



národní  
úložiště  
šedé  
literatury

### **Inverzní modelování emisí**

Resler, Jaroslav  
2008

Dostupný z <http://www.nusl.cz/ntk/nusl-38573>

Dílo je chráněno podle autorského zákona č. 121/2000 Sb.

Tento dokument byl stažen z Národního úložiště šedé literatury (NUŠL).

Datum stažení: 02.10.2024

Další dokumenty můžete najít prostřednictvím vyhledávacího rozhraní [nusl.cz](http://www.nusl.cz) .

**Institute of Computer Science  
Academy of Sciences of the Czech Republic**

## **Inverzní modelování emisí**

Jaroslav Resler

Technical report No. 1019

January 3, 2008

# Institute of Computer Science Academy of Sciences of the Czech Republic

## Inverzní modelování emisí<sup>1</sup>

Jaroslav Resler

Technical report No. 1019

January 3, 2008

### Abstrakt:

V této zprávě jsou zkoumány zdroje nepřesností regionálních chemických transportních modelů, přičemž hlavní pozornost je soustředěna na nepřesnosti emisních vstupů. Pro jejich zpřesnění je možno vedle tradičních postupů použít též metody inverzního modelování korigující modelové vstupy pomocí přímých či nepřímých pozorování atmosféry. Jsou porovnávány vlastnosti jednotlivých metod modelujících vztah emise-koncentrace a jako nejvýhodnější pro další experimenty je vybrána metoda odvozená z metody 4DVar. Dále jsou zkoumány vlastnosti a dostupnost jednotlivých typů pozorování atmosféry a vhodnost jejich použití v uvedených metodách inverzního modelování. Zvláštní pozornost je věnována ověření možného přínosu pozorování ze satelitních nástrojů, které tvoří nový a zatím neověřený zdroj informace pro regionální modelování kvality ovzduší. Na základě provedených pilotních experimentů lze předpokládat přínos těchto pozorování pro modelování atmosféry v regionálním měřítku.

### Keywords:

inverse modelling, atmospheric modelling, satellite instruments

---

<sup>1</sup>Výzkum reportovaný v této zprávě byl podporován projektem GA AV ČR 1ET 400300414 "Matematické modelování čistoty ovzduší s aplikacemi v krizovém managementu" programu "Informační společnost" a institucionálním výzkumným záměrem AV0Z10300504

# Obsah

1. Úvod . . . . .	2
2. Chemické transportní modely a jejich vstupy . . . . .	2
3. Modelování emisních vstupů . . . . .	3
4. Zdroje nejistot v CTM . . . . .	6
5. Metody pro hledání vztahů emise - koncentrace - pozorování . . . . .	7
a) Metody použití „hrubé síly“ . . . . .	7
b) Přímé metody . . . . .	8
c) Metody reaktivních stopovačů . . . . .	8
d) Metody filtrace . . . . .	9
e) Analytická metoda . . . . .	9
f) Variační metoda 4D-Var . . . . .	10
6. Kovarianční struktury chyb modelu a pozorování . . . . .	12
7. Typy pozorování a jejich vlastnosti . . . . .	12
a) Pozorování přímá . . . . .	13
b) Pozorování nepřímá . . . . .	13
8. Závěry . . . . .	18
9. Grantová podpora . . . . .	19
10. Citované zdroje . . . . .	20

# 1. Úvod

S rozvojem dopravy, průmyslu i dalších oborů lidské činnosti dochází ke stále větším zásahům člověka do atmosféry Země. Zároveň s tím se také zvyšuje zájem o poznání dějů v atmosféře, speciálně o studium znečištění atmosféry.

Jedním z hlavních nástrojů pro poznávání chování atmosféry jsou modely ovzduší, pro studium vývoje jejího chemického složení pak zejména tzv. chemické transportní modely (CTM), které popisují vývoj koncentrací jednotlivých složek atmosféry jako výsledek chemických a fyzikálních dějů. Tyto modely ovšem potřebují ke své činnosti jako vstupy kromě jiného emisní data, jejichž modelování bývá zatíženo velkými nepřesnostmi. Největší nejistotou jsou postiženy vedle emisí biogenních (tedy emisí produkovaných přírodními zdroji) emise z mobilních zdrojů (tedy emise produkované převážně dopravou).

Hlavním nástrojem k zpřesňování modelování emisí bylo doposud převážně zlepšování sběru dat o emisních zdrojích a vylepšování emisních modelů. Ovšem s pokrokem technik modelování (zvláště technik zkoumajících dopřednou i zpětnou citlivost koncentrací na emisích) i s rozvojem monitorování atmosféry (jak rozvoj pozemní sítě monitorovacích stanic, tak hlavně s dostupností nových dat získávaných ze satelitních nástrojů) se ukazují stále významnější postupy modelující emise pomocí nástrojů inverzního modelování. V této výzkumné zprávě shrnuji stávající stav problematiky a možné přístupy ke zkoumání vztahu emise-koncentrace. Hlavním cílovým zaměřením výzkumného úsilí je inverzní modelování emisí v prostředí regionálních CTM se synergickým využitím pozorování z pozemních stanic a satelitních nástrojů SCIAMACHY, OMI a GOME-2, přičemž pozornost je soustředěna převážně na modelování látek ozonové chemie (hlavně NO, NO<sub>2</sub>, VOC a O<sub>3</sub>).

## 2. Chemické transportní modely a jejich vstupy

Modely atmosféry můžeme obecně třídit podle různých kritérií, např. dle typu metody (statistické, deterministické, kombinované), podle modelovaných veličin (meteorologické, chemické transportní modely, kombinované, speciální, apod.), dle rozlišení (globální, regionální, mikroměřítkové), dle cílů (předpověď, analýza, reanalýza, inverzní úlohy, klimatologické modelování, apod.), dle reprezentace prostoru: (Eulerovské, Lagrangeovské, Gaussovské, schránkové („box model“)).

Pro dělení modelů dle prostorového měřítka bývají uváděny následující charakteristiky:

- a) globální: oblast modelování je celá Země, rozlišení od 1/2° (tedy cca 50km), typické rozlišení globálních CTM bývá 2° (cca 200km)
- b) regionální: oblastí modelování jsou regiony, státy až kontinenty, rozlišení modelu 1-50km
- c) lokální až mikroměřítkové: oblastí modelování jsou části měst, ulice, horská údolí, rozlišení je v jednotkách až stovkách metrů.

Jednotlivé skupiny se neliší pouze velikostí oblasti a rozlišením, ale též použitými postupy. Např. konvektivní srážky jsou v meteorologických modelech s rozlišením větším než 10 km popisovány parametrizací (viz dále), zatímco modely s rozlišením jemnějším než 3 km dokáží zachytit tyto jevy již základními modelovými rovnicemi. Dalším příkladem může být popis interakce mas vzduchu se zemským povrchem. Zatímco v globálních a regionálních CTM bývají tyto jevy popsány parametrizací využívající drsnost povrchu, v mikroměřítkových modelech bývá tato interakce řešena popisem obtékání jednotlivých povrchových útvarů na základě fyzikálních zákonů proudění.

Výsledky modelů na větší oblasti bývají často použity jako okrajové příp. i počáteční podmínky pro modely na menší oblasti s vyšším rozlišením, případně modelování probíhá na několika do sebe vnořených oblastech s postupně se zjemňujícím prostorovým a časovým rozlišením a výsledky jsou během výpočtu průběžně předávány mezi doménami v obou směrech („two-way nesting“).

Při dělení modelů dle horizontu předpovědi bývají uváděny následující charakteristiky:

- a) krátkodobý horizont: hodiny až 3 dny
- b) střednědobý horizont: 4 až 10 dní
- c) dlouhodobý horizont: více než 10 dní
- d) klimatologické modely: zabývají se dlouhodobými trendy.

V této studii věnuji pozornost převážně Eulerovským CTM v regionálním měřítku s krátkodobým horizontem. Hlavní charakteristikou Eulerovských modelů je popis studované oblasti jako podprostoru třídimenzionálního Eulerovského prostoru v pevně trojrozměrné soustavě souřadnic. Pro numerický výpočet bývá použita diskretizace pomocí třírozměrné prostorové mřížky (gridu) a diskrétních časových kroků. Vedle Eulerovských CTM se při modelování kvality ovzduší ještě používají Lagrangeovské disperzní modely pro zjednodušené modelování vlivu konkrétního zdroje emisí na okolí (např. model HYSPLIT, „HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory“), disperzní modely pro základní odhad dlouhodobé zátěže z konkrétního zdroje (u nás model ATEM, „Ateliér Ekologických Modelů“) a též „box modely“, které bývají používány při studiích zkoumajících chemické reakce.

Eulerovské CTM ovzduší v zásadě vycházejí z numerického řešení rovnic popisujících děje v atmosféře, přičemž klíčovými popisovanými procesy jsou: advekce, difúze, chemické procesy a deposice. Vstupy pak tvoří zejména počáteční a okrajové podmínky, meteorologické veličiny a emise. Základní použité rovnice vyjadřují fyzikální zákony (zákon zachování hmoty, pohybové zákony, atd.) a probíhající chemické reakce s příslušnými reakčními rychlostmi (chemické mechanismy CB-IV, CB-V, SAPRC99, MELCHIOR2, RADM2 a další).

Schématicky můžeme základní vývojovou rovnici modelu vyjadřující zákon zachování hmoty zapsat:

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = -\nabla(u c_i) + \nabla(K \nabla c_i) + f_i + e_i - d_i \quad i = 1, \dots, n_{spec}, \quad t \in \langle t_0, t_N \rangle \quad (1)$$

kde  $c_i$  je koncentrace  $i$ -té chemické látky,  $e_i$  a  $d_i$  je rychlost emise a deposice této látky,  $f_i$  je rychlost chemických transformací pro tuto látku,  $u$  označuje vektor pole větru a  $K$  tenzor turbulentní difusivity. Tato základní rovnice je doplněna rovnicemi popisujícími počáteční a okrajové podmínky a další doplňkové jevy. Popisy těchto jevů jsou často z důvodů nedostatečné znalosti zákonitostí či dosažení přijatelné výpočetní náročnosti modelu výrazně zjednodušené a bývají nazývány parametrizacemi modelu. Popis rovnic CTM lze nalézt na mnoha místech v literatuře, např. v [CAMx Users Guide], popis mechanismu CB-IV např. v [Gery et al. 1989], mechanismus SAPRC99 je popsán v [Carter 2000].

Podklady pro popis okrajových podmínek bývají vzaty z výsledků regionálního modelu na větší doméně, globálního modelu, či jsou odvozeny z klimatologických podmínek. Počáteční podmínky bývají převzaty z předchozí simulace či analýzy nebo jsou opět použity klimatologické podmínky. Pro interakce probíhající na zemském povrchu se používají speciální modely („parametrizace“), které tyto děje modelují na základě vlastností pokrytí povrchu a meteorologických a klimatických veličin.

Vstupy modelu jsou např. meteorologické veličiny (teplota, proudění, vertikální difúze, radiační záření, oblačnost, vlhkost, srážky), emisní vstupy, ozónové sloupce a fyziografická data, jako orografie, typ povrchu („landuse“), odrazivost povrchu, drsnost terénu, popřípadě charakteristiky vegetace.

Jako meteorologické vstupy jsou v případě předpovědi používány aktuální předpovědi numerického modelu počasí, v případě simulací historických období nebo episod pak analýzy, kombinující meteorologický numerický model s hodnotami získanými pozorováním.

Jako příklady regionálních Eulerovských CTM můžeme uvést např. CMAQ, CAMx, UAM-V, CHIMERE, STEM, CTM2.

### 3. Modelování emisních vstupů

Emise, které jsou jedním z rozhodujících vstupů CTM, jsou většinou získávány z běhu emisního modelu. Emisní model zpracovává podklady o emisích z různých typů emisních zdrojů a provádí výpočet emisí v časové a prostorové diskretizaci modelu a rozpočet emitovaných látek do chemických komponent vyžadovaných modelem.

Emisní zdroje se dělí na dvě základní kategorie: antropogenní a biogenní. Biogenní emise zahrnují emise produkované biosférou, tedy lesy, loukami i hospodářsky pěstovanými monokulturami. Chemicky bývají hlavní složkou těchto emisí těkavé organické látky (označované jako „VOC“, „Volatile Organic Component“), například terpeny. Produkce těchto emisí je silně závislá na pokrytí povrchu, vegetačním období a meteorologických podmínkách. Bývá modelována speciálním modelem biogenních emisí, který na základě těchto vstupních podkladů a případně dalších upřesňujících měření (např. satelitních pozorování, na jejichž základě lze zjistit vegetační fáze jednotlivých kultur) počítá produkci chemických látek uvolňovaných do ovzduší. Je na první pohled zřejmé, že celý proces je zatížen velkou nejistotou. Vylepšení modelování biogenních emisí i odhad nejistoty modelovaných veličin je proto aktuálním vědeckým tématem.

Antropogenní emise zahrnují emise produkované lidskou činností. Kromě toho se k nim z technických důvodů přičítají i emise některých přírodních zdrojů (např. erupce sopek, pouštní bouře), avšak pro území České republiky nejsou tyto přírodní zdroje příliš důležité. Údaje o antropogenních emisích jsou převážně získávány z emisních inventářů, tradičně budovaných „zdola-nahoru“, tedy hlášením či odhadem produkce emisí jednotlivými zdroji a jejich následnou časovou a prostorovou agregací. V podmínkách ČR jsou údaje o těchto zdrojích shromažďovány v inventářích REZZO („Registr Emisí a Zdrojů Znečišťování Ovzduší“). Emisní zdroje v tomto registru jsou členěny dle charakteru do 4 základních kategorií označovaných REZZO1 až REZZO4:

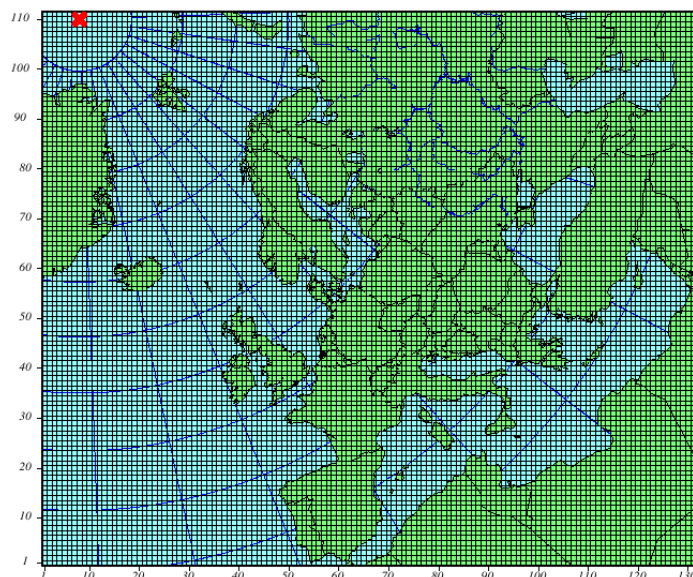
- 1) Velké bodové zdroje - popisují významné samostatně sledované zdroje emisí (větší průmyslové a zemědělské podniky, teplárny, spalovny, apod.). Každý zdroj je popsán nejen charakteristikou zdroje a ročním množstvím produkovaných chemických látek, ale též dalšími pomocnými údaji (výška a plocha výduchu, teplota a rychlost vypouštěného plynu, charakteristiky časového průběhu).
- 2) Střední zdroje – popisují menší zdroje emisí ze spalování i technologických procesů. Každý zdroj je samostatně popsán zjednodušeným způsobem, chybí údaje o výšce, a průměru výduchu, rychlosti a teplotě emisí apod.
- 3) Plošné zdroje - zachycují stacionární antropogenní zdroje nepodchycené v předchozí kategorii, např. lokální topení obyvatelstva. Zdroje jsou sledovány pouze v souhrnu dle katastrů obcí.
- 4) Mobilní zdroje - popisují převážně emise z dopravy. Hlavní emisní zdroje bývají popsány jako liniové zdroje s údaji o hustotě a složení dopravy, ostatní mobilní zdroje pak jsou odhadovány jako plošné zdroje např. na základě hustoty obyvatelstva.

Tyto hlavní kategorie jdou dále děleny podrobněji do tzv. emisních sektorů. Toto členění umožňuje emisnímu modelu lépe provádět časové i prostorové přiřazení emisí.

Látky sledované v emisních inventářích bývají tříděny do pěti základních kategorií, které jsou dále členěny na jednotlivé látky či skupiny látek: okyselující a eutrofizující látky („Acidifying and eutrophying pollutants“: SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, NH<sub>3</sub>), fotooxidační látky („Photooxidant pollutants“: VOC), těžké kovy („Heavy metals“: Pb,Cd,Hg,atd.), stabilní organické látky („POP“, „Persistent organic pollutants“: B[a]P,B[b]F,B[k]F,PCB,HCB,atd.), prachové částice („PM“, „Particulate matter“: PM10,PM2.5,PM1).

Metodologie tvorby emisních inventářů je v EU harmonizována v rámci projektu CORINAIR („CORe INventory of AIR emissions“), jednotlivé emisní sektory jsou definovány nomenklaturou SNAP („Selected Nomenclature for Air Pollution“). V USA je obdobou SNAP nomenklatura SCC („Source Classification Codes“).

Proces sběru dat v Evropě koordinuje a zastřešuje European Environment Agency. Ta shromažďuje hlášení celkových ročních emisí za jednotlivé sektory ze všech zúčastněných zemí a provádí jejich plošný rozpočet do gridu s rozlišením 50kmx50km (viz obrázek 1). Výsledné inventáře jsou dostupné v databázi EMEP, která je nejčastěji používána jako hlavní vstup antropogenních emisí pro evropské emisní modely. Je zřejmé, že tyto inventáře poskytují jen velmi hrubý podklad pro výpočet emisí, zvláště pro jemnější rozlišení. Dále tyto inventáře zcela opomíjejí informace o vertikálním umístění a časovém průběhu emisí, navíc vycházejí s více než dvouletým zpožděním. Mnohem lépe by tedy bylo v emisním modelu používat jako vstup přímo původní neagregované inventáře, avšak ty jsou velice těžce dosažitelné, neboť většina evropských států je považuje za strategické.

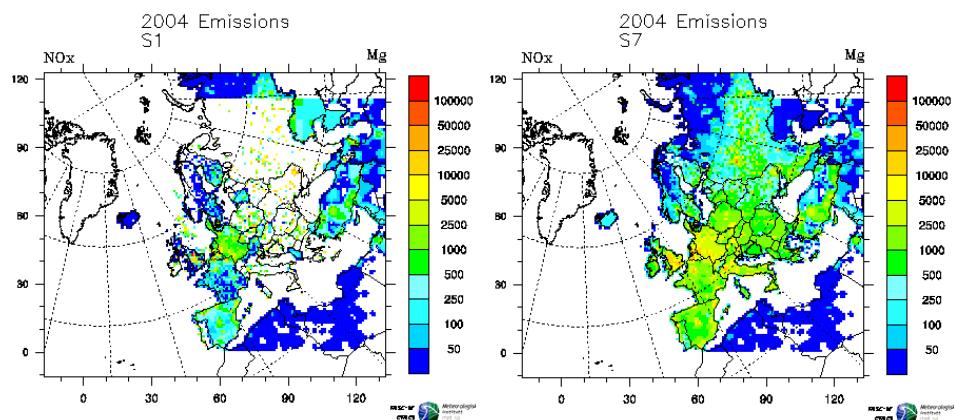


Obrázek 1.: Doména EMEP s gridem 50kmx50km použitým pro emisní inventáře. (Zdroj: EMEP)

Časový rozpočet ročních emisních inventářů bývá prováděn na základě denních, týdenních a ročních cyklů pro jednotlivé regiony a emisní sektory, případně se započítáním meziročních vývojových trendů. V komplexnějších emisních modelech bývá přihlédnuto i k dalším faktorům (např. vliv svátků na dopravu, charakter směnnosti u velkých bodových zdrojů, vliv meteorologických podmínek na biosféru). Některé další vlivy (např. vliv meteorologických podmínek na topení či dopravu) zůstávají doposud většinou nepovšimnuty a možnost jejich zahrnutí do emisního modelu je předmětem dalšího studia. Prostorový rozpočet bývá prováděn na základě vhodných indikátorů (nejčastěji dle hustoty obyvatelstva). Odhad zastoupení jednotlivých chemických složek ve sledovaných skupinách je pak na základě studií stanovován pro jednotlivé emisní sektory a územní celky.

Většina používaných emisních modelů jsou modely vyvinuté a provozované v rámci jedné instituce se všemi omezeními, která z toho plynou. Mezi řídké výjimky patří procesor SMOKE („Sparse Matrix Operator Kernel Emissions“), vyvíjený jako komunitní model, přičemž centrum jeho vývoje je na University of North Carolina at Chapel Hill. Model je součástí CMAS („Community Modeling and Analysis System“) systému Models-3, který je jedním z doporučených modelovacích nástrojů EPA (U.S. Environmental Protection Agency). Výhodou procesoru SMOKE je jeho výkonnost a vysoká konfigurovatelnost, nevýhodou pak silná vazba na standardy USA a tudíž obtížné nasazení pro jiné oblasti. Mezi příklady interních „institucionálních“ modelů patří např. emisní model ze systému AirQUIS (Norwegian Institute for Air Research), modely AEM3 (Advanced Emission Model, Eurocontrol) a CMEM (Comprehensive Modal Emission Model, CE-CERT UC) specializované na dopravní emise.

Zvláštní pozornost je třeba věnovat emisím z dopravy, protože ty v současné době tvoří významnou a v některých oblastech rozhodující složkou antropogenních emisí (viz obrázek 2).



Obrázek 2.: Porovnání ročních emisí NO<sub>x</sub> za rok 2004 pro emisní sektory S1 (Spalování v energetice a zpracovatelském průmyslu) a S7 (Silniční doprava). (Zdroj: EMEP WebDab)



Jak již bylo řečeno, evropské emisní modely doposud většinou pro výpočet dopravních emisí používají ročních inventářů EMEP a jejich prostorovou repositici na základě hustoty obyvatelstva. Tento přístup je zjevně nedostatečný při jemnějším rozlišení, a je zdrojem závažných chyb, zvláště v okolí velkých dopravních tepen a uzlů. Proto vznikají modely, počítající emise z dopravy jako liniové a bodové zdroje z podrobných údajů o dopravě (hustota a struktura provozu na jednotlivých komunikacích, emisní charakteristiky jednotlivých kategorií vozidel, křižovatky a jejich řízení, podélný sklon komunikací, počty studených a teplých startů, atd.). Problémem těchto modelů bývá získání dostatečně kvalitních a úplných podkladů pro jejich naplnění.

V rámci projektu GA AVČR "Modelování" čistoty ovzduší s aplikacemi v krizovém managementu " programu „Informační společnost“ v Ústavu informatiky AV ČR nyní pracujeme na adaptaci emisního modelu SMOKE na evropské a české podmínky s využitím národních inventářů REZZO. Tento model by měl v budoucnu nahradit stávající emisní model používaný v projektu MEDARD („Meteorological and Environmental Data Assimilating system for Regional Domains“, [Eben et al. 2005b],[MEDARD]). Využití kvalitního modulu MOBILE6 pro mobilní emise, který je v modelu SMOKE obsažen, zůstává výzvou do budoucnosti.

## 4. Zdroje nejistot v CTM

Z předchozího popisu je zřejmé, že výsledky CTM mohou být zatíženy řadou nepřesností, mezi jejichž zdroje patří:

- 1) Nedokonalé zachycení fyzikálních dějů použitými rovnicemi.
- 2) Zjednodušení úmyslně vnesená do modelu (parametrizace).
- 3) Zjednodušený popis chemických dějů v příslušném chemickém mechanismu.
- 4) Diskretizační a orografické chyby.
- 5) Nepřesné počáteční a okrajové podmínky.
- 6) Nepřesné meteorologické vstupy.
- 7) Nepřesné emisní vstupy.
- 8) Nepřesnosti vnesené použitými numerickými metodami.
- 9) Numerické chyby vlastního výpočtu.

Velikost i vlastnosti jednotlivých složek chyb jsou v literatuře zkoumány. Např. v [Eben et al. 2005a] je mimo jiné zkoumán vliv počátečních podmínek. V [Hanea et al. 2004] a [Mallet et al. 2005] je zkoumán podíl chyb způsobených nesprávnými emisemi na celkové chybě modelu a je konstatováno, že tyto chyby tvoří významnou část celkové chyby modelu. S ohledem na výše popsany způsob modelování emisí lze identifikovat následující potenciální zdroje nepřesností v emisních vstupech:

- 1) Chyby v emisních inventářích (nezapočítané nebo špatně odhadnuté zdroje emisí).
- 2) Změny emisních zdrojů od doby vytvoření emisního inventáře.
- 3) Nepřesný časový a prostorový rozpočet emisních inventářů.
- 4) Nepřesný rozpočet chemických frakcí z jednotlivých složek emisních inventářů.
- 5) Chyby vertikálního umístění emisí u vyvýšených bodových zdrojů.
- 6) Nepopsané či špatně popsané chemické a fyzikální děje v blízkosti velkých zdrojů (výduchy komínů, apod.)
- 7) Nedokonalý a výrazně zjednodušený popis mobilních emisí.
- 8) Nepředvídatelné nebo nepředvídané změny emisních zdrojů (např. lesní požáry, ekologická havárie, neočekávaná dopravní situace).
- 9) Nedokonalá znalost mechanismů tvorby biogenních emisí, odchylky v dobách vegetačních fází.

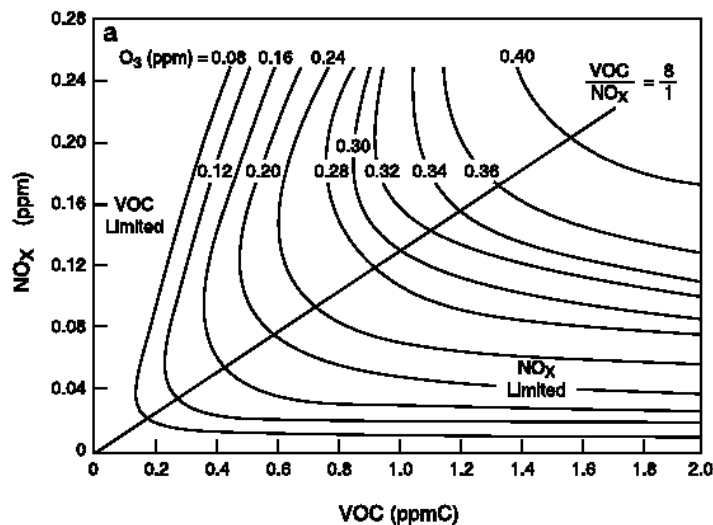
Jednou z cest vedoucích ke zlepšení odhadu emisí je vylepšování sběru dat pro tvorbu emisních inventářů a zlepšování metod použitých pro jejich modelování. Tato metoda má však své hranice dané technicky (některé emise lze pouze odhadovat), ekonomicky (ekonomické nároky na přesné ohodnocení některých zdrojů by byly neúměrné dosaženému efektu) i administrativně (přesné údaje o velkých zdrojích emisí bývají považovány za citlivé).

V posledních letech ve světě stále více nabývají na významu metody výpočtu emisí pomocí tzv. inverzního modelování. V kontextu chemických transportních modelů inverzním modelováním emisí rozumíme techniky, s jejichž pomocí se na základě porovnávání výsledků modelu s pozorováními (pozemními, satelitními, leteckými a dalšími) snažíme provádět korekce v emisních vstupech. V současné době bylo publikováno několik studií, ve kterých bylo inverzní modelování v globálních modelech použito za účelem validace údajů poskytovaných jednotlivými zeměmi do globálních databází (hlavně pro oblast Číny a celé jihovýchodní Asie) či posouzení trendů v emisích skleníkových plynů (viz např. [Heald et al. 2004],[Henze et al. 2006],[Yumimoto et al. 2006]).

Naším cílem je adaptovat tyto techniky a využít je v modelování v regionálním měřítku na oblastech Evropy a České republiky s využitím pozemních a satelitních pozorování. V tomto měřítku je použití inverzního modelování emisí zatím novou a málo prozkoumanou technikou a přináší tím nové možnosti i nové problémy.

## 5. Metody pro hledání vztahů emise - koncentrace - pozorování

Znalost vztahu emise - koncentrace je klíčová pro možnost efektivního ovlivňování úrovně koncentrací chemických látek prostřednictvím úpravy emisních vstupů, ať už za účelem zpřesňování odhadu emisí nebo z důvodu hledání vhodných strategií pro zlepšování kvality ovzduší. Tento vztah není přímočarý díky časové i prostorové vzdálenosti mezi změnou vstupu a odpovědí systému a dále jej komplikuje výrazně nelineární charakter procesů vzniku druhotných polutantů (viz obrázek 3). V této kapitole nastíníme několik přístupů používaných ke zkoumání tohoto vztahu.



Obrázek 3. Typický příklad izoplet ozónu v závislosti na koncentraci  $NO_x$  a VOC. Převzato z knihy [Pitts 2000].

### a) Metody použití „hrubé síly“

Nejjednodušším a nejčastějším postupem je metoda použití „hrubé síly“ („brute force method“), tedy metoda scénářů. Jednotlivé scénáře bývají tvořeny například „vynulováním“ některého zdroje, úpravou ročních emisních inventářů nebo je na principu Monte Carlo vytvořen soubor scénářů tvořící vzorek vhodného pravděpodobnostního rozdělení. Tato metoda je metodou dopřednou zkoumající odpověď systému na konkrétní změny vstupů. Její výhodou je jednoduchost (nejsou potřebné žádné zásahy do modelu), nevýhodou je velká výpočetní náročnost (pro každý scénář je nutno provést kompletní modelovou simulaci) a určitá „slepota“ při výběru scénářů. Příklady studií provedených touto metodou jsou uvedeny např. v [Lin et al. 2005] a [Cuveliera et al. 2007].

## b) Přímé metody

Dalším přístupem je použití přímých metod, nejčastěji metody označované DDM („Decoupled Direct Method“). Metoda byla odvozena již v [Dunker 1984], avšak její implementace v modelech CAMx a CMAQ jsou relativně nedávného data (viz [Carter 2000] a [Dunker et al. 2002]). Metoda poskytuje efektivní cestu k výpočtu koeficientů citlivosti modelu vzhledem k předem zadaným změnám emisí. Označme změněnou emisi  $e = e_b + \lambda e_p$ , kde  $e_b$  je výchozí emise,  $e_p$  emisní změna a  $\lambda$  reálný parametr. Pak koeficient citlivosti prvního řádu v bodě  $e_b$  vůči změně  $e_p$  definujeme:

$$s^{(1)} = \frac{dc}{d\lambda} \quad (2)$$

kde  $c$  označují modelové koncentrace. Obdobně lze definovat koeficienty citlivosti vyšších řádů. Koeficienty citlivosti tvoří koeficienty prvních členů Taylorova rozvoje v příslušném směru  $e_p$  a lze je aproximovat předchozí metodou hrubé síly jako:

$$s_j^{(1)} \approx \frac{c(e_b + \lambda e_p) - c(e_b)}{\lambda} \quad (3)$$

Metoda DDM je založena na analytickém odvození vývojové rovnice pro koeficienty citlivosti obdobně vývojové rovnici vlastního modelu a její vhodné implementaci v modelu tak, aby co nejvíce výpočtů provedených při časovém kroku modelu bylo současně využito pro časový krok rovnice citlivosti. Efektivita a přesnost tohoto postupu ve srovnání s postupem „hrubou silou“ je zkoumána např. v [Dunker et al. 2002], podrobnosti implementace pro model CAMx jsou uvedeny v [Yarwood et al. 2003]. Odvození a implementace DDM pro koeficienty 2.řádu pro model CMAQ je popsána v [Cohan 2004], kde jsou také testovány podmínky, za nichž Taylorův rozvoj 2.řádu přináší významné zpřesnění odhadu chování modelu. Příklady studií pomocí metody DDM jsou např. v [Yarwood et al. 2004], [Cohan 2004] a [Moris et al. 2006].

Metoda DDM je tedy metodou dopřednou, poskytující velice efektivní cestu pro zkoumání odpovědi systému na předem zadaný soubor změn vstupů, avšak nedává žádnou informaci o tom, jak naopak k požadované odpovědi systému hledat vhodné úpravy vstupů. Tuto informaci nám poskytují metody zpětné.

## c) Metody reaktivních stopovačů

Prvním ze zpětných přístupů jsou metody reaktivních stopovačů („reactive tracers“), někdy též označované jako metody značkování látek („tagged species“). Přestože jsou tyto metody používány v různých modifikacích pod různými názvy, základní myšlenka je vždy obdobná - označují látku jejím původem a poté sledují její transport a chemické přeměny. Tento přístup umožňuje zpětně sledovat původ chemické látky a jejích prekurzorů, tj. látek z nichž chemickými přeměnami sledovaná látka vznikla.

Uveďme několik implementací této metody:

- 1) OSAT („Ozone source apportionment technology“, model CAMx). Stopuje hlavní prekurzory ozónu, tj.  $\text{NO}_x$  a VOC zpět k jejich emisním zdrojům. Vedle časového a prostorového přiřazení umožňuje prekurzory též přiřazovat k emisním sektorům a k režimu vzniku ozónu (tzv. „ $\text{NO}_x$  limited“ a „VOC limited“ režim). Podrobnější popis nalezneme např. v [Kumar et al. 1997] a v [CAMx Users Guide], příklady studií jsou uvedeny např. v [Morris et al. 2005] a [Kruger et al. 2002].
- 2) APCA („Anthropogenic Precursor Culpability Assessment“, model CAMx). Obdoba OSAT pouze s tím rozdílem, že zodpovědnost je přednostně přiřazována antropogenním emisím. Metoda je vhodná pro hledání vhodných strategií snížení koncentrací ozónu.
- 3) GOAT („Geographic Ozone Assessment Technology“, model CAMx). Metoda určená pro stopování ozónu k místům jeho vzniku.
- 4) PSAT („Particulate Matter Source Apportionment Technology“, model CAMx), PPTM („Particle and Precursors Tagging Methodology“, model CMAQ). Stopuje předchůdce prašného aerosolu k emisním zdrojům. Metoda je popsána v [Yarwood et al. 2005a], [Yarwood 2005b].
- 5) TSSA („Tagged Species Source Apportionment“, model CMAQ). Metoda stopuje  $\text{SO}_4$  a  $\text{NO}_3$ .

Metody značkování látek tedy dávají dobrou informaci o zodpovědnosti jednotlivých emisních zdrojů, nedávají však kvantitativní informaci o odpovědi systému na změny zdrojů. V [Lin et al. 2005] a [Yarwood et al. 2003] je zkoumán vztah mezi výsledky metod OSAT a DDM a je konstatován dobrý soulad těchto výsledků.

#### d) Metody filtrace

Metodou, kterou lze použít pro hledání vhodných parametrů modelu na základě hodnot pozorování je Kalmanův vyhlazovač (KS, „Kalman smoother“). Tento přístup je použit pro odhad emisních vstupů například v [Hanea et al. 2004], obdobné pokusy jsme prováděli v rámci experimentů při přípravě článku [Eben et al. 2005a]. Jak naznačují experimenty, metoda nedává věrohodné výsledky, které by bylo možno použít pro opravu emisních vstupů. Hlavní příčinou zřejmě jsou výrazně se měnící vlastnosti systému v závislosti na denním cyklu i na změnách meteorologických vstupů, zatímco KS vyžaduje pro vývoj korelačních vazeb časově relativně stálou strukturu korelací chyb.

#### e) Analytická metoda

Analytická metoda (někdy označovaná též jako „Bayesian synthesis“) je postavena obdobně jako dále diskutovaná metoda 4D-Var na variační formulaci problému, t.j. na minimalizaci funkcionálu  $J(e)$  (tzv. „cílové funkce“ resp. „cost function“). Tento funkcionál se skládá v základním případě ze dvou členů. První z nich vyjadřuje váženou vzdálenost emisního vstupu od jeho apriorního odhadu, druhý pak vzdálenost protějšků modelových hodnot v prostoru pozorování od pozorovaných hodnot na zkoumaném časové úseku.

Označme  $e_b$  počáteční odhad emisních vstupů,  $y_0$  pozorované hodnoty,  $H$  pozorovací operátor, tj. operátor, mapující hodnoty diskretizovaného stavového prostoru koncentrací  $\Omega$  do prostoru hodnot pozorování  $\Phi$  a  $C(e, t)$  modelové hodnoty koncentrací pro emise  $e$ , čas  $t \in \langle t_0, t_N \rangle$  a dané pevné počáteční podmínky  $c_0$  v čase  $t_0$  a pevné meteorologické vstupy na modelované oblasti. Nechť dále  $B$  označuje kovarianční matici chyb emisních vstupů a  $R$  kovarianční matici chyb pozorování. Pak  $J(e)$  má v základním případě optimalizace pouze emisních vstupů tvar:

$$J(e) = \frac{1}{2} \int_{t_0}^{t_N} (e(t) - e_B(t))^T B^{-1} (e(t) - e_B(t)) dt + \frac{1}{2} \int_{t_0}^{t_N} (y_0 - H(C(e, t)))^T R^{-1} (y_0 - H(C(e, t))) dt \quad (4)$$

Odvození na základě Bayesovské statistiky je provedeno v knize [Rodgers 2000], přičemž základním předpokladem je předpoklad Gaussova rozdělení chyb modelu i pozorování.

Analytická metoda řeší tuto minimalizační úlohu řešením rovnice  $\nabla_e J(e) = 0$ , přičemž používá dvě zásadní zjednodušení, a to linearizaci operátoru  $H(C(e, t))$  okolo bodu  $e_b$  a parametrizaci oprav emisí malým konečným počtem parametrů, např. definicí emisních oblastí (států, regionů). Označíme-li  $K$  tečný lineární operátor k operátoru  $H(C(e, t))$  v bodě  $e_b$ , pak minimum funkcionálu  $J(e)$  je v bodě

$$e = e_b + (K^T B^{-1} K + R)^{-1} K^T B^{-1} (y_0 - K e_b) \quad (5)$$

Výpočet matice  $K$  můžeme provést buď metodou „hrubé síly“ či případně metodou DDM. Uvedený přístup má několik významných omezení a problémů:

- 1) Předpoklad Gaussova rozdělení chyb.
- 2) Linearizace problému.
- 3) Nutnost inverze kovarianční matice  $B$ .
- 4) Nutnost parametrizace oprav emisí malým počtem předem definovaných parametrů.
- 5) Omezení na malá množství pozorování.

Přes tato omezení byla metoda relativně úspěšně aplikována např. ve studii [Heald et al. 2004], v níž byla použita k zlepšení odhadu emisí CO nad jižní a východní Asii. Ve studii byly optimalizovány roční emise pro 11 podoblastí v prostředí globálního chemického modelu GEOS-CHEM s využitím dat ze satelitního instrumentu MOPITT („Measurements Of Pollution In The Troposphere“).

## f) Variační metoda 4D-Var

Další zpětnou metodou založenou na minimalizaci cílové funkce je variační metoda asimilace dat 4D-Var. Tato metoda nejen poskytuje efektivní cestu k přizpůsobení vstupů na základě pozorované či předepsané odchylky výstupů, ale navíc umožňuje i zkoumat zpětné citlivosti. Metoda původně vznikla pro potřeby zpřesňování počátečních podmínek na základě asimilace pozorování v meteorologických modelech, lze ji však aplikovat též na přizpůsobování emisních vstupů v CTM. Takto upravená metoda je odvozena např. v [Elbern et al. 2000], kde jsou také provedeny jednoduché testy ověřující její chování na elementárních případech.

Nechť rovnice

$$\frac{dc}{dt} = M(c, e, w) \quad (6)$$

představuje vývojovou rovnici CTM, přičemž  $c$  označuje stavový vektor koncentrací,  $e$  označuje emisní vstup,  $w$  ostatní členy mající v modelu funkci buzení („forcing“) (tj. zejména meteorologické vstupy) a  $M$  je příslušný nelineární operátor vyjadřující časový krok CTM. Ostatní označení je stejné jako v bodě e). Minimalizaci cílové funkce  $J(e)$  provádíme v metodě 4D-Var iterativně metodou největšího spádu s použitím vhodné numerické metody; často bývá využita např. metoda Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno (BFGS).

Základním problémem je výpočet gradientu cílové funkce vůči optimalizovaným parametrům. Z rovnice (4) odvodíme:

$$\nabla_e J(e) = \int_{t_0}^{t_N} B^{-1}(e(t) - e_B(t)) dt + \int_{t_0}^{t_N} C^T H^T R^{-1}(y_0 - H(C(e, t))) dt \quad (7)$$

kde  $C^T$  je adjungovaný operátor k tečnému lineárnímu operátoru k  $C$  vůči proměnné  $e$  a  $H^T$  je tečný operátor k  $H$ .

Při výpočtu se používá jeden ze dvou alternativních postupů, diskrétní a spojitý. V případě analýzy pomocí diskrétního adjungovaného operátoru provedeme nejprve časovou diskretizaci rovnice (7):

$$\nabla J(e) = -B^{-1}(e - e_B) - \sum_{i=0}^n M_1^T \dots M_{i-1}^T M_i^T H_i^T r_i = -B^{-1}(e - e_B) - (H_0^T r_0 + M_1^T (H_1^T r_1 + M_2^T (H_2^T r_2 + \dots + M_n^T H_n^T r_n))) \quad (8)$$

kde  $M_i, i = 1, \dots, N$  označují jednotlivé diskretizované časové kroky vývojového modelu  $M$  v časových krocích  $t = t_0, t_1, \dots, t_N$ , tedy

$$C(t_i) = M_i M_{i-1} \dots M_1 \quad (9)$$

a

$$r_i = R_i^{-1}(y_i - H_i M_i M_{i-1} \dots M_1(c_0, e)) \quad (10)$$

jsou tzv. normalizovaná rezidua („normalized departures“). Označíme-li

$$\lambda_i = (H_i^T r_i + M_{i+1}^T (H_{i+1}^T r_{i+1} + \dots + M_n^T H_n^T r_n) \dots) \quad (11)$$

tzv. (diskrétní) adjungované proměnné, pak

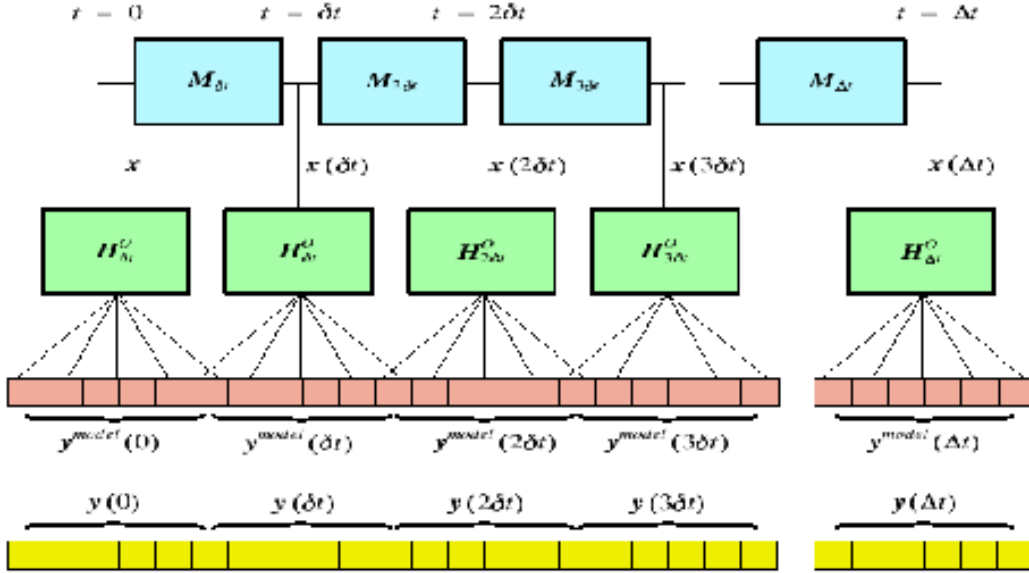
$$\nabla J(e) = -B^{-1}(e - e_B) - \lambda_0 \quad (12)$$

Adjungované proměnné  $\lambda_i$  můžeme počítat rekurzivním postupem. V dopředném běhu modelu vypočteme hodnoty normalizovaných reziduí  $r_i$  a v následném zpětném běhu počítáme hodnoty adjungovaných proměnných  $\lambda_i$  rekurzivně ze vztahu

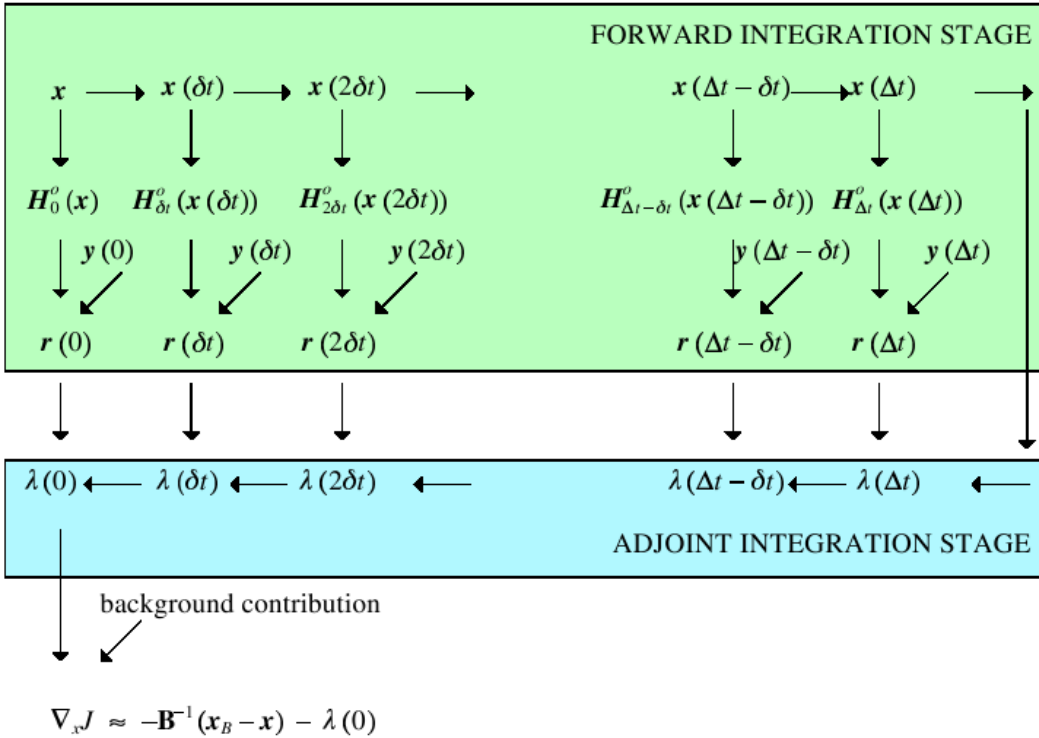
$$\lambda_n = H_n^T r_n \quad (13)$$

$$\lambda_{i-1} = H_{i-1}^T r_{i-1} + M_i^T \lambda_i \quad (14)$$

Celé uspořádání metody je zřejmé z následujících schémat (obrázky 3 a 4) převzatých z [Bannister 2001].



Obrázek 3: Schéma uspořádání pro metodu 4D-Var (zdroj: [Bannister 2001]).



Obrázek 4: Schéma postupu výpočtu pomocí metody 4D-Var (zdroj: [Bannister 2001]).

Metoda analýzy pomocí spojitého adjungovaného operátoru využívá metody Langrangeových multiplikátorů. Pomocí nich lze odvodit, že:

$$\nabla_e J(e) = B^{-1}(e - e_B) - \lambda(t_0) \quad (15)$$

kde  $\lambda$  je tzv. (spojitá) adjungovaná proměnná, definovaná rovnicí:

$$\frac{d\lambda(t)}{dt} + M^T \lambda(t) + R^{-1}(y_0(t) - H(C(e, t))) = 0 \quad (16)$$

a počáteční podmínkou:

$$\lambda(t_N) = 0 \quad (17)$$

Řešení (16) provedeme pomocí vhodné numerické metody (např. Runge-Kuttovy metody).

Oba postupy jsou obdobné, avšak nejsou ekvivalentní vzhledem k tomu, že operace diskretizace a adjunkce nekomutují. Výhody a nevýhody obou přístupů pro konkrétní použití jsou diskutovány v literatuře, v praxi se často tyto přístupy kombinují.

V obou případech je k efektivnímu výpočtu gradientu zapotřebí efektivní implementace příslušného adjungovaného tečného modelu ve vlastním CTM, což vzhledem ke komplikovanosti a rozsáhlosti chemických transportních modelů není jednoduchý úkol a bývá to největším problémem metody 4D-Var. Základní postupy pro tvorbu adjungovaných modelů jsou popsány např. v [Giering et al. 1999], vznikají i pokusy o jeho částečně automatizovaný návrh ([Sandu et al. 2003] a [Daescu et al. 2003]). V současné době mají adjungovaný model implementován např. globální model GEOS-CHEM [Henze et al. 2005], [Henze et al. 2006], z mezoměřítkových modelů pak existují experimentální pokusy o alespoň částečnou implementaci adjungovaného modelu např. pro modely STEM [Sandu et al. 2006], RAMS-CTM [Yumimoto et al. 2006], CTM2 [Elbern et al. 2000], CHIMERE [Menut 2003], [Menut et al. 2006] a CMAQ [Hakami et al. 2006a], [Hakami et al. 2006b]. Pro model CAMx adjungovaný tečný lineární model k dispozici není a není mi známo, že by existoval pokus o jeho implementaci. Experimentální implementace nebývají úplné, nejsou součástí běžných vývojových řad modelu, čímž nesledují vývoj verzí tohoto modelu, nebývají dostupné a často se jedná spíše o implementace typu „proof of the concept“. Po vyhodnocení všech možností se jako nejnadějnější pro experimenty jeví implementace adjungovaného modelu CMAQ aktuálně vyvíjeného ve spolupráci Virginia Tech., California Institute of Technology a University of Huston. Jedná se o experimentální implementaci zahrnující procesy plynné fáze s chemickým mechanismem CB4.

Pokud je k dispozici kvalitní implementace adjungovaného modelu pro požadované fyzikální a chemické procesy, pak 4D-Var poskytuje efektivnější postup a lepší rozlišení než analytický přístup. Zároveň zbavuje nutnosti apriori určovat jednotlivé emisní regiony a též snižuje míru nutné linearizace problému při jeho řešení. Naopak předpoklad Gaussova rozdělení pravděpodobnosti chyb modelu a pozorování je i zde potřebný.

## 6. Kovarianční struktury chyb modelu a pozorování

Zcela zásadním předpokladem pro dobrou funkčnost jak asimilace dat pomocí filtračních metod i variačních metod (OI, 3D-Var, 4D-Var), tak inverzního modelování emisí pomocí analytické metody či 4D-Var je správné popsání kovarianční struktury chyb modelu, emisí a pozorování pomocí matic  $B$  a  $R$ . Nejčastěji se pro tento účel používají postupy převzaté z asimilace v meteorologických modelech, tedy modelování pomocí izotropních homogenních kovariančních funkcí [Gaspari et al. 1999] či různé varianty statistických metod označovaných jako NMC metody [Parrish et al. 1992]. Vzhledem k odlišnému charakteru chování meteorologických modelů a CTM a tím i odlišné struktuře chyb však tento přístup není optimální. V práci prezentované v [Resler et al. 2005] jsem navrhl postup zobecňující tvorbu kovarianční struktury chyb modelu pomocí nehomogenních a neizotropních kovariančních funkcí a testoval jeho účinnost v porovnání s ostatními metodami. Takto vzniklá kovarianční struktura se snaží podchytit efekty vznikající na rozhraních různých pokrytí zemského povrchu a též efekty způsobené meteorologickými vlivy (proudění vzduchu). V [Eben et al. 2005a], [Eben et al. 2005c] a [Eben et al. 2007c] je pak tato metoda použita v rámci asimilace pomocí modifikované verze EnKF („Ensemble Kalman Filter“, [Whitaker et al. 2002]), přičemž místo vertikální kovarianční struktury je použita deterministická propagace oprav analýzy ve vertikálním směru pomocí difuzní rovnice CTM. V práci [Constantinescu et al. 2006] je popsán zajímavý pokus o odvození vývoje kovarianční struktury ze zjednodušených rovnic vlastního CTM a na základě toho o vytvoření adaptivního regresního modelu pro odhad kovarianční matice  $B$ . Další možnou cestou se jeví použití indikátorů režimu tvorby ozónu (tzv. „NO<sub>x</sub> limited regime“ či „VOC limited regime“, viz [Liang et al. 2006]). Vytvoření vhodné kovarianční struktury pro asimilace v CTM je jednou z výrazných výzev, které bude v následujícím postupu nutno řešit.

## 7. Typy pozorování a jejich vlastnosti

Jak již bylo řečeno, dodatečným zdrojem informace pro korekci modelových chyb nebo zpřesnění modelových vstupů jsou pozorování stavu. V oblasti modelování kvality ovzduší můžeme tato pozorování obdobně jako v meteorologii rozdělit na 2 základní skupiny:

## a) Pozorování přímá

Přímým pozorováním míníme taková pozorování, při nichž měříme některou veličinu stavového prostoru v konkrétním čase a místě. Nejčastěji jsou měřeny meteorologické veličiny teplota, tlak, vlhkost, rosný bod, srážky, rychlost a směr větru a sluneční záření, v oblasti čistoty ovzduší pak koncentrace ozónu, oxidů dusíku, oxidu siřičitého, oxidu uhelnatého, benzenu, toluenu, příp. dalších těkavých organických látek a prašného aerosolu.

Tato pozorování mohou být prakticky prováděna různými způsoby, nejčastěji je zajišťují pevné pozemní stanice doplňované mobilními stanicemi. Pro měření koncentrací rámci České republiky provozuje ČHMU síť stanic AIM („Automatizovaný imisní monitoring“), dále lze získat data i z jiných stanic provozovaných veřejnými či soukromými institucemi a jednotlivci, jejich kvalita a dostupnost však bývá značně proměnlivá. Historická data z evropských stanic pro účely studií jsou dostupná např. v databázi AirBase („The European Air Quality Database“), udržované evropskou agenturou EEA („European Environmental Agency“).

Měření z těchto pozemních stanic je pak doplňováno měřeními prováděnými z letadel (jak z pravidelných leteckých linek, tak i ze specializovaných leteckých kampaní, viz např. [Jacobs 2003]), meteorologických balónů, a radiosond. Výhodou těchto dat je informace o stavu vyšších vrstev atmosféry či o jejím kompletním vertikálním profilu, nevýhodou pak značná časová i prostorová řídkost, např. profily ozónu pomocí radiosond jsou v ČR měřeny pouze v Praze-Libuši třikrát týdně v období leden-duben.

Výhodou přímých pozemních pozorování z hlediska metod asimilace dat je vedle jejich relativně stabilní dostupnosti a kvality hlavně jednoduchá vazba mezi modelovým stavem a pozorovanou veličinou, takže pozorovací operátor v asimilačních schématech se většinou redukuje na pouhou prostorovou a časovou interpolaci. Mezi nedostatky patří nerovnoměrné rozložení pozorování jak ve vertikálním směru (většina pozorování zachycuje pouze přízemní vrstvu) tak v horizontálním směru, dále pak systematické vychýlení některých pozorování. Podstatně větším problémem z hlediska asimilace dat však je malá reprezentativita mnoha měření, tedy nízká schopnost těchto bodových měření vypovídat o stavu atmosféry v určitém dostatečně velkém okolí odpovídajícím přinejmenším rozlišení modelu. U stanic měřících čistotu ovzduší je nejčastější příčinou malé reprezentativity pozorování přítomnost lokálních emisních zdrojů, jejichž vliv v podmínkách rozlišení modelu je malý, ale výrazně ovlivňuje hodnoty koncentrací naměřené na stanici. Takovýmto lokálním zdrojem bývá často doprava v městských centrech či v bezprostřední blízkosti dopravních tepen. Další častou příčinou nízké reprezentativity bývá orografická chyba u stanic umístěných v horských oblastech. Je zřejmé, že přímá asimilace těchto pozorování může vést asimilační proces ke zcela nesprávným výsledkům. Používaným způsobem jak obejít tento problém je asimilace pouze těch měření, která splňují určité podmínky, tedy např. pouze měření z venkovských pozadových stanic s nadmořskou výškou do 700 m.n.m. (viz např. [Hanea et al. 2004], [Eben et al. 2005a]). Nevýhodou tohoto přístupu je, že opomíjíme informaci z nejdůležitějších oblastí (městských aglomerací). Jiný přístup je naznačen v [Eben et al. 2006] a [Jurus 2006] při němž je naměřená hodnota rozdělena na 2 složky – složku pozadí, dobře zachycenou modelem a použitou k asimilaci a složku lokální, která je modelována jednoduchým statistickým modelem. Využití postupů prostorové interpolace a Bayesovské statistiky pro kombinaci modelových výstupů a pozorování v podmínkách jejich rozdílné reprezentativity je ukázáno na obdobném problému ve [Fuentes et al. 2006]. Je však zřejmé, že pokud chceme tyto metody použít v průběhu asimilace, je potřeba získat další nezávislou informaci o velikosti pozadové složky. Jednou z možností se jeví použití veličin získaných ze satelitních pozorování, jak je naznačeno v dále.

## b) Pozorování nepřímá

Při těchto pozorováních měříme veličiny, které nejsou součástí stavového vektoru modelu a souvisí s tímto stavem často pomocí komplikovaných vztahů. Nejčastěji se jedná o pozorování prováděná z přístrojů umístěných na satelitech, avšak někdy jsou prováděna i ze zemského povrchu. Pozorovanými veličinami jsou např. zpoždění signálu při průchodu atmosférou či změna spektra.

Historie satelitních pozorování chemického složení atmosféry začíná rokem 1970, první pozorování NO<sub>2</sub> byla prováděna v rámci experimentu SAGE („Stratospheric Aerosol and Gas Experiment“, NASA, 1979), avšak všechna pozorování až do roku 1995 se týkala pouze stratosférických sloupců O<sub>3</sub> a NO<sub>x</sub>. V tomto roce byl odstartován experiment GOME („Global Ozone Monitoring Experiment“, ESA, 1995), jehož princip měření byl odlišný od nástrojů používaných v rámci experimentu SAGE. Zatímco v SAGE byl měřen útlum světla procházející atmosférou od slunce k satelitu („occultation“) v několika vybraných vlnových délkách, v GOME bylo vedle přímého slunečního světla měřeno světlo odrážející se od zemského povrchu zpět směrem k satelitu („nadir mode“), a to na všech vlnových



délkách světelného spektra a na části UV a IR spektra. Poměr přímého a odraženého světla pak dává tzv. spektrum odrazivosti. Výhodou tohoto přístupu je, že průlet světla atmosférou je podstatně kratší a metoda poskytuje mnohem lokalizovanější pozorování, a navíc výsledky poskytují lepší informaci i o vlastnostech troposféry. Nevýhodou pak je složitější proces získávání požadovaných veličin (např. sloupce  $O_3$ ,  $NO_2$ ,...), neboť spektrum odrazivosti záleží též na vlastnostech zemského povrchu a navíc cesta světla od Slunce k satelitu není jednoznačná. Experiment GOME byl ukončen v roce 2003 a byl následován experimenty SCIAMACHY („SCanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric CartograpHY“, 2003), OMI („Ozone Monitoring Instrument“, 2004) a GOME-2 (2005). Tyto experimenty užívají obdobné principy měření, pouze vylepšením technického vybavení došlo k zpřesnění měření a zmenšení měřené stopy (GOME -  $360 \times 40 \text{ km}^2$ , SCIAMACHY -  $60 \times 30 \text{ km}^2$ , OMI -  $24 \times 13 \text{ km}^2$ , GOME-2 -  $40 \times 40 \text{ km}^2$ ) a zlepšení pokrytí. Získání použitelných informací o stavu atmosféry z těchto měření je komplikovaný proces, který je nyní v centru zájmu vědecké komunity a zároveň s tím se začínají objevovat pokusy o využití takto získaných hodnot (většinou celkových či troposférických sloupců) v asimilačních procesech. Tyto postupy však dosud narážejí na mnoho nevyřešených problémů, např.:

- 1) Chyby pozorování jsou zatím velké (nejen náhodné, ale i systematické) a rozlišení je hrubé.
- 2) Získávání hodnot celkových a troposférických sloupců vyžaduje mnoho zjednodušujících předpokladů a další údaje o stavu atmosféry získávané z modelu, čímž se vnáší do procesu zpracování informace další (modelové) chyby.
- 3) Odhady troposférických sloupců lze provádět pouze za bezoblačného počasí.
- 4) Satelitní nástroje jsou citlivé převážně v oblasti stratosféry a vyšší troposféry, v oblasti nižší troposféry je jejich citlivost nízká.

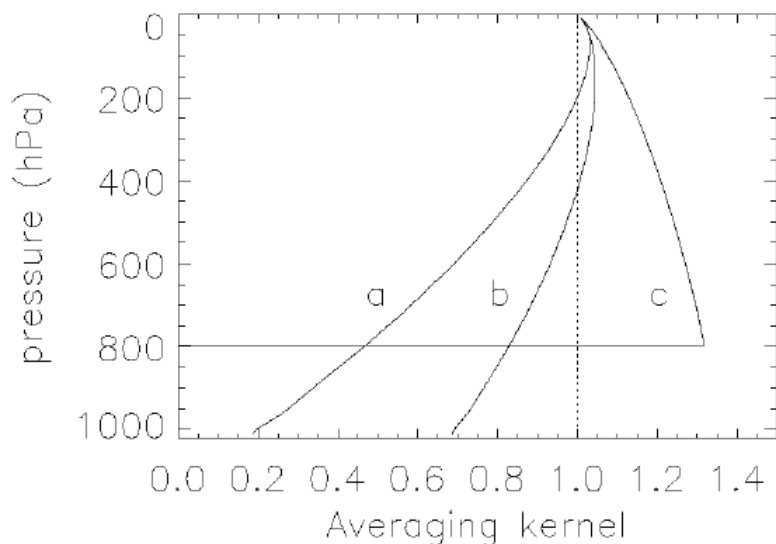
Proto byl zájem vědecké komunity doposud zaměřen téměř výhradně na jejich použití v kontextu globálních modelů k dlouhodobým studiím s méně reaktivními látkami ( $CO$ ,  $SO_x$ ). S přicházející dostupností pozorování a z nich odvozených troposférických sloupců z nástrojů OMI a GOME-2 lze očekávat, že satelitní pozorování budou v budoucnu přinášet důležitou část informace o chemickém složení atmosféry, a to i v měřítku regionálních modelů a je proto vhodné již dnes se pokoušet o jejich využití.

Pro účely asimilace v prostředí mezoměřítkového modelu je k dispozici několik experimentálních produktů, z nichž jako nejnadějnější se jeví využití vertikálních troposférických sloupců  $NO_2$  odvozených z pozorování SCIAMACHY a OMI pomocí metody DOAS (Differential Optical Absorption Spectroscopy) vyvíjené společně KNMI („Koninklijk Nederlands Meteorologisch Instituut“, Holandsko), FMI („Finnish Meteorological Institute“, Finsko) a NASA („National Aeronautics and Space Administration“, USA) a poskytované v rámci projektu TEMIS („Tropospheric Emission Monitoring Internet Service“). Tato metoda je použitelná pro látky označované jako slabé absorbéry (mj.  $NO_2$ ) a poskytuje nejen hodnoty troposférických sloupců, ale i další potřebné veličiny pro práci s nimi (rozptyly chyby, tlakové vrstvy, vyhlazovací operátor a další). Potřebné charakteristiky atmosféry jsou získávány z běhu globálního modelu TM4. Podrobný popis poskytovaných veličin je uveden v [van der A et al. 2006a], teorie potřebná pro jejich odvození např. v [Boersma 2004], [van der A et al. 2006b], kde jsou také další odkazy na použitou literaturu. V [Boersma et al. 2004] jsou studovány velikosti chyb takto získaných hodnot troposférických sloupců. V nejbližší době je očekávána dostupnost obdobných troposférických sloupců  $NO_2$  získaných na základě pozorování z GOME-2. Vzhledem k rozdílným dobám přeletů těchto satelitů nad územím Evropy a ČR (GOME-2: 7-9 hodin, SCIAMACHY: 10-12 hodin, OMI: 13-15 hodin) může být přínosem kombinace pozorování ze všech 3 satelitů; kromě většího počtu pozorování poskytuje totiž též částečné zachycení denního cyklu sloupců  $NO_2$ .

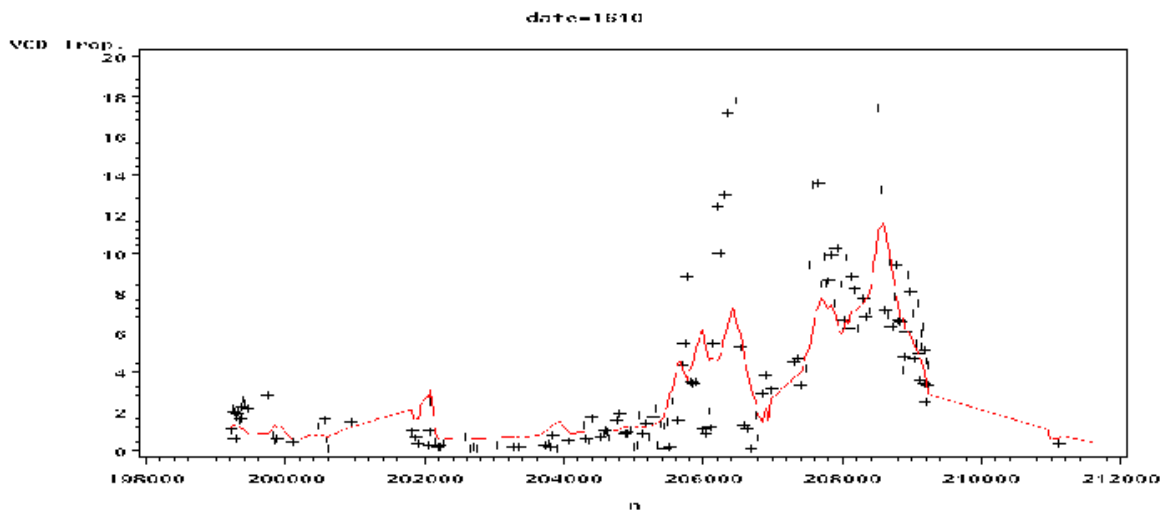
Vzhledem k vysokým uváděným rozptylům troposférických sloupců  $NO_2$  získávaných ze satelitních pozorování spekter jsme provedli několik experimentů pro ověření schopnosti satelitních pozorování přinést do systému na regionální úrovni novou validní informaci. Výsledky byly referovány v [Eben et al. 2007a], [Resler et al. 2007] a budou publikovány v [Eben et al. 2007b]. Za testovací období pro experimenty byl zvolen říjen 2005, sloupce  $NO_2$  z projektu TEMIS ze satelitních instrumentů OMI a SCIAMACHY byly porovnávány s modelovými hodnotami z běhu modelového páru WRF-CAMx a s pozemními pozorováními z 66 stanic ČHMU na území ČR. Modely byly konfigurovány na třech vnořených doménách s rozlišením 27, 9 a 3 km pokrývajících postupně Evropu včetně Středozemí, střední Evropu a Českou republiku.

Prvním experimentem bylo porovnání měsíčních průměrů troposférických sloupců  $NO_2$  s jejich modelovými protějšky. Pozorovací operátor pro výpočet těchto modelových protějšků byl zkonstruován

kombinací časové a prostorové interpolace a numerické integrace přes oblast satelitního pixelu a přes vertikální vrstvy s využitím hodnot vyhlazovacího operátoru („averaging kernel“, viz [Boersma 2004]) interpolovaných z tlakových hladin modelu TM4 do tlakových hladin modelu CAMx. Vyhlazovací operátor je možno zjednodušeně interpretovat jako operátor, udávající relativní citlivost světelného spektra za daných podmínek na koncentraci studované látky v jednotlivých tlakových hladinách. Příklady typického průběhu hodnot vyhlazovacího operátoru jsou uvedeny na obrázku 5, přičemž za pozornost stojí obzvláště případ c), ukazující nulovou citlivost satelitního pozorování na koncentrace NO<sub>2</sub> pod oblačností nacházející se v hladině 800hPa. Obrázek 6 ukazuje příklad pozorovaných satelitních sloupců NO<sub>2</sub> a jejich modelových protějšků pro den 16.10.2006 podél středu stopy satelitu. Hodnoty průměrných měsíčních inovací (tj. odchylek pozorované a modelované hodnoty) jsou uvedeny v tabulce 1 a v mapách na obrázku 7, obrázek 8 pak ukazuje počty platných pozorování z jednotlivých nástrojů nad jednotlivými místy domén za celý měsíc říjen 2006.



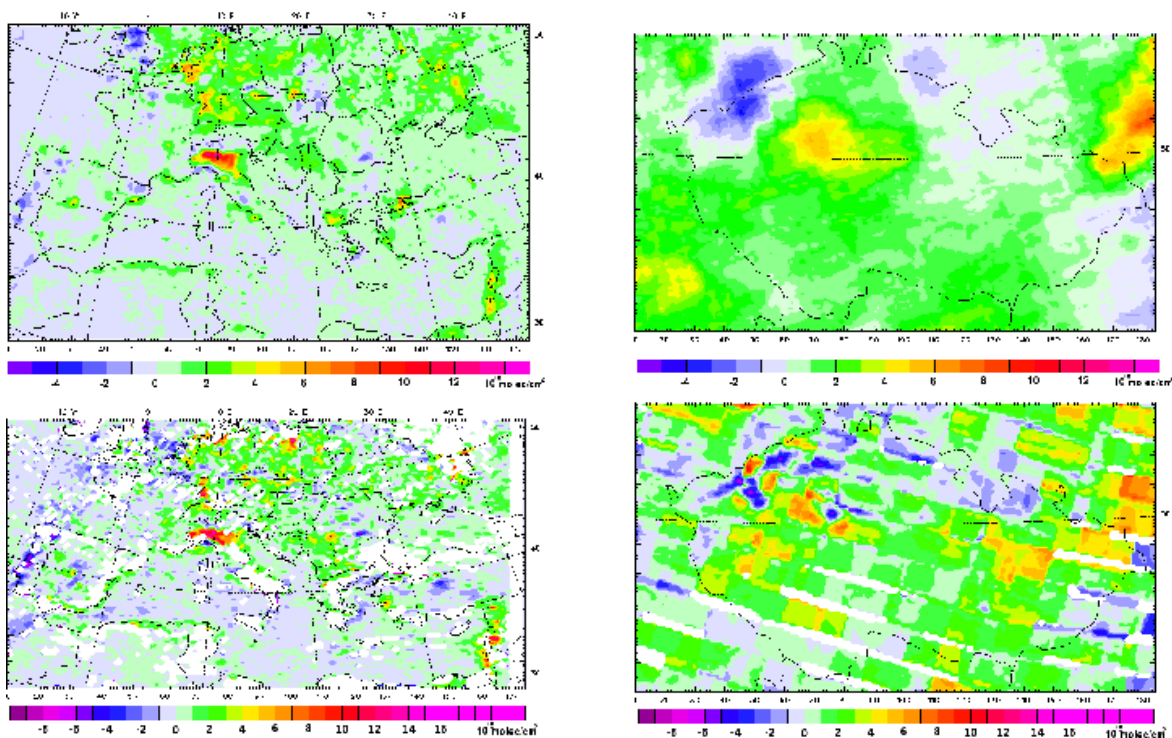
Obrázek 5.: Příklad průběhu vyhlazovacího operátoru na vlnové délce 437nm pro metodu DOAS pro: (a) bezoblačný satelitní bod nad zemským povrchem s albedem 0,02 (b) bezoblačný satelitní bod nad zemským povrchem s albedem 0,15; (c) satelitní bod s opticky silnými oblaky a vrchem oblačnosti v 800 hPa (převzato z [Boersma et al. 2004]).



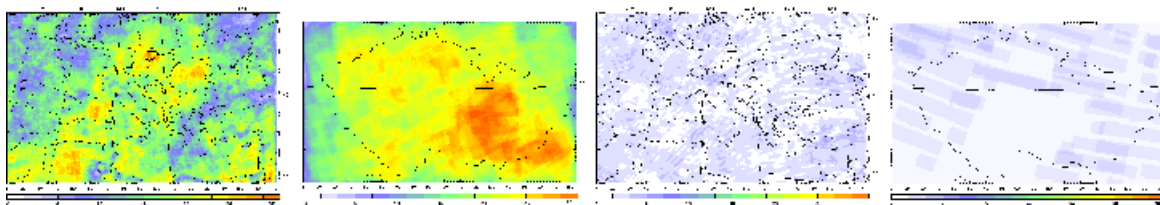
Obrázek 6.: Průběh troposférických sloupců NO<sub>2</sub> získaných z pozorování nástroje OMI (černě) a jejich modelové protějšky (červeně) podél centra stopy satelitu očištěné od efektů způsobených kýváním spektroskopu. Přechod satelitní stopy přes území České republiky a Evropy dne 16.10.2006.

Instrument	Proměnná	Počet pozorování	Průměr	Std.odchylka	Minimum	Maximum
OMI	$v_r - v_m$	384752	0.27	2.09	-22.15	54.56
	$ v_r - v_m $	384752	1.32	1.65	0.00	54.56
SCIAMACHY	$v_r - v_m$	27294	-0.10	2.33	-45.81	31.75
	$ v_r - v_m $	27294	1.33	1.91	0.00	45.81

Tabulka 1. Souborná statistika inovací.



Obrázek 7: Průměrné inovace pro první doménu (rozlšení 27km) a třetí doménu (rozl.. 3km). Horní část: OMI (přelet 13-15h), Dolní část: SCIAMACHY (přelet 10-12h, mnohem méně dat a hrubší rozlišení). Region Prahy v modelu podhodnocen, severozápadní Čechy nadhodnoceny.



Obrázek 8.: Počty platných pozorování za měsíc říjen 2006: OMI (vlevo), SCIAMACHY (vpravo)

Z tabulky 1 je zřejmé, že model je sice vůči pozorováním celkově přibližně nevychýlený, avšak zároveň z obrázku 7 je vidět, že existují regiony, v nichž se inovace vychylují na jednu nebo na druhou stranu. Tyto oblasti zhruba odpovídají silně znečištěným regionům a vychýlení je velice pravděpodobně způsobeno nepřesnými emisními inventáři a nesprávným rozpočtem v emisním modelu. Korekce těchto vychýlení emisí musí být provedena dříve, než jednotlivé inovace mohou vstoupit do procesu asimilace dat. Tabulka 1 a obrázek 8 ukazuje, že OMI poskytuje mnohem větší počet pozorování za stejné období, než SCIAMACHY. Navíc OMI dává informaci v lepším rozlišení. Přesto však má smysl pozorování z SCIAMACHY zpracovávat, jelikož poskytují alespoň nějakou informaci o denním průběhu koncentrací  $\text{NO}_2$ .

Jako další test jsem prováděl statistické srovnání inovací troposférických sloupců  $\text{NO}_2$  a přízemních koncentrací pozorovaných na stanicích AIM. Jako „testovací nástroj“ bylo použito jednoduché schéma

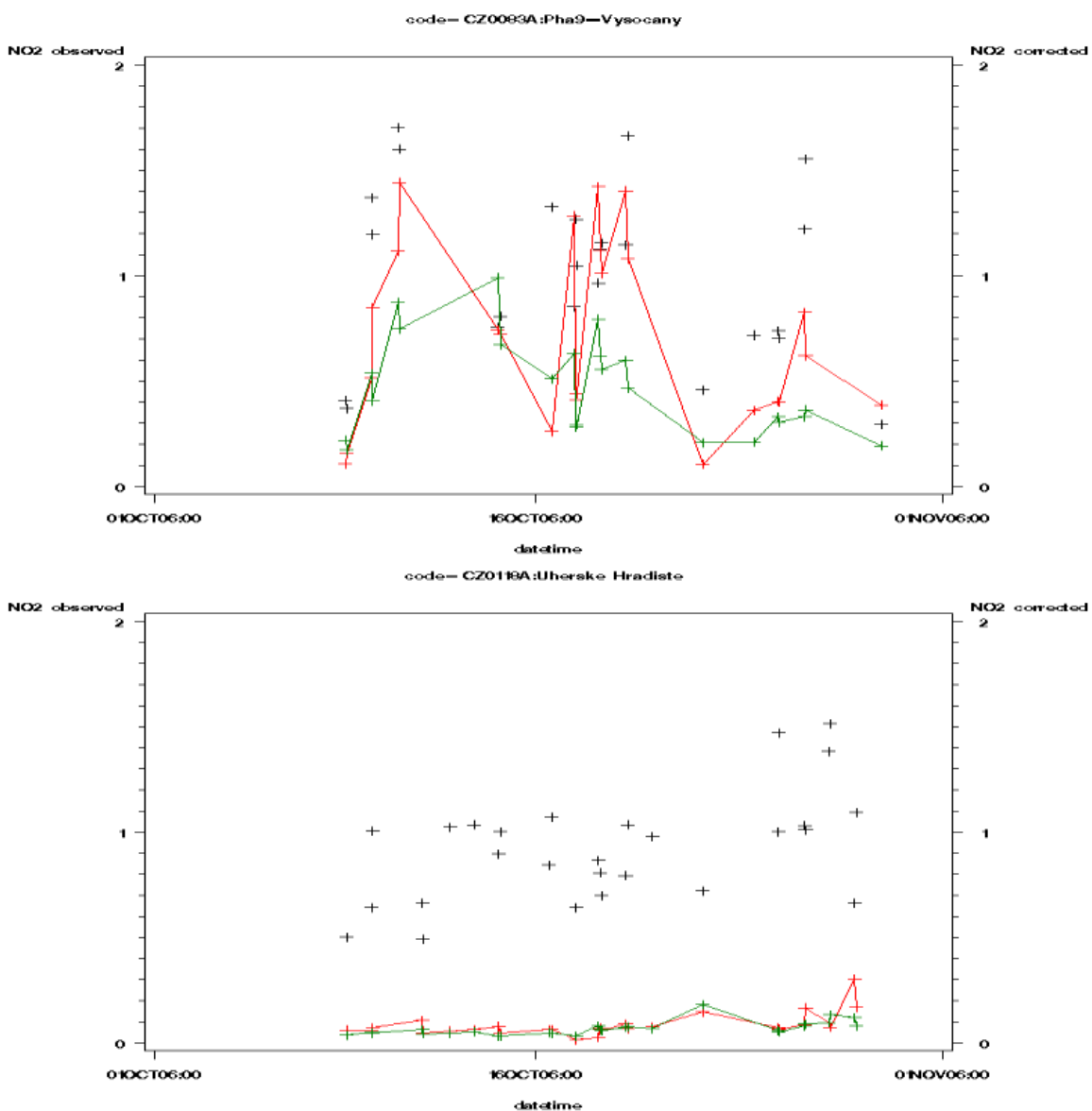
korrekcí modelových koncentrací vážením koeficientem získaným optimální interpolací v prostoru sloupců:

$$c_a = \frac{v_a}{v_m} c_m \quad (18)$$

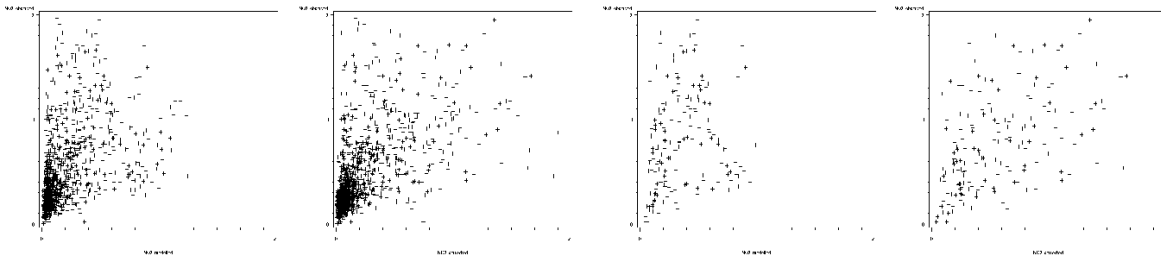
kde

$$v_a = v_m + \left(1 + \frac{\sigma_{ak}}{\sigma_p}\right)^{-1} (v_r - v_m) \quad (19)$$

Zde  $c_m$  a  $c_a$  označují modelovou a korigovanou přízemní koncentraci  $\text{NO}_2$ ,  $v_m$  a  $v_a$  označují modelový a analyzovaný troposférický sloupec,  $\sigma_{ak}$  je chyba hodnoty sloupce (včetně chyby procesu získání hodnoty sloupce z pozorovaného spektra) a  $\sigma_p$  je nastavitelná konstanta, reprezentující chybu modelu. Konstanta  $\sigma_p$  byla nalezena z rovnice (19) jako optimální odhad parametru v nelineární regresi.



Obrázek 9.: Modelové (zeleně), korigované (červeně) a pozorované (černě) hodnoty koncentrací na stanicích Praha-Vysočany (nahore) a Uherské Hradiště (dole).



Obrázek 10.: Rozptylové grafy pozorovaných vs. modelovaných/korigovaných hodnot přízemních koncentrací  $\text{NO}_2$ . Levé dva grafy znázorňují pozorované vs. modelované a pozorované vs. korigované hodnoty na všech 66 stanicích AIM, pravé dva grafy totéž pouze pro pražské stanice.

Obrázek 9 ukazuje příklad dvou stanic s rozdílným chováním. Na stanici Praha-Vysočany (obdobně i na dalších pražských stanicích) je korekce vychýlení modelu vůči pozemním pozorováním relativně úspěšná, což naznačuje existenci vychýlení modelu na ploše velikosti nejméně velikosti satelitního bodu, které zasahuje významnou část vertikálních vrstev. Je pravděpodobné, že vychýlení na této konkrétní stanici je způsobeno převážně podhodnocenými emisemi z dopravy na území Prahy a jejím okolí. Naopak stanice Uherské Hradiště ukazuje příklad stanice, jejíž vychýlení modelu oproti pozorováním není daným postupem korigováno. To naznačuje případ, kdy oblast vychýlení je výrazně menší, než satelitní bod, či postihuje pouze přízemní vrstvu, tedy jedná se o stanici, jejíž pozorování nejsou reprezentativní vůči modelu, pravděpodobně kvůli lokálnímu zdroji emisí. Po dalším upřesnění a verifikaci bude zřejmě možné tento test používat jako test reprezentativity stanice a tudíž vhodnosti dat ze stanice pro asimilaci. Obrázek 10 pak dává představu o celkovém chování tohoto testu na všech stanicích AIM a na stanicích AIM umístěných na území Prahy.

Provedené experimenty naznačují, že satelitní data mohou přispět minimálně v následujících oblastech:

- a) Identifikace stanic s dostatečnou reprezentativitou vhodných pro zařazení do procesu asimilace dat.
- b) Oprava emisních inventářů pro jednotlivé regiony.
- c) Vylepšení modelování koncentrací pomocí asimilace satelitních pozorování do CTM modelu.

Experimenty, které se budou zabývat schopností přispět k vylepšení denního cyklu emisí budou provádět poté, co budou k dispozici alespoň experimentální data z satelitních pozorování GOME-2.

## 8. Závěry

Cílem této práce bylo shrnout stávající stav zkoumání vztahů mezi emisemi a koncentracemi znečišťujících látek v ovzduší a nastínění možných postupů. Celkovým cílem je vylepšit emisní vstupy a tím zpřesnit modelování koncentrací studovaných látek a zároveň lépe odhadnout účinnost možných opatření pro snižování emisí. Mezi sledovanými látkami je hlavní pozornost věnována modelování látek ovlivňujících tvorbu přízemního ozónu, tedy hlavně oxidů dusíku ( $\text{NO}_x$ ) a těkavých organických látek (VOC). Simulace pak budou prováděny pro vhodné dostatečně dlouhé období zahrnující alespoň jednu ozónovou epizodu na oblastech České republiky a Evropy.

Pro dosažení výsledku budou použity vhodné a dostupné metody (viz kapitola 3), přičemž hlavní důraz bude kladen na variační metodu 4D-Var s využitím experimentální implementace adjungovaného modelu pro model CMAQ. Postupné kroky k dosažení cíle budou následující:

- a) Technicky zvládnout a dopracovat experimentální kód adjungovaného modelu CMAQ a vytvořit potřebnou programovou infrastrukturu pro práci s pozorováními a pro asimilační algoritmy 4D-Var.
- b) Ověřit správnost experimentálního kódu a schopnost metody adjungovaného modelu hledat zpětné citlivosti modelu a gradient cílové funkce pro CTM porovnáním s výsledky získanými jinou vhodnou metodou na modelových datech.

- c) S využitím stávajících zkušeností a postupů navrhnout nový či vylepšený model kovarianční struktury chyb modelu a pozorování.
- d) Navrhnout metodu, která bude synergickým působením modelu a pozemních i satelitních pozorování odhadovat lokální, tedy mezoměřítkovými modely nezachytitelnou složku pozorování z pozemních stanic. Podle této metody navrhnout experimenty, na základě jejichž výsledků budou pozorování ze stanic očištěna od této složky, či bude proveden výběr stanic vhodných pro zahrnutí do následujících asimilačních experimentů.
- e) Na základě výsledků předchozích etap navrhnout a provést experimenty na reálných historických datech pro území České republiky případně i Evropy za období minimálně 1 měsíc s cílem vylepšit odhady emisních úhrnů pro jednotlivé regiony.
- f) Provést testy možného přínosu satelitních pozorování z více satelitů k opravě denních, týdenních a ročních chodů emisního modelu.
- g) Výsledky promítnout do návrhu oprav emisních inventářů, případně též emisního modelu.

Předpokládané vědecké přínosy práce:

- a) Aplikace metod inverzního modelování emisí pomocí 4D-Var v prostředí regionálních Eulerovských CTM se synergickým využitím pozemních a satelitních pozorování.
- b) Vylepšení metod generování kovarianční struktury chyb modelu pro CTM.
- c) Řešení problému špatné reprezentativity pozorování z některých pozemních stanic identifikací a odstraněním lokální složky pozorování, případně návrhem metody pro identifikaci a výběr vhodných dostatečně reprezentativních stanic.

Předpokládané praktické přínosy práce:

- a) Výsledky poskytnou podklady pro opravu emisních inventářů a umožní tak snížit vysokou nejistotu v emisích.
- b) Vylepšení shody výsledků modelování koncentrací látek v ovzduší pomocí CTM s pozorováními.
- c) Odstranění či snížení vychýlení modelu umožní aplikace postupů asimilace dat v prostředí CTM.

## 9. Grantová podpora

Tato práce je podporována následujícími projekty:

- a) Projekt GA AV ČR "Modelování čistoty ovzduší s aplikacemi v krizovém managementu" s programu „Informační společnost“.
- b) Projekt MŽP ČR SP/1a4/107/07 „Zdokonalení a zpřesnění modelování znečištění ovzduší a získání podkladu pro predikci zdravotního rizika“ programu VaV.
- c) ACCENT - Network of Excellence podporován EC, FP6, PRIORITY 1.1.6.3 „Global Change and Ecosystems“

## 10. Citované zdroje

[**Bannister 2001**] Ross N. Bannister: *Elementary 4D-Var – DARC Technical Report No. 2, Data Assimilation Research Centre, University of Reading, UK, 2001*

[**Boersma 2004**] Boersma, K. F.: *Satellite observations of tropospheric nitrogen dioxide: retrieval, interpretation, and modelling, Disertační práce, Technische Universiteit Eindhoven, 2004*

[**Boersma et al. 2004**] Boersma, K. F., H. J. Eskes, and E. J. Brinkma: *Error Analysis for Tropospheric NO<sub>2</sub> Retrieval from Space, Journal of Geophysical Research, vol. 109, D04311, doi:10.1029/2003JD003962, 2004*

[**CAMx Users Guide**] : *Users Guide - Comprehensive Air Quality Model with Extensions Version 4.4, Environ Corp., 2006*

[**Carter 2000**] William P. L. Carter: *Documentation of the SAPRC-99 Chemical Mechanism for VOC Reactivity Assessment, Final Report to California Air Resources Board Contract No. 92-329, and 95-308, May 2000*

[**Cohan 2004**] Daniel S. Cohan: *Photochemical Formation and Cost-Efficient Abatement of Ozone High Order Sensitivity Analysis, Disertace, Georgia Institute of Technology, 2004*

[**Constantinescu et al. 2006**] Emil M. Constantinescu, Tianfeng Chai, Adrian Sandu and Gregory R. Carmichael: *Autoregressive Models of Background Errors for Chemical Data Assimilation, Computer Science Technical Report, TR-06-22 (926), Virginia Polytechnic Institute and State University, 2006*

[**Cuveliera et al. 2007**] C. Cuveliera, P. Thunisa, R. Vautard, et al.: *CityDelta: A model inter-comparison study to explore the impact of emission reductions in European cities in 2010, Atmospheric Environment 41 (2007) 189-207, 2007*

[**Daescu et al. 2003**] D.Daescu, A.Sandu, G.Carmichael: *Direct and adjoint sensitivity analysis of chemical kinetic systems with KPP: Part II—numerical validation and applications, Tech.Report, Institute for Mathematics and its Applications, University of Minnesota, 2003*

[**Dunker 1984**] Alan M. Dunker: *The decoupled direct method for calculating sensitivity coefficients in chemical kinetics., J. Chem. Phys. 81, 2385-2393., 1984*

[**Dunker et al. 2002**] Alan M.Dunker, Greg Yarwood, Jerome P.Ortmann, Gary M.Wilson: *The Decoupled Direct Method for Sensitivity Analysis in a Three-Dimensional Air Quality Model s Implementation, Accuracy, and Efficiency, Environ. Sci. Technol. 2002, 36, 2965-2976, 2002*

[**Eben et al. 2005a**] K.Eben, P.Jurus, J.Resler, M.Belda, E.Pelikan, B.C.Kruger and J.Keder: *An ensemble Kalman [FB01?]lter for short term forecasting of tropospheric ozone concentrations, Q. J. R. Meteorol. Soc., 2005*

[**Eben et al. 2005b**] K.Eben, P.Jurus, J.Resler, M.Belda and B.C.Kruger: *MEDARD - an Environmental Modelling Project for the Territory of the Czech Republic, ERCIM News No.61, April 2005, 18-19, 2005*

[**Eben et al. 2005c**] K.Eben, P.Jurus, J.Resler, M.Belda, E.Pelikan, B.Krueger, J.Keder: *Towards an operational air quality forecast with data assimilation for the Czech Republic, Abstracts, 4th WMO International Symposium on Assimilation of Observations in Meteorology and Oceanography, 18-22 April 2005, Prague, 2005*

[**Eben et al. 2006**] K.Eben, J.Resler and P.Jurus: *Accounting for representativity of ground-level air pollution monitoring stations in data assimilation systems, Geophysical Research Abstracts, Vol. 8, 10015, 2006, 2006*

[**Eben et al. 2007a**] K.Eben, J.Resler, P.Jurus, M.Belda: *A comparison of satellite-retrieved tropospheric NO<sub>2</sub> columns with model values from a mesoscale model, Abstracts, Sixth AT2 Workshop, Bremen, 2007*

[**Eben et al. 2007b**] Krystof Eben, Jaroslav Resler, Pavel Jurus and Michal Belda: *A comparison of tropospheric NO<sub>2</sub> columns from SCIAMACHY and OMI with model values from the mesoscale model CAMx, published in Tropospheric Sounding from Space ACCENT-TROPOSAT-2 in 2006-7, editors John Burrows and Peter Borrell (in print), 2007*

[**Eben et al. 2007c**] K.Eben, P.Jurus, J.Resler, M.Belda: *Ensemble Filtering in Air Quality Models, Abstracts, 18th TIES Conference, Mikulov, 2007*

[**Elbern et al. 2000**] H. Elbern, H. Schmidt, O. Talagrand, A. Ebel: *4D-variational data assimilation with an adjoint air quality model for emission analysis, Environmental Modelling & Software 15 (2000) 539-548, 2000*

- [**Fuentes et al. 2006**] Montserrat Fuentes, Adrian E. Raftery: *Model Evaluation and Spatial Interpolation by Bayesian Combination of Observations with Outputs from Numerical Models*, *Biometrics* 61, 36-45, 2006
- [**Gaspari et al. 1999**] Gaspari, G. and Cohn, S.E.: *Construction of correlation functions in two and three dimensions.*, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 125, 723-757, 1999
- [**Gery et al. 1989**] M.W. Gery, G.Z. Whitten, J.P. Killus and M.C. Dodge: *A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale computer modeling*, *Journal of Geophysical Research*. v94 iD10. 12925-12956., 1989
- [**Giering et al. 1999**] R.Giering,T.Kaminski: *Recipes for Adjoint Code Construction*, *ACM Transactions on Mathematical Software*, Vol. 24, No. 4, 1999
- [**Hakami et al. 2006a**] Amir Hakami, John H. Seinfeld, Adrian Sandu, Kumaresh Singh, Daewon Byun, Peter P. Percell, Violeta Coarfa, Qinbin Li: *Development of Adjoint Sensitivity Analysis Capabilities for CMAQ*, *Tech.Report, California Institute of Technology*, 2006
- [**Hakami et al. 2006b**] Amir Hakami, John H. Seinfeld, Qinbin Li, Adrian Sandu, Kumaresh Singh, Daewon Byun, Peter P. Percell, Violeta Coarfa: *Satellite-based Inversion of NOx Emissions Using the Adjoint Version of CMAQ*, *Tech.Report, California Institute of Technology*, 2006
- [**Hanea et al. 2004**] Remus G. Hanea, Guus J. M. Velders, Arnold Heemink: *Data assimilation of ground-level ozone in Europe with a Kalman filter and chemistry transport model*, *Journal of Geophysical Research*, vol. 109, D10302, doi:10.1029/2003JD004283, 2004
- [**Heald et al. 2004**] Colette Heald, Daniel Jacob, Dylan Jones, Paul Palmer, et al.: *Comparative inverse analysis of satellite (MOPITT) and aircraft (TRACE-P) observations to estimate Asian sources of carbon monoxide*, *Journal of Geophysical Research*, vol. 109, D23306, doi:10.1029/2004JD005185, 2004, 2004
- [**Henze et al. 2005**] Daven Henze, John H. Seinfeld: *Constructing an Adjoint for GEOS-CHEM*, *Presentation on 2 GEOS-CHEM Users Meeting, Harvard University, April 4-6, 2005*, 2005
- [**Henze et al. 2006**] D. K. Henze and J. H. Seinfeld: *Development of the adjoint of GEOS-Chem*, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 6, 10591-10648, 2006, 2006
- [**Jacobs 2003**] Daniel J. Jacob, James H. Crawford, Mary M. Kleb, Vickie S. Connors, Richard J. Bendura, James L. Raper, Glen W. Sachse, John C. Gille, Louisa Emmons, and Colette L. Heald: *Transport and Chemical Evolution over the Pacific (TRACE-P) aircraft mission: Design, execution, and first results*, *Journal of Geophysical Research*, vol. 108, no. D20, 9000, doi:10.1029/2002JD003276, 2003, 2003
- [**Jurus 2006**] Pavel Jurus: *Downscaling in the context of data assimilation*, *Sborník Doktorandský den '06, Ústav informatiky AV ČR, Sedlec-Prčice 20.-22.září 2006*, 2006
- [**Kruger et al. 2002**] Bernd C.Kruger, Wolfgang Schmittner: *Modellierung des Transports und der Chemie von Luftschadstoffen in der Region Wien, Weiterentwicklung und Anwendung eines Luftgute-Simulationsmodells für den Grossraum Wien*, 2002
- [**Kumar et al. 1997**] Naresh Kumar, Frederick W. Lurmann: *Peer Review of Environ's Ozone source Apportionment Technology and the CAMx Air Quality Models*, *Environ, Revised Final Report STI-996203-1732-RFR*, 1997
- [**Liang et al. 2006**] Jinyou Liang, Bruce Jackson, Ajith Kaduwela: *Evaluation of the ability of indicator species ratios to determine the sensitivity of ozone to reductions in emissions of volatile organic compounds and oxides of nitrogen in northern California*, *Atmospheric Environment* 40 (2006) 5156-5166, 2006
- [**Lin et al. 2005**] Lin CJ, Ho TC, Chu HW, Yang H, Chandru S, Krishnarajanagar N, Chiou P, Hopper JR: *Sensitivity analysis of ground-level ozone concentration to emission changes in two urban regions of southeast Texas*, *Journal of Environmental Management* 75 (2005) 315-323, 2005
- [**Mallet et al. 2005**] Vivien Mallet and Bruno Sportisse: *A comprehensive study of ozone sensitivity with respect to emissions over Europe with a chemistry-transport model*, *Journal of Geophysical Research*, 2005
- [**MEDARD**] [www.medard-online.cz](http://www.medard-online.cz): *www stránky projektu MEDARD*, *Ústav Informatiky AV ČR*,
- [**Menut 2003**] Laurent Menut: *Adjoint modeling for atmospheric pollution process sensitivity at regional scale*, *Journal of Geophysical Research*, vol. 108, no. D17, 8562, doi:10.1029/2002JD002549, 2003, 2003
- [**Menut et al. 2006**] Menut L., I.Pison, N.Blond: *Inverse modelling of local surface emissions with the chimere - adjoint model: The case of the Paris area during the ESQUIF field experiment*, *Ext.Abstract, 28th NATO/CCMS International Technical Meeting on Air Pollution Modelling and its Application*, 2006



- [**Morris et al. 2006**] Ralph Morris, Bonyoung Koo, Gary Wilson and Greg Yarwood: Use of Advanced Ozone Source Apportionment Techniques to Estimate Area of Influence (AOI) of Emissions Contributions to Elevated Ozone Concentrations, *Extended Abstracts of CMAS Conference 2006*, 2006
- [**Morris et al. 2005**] Ralph E. Morris, Edward Tai et al.: A Methodology for Quantifying Ozone Transport and Assessing the Benefits of Alternative Control Strategies, *Environ*, tech.report, Paper #933, 2005
- [**Parrish et al. 1992**] Parrish, D. and J. Derber: The National Meteorological Center's spectral statistical interpolation analysis system., *Monthly Weather Review*, 120, 1747-1763, 1992
- [**Pitts 2000**] Barbara Finlayson-Pitts and James Pitts, Jr.: *Chemistry of the Upper and Lower Atmosphere*, Academic Press, London, ISBN: 978-0-12-257060-5, 2000
- [**Resler et al. 2005**] J.Resler, P. Jurus, K. Eben, M. Belda: Comparison of selected methods of ensemble generation in EnKF for air-quality modelling, *Abstracts, 4th WMO International Symposium on Assimilation of Observations in Meteorology and Oceanography*, 18-22 April 2005, Prague, 2005
- [**Resler et al. 2007**] Jaroslav Resler, Krystof Eben, Pavel Jurus and Michal Belda: A comparison of tropospheric NO<sub>2</sub> columns from SCIAMACHY and OMI with model values from the mesoscale model CAMx, *Abstracts, 2nd ACCENT Symposium, Urbino, 2007*
- [**Rodgers 2000**] Clive D Rodgers: *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*, Singapore ; [River Edge, N.J.] : World Scientific, ISBN: 981022740X 9789810227401, 2000
- [**Sandu et al. 2003**] Adrian Sandu, Dacian N. Daescu, Gregory R. Carmichael: Direct and adjoint sensitivity analysis of chemical kinetic systems with KPP: Part I—theory and software tools, *Atmos. Environ.* 37 (2003) 5083-5096., 2003
- [**Sandu et al. 2006**] Adrian Sandu, Zhang Lin, Emil M.Constantinescu: Report for Project H59 4D-Var Data Assimilation Part II: June 2005 episode, Report for Project H59, Virginia Polytechnic Institute and State University, 2006
- [**van der A et al. 2006a**] R.J. van der A, H.J. Eskes: Product Specification Document Tropospheric NO<sub>2</sub>, Tech.Report, project TEMIS, TEM/PSD1/001, 2006
- [**van der A et al. 2006b**] R.J. van der A, H.J. Eskes, M. Van Roozendael, I. De Smedt, N. Blond, F. Boersma, A. Weiss: Algorithm Document Tropospheric NO<sub>2</sub>, Tech.Report, project TEMIS, TEM/PSD1/001, 2006
- [**Whitaker et al. 2002**] Whitaker J.S. and Hamill T.M.: Ensemble data assimilation without perturbed observations., *Mon. Weather Rev.*, 130 1913–1924, 2002
- [**Yarwood 2005b**] Greg Yarwood, Gary Wilson, Ralph Morris: Development of the CAMx Particulate Source Apportionment Technology, *Environ*, Final Report for Lake Michigan Air Directors Consortium, 2005
- [**Yarwood et al. 2003**] Greg Yarwood, Ralph E. Morris, Steven Lau, Usha Ganesh: Guidance on the Application of CAMx Probing Tools, Final report of CRC Project A-37-2, 2003
- [**Yarwood et al. 2004**] Greg Yarwood, Till Stoeckenius, Steven Lau: Top-Down Evaluation of the Houston Emission Inventory using Inverse Modeling, Final Report, *Environ*, 2004
- [**Yarwood et al. 2005a**] Greg Yarwood, Ralph E. Morris, Gary M. Wilson: Particulate Matter Source Apportionment Technology (PSAT) in the CAMx Photochemical Grid Model, *Environ*, Technical report, 2005
- [**Yumimoto et al. 2006**] Keiya Yumimoto, Itsushi Uno: Adjoint inverse modeling of CO emissions over Eastern Asia using four-dimensional variational data assimilation, *Atmospheric Environment* 40 (2006) 6836–6845, 2006