

## Формальдегидное загрязнение городской атмосферы и его зависимость от метеорологических факторов

Т.С. Селегей<sup>1</sup>, Н.Н. Филоненко<sup>1</sup>, В.А. Шлычков<sup>2</sup>,  
А.А. Леженин<sup>3</sup>, Т.Н. Ленковская<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Сибирский региональный научно-исследовательский гидрометеорологический институт  
630099, г. Новосибирск, ул. Советская, 30

<sup>2</sup>Институт водных и экологических проблем СО РАН, Новосибирский филиал  
630090, г. Новосибирск, Морской пр., 2

<sup>3</sup>Институт вычислительной математики и математической геофизики СО РАН  
630090, г. Новосибирск, пр. Академика Лаврентьева, 6

Поступила в редакцию 29.11.2012 г.

Изучено влияние метеорологических процессов на формирование уровня концентрации формальдегида в г. Томске. Показано, что высокие концентрации чаще всего устанавливаются при низком атмосферном давлении в сочетании с высокой температурой воздуха. Влияние относительной влажности невелико. Слабые осадки способствуют уменьшению концентрации. Определена величина фоновое загрязнения формальдегидом атмосферы города, обусловленная постоянно действующими антропогенными и природными источниками. Предложена группировка всевозможных типов синоптических процессов в пяти компактных классах, служащих признаками возможного формирования высоких концентраций формальдегида.

*Ключевые слова:* загрязнение атмосферы, формальдегид, высокие концентрации, метеорологические и синоптические процессы, статистический анализ, г. Томск; atmosphere pollution, formaldehyde concentration, meteorological and synoptic processes, statistical analysis, Tomsk.

В последние десятилетия произошло резкое увеличение содержания формальдегида в атмосфере городов Сибири [1], что вызвало интерес к исследованию причин такого явления.

Формальдегид — газообразное, бесцветное вещество с неприятным резким запахом. При вдыхании проникает практически во все органы и ткани человека, действуя губительно на центральную нервную систему и поражая слизистую оболочку глаз и дыхательные пути [2]. Высокие концентрации формальдегида могут привести к развитию онкологических заболеваний [3]. Формальдегид относится к классу фотооксидантов, которые образуются в воздухе под влиянием солнечной радиации при фотоокислении разнообразных органических соединений, таких как метан, пропилен, бензин и другие углеводороды. Схемы образования формальдегида за счет фотохимических реакций, например из метана, описаны в [4, 5].

По данным [6], формальдегид является веществом 2-го класса опасности. Предельно допустимая максимально разовая концентрация (ПДК<sub>мр</sub>) составляет 0,035 мг/м<sup>3</sup>; предельно допустимая среднесуточная концентрация (ПДК<sub>сс</sub>) равна 0,003 мг/м<sup>3</sup>.

Формальдегид поступает в городскую атмосферу как за счет прямой эмиссии от промышленных предприятий и автотранспорта, так и вследствие химической трансформации углеводородов [7]. Прямая связь между концентрациями формальдегида и метеорологическими процессами неотчетлива [8]. Как правило, непосредственные связи завуалированы сочетанием различных природных и техногенных факторов, что и порождает неопределенность в их идентификации. Поэтому представляет интерес изучить зависимость появления высоких концентраций формальдегида от метеорологических условий.

Цель нашей работы — на основе анализа данных наблюдений исследовать наличие причинно-следственной связи формальдегидного загрязнения воздуха в г. Томске с синоптическими и метеорологическими факторами.

Наблюдения за концентрациями формальдегида в г. Томске ведутся в 07, 13 и 19 ч местного времени на 6 пунктах наблюдения за загрязнением воздуха (ПНЗ), расположенных в разных районах города. В городе имеется метеостанция, осуществляющая наблюдения круглосуточно с периодичностью 3 ч.

Для анализа концентраций использован ряд измерений концентрации формальдегида и наблюдений за метеорологическими параметрами за период 2003–2007 гг. по данным [9, 10]. В целом ряды содержали 1240 сроков наблюдений. В качестве исследуемой величины принята средняя по городу концен-

\* Тамара Семеновна Селегей (selegey@sibnigmi.ru); Надежда Никифоровна Филоненко (selegey@sibnigmi.ru); Вячеслав Александрович Шлычков (slav@ad-sbras.nsc.ru); Анатолий Александрович Леженин (lezhenin@ommfao.sccc.ru); Татьяна Николаевна Ленковская (selegey@sibnigmi.ru).

трация за сутки  $q_{cp}$ , рассчитанная с учетом всех измерений на всех ПНЗ за 3 срока, т.е. средневзвешенный городской уровень загрязнения. На отдельных постах наблюдений были найдены предельные значения  $q_{cp}$  для трех значений загрязнения: низкого, повышенного и высокого. Эта процедура реализована путем анализа параметра  $P$ , показывающего отношение числа случаев с концентрациями больше максимально разовой ПДК (ПДК<sub>мр</sub>) к общему числу измеренных концентраций формальдегида за день [11]. При низком уровне загрязнения формальдегидом ( $q_{cp} \leq 16$  мкг/м<sup>3</sup>) возможно превышение концентраций формальдегида над ПДК<sub>мр</sub> в одном случае на одном из ПНЗ наблюдений в различное время суток; при  $q_{cp} \geq 23$  мкг/м<sup>3</sup> (высокое загрязнение) концентрации формальдегида, превышающие ПДК<sub>мр</sub>, могут наблюдаться в четырех и более случаях за день. Все остальные ситуации были отнесены к повышенному загрязнению с граничными значениями  $q_{cp} = 17 \div 22$  мкг/м<sup>3</sup>.

В годовом ходе наибольшие среднемесячные концентрации наблюдались летом в июне–августе, оставаясь при этом выше среднесуточной ПДК (ПДК<sub>сс</sub>) в течение всего года за рассматриваемый период. Средние за год концентрации формальдегида в атмосфере города в целом за период составили от 3,7 до 5,5 ПДК<sub>сс</sub>, а максимально разовые поднимались до уровня 9,9 ПДК<sub>мр</sub>.

Для изучения влияния синоптической ситуации на формирование высоких уровней загрязнения формальдегидом были проанализированы приземные синоптические карты за каждый день рассматриваемой выборки. Синоптические реализации были разбиты на 25 категорий, исчерпывающих наблюдаемый здесь спектр атмосферных процессов, а именно: циклоны, антициклоны с их центрами и периферийными сегментами по 8 направлениям, малоградиентные поля повышенного и пониженного давления, ложбины, гребни, седловины. Ситуации с высокими концентрациями выделялись и анализировались особо. При этом число случаев с высоким уровнем загрязнения в холодный период составило около 1% от исходной совокупности, а в теплый период – 11%,

т.е. на порядок больше. Точнее: из 149 случаев с высокими концентрациями формальдегида 136 случаев (91%) пришлось на теплый период. Это важный вывод, требующий более детального рассмотрения летних метеорологических ситуаций.

Дополнительный анализ статистики внутри отобранного ряда позволил проранжировать синоптические ситуации, при которых чаще всего возникали условия для формирования высоких концентраций в теплый период. Это дало возможность генерализовать все рассмотренные синоптические ситуации в пять основных кластеров, содержащих обобщенные характеристики метеорологических процессов:

I. Прохождение теплых фронтов и установление теплых секторов циклонов, которые чаще всего наблюдаются в передней части ложбины; северо-восточной, восточной, юго-восточной и южной частях циклонов; западной периферии антициклона.

II. Установление малоподвижных антициклональных полей – центр антициклона, седловина, гребень, малоградиентное поле повышенного давления.

III. Размытые ложбины, малоградиентные поля пониженного давления, центры циклонов.

IV. Периферии антициклонов (кроме западной).

V. Тыльные части активных ложбин с прохождением холодных фронтов, юго-западные, западные, северо-западные и северные части циклонов.

Приведенная схема составила основу классификации синоптических процессов, влияющих на возникновение высоких концентраций формальдегида (табл. 1).

Из таблицы видно, что наибольшее число случаев с высоким уровнем загрязнения формальдегидом ( $q_{cp} \geq 23$  мкг/м<sup>3</sup>) наблюдалось при прохождении теплых фронтов и в теплых секторах циклонов. Высокие концентрации формальдегида при таких синоптических условиях отмечены в работе [12] для г. Воронежа. Чем больше время прохождения теплого сектора, тем выше вероятность появления высоких концентраций формальдегида. Выведенная закономерность была получена также в работе [13], где подчеркивалось наличие связи теплых фронтов с высокой концентрацией загрязняющих примесей.

Таблица 1

Максимальные значения концентраций формальдегида в зависимости от класса синоптической ситуации в теплый период года, мкг/м<sup>3</sup>

Класс	Синоптическая ситуация	Количество случаев		Значение концентраций	
		общее	с $q_{cp} \geq 23$ мкг/м <sup>3</sup> / повторяемость, %	средняя максимальная	абсолютный максимум
I	Прохождение теплых фронтов	318	51/16	86	234
II	Малоградиентное поле повышенного давления	210	36/17	72	348
III	Малоградиентное поле пониженного давления	121	23/19	78	207
IV	Периферии антициклонов	357	18/5	34	128
V	Тыльные части ложбин и циклонов	234	8/3	68	204
	<i>Итого:</i>	1240	136/11		

Повышение концентрации происходит не на всем протяжении теплого фронта, а только на участках, проходящих на перифериях циклонов или в областях антициклонов. Фронт здесь перемещается медленно и является менее активным, чем внутри циклонов. Теплые воздушные массы натекают на пологий клин холодного воздуха, причем границей между ними является температурная инверсия, которая вместе с облачностью опускается на город, препятствуя распространению загрязняющих веществ вверх. Опасными оказываются слабовыраженные теплые фронты, а именно: размывающиеся основные, малоактивные, стационарные. При анализе карт погоды такие фронты обычно игнорируют как малосущественные и не влияющие на характер погоды. Однако для прогноза уровня загрязнения они должны регистрироваться и учитываться как важный фактор атмосферного загрязнения.

Второе и третье места по частоте возникновения формальдегидного загрязнения занимают малоградиентные поля повышенного или пониженного давления (II и III классы в табл. 1). В этих синоптических ситуациях наблюдаются слабый ветер или штиль. Наличие инверсий в ночные и утренние часы приводит к накоплению загрязняющих веществ в приземном слое. Кроме того, тихая малооблачная погода обуславливает максимальный поток солнечной радиации, что приводит к активизации процессов фотоокисления углеводородов, прежде всего метана с образованием формальдегида. Поэтому вполне закономерно, что в малоградиентных полях повышенного и пониженного давления концентрации формальдегида наблюдаются на достаточно высоком уровне.

Особо следует прокомментировать V класс синоптических ситуаций (тыльные части быстро смещающихся ложбин и циклонов с прохождением холодных фронтов), при которых также могут фиксироваться высокие концентрации формальдегида.

Обнаруженный феномен — индивидуальная особенность г. Томска, он связан с расположенным в северной части города нефтехимическим комбинатом. Выбросы формальдегида на комбинате осуществляются эпизодически во время разлива формалина в емкости на эстакадах. При прохождении холодных фронтов в тылу циклонов и ложбин наблюдаются, как правило, северо-западные или северные ветры. Если такие ветры накладываются во времени на эпизоды разлива формалина, то выделяющийся формальдегид переносится на город, вызывая резкое повышение концентрации на его территории. На практике такие ситуации практически непредсказуемы, так как требуют четкого и оперативного взаимодействия между прогностическими службами и промышленными предприятиями, которое в настоящее время отсутствует. При отсутствии процесса разлива формалина на комбинате при ветрах северных румбов происходит очищение городского воздуха от вредных примесей.

Для учета фотоокисления формальдегида исходная выборка дополнительно была разбита на первое (январь—июнь) и второе (июль—декабрь) полугодия, которые по датам совпадают с набором высоты Солнца и ее спадом. Из метеорологических величин, влияющих на формирование концентраций формальдегида, рассматривались также температура и влажность воздуха в приземном слое, скорость ветра, атмосферное давление, продолжительность солнечного сияния и осадки.

Расчетные коэффициенты корреляции  $r$  между концентрациями формальдегида и метеорологическими параметрами представлены в табл. 2.

Значимость каждого предиктора в табл. 2 оценивалась по отношению  $r/\delta_r$ , где  $r$  — парный линейный коэффициент корреляции,  $\delta_r$  — среднеквадратическое отклонение. Среднеквадратическая ошибка для парного линейного коэффициента корреляции

Таблица 2

Коэффициенты корреляции  $r$  между средней концентрацией формальдегида и метеорологическими величинами

Метеорологическая величина	Коэффициент корреляции					Значимость предиктора
	Весь период	1-е полугодие	2-е полугодие	Теплый период	Холодный период	
Среднесуточная температура воздуха, °С	0,466	0,446	0,472	0,314	0,141	20,99
Максимальная температура воздуха, °С	0,470	0,450	0,480	0,311	0,121	21,27
Минимальная температура воздуха, °С	0,450	0,424	0,453	0,288	0,140	19,91
Суточная амплитуда температуры воздуха, °С	0,193	0,205	0,279	0,103	—	7,07
Среднесуточная относительная влажность, %	-0,043	-0,152	-0,110	-0,110	0,064	1,52
Минимальная относительная влажность, %	-0,154	-0,210	-0,240	-0,075	-0,029	5,56
Среднесуточное атмосферное давление, гПа	-0,322	-0,261	-0,356	-0,189	-0,069	12,63
Среднесуточная скорость ветра, м/с	-0,148	-0,033	-0,187	-0,178	0,033	5,32
Продолжительность солнечного сияния, ч	0,285	0,280	0,347	0,145	-0,021	10,92

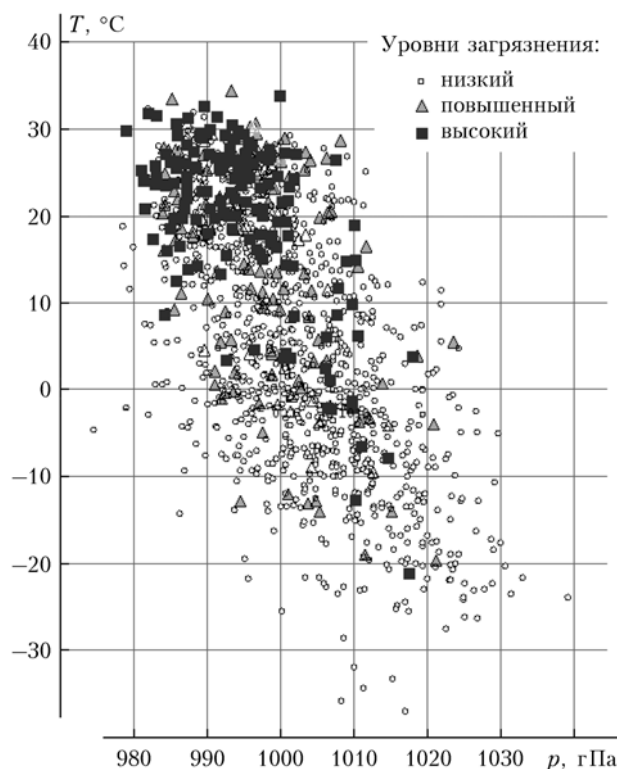
рассчитывалась по формуле  $\delta_r = (1 - r^2)/\sqrt{n}$ , где  $n$  – длина ряда наблюдений. При отношении  $r/\delta_r > 3$  коэффициент корреляции принимался значимым. Анализ табл. 2 показал, что разбивка ряда наблюдений на теплое и холодное полугодия не дала увеличения связи ни в одном из этих периодов по сравнению со всей имеющейся выборкой, в то время как деление ряда на 1-ю и 2-ю части года показало некоторое увеличение коэффициентов корреляции во 2-м полугодии по сравнению с длиной ряда в целом.

Это свидетельствует в пользу гипотезы, что солнечная радиация влияет на связь фотооксидантов с метеорологическими полями. Из термических характеристик наиболее высокие коэффициенты корреляции дала максимальная температура воздуха за сутки ( $r = 0,47$ , см. табл. 2). Дополнительные исследования, проведенные для каждого поста наблюдений, показали, что при одной и той же максимальной температуре воздуха концентрации формальдегида на двух ПНЗ (№ 2 и 5) отличаются друг от друга почти в 2 раза. На ПНЗ-5 концентрации формальдегида занижены за счет его близкого расположения к градирням Томской ГРЭС-2, где испарившаяся влага активно растворяет атмосферный формальдегид. На ПНЗ-2 высокие концентрации формальдегида образуются за счет расположения этого поста в депрессии рельефа, куда стекает загрязненный воздух с прилегающих территорий [14]. Описанная нерепрезентативность этих постов заметно влияет на полученные результаты в сторону их ухудшения. На остальных ПНЗ формирование концентраций формальдегида в зависимости от максимальной температуры воздуха происходит практически однозначно.

Корреляционные связи концентраций формальдегида со среднесуточным давлением оказались отрицательными:  $r = -0,32$  (см. табл. 2). Увеличение концентраций формальдегида при низком давлении связано с продвижением теплых циклонических масс, которые, как говорилось выше, сопровождаются возрастанием концентраций формальдегида.

На рисунке показана зависимость концентраций формальдегида от температуры воздуха и давления, построенная по всему ряду наблюдений. Видно, что максимальные уровни загрязнения наблюдаются при высокой температуре воздуха в сочетании с низким давлением.

Зависимость концентрации от продолжительности солнечного сияния также оказалась заметной ( $r = 0,28$ ; см. табл. 2). Тем не менее выяснилось, что формальдегидное загрязнение наблюдается и в пасмурные дни, когда Солнце светило не более 1 ч в день. Это обстоятельство приводит к выводу, что независимо от наличия солнечной радиации в городе существует некоторый постоянный «фоновый» уровень загрязнения формальдегидом, который формируется за счет постоянно действующих антропогенных и естественно-природных источников. Природные источники могут быть связаны с растительностью, с болотной эмиссией и переносом метана, лесными пожарами и др.



Уровни загрязнения формальдегидом в зависимости от максимальной температуры воздуха и среднесуточного атмосферного давления

Влияние относительной влажности и скорости ветра на формирование концентраций формальдегида в условиях г. Томска невелико ( $r \approx -0,15$ ). При анализе осадков обнаружено, что наибольшее влияние на концентрацию оказывают слабые обложные дожди интенсивностью до 3 мм в сутки, которые уменьшают концентрации на 20–25%. Увеличение количества осадков до 10 мм в сутки обуславливает уменьшение концентраций только на 8–10%, а осадки интенсивностью более 10 мм/сут практически не очищают городской воздух от формальдегида. Это, как правило, ливневые внутримассовые дожди, выпадающие над городом в теплую солнечную погоду.

Резюмируя, отметим, что процесс формирования полей концентрации формальдегида в городском воздухе является сложным и многофакторным, его закономерности индивидуальны для конкретного города и зависят от географических особенностей, специфики промышленного производства, политики властей по охране окружающей среды и т.п.

Раскрытые выше зависимости и связи для г. Томска легли в основу модели прогноза средней концентрации формальдегида методом множественной линейной регрессии. Модель статистического прогноза с суточной заблаговременностью анонсирована в [15]. Набор метеорологических параметров, вошедших в прогностическую схему, обусловлен наиболее значимыми коэффициентами корреляции, которые отражают физико-химическую реальность эмиссии, трансформации и разрушения формальдегида, сложившуюся в г. Томске.

Помимо авторских испытаний проводилась опытная эксплуатация модели в прогностическом режиме в 2011 и 2012 гг. В 2011 г. рассмотрено 148 дней (с мая по ноябрь). Из них по критерию близости средних концентраций признаны успешными 119 прогнозов, неудачными — 29 случаев. В соответствии с этим оправдываемость составила около 80,4%. В 2012 г. этот показатель равнялся 77%. Сравнительно высокий показатель успешности прогнозов убедительно свидетельствует об обоснованности предложенной методики учета метеорологических характеристик в процессе формирования качества воздуха (применительно к г. Томску).

1. *Качество воздуха в крупнейших городах России за 10 лет (1998–2007 гг.): Аналитический обзор.* СПб.: ЦНИТ «Астерион», 2009. 133 с.
2. *Вредные вещества в промышленности. Органические вещества: Справочник* / Под ред. Н.А. Лазарева и Э.Н. Левиной. Л.: Химия, 1976. 623 с.
3. *Фельдман Ю.Г.* О содержании фотооксидантов в городском воздухе / Метеорологические аспекты загрязнения атмосферы. Л.: Гидрометеиздат, 1971. С. 337–345.
4. *Скубневская Г.И., Дульцева Г.Г.* Загрязнение атмосферы формальдегидом: Аналитический обзор. Серия «Экология». Вып. 31. Новосибирск: ГПНТБ СО РАН, 1994. 69 с.
5. *Бретшнайдер Б., Курфюрст И.* Охрана воздушного бассейна от загрязнений. Л.: Химия, 1989. 288 с.
6. *Перечень и коды веществ, загрязняющих атмосферный воздух.* СПб.: Интеграл, 2008. 438 с.

7. *Мониторинг качества атмосферного воздуха для оценки воздействия на здоровье населения.* Региональные публикации ВОЗ. Европейская секция. Копенгаген, 2002. 293 с.
8. *Воробьева И.А.* Исследование причин формирования повышенных концентраций формальдегида в атмосфере города // Тр. ГГО. 2008. Вып. 558. С. 206–216.
9. *Ежегодники состояния загрязнения атмосферного воздуха в городах и промышленных центрах, расположенных на территории деятельности Западно-Сибирского межрегионального территориального управления по гидрометеорологии и мониторингу окружающей среды.* Новосибирск: ЗапСибУГМС, 2003–2007.
10. *Метеорологические ежегодники* // 2003–2007. Вып. 20. Новосибирск: ЗапСибУГМС.
11. *Сонькин Л.Р.* Анализ метеорологических условий опасного загрязнения воздуха в городе // Тр. ГГО. 1970. Вып. 234. С. 60–68.
12. *Назаренко А.В.* Классификация синоптических процессов в целях геоэкологического мониторинга воздушного бассейна // Вестн. ВГУ. Сер. География и геоэкология. 2006. № 1. С. 39–46.
13. *Дмитриева Г.В.* К синоптическому подходу прогнозирования повышенных уровней загрязнения воздуха городов // Метеорологические аспекты загрязнения атмосферы. Т. 1. М.: Гидрометеиздат, 1981. С. 164–171.
14. *Селегей Т.С.* Формирование уровня загрязнения атмосферного воздуха в городах Сибири. Новосибирск: Наука, 2005. 347 с.
15. *Селегей Т.С., Шлычков В.А., Леженин А.А., Мальбахов В.М.* Модель локального прогноза загрязнения атмосферы формальдегидом в г. Томске на основе статистических и гидродинамических методов // Метеорол. и гидрол. 2012. № 4. С. 35–44.

*T.S. Selegei, N.N. Filonenko, V.A. Shlychkov, A.A. Lezhenin, T.N. Lenkovskaya. Formaldehyde pollution of the urban atmosphere as a function of certain meteorological factors.*

The impact of the major meteorological processes on the concentration of formaldehyde in the city of Tomsk is studied. It is shown that the highest concentrations are mostly established at low atmospheric pressures in a combination with high air temperatures. The relative humidity effect is insignificant. The weak precipitation reduces the pollution concentration. The amount of background formaldehyde pollution caused by the permanent man-made and natural sources is determined. The grouping of various types of synoptic processes in five compact classes being signs of possible formation of high concentration of formaldehyde is proposed.