УДК 551.510.4

# КОНЦЕНТРАЦИЯ МЕТАНА, ОЗОНА, ЧЕРНОГО УГЛЕРОДА ОКИДОВ АЗОТА, УГЛЕРОДА И СОДЕРЖАНИЕ δ<sup>13</sup>С<sub>сн₄</sub> НАД МОРЯМИ РОССИЙСКОЙ АРКТИКИ (СУДОВЫЕ НАБЛЮДЕНИЯ)

© 2020 г. Н. В. Панкратова<sup>1,</sup> \*, И. Б. Беликов<sup>1</sup>, В. А. Белоусов<sup>1</sup>, В. М. Копейкин<sup>1</sup>, А. И. Скороход<sup>1</sup>, Ю. А. Штабкин<sup>1</sup>, Г. В. Малафеев<sup>2</sup>, М. В. Флинт<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Институт физики атмосферы им. А.М. Обухова РАН, Москва, Россия <sup>2</sup>Институт океанологии им. П.П. Ширшова РАН, атлантическое отделение, Калининград, Россия <sup>3</sup>Институт океанологии им. П.П. Ширшова РАН, Москва, Россия \*e-mail: pankrativa@ifaran.ru Поступила в редакцию 17.09.2019 г. После доработки 17.01.2020 г. Принята к публикации 08.04.2020 г.

В морях российской Арктики с борта научно-исследовательского судна "Академик Мстислав Келдыш" проведены наблюдения приводных концентраций метана (CH<sub>4</sub>), озона, оксидов азота и угле-

рода, а также содержания изотопа  $\delta^{13}C_{CH_4}$  и черного углерода (ВС, сажевого аэрозоля). Исследованы районы локального высачивания метана из донных осадков. Показано, что обследованные метановые высачивания на арктическом шельфе имеют локальный характер и в целом незначительно влияют на состав атмосферы в регионе. Средняя концентрация метана в приводном воздухе в арктических морях определяется, главным образом, крупномасштабными процессами переноса воздушных масс. Проведен анализ распределения черного углерода вдоль маршрута судна. Обнаружено, что превышения концентрации черного углерода над фоновыми значениями наблюдаются эпизодически при адвекции воздушных масс с материка, из районов сжигания попутных газов и очагов лесных пожаров. Проанализировано влияние на получаемые данные выбросов из трубы судна.

Ключевые слова: судовые измерения, Арктика, атмосферный метан, приземный озон, черный углерод. **DOI:** 10.31857/S0030157420050202

В последние десятилетия наблюдаются значительные изменения климатической системы Земли, известные как глобальное потепление. Одной из возможных причин этого процесса является наблюдаемый существенный рост концентраций парниковых газов в атмосфере. В наибольшей мере потепление климата проявляется в арктическом регионе, где рост средней температуры приземного воздуха происходит почти в два раза быстрее, чем в среднем по планете. Таким образом, наблюдения концентраций парниковых газов, а также и иных малых газовых примесей в арктических широтах являются актуальной научной задачей, связанной с установлением причин наблюдаемых в Арктике климатических процессов.

В настоящее время все большее беспокойство вызывает существенный рост в атмосфере концентрации метана (CH<sub>4</sub>), который является вторым по значимости парниковым газом после углекислого газа, при этом его радиационный форсинг до 32 раз выше, чем у CO<sub>2</sub> [5]. С доиндустриального времени концентрация метана в атмосфере увеличилась более чем на 150% [9]. Содержание метана в атмосфере возрастало на протяжении практически всего XX века. Лишь в период с 1998 по 2005 гг. отмечалась существенное замедление скорости увеличения концентрации этого газа, а затем его содержание в атмосфере возобновило рост [9]. Средняя глобальная концентрация CH<sub>4</sub> в 2018 году составила 1858 ppb, а скорость прироста достигла 11.5 ppb в год [Ed Dlugokencky, NOAA/ ESRL]. При этом увеличение концентрации атмосферного метана на 7.5 ppb в год эквивалентно увеличению его эмиссии, примерно, на 23–24 Tg в год [22].

Параллельно в арктическом регионе нарастает загрязнение атмосферы антропогенными выбросами, в том числе поступлением черного углерода (ВС, элементарный углерод, сажевый аэрозоль). Черный углерод является продуктом неполного сгорания различных видов топлива (в особенности угля и дизельного топлива), биомассы (леса, травы, сельскохозяйственных отходов) или биотоплива. В атмосфере черный углерод вносит зна-

Компонент	г Прибор Диапазон измерений Погрешность		Погрешность	Время отклика	
$\delta^{13}C_{CH_4}$		_	0.8%0	60 c	
CH <sub>4</sub>	Picarro G2132-i	1.8-12 ppm	5 ppb		
CO <sub>2</sub>	(CRDS)	200–2000 ppm	1 ppm		
H <sub>2</sub> O		0-2.4%	100 ppm		
O <sub>3</sub>	Dasibi 1008-AH	1-1000 ppb	1 ppb	50 c	
NO, NO <sub>2</sub>	Thermo TE42C-TL	0.05–200 ppb	1% от показаний	60 c	
CO	Thermo TE48S	0.05–100 ppm	0.05 ppm	60 c	

Таблица 1. Параметры измерительного комплекса

чительный вклад в климатические изменения. Его рассматривают как один из потенциальных источников изменения климата Арктики [11]. По модельным оценкам черный углерод, попадая на арктический снежно-ледовый покров, приводит к существенному снижению альбедо [например, 8]. Это может вызвать увеличение поглощенной солнечной радиации на 0.3 Вт м<sup>-2</sup>, что неизбежно приведет к еще большему росту температуры в Арктике.

В настоящее время отмечается значительный дефицит данных наблюдений за концентрациями парниковых газов и иных малых газовых примесей в арктическом регионе. Данных немногих имеющихся станций мониторинга, которые расположены на суше, оказывается недостаточно для восстановления полного поля концентраций ключевых примесей. Спутниковые наблюдения в арктических широтах имеют значительную погрешность и требуют специальной коррекции. В значительной мере компенсировать недостаток наблюдений возможно с помощью измерений с борта научно-исследовательских судов. Данные судовых наблюдений также необходимы для валидации численных моделей, описывающих изменения состава атмосферы, и спутниковых измерений.

Задачей настоящей работы была оценка концентрации метана, озона, оксидов азота и углерода, водяного пара, а также содержания изотопа  $\delta^{13}C_{CH_4}$  и черного углерода в приводной атмосфере морей Российской Арктики на протяженном маршруте от внутренней части Белого моря (п. Архангельск) до восточных районов Восточно-Сибирского моря.

## ПРИБОРЫ И МЕТОДЫ НАБЛЮДЕНИЙ

# Измерения малых газовых составляющих атмосферы

В период с 16 августа по 19 сентября 2018 г. в течение 72-го рейса НИС "Академик Мстислав Келдыш" (АМК-72) с борта судна были проведены измерения приводной концентрации метана (CH<sub>4</sub>), углекислого газа (CO<sub>2</sub>) и водяного пара (H<sub>2</sub>O), а также значения  $\delta^{13}C_{CH4}$  отклонения изотопной сигнатуры  $^{13}C/^{12}C$  для метана. Одновременно проводились сопутствующие измерения приводных концентраций моноксида и диоксида азота (NO и NO<sub>2</sub>), озона (O<sub>3</sub>) и моноксида углерода (CO). Проведенные наблюдения являются продолжением работ, описанных в [3, 15].

Маршрут рейса АМК-72 охватывал четыре моря российской Арктики: Белое, Баренцево, Карское и Лаптевых. Наблюдения проводились, в том числе, и в областях, где ранее работали экспедиции с аналогичными задачами [19]. Карта маршрута рейса приведена на рис. 1а.

Для проведения наблюдений на борту НИС АМК был установлен специально разработанный автоматизированный измерительный комплекс. В состав комплекса входили газоанализаторы производства ведущих мировых компаний – производителей научного оборудования. Особенностью всех примененных газоанализаторов являлась их способность проводить достоверные измерения на уровнях фоновых концентраций, характерных для незагрязненной атмосферы. Названия и основные параметры всех примененных приборов приведены в табл. 1.

Исследуемый воздух подавался в приборы комплекса по двум тефлоновым трубопроводам внутренним диаметром около 3 мм при расходе воздуха порядка 2—3 л/мин. Воздухозаборники трубопроводов были закреплены на палубе рулевого мостика на высоте 18.5 м над уровнем моря (рис. 16). Собственно комплекс размещался в одном из помещений судна на палубе рулевого мостика.

Калибровки всех приборов, входящих в комплекс проводились периодически, в течение 2015—2018 гг., а также перед отправкой приборов в рейс и непосредственно после возврата из рейса, по поверочным газовым смесям, поставляемым компанией "Linde Gas Rus". Калибровки прибора G2132-i, кроме того, проводились по вторичному стандарту, предоставленному Нор-



**Рис. 1.** (а) Карта маршрута рейса АМК-72; (б) схема расположения воздухозаборников газоанализаторов (Picarro G2132-i (CRDS), Dasibi 1008-AH, Thermo TE42C-TL, Thermo TE48S) на судне.

вежским институтом атмосферных исследований (Norwegian Institute for Air Research, NILU). Результаты калибровок показывают, что долговременный дрейф калибровочных коэффициентов всех примененных приборов не превышает значений их погрешностей (табл. 1), что подтверждает достоверность полученных данных.

При проведении измерений концентраций малых газовых примесей на подвижных платформах (автомобиль, железнодорожный вагон, морское/речное судно) часто возникает проблема отбраковки данных, искаженных выхлопом собственных двигателей используемой платформы. В частности, в работе [17], в качестве критерия попадания в воздухозаборники газоанализаторов выбросов из дымовой трубы судна была использована повышенная концентрация CO<sub>2</sub>. Исследование вариаций концентраций, полученных в рейсе AMK-72, показало, что более надежно использовать для этой цели концентрации озона и NO, а также и CO. При попадании загрязненного

ОКЕАНОЛОГИЯ том 60 № 5 2020

воздуха в воздухозаборники наблюдается резкое повышение концентраций CO, NO и NO<sub>2</sub>, сопровождающееся снижением концентрации озона.

Подобные вариации измеренных концентраций показаны на рис. 2. Попадание в воздухозаборник загрязненного воздуха соответствует положительным пикам  $NO_2$  и отрицательным пикам  $O_3$ . При этом концентрация  $CO_2$  может и не увеличиваться, и наоборот, при увеличении  $CO_2$ содержание CO, NO и NO<sub>2</sub> может быть ниже пороговых значений.

В течение рейса АМК-72 попадание в воздухозаборники выхлопов дымовой трубы судна наблюдалось эпизодически, при соответствующих соотношениях между направлением и скоростью ветра, курсом и скоростью судна, в частности, при движении судна галсами. По описанному выше критерию была проведена отбраковка данных, при этом использовалось значение пороговой концентрации NO, равное 0.2 ppb [1]. В результате было отбраковано около 20% данных.



Рис. 2. Пример значений концентраций NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub> и CO в приводном воздухе в рейсе AMK-72.

#### Измерения черного углерода

В ходе рейса, за исключением периодов с неблагоприятными метеоусловиями, производились измерения массовой концентрации черного углерода. Ранее в морях Российской Арктики и на их побережьях был проведен ряд исследований по оценке концентрации черного углерода в атмосфере, но эти измерения были, в основном, эпизодическими и кратковременными.

В рейсе АМК-72 пробы для определения концентрации черного углерода в приводном слое воздуха отбирались прокачкой воздуха в течение 6—8 ч через кварцевые фильтры Hahnemule на высоте 18.5 м над уровнем моря, и только при встречном ветре, для исключения влияния выхлопов из дымовой трубы судна. В течение рейса было отобрано 34 пробы. В дальнейшем содержание черного углерода определялось в лабораторных условиях аэталометрическим методом [20].

#### РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

#### Сравнение со данными обсерватории Тикси

Для анализа полученных в рейсе AMK-72 данных представляет интерес сравнение измеренных концентраций CO<sub>2</sub>, и CH<sub>4</sub> с данными стационарной обсерватории Тикси, расположенной на севере республики Якутия на побережье моря Лаптевых (71.6° с.ш., 128. 9° в.д.) (рис. 1а). Для регистрации приземных концентраций  $CO_2$ ,  $CH_4$  и  $H_2O$  в обсерватории используется прибор G2301 производства компании Picarro Inc. (США). Обсерватория расположена на удалении от населенных пунктов, что обеспечивает условия наблюдения в отсутствии действия антропогенных факторов.

В табл. 2 приведены статистические характеристики синхронных во времени измерений концентраций метана и углекислого газа в обсерватории Тикси и в рейсе AMK-72.

Как видно из табл. 2, данные измерений на станции Тикси и с борта НИС АМК относительно хорошо согласуются друг с другом, несмотря на то, что судно в большинстве случаев находилось в сотнях километров от станции. Максимальная величина концентрации метана в данных рейса (3.541 ppm) получена в порту Архангельск. В целом данные свидетельствует о том, что большая часть измеренной изменчивости концентраций  $CH_4$  вызвана крупномасштабными процессами, в особенности адвекцией воздушных масс, обогащенных  $CH_4$  с континента,

**Таблица 2.** Статистические характеристики рядов изменений концентраций  $CO_2$  и  $CH_4$  за период с 16 августа по 19 сентября 2018 г.

Место наблюдений	Обсервато	рия Тикси	Рейс АМК-72			
параметр	CO <sub>2</sub> , ppm	CH <sub>4</sub> , ppm	CO <sub>2</sub> , ppm	CH <sub>4</sub> , ppm		
Минимум	386.6	1.905	375.1	1.909		
Максимум	415.7	2.257	871.9	3.541		
Среднее	394.1	1.955	397.0	1.964		
Медиана	392.2	1.954	395.1	1.945		
1 квартиль	390.3	1.937	393.1	1.937		
3 квартиль	396.9	1.967	397.7	1.970		
Стандартное отклонение	4.8	0.027	11.4	0.077		



**Рис. 3.** Концентрация озона вдоль маршрута рейса АМК-72 при движении судна в восточном направлении (а) и в западном (б).

что согласуется с исследованиями с использованием данных по изотопному составу CH<sub>4</sub> [6].

#### Измерения озона и его предшественников

Экспедиция AMK-72 проходила в период с середины августа до середины сентября, когда приземная концентрация озона в Арктике достигает наименьших в году значений [10, 14]. Согласно синхронным наблюдениям в прибрежных арктических обсерваториях (Тикси, Барроу (побережье моря Бофорта)) [данные доступны на странице ESRL Global Monitoring Division], а также данным, приведенным в более ранних обзорах [10, 12, 14], приземное содержание озона в это период обычно не превышает 25-30 ppbv, что хорошо согласуется с результатами, полученными во время нашей экспедиции (табл. 3).

В целом изменчивость судовых данных соизмерима с разбросом результатов измерений в обсерватории Тикси и немного выше по сравнению

со стационарными измерениями на мысе Барроу (табл. 3). Относительно высокая изменчивость судовых измерений может быть связана с большим территориальным охватом на маршруте экспедиции и значительной неоднородностью подстилающей поверхности: чем выше степень волнения – тем больше скорость сухого осаждения. В среднем концентрация озона над морской поверхностью примерно на 10% больше, что, вероятно, связано с менее активным стоком озона над акваторией Северного Ледовитого океана [13]. Режим озона над Арктическими морями аналогичен режиму для удаленных фоновых районов, при этом не наблюдается выраженного суточного хода – зарегистрированные суточные изменения были очень слабыми. Максимальные значения (более 32 ppb) были отмечены в Белом море при выносе воздушных масс с материка (17-18 августа 2018 г.), в Карском море при западном – юго-западном ветре (19 сентября 2018 г.) (рис. 3).

**Таблица 3.** Статистические характеристики рядов измерений приземного содержания озона по данным, полученным в экспедиции AMK-72 и наблюдений в прибрежных обсерваториях за период с 22 августа по 19 сентября 2018 г. (минутное осреднение)

Место наблюдения	Рейс АМК-72	Тикси	Барроу	
Минимум	3.8	3.1	8.4	
Максимум	32.0	32.1	31.9	
Среднее	24.5	22.7	22.3	
Медиана	25.6	22.8	22.6	
1 квартиль	22.0	19.9	20.2	
3 квартиль	27.5	25.6	24.9	
Стандартное отклонение	4.3	4.4	3.9	

ОКЕАНОЛОГИЯ том 60 № 5 2020



Рис. 4. Концентрация метана на маршрута рейса АМК-72 при движении судна в восточном (а) и западном (б) направлениях.



**Рис. 5.** Обратные траектории для 22.08.2018 г. 00 UTC (а) и 07.09.2018 г. 00 UTC (б) на уровень 500 м н.у.м., построенные по модели HYSPLIT.

Измеренные в ходе рейса значения СО и NO соответствуют фоновым для арктических широт и находятся вблизи пределов измерений соответствующих приборов.

# Вариации концентраций метана на маршруте рейса

На рис. 4 представлена карта со значениями концентрации метана на маршруте рейса AMK-72.

В ходе рейса концентрация метана в приводном слое воздуха изменялась от 1.9 до 3.5 ppm. Максимум концентрации наблюдался в порту г. Архангельска, и связан, очевидно, с влиянием города и порта и сопутствующей промышленной активностью. На остальной части маршрута представляют интерес повышенные значения концентрации метана, которые наблюдались при проходе на восток в Карском море в районе Обской губы. При пересечении этого же района в западном направлении повышенных значений концентрации метана не отмечалось. Для объяснения подобного явления был привлечен траекторный анализ, результаты которого представлены на рис. 5.

Как видно из рис. 5, при движении судна в восточном направлении наблюдался вынос воздушных масс из северных материковых болотистых

	Море Лаптевых			Полигон "С15"			Полигон "Оден"		
	CH <sub>4</sub>	$\delta^{13}C$	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	$\delta^{13}C$	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	$\delta^{13}C$	CO <sub>2</sub>
Мин	1887	-55.4	387.2	1906	-53.4	389.6	1947	-54.8	392.8
Макс	2083	-40.5	558.4	2083	-44.7	471.6	2039	-49	444.2
Среднее	1915.2	-49.2	396.7	1930.6	-49.0	395.2	1970.5	-52	403.1
Ст. откл.	25.70	2.09	9.35	17.17	1.17	6.31	16.32	0.997	9.467
P5	1890	-52.5	390.5	1909	-50.9	390.5	1950	-53.7	394.1
P95	1968	-45.9	412	1954	-47	407.4	2002	-50.3	422

**Таблица 4.** Статистические характеристики содержания  $d^{13}C$ ,  $CH_4$  и  $CO_2$  в приводном воздухе в Море Лаптевых и на полигонах "C15" и "Оден"

районов Европейской территории России, что и могло вызвать рост концентрации метана в южной части Карского моря. Следует также отметить, что повышенную концентрацию метана в этом районе сопровождала пониженная соленость поверхностных вод (и наоборот), что может свидетельствовать о влиянии речного стока Оби и Енисея на концентрацию метана в приволном воздухе. При движении судна в западном направлении, напротив, отмечалась адвекция воздуха из районов Северной Атлантики с концентрациями метана, не превышающими средние по региону. Также повышенная относительно средних величин концентрация метана отмечалась над акваторией Печорского моря, когда происходил вынос воздушных масс с северо-западных районов Евразии.

В ходе рейса были подробно обследованы два локальных района (полигона). в которых ранее были зарегистрированы высачивания метана из донных осадков [3, 4, 21]. В рейсе АМК-72 наличие на дне метановых выходов было вновь подтверждено данными эхолота судна и подводными видеонаблюдениями [7]. В полигоне "С15", расположенном в районе с координатами 76.78° с.ш., 125.85° в.д. (рис. 1), выявлены локальные пики концентрации метана с максимумом 2083 ppb. При этом средняя концентрация метана на полигоне составила всего 1930 ppb, что ниже, чем в среднем вдоль всего маршрута. На полигоне "Оден", напротив, отмечалась повышенная относительно среднего концентрация метана – 1971 ppb, при этом отдельные пики не превышали значения 2037 ppb. Статистические характеристики рядов наблюдений для указанных полигонов представлены в табл. 4, диаграммы концентраций и соответствующие им обратные траектории – на рис. 6.

Кроме описанных полигонов были выявлены области высачивания метана и в других районах, в частности, на склоне материкового шельфа моря Лаптевых. Однако в этих областях из-за значительной глубины метан успевает раствориться в воде и его пузыри не доходят до поверхности. При этом концентрация CH<sub>4</sub> в приводном воздухе практически не повышается и соответствует фоновым значениям.

Измеренные в ходе рейса АМК-72 значения содержания изотопа  $\delta^{13}C_{CH4}$  в метане позволяют, в некоторой мере, определить источники происхождения метана в исследуемой области, применив так называемый метод Килинга [16]. В работе [18] показано, что для достоверного определения источников метана, кроме изотопного состава, необходимо использовать траекторный анализ. Результаты подобного исследования применительно к данным рейса АМК-72 показали, что для приводного воздуха морей российской Арктики имеют место преимушественно смешанные источники метана. В некоторых областях значение изотопного состава соответствует водно-болотистым тундровым экосистемам. Эти же значения также могут быть связаны с таянием подводной мерзлоты и выходом метановых пузырей в поверхностный слой атмосферы метана [18]. хотя последние исследования показали, что это маловероятно [4].

Как отмечалось выше, наблюдаемые в рейсе AMK-72 низкие (менее 1910 ppb) значения концентрации метана в приводном воздухе были связаны с адвекцией воздушных масс из районов Северной Атлантики при северо-западном ветре. Дополнительным подтверждением этого факта являются результаты траекторного анализа, представленные на рис. 7, на котором отображена плотность обратных траекторий, построенная по 8 траекториям через каждые 6 ч для высоты на 500 м н.у.м., по модели HYSPLIT, соответствующая минимальным концентрациям метана.

#### Концентрация черного углерода

Результаты наблюдений черного углерода в рейсе AMK-72 показаны на рис. 8. Как видно из рисунка, характер вариаций концентрации черного углерода частично схож с ранее проанализированными вариациями концентрации метана.



**Рис. 6.** Концентрация метана в приводном воздухе на полигоне "C15" (а) и "Оден" (б) и соответствующие им обратные траектории на уровень 500 м н.у.м.

В Баренцевом море 19 августа и 17, 18 сентября средняя концентрация сажи составляла 54 и 14 нг/м<sup>3</sup> соответственно. Траекторный анализ показал, что повышенное содержание сажи в приводном слое воздуха обусловлено приходом воздушных масс с северо-западных районов суши Западной Европы, а низкие значения получены в воздушных массах, пришедших из европейской части России (ЕТР) с больших высот (примерно 1300 м н.у.м.). К тому же, результаты измерений Радиозондов показали, что состояние атмосферы по ходу перемещения воздушных масс способствовало рассеянию загрязняющих воздух веществ, так как отсутствовали температурные инверсии.

В Карском море 21 августа, во время прихода воздушной массы из северных районов ETP и Скандинавского полуострова, нами зарегистрирована концентрация сажи 46 нг/м<sup>3</sup>. В случае, когда траектории воздушных масс проходили над морем из сектора с северо-запад—северо-восток, средняя концентрация сажи составляла 11 нг/м<sup>3</sup>.

Для моря Лаптевых получены самые низкие концентрации сажи за экспедицию. При перемещении воздушных масс над полуостровом Таймыр 24 и 25 августа получена средняя концентрация сажи 6 нг/м<sup>3</sup>, а 31 августа и 5 сентября в случае прохождения воздушных масс над водной поверхностью с северного направления — всего 2 нг/м<sup>3</sup>.

Анализ наблюдений, поведенных в рейсе AMK-72, показал, что концентрация черного углерода в приводном слое атмосферы в Арктике в основном находится на фоновом уровне и составляет около 58 нг/м<sup>3</sup>, при диапазоне вариаций от



**Рис. 7.** Плотность обратных траекторий воздушных масс, соответствующая минимальным концентрациям метана для 7 (а) и 9 сентября 2018 г. (б).



Рис. 8. Содержание черного углерода в приповерхностном слое воздуха вдоль маршрута рейса АМК-72 (размер кружка пропорционален значению концентрации черного углерода).

ОКЕАНОЛОГИЯ том 60 № 5 2020

18 до 110 нг/м<sup>3</sup>. При этом самые низкие концентрации отмечаются в восточных областях арктического региона и при ветре северного направления. Возрастание концентрации черного углерода наблюдается эпизодически при поступлении воздушных масс с материка, преимущественно из районов сжигания попутных газов и лесных пожаров.

## выводы

Проведенные в рейсе АМК-72 наблюдения и их последующий анализ позволяют сделать вывод о том, что пространственное распределение концентрации метана в приводном воздухе над морями российской Арктики определяется, главным образом, крупномасштабными процессами переноса воздушных масс в атмосфере. В частности, в некоторых районах Карского и Баренцева морей наблюдается рост концентраций метана при выносе воздушных масс с материка, преимущественно из областей газовых месторождений Ямала и Западной Сибири, и районов мощных водно-болотных экосистем. Минимальная концентрация метана отмечается при адвекции воздушных масс из районов северной Атлантики. Эти выводы также подтверждаются данными наблюдений на станции Цеппелин (Шпицберген), где отмечаются минимальные значения содержания метана, относительно других арктических станций. [EBAS: данные со станции Цеппелин (Zeppelin) доступны на pecypce http://ebas.nilu.no]).

В двух исследованных локальных районах в море Лаптевых, где наблюдаются постоянные высачивания метана из донных осадков (полигоны "C15" и "Оден" [2, 4, 21]), отмечались характерные кратковременные пики концентрации метана продолжительностью 1–10 мин (десятки метров в горизонтальном масштабе), и уровня, лишь немного превышающего 2 ppm. При осреднении концентрации метана до суточных или даже часовых значений наблюдаемые всплески практически не влияют на среднюю концентрацию NH<sub>4</sub> и не вносят существенного вклада в поле распределения газа.

Аналогично вариациям концентрации метана повышенное содержание черного углерода в приводной атмосфере Карского и Баренцева морей отмечается преимущественно в условиях переноса воздушных масс с материка. Минимальные значения содержания черного углерода наблюдаются при ветрах северных направлений.

В целом наши измерения показали, что в приводной атмосфере исследованных Арктических морей наблюдается повышенное относительно стационарных прибрежных обсерваторий содержание озона. Максимальные значения концентрации озона отмечены на западе, в Белом и Баренцевых морях при адвекции воздушных масс с юго-запада.

Проведенные измерения и анализ материала дополняет имеющиеся представления о пространственных и временных вариациях в распределении концентраций метана и других газовых примесей в арктическом морском регионе. Масштаб и причины этих вариаций, несмотря на существенные усилия, прилагаемые российским и мировым научным сообществом, остаются к настоящему времени недостаточно изученными.

Авторы выражают благодарность экипажу НИС "Академик Мстислав Келдыш", сотрудникам Института океанологии им. П.П. Ширшова РАН за организацию экспедиции и поддержку в проведении измерений. Работа выполнена в рамках Программы РАН "Изменения климата: причины, риски, последствия, проблемы адаптации и регулирования".

Источник финансирования. Работа проведена при частичной поддержке Российского научного фонда (грант № 20-17-00200).

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Панкратова Н.В., Еланский Н.Ф., Беликов И.Б. и др. Озон и окислы азота в приземном воздухе Северной Евразии по наблюдениям в экспериментах TROICA // Изв. РАН. Физ. атмосф. и океана. 2011. Т. 47. № 3. С. 343–358.
- Сергиенко В.И., Лобковский Л.И., Семилетов И.П. и др. Деградация подводной мерзлоты и разрушение гидратов шельфа морей Восточной Арктики как возможная причина "метановой катастрофы": некоторые результаты комплексных исследований 2011 года // Докл. РАН. 2012. том 446. № 3. С. 330– 335.
- 3. Скороход А.И., Панкратова Н.В., Беликов И.Б. и др. Атмосферный метан и его изотопный состав над морями российской Арктики по результатам судовых измерений летом и осенью 2015 года // Докл. PAH. 2016. том 470. № 5. С. 1–5. https://doi.org/10.7868/S0869565216290247
- Baranov B., Galkin S., Vedenin A. et al. Methane seeps on the outer shelf of the Laptev Sea: characteristic features, structural control, and benthic fauna // Geo-Marine Letters. 2020. https://doi.org/10.1007/s00367-020-00655-7
- Etminan M., Myhre G., Highwood E., Shine K. Radiative forcing of carbon dioxide, methane, and nitrous oxide: A significant revision of the methane radiative forcing, Geophys. Res. Lett. 2016. 43. P. 12614–12623. https://doi.org/10.1002/2016GL071930
- Fisher R.E., Sriskantharajah S., Lowry D. et al. Arctic methane sources: Isotopic evidence for atmospheric inputs, Geophys. Res. Lett., 2011. 38. L21803. https://doi.org/10.1029/2011GL049319
- Flint M.V., Poyarkov S.G., Rimskii-Korsakov N.A., Miroshnikov A.Y. Ecosystems of the Siberian Arctic Seas 2018 (Cruise 72 of the R/V Akademik Mstislav

Keldysh) // Oceanology. 2019. V. 59 (3). P. 460–463. https://doi.org/10.1134/S0001437019030056

8. *Hansen J., Nazarenko L.* Soot climate forcing via snow and ice albedos. // Proc. Natl. Acad. Sci. 2004. 101. P. 423–428.

https://doi.org/10.1073/pnas.2237157100

- Hartmann D.L., Klein Tank A.M.G., Rusticucci M. et al. Observations: Atmosphere and Surface, in: Climate Change 2013: The Physical Science Basis, Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, 2013. Ch. 2. P. 159–254.
- 10. *Helmig D., Oltmans S.J., Carlson D., Lamarque J.-F. et al.* A review of surface ozone in the polar regions // Atmospheric Environment, 2007. 41. P. 5138–5161.
- Koch D., Hansen J. Distant origins of Arctic black carbon: A Goddard Institute for Space Studies Model Eexperiment // J. Geophys. Res., 2005. 110. D04204. https://doi.org/10.1029/2004JD005296
- Law K.S., Roiger A., Thomas J.L. et al. Local Arctic air pollution: Sources and impacts // Ambio, 2017. 46. P. 453–463. https://doi.org/10.1007/s13280-017-0962-2
- 13. Luhar A.K., Woodhouse M.T., Galbally I.E. A revised global ozone dry deposition estimate based on a new two-layer parameterisation for air-sea exchange and the multi-year MACC composition reanalysis, Atmos. Chem. Phys., 2018. 18. P. 4329–4348. https://doi.org/10.5194/acp-18-4329-2018
- Monks P.S. A review of the observations and origins of the spring ozone maximum // Atmospheric Environment, 2000. 34. P. 3545–3561.
- 15. Pankratova N., Skorokhod A., Belikov I. et al. Evidence of atmospheric response to methane emissions from the

east siberian arctic shelf. Geography, environment, sustainability. 2018. 11. P. 85–92. https://doi.org/10.24057/2071-9388-2018-11-1-85-92

- Pataki D.E., Ehleringer J.R., Flanagan L.B. et al. The application and interpretation of Keeling plots in terrestrial carbon cycle research // Global Biogeochem. Cycles, 2003. 17(1). 1022.
- Platt S. M., Eckhardt S., Ferré B. et al. Methane at Svalbard and over the European Arctic Ocean, Atmos. Chem. Phys., 2018. 18, P. 17207–17224. https://doi.org/10.5194/acp-18-17207-2018
- Sapart C.J., Shakhova N., Semiletov I. et al. The origin of methane in the East Siberian Arctic Shelf unraveled with triple isotope analysis, Biogeosciences, 2018. 14. P. 2283–2292. https://doi.org/10.5194/bg-14-2283-2017
- 19. *Shakhova N., Semiletov I., Leifer I. et al.* Ebullition and storm-induced methane release from the East Siberian Arctic Shelf // Nat. Geosci., 2014. 7, P. 64–70.
- 20. Stohl A., Klimont Z., Eckhardt S. et al. Black carbon in the Arctic: the underestimated role of gas flaring and residential combustion emissions // Atmospheric Chemistry and Physics. 2013. V. 13. № 17. P. 8833– 8855.
- Thornton B.F., Geibel M.C., Crill P.M. et al. Methane fluxes from the sea to the atmosphere across the Siberian shelf seas // Geophys. Res. Lett., 2016. 43. P. 5869– 5877. https://doi.org/10.1002/2016GL068977
  - https://doi.org/10.1002/2010OE008977
- 22. Worden J.R., Bloom A.A., Pandey S. et al. Reduced biomass burning emissions reconcile conflicting estimates of the post-2006 atmospheric methane budget // Nature communications, 2017. 8. 2227.

# Concentration and Isotopic Composition of Methane, Associated Gases and Black Carbon over the Russian Arctic Seas (Ship Borne Measurements)

N. V. Pankratova<sup>*a*, #</sup>, I. B. Belikov<sup>*a*</sup>, V. A. Belousov<sup>*a*</sup>, V. M. Kopeikin<sup>*a*</sup>, A. I. Skorokhod<sup>*a*</sup>, Yu. A. Shtabkin<sup>*a*</sup>, G. V. Malafeev<sup>*b*</sup>, M. V. Flint<sup>*b*</sup>

<sup>a</sup>A.M.Obukhov Institute of Atmospheric Physics of Russion Academy of Science, Moscow, Russia <sup>b</sup>Shirshow Institute of Oceanology, Russion Academy of Sciences, Moscow, Russia <sup>#</sup>e-mail: pankrativa@ifaran.ru

We present the results of ship borne observation of surface methane concentration (CH4) together with

 $\delta^{13}C_{CH_4}$ , ozone, nitrogen oxides and carbon, as well as the content of black carbon (BC, soot aerosol) for Russian Arctic seas, aboard the research vessel "Akademik Mstislav Keldysh". The areas of local methane releasing from bottom were investigated. It was shown that areas of methane releasing are local and their effect on gas composition insignificant. The average concentration of methane in surface air in the Arctic seas is determined mainly by large-scale processes of transport of air masses. We analyzed the distribution of black carbon along the route of the vessel. It was found that enhanced concentrations of black carbon over background values are observed occasionally during advection of air masses from the mainland areas and associated with gas leakage and forest fires.

Keywords: ship borne measurements, Arctic, atmospheric methane, surface ozone, black carbon.