссиями и интенсивностью принимаемого излучения на основе использования данных наземного мониторинга загрязнения атмосферы, (2) использование суточных максимумов интенсивности излучения в каждой из ячеек модельной сетки, (3) учет ослабления принимаемого излучения слоем дымового аэрозоля, который осуществляется посредством дополнительного фактора, параметризованного как функция оптической толщи аэрозоля, измеряемой теми же самыми спутниковыми приборами.

Данный метод расчета эмиссий от пожаров был применен в рамках ХТМ CHIMERE, которая была дополнительно модифицирована в рамках диссертационной работы для расчетов эволюции состава атмосферы в условиях сильной задымленности. В частности, в стандартной версии CHIMERE расчеты скоростей фотохимических реакций выполнялись с использованием табулированных величин, полученных из известной модели TUV, а влияние аэрозолей на процессы фотолиза в стандартной версии CHIMERE не учитывалось. В рамках данной работы новейшая версия (v.5.0) модели TUV была введена в метеорологический интерфейс CHIMERE, и эта важная модификация позволила выполнить расчет скоростей фотолиза в каждой ячейке трехмерного домена модели как функции зенитного угла и оптиче-

ской толщи аэрозолей, измеренной спутниковым прибором MODIS на волне 550 нм.

В работе использовались данные сети мониторинга загрязнения атмосферы в Москве и ближайших пригородах, описываемые в разделе 9.2. В частности, на основе общих критериев были отобраны фоновые станции, а также станции, расположенные в жилых зонах и обеспечивающие измерениями по крайней мере 50 процентов дней в период с 1 июня по 30 августа 2010 г. Полное количество выбранных мониторов составляло 17, 7 и 8 в случае CO, PM_{10}, и O_3, соответственно. В дополнение к этому станции, измеряющие CO и PM_{10}, были случайным образом разделены на две группы. Одна из групп использовалась для оптимизации эмиссий от пожаров, а другая группа –только для валидации модельных расчетов. указанное число мониторов, измеряющих CO, PM_{10} и озон. При этом для оптимизации эмиссий использовалась только часть мониторов, отобранная случайным образом и выделенная на этих картах красным цветом, а другая часть использовалась для валидации результатов расчетов.

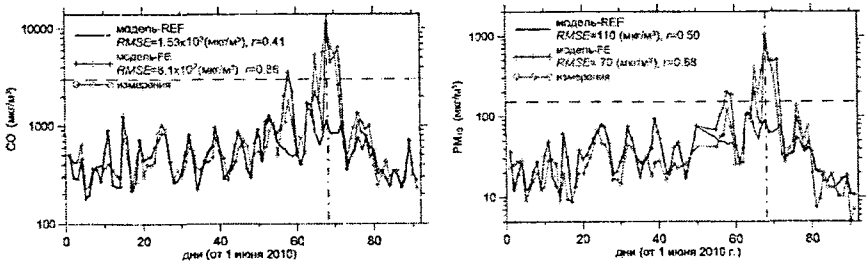


Рис.7. Суточно-осредненные концентрации CO и PM_{10}, рассчитанные XTM CHIMERE без учета (REF) и с учетом (FE) эмиссий от пожаров, в сравнении с соответствующими измерениями. Концентрации усреднены по группе мониторов, данные которых не использовались для оптимизации эмиссий. Штриховые горизонтальные линии показывают пороговые концентрации в соответствии с российским стандартом качества воздуха. Вертикальными штрихпунктирными линиями отмечен день 7 августа 2010 г. Концентрации представлены в логарифмическом масштабе.

В разделе 9.3 показано, что расчеты, в которых учитываются эмиссий от пожаров, воспроизводят вариации CO и PM_{10} в целом адекватно, включая очень мощные возмущения в начале августа. В частности, коэффициент корреляции между рассчитанными и измеренными суточно-осредненными концентрациями превышает 0.8 как в случае CO, так и в случае PM_{10} для обеих групп мониторов. С точки зрения валидации развиваемого метода расчета эмиссий от пожаров важно, что учет последних в модели ведет к резкому улучшению качества расчетов (см. рис. 7). Расчеты концентрации озона также улучшаются в результате учета эмиссий от пожаров, хотя и в

меньшей степени (в частности, коэффициент корреляции возрос с 0.58 до 0.75). Меньшие улучшения расчетов концентрации озона по сравнению с расчетами CO и PM_{10} могут отражать сильную временную и пространственную изменчивость концентраций озона в рассматриваемом регионе, особенно в присутствии мощных возмущений состава и оптических свойств атмосферы вследствие пожаров.

С целью прояснения роли отдельных факторов в рассматриваемой ситуации был выполнен ряд дополнительных расчетов. В частности, был выполнен расчет без учета экранирующего влияния дымового аэрозоля на скорости фотолиза, который дает нереалистично высокую концентрацию озона и тем самым демонстрирует ключевую роль указанного эффекта для эволюции приземного озона в рассмотренной ситуации.

В Заключении сформулированы основные результаты диссертации.

В конце диссертации приведен список цитируемой литературы, включающий собственные публикации автора.

Основные результаты работы

1. Разработан общий метод построения базовых динамических моделей атмосферных фотохимических систем (ФХС), учитывающий специфику этих систем и заключающийся в совместном применении процедур разделения переменных в соответствии с характерными временами изменения их величин и разложения правых частей динамических уравнений исходной полной модели по малым параметрам. Базовые динамические модели предназначены для исследования нелинейно-динамических свойств атмосферных ФХС и обладают теми же динамическими свойствами, что и исходные полные модели, но при этом являются существенно более простыми.
2. При помощи базовой динамической модели мезосферной ФХС определены основные динамические и химические механизмы, ответственные за возникновение сложного динамического поведения (субгармонических и хаотических режимов) указанной фотохимической системы, испытывающей периодическое внешнее воздействие вследствие суточных вариаций освещенности. Показано, в частности, что основные режимы сложного динамического поведения полной модели мезосферной ФХС, включающей в себя систему пяти нелинейных динамических уравнений, могут быть описаны посредством одномерного точечного отображения, по своей структуре близкого к известному отображению Фейгенбаума. Установлено, что в основе химического механизма возникновения сложного динамического поведения в мезосферной ФХС лежит каталитический цикл разрушения атомарного кислорода, особенностью которого является независимость скорости разрушения от концентрации разрушаемого вещества.

3. Построена базовая динамическая модель высокоширотной нижнестратосферной (ВШС) ФХС, адекватно описывающая динамику озона во время формирования антарктической озонной дыры. Посредством данной модели обнаружены и исследованы динамические свойства ВШС ФХС, определяемые наличием автоколебательных режимов и возможностью существования в системе одновременно нескольких состояний равновесия (мультистабильности). Показано, что причиной существования этих свойств являются особенности химических процессов, присущие реальной фотохимии и обеспечивающие возможность самоускоряющегося роста концентраций ключевых химических составляющих системы.
4. Выполнено исследование динамической предыстории феномена антарктической озонной дыры. Продемонстрировано, что наблюдаемое быстрое нарастание истощения концентрации озона в области среднесезонного максимума озонного слоя год от года в середине 80-х годов было обусловлено бифуркациями в динамическом поведении ВШС ФХС, вызванными накоплением в стратосфере неорганических хлорных соединений.
5. Предложен метод, нацеленный на выявление нелинейных связей между концентрациями важнейших примесей в приземном слое атмосферы и метеорологическими параметрами. Метод предполагает построение нелинейных статистических (эмпирических) моделей на базе искусственных нейронных сетей и их последующий специальный анализ. Возможности метода продемонстрированы на примере анализа долговременных рутинных измерений концентраций озона (O_3), оксидов азота (NO_x), летучих органических соединений (VOC) и взвешенного вещества (PM) на станциях контроля загрязнения атмосферы в Калифорнии (США). Адекватность результатов эмпирических моделей продемонстрирована путем сравнения качественных особенностей рассматриваемых нелинейных соотношений, аппроксимированных нейронными сетями, и предсказанных теоретической фотохимической моделью. Впервые на основе анализа данных натурных измерений продемонстрировано, что увеличение концентраций NO_x или VOC при определенных условиях может приводить к уменьшению концентрации PM.
6. Выполнена адаптация современной трехмерной модели тропосферной ФХС (химическо-транспортной модели CHIMERE) для восточной Европы, включая европейскую часть России. При использовании данных как наземных, так и спутниковых измерений показано, что адаптированная модель демонстрирует в восточной Европе точность расчетов, сопоставимую (с учетом различий условий окружающей среды) с точностью расчетов аналогичных моделей в Западной Европе. Впервые продемонстрировано достаточно близкое соответствие между данными по тропосферному содержанию NO_2, восстановленными из спутниковых

измерений, и аналогичными расчетами, выполненными в рамках региональной химическо-транспортной модели, что инициировало исследования, основанные на комбинированном использовании спутниковых измерений диоксида азота в тропосфере и региональных моделей.

7. В рамках исследования возможности использования данных спутниковых измерений тропосферного содержания NO_2 для улучшения пространственного распределения эмиссий NO_x, заданных в химическо-транспортной модели континентального масштаба, был разработан и применен метод обратного моделирования эмиссий, главной особенностью которого является самосогласованная оценка неопределенностей входных данных путем комбинации спутниковых и наземных измерений состава атмосферы. При использовании этого метода впервые продемонстрировано, что имеющиеся данные спутниковых измерений тропосферного содержания диоксида азота могут использоваться для улучшения современного знания об источниках оксидов азота на сравнительно мелких масштабах, разрешимых типичной региональной химическо-транспортной моделью. Получена оценка среднего уровня несистематических ошибок в пространственном распределении эмиссий NO_x в Западной Европе, заданных на основе данных международной организации EMEP, которые широко используются в различных атмосферных моделях. Выявлены области, где указанные ошибки максимальны.
8. В ходе исследования возможностей использования данных спутниковых измерений для оценки многолетних изменений эмиссий оксидов азота разработан и применен новый метод обратного моделирования межгодовых изменений атмосферных источников реактивных газов, позволивший получить независимые оценки изменений эмиссий оксидов азота за десятилетний период с 1996 по 2005 годы в Европе, в том числе – Европейской части России на регулярной сетке с разрешением $1^0 \times 1^0$. При использовании химическо-транспортной модели CHIMERE и измерений тропосферного содержания диоксида азота, выполненных спутниковыми приборами GOME и SCIAMACHY, показано, что в соответствии с имеющимися экспертными оценками в период с 1996 по 2005 годы в западной Европе происходило уменьшение эмиссий NO_x. Одновременно полученные результаты выявили серьезные неточности в имеющихся базах данных традиционных инвентаризаций эмиссий для ряда стран южной и восточной Европы.
9. Разработан оригинальный метод для аппроксимации неизвестного нелинейного тренда физической характеристики по зашумленной временной серии данных на основе применения вероятностного подхода и искусственных нейронных сетей. Метод применен для исследования многолетних изменений эмиссий оксидов азота (NO_x) в крупных городских агломерациях (мегаполисах) в период с 1996 по 2008 гг. В результате впервые на основе анализа данных спутниковых измерений обнаружены ста-

тистически значимые нелинейности изменений эмиссий NO_x в мегаполисах на масштабах нескольких лет.

10. Предложен метод улучшения краткосрочных прогнозов концентрации взвешенного вещества (PM_{10}), в основе которого лежит идея оптимальной комбинации детерминистских прогнозов, вырабатываемых химическо-транспортной моделью, и статистических прогнозов. Метод апробирован в ходе численных экспериментов при использовании современной химическо-транспортной модели CHIMERE, метеорологической мезомасштабной модели MM5 и данных сотен мониторов PM_{10} в Европе за период с 2003 по 2006 гг. Показано, что предложенная процедура обеспечивает значительные улучшения детерминистских прогнозов. В частности, максимальное снижение среднеквадратичной ошибки достигает 45 процентов, и максимальное увеличение коэффициента определенности – 85 процентов. Показано также, что использование детерминистских прогнозов в комбинации со статистическими прогнозами существенно улучшает пространственную репрезентативность последних.
11. Разработан метод расчета эмиссий от пожаров в рамках химическо-транспортной модели, ключевыми особенностями которого являются использование суточных максимумов интенсивности инфракрасного излучения от пожаров по данным спутниковых измерений, оптимизация параметров алгоритма расчета эмиссий на основе усвоения химическо-транспортной моделью данных наземного мониторинга загрязнения атмосферы, а также коррекция возможного систематического занижения измеренных величин интенсивности излучения от пожаров вследствие экранирования спутникового сенсора дымовым аэрозолем. Эффективность разработанного метода продемонстрирована в ходе исследования эпизода аномального загрязнения атмосферы в регионе московского мегаполиса летом 2010 г. Впервые продемонстрирована возможность достижения удовлетворительного количественного согласия между измеренными межсуточными вариациями концентраций ряда основных загрязнителей атмосферы (монооксида углерода, взвешенного вещества и озона) и расчетами загрязнения атмосферы в условиях интенсивных природных пожаров. Объяснено наблюдаемое существенное различие в амплитуде возмущений первичных загрязнителей атмосферы и озона, вызванных пожарами: показано, что фотохимическая генерация озона в атмосфере, сильно загрязненной продуктами сгорания от природных пожаров, подавляется вследствие экранирующего эффекта дымового аэрозоля.

Список публикаций по теме диссертации

1. Feigin A.M., Konovalov I.B. On the possibility of complicated dynamic behavior of atmospheric photochemical systems: Instability of the Antarctic photochemistry during the ozone hole formation // Journal of Geophysical Research. 1996. V. 101. P. 26023-26038.

2. Коновалов И.Б., Я.И. Мольков, А.М. Фейгин. Механизмы сложного динамического поведения мезосферной фотохимической системы. // Вестник Нижегородского университета им. Н.И. Лобачевского. Нелинейная динамика-Синхронизация и хаос-1997-II, С. 119-142.

3. Feigin, A.M., I.B. Konovalov, Y.I. Molkov, Toward an understanding of the nonlinear nature of atmospheric photochemistry: Essential dynamic model of the mesospheric photochemical system // Journal of Geophysical Research.1998. V. 103(D19). P. 25447-25460.

4. Konovalov, I.B., A.M. Feigin, A.Y. Mukhina. Toward an understanding of the nonlinear nature of atmospheric photochemistry: Multiple equilibrium states in the high-latitude lower stratospheric photochemical system // Journal of Geophysical Research. 1999. V. 104(D3). P. 8669-8689.

5. Konovalov I.B., A.M. Feigin, Toward an understanding of the nonlinear nature of atmospheric photochemistry: Origin of the complicated dynamic behavior of the mesospheric photochemical system // Nonlinear Processes in Geophysics. 2000. V. 7. P. 87-104.

6. Konovalov I.B. Application of neural networks to studying nonlinear relationships between ozone and its precursors // Journal of Geophysical Research. 2002. V.107(D11), doi:10.1029/2001JD000863.

7. Konovalov I.B., Nonlinear relationships between atmospheric aerosol and its gaseous precursors: Analysis of long-term air quality monitoring data by means of neural networks // Atmospheric Chemistry and Physics. 2003. V. 3, P. 607-621 (http://www.atmos-chem-phys.net/3/607/2003/).

8. Konovalov I.B., Beekmann M., Vautard R., Burrows J.P., Richter A., H. N , Elansky Nüß, 2005. Comparison and evaluation of modelled and GOME measurement derived tropospheric NO2 columns over Western and Eastern Europe // Atmospheric Chemistry and Physics. 2005. V. 5. P. 169-190 (http://www.atmos-chem-phys.net/5/169/2005/).

9. Konovalov I.B., Beekmann M., Richter A., Burrows J. P. Inverse modelling of the spatial distribution of NOx emissions on a continental scale using satellite data // Atmospheric Chemistry and Physics. 2006. V.6, P. 1747-1770 (http://www.atmos-chem-phys.net/6/1747/2006/).

10. Коновалов И.Б., Региональные особенности десятилетних изменений атмосферных эмиссий окислов азота в европейской части России: результаты обратного моделирования на основе спутниковых данных // Доклады Российской академии наук. 2007. Т. 417, №5, С. 685-688.

11. Konovalov, I.B., M. Beekmann, J.P. Burrows, A. Richter, Satellite measurement based estimates of decadal changes in European nitrogen oxides

emissions // Atmospheric Chemistry and Physics. 2008. 8, 2623-2641 (http://www.atmos-chem-phys.net/8/2623/2008/).

12. Коновалов И.Б., Еланский Н.Ф., Звягинцев А.М., Беликов И.Б., Бикманн М. Валидация химическо-транспортной модели нижней атмосферы Центрально-европейского региона России с использованием данных наземных измерений концентрации озона и спутниковых измерений диоксида азота // Метеорология и гидрология. 2009. № 4. С. 65-74.

13. Konovalov I.B. M. Beekmann, F. Meleux, A. Dutot, G. Foret. Combining deterministic and statistical approaches for PM10 forecasting in Europe // Atmospheric Environment. 2009. 43, №40. 6425-6434.

14. Кузнецова И. Н., Зарипов Р.Б., Коновалов И.Б., Звягинцев А.М., Семутникова Е.Г., Артамонова А.А. Вычислительный комплекс модель атмосферы - химическая транспортная модель как модуль системы оценки качества воздуха // Оптика атмосферы и океана. 2010. Т.23. №6. С. 485-492.

15. Konovalov, I. B., Beekmann, M., Richter, A., Burrows, J. P., Hilboll, A. Multi-annual changes of NO_x emissions in megacity regions: nonlinear trend analysis of satellite measurement based estimates // Atmospheric Chemistry and Physics. 2010. V.10. P.8481-8498.

16. Кузнецова И.Н., Коновалов И.Б., Зарипов Р.Б., Артамонова А.А, Нахаев М.И, Лезина Е.А., Звягинцев А.М., Бикманн М. Наблюдаемая и рассчитанная изменчивость концентрации взвешенного вещества (PM10) в Москве и Зеленограде // Метеорология и гидрология, 2011. №3, 48-60.

17. Зарипов Р.Б., И.Б. Коновалов, И.Н. Кузнецова, И.Б. Беликов, А.М. Звягинцев. Использование моделей WRF ARW и CHIMERE для численного прогноза концентрации приземного озона. // Метеорология и гидрология. 2011. №4, 48-60.

18. Коновалов И.Б. Оценка многолетних изменений эмиссий оксидов азота в мегаполисах по данным спутниковых измерений // Известия РАН. Физика атмосферы и океана. 2011. 47. №2, С. 220-229.

19. Коновалов И.Б., М. Бикманн, И.Н. Кузнецова, А.А. Глазкова, А.В. Васильева, Р. Б. Зарипов. Оценка влияния природных пожаров на загрязнение воздуха в регионе московского мегаполиса на основе комбинированного использования химическо-транспортной модели и данных измерений // Известия РАН. Физика атмосферы и океана. 2011. 47. №4, С. 496-507.

20. Konovalov I.B., M. Beekmann, I.N. Kuznetsova, A.M. Zvyagintsev, A.Yurova. Atmospheric impacts of the 2010 Russian wildfires: integrating modelling and measurements of an extreme air pollution episode in the Moscow region // Atmospheric Chemistry and Physics. V.11. P. 10031–10056, 2011 (www.atmos-chem-phys.net/11/10031/2011/).

21. Feigin, A.M., I.B. Konovalov. Instability of the Antarctic photochemistry during ozone hole formation. Russ. Acad. of Sci. Inst. of Appl. Phys. Preprint 375. -Nizhniy Novgorod: IAPRAS, 1995.

22. Коновалов И.Б., Фейгин А.М., Необычные динамические свойства антарктической фотохимической системы // Атмосферный озон. Труды

конференции молодых ученых (Москва, 1995) под ред. Еланского Н.Ф., Препринт ИФА РАН, 1995, С. 35-42.

23. Feigin A.M., Konovalov I.B., Unusual dynamic properties of the Antarctic photochemical system // U.S. Natl. Rep. Int. Union Geod. Geophys. 1991-1994, Rev. Geophys., 33, A293, 1995.

24. Feigin A.M., I.B. Konovalov, Y.I. Molkov. Essential dynamic models of atmospheric photochemical systems: General method of creation and verification by the example of the mesospheric photochemical system // Russ. Acad. of Sci. Inst. Appl. Phys., Preprint No. 429, 1997.

25. Коновалов И.Б., А.М. Фейгин. Нелинейные динамические свойства полярной стратосферной фотохимии и их роль в явлении антарктической озоновой дыры // Физические проблемы экологии Москва 23-27 июня 1997 г. Тезисы докладов. МГУ, Москва 1997. С.37.

26. Коновалов И.Б., А.Ю. Мухина, А.М. Фейгин. Бистабильность полярной стратосферной фотохимии. // В сб. Атмосферный озон. Труды конференции молодых ученых (Москва, 24 апреля 1997 года). Препринт ИФА РАН, 1997, С. 5-14.

27. Коновалов И.Б., А.Ю. Мухина, А.М. Фейгин. Мультистабильность высокоширотной нижнестратосферной фотохимической системы. // Избранные труды молодых ученых ИПФ РАН. –Н. Новгород, 1998. С. 122-127.

28. Коновалов И.Б., А.Ю. Мухина, А.М. Фейгин. Нелинейные динамические свойства полярной стратосферной фотохимии и их роль в явлении антарктической озоновой дыры // Сборник трудов Всероссийской конференции "Физические проблемы экологии" (Москва 23-27 июня 1997 г.). – М.: Изд. МГУ, 1998, Т. 3, С. 11-16.

29. Коновалов И.Б., Куликов М.Ю., Фейгин А.М. Влияние микрофизических процессов формирования частиц полярных стратосферных облаков на характеристики Антарктической озонной дыры. Третья Нижегородская сессия молодых ученых // Сборник тезисов докладов. -Н. Новгород: изд. ИПФ РАН, 1998. С. 122-123.

30. Коновалов И.Б., Мухина А.Ю., Фейгин А.М. Исследование качественных свойств Антарктической фотохимической системы и их роли в процессе формирования Антарктической озонной дыры. Третья Нижегородская сессия молодых ученых // Сборник тезисов докладов. -Н. Новгород: изд. ИПФ РАН, 1998. С. 121-122.

31. Konovalov I.B. The neural network based methodologies for studying the relationships between surface ozone and its precursors and for surface ozone trend decomposition // A workshop "Tropospheric Ozone Research -2" , Moscow, 2002, Abstracts, p. 22.

32. Коновалов И.Б. Применение искусственных нейронных сетей для анализа данных мониторинга приземного аэрозоля // Труды VII всероссийской конференции молодых ученых "Малые примеси, атмосферное элек-

тричество и динамические процессы в атмосфере", (Нижний Новгород, 13-15 мая 2003г.). -Н. Новгород.: Изд. ИПФ РАН, 2003, С.61-65.

33. Коновалов И.Б. Исследование тропосферного озона, в "Физика атмосферы: Электрические процессы, радиофизические методы исследований // Материалы совещания по программе фундаментальных исследований ОФН и ОНЗ РАН", С. 63-65. -Нижний Новгород: Изд. ИПФ РАН, 2003.

34. Konovalov I., Beekmann M., Vautard R., Burrows J., Richter A. Comparison of simulated distributions of ozone and nitrogen dioxide at the lower troposphere over Europe with ground based and satellite observations, the paper presented at 1st EGU General Assembly (Nice, France, 25-30 April, 2004) // Geophysical Research Abstracts. 2004. V.6.

35. Konovalov I.B., M. Beekmann, J. P. Burrows, A. Richter, H. Nüß, Inverse modelling of spatially resolved NO_x emissions on a continental scale using tropospheric NO_2 columns from satellite measurements, European Geophysical Union, General Assembly 2005 (25-29 April, Vienna, Austria, 2004) // Geophysical Research Abstracts. 2005. V. 7. P. 03292.

36. Beekmann M., N. Blond, I. Konovalov, G. Bergametti, F. Boersma, J.P. Burrows, H. Eskes, G. Foret, A. Richter, R. Vautard. Synergie between satellite observations and regional scale pollution modelling: Results and perspectives. The Changing Chemical Climate of the Atmosphere // First ACCENT Symposium (Urbino, September 12-16, 2005). Abstracts. –Urbino: ACCENT. 2005. P.256.

37. Konovalov I.B., Beekmann M., Richter A., Burrows J.P. Inverse modelling of spatial distributions of NO_x emissions using satellite data and a continental scale chemistry-transport model // The Changing Chemical Climate of the Atmosphere. First ACCENT Symposium (Urbino, September 12-16, 2005). -Urbino: ACCENT. 2005. Abstracts, P.185.

38. Коновалов И.Б. Исследование тропосферного озона, в "Физика атмосферы: Электрические процессы, радиофизические методы исследований // Материалы совещания по программе фундаментальных исследований ОФН и ОНЗ РАН", С. 128-134. -Нижний Новгород: Изд. ИПФРАН, 2005.

39. Beekmann M., N. Blond, A. Hodzic, I. Konovalov, G. Bergametti, H. Chepfer, G. Foret, L. Menut, R. Vautard. Integrating chemical modelling and satellite observations for monitoring tropospheric chemistry and air quality // Tropospheric Sounding from Space, ACCENT-TROPOSAT-2 in 2004-5, p. 213-217, J. Burrows & P. Borrell, Eds., Rep. No. 6.2005. –Urbino: ACCENT Secretariat, 2005.

40. Konovalov I.B., M. Beekmann, A. Richter, J. P. Burrows. Uncertainties in NO_x emission data: Estimations and impact on air quality simulations // GLOREAM workshop (11-13 October 2006 Ecole Nationale Superieure). –Paris: Ecole Nationale Superieure. P. 27.

41. Konovalov I.B., Beekmann M., Richter A., Burrows J. P.T. Inverse modeling of NO_x emissions over Europe using combined sets of satellite and

surface data // Chemical data assimilation for the observation of the Earth's atmosphere. ACCENT/WMO Expert Workshop in support of IGACO. L. Barrie, J. Burrows, P. Monks, P. Borrell (Eds.). WMO Technical Report 1360. -Urbino:ACCENT, 2006. P. 181-183.

42. Beekmann M. I. Konovalov, J.-F. Müller, J. Stavrakou, L. Déguillaume, G. Dufour, A. Richter, J. Burrows. Inverse modelling of emissions using satellite data and surface data // Combining satellite observations to study atmospheric composition, Report from the Fifth AT2 Workshop held at the Department of Chemistry, University of Crete, Voutes, Heraklion Crete 3&4 July 2006, P.Borrell Eds.-Urbino:ACCENT, 2006. P.9-16.

43. Konovalov I.B., Beekmann M., Richter A., Burrows J. P. The use of satellite and ground based measurements for estimating and reducing uncertainties in the spatial distribution of emissions of nitrogen oxides // ArXiv: physics/0612144 (www.arxiv.org), 2006.

44. Konovalov I.B., M. Beekmann, A. Richter, J. P. Burrows, O. Tarasova, N. Elansky. Photo-oxidant pollution over Eastern Europe and its sources from the modelling perspective // Air Quality in Eastern Europe, C. Granier, P. Monks, O. Tarasova, S. Tuncel, P. Borrell Eds., Rep. 8.2006. -Urbino: ACCENT. 2006. P. 53-59.

45. Коновалов И.Б. Синергетическое использование трехмерной химическо-транспортной модели нижней атмосферы и данных наземных и спутниковых измерений (по материалам приглашенной лекции) // X Всероссийская конференция молодых ученых "Состав атмосферы. Климатические эффекты. Атмосферное электричество." Тезисы докладов. Москва. 2006, С. 28.

46. Beekmann M., G. Dufour, I. Konovalov, G. Bergametti, H. Chepfer, G. Foret, L. Menut, R.Vautard. Integrating Chemical Modelling and Satellite Observations for Monitoring Tropospheric Chemistry and Air Quality // Observing Tropospheric Trace Constituents from Space, ACCENT-TROPOSAT-2 in 2006, J. Burrows and P. Borrell Eds. –Urbino: ACCENT. 2007. P. 208-213.

47. Konovalov I.B., M. Beekmann, J. P. Burrows, A. Richter, H. Nüß, Inverse modelling of spatial distributions of NO_x emissions using satellite data and a continental scale chemistry-transport model // Proceedings of the 1st ACCENT Symposium "The Changing Chemical Climate of the Atmosphere"(Urbino, 12-16 September 2005). -Roma, Italy: ARACNE Editrice S.r.l., 2006.

48. Konovalov I.B., M. Beekmann, A. Richter, J. P. Burrows. The use of satellite observations for estimating and reducing uncertainties of NO_x emission data employed in an air quality model, European Geophysical Union, General Assembly 2006 (2-6 April, Vienna, Austria, 2006) // Geophysical Research Abstracts. 2006. V.8. P.04136.

49. Konovalov I.B., M. Beekmann, J.P. Burrows, A. Richter. Decadal changes in European NO_x emissions derived from satellite observations by means

of inverse modelling // 2nd ACCENT Symposium (Urbino, Italy, 23-27 July, 2007). Programme and Abstracts. –Urbino: ACCENT. 2007. P. 55.

50. Konovalov I.B., M. Beekmann, J.P. Burrows, A. Richter. The use of satellite measurements of tropospheric NO_2 for estimation of multi-annual changes in NO_x emissions. Tropospheric NO_2 measured by satellites // ACCENT workshop (10-12 October KNMI, De Bilt, The Netherlands). Abstracts. ACCENT. 2007. P.23.

51. Коновалов И.Б., Бикманн М., Беликов И.Б., Еланский Н.Ф., Звягинцев А.М. О возможностях совместного использования химико-транспортных моделей и данных наземного и космического мониторинга состава нижней атмосферы // Всероссийская конференция "Развитие системы мониторинга состава атмосферы (РСМСА)" (16-18 октября 2007 г.), Тезисы докладов. Москва. 2007. С. 144.

52. Konovalov I.B., M. Beekmann, F. Meleux, A. Dutot, G. Foret. Statistical postprocessing of deterministic PM10 forecasts for Europe // ACCENT/GLOREAM workshop (29-31 October, Antwerp, Belgium). Abstracts. –Antwerp:VITO. 2008. P.34.

53. Konovalov I.B., M. Beekmann, A. Richter, J.P. Burrows. Decadal changes in European NOx emissions derived from satellite observations by means of inverse modelling // Atmospheric composition Change - Causes and Consequences - Local to Global, editors: Michela Maione, Sandro Fuzzi.-Rome: Aracne editrice S.r.l. ISBN: 978-88-548-2268-9. 2009. P. 124-130.

54. Коновалов И.Б. Обратное моделирование и ассимиляция данных в задачах диагностики и прогноза состава нижней атмосферы (по материалам приглашенной лекции) // XIII международная конференция молодых ученых. Тезисы докладов. Звенигород. 2009. С. 87.

55. Konovalov I.B., M. Beekmann, A. Richter, J.P. Burrows. Satellite monitoring of nitrogen oxide emissions // Using satellite and in situ data to improve sustainability. Collected Theses for the Advanced Research Workshop (Kiev, June 9-12, 2009). Abstracts. 2009. P.54.

56. Konovalov I.B., M. Beekmann, A. Richter. Estimation of NOx emission trends in megacities from satellite measurements // The 2009 GEIA-ACCENT Open Conference on Emissions of Gases and Aerosols, Oslo, 26-28 October, 2008, Program and Abstracts. 2009. P. 76.

57. Коновалов И.Б. Моделирование загрязнений атмосферы, вызванных природными пожарами эффекты (по материалам приглашенной лекции) // Труды конференции XIV Всероссийской школы - конференции молодых ученых "Состав атмосферы. Атмосферное электричество. Климатические эффекты". Нижний Новгород. 2010. С. 50-55.

58. Konovalov I.B. Probabilistic and nonlinear methods of the synergetic use of simulated and measured data in air pollution studies // Frontiers of nonlinear physics. IV international conference (Nizhny Novgorod-S. Petersburg,13-20 July, 2010). Proceedings. Nizhny Novgorod, 2010. P. 230-231.

59. Konovalov I.B., M. Beekmann, A. Richter. NOx emission trends in megacities derived from satellite measurements // Geophysical Research Abstracts. V. 12, EGU2010-8065, 2010.

60. И.Б. Коновалов. Моделирование загрязнения атмосферы в регионе московского мегаполиса в экстремальных условиях лета 2010 г.: первые результаты и их сравнение с данными наземных и спутниковых измерений // Всероссийское совещание «Состояние воздушного бассейна г. Москвы в экстремальных погодных условиях лета 2010 г.». 25 ноября 2010 г., Москва, Тезисы докладов. Москва, ИФА им. А.М.Обухова РАН, Москва. 2010. С. 29.

61. Konovalov I.B., M. Beekmann, A. Richter, J.P. Burrows, Satellite monitoring of nitrogen oxide emissions, in Using satellite and in situ data to improve sustainability, NATO Science for Peace and Security Series C: Environmental Security, Kogan, Felix; Powell, Alfred; Fedorov, Oleg (Eds.) – Berlin: Springer. 2011. P. 219-234.

62. Kanakidou M., M. Dameris, H. Elbern, M. Beekmann, I.B. Konovalov, L. Nieradzik, A. Strunk, M. Krol. Chapter 9. Applications: Data and Models – Synergistic Use of Satellite Retrieved Tropospheric Trace Constituent Distributions and Numerical Modellingin J.P. Burrows et al. (eds.) // The Remote Sensing of Tropospheric Composition from Space, Physics of Earth and Space Environments, DOI 10.1007/978-3-642-14791-3_9, Springer-Verlag Berlin Heidelberg. 2011. P.451-492.

63. Konovalov I. B., M. Beekmann, I. N. Kuznetsova, A.M. Zvyagintsev, A.Yurova. The extreme air pollution episodes in the Moscow megacity region during the 2010 Russian wildfires: modelling and analysis // Geophysical Research Abstracts. 2011. V. 13, EGU2011-5744.

64. Konovalov I. B., M. Beekmann, I. N. Kuznetsova, A.M. Zvyagintsev, A.Yurova. Impacts of 2010 Russian wildfires on atmospheric composition: integrating satellite and ground based observations with regional model simulations // Geophysical Research Abstracts. 2011. V. 13, EGU2011-5909.

Список литературы, цитированной в автореферате

1. Prather M. J., McElroy M. B., Wofsy S. C., Logan J. A. Stratospheric chemistry: Multiple solutions // Geophys. Res. Lett. 1979. V. 6, P. 163-164.

2. White W. H., Dietz D. Does the photochemistry of the troposphere admit more than one steady state? // Nature. 1984. V. 309, P. 242-244.

3. Stewart R. W. Multiple steady states in atmospheric chemistry // J. Geophys. Res. 1993. V. 98, P. 20601-20612.

4. Poppe D., Lustfeld H. Nonlinearities in the gas phase chemistry of the troposphere: Oscillating concentrations in a simplified mechanism // J. Geophys. Res. 1996. V. 101, P. 14373-14380.

5. Александров Э. Л., Ю. А. Израэль, И. Л. Кароль, А. Х. Хргиан. Озонный щит Земли и его изменения. С.-П.: Гидрометеоиздат, 1992. 282 с.

6. Schmidt H.C., Derognat C., Vautard R., Beekmann M. A comparison of simulated and observed ozone mixing ratios for the summer of 1998 in Western Europe // Atmos. Environ., 2001. V. 35 №36. P. 6277-6297.

7. Колебания и бегущие волны в химических системах. Под ред. Р. Филда и М. Бугера. М: Мир. 1988. 720 с.

8. Fichtelman B., and G. Sonnemann. The strange attractor in the photochemistry of ozone in the mesopause region. // Acta Geod. Geoph. Mont. Hung. 1987. V. (1-2), P. 313-319.

9. Sonnemann, G., and B. Fichtelmann, Subharmonics, cascades of period doubling and chaotic behavior of photochemistry of the mesopause region // J. Geophys. Res. 1997. V. 102, P. 1193-1203.

10. World Meteorological Organization, Scientific assessment of stratospheric ozone: WMO Rep. 20, Geneva, Switzerland, 1989.

11. Barrie L.A., Burrows J.P., Monks P., Borrell P. (Eds.). Chemical data assimilation for the observation of the Earth's atmosphere. ACCENT Report 7.2006. ACCENT Secretariat. Urbino. December 2006.

12. Enting, I.G. Inverse Problems in Atmospheric Constituents transport. Cambridge University Press, 2002.

13. Burrows J.P., Platt U., Borrell P. (Eds.). The remote sensing of tropospheric composition from space. Springer, 2011.

14. Hodzic A., Madronich S., Bohn B. et al. Wildfire particulate matter in Europe during summer 2003: meso-scale modeling of smoke emissions, transport and radiative effects // Atmos. Chem. Phys., 2007. V. 7. P. 4043-4064. doi:10.5194/acp-7-4043-2007.

15. Larkin N. K., O'Neill S. M., Solomon R., Raffuse S., Strand T., Sullivan D.C., Krull C., Rorig M., Peterson J.L., Ferguson S.A. The BlueSky smoke modeling framework // International Journal of Wildland Fire. 2009. V.18. P. 906–920.

16. Sofiev M., Vankevich R., Lotjonen M. et al. An operational system for the assimilation of the satellite information on wild-land fires for the needs of air quality modelling and forecasting. // Atmos. Chem. Phys. 2009. V.9. P. 6833-6847, doi:10.5194/acp-9-6833-2009.

17. Брасье Г., Соломон С. Аэрономия средней атмосферы. Л.: Гидрометеоиздат, 1987. 413 с.

18. Turco, R. P., Whitten R. C. A comparison of several computational techniques for solving some common aeronomic problems // J. Geophys. Res. 1974. V. 79, P. 3179-3185.

19. World Meteorological Organization (WMO), Scientific assessment of ozone depletion: 1994, WMO Rep. 37, Geneva, Switzerland, 1995.

20. Danilin M. Y., McConnell J. C. Heterogeneous reactions in a stratospheric box model: A sensitivity study // J. Geophys. Res. 1994. V. 99, P. 25681-25696.

21. Brasseur G. P., Tie X. X., Rasch P. J., Lefevre F. A three-dimensional simulation of the Antarctic ozone hole: Impact of antropogenic chlorine on the lower stratosphere and upper troposphere // J. Geophys. Res. 1997. V. 102, P. 8909-8930

22. Неймарк Ю.И., Ланда П. С. Стохастические и хаотические колебания. –М.: Наука, 1987. 424 с.

23. Feigenbaum, M.J. Qualitative universality for a class of nonlinear transformations // J. Stat. Phys. 1978. V. 19(1), P. 25-52.

24. Bishop C.M. Neural Networks for Pattern Recognition, Clarendon Press, Oxford, 1995

25. California Ambient Air Quality Data 1980-1997 (CAAQD), CD No. PTSD-98-010-CD, Air Resources Board, California Environmental Protection Agency, December 1998.

26. Sillman S. The relation between ozone, NOx and hydrocarbons in urban and polluted rural environments // Atmos. Environ. 1999. V. 33. P. 1821-1845.

27. Kleinman L.I. Low and high-NO_x tropospheric photochemistry // J. Geophys. Res. 1994. V. 99, P. 16831-16838.

28. Jacob D.J., L.W. Horowitz, J.W. Munger, B.G. Heikes, Russel R. Dickerson, R.S. Artz, W.C. Keene. Seasonal transition from NO_x- to hydrocarbon-limited conditions for ozone production over the eastern United States in September // J. Geophys. Res. 1995. V. 100. P. 9315-9324.

29. Kley D., M. Kleinmann, H. Sanderman, S. Krupa. Photochemical oxidants: state of science // Environmental Pollution. 1999. V 100. P. 19-42.

30. Burrows J.P., Weber M., Buchwitz M., Rozanov V., Ladstätter-Weißenmayer A., Richter A., DeBeek R., Hoogen R., Bramstedt K., Eichmann K.-U., Eisinger M., Perner D. The Global Ozone Monitoring Experiment (GOME): Mission concept and first scientific results // J. Atmos. Sci. 1999. V.56. P.151-175.

31. Bovensmann H., Burrows J.P., Buchwitz M., et al. SCIAMACHY – mission objectives and measurement modes // J. Atmos. Sci. 1999. V. 56. P. 127–150

32. Glahn H.R., Lowry D.A. The use of model output statistics (MOS) in objective weather forecasting // Journal of Applied Meteorology, 1972. V. 11. P. 1203–1211.

33. Zolghadri A., Cazaurang F. Adaptive nonlinear state-space modelling for the prediction of daily mean PM10 concentrations // Environmental Modelling & Software, 2006. V. 21. P. 885-894.

34. Slini T., Kaprara A., Karatzas K., Moussiopoulos N. PM10 forecasting for Thessaloniki, Greece // Environmental Modelling & Software 2006. V.21. P. 559–565.

35. Stadlober E., Hörmann S., Pfeiler B. Quality and performance of a PM_{10} daily forecasting model // Atmospheric Environment. 2008. V.42. P. 1098-1109.

36. Ichoku C., Kaufman J.Y. A Method to Derive Smoke Emission Rates From MODIS Fire Radiative Energy Measurements // IEEE T. Geosci. Remote, 2005. V. 43(11). P. 2636–2649.

Содержание диссертации

ВВЕДЕНИЕ
ЧАСТЬ 1. НЕЛИНЕЙНЫЕ СВОЙСТВА АТМОСФЕРНЫХ ФОТОХИМИЧЕСКИХ СИСТЕМ (ФХС)
ГЛАВА 1. Базовые динамические модели атмосферных ФХС: общая процедура построения и примеры ее применения
Введение
1.1. Принципы и процедура построения базовых динамических моделей (БДМ) атмосферных ФХС
1.1.1. Общие принципы
1.1.2. Описание процедуры
1.2. Базовая динамическая модель мезосферной фотохимической системы
1.2.1. Описание исходной "полной" динамической модели МФХС и ее динамических свойств
1.2.2. Построение базовой динамической модели мезосферной ФХС
1.2.3. Динамические свойства базовой модели
1.3. Базовая динамическая модель (БДМ) высокоширотной нижнестратосферной (ВШС) фотохимической системы
1.3.1. Общее описание модели и процедуры ее получения
1.3.2. Автономная и неавтономная версии модели
1.3.3. Значения параметров модели
1.3.4. О валидации БДМ ВШС ФХС и полученных на ее основе результатов
Заключение по главе 1
ГЛАВА 2. Анализ факторов, ответственных за сложное динамическое поведение мезосферной ФХС
Введение
2.1. Анализ особенностей поведения системы в течение одного периода параметрической модуляции
2.1.1.Анализ динамики малых возмущений решений уравнений БДМ МФХС
2.1.2. Анализ точечного отображения
2.2. Особенности структуры уравнений базовой модели МФХС и соответствующих химических процессов, обусловливающие ее сложное динамическое поведение
Заключение по главе 2
ГЛАВА 3. Нелинейные динамические свойства высокоширотной нижнестратосферной ФХС и их роль в явлении антарктической озонной дыры
Введение
3.1. Предварительные замечания о методах исследования

3.2. Основные НДС автономной модели ВШС ФХС: Результаты численного исследования
3.2.1. Мультистабильность и бифуркации, приводящие к изменению типа и числа состояний равновесия ВШС ФХС
3.2.2. Автоколебательные процессы и предельные циклы
3.3. Механизмы возникновения нетривиальных нелинейно-динамических свойств ВШС ФХС
3.3.1. Механизмы нестабильности
3.3.2. Механизмы автоколебаний
3.3.3. Причины мультистабильности ВШС ФХС
3.4. Анализ роли нетривиальных динамических свойств ВШС ФХС в явлении антарктической озонной дыры
3.4.1. Анализ роли нелинейно-динамических свойств ВШС ФХС в эволюции озона в области среднесезонного максимума озонного слоя в условиях года с развитой озонной дырой
3.4.2. О возможных проявлениях нетривиальных динамических свойств ВШС ФХС в межгодичных изменениях весенней концентрации озона в области среднесезонного максимума озонного слоя в середине 80х годов
Заключение по главе 3
ГЛАВА 4. Анализ нелинейных свойств фотохимической системы приземного слоя атмосферы на основе применения искусственных нейронных сетей
Введение
4.1 Описание метода
4.2. Данные измерений и моделирования; общая оценка качества эмпирических моделей
4.3. Результаты: нелинейные соотношения в системе приземного озона
4.4. Результаты: нелинейные соотношения в системе приземного аэрозоля
4.4.1 Нелинейная зависимость PM от NO_x
4.4.2 Нелинейная зависимость PM от VOC
4.4.3 Интерпретация результатов эмпирических моделей для зависимости PM от VOC
Заключение по главе 4
ЧАСТЬ 2. МЕТОДЫ КОМБИНИРОВАННОГО ИСПОЛЬЗОВАНИЯ ТРЕХМЕРНОЙ МОДЕЛИ ТРОПОСФЕРНОЙ ФХС И ДАННЫХ ИЗМЕРЕНИЙ
ГЛАВА 5. Трехмерная химическо-транспортная модель CHIMERE: структура и валидация результатов расчетов
Введение
5.1 Краткое описание химическо-транспортной модели CHIMERE
5.2 Валидация модельных расчетов для восточной Европы
5.2.1 Сравнение результатов расчетов с результатами наземных измерений
5.2.2 Сравнение результатов расчетов с данными спутниковых измерений

Заключение по главе 5
ГЛАВА 6. Обратное моделирование пространственных распределений источников
оксидов азота
Введение
6.1 Описание метода
6.1.1 Формулировка проблемы и краткое описание метода
6.1.2. Максимально правдоподобные оценки эмиссий
6.1.3. Оценка уровня неопределенности
6.2 Данные измерений и расчетов
6.2.1 Спутниковые измерения
6.2.2 Данные наземных измерений
6.2.3 Данные расчетов
6.2.4 Сравнение измеренных и рассчитанных величин тропосферного содержания NO_2
6.3 Результаты
6.3.1 Апостериорные эмиссии и оценки неопределенностей
6.3.2 Сравнение измерений с расчетами, выполненными с априорными эмиссиями
Заключение по главе 6
ГЛАВА 7. Применение методов обратного моделирования для оценки многолетних изменений эмиссий оксидов азота
Введение
7.1. Данные измерений и расчетов
7.1.1 Спутниковые данные
7.1.2. Данные наземных измерений
7.1.3. Данные расчетов
7.2 Методы обратного моделирования
7.2.1 Линейный подход
7.2.2 Нелинейный подход (для исследования изменений эмиссий в мегаполисах)
7.3 Результаты
7.3.1 Линейные тренды эмиссий NO_x в десятилетний период с 1996 по 2005 гг.
7.3.2 Оценки нелинейных трендов в мегаполисах в период с 1996 по 2008 гг.
7.3.3 Валидация результатов обратного моделирования
Заключение по главе 7
ГЛАВА 8. Совместное использование данных расчетов и измерений взвешенного вещества для улучшения точности прогнозов качества воздуха
Введение
8.1 Описание метода и входных данных
8.1.1 Детерминистские прогнозы и метеорологические данные
8.1.2 Статистические модели
8.1.3 Данные измерений

8.1.4 Конфигурация численных экспериментов
8.1.5 Анализ пространственной репрезентативности прогнозов
8.2 Результаты
8.2.1 Сравнение расчетов PM_{10} с измерениями
8.2.2 Статистические характеристики прогнозов
8.2.3 Зависимость точности прогнозов от расстояния до пункта мониторинга
Заключение по главе 8
ГЛАВА 9. Оценка загрязнения атмосферы вследствие природных пожаров на основе ассимиляции данных спутниковых измерений химико-транспортной моделью
Введение
9.1 Метод оценки эмиссий газовых веществ и аэрозолей от природных пожаров
9.1.1 Базовые формулировки
9.1.2 Процедура оптимизация
9.1.3 Выбор значений параметров
9.1.4 Потенциальные неточности оценок эмиссий от пожаров
9.2 Описание модельных расчетов и измерений
9.2.1 Конфигурация модельных расчетов
9.2.2 Наземные измерения
9.3 Результаты
9.3.1 Эмиссии от пожаров летом 2010 г.
9.3.2 Сравнительный анализ рассчитанных и измеренных временных серий концентраций загрязняющих веществ в регионе московского мегаполиса
9.3.3 Дополнительные численные эксперименты
Заключение по главе 9
ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ, ПОЛУЧЕННЫЕ В ДИССЕРТАЦИИ
Приложение А. Базовая динамическая модель высокоширотной нижнестратосферной фотохимической системы (версия А): Математическая формулировка
А1. Основные уравнения
А2. Методы параметризация скоростей гетерогенных реакций
Приложение Б Типы состояний равновесия системы трех дифференциальных уравнений первого порядка
Приложение В. Механистическая модель ВШС ФХС
Приложение Г. О проявлениях первого механизма нестабильности в структуре динамических уравнений и динамике базовой модели
Приложение Д. Механистическая модель ФХС приземного слоя: формулировка и нелинейные свойства
Приложение Е. Математические принципы обратного моделирования эмиссий атмосферных газов
Список литературы

5

КОНОВАЛОВ Игорь Борисович

МОДЕЛИРОВАНИЕ ЭВОЛЮЦИИ И ПРОСТРАНСТВЕННЫХ РАСПРЕДЕЛЕНИЙ МАЛЫХ ПРИМЕСЕЙ АТМОСФЕРЫ НА ОСНОВЕ ПРИМЕНЕНИЯ НЕЛИНЕЙНЫХ И ВЕРОЯТНОСТНЫХ МЕТОДОВ

Автореферат

Подписано к печати 28.03.12. Формат 60 × 90 $^{1}/_{16}$.
Бумага офсетная № 1. Печать офсетная. Усл. печ. л. 3,0.
Тираж 120 экз. Заказ № 39 (2012).

Отпечатано в типографии Института прикладной физики РАН
603950 Н. Новгород, ул. Ульянова, 46