

УДК 551. 510.42

ОЦЕНКА ПРОСТРАНСТВЕННОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ПОТЕНЦИАЛЬНЫХ ИСТОЧНИКОВ УГЛЕРОДСОДЕРЖАЩЕГО АЭРОЗОЛЯ ПО ДАННЫМ ЛОКАЛЬНЫХ ИЗМЕРЕНИЙ ВБЛИЗИ САНКТ-ПЕТЕРБУРГА

© 2023 г. С. С. Власенко^а, *, О. А. Иванова^а, Т. И. Рышкевич^а, Е. Ф. Михайлов^а

^аСанкт-Петербургский государственный университет,
Университетская наб., 7/9, Санкт-Петербург, 199034 Россия

*e-mail: s.vlasenko@spbu.ru

Поступила в редакцию 10.07.2023 г.

После доработки 24.07.2023 г.

Принята к публикации 28.08.2023 г.

Представлены результаты траекторного анализа данных девятилетних измерений (2013–2021 гг.) концентрации органического (ОС) и элементарного (ЕС) аэрозольного углерода, выполненных на станции атмосферного мониторинга вблизи Санкт-Петербурга (Петергоф, 59.88° с.ш., 29.83° в.д.). Пространственное расположение источников углеродосодержащих частиц аэрозоля оценивалось методом концентрационно-взвешенных траекторий (CWT – concentration weighted trajectory) в географической области 16°–44° в.д. × 48°–68° с.ш. Полученные данные позволяют выделить территории с наиболее сильными эмиссиями органического и элементарного углерода и оценить сезонную изменчивость этих эмиссий. В частности, полученные оценки показывают, что наиболее интенсивные источники органического и элементарного аэрозольного углерода в исследуемом регионе расположены в междуречье Волги и Оки и на прилегающих территориях. Продемонстрировано, что коэффициенты линейной регрессии между значениями CWT функций органического и элементарного углерода различаются для разных регионов и сезонов и указывают на преобладающий тип источников углеродосодержащих аэрозольных частиц.

Ключевые слова: состав атмосферы, углеродсодержащий аэрозоль, траекторные методы, элементарный углерод, органический углерод

DOI: 10.31857/S0002351523060123, EDN: TFEWGK

1. ВВЕДЕНИЕ

Сильные вариации оптических и микрофизических характеристик атмосферного аэрозоля во многом связаны с изменчивостью химического состава аэрозольных частиц, которая, в свою очередь, обусловлена разнообразием источников аэрозолей в атмосфере. Углеродсодержащий аэрозоль является одним из наиболее значимых по влиянию на климат компонентов атмосферы, массовая доля которого в общем количестве аэрозольной фракции оценивается в 15–40% в зависимости от региона планеты [Andreae et al., 2008]. При этом углерод может находиться в аэрозольном веществе как в элементарной форме (elemental carbon, ЕС), так и в составе сложных органических соединений (organic carbon, ОС). Оба типа аэрозольного углерода образуются главным образом при горении органических материалов: различных видов ископаемого топлива, биомассы и пр. По литературным данным [Bond et al., 2004; Ito et al., 2005] в результате сжигания ископаемого топлива, био-

топлива и открытого горения биомассы ежегодный выброс первичного органического углерода составляет от 5 до 17 Тг/год, а элементарного от 6 до 8 Тг. При этом отмечается, что за период с 1870 по 2000 год выбросы органического и элементарного углерода увеличились в три раза, следовательно, основная часть эмиссии аэрозольного углерода связана с антропогенными источниками. Другой канал поступления органического углерода в атмосферу – вторичный органический аэрозоль (secondary organic aerosol, SOA), который формируется в результате конденсации и фотохимической конверсии летучих органических соединений, как антропогенного, так и, главным образом, биогенного происхождения (монотерпены, изопрен) [Михайлов и др., 2015]. В последние годы был проведен ряд исследований для оценки эмиссии SOA [Chung et al., 2005; Kanakidou et al., 2005], однако приводимые значения характеризуются большим разбросом (2.5–79 Тг/год для аэрозолей биогенного и 0.05–2.6 Тг/год для аэрозолей

антропогенного происхождения). В качестве наилучшей оценки рекомендуют ориентироваться на значения эмиссий биогенных и антропогенных источников SOA в 34 Тг/год и 2 Тг/год соответственно [Levin et al., 2009]. Элементарный углерод активно поглощает солнечное излучение на всех длинах волн, что обуславливает его заметный положительный вклад в радиационный форсинг. По данным межправительственной группы экспертов по изменению климата (IPCC) значение форсинга связанное с элементарным углеродом оценивается $+0.20 \pm 0.15$ Вт/м² [Forster et al., 2007]. Органический углерод в большинстве климатических моделей рассматривается как практически непоглощающий компонент, с которым связан отрицательный вклад в радиационный форсинг, оцениваемый той же группой экспертов на уровне -0.05 ± 0.05 Вт/м² [Forster et al., 2007]. Приведенные значения показывают существенную неопределенность климатической роли углеродсодержащих аэрозолей, которая еще больше усиливается за счет косвенного радиационного эффекта, обусловленного конденсационной активностью частиц, содержащих водорастворимый органический углерод [Carslaw et al., 2013]. В целом, несмотря на большое количество работ, посвященных атмосферным аэрозолям, именно широкий диапазон возможных значений аэрозольного радиационного форсинга вносит наибольший вклад в общую погрешность атмосферных климатических оценок. Наиболее достоверное значение прямого радиационного аэрозольного форсинга составляет -0.45 ± 0.5 Вт/м², а косвенного — 0.45 Вт/м² с доверительным интервалом от -1.2 до 0.0 Вт/м² [Gulev et al., 2021].

Отмеченная выше неопределенность во многом обусловлена сильной пространственно-временной изменчивостью углеродсодержащих аэрозолей, которая, в свою очередь, во многом связана с разнообразием источников поступления таких частиц в атмосферу. Поэтому для улучшения точности оценок аэрозольных климатических эффектов необходимы систематические наблюдения за вариациями состава и концентрации аэродисперсных частиц, а также изучение расположения и продуктивности источников атмосферных аэрозолей. Известно много работ, посвященных обсуждению результатов локальных наблюдений [Попова и др., 2009; Сафатов и др., 2013; Grivas et al., 2012; Cao et al., 2013; Singh et al., 2014; Mikhailov et al., 2017; Власенко и др., 2019], проводимых в разных регионах планеты и различающихся методами и продолжительностью измерений, а также набором измеряемых параметров. В последнее время при анализе атмосферных данных широко используются рецепторные модели (source-receptor models), которые позволяют по локальным измерениям концентрации како-

го-либо компонента в одной точке получать информацию о пространственном распределении потенциальных источников этого компонента [Норке, 2023]. Наибольшее распространение при решении подобных задач получили траекторные методы, основанные на анализе массива обратных траекторий воздушных масс исходящих из точки измерений. В литературе описано достаточно много таких методик [Zhou et al., 2004; Pekney et al., 2006; Bylenkien et al., 2014], но чаще всего применяются концептуально близкие методы расчета функции вклада потенциальных источников (PSCF — potential source contribution function) и анализа концентрационно-взвешенных траекторий (CWT — concentration weighted trajectory) [Zachary et al., 2018; Hao et al., 2019; Yan et al., 2015], которые пригодны для анализа как газовых [Giemsa et al., 2019; Cassol et al., 2020], так и аэрозольных [Kim et al., 2004; Pekney et al., 2006; Zachary et al., 2018; Hao et al., 2019; Yan et al., 2015] составляющих атмосферы.

С 2013 года по настоящее время в Петергофе (35 км от центра Санкт-Петербурга) на базе ресурсного центра “Геомодель” Научного Парка Санкт-Петербургского государственного университета (СПбГУ) выполняются непрерывные фильтровые измерения содержания в атмосферных аэрозолях элементарного (ЕС) и органического (ОС) углерода [Власенко и др., 2019]. В данной работе приведены оценки пространственного распределения источников углеродсодержащих аэрозолей в регионе С.-Петербурга (северо-запад России) по результатам анализа полученных временных рядов за 2013–2021 гг. с помощью траекторного CWT метода.

2. МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЙ И ОБРАБОТКИ РЕЗУЛЬТАТОВ

Массовые концентрации органического и элементарного углерода в атмосферном аэрозоле определялись по результатам анализа аэрозольных проб, отобранных на кварцевые фильтры. Отбор фильтровых проб производился на высоте 35 м. над уровнем моря (15 м над земной поверхностью) на наблюдательной станции Санкт-Петербургского университета, расположенной в Петергофе (59.88° с.ш., 29.83° в.д.) на юго-западной границе Санкт-Петербурга. Скорость потока воздуха при заборе составляла 15 л/мин, при этом смена фильтров осуществлялась раз в 5–7 суток.

Содержание ОС и ЕС в пробах определялось с помощью термооптического анализатора (Thermal/Optical-Transmittance Carbon Aerosol Analyzer; Sunset Laboratory Inc., USA) с использованием протокола NIOSH870 с максимальной температурой нагрева образца равной 870°C. Более детально методика анализа фильтровых проб описана в работах [Birch et al., 1996; Birch, 1998;

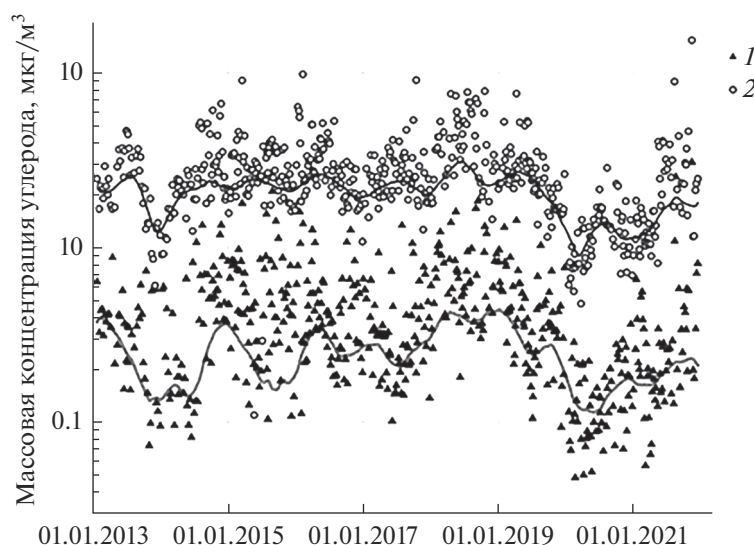


Рис. 1. Временной ход массовой концентрации элементарного (1) и органического (2) аэрозольного углерода по данным измерений в Петербурге в 2013–2021 гг. Сплошными линиями показаны рассчитанные фоновые концентрации.

Mikhailov et al., 2017; Власенко и др., 2019], где оценены основные факторы, влияющие на точность получаемых средних за период экспонирования фильтра значений массовых концентраций ЕС и ОС. Всего за время с января 2013 года по декабрь 2021 года было получено и проанализировано 553 фильтровые пробы. Средняя относительная погрешность определения концентрации углерода составила 6%.

Полученные таким образом значения массовой концентрации органического и элементарного углерода в атмосферных аэрозолях вблизи Санкт-Петербурга приведены на рис. 1. За дату каждого измерения концентраций ОС и ЕС принята середина периода отбора соответствующей пробы. Видно, что содержание аэрозольного углерода быстро изменяется в широких пределах, как для ОС так и для ЕС максимальные значения концентраций в десятки раз превосходят минимальные. Такая вариативность характерна для локальных аэрозольных измерений и связана как с нестационарностью движения воздушных масс, так и с наличием в регионе большого количества источников углеродсодержащих частиц, сильно различающихся по своему расположению, размерам, мощности и продолжительности действия. Поэтому при анализе подобных временных рядов принято различать периоды с высоким (“загрязненные”) и низким (“чистые” или “фоновые”) содержанием измеряемого компонента [Chi et al., 2013; Mikhailov et al., 2017; Власенко и др., 2019]. При этом под “фоновыми” условиями понимается состояние атмосферы без заметного воздействия местных или региональных источников загрязнения, но под влиянием выбросов естественного происхождения, а также загрязнения,

переносимого от удаленных источников [Andreae, 2007; Chi et al., 2013]. То есть фоновая концентрация какой-либо примеси в атмосфере определяется эмиссией естественных источников и дальним переносом. Определение фоновой концентрации и, соответственно, разделение исследуемых временных рядов на фоновые и загрязненные периоды проводилось с помощью REBS алгоритма, изначально разработанного для определения нулевой линии в спектроскопических измерениях [Ruckstuhl et al., 2001], но затем успешно адаптированного к задачам анализа концентрации газовых [Zhang et al., 2011; Ruckstuhl et al., 2012; Chi et al., 2013] и аэрозольных [Chi et al., 2013; Mikhailov et al., 2017] примесей в атмосфере. Подробно применение этого алгоритма к обработке данных фильтровых аэрозольных измерений изложено в [Власенко и др., 2019], рассчитанные таким образом фоновые массовые концентрации ЕС и ОС так же показаны на рис. 1.

3. МЕТОД КОНЦЕНТРАЦИОННО-ВЗВЕШЕННЫХ ТРАЕКТОРИЙ

Пространственная локализация потенциальных источников углеродсодержащих аэрозолей оценивалась по приведенным данным измерений с применением траекторного SWT метода. Как уже указывалось, все траекторные методы требуют расчета массива обратных траекторий воздушных масс, начинающихся в месте, где расположена наблюдательная станция в моменты времени, соответствующие времени проведения измерений. Таким образом каждой траектории соответствует значение концентрации изучаемого компонента в точке измерений. В данной работе, как и

во многих других [Yan et al., 2015; Hao et al., 2019; Cassol et al. 2020], для построения обратных траекторий использовалась модель HYSPLIT [Stein et al., 2015]. Географическая область, в которой производится поиск источников загрязнения, разбивается координатной сеткой на двумерный массив ячеек. Каждой ячейке сопоставляется взвешенное по траекториям значение концентрации аэрозольного компонента C_{ij} по формуле [Hao et al., 2019]:

$$C_{ij} = \frac{1}{N} \sum_{l=1}^N C_l \tau_{ijl}, \quad (1)$$

где i, j — индексы ячейки, l — номер траектории, N — общее число траекторий, C_l — концентрация компонента, измеряемая в точке наблюдения в момент прихода траектории с номером l , τ_{ijl} — время, в течении которого траектория с номером l проходит над ячейкой с номером i, j . Величину C_{ij} часто называют CWT функцией и она имеет смысл средней за время измерений концентрации аэрозольного компонента, приносимого в точку наблюдения из ячейки с индексами i, j . Чем выше ее значение для данной ячейки, тем в среднем более мощные источники расположены в этой ячейке. В данной работе CWT функция рассчитывалась в географической области 16° – 44° в.д. $\times$ 48° – 68° с.ш. поделенной на 150×250 ячеек. Характерный размер ячейки составил около 10 км. Обратные траектории строились продолжительностью 5 суток с интервалом времени прихода в точку наблюдений 1 час. Таким образом общее количество обработанных обратных траекторий составило около восьмидесяти тысяч. Надо отметить, что подавляющее большинство траекторий проходили указанный географический домен менее, чем за 3 суток. Поскольку углеродсодержащий аэрозоль относится главным образом к субмикронной фракции [Волкова и др., 2020], его время жизни существенно превышает длительность обратных траекторий и его можно считать в первом приближении консервативной примесью. Значение средней массовой концентрации ЕС и ОС, определяемое по данным анализа фильтровой пробы приписывалось всем траекториям, приходящим в точку измерений в течении времени отбора данного фильтра — величина C_l в выражении (1).

Основные источники углеродсодержащих аэрозольных частиц расположены на поверхности. Поэтому в данной работе в формуле для расчета CWT функции учитываются только те участки траекторий, которые над данной ячейкой проходят на высоте меньшей, чем высота слоя перемешивания. Высота слоя перемешивания и высота траектории рассчитываются в модели HYSPLIT.

Такая модернизация алгоритма уменьшает, на наш взгляд, возможный “маскирующий” эффект от воздушных потоков, траектории которых проходят над источниками на большой высоте и, поэтому, они приносят мало загрязнений в точку измерений. Кроме того, при расчете CWT функции учитывался эффект вымывания аэрозольных частиц осадками. При прохождении траектории через область с интенсивностью осадков выше 0.5 мм/час, вклад от более ранних участков данной траектории в сумму (для вычисления C_{ij} (1) приравнивался к нулю.

Главными факторами, влияющими на точность расчета CWT функции, являются погрешность измерения концентрации компонента, которая обсуждалась выше, и погрешность расчета обратных траекторий, в основном связанная с дискретностью используемых метеорологических данных [Draxler et al., 1998]. То, насколько хорошо метеоданные, представленные на пространственно-временной сетке, отражают реальные атмосферные условия, зависит от расположения областей с резкими градиентами атмосферных параметров относительно точек сетки. Естественно, что состояние атмосферы в исследуемом регионе изменяется практически ежедневно и точность построения обратных траекторий, используемых при расчетах может сильно варьироваться. Разработчики модели HYSPLIT рекомендуют для оценки траекторных ошибок сопоставление прямых и обратных траекторий. Для обратной траектории, построенной из точки измерений, рассчитывается прямая траектория, такой же продолжительности, которая начинается в конечной точке обратной траектории. Удаление конечной точки прямой траектории от пункта измерений характеризует пространственную неопределенность соответствующей траектории. Это расстояние для 85% обратных траекторий, построенных для расчета CWT функции, было меньше 1 км, но для 5% траекторий оно превосходило 100 км, а в единичных случаях было более 1000 км. Влияние этой неопределенности на точность определения C_{ij} оценивалось методом Монте-Карло. Строились случайные траектории, отклоняющиеся от рассчитанной в пределах указанной неопределенности и рассчитывался соответствующий разброс τ_{ijl} . Итоговая оценка погрешности C_{ij} , выполненная по всему ансамблю используемых траекторий, составила менее 15%.

Надо отметить, что вклад источников аэрозолей, лежащих на одной обратной траектории, не может быть разделен, так как дальние источники находятся как бы в “тени” расположенных более близко. Поэтому надежная локализация источников происходит в том случае, если через ячейки где они расположены проходит много несовпадающих обратных траекторий. Понятно, что это

Таблица 1. Значения CWT функции для углеродсодержащих аэрозолей, мкг/м³

Временной период	Органический углерод				Элементарный углерод			
	мин.	сред.	макс.	ско.	мин.	сред.	макс.	ско.
Все измерения	0.86	2.77	9.72	0.81	0.14	0.45	1.88	0.14
“лето”	0.62	3.06	21.0	0.88	0.07	0.38	1.96	0.13
“зима”	0.69	2.47	11.4	0.74	0.11	0.49	2.27	0.17

требование не для всех ячеек выполняется одинаково хорошо, в частности в зоне, прилегающей к точке измерений, траектории, в основном к ней и направлены. Для количественной оценки этого аспекта для каждой ячейки определялось среднее направление проходящих через нее траекторий и дисперсия D_{ij} угла отклонения каждой из этих траекторий от среднего направления. Чем больше эта дисперсия, тем больше несовпадающих траекторий проходит через данную ячейку. Соответственно значение C_{ij} для определенное по формуле (1) для каждой ячейки умножалось на весовой коэффициент:

$$W_{ij} = \frac{D_{ij}}{\sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m D_{ij}} N_c, \quad (2)$$

где $N_c = nm$ — число ячеек.

Использование взвешенной CWT функции позволяет уменьшить вероятность появления ложных источников из-за “плохой” статистики обратных траекторий. Анализ пространственного распределения весовых коэффициентов показывает сильное уменьшение их значений на периферии рассматриваемой географической области, то есть оценка CWT функции для удаленных от центра ячеек становится плохо статистически обусловленной и дальнейшее расширение домена не имеет смысла. Таким образом, использование коэффициентов W_{ij} дает возможность оценить оптимальный размер анализируемой территории для данного массива траекторий.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Для оценки пространственного распределения источников углеродсодержащих аэрозолей в указанной географической области по описанной выше методике, были рассчитаны значения соответствующих CWT функций исходя из данных локальных (г. Петергоф) измерений содержания в аэрозольных частицах органического и элементарного углерода за период с января 2013 г. по декабрь 2021 г. Минимальные, средние и максимальные значения CWT функций для органического и элементарного углерода приведены в табл. 1. Для анализа внутригодовой изменчивости

аэрозольных эмиссий весь цикл измерений был разбит на теплый (“лето”) и холодный (“зима”) сезоны. К теплому периоду относились дни, когда среднедекадная температура в пункте измерений превышала среднюю температуру за весь период наблюдений (+6°C). Значения температур для расчета средних значений определялись по данным модели HYSPLIT. В рассматриваемые годы начало теплой фазы года приходилось на вторую декаду апреля, а окончание на вторую половину октября. Таким образом, весь ансамбль анализируемых траекторий был разбит на два массива, соответствующих теплым и холодным сезонам, по которым рассчитывались “сезонные” CWT функции, минимальные, средние и максимальные значения которых также представлены в табл. 1. Следует признать, что приведенные в табл. 1 данные не дают какой-либо новой информации по сравнению с обычным анализом временных рядов, как это было сделано, например, в работе [Власенко и др., 2019], но они позволяют сделать аналогичные выводы о сезонной изменчивости источников аэрозольного углерода в рамках CWT метода.

Видно, что “летом” эмиссия органического углерода несколько больше, чем “зимой”, в то время как для элементарного углерода имеет место обратное соотношение. Это согласуется с ранее полученными результатами для Петербурга [Власенко и др., 2019], но отличается от данных аналогичных измерений для других урбанизированных регионов, представленных в табл. 2. Например, углеродный анализ аэрозольных фильтровых проб, отобранных в Нидерландах [Dusek et al., 2017] показывает практически двухкратное превышение концентрации как органического, так и элементарного углерода в зимний период, по сравнению с летним. Похожая тенденция наблюдается и для Китая, согласно данным измерений в Чангхуне [Wang et al., 2019] и Гонконге [Ho et al., 2006], при этом полученные значения концентрации аэрозольного углерода в Азии существенно (в 5–10 раз) превышают уровень регистрируемый в Европе.

Кроме того видно, что для неурбанизированных территорий (фоновая станция Зотино в Красноярском крае) концентрация аэрозольного углерода (особенно органического) в летний пе-

Таблица 2. Среднесезонные концентрации органического и элементарного аэрозольного углерода, полученные по измерениям в различных регионах

	Элементарный углерод, мкг/м ³		Органический углерод, мкг/м ³	
	лето	зима	лето	зима
Петербург (Россия)	0.42 ± 0.35	0.46 ± 0.35	3.2 ± 2.1	2.4 ± 1.5
Зотино (Россия)	0.17 ± 0.38	0.12 ± 0.10	3.5 ± 9.3	0.45 ± 0.32
Утрехт (Нидерланды)	0.34 ± 0.16	0.66 ± 0.72	1.0 ± 0.3	2.1 ± 2.3
Чангхун (Китай)	1.35 ± 0.27	2.45 ± 0.38	21.15 ± 2.56	24.03 ± 6.21
Гонгконг (Китай)	3.6 ± 2.1	4.3 ± 2.3	5.9 ± 3.8	8.7 ± 2.8

риод больше, чем в зимний. Таким образом, приведенные данные подтверждают уже упомянутый выше факт существования различных типов источников углеродсодержащих частиц с различным характером сезонной изменчивости [Bond et al., 2004; Ito et al., 2005; Chung et al., 2005; Kanakidou et al., 2005; Chung et al., 2005; Михайлов и др., 2015].

Для классификации аэрозольных источников целесообразно иметь информацию об их пространственном распределении, которую, в частности можно получить CWT методом. На рис. 2 приведены значения CWT функций, рассчитанных для элементарного и органического углерода для теплого и холодного полугодий. Прежде всего надо отметить очевидную неоднородность в пространственном распределении значений CWT функции для ОС и ЕС. Основные потенциальные источники углеродсодержащих аэрозолей сконцентрированы к юго-востоку от Петербурга в регионе верхней Волги (города Москва, Владимир, Ярославль). Другая, более компактная область с высокими значениями CWT функции расположена в среднем течении Днепра, между городами Киев и Кременчуг. Третий район с высокой эмиссией аэрозольного углерода можно выделить в южной части Польши. Для всех этих территорий характерна достаточно высокая плотность городского и сельского населения, большое количество населенных пунктов и промышленных предприятий, то есть их отличает существенное влияние антропогенного фактора на состояние атмосферы.

Интересно, что указанные области различаются типом сезонной изменчивости эмиссий углерода. Если регион верхней Волги характеризуется высокими, по сравнению с окружающими территориями значениями CWT функции в течение всего года, то на севере Украины интенсивная эмиссия наблюдается только в зимний период, а летом она снижается до уровня, характерного для всей приднепровской низменности. Источники, расположенные на юге Польши, наоборот, сильно выделяются по сравнению с окружающими областями только в теплое время года, а зимой их преобладание не столь заметно.

Отмеченные особенности пространственного распределения источников углеродсодержащих аэрозолей относятся как к органическому, так и к элементарному углероду. Рисунок 2 наглядно демонстрирует сильную корреляцию между значениями CWT функций для этих компонент (коэффициент корреляции $R = 0.91 \pm 0.02$). Такая сильная взаимосвязь объясняется тем, что основная доля аэрозольного углерода поступает в атмосферу в результате сгорания органических материалов различного происхождения, когда одновременно продуцируются и органический и элементарный углерод. Причем корреляция между ОС и ЕС в зимний период выше ($R = 0.94 \pm 0.02$), чем в летний ($R = 0.83 \pm 0.02$). Это объясняется действием альтернативных источников органического углерода – формированием в вегетативный период вторичных органических биогенных аэрозолей [Chung et al., 2005; Kanakidou et al., 2005; Levin et al., 2009; Dusek et al., 2017].

Широко известно, что эмиссионное отношение ОС/ЕС различается для разных процессов генерации углеродсодержащих частиц [Andreae et al., 2001; Kondo et al., 2006; Wang et al., 2011] – лесных и степных пожаров, сжигание газа, угля или нефтепродуктов, и, поэтому может использоваться в качестве индикатора происхождения аэрозолей. Понятно, что отношение значений CWT функций для ЕС и ОС не тождественно эмиссионному отношению, но можно ожидать, что оно так же будет различаться в зависимости от типов источников, преобладающих на данной территории.

На рис. 3 показана взаимозависимость между CWT функциями органического и элементарного углерода в теплый и холодный периоды для регионов с мощными аэрозольными источниками, рассмотренными выше (рис. 3а, 3б) и для территорий со средними эмиссиями ОС и ЕС. в качестве которой были выбраны Карелия и Прибалтика (рис. 3в, 3г). Каждая точка на этих графиках соответствует определенной ячейке географической сетки и координаты этой точки соответствуют рассчитанным для ячейки значениям CWT

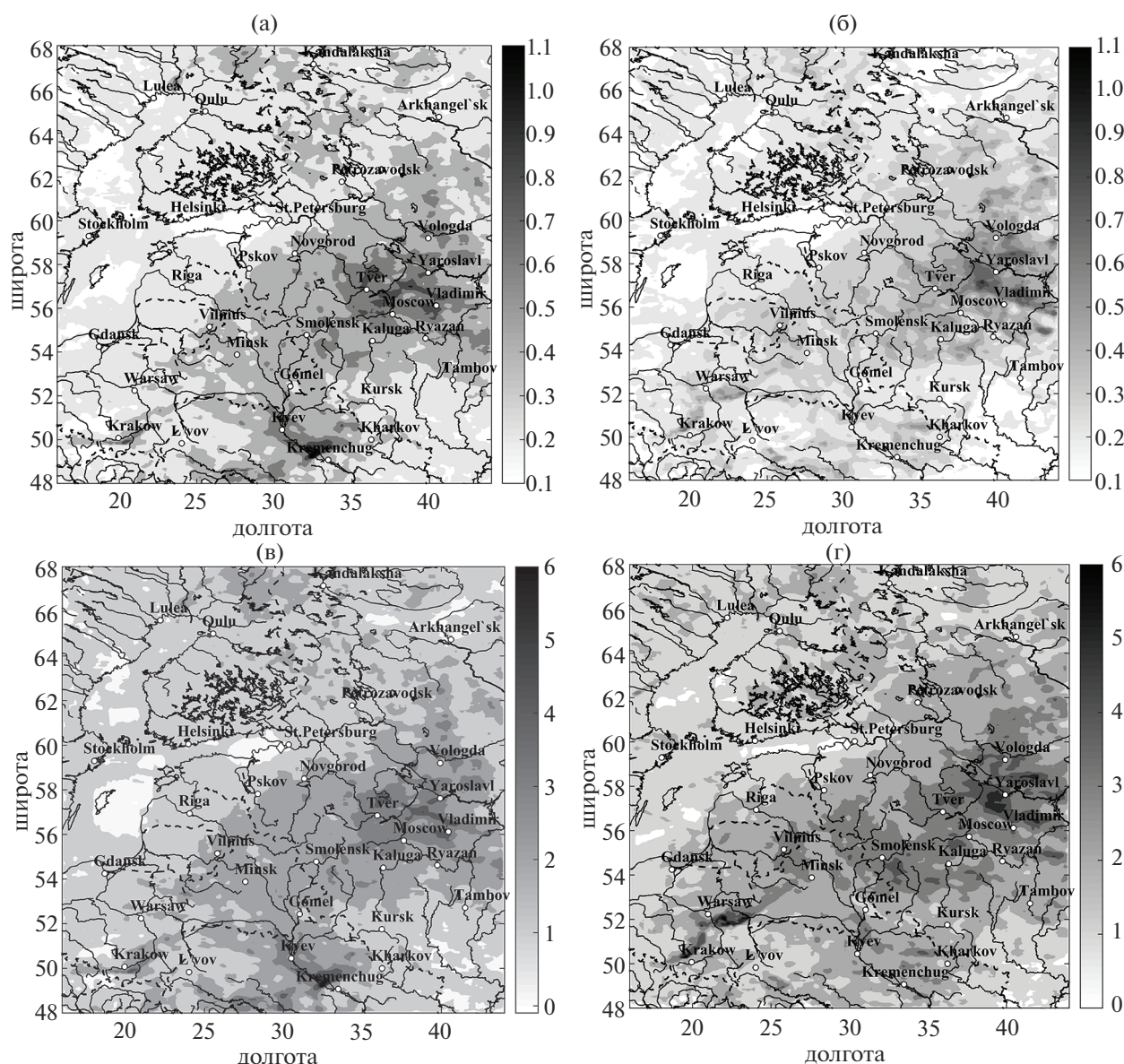


Рис. 2. Пространственное распределение потенциальных источников аэрозольного углерода (значения CWT функции, мкг/м³): (а) — элементарный углерод, холодное полугодие; (б) — элементарный углерод, теплое полугодие; (в) — органический углерод, холодное полугодие; (г) — органический углерод, теплое полугодие.

функции для органического и элементарного углерода.

Для всех рассмотренных областей зависимость хорошо аппроксимируется линейной функцией $OC_{CWT} = rEC_{CWT} + a$, соответствующие коэффициенты регрессии r представлены на графиках. Для территорий с высокой антропогенной нагрузкой коэффициент линейной регрессии для холодного периода практически одинаковый ($r = 4.9 \pm 0.1$), что указывает на идентичность источников аэрозольного углерода, связанных, по-видимому, с интенсивным сжиганием различного ископаемого топлива в отопительный период.

Чтобы подчеркнуть сходство “зимних” интенсивных источников на рис. За показаны данные для обоих южных регионов — видно, что точки практически накладываются друг на друга. Области с низкой антропогенной нагрузкой (рис. 3в, 3г) отличаются несколько большими значениями коэффициента линейной регрессии между значениями CWT функции для ОС и ЕС в холодные периоды ($r = 5.3 \pm 0.1$ и $r = 5.1 \pm 0.1$) и существенно меньшим диапазоном вариаций этих значений. Различие в коэффициентах регрессии, скорее всего, связано с различной структурой топливного баланса в энергетике сравниваемых регионов. В областях, где коэффициент регрессии выше,

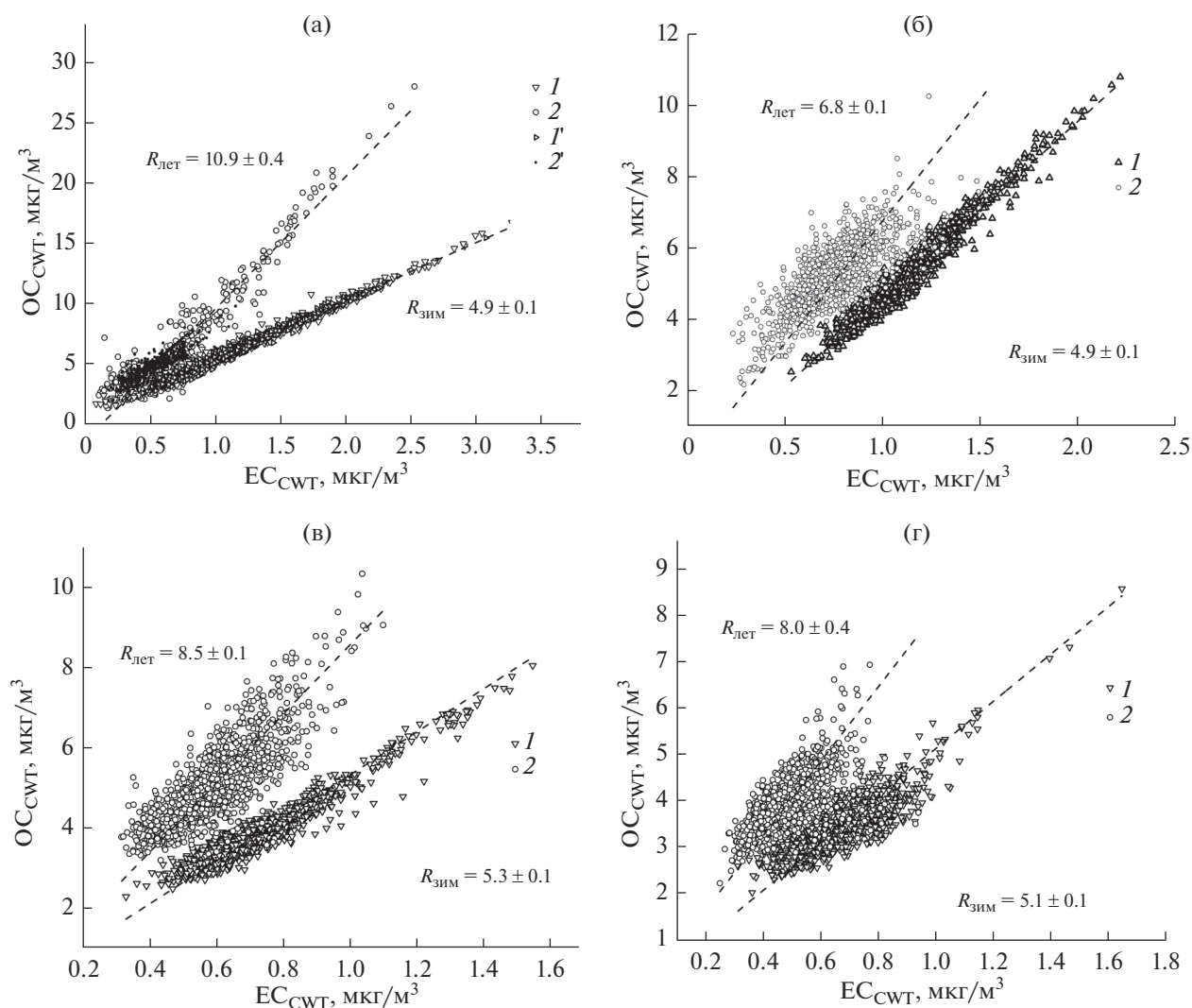


Рис. 3. Корреляция между значениями CWT функций органического и элементарного углерода для различных территорий: (а) — юг Польши (1, 2), север Украины (1', 2'); (б) — регион верхней Волги; (в) — Прибалтика; (г) — Карелия; 1, 1' — холодное полугодие; 2, 2' — теплое полугодие.

для отопления в большей степени используется биотопливо (древесина), для которого эмиссионное отношение ОС/ЕС выше, чем для ископаемых типов топлива (нефтепродукты, уголь) [Andreae et al., 2001; Kondo et al., 2006; Wang et al., 2011], сжигание которого характерно для урбанизированных регионов.

В теплые сезоны для всех сравниваемых регионов характерно резкое увеличение коэффициента линейной регрессии между значениями CWT функции для ОС и ЕС, что указывает на увеличение эмиссионного отношения ОС/ЕС. Во многом это связано с горением биомассы (лесные и степные пожары, сельскохозяйственные палы, сжигание растительных остатков). По данным информационной системы NASA FIRMS (firms.modaps.eosdis.nasa.gov) в анализируемом

географическом домене ежегодно с апреля по август регистрируется большое количество очагов горения, поэтому весной и летом пожары несомненно вносят существенный вклад в продуцирование углеродсодержащих аэрозолей. Кроме того, к увеличению отношения ОС/ЕС приводит генерация в вегетативный сезон вторичных органических аэрозолей. Значительный разброс в значениях коэффициента регрессии сравниваемых территорий (от $r = 6.8 \pm 0.1$ до $r = 10.4 \pm 0.4$) обусловлен разнообразием источников аэрозольного углерода в теплые периоды и изменчивостью их интенсивности.

Полученные результаты позволяют сделать вывод о перспективности траекторных методов для оценки распределения поверхностных источников атмосферных примесей, хотя следует

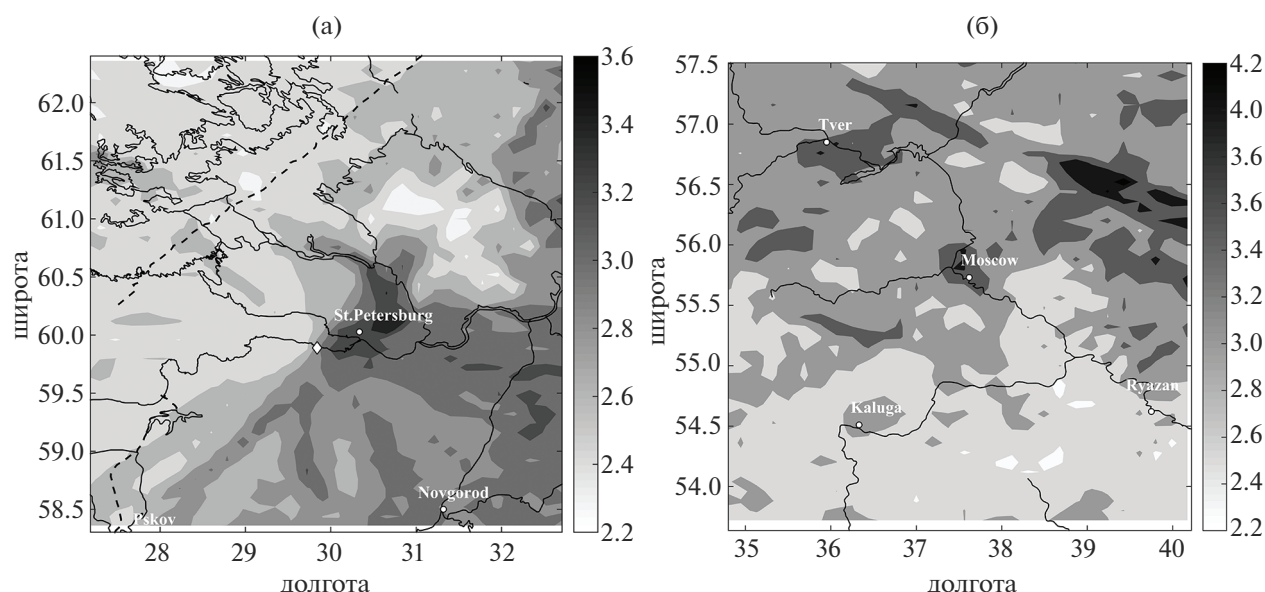


Рис. 4. Пространственное распределение потенциальных источников органического для регионов С.-Петербурга (а) и Москвы (б) (значения CWT функции, мкг/м^3).

иметь в виду, что пространственная точность этих методов не слишком велика.

Для иллюстрации на рис. 4а приведены значения CWT функции для органического углерода за весь период измерений в географической области $27^\circ\text{--}33^\circ$ в.д. $\times$ $58.5^\circ\text{--}63.5^\circ$ с.ш., т.е. регион С.-Петербурга показан в существенно более крупном масштабе, чем на рис. 2. Понятно, что такой крупный мегаполис как Петербург является мощным источником углеродсодержащих аэрозолей и этот эффект очевидно проявляется в виде локального максимума CWT функции, однако географическая привязка этого максимума несколько смещена от реального расположения города. Можно заметить, что сигнал от мегаполиса несколько “размывается” вдоль обратных траекторий, так что пиксели с повышенными значениями CWT функции наблюдаются и над акваторией Ладожского озера.

CWT метод позволяет выделять эффект и удаленных от точки измерений мегаполисов. На рис. 4б показаны значения CWT функции органического углерода, рассчитанные по данным измерений в Петергофе для московского региона. Отчетливо выделяется локальный максимум CWT функции, связанный с влиянием столичного мегаполиса, хотя в этом регионе есть территории с более высокими значениями CWT функции, а значит с более интенсивными источниками углеродсодержащих аэрозолей. Интересно отметить, что значения CWT функции для Москвы и Петербурга примерно одинаковы, около 3.5 мкг/м^3 . В целом анализ крупномасштабных карт CWT функций показывает, что вопрос о точности локализации

компактных источников примесей рассматриваемым методом требует более детального изучения, применительно к данной работе эта точность может быть оценена значением в 50 км.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенный с помощью модифицированного CWT метода анализ данных измерений о составе углеродсодержащей фракции атмосферного аэрозоля вблизи Санкт-Петербурга (Петергоф) позволил оценить пространственное распределение источников аэрозольного углерода в рассматриваемой географической области ($16^\circ\text{--}44^\circ$ в.д. $\times$ $48^\circ\text{--}68^\circ$ с.ш.). Полученные оценки показывают, что территории с наибольшей эмиссией как органического, так и элементарного углерода расположены в регионе междуречья Волги и Оки (города Москва, Владимир, Рыбинск, Ярославль и др.). Причем для этого региона характерна высокая интенсивность источников углеродсодержащих частиц в течении всего года, как в теплые, так и в холодные сезоны. Другие области с относительно высокими уровнями эмиссии аэрозольного углерода — среднее течение Днепра (города Киев, Кременчуг) и юг Польши (города Краков и Катовице) — отличаются гораздо меньшей площадью и более выраженной сезонной изменчивостью.

Коэффициенты линейной регрессии для CWT функций органического и элементарного углерода на различных территориях определяются типом преобладающих источников углеродсодержащего аэрозоля. Их значения, аналогично эмиссионным отношениям ОС/ЕС, могут быть

использованы для классификации источников в зависимости от сезона и географического положения. Таким образом, метод концентрационно-взвешенных траекторий позволяет определять расположение и оценивать интенсивность источников атмосферных примесей по данным локальных измерений и может служить дополнением к традиционным способам контроля загрязнений атмосферы.

Работа выполнена с использованием оборудования ресурсного центра СПбГУ “Геомодель” научного парка СПбГУ. Работа поддержана грантом РНФ № 22-27-00258.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Власенко С.С., Волкова К.А., Ионов Д.В., Рышкевич Т.И., Иванова О.А., Михайлов Е.Ф. Изменчивость углеродсодержащей фракции атмосферного аэрозоля вблизи Санкт-Петербурга // Изв. РАН. Физика атмосферы и океана. 2019. Т. 55. № 6. С. 147–156.
- Волкова К.А., Аникин С.С., Михайлов Е.Ф., Ионов Д.В., Власенко С.С., Рышкевич Т.И. Сезонная и суточная изменчивость концентраций аэрозольных частиц вблизи Санкт-Петербурга // Оптика атмосферы и океана. 2020. Т. 33. № 5. С. 407–414.
- Михайлов Е.Ф., Миронова С.Ю., Макарова М.В., Власенко С.С., Рышкевич Т.И., Панов А.В., Андреае М.О. Исследование сезонной изменчивости углеродсодержащей фракции атмосферного аэрозоля Центральной Сибири // Изв. РАН. Физика атмосферы и океана. 2015. Т. 51. № 4. С. 484–492.
- Попова С.А., Макаров В.И. Определение концентраций вторичного органического углерода в аэрозолях континентальной территории // Гео-Сибирь. 2009. Т. 4. № 2. С. 57–60.
- Сафатов А.С., Бурак Г.А., Олькин С.Е., Резникова И.К., Макаров В.И., Попова С.А. Анализ данных мониторинга органического/неорганического углерода и суммарного белка в аэрозоле приземного слоя атмосферы юга Западной Сибири // Оптика атмосферы и океана. 2013. Т. 26. № 12. С. 1054–1058.
- Andreae M.O., Merlet P. Emission of trace gases and aerosols from biomass burning // Global Biogeochem. Cycles. 2001. V. 15. P. 955–966.
- Andreae M. O. Aerosols before pollution // Science. 2007. V. 315. P. 50–51.
- Andreae M.O., Rosenfeld D. Aerosol–cloud–precipitation interactions. Part 1. The nature and sources of cloud-active aerosols // Earth-Science Reviews. 2008. V. 89. P. 13–41.
- Birch M. E. Analysis of carbonaceous aerosols: interlaboratory comparison // Analyst. 1998. V. 123. № 5. P. 851–857.
- Birch M.E., Cary R.A. Elemental carbon-based method for monitoring occupational exposures to particulate diesel exhaust // Aeros. Sci. Technol. 1996. V. 25. № 3. P. 221–241.
- Bond T.C., Streets D.G., Yaber K.F., Nelson S.M., Woo J., Klimont Z. A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. D14203. <https://doi.org/10.1029/2003JD003697>
- Byčėnkiėnė S., Dudoitis V., Ulevicius V. The use of trajectory cluster analysis to evaluate the long-range transport of black carbon aerosol in the south-eastern Baltic region // Advances in Meteorology. 2014. Article ID 137694. <https://doi.org/10.1155/2014/137694>
- Cao J.J., Zhu C.S., Tie X.X., Geng F.H., Xu H.M., Ho S.S., Wang G.H., Han Y.M., Ho K.F. Characteristics and sources of carbonaceous aerosols from Shanghai, China // Atmos. Chem. Phys. 2013. V. 13. № 2. P. 803–817.
- Carslaw K.S., Lee L.A., Reddington C.L., Pringle K.J., Rap A., Forster P.M., Mann G.W., Spracklen D.V., Woodhouse M.T., Regayre L.A., Pierce J.R. Large contribution of natural aerosols to uncertainty in indirect forcing // Nature. 2013. V. 503. № 7. P. 67–71.
- Cassol H.L.G., Domingues L.G., Sanchez A.H., Basso L.S., Marani L., Tejada G., Alden C.B., Miller J.B., Gloor M., Anderson L.O., Aragão L.E., Gatti L.V. Determination of region of influence obtained by aircraft vertical profiles using the density of trajectories from the HYSPLIT model // Atmosphere. 2020. V. 11. № 10. P. 1073.
- Chi X., Winderlich J., Mayer J.C., Panov A.V., Heimann M., Birmili W., Heintzenberg J., Cheng Y., Andreae M.O. Long-term measurements of aerosol and carbon monoxide at the ZOTTO tall tower to characterize polluted and pristine air in the Siberian taiga // Atmos. Chem. Phys. 2013. V. 13. P. 12271–12298.
- Chung S.H., Seinfeld J.H. Climate response of direct radiative forcing of anthropogenic black carbon // J. Geophys. Res. 2005. V. 110. D11102. <https://doi.org/10.1029/2004JD005441>
- Draxler R.R., Hess G.D. An overview of the HYSPLIT_4 modeling system for trajectories, dispersion, and deposition // Australian Meteorological Magazine. 1998. V. 47. № 4. P. 295–308.
- Dusek U., Hiltnerberger R., Kasper-Giebl A., Kistler M., Meijer H.A.J., Szidat S., Wacker L., Holzinger R., Röckmann T. Sources and formation mechanisms of carbonaceous aerosol at a regional background site in the Netherlands: insights from a year-long radiocarbon study // Atmos. Chem. Phys. 2017. V. 17. P. 3233–3251.
- Forster P., Ramaswamy V., Artaxo P., Bernsten T., Betts R., Fahey D.W., Haywood J., Lean J., Lowe D.C., Myhre G., Nganga J., Prinn R., Raga G., Schulz M., Van Dorland R. Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing. In: Climate Change 2007: The physical science basis. contribution of working group I to the fourth assessment report of the intergovernmental panel on climate change [Solomon S., Qin D., Manning M., Chen Z., Marquis M., Averyt K.B., Tignor M. and Miller H.L. (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Giemsa E., Jacobeit J., Ries L., Hachinger S. Investigating regional source and sink patterns of Alpine CO₂ and CH₄ concentrations based on a back trajectory receptor

- model // *Environ. Sci. Eur.* 2019. V. 31.
<https://doi.org/10.1186/s12302-019-0233-x>
- Grivas G., Cheristandis S., Chaloulakou A. Elemental and organic carbon in the urban environment of Athens. Seasonal and diurnal variations and estimates of secondary organic carbon // *Sci. Total. Environ.* 2012. V. 414. № 1. P. 535–545.
- Gulev S.K., Thorne P.W., Ahn J., Dentener F.J., Domingues C.M., Gerland S., Gong D., Kaufman D.S., Nnamchi H.C., Quaas J., Rivera J.A., Sathyendranath S., Smith S.L., Trewin B., Schuckmann K., Vose R.S. Changing State of the Climate System. In *Climate Change 21: The physical science basis. contribution of working group I to the sixth assessment report of the intergovernmental panel on climate change* [Masson-Delmotte V., Zhai P., Pirani A., Connors S.L., Péan C., Berger S., Caud N., Chen Y., Goldfarb L., Gomis M.I., Huang M., Leitzell K., Lonnoy E., Matthews J.B.R., Maycock T.K., Waterfield T., Yelekçi O., Yu R., and Zhou B. (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2021. P. 287–422.
<https://doi.org/10.1017/9781009157896.004>
- Hao T., Cai Z., Chen S., Han S., Yao Q., Fan W. Transport pathways and potential source regions of PM_{2.5} on the west coast of Bohai Bay during 2009–2018 // *Atmosphere*. 2019. V. 10. P. 345.
- Ho K.F., Lee S.C., Cao J.J., Li Y.S., Chow J.C., Watson J.G., Fung K. Variability of organic and elemental carbon, water soluble organic carbon, and isotopes in Hong Kong // *Atmos. Chem. Phys.* 2006. V. 6. P. 4569–4576.
- Hopke P.K. Recent developments in receptor modeling // *J. Chemometrics*. 2003. V. 17. P. 255–265.
- Ito A., Penner J.E. Historical emissions of carbonaceous aerosols from biomass and fossil fuel burning for the period 1870–2000 // *Global Biogeochem. Cycles*. 2005. V. 19. № 2. GB2028.
<https://doi.org/10.1029/2004GB002374>
- Kanakidou M., Seinfeld J.H., Pandis S.N., Barnes I., Dentener F.J., Facchini M.C., Van Dingenen R., Ervens B., Nenes A., Nielsen C.J., Swietlicki E., Putaud J.P., Balkanski Y., Fuzzi S., Horth J., Moortgat G.K., Winterhalter R., Myhre C.E.L., Tsigaridis K., Vignati E., Stephanou E.G., Wilson J. Organic aerosol and global climate modelling: A review // *Atmos. Chem. Phys.* 2005. V. 5. P. 1053–1123.
- Kim E., Hopke P.K. Improving source identification of fine particles in a rural northeastern U.S. area utilizing temperature-resolved carbon fractions // *J. Geoph. Res.* 2004. V. 109. D09204,
<https://doi.org/10.1029/2003JD004199>
- Kondo Y., Komazaki Y., Miyazaki Y., Moteki N., Takegawa N., Kodama D., Deguchi S., Nogami M., Fukuda M., Miyakawa T., Morino Y., Koike M., Sakurai H., Ehara K. Temporal variations of elemental carbon in Tokyo // *J. Geophys. Res.* 2006. V. 111. D12205.
<https://doi.org/10.1029/2005JD006257>
- Levin Z., Cotton W.R. Aerosol pollution impact on precipitation. A scientific Review. Dordrecht: Springer Science, 2009. 386 p.
- Mikhailov E.F., Mironova S., Mironov G., Vlasenko S., Panov A., Chi X., Walter D., Carbone S., Artaxo P., Heimann M., Lavric J., Pöschl U., Andreae M.O. Long-term measurements (2010–2014) of carbonaceous aerosol and carbon monoxide at the Zotino Tall Tower Observatory (ZOTTO) in central Siberia // *Atmos. Chem. Phys.* 2017. V. 17. P. 14365–14392.
- Pekney N.J., Davidson C.I., Zhou L., Hopke P.K. Application of PSCF and CPF to PMF-modeled sources of PM_{2.5} in Pittsburgh // *Aerosol Science and Technology*. 2006. V. 40. P. 952–961.
- Ruckstuhl A.F., Henne S., Reimann S., Steinbacher M., Volmer M.K., O'Doherty S., Buchmann B., Hueglin C. Robust extraction of baseline signal of atmospheric trace species using local regression // *Atmos. Meas. Tech.* 2012. V. 5. № 11. P. 2613–2624.
- Ruckstuhl A.F., Jacobson M.P., Field R.W., Dodd J.A. Baseline subtraction using robust local regression estimation // *J. Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*. 2001. V. 68. P. 179–193.
- Singh A., Rajput P., Sharma D., Sarin M.M., Singh D. Black carbon and elemental carbon from postharvest agricultural-waste burning emissions in the Indo-Gangetic plain // *Advances in Meteorology*. 2014. V. 2014. Article ID 179301.
- Stein A.F., Draxler R.R., Rolph G.D., Stunder B.J.B., Cohen M.D., Ngan F. NOAA's HYSPLIT atmospheric transport and dispersion modeling system // *Bull. Amer. Meteor. Soc.* 2015. V. 96. P. 2059–2077.
- Wang Yu., Anan Yu., Le Yang L., Fang C. Research on organic carbon and elemental carbon distribution characteristics and their influence on fine particulate matter (PM_{2.5}) in Changchun city // *Environments*. 2019. V. 6. № 2. P. 2–9.
- Wang Yu., Wang X., Kondo Y., Kajino M., Munger J.W., Hao J.M. Black carbon and its correlation with trace gases at a rural site in Beijing: Top-down constraints from ambient measurements on bottom-up emissions // *J. Geophys. Res.* 2011. V. 116. D24304.
- Yan R., Yu S., Zhang Q., Li P., Wang S., Chen B., Liu W. A heavy haze episode in Beijing in February of 2014: Characteristics, origins and implications // *Atmospheric Pollution Research*. 2015. V. 6. P. 867–876.
- Zachary M., Yin L., Zacharia M. Application of PSCF and CWT to identify potential sources of aerosol optical depth in ICIPE Mbita // *Open Access Library J.* 2018. V. 5. № 4. P. 1–12.
<https://doi.org/10.4236/oalib.1104487>
- Zhang F., Zhou L.X., Novell, P.C., Worthy D.E.J., Zellweger C., Klausen J., Ernst M., Steinbacher M., Cai Y.X., Xu L., Fang S.X., Yao, B. Evaluation of in situ measurements of atmospheric carbon monoxide at Mount Waliguan, China // *Atmos. Chem. Phys.* 2011. V. 11. P. 5195–5206.
- Zhou L., Hopke P.K., W. Liu. Comparison of two trajectory based models for locating particle sources for two rural New York sites // *Atmospheric Environment*. 2004. V. 38. P. 1955–1963.

Estimation of Spatial Distribution of Potential Sources of Carbonaceous Aerosol from Local Measurements Near St. Petersburg

S. S. Vlasenko^{1, *}, O. A. Ivanova¹, T. I. Ryshkevich¹, and E. F. Mikhailov¹

¹*St. Petersburg State University, Universitetskaya Naberezhnaya, 7–9, Saint-Petersburg, 199034 Russia*

**e-mail: s.vlasenko@spbu.ru*

The results of back-trajectory analysis of nine-year (2013–2021) measurements of organic (OC) and elemental (EC) aerosol carbon concentrations made at the atmospheric monitoring station near St. Petersburg (Peterhof, 59.88° N, 29.83° E) are presented. The spatial location of sources was estimated by the concentration weighted trajectory method (CWT) in the geographic area 16°–44° E × 48°–68° N. The obtained data allow us to identify the territories with the strongest organic and elemental carbon emissions and to estimate the seasonal variability of these emissions. In particular, the obtained estimates show that the most intense sources of organic and elemental aerosol carbon in the studied region are located in the Volga-Oka interfluvium and on the adjacent territories. It is demonstrated that linear regression coefficients between CWT function values for organic and elemental carbon differ for different regions and seasons and may indicate the prevailing type of sources of carbon-containing aerosol particles.

Keywords: atmospheric composition, carbonaceous aerosol, trajectory methods, elemental carbon, organic carbon