

## АЭРОЗОЛЬНАЯ СОСТАВЛЯЮЩАЯ ПРИВОДНОГО СЛОЯ АТМОСФЕРЫ ПО ДАННЫМ НАБЛЮДЕНИЙ ЭКСПЕДИЦИИ «СЕВЕР-2015»

О.Б. ПОПОВИЧЕВА<sup>1</sup>, А.П. МАКШТАС<sup>2</sup>, В.В. МОВЧАН<sup>2</sup>, Н.М. ПЕРСИАНЦЕВА<sup>1</sup>,  
М.А. ТИМОФЕЕВ<sup>1</sup>, Н.М. СИТНИКОВ<sup>3</sup>

<sup>1</sup> — Научно-исследовательский институт ядерной физики им. В.Д. Скобельцына МГУ, г. Москва, e-mail: polga@mics.msu.su

<sup>2</sup> — ГНЦ РФ Арктический и антарктический научно-исследовательский институт, Санкт-Петербург, e-mail: maksh@aari.ru

<sup>3</sup> — Центральная аэрологическая обсерватория (ЦАО), Московская область, e-mail: sitnikov@caomsk.mipt.ru

Приведены результаты исследований аэрозольного состава приводного слоя атмосферы, выполненных в ходе экспедиции «Север-2015» на маршруте от порта Архангельск до архипелага Северная Земля в период 9–26 октября 2015 г. Полученные с высоким пространственно-временным разрешением данные о массовой концентрации черного углерода (ЕВС) на акваториях Белого, Баренцева и Карского морей показали ее значительную изменчивость: от фоновых значений порядка 20 нг/м<sup>3</sup> до значений более 1000 нг/м<sup>3</sup> в периоды переноса воздушных масс с континента. Кластерный анализ микроструктуры природных арктических аэрозолей позволил выделить доминирующие группы частиц морской соли и сульфатов кальция. При увеличении ЕВС до 250 нг/м<sup>3</sup> обнаружено появление групп углеродосодержащих аэрозолей и частиц, богатых серой, характерных для эмиссий при сжигании природных топлив.

*Ключевые слова:* арктический аэрозоль, черный углерод, микроструктура, экспедиция.

### ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время вследствие очевидных последствий глобального потепления и возрастающего антропогенного воздействия на окружающую среду неопределенности глобальных климатических изменений и обусловленные ими риски находятся в центре интенсивных научных исследований. При этом области, подверженные наиболее быстрым изменениям, включают акватории и прибрежные территории Арктики (AMAP Report, 2011). Черный углерод в составе углеродосодержащих аэрозолей, продукта эмиссий источников горения природных топлив и биомасс, хорошо поглощает солнечное излучение и, в противовес охлаждению чисто рассеивающими органическими и сульфатными аэрозолями, вносит вклад в глобальное потепление (Flanner, 2013). Климат Арктики подвержен воздействию аэрозолей, содержащих черный углерод, в результате их осаждения и уменьшения альbedo подстилающей поверхности и, соответственно, ускорения таяния снежно-ледяного покрова (Doherty et al., 2010), а также вследствие изменения микрофизических процессов формирования облачности благодаря высокой нуклеационной активности арктических аэрозолей (Yun et al., 2013).

Выполненные в последние годы в рамках программы Arctic Monitoring and Assessment Program (AMAP) исследования показали, что меридиональный дальний перенос воздушных масс из более низких широт определяет высокие уровни аэрозольного загрязнения Арктики (AMAP Report, 2011), проявляющегося, в том числе, в виде такого явления, как «арктическая дымка» (Stock et al., 2012). При этом основными источниками загрязнений являются Европа, районы Сибири и Юго-Восточной Азии, где сосредоточены многочисленные индустриальные и транспортные источники эмиссии элементного и органического углерода, сульфатов и нитратов, образующихся при сжигании природного топлива и биомасс (Koch et al., 2009). В то же время можно отметить, что недостаток знаний о структуре и составе природных арктических аэрозолей и их изменениях в процессах ближнего и дальнего переносов от локальных и региональных источников эмиссий создает большие неопределенности в оценке последствий их влияния на изменение температуры, радиационного форсинга, образование облаков и скорость таяния льдов в арктическом регионе.

Прогресс в изучении свойств арктического аэрозоля в приземном слое атмосферы арктических морей был достигнут в ходе ряда высокоширотных экспедиций последнего времени (Полькин и др., 2004; Sakerin et al., 2015). В июле–сентябре 2013 г. на основании аэталометрических измерений были определены пространственные распределения концентрации черного углерода на маршруте вдоль Северного морского пути, продемонстрировавшие общее понижение массовой концентрации в северо-восточном направлении от 140 нг/м<sup>3</sup> вблизи Кольского полуострова до 20 нг/м<sup>3</sup> в море Лаптевых (Sakerin et al., 2015). В сентябре–октябре 2011 г. и августе–октябре 2015 г. был получен ряд данных об усредненных концентрациях черного углерода в приземном слое арктических морей, варьирующих в диапазоне от 20 до 400 нг/м<sup>3</sup> (Stohl et al., 2013; Schevchenko et al., 2016). Однако большая дискретность проведенных измерений накладывает ограничение на возможность проведения количественного анализа временной эволюции свойств аэрозоля в соответствии с направлением переноса масс и распределением источников эмиссий (Stohl et al., 2013).

Подробный анализ аэрозольного загрязнения атмосферы предполагает проведение измерений массового содержания черного углерода в комплексе с исследованиями физико-химических свойств аэрозоля (Поповичева и др., 2010). Анализ элементного состава и морфологии индивидуальных частиц на арктической станции Нью-Олесунн (арх. Шпицберген) показал, наряду с природными частицами морской соли, сульфатов, карбонатов и силикатов, появление частиц сажи и золы в моменты прихода воздушных масс с континента (Weinbruch et al., 2012). Исследования в прибрежных зонах Северного Ледовитого океана подтвердили сложный многокомпонентный состав арктических аэрозолей (Xie et al., 2007). В них, наряду с частицами сажи, было обнаружено высокое содержание серы, типичное для эмиссий морских судов (Киреева и др., 2011). Расширенный иерархический кластерный анализ, примененный для анализа микроструктуры аэрозолей, позволил выделить характерные группы и типы частиц в выхлопах судовых двигателей (Popovicheva et al., 2012), что может служить основой дальнейшего анализа возможных загрязнений природного арктического аэрозоля эмиссией морского транспорта.

#### ЭКСПЕДИЦИЯ «СЕВЕР -2015»

Экспедиция «Север-2015» проводилась на борту научно-экспедиционного судна «Академик Трёшников» в период с 9 по 25 октября 2015 г. (рис. 1). Десятого октября

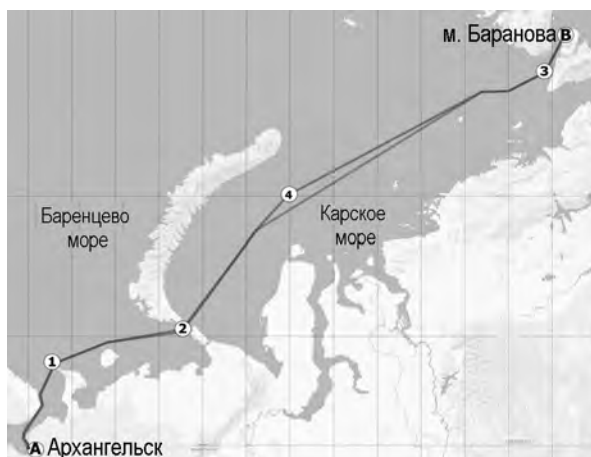


Рис. 1. Маршрут экспедиции «Север-2015» на борту НЭС «Академик Трёшников».

корабль вышел из порта г. Архангельска ( $64,58^{\circ}$  с.ш.,  $40,50^{\circ}$  в.д., точка А), далее проследовал через дельту р. Двины в Белое море; мимо мыса Канин Нос (точка 1) в Баренцево море; через Карские Ворота (точка 2) и Карское море до архипелага Северная Земля ( $79,35^{\circ}$  с.ш.,  $101,83^{\circ}$  в.д., точка В). После двухдневной стоянки с 15 по 17 октября около научно-исследовательского стационара «Ледовая база «Мыс Баранова»» (точка 3) корабль практически тем же маршрутом вернулся в г. Архангельск. В результате шторма с 19 по 21 октября корабль маневрировал в Карском море (точка 4), после чего продолжил маршрут до Архангельска, куда прибыл 25 октября.

Метеорологические наблюдения во время плавания проводились с помощью метеостанции Vaisala MAWS-420. Дисперсионная лагранжева модель FLEXPART была использована для расчетов переноса воздушных масс на основе данных реанализа ECMWF дискретностью три часа и с горизонтальным разрешением  $1 \times 1^{\circ}$  (Popovicheva et al., 2017). Было проведено сравнение измеренных концентраций эквивалентного элементного углерода (ЕВС) с модельными расчетами FLEXPART на основе базы данных глобальных эмиссий ECLIPSE, включающей распределенные источники сжигания природного топлива для отопления, в промышленных и транспортных целях, а также горения биомасс в природных пожарах.

#### МЕТОДИКА

Для оценки концентрации аэрозолей учеными МГУ и ЦАО был создан портативный аэталометр, измеряющий поглощение света на трех длинах волн (450, 550 и 650 нм), обусловленное осаждением частиц при прокачке атмосферного воздуха через кварцевый фильтр. Специально для работы в условиях низких температур и сильных ветров был разработан пробоотборник с нагреваемым входным каналом. Коэффициент поглощения света осажденным аэрозолем рассчитывался методом, предложенным в работе (Hansen, Rosen, 1985). ЕВС рассчитывалась с использованием соответствующего массового коэффициента ослабления. Калибровка прибора проводилась при долговременных измерениях параллельно с аэталометром АЕ33 (Popovicheva et al., 2017). Чувствительность измерений ЕВС составляла  $30 \text{ нг/м}^3$  при шестиминутном осреднении. При плохих погодных условиях (дождь, снег) регистрировалось более высокое отношение шум/сигнал. Эти короткие периоды исключались из базы данных.



Рис. 2. Места отбора проб аэрозоля на борту НЭС «Академик Трёшников».

1 — место отбора проб и проведения непрерывных измерений ЕВС на носовой палубе; 2 — место отбора проб для оценки аэрозольного загрязнения воздуха судовым двигателем.

Для отбора проб аэрозоля для физико-химического анализа на фильтры была разработана система отбора большого объема воздуха, необходимая в условиях низкой концентрации аэрозоля в арктическом регионе. При этом использовался разработанный в МГУ 2-каскадный импактор с разделением частиц по размерам в диапазоне от 0,6 до 10 мкм.

Для проведения измерений характеристик аэрозолей на борту НЭС «Академик Трёшников» было определено место с наименьшим воздействием выхлопов дымовой трубы. С этой целью предварительно на всех палубах с помощью монитора TSI DustTrak 8530 была измерена массовая концентрация частиц (PM). Наиболее чистым местом оказалась носовая палуба, в районе которой был установлен аэталометр и проводился отбор проб аэрозоля для последующего микроскопического анализа воздуха на фильтры. Второй аэталометр был установлен вблизи трубы (рис. 2). Таким образом был обеспечен мониторинг аэрозоля в невозмущенном приводном слое атмосферы и в районе потенциального влияния выхлопов двигателей корабля. Эпизоды возможных загрязнений идентифицировались по данным о направлении и скорости кажущегося ветра: случаи, когда ветер дул с кормы, были исключены из базы данных ЕВС. Такие эпизоды были зарегистрированы при маневрах корабля в Карском море (рис. 1, точка 4).

Анализ отобранных на фильтры образцов арктического аэрозоля: морфология, размер и элементный состав индивидуальных частиц размером от 100 нм до 3 мкм — был выполнен в МГУ методами сканирующей электронной микроскопии на эмиссионном микроскопе LEO 1430-вр (Carl Zeiss) с разрешением 5 нм, оборудованном Oxford EDX детектором. Для определения микроструктуры арктических аэрозолей впервые был использован расширенный иерархический кластерный анализ индивидуальных частиц, который позволяет выделять характерные группы частиц подобного состава и морфологии (Popovicheva et al., 2012). Для идентификации возможного вклада эмиссии судовых двигателей кораблей в состав аэрозолей приводного слоя атмосферы были использованы результаты анализов, полученные ранее в рамках измерительной кампании проекта TRANSFORM (Moldanova et al., 2009).

## РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 3 представлены результаты измерения концентрации ЕВС на маршруте Архангельск — Мыс Баранова — Архангельск. 10 октября 2015 г. вблизи порта Архангельска среднечасовые значения ЕВС достигали  $700 \text{ нг/м}^3$ , что указывает на мощные локальные источники загрязнения атмосферы. После выхода из промышленных районов дельты р. Двины значение ЕВС понизилось до  $100 \text{ нг/м}^3$ . На акватории Белого моря концентрация ЕВС составляла в среднем  $40 \text{ нг/м}^3$ . Небольшой максимум ( $\sim 163 \text{ нг/м}^3$ ) наблюдался вблизи Кольского полуострова утром 11 октября. В бассейне Баренцева моря поглощение было ниже предела чувствительности аэталометра, и только в Печорском море 12 октября концентрация ЕВС достигла  $153 \text{ нг/м}^3$ . В районе Карских Ворот значение ЕВС возросло до  $220 \text{ нг/м}^3$  и продолжало увеличиваться в Карском море до максимума  $360 \text{ нг/м}^3$ . В это время был зафиксирован перенос воздушных масс из Ямало-Ненецкого и Ханты-Мансийского регионов. Заметим, что типичное для других районах Арктики значение концентрации ЕВС в это время года значительно ниже, около  $10 \text{ нг/м}^3$ , что считается арктическим фоном (Stone et al., 2014). Следовательно, значения концентрации ЕВС в Баренцевом море были близки к фоновым, в то время как в Карском море они заметно превышали фоновые значения. Утром 13 октября в восточной части Карского моря концентрация ЕВС уменьшилась до  $100 \text{ нг/м}^3$  и затем варьировала между  $50$  и  $220 \text{ нг/м}^3$ . Вблизи архипелага Северная Земля 14 октября концентрация ЕВС не превышала фоновое значения. 15 октября корабль пришвартовался в проливе Шокальского вблизи станции «Ледовая база «Мыс Баранова»».

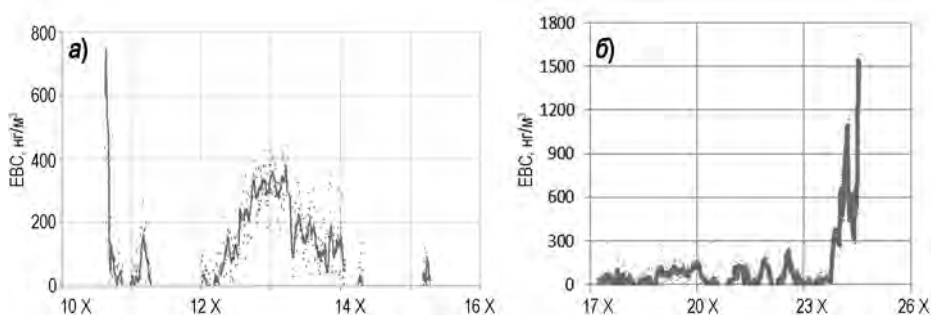


Рис. 3. Массовая концентрация черного углерода (ЕВС) в период экспедиции «Север-2015»: а — результаты измерения на маршруте Архангельск — Мыс Баранова; б — результаты измерения на маршруте Мыс Баранова — Архангельск.

На обратном пути утром 18 октября была зарегистрирована концентрация ЕВС порядка  $60 \text{ нг/м}^3$ . С 19 по 21 октября корабль маневрировал в центральной части Карского моря, концентрация ЕВС составляла  $\sim 200 \text{ нг/м}^3$ . 22 октября концентрация ЕВС снизилась до порога чувствительности прибора. 23 октября, при прохождении через Карские Ворота, был зарегистрирован перенос воздушных масс с юго-запада, районов Ямало-Ненецкого АО и Республики Коми, вследствие чего концентрация ЕВС достигла максимума  $250 \text{ нг/м}^3$ , подобного зарегистрированной 12 октября. Далее, в Баренцевом море на пути до Кольского полуострова, она снова заметно снизилась. 24 и 25 октября, в Белом море и в дельте р. Двины, концентрация ЕВС возросла до  $\sim 1100 \text{ нг/м}^3$ , и, когда корабль прибыл в порт Архангельска, концентрация ЕВС составила  $1500 \text{ нг/м}^3$ . В эти дни загрязненные воздушные массы поступали с юго-за-

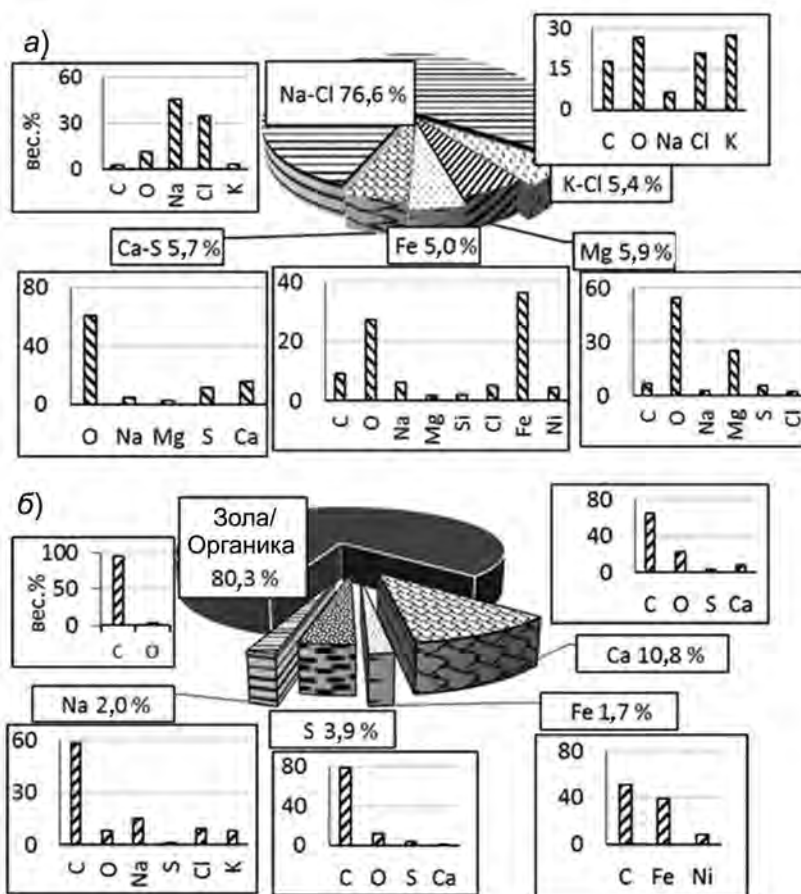


Рис. 4. Микроструктура аэрозолей: группы (в процентах) и средний состав частиц в каждой группе (в весовых процентах) в природном аэрозоле: а) 14 октября около архипелага Северная Земля, б) вблизи выхлопов дымовой трубы.

пада, в основном из Восточной Европы и Украины: около 10 % от пожаров и 90 % от антропогенных источников, включая наземный транспорт, отопительные устройства и промышленные эмиссии (Popovicheva et al., 2017).

Следует отметить, что в периоды, когда аэрометр, расположенный на корме, оказывался по направлению ветра от дымовой трубы, концентрация ЕВС достигала порядка  $5 \text{ мкг/м}^3$ , уровень максимально возможного локального загрязнения.

Анализ направлений прихода воздушных масс показал, что эпизоды низких концентраций ЕВС во время экспедиции наблюдались в случаях переноса с Северного Ледовитого океана. Возрастание концентрации ЕВС сопровождалось сменой направления и преобладанием выноса с континента. Идентификация случаев фоновых значений ЕВС дала уникальную возможность определить микроструктуру природного арктического аэрозоля. На рис. 4а показаны результаты кластерного анализа, примененного к частицам, отобраным 14 октября вблизи о. Большевик архипелага Северная Земля. Как видно из рисунка, доминируют группа Na-Cl (76,6 %) со средним содержанием Na ~45 вес.% и Cl ~35 вес.% и группа, богатая марганцем (5,9 %),

состоящие из типичных кристаллов морской соли. В других группах Ca-S (5,7%), K-Cl (5,4 %) и Fe (5,0 %) определены значительные концентрации сульфатов  $\text{CaSO}_4$ , солей KCl и Fe-содержащих минералов.

Перенос воздушных масс с континента существенно изменяет микроструктуру аэрозолей. Так, 23 октября, при прохождении через Карские Ворота, перенос воздушной массы из районов Ямало-Ненецкого АО и Коми сопровождался появлением группы углеродосодержащих частиц (2,5 %) со средним содержанием C ~97 вес.% и O ~3 вес.% и группы частиц, богатых серой (2 %) до 22 вес %, являющихся признаком эмиссий сжигания природных топлив (Weinbruch et al., 2012; Popovicheva et al., 2012).

Для оценки возможного вклада эмиссии судовых двигателей НИС «Академик Трёшников» в состав аэрозолей приводного слоя атмосферы был проведен анализ микроструктуры частиц выхлопов дымовой трубы. Пробы были отобраны вблизи расположенного на корме азталометра (рис. 4б). Как видно из рисунка, в этом случае доминирует группа сажевого аэрозоля (80,3%), содержащая в среднем C ~98 вес.% и O ~2 вес.%, с типичной морфологией частиц эмиссии морского транспорта (Поповичева и др., 2010). Следует отметить, что частицы такого типа ни разу не были обнаружены при отборе проб на носовой палубе, что косвенно свидетельствует о репрезентативности изложенных в статье результатов исследований аэрозольной составляющей атмосферы в приводном слое арктических морей.

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе высокоширотной экспедиции «Север-2015» проведен комплекс измерений массовой концентрации черного углерода с высоким временным разрешением. Анализ аэрозольного состава атмосферы в исследованном районе Арктики показал существенное воздействие переноса воздушных масс с континента. В то же время микроструктура природного арктического аэрозоля в периоды переноса воздушных масс из Арктического бассейна демонстрирует типичный состав и морфологию морского аэрозоля. Идентификация изменений микроструктуры арктического аэрозоля приводного слоя атмосферы под воздействием источников загрязнения в корреляции с увеличением концентрации черного углерода указывает на возможные последствия опасных воздействий на климат в Арктике.

*Работа выполнена при финансовой поддержке гранта РФФИ 15-5554020, ЦНТП 1.5.3.3 Росгидромета и проекта 2017-14-588-0005-003 Министерства образования и науки Российской Федерации*

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Киреева Е.Д., Поповичева О.Б., Тимофеев М.А. и др. Физикохимия углеродосодержащих аэрозолей эмиссии морских кораблей // Оптика атмосферы и океана. 2011. Т. 24. № 6. С. 459–467.
- Полькин В.В., Голобокова Л.П., Козлов В.С., Коробов В.Б., Лисицын А.П., Панченко М.В., Пескова М.А., Ходжер Т.В., Шевченко В.П. Оценка связи микрофизического и химического состава для приводного аэрозоля Белого моря // Оптика атмосферы и океана. 2004. № 17. С. 377–386.
- Поповичева О.Б., Киреева Е.Д., Тимофеев М.А., Шония Н.К., Могильников В.П. Углеродосодержащие аэрозоли в эмиссиях авиации и морского транспорта // Известия РАН. Физика атмосферы и океана. 2010. № 3. С. 368–375.
- AMAP Report. P.K. Quinn, A. Stohl, et al. The Impact of Black Carbon on Arctic Climate. Arctic Monitoring and Assessment Program, 2011. Oslo. 72 p.

- Doherty S.J., Warren S.G., Grenfell T.C. et al.* Light-absorbing impurities in arctic snow // *Atmos. Chem. Phys.* 2010. Vol. 10 P. 11647–11680.
- Flanner M.G.* Arctic climate sensitivity to local black carbon // *J. Geophys. Res.* 2013. Vol. 118. P. 1840–1851, doi:10.1002/jgrd.50176.
- Hansen A.D.A., Rosen H.* Horizontal inhomogeneities in the particulate carbon component of the Arctic haze // *Atmos. Environ.* 1985. Vol. 19 (12). P. 2175–2180.
- Koch D. et al.* Evaluation of black carbon estimations in global aerosol models // *Atmos. Chem. Phys.* 2009 Vol. 9. P. 9001–9026.
- Moldanova J., Fridell E., Popovicheva O. et al.* Characterization of particulate matter and gaseous emissions from a large ship diesel engine // *Atmos. Environ.* 2009. Vol. 43. P. 2632–2641.
- Popovicheva O., Kireeva E., Persiantseva N., Timofeev M., Bladt H., Ivleva N.P., Niessner R., Moldanová J.* Microscopic characterization of individual particles from multicomponent ship exhaust // *J. Environ. Monit.* 2012. Vol. 14 (12). P. 3101–3110.
- Popovicheva O., Evangeliou N., Eleftheriadis K., Athina K.C., Sitnikov N., Eckhard S., Stoh A.* Black carbon sources constrained by observations and modeling in the Russian high Arctic // *Environ. Sci. Tech.* 2017. Vol. 51 (7). P. 3871–3879.
- Sakerin S.M., Bobrikov A.A., Bukin O.A., Golobokova L.P., Pol'kin Vas.V., Pol'kin Vik.V., Shmirko K.A., Kabanov D.M., Khodzher T.V., Onischuk N.A., Pavlov A.N., Potemkin V.L., Radionov V.F.* On measurements of aerosol-gas composition of the atmosphere during two expeditions in 2013 along the Northern Sea Route // *Atmos. Chem. Phys.* 2015. Vol. 15 (21). P. 12413–12443.
- Shevchenko V.P., Kopeikin V.M., Evangeliou N. et al.* Atmospheric black carbon over the north atlantic and Russian arctic seas in summer-autumn time // *Химия в интересах устойчивого развития.* 2016. Т. 24. С. 441–446.
- Stock M., Ritter C., Herber A., et al.* Springtime Arctic aerosol: Smoke versus haze, a case study for March 2008 // *Atmos. Environ.* 2012. Vol. 52. P. 48–55.
- Stohl A., Klimont Z., Eckhardt S., et al.* Black carbon in the Arctic: The underestimated role of gas flaring and residential combustion emissions // *Atmos. Chem. Phys.* 2013. Vol. 13 (17). P. 8833–8855.
- Stone R.S., Sharma S., Herber A. et al.* A characterization of Arctic aerosols on the basis of aerosol optical depth and black carbon measurements // *Elem. Sci. Anthr.* 2014. Vol. 2. P. 1–22.
- Weinbruch S., Wiesemann D., Ebert M. et al.* Chemical composition and sources of aerosol particles at Zeppelin Mountain (NyÅlesund, Svalbard): An electron microscopy study // *Atmos. Environ.* 2012. Vol. 49. P. 142–150.
- Xie Z., Blum J.D., Utsunomiya S. et al.* Summertime carbonaceous aerosols collected in the marine boundary layer of the Arctic Ocean // *J. Geophys. Res.* 2007. Vol. 112. D02306.
- Yun Y., Penner J.E., Popovicheva O.* The effects of hygroscopicity on ice nucleation of fossil fuel combustion aerosols in mixed-phase clouds // *Atmos. Chem. Phys.* 2013. Vol. 13. P. 4339–4348.

*O.B. POPOVICHEVA, A.P. MAKSHITAS, V.V. MOVCHAN, N.M. PERSIANTSEVA,  
M.A. TIMOFEEV, N.M. SITNIKOV*

## **AEROSOL COMPONENT OF THE ATMOSPHERIC SURFACE LAYER ACCORDING OBSERVATIONS OF THE EXPEDITION “NORTH-2015”**

The results of the atmospheric sea surface layer aerosol composition studies executed during expedition “Sever-2015” on the route from Arkhangelsk to the Severnaya Zemlya archipelago from October 9 to 26, 2015 are presented. The data about mass concentration of black carbon (EBC) obtained with high spatial-temporal resolution in the White, Barents and Kara Seas showed its significant variability: from background values about 20 ng/m<sup>3</sup> to values of more than 1000 ng/m<sup>3</sup>



during periods of air mass transfer from the continent. Cluster analysis of the microstructure of natural arctic aerosols gave possibility to identify the dominant groups of particles of sea salt and calcium sulfate. In case the increase of EBC up to 250 ng/m<sup>3</sup> the groups of carbon-containing aerosols and particles rich in sulfur, characteristic for emissions from the combustion of natural fuel were revealed.

*Keywords:* arctic aerosol, black carbon, microstructure, expedition.