

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ
ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ
«САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ»
(СПбГУ)

Направление 03.03.01 «Прикладные математика и физика»

Кафедра физики атмосферы



Выпускная квалифицированная работа
«Пространственное распределение потенциальных источников
углеродсодержащих аэрозолей в центральной Сибири.»

Выполнил студент:

Михайлова Анастасия Сергеевна

Научный руководитель:

к. ф.-м. н., доц. **Власенко Сергей Сергеевич**

Рецензент:

к. ф.-м. н, с. н. с., **Терпугова Светлана Александровна**

Санкт-Петербург

2023

Содержание

Введение	4
Обзор литературы	5
Глава 1. Атмосферные аэрозоли.....	7
1.1. Основные понятия	7
1.2. Углеродосодержащий аэрозоль.....	7
1.3. Анализ проб.....	8
Глава 2. Описание моделей	10
2.1. HYSPLIT	10
2.2. PSCF (Potential source contribution function) — функция вклада потенциальных источников	12
2.3. CWT (Concentration-weighted trajectory) — метод взвешенных траекторий	14
2.4. WPSCF (Weighted potential source contribution function) и WCWT (weighted concentration-weighted trajectory).....	14
2.5. Учет фоновых концентраций для метода PSCF	16
Глава 3. Анализ данных	18
3.1. Данные концентраций	18
3.2. Разбиение на сезоны	21
3.3. Обратные траектории	23
3.4. Холодные сезоны	24
3.4.1. Органический углерод	24
3.4.2. Элементарный углерод.....	26
3.4.3. Общие выводы по холодным сезонам	27
3.5. Теплые сезоны.....	29

3.5.1. Органический углерод	29
3.5.2. Элементарный углерод.....	30
3.5.3. Общие выводы по теплым сезонам.....	31
Заключение	34
Список литературы	36
Благодарность.....	41

Введение

Проблема загрязнения окружающей среды требует большого объема экспериментальных данных, которые необходимо обрабатывать, сортировать и использовать в вычислительных алгоритмах исследований процессов, связанных с переносом загрязняющих веществ. В данной работе рассмотрен один из факторов, влияющих на изменение климата – углеродосодержащий аэрозоль. Контролировать уровень техногенного загрязнения, частоту и силу пожаров бореальных лесов, и влияние прочих факторов на концентрации углеродосодержащего аэрозоля позволяют модели, оценивающие поля концентраций. Необходимо идентифицировать источники загрязнений для понимания значительности их вкладов в общее содержания аэрозоля в атмосфере.

Целью данной работы является изучение движения воздушных масс, переносящих, в частности, углеродосодержащий аэрозоль, получение обратных траекторий и выявление закономерностей формирования пиковых значений, а также анализ возможных источников загрязнений. Необходимо визуализировать распределение концентраций по данным обратных траекторий, полученных с помощью модели NOAA HYSPLIT. Были проанализированы данные измерений концентрации элементарного и органического углерода в период с 19 апреля 2010 по 12 декабря 2020, полученные со станции ZOTTO в Центральной Сибири (60,47° с.ш., 89,21° в.д.).

Обзор литературы

Траекторные статистические методы были впервые предложены в работах Эшбо [Ashbaugh, 1983], Эшбо и др. [Ashbaugh, et al., 1985], Мальмом [Malm, et al., 1986] и активно используются для идентификации источников атмосферных загрязнений. Широкое применение получили метод функции вклада потенциальных источников (potential source contribution function) – PSCF [Ashbaugh, et al., 1985; Zeng, et al., 1989] и метод взвешенных траекторий (concentration weighted trajectory) – CWT [Hsu, et al., 2003], которые будут рассмотрены в данной работе. Также используются методы RTWC (residence time weighted concentration), QTBA (quantitative transport bias analysis), SQTBA (simplified QTBA) [Zhou, et al., 2004, Han, et al., 2004] и некоторые другие.

Первые и наиболее исчерпывающие обоснования методов PSCF и CWT можно найти в работах [Ashbaugh, et al., 1985] и [Hsu, et al., 2003]. Для обоих методов на рассматриваемую географическую область накладывается вычислительная сетка, а далее каждой клетке полученной сетке присваивается некоторое значение, характеризующее вероятность нахождения в ней потенциального источника исследуемого аэрозоля. Более подробно методы будут описаны во второй главе данной работы.

Оба метода нашли широкое применение для определения потенциальных источников различных атмосферных загрязнителей. Так, метод PSCF использовался для изучения вероятных мест происхождения газообразной ртути, наблюдаемой в долине реки Святого Лаврентия [Laurier, 1999]. Метод может использоваться в качестве вспомогательного инструмента: примером может служить работа по определению местоположений источников, выявленных в результате анализа PMF (positive matrix factorization) [Xie, et al., 1999]. Также PSCF применялся для изучения данных о ядрах конденсации,

«черном» углероде и коэффициенте рассеяния на длине волны 450 нм в Барроу, Аляска [Polissar, et al., 2001] и т.д.

В настоящее время траекторные статистические методы продолжают развиваться: они модифицируются, расширяется их применение. Применяются для идентификации потенциальных источников PM 2.5 [Tianyi Hao, 2019; Li, et al., 2020; Renchang Yan, 2015], PM 10 [Renchang Yan, 2015], ^7Be и ^{210}Pb [Berriban, et al., 2022], NO_2 , SO_2 и HCHO [Ren, et al., 2021; Renchang Yan, 2015], ЛОВ (летучих органических веществ), озона [Wang, et al., 2023; Renchang Yan, 2015], CO и CO_2 [Renchang Yan, 2015] и др. В России проводились исследования источников нитрата аммония, сульфата аммония и природных силикатов [Шукуров, 2017], $\text{Hg}(0)$ [Шакиров и др., 2021].

Траекторные статистические методы апробированы для различных типов измерений: с их помощью были исследованы различные газы и аэрозоли. В частности, такие методы использовались в ряде работ для определения потенциальных источников различных компонент углеродосодержащего аэрозоля.

Так, углеродосодержащие аэрозоли рассматривались в таких работах как: [Vyčenkienė, et al., 2014; Deng, 2020; Jeon, et al., 2018] для «черного» углерода, [Han, et al., 2022; Jeong U, 2011; Mengying Bao, 2017] для органического и элементарного. В основном работы принадлежат китайским и корейским исследователям.

Глава 1. Атмосферные аэрозоли

1.1. Основные понятия

Аэрозолями, или аэрозольными системами, называются дисперсные системы с газообразной средой с твердой или жидкой дисперсной фазой [Фукс, 1955].

Основными источниками аэрозолей являются поверхности суши, морей и океанов, метеоритные потоки, лесные пожары, химические и фотохимические реакции в атмосфере и растительном покрове, хозяйственная деятельность человека [Ивлев Л.С., 1999]. Существование аэрозолей чрезвычайно важно для жизни человека. Рассеивающие и поглощающие способности атмосферного аэрозоля являются одними из определяющих факторов, влияющих на оптические характеристики атмосферы и ее радиационный баланс [Науwood, 2000]. Также аэрозоли важны для гидрологического цикла регионов за счёт их роли в образовании облачных систем, где они выступают как ядра конденсации в процессах облако- и льдообразования, что приводит к изменению радиационного баланса и интенсивности осадков в атмосфере.

1.2. Углеродосодержащий аэрозоль

Аэрозоль оказывает сильное воздействие на климат, и особое внимание уделяется вкладу углеродосодержащих аэрозолей. Первичными загрязнителями воздуха являются оксиды углерода, сажа и диоксид серы, образующиеся непосредственно при сжигании топлива.

По разным оценкам глобальная эмиссия аэрозольного углерода в атмосферу составляет от 50 до 240 Тг/год [Власенко С.С, 2019]. Источниками биогенных летучих органических соединений являются в основном продукты горения биомассы во время лесных пожаров. На территории центральной

Сибири ключевую роль играют бореальные леса – они являются важным источником аэрозольных частиц, образованных в результате горения биомассы [Conard, et al., 1997]. Также существенная часть выбросов приходится на океан, топливно-энергетический комплекс и транспорт.

В атмосфере углерод, содержащийся в аэрозольных частицах, представлен в двух формах: элементарный углерод – ЕС [Andrea, et al., 2006] и в составе различных органических соединений – органический углерод, ОС. Элементарный углерод образуется главным образом при неполном сгорании биогенных материалов. Основная масса органического углерода попадает в атмосферу, как и ЕС – в результате горения и пиролиза органических соединений. Также часть его формируется прямо в атмосфере путем фотохимического окисления низколетучих циклических углеводородов и образует так называемый вторичный органический аэрозоль [Власенко С.С, 2019].

В данной работе будут исследованы данные исключительно органического и элементарного углерода без отдельного рассмотрения водорастворимого органического аэрозоля или коричневого углерода.

1.3. Анализ проб

Для определения содержания органического и элементарного углерода в атмосферных аэрозолях частицы отбирались на кварцевые фильтры. Время отбора составляло как правило несколько суток [Михайлов Е.Ф., 2015]. Для минимизации погрешности определения концентраций ОС и ЕС в аэрозольных пробах, кварцевые фильтры предварительно очищались путем термической обработки.

Для анализа состава углеродсодержащей фракции в фильтровых пробах применяется термооптический метод [Birch, 1996]. Фильтровые пробы,

результаты концентраций которых будут проанализированы в данной работе, были получены с помощью термооптического анализатора содержания органического и элементарного углерода Sunset Lab [Putaud, et al., 2009].

Термооптический принцип работы позволяет минимизировать ошибки в определении элементарного углерода, возникающие за счет обугливания органических веществ при высокотемпературном нагреве. Инструментальная погрешность определения ОС и ЕС не превышает 5% [Birmili W., 2007]. Метод позволяет измерить в пробах содержание органического и элементарного углерода, концентрации которых нас и будут интересовать.

Глава 2. Описание моделей

2.1. HYSPLIT

Для получения обратных траекторий была использована модель HYSPLIT (hybrid single-particle Lagrangian integrated trajectory) [Stein, et al., 2015]. Она представляет собой систему для вычисления простых траекторий воздушных участков, а также сложных моделей переноса, дисперсии, химического превращения и осаждения. Распространенными применениями модели являются, в том числе, анализ обратных траекторий для определения происхождения воздушных масс и установления связей источник-рецептор, отслеживание и прогнозирование движения аэрозольных частиц.

Метод расчета модели представляет собой комбинацию методов Лагранжа и Эйлера. Подход Лагранжа на изучение движения сплошной среды заключается в описании движения каждой точки сплошной среды в отдельности согласно закон теоретической механики. Подход Эйлера не отслеживает движение отдельных частиц вдоль траектории, а рассматривает вариацию параметров сплошной среды в некоторой точке рассматриваемого пространства, то есть задает все характеристики сплошной среды как функции координат и времени – поля характеристик.

Адвекция частицы вычисляется как среднее трехмерного вектора скорости в начальном положении $P(t)$ и первого приближения $P'(t+dt)$. Векторы скорости линейно интерполируются по пространственным координатам и времени. Первое приближение имеет вид [Stein, et al., 2015]:

$$P'(t + dt) = P(t) + v(P, t)dt \quad (1)$$

Следовательно, конечное положение описывается следующим образом:

$$P(t + dt) = P(t) + 0,5 \times [v(P, t) + v(P', t + dt)]dt \quad (2)$$

Траектории заканчиваются, если они находятся в верхней части модели, но считается, что адвекция продолжается вдоль поверхности, если траектории пересекают землю.

Шаг интегрирования переменных, он рассчитывается на основе требования о том, что расстояние между точками вычислительной сетки при расчетах должно составлять менее 0,75, то есть малый промежуток времени dt должен удовлетворять условию $v_{max}dt < 0,75$ [Draxler, 1998].

Рассчитанная обратная траектория устанавливает связь между источником и рецептором, но единственная траектория не может адекватно локализовать источник из-за постоянно протекающих сложных процессов смещения в атмосфере и из-за ошибок самого построения траекторий. Тем не менее, полный лагранжев метод, основанный на переходе от эйлеровых переменных к лагранжевым, позволяет вычислять концентрации дисперсной фазы из уравнения неразрывности. Таким образом, концентрация находится из решения системы обыкновенных дифференциальных уравнений вдоль траектории. Данный подход позволяет не усреднять траектории частиц, что уменьшает число необходимых траекторий и исключает необходимость установления конкретного размера вычислительной сетки [Lain S., 2003].

Построение обратных траекторий производилось на основе метеоданных, которые были взяты из архива NCEP/NCAR. Файлы соответствуют формату, подходящему для расчетов переноса с использованием HYSPLIT. Дискретизация глобальной карты составляет $2,5^\circ \times 2,5^\circ$. Метеоданные также включают в себя информацию об уровне давления, ветре, температуре на поверхности, осадках.

В данной работе были построены множественные траектории, сгруппированные по двум периодам (см. пункт 3.2), что позволило упростить анализ и интерпретацию результатов, а также уменьшило неоднозначность определения траектории атмосферного переноса.

2.2. PSCF (Potential source contribution function) — функция вклада потенциальных источников

В работе используется статистический метод PSCF [Ashbaugh, et al., 1985; Malm, et al., 1986], предназначенный для определения местоположения источников загрязнений и основанный на анализе обратных траекторий. Область, содержащая в себе потенциальные источники, покрывается вычислительной сеткой, в которой каждую конкретную ячейку пересекают обратные траектории, проходящие через области, где производится регистрация концентрации загрязнений. Воздушные потоки переносят загрязнения от источников загрязнения к месту сбора образцов.

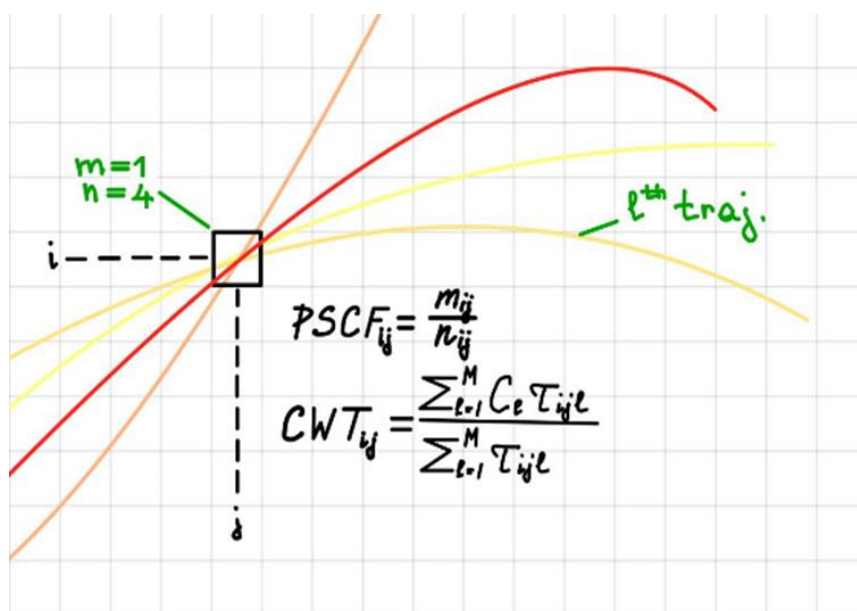


Рисунок 1. Схематичное изображение расчета математических величин PSCF и CWT.

Пояснение к формулам (3) и (5).

Число траекторий, проходящих через ij^{yo} ячейку, обозначается как n_{ij} . Число траекторий в ij^{yo} ячейке, имеющее одинаковое время регистрации, в которых отмеченная концентрация превышает произвольный отмеченный критерий, обозначается как m_{ij} . Тогда математическая величина PSCF определяется как [Норке, 2002]:

$$PSCF_{ij} = \frac{m_{ij}}{n_{ij}} \quad (3)$$

Данная величина может быть интерпретирована как условная вероятность, описывающая пространственное распределение вероятных местонахождений источников загрязнений. Ячейки, для которых вычисленное значение PSCF близко к единице, являются потенциальными источниками.

Одним из недостатков данного метода является неточное определение PSCF в ячейках сетки, где значения концентрации близки к установленному критерию или наоборот – значительно превышают его. В результате имеет место быть слияние сильных и умеренных источников загрязнений. В следствие этого важно корректно определять пороговое значения, избавляясь таким образом от проблемы слияния источников.

При реализации метода значение функции в ij^{oi} ячейке задается следующим образом:

$$PSCF_{ij} = \frac{1}{\sum_{l=1}^M \tau_{ijl}} \sum_{l=1}^M \theta(C_l - p) \tau_{ijl} \quad (4)$$

Здесь τ_{ijl} — время, в течение которого $l^{ая}$ траектория проходила в ij^{oi} ячейке, M — число всех обратных траекторий, C_l — $l^{ая}$ концентрация, соответствующая данной траектории, p – пороговое значение, θ – функция Хэвисайда.

2.3. CWT (Concentration-weighted trajectory) — метод взвешенных траекторий

Данный метод позволяет восстановить пространственное распределение средней концентрации примеси, поступающей к рецептору от потенциального источника. Каждой ячейке вычислительной сетки присваивается взвешенная концентрация, полученная путем усреднения концентраций, соответствующих проходящим через данную ячейку траекторий (см. Рисунок 1 для визуализации метода).

$$CWT_{ij} = \frac{1}{\sum_{l=1}^M \tau_{ijl}} \sum_{l=1}^M C_l \tau_{ijl} \quad (5)$$

Здесь CWT_{ij} — средняя концентрация примеси в ij^{oi} ячейки, C_l — концентрация в l^{oi} ячейке, τ_{ijl} — время, в течение которого l^{oa} траектория проходила в ij^{oi} ячейке, M — число всех обратных траекторий [Hsu, et al., 2003].

Высокое значение CWT_{ij} говорит о том, что воздушные массы, проходящие через ij^{yo} ячейку, имеют высокую концентрацию исследуемого вещества. Данный метод помогает определить самые значимые по своему вкладу источники.

2.4. WPSCF (Weighted potential source contribution function) и WCWT (weighted concentration-weighted trajectory)

Поскольку PSCF вычисляется как отношение количества траекториями с большими концентрациями к количеству всех траекторий, относительно небольшие m_{ij} приводят к сильной неопределённости при вычислении $PSCF_{ij}$. Для метода взвешенных концентраций данная проблема тоже актуальна. При больших значениях количества траекторий в ячейке вычисленное значение обладает большей статистической стабильностью. Чтобы уменьшить влияние

ячеек с маленьким количеством проходящих через них траекторий, значение $PSCF_{ij}$ умножается на весовую функцию W_{ij} . Это же весовая функция применяется и для метода CWT.

Среднее число траекторий \bar{N} в ячейке в теплый и холодный период составило 631 и 456 соответственно.

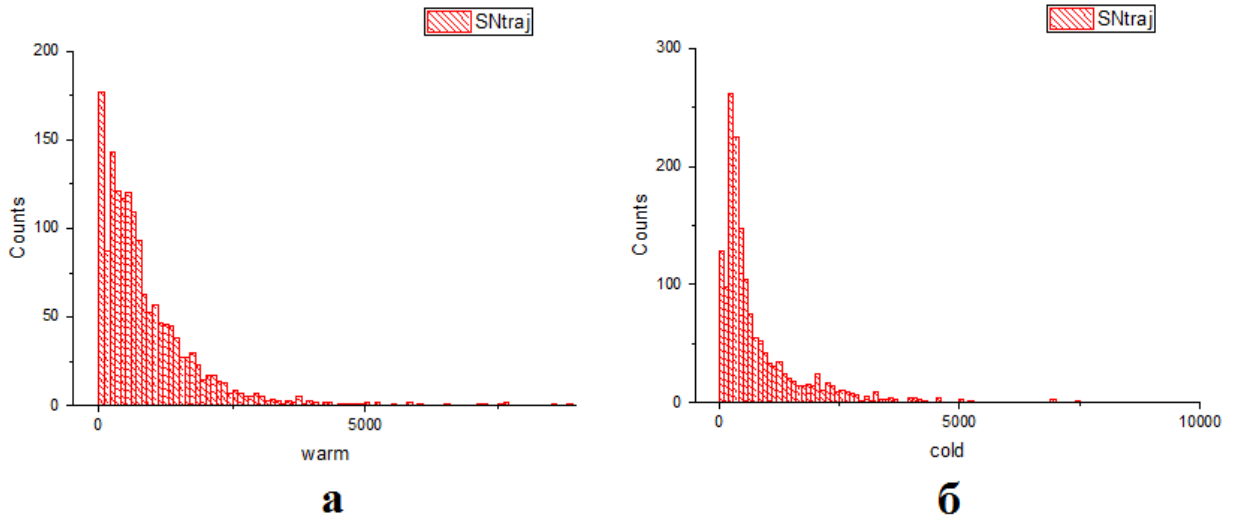


Рисунок 2. Распределение числа траекторий в ячейке для двух рассматриваемых периодов: а) для теплого; б) для холодного.

Из Рисунка 2 видно, что для большинства ячеек число траекторий является удовлетворительным. Будем считать 20 траекторий в ячейке достаточным для того, чтобы говорить о статистической стабильности. Тогда весовую функцию введем как:

$$W_{ij} = \begin{cases} 1, & \text{если } n_{ij} > 20 \\ 0.8, & \text{если } 10 < n_{ij} \leq 20 \\ 0.2, & \text{если } n_{ij} \leq 10 \end{cases} \quad (6)$$

Тогда математические значения WPSCF и WCWT запишутся следующим образом:

$$WPSCF_{ij} = W_{ij} \times PSCF_{ij} \quad (7)$$

$$WCWT_{ij} = W_{ij} \times CWT_{ij} \quad (8)$$

Здесь W_{ij} – веса, определённые из уравнения (5), а $PSCF_{ij}$ и CWT_{ij} – значения методов в ij^{oi} ячейке без учета весовой функции.

2.5. Учет фоновых концентраций для метода PSCF

Для более точных результатов необходимо учесть влияние локальных источников загрязнения воздуха и вычесть их из рассмотрения, оставляя только выбросы естественного происхождения и загрязнения, полученные в результате дальнего переноса. То есть необходимо рассчитать фоновое [Andrea, 2007] состояние атмосферы для корректного определения источников аэрозоля.

Для этого был применен статистический подход REBS (robust extraction of background signal) [Ruckstuhl, et al., 2000], в результате которого были получены значения фоновых концентраций $g_i(t_i)$ для каждого времени измерения t_i и значение адекватности модели (среднеквадратичное отклонение) σ .

Выделение фона особенно важно для метода PSCF, в котором полученные значения использовались в качестве порогового критерия для определения высоких концентраций. То есть концентрация считалась превышающей критерий, если она удовлетворяет соотношению

$$C_i(t_i) > g_i(t_i) + const \times \sigma \quad (9)$$

Для CWT выделение фона использовалось несколько иначе. Были рассмотрены оба случая: CWT без учета фоновых концентраций и модифицированный метод, в котором из фильтровых данных вычитались фоновые значения концентраций. В отличие от PSCF необходимость учета фона для метода взвешенных концентраций не столь очевидна, поэтому была

проведена сравнительная характеристика этих двух случаев. Результаты показали, что учет фона для CWT не повлиял на определение основных направлений потенциальных источников, но несколько изменил пространственное распределение средних источников.

Комментарии о целесообразности использования фоновых концентраций для метода взвешенных траекторий будут даны в третьей главе данной работы. График концентраций с уровнем фона соответствует Рисунку 3 ниже.

Глава 3. Анализ данных

В ходе данной работы были рассмотрены концентрации органического и элементарного углерода почти за 11 лет. Для получения обратных траекторий движения элементарных воздушных частиц использовалась модель NOAA HYSPLIT. 120-часовые множественные обратные траектории, начинающиеся на высоте 304 м над уровнем земли, группировались по двум периодам (холодный и теплый) для того, чтобы оценить основные вклады в разные периоды. Вычислительная сетка для статистических методов идентификации источников была выбрана между 50 и 70° с.ш. и между 80 и 100° в.д. с разрешением 0,5°×0,5°.

Все года анализировались вместе, для того, чтобы можно было сделать выводы об общих тенденциях в холодное и теплое время года, а не о локальных источниках каждый год отдельно. Так же отдельно были рассмотрены органический и элементарный углерод.

3.1. Данные концентраций

Результаты измерений содержания органического и элементарного углерода в период с 19 апреля 2010 по 12 декабря 2020 вместе с фоновыми концентрациями представлены на Рисунке 3.

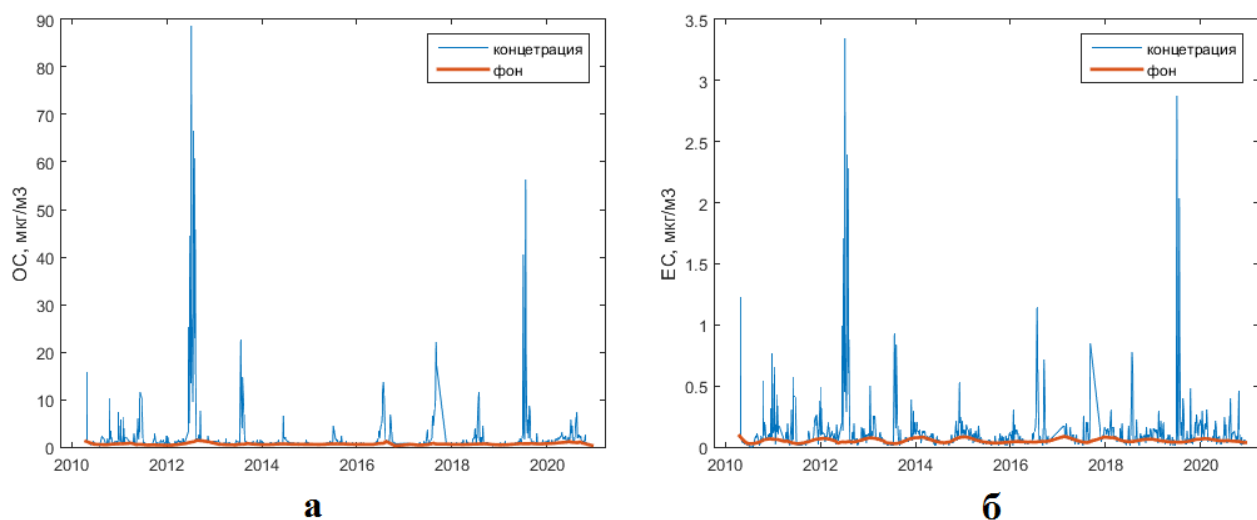


Рисунок 3. Содержание органического (а) и элементарного (б) углерода в фильтровых пробах за период с 19 апреля 2010 по 12 декабря 2020 с фоновыми концентрациями (см. пояснения в пункте 2.5).

Наибольшие пики концентраций соответствуют летним периодам. Так, для органического углерода наибольшее значение приходится на 07.07.2012 – 88,53 мкг/м³ и на 22.07.2019 – 56,31 мкг/м³, для элементарного – на 07.07.2012 – 3,34 мкг/м³ и на 04.07.2019 – 2,83 мкг/м³. Летние пики возникают в следствие пожаров бореальных лесов Сибири, что ведет за собой повышения концентраций обоих видов углерода. Зимой же, как правило, растет только элементарный углерод, поскольку наступает отопительный сезон, и на графике (Рисунок 3, б) видны пики элементарного углерода.

Действительно, в теплые периоды наблюдается бóльшая корреляция между ЕС и ОС, нежели в холодные периоды. Этот факт можно наблюдать из графиков зависимости органического углерода от элементарного:

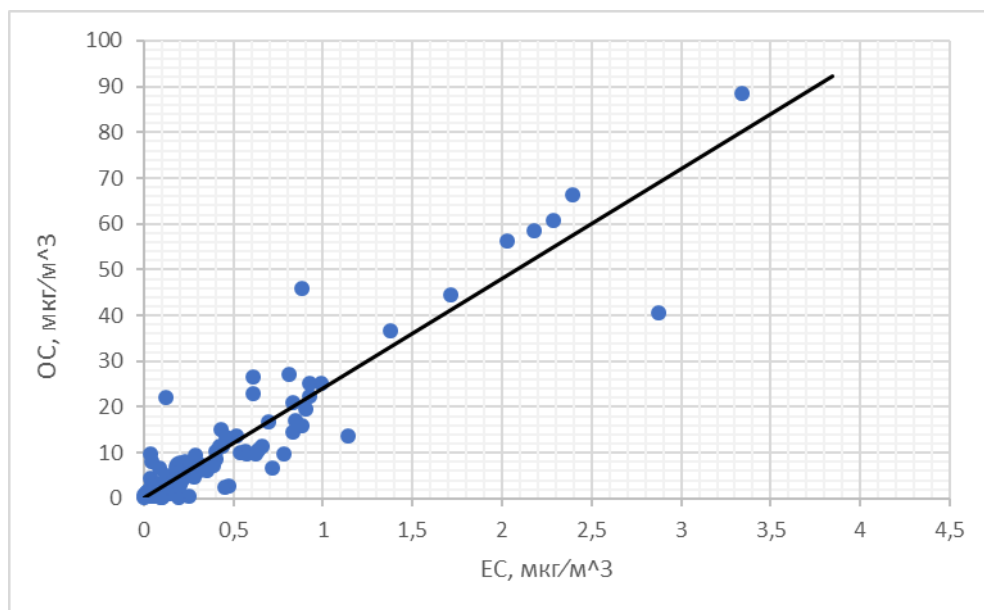


Рисунок 4. График зависимости органического углерода от элементарного в теплые периоды.

Как видно из Рисунка 4, существует достаточно сильная взаимосвязь между двумя видами углерода.

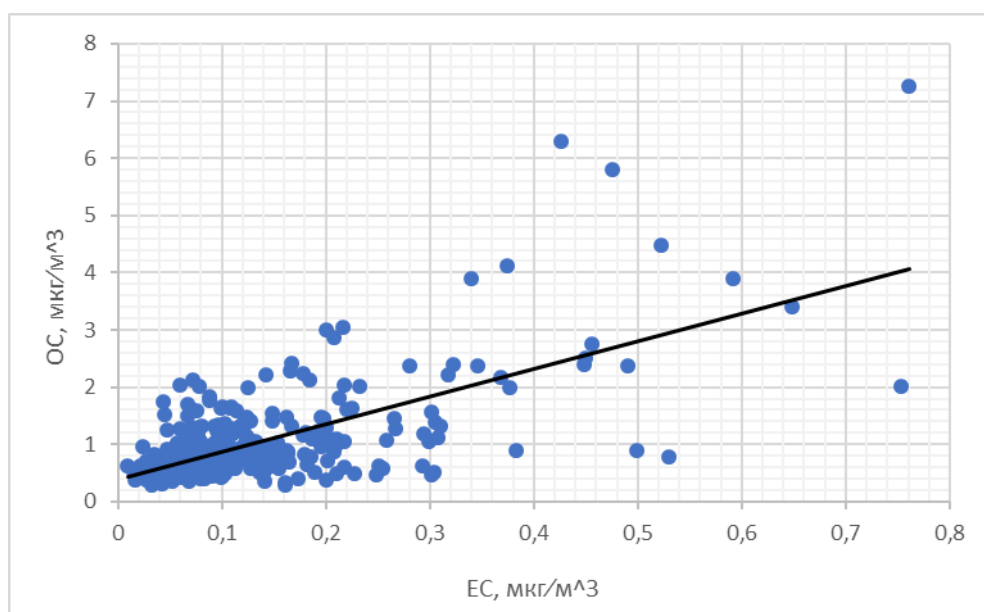


Рисунок 5. График зависимости органического углерода от элементарного в холодные периоды.

В холодные же периоды связь значительно снижается, что полностью согласуется с несоответствием пиков в зимний период: возрастает только элементарные углерод.

Самые высокие концентрации наблюдаются летом 2012 и 2019 года. В июне и июле 2012 года на значительной территории Сибирского и Дальневосточного ФО наблюдались интенсивные пожары, вызванные аномальной жарой и отсутствием осадков. На Рисунке 6 представлены данные температурных аномалий от NOAA¹ за июнь 2012 года.

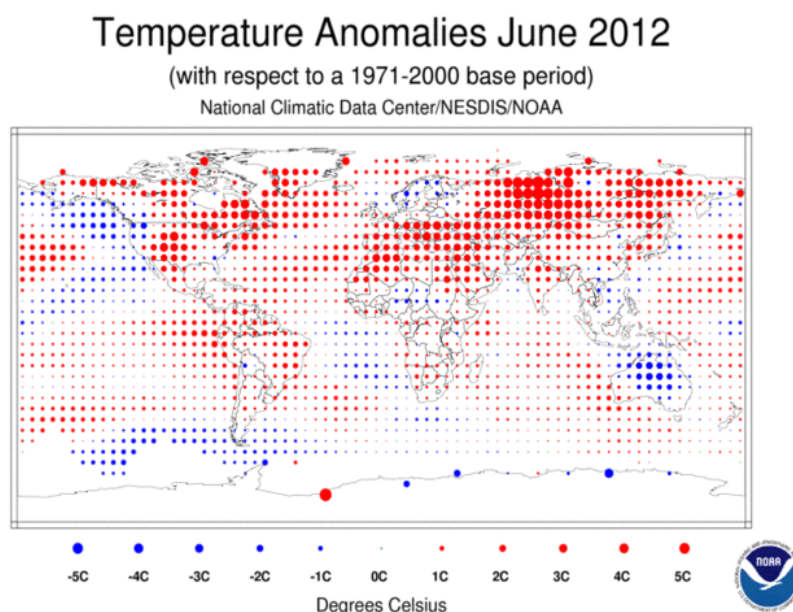


Рисунок 6. Температурные аномалии поверхности суши и моря в градусах Цельсия за июнь 2012 г.

Сильные пожары также наблюдались и в 2019 году: поражённая пожарами площадь по некоторым оценкам составила около 15 миллионов гектаров [Воронова, 2020].

3.2. Разбиение на сезоны

Анализ коротких промежутков времени с помощью статистических методов неинформативен, поскольку не способен предоставить разумную

¹ <https://www.ncei.noaa.gov/access/monitoring/monthly-report/global/201206>

картину распределения потенциальных источников. Для определения основных направлений необходимо проанализировать достаточно большой массив данных, сгруппировав их на несколько крупных периодов, в течении которых сохраняются тенденции формирования углеродосодержащего аэрозоля. Приведем температурный ход, чтобы выбрать наиболее оптимальное разбиение на холодный и теплый периоды года для анализа.

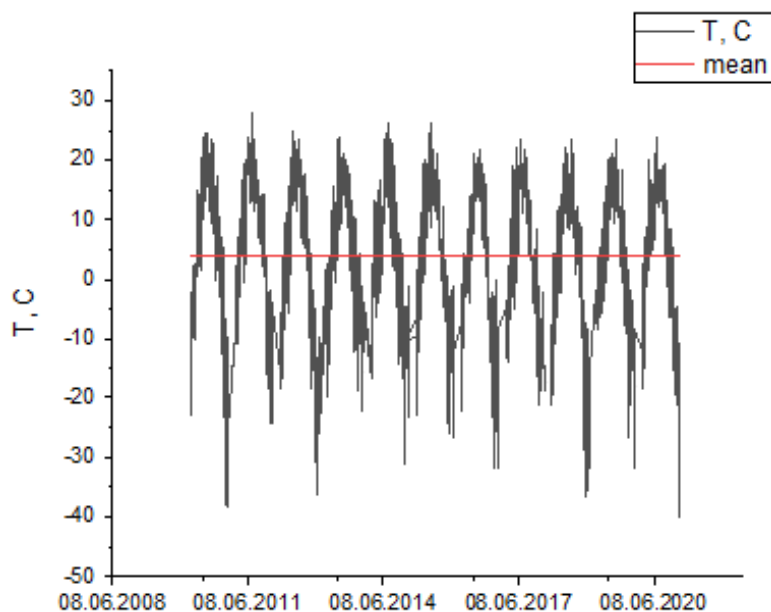


Рисунок 7. Температура воздуха за 2008-2020 гг. в градусах Цельсия. Красной линией соответствует среднее значение температуры.

Согласно полученному графику можно говорить о следующем разбиении: теплый сезон соответствует периоду с мая по октябрь, а холодный, соответственно, – с ноября по апрель. Данное разбиение разумно, поскольку в разные сезоны преобладают разные источники углеродосодержащих аэрозолей: отопительный сезон зимой, весенние палы, летние пожары бореальных лесов и т.д.

3.3. Обратные траектории

С помощью модели HYSPLIT для каждого месяца были получены 143 120-часовые обратные траектории с интервалом 24 часа. Далее каждой траектории сопоставлялись концентрации органического и элементарного углерода. Пробы с фильтра собирались один раз в пять дней. При анализе концентрации в течении пяти дней после сбора были приняты постоянными и равными концентрациям в первый день.

Погрешность, полученная за счет построения обратных траекторий, оценивалась следующим образом: для конечной точки – ZOTTO (60,47° с.ш., 89,21° в.д.) – каждый день, для которого есть данные концентраций, строилась обратная 120-часовая траектория и находилась точка, из которой исходила обратная траектория; далее эта точка бралась за начальную и из нее строилась прямая траектория; несоответствие между изначальной координатой и полученной будем считать за $\Delta traj$. Размер клетки решетки для моделирования в данной работе составил $\Delta cell = 0,5^\circ$, то есть вклад в погрешность можно оценить как $\frac{\Delta traj}{\Delta cell}$.

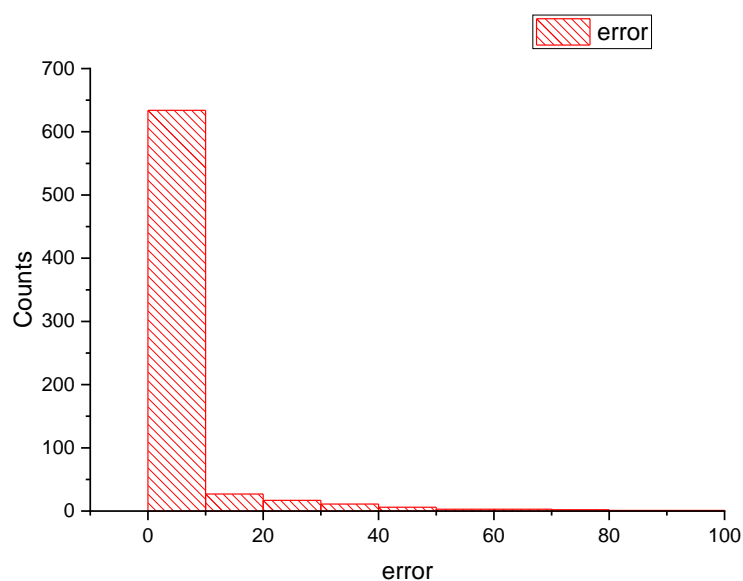


Рисунок 8. Распределение $\Delta traj / \Delta cell$ обратных траекторий.

Порядка 90% погрешностей не превышают размера клетки, то есть траектории построены достаточно точно, и погрешность обратных траекторий не ухудшает полученный результат. Но также присутствует некоторое количество дней или даже периодов, когда в силу каких-либо процессов в атмосфере погрешности составляли десятки градусов, что, естественно, ведет к совершенно неверному определению направления обратной траектории. Благодаря использованию метода для достаточно больших промежутков времени вклады некорректных траекторий оказались не существенны. Среднее значение погрешностей составило $\Delta traj = 0,014^\circ$.

3.4. Холодные сезоны

3.4.1. Органический углерод

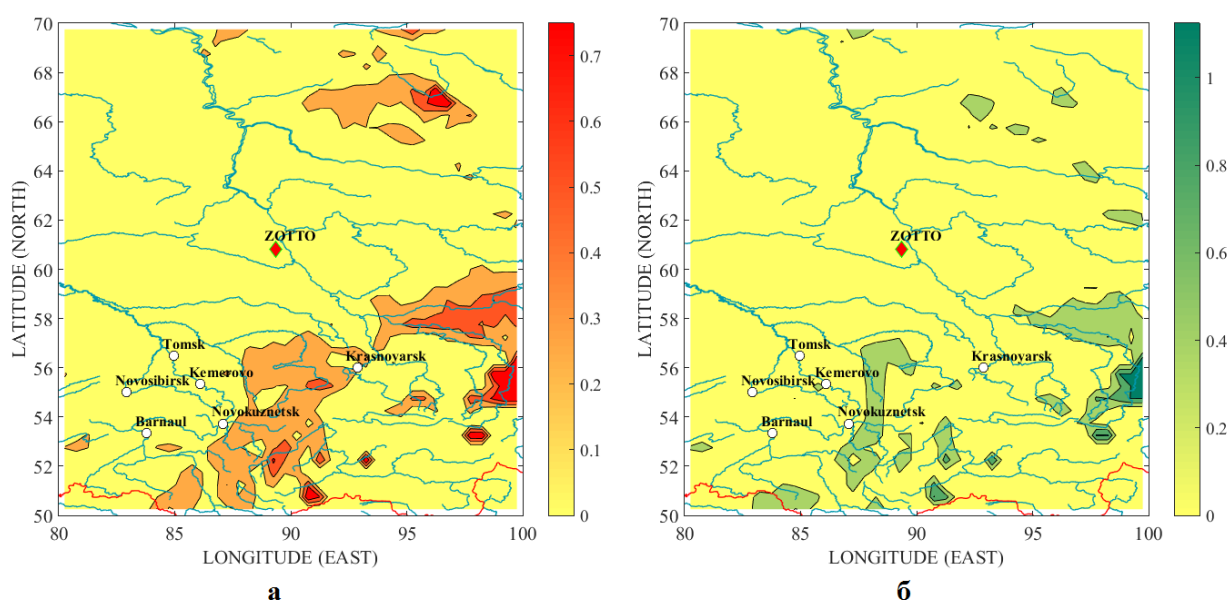


Рисунок 9. Органический углерод для холодных сезонов. Результаты работы методов: а) WPSCF; б) WCWT.

Пространственные распределения потенциальных источников ОС, полученные двумя методами, дают сопоставимые результаты. Из Рисунка 9 видно, что основные источники локализуются в южной части

рассматриваемой области, что соответствует территории с крупными промышленными городами. Основная часть органического углерода поступает в атмосферу как продукт сгорания органических соединений, в том числе антропогенных. Повышенные концентрации ОС свидетельствуют о техногенном влиянии промышленных центров Сибири. Метод PSCF также выделяет северную область, что согласуется с наличием месторождений нефти и газа, а также промышленных центров, расположенных севернее выделенной области таких как Норильск ($69^{\circ}20'$ с. ш., $88^{\circ}13'$ в. д.).

Вычитание фоновых значений и применение весовой функции для CWT, вероятно, снижают чувствительность метода и не позволяют получить более широкое распределение на территориях с меньшими концентрациями. Без учета фоновых значений и весов метод дает следующий результат:

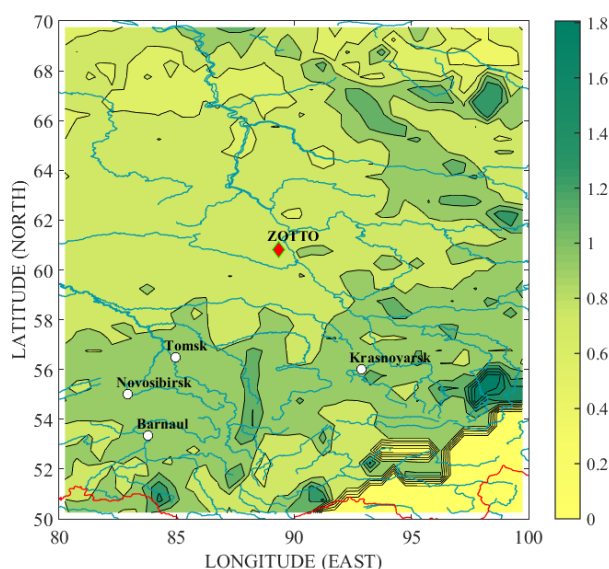


Рисунок 10. Метод CWT. Органический углерод для холодных сезонов. Без учета фоновых концентраций.

Полученное распределение дает информацию об источниках на большей площади. Основное направление, выделяемое методом, остается неизменным.

Помимо этого, как можно наблюдать на Рисунке 10 возникает проблема с юго-восточной областью рассматриваемой территории. Она связана с

отсутствием траекторной информации в следствии географических особенностей – наличие горных систем Алтая и Саян в рассматриваемой области.

3.4.2. Элементарный углерод

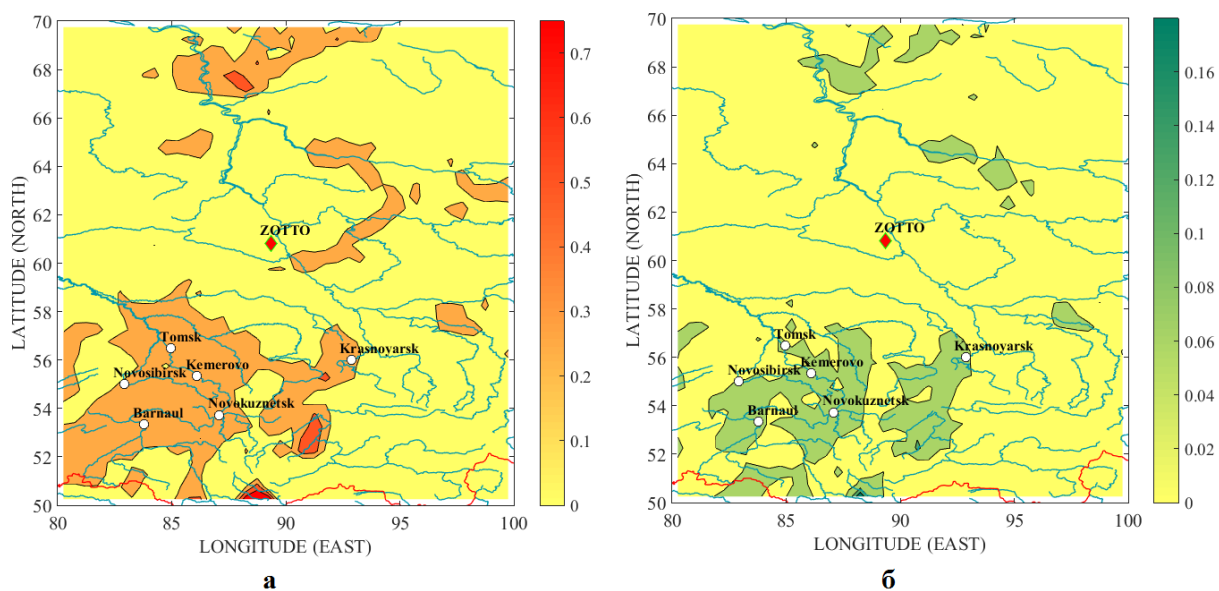


Рисунок 11. Элементарный углерод для холодных сезонов. Результаты работы методов: а) WPSCF; б) WCWT.

Результаты, полученные для элементарного углерода схожи с картами для органического, поскольку источники для обоих видов аэрозоля во многом совпадают. Согласно Рисунку 11 обе модели выделяют повышенные концентрации в непосредственной близости таких крупных городов как Красноярск ($56^{\circ}01'$ с.ш., $92^{\circ}52'$ в.д.), Томск ($56^{\circ}29'$ с.ш., $84^{\circ}57'$ в.д.), Новосибирск ($55^{\circ}01'$ с.ш., $82^{\circ}55'$ в.д.) и других. Также стоит отметить, что для ЕС потенциальные источники в данной области локализуются в непосредственной близости от городов, поскольку в зимние периоды концентрации элементарного углерода из-за техногенного влияния имеют пиковые значения.

Основываясь на рассуждениях, аналогичных с предыдущим пунктом, также был рассмотрен случай SWT без учета фоновых концентраций и весовой функции:

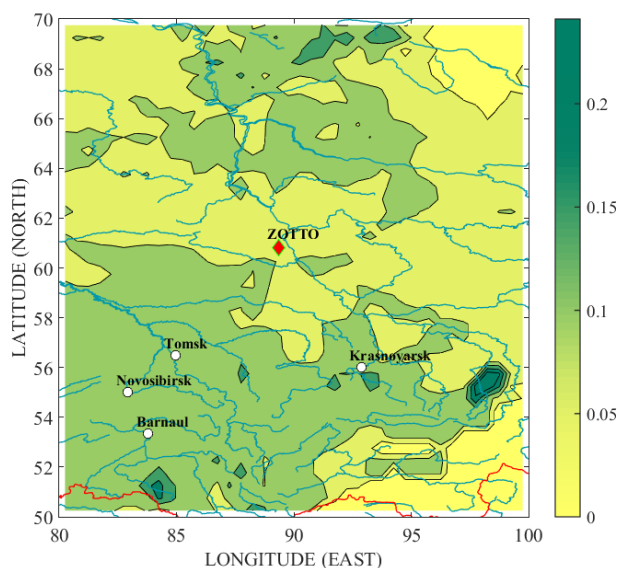


Рисунок 12. Метод SWT. Элементарный углерод для холодных сезонов. Без учета фоновых концентраций.

Так же, как и в случае органического углерода, метод SWT сохраняет направление и локализацию потенциальных источников, а также дает некоторую информацию об источниках средней мощности.

Проблема с юго-восточной областью карты объяснена в предыдущем подпункте 3.4.1.

3.4.3. Общие выводы по холодным сезонам

В холодные периоды года загрязненные воздушные массы в основном приходится на промышленные центры Сибири, в том числе на отопительный сезон. Для южного направления возможными источниками являются такие крупные города как Красноярск, Новосибирск и другие. Для северного – Норильск и некоторые месторождения.

Поскольку основные источники ОС и ЕС схожи, то основные направления для них совпадают. Тем не менее, заметим, что концентрации органического углерода в данный период времени не возрастали, а для элементарного углерода наблюдаются пиковые значения концентраций. Следовательно, причиной вероятнее стало антропогенное влияние, а не природные явления или биогенные источники. Это отражается в более сильной локализации для ЕС вокруг промышленных городов, а также в эмиссионном соотношении, которое было предоставлено выше (см. Рисунок 5).

Корректно подобранные пороговые значения для метода PSCF позволили исключить рассмотрения концентрации, близкие к установленному критерию или наоборот значительно превышающих его. В этом случае решается главная проблема метода: слияние сильных и умеренных источников загрязнений.

В случае метода взвешенных концентраций такого сильного влияния учета фоновых значений не наблюдается. Основные направления остаются неизменными, поэтому целесообразность учета фоновых концентраций должна определяться в каждом случае индивидуально. Для рассмотренных выше распределений данный параметр не стал решающим.

3.5. Теплые сезоны

3.5.1. Органический углерод

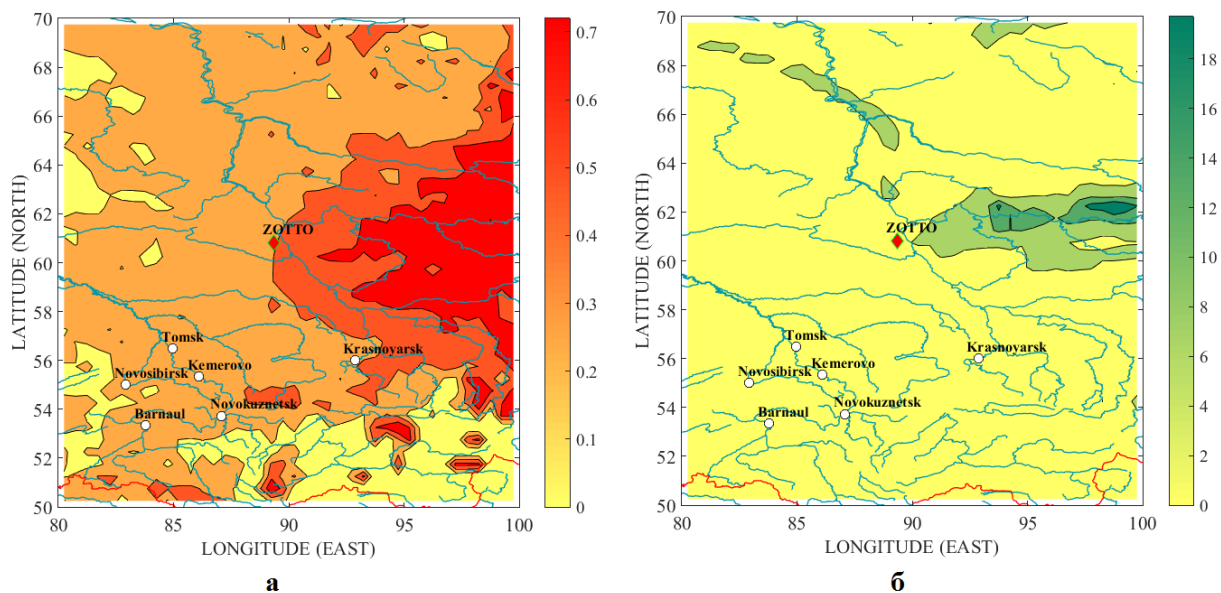


Рисунок 13. Органический углерод для теплых сезонов. Результаты работы методов; а) WPSCF; б) WCWT.

Несмотря на то, что выделенные направления совпадают, характер распределения потенциальных источников несколько отличается друг от друга, в отличие от случая холодных периодов. Тем не менее, обе модели выделяют восточное направление повышенных концентраций в качестве основного направления потенциальных источников. Причиной являются пожары бореальных лесов Сибири, которые ежегодно охватывают значительную площадь летом.

В поздние весенние периоды наблюдаются повсеместные весенние палы, расположенные в основном на юге Центральной Сибири и Иркутской области, и огневая зачистка сельхозугодий на северных территориях Казахстана, а также на юге Центральной Сибири. Палы на юге Сибири зачастую перерастают в торфяные и лесные пожары и являются ежегодными источниками загрязнения атмосферы сибирского региона [Kovacs K., 2005].

В отличие от холодных периодов исключение из рассмотрения фоновых значений и весов методы не дают существенно различающиеся карты.

3.5.2. Элементарный углерод

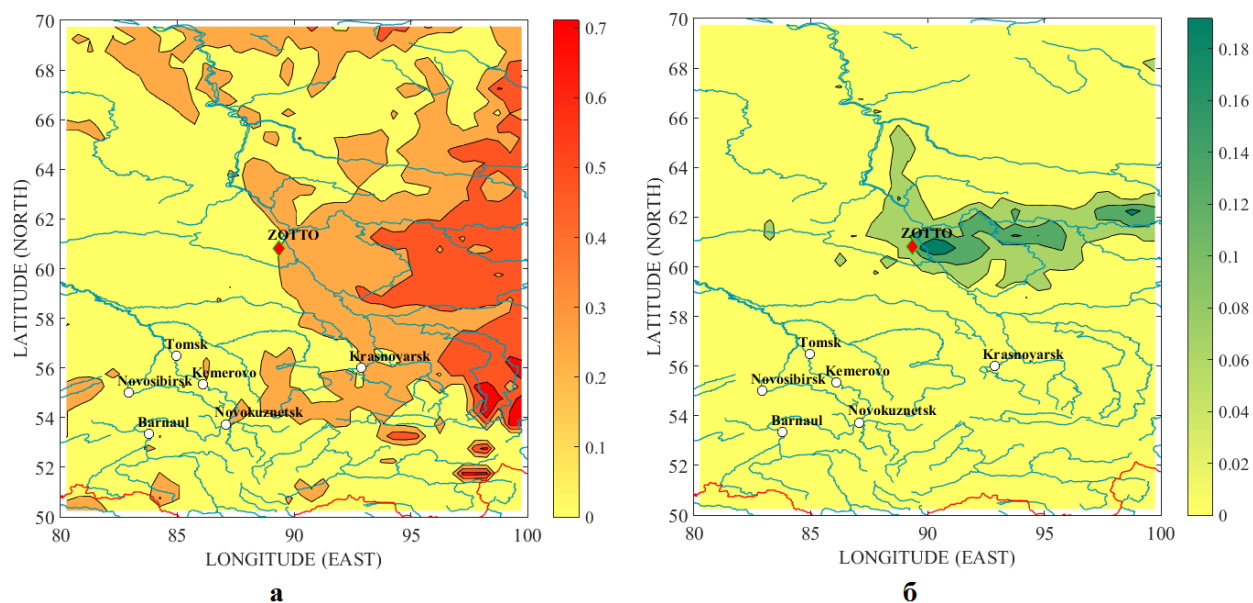


Рисунок 14. Элементарный углерод для теплых сезонов. Результаты работы методов: а) WPSCF; б) WCWT.

Для элементарного углерода пространственное распределение концентраций схоже с результатами для органического. Метод PSCF аналогично случаю органического углерода дает более широкое по охватываемой потенциальными источниками площади распределение. Преобладающим направлением является восточное, аналогично случаю органического углерода объясняющееся наличием высокоинтенсивных пожаров.

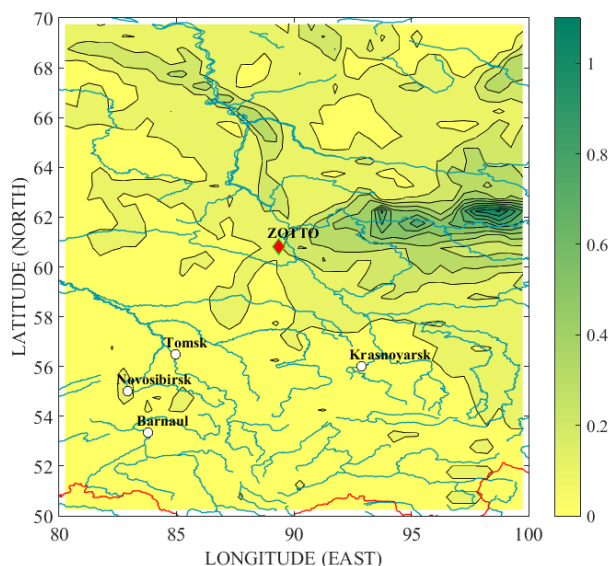


Рисунок 15. Метод CWT. Элементарный углерод для теплых сезонов. Без учета фоновых концентраций.

Несколько лучше ведет себя метод CWT без учета фоновых концентраций и весовой функции. Направление так же остается восточным и можно говорить о совпадении полученного результата с методом WPSCF.

3.5.3. Общие выводы по теплым сезонам

Одним из основных источников обоих видов углеродосодержащего аэрозоля являются пожары бореальных лесов Сибири в летнее время. Летом 2012 наблюдаются самые высокие концентрации за весь рассматриваемый период, что связано с высокоинтенсивными пожарами, охватывающими значительную площадь вблизи рецептора. Так, например, карты пожаров² за 2012 и 2019 годы, а также результаты работы статистических методов PSCF и CWT для органического углерода выглядят следующим образом:

² <https://firms.modaps.eosdis.nasa.gov/map>

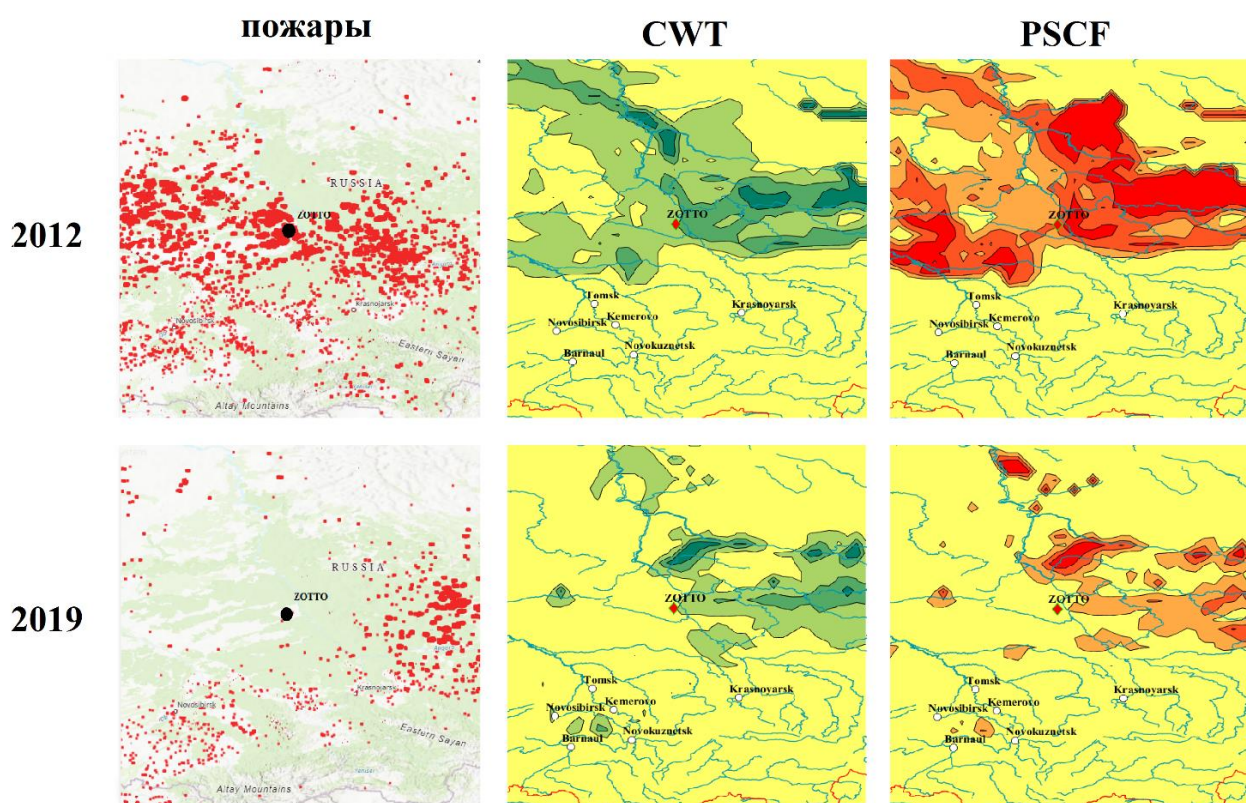


Рисунок 16. Сопоставление реальных карт пожаров (первый столбец) и результатов работы методов CWT (второй столбец) и PSCF (третий столбец) для органического углерода за летние месяцы 2012 года (первая строка) и за летние месяцы 2019 года (вторая строка). Для компактности изображения опущена сетка: 50-70° с.ш. и 80-100° в.д.

Из Рисунка 16 видно, что методы дают весьма схожие результаты для обоих рассматриваемых лет; можно говорить о совпадении карты реальных пожаров с рассчитанными потенциальными источниками как минимум по полученным основным направлениям локализации.

В силу отличающихся проекций карт (географическая – для карт пожаров и прямоугольная координатная сетка – для полученных карт) наблюдается некоторое смещение на западной части рассматриваемой области для изображений 2012 года. С учетом данного несоответствия можно сказать о весьма точном совпадении работы траекторных статистических методов и карт пожаров, даже несмотря на непосредственную близость источника аэрозоля к рецептору.

Значительность площади, охваченной лесными пожарами, приводит к высоким концентрациям сразу по нескольким направлениям, что зачастую не позволяет определить основные источники. Несмотря на это, и PSCF, и CWT достаточно точно обрисовали карту пожаров для обоих лет.

Пространственные распределения элементарного и органического углерода в большой степени повторяют друг друга, что соотносится с полученным эмиссионным соотношением (см. Рисунок 4) и с наличием одного мощного общего источника – пожаров.

Помимо пожаров бореальных лесов в летний сезон появляются биогенные источники ОС, которые не связаны с процессами термического разложения углеводов. В весенние и осенние периоды источниками загрязнений служат как техногенные источники, так и очаги горения. Это подтверждается тем, что и в органическом, и в элементарном углероде наблюдаются пиковые значения концентраций.

Также стоит отметить, что учет фоновых концентраций в методе CWT внес еще меньший вклад в результаты, чем это было для случая холодных периодов – пространственные распределения отличаются минимально. Поэтому учет фона для летнего периода также оказался несущественен.

Заключение

В ходе работы были проанализированы обратные траектории углеродосодержащего аэрозоля при помощи модели HYSPLIT и траекторных статистических методов PSCF и CWT, предназначенных для определения местоположения источников загрязнений; были получены пространственные распределения концентраций углеродосодержащих аэрозолей (органического и элементарного) и сделаны выводы о возможных причинах и источниках пиковых значений концентраций ОС и ЕС.

Проанализировав рассчитанные пространственные распределения потенциальных источников, можно сделать несколько обобщающих выводов:

- В теплые сезоны, а особенно в летний период, рост концентраций обусловлен локальными и региональными лесными пожарами, в том числе пожарами бореальных лесов Сибири. Как правило, в июле значения концентраций органического и элементарного углерода достигают своих пиковых значений.
- В осенний и весенний сезоны повышение концентраций углеродосодержащих аэрозолей связано с дальним переносом загрязнений от крупных промышленных центров юга Сибири, а также с открытыми пожарами. В весенний сезон большой вклад вносят палы сельскохозяйственных угодий на юге Сибири, перерастающие в торфяные и лесные пожары.
- В холодный сезон основными источниками увеличения концентраций углеродных компонентов связано в основном с дальним переносом загрязнений, поступающих от индустриальных районов юга Сибири, что подтверждается высоким содержанием элементарного углерода.

Полученные результаты показали состоятельность обоих рассмотренных методов для изучения углеродосодержащего аэрозоля на территории центральной Сибири.

Тем не менее, у каждого из методов есть свои преимущества, что позволяет варьировать их применение в зависимости от исследуемого региона со своими особенностями рельефа и в зависимости от изучаемой компоненты: различные аэрозоли, газы и т.д. Метод SWT позволяет без отдельного подбора критерия получать карты источников. Метод PSCF имеет возможность выделять постоянные мощные источники, а также с помощью подбора порогового значения можно регулировать контрастность получаемых распределений.

Список литературы

1. Andrea, M.O. 2007. Aerosols before pollution. *Science*. 2007, Vol. 315, pp. 50-51.
2. Andrea, M.O. and Gelencser, A. 2006. Black carbon or brown carbon? The nature of light-absorbing carbonaceous aerosols. *Atmospheric Chemistry and Physics*. 2006, Vol. 6, pp. 3131-3148.
3. Ashbaugh, L.L. 1983. A statistical trajectory technique for determining air pollution source regions. *Journal of Air Pollution Control Assessment*. 1983, Vol. 33, pp. 1096-1098.
4. Ashbaugh, L.L., Malm W.C. and Saden, W.Z. 1985. A residence time probability analysis of sulfur concentrations at Grand Canyon National Park. *Atmospheric Environment*. 1985, Vol. 19, pp. 1263-1270.
5. Berriban, I., Azahra, M. and Chham, E. et al. 2022. PSCF and CWT methods as a tool to identify potential sources of ⁷Be and ²¹⁰Pb aerosols in Granada, Spain. *Journal of Environmental Radioactivity*. 2022, Vols. 251-252.
6. Birch, M.E. and Cary, R.A. 1996. Elemental carbon-based method for monitoring occupational exposures to particulate diesel exhaust. *Aerosol Sci. Tech.* 1996, Vol. 25, pp. 221-241.
7. Birmili W., Stopfkuchen K., Hermann M., Wiedensohler A., Heintzenberg J. 2007. Particle penetration through a 300m inlet pipe for sampling atmospheric aerosols from a tall meteorological tower. *Aerosol Sci. Technol.* 2007, Vol. 41, pp. 811–817.
8. Byčenkienė, Steigvilė and Ulevicius, Vadimas Dudoitis and Vidmantas. 2014. 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, Vol. 2014.
9. Conard, S.G. and Ivanova, G.A. 1997. Wildfire in Russian boreal forests - potential impacts of fire regime characteristics on emissions and global carbon balance estimates. *Environmental Pollution*. 1997, Vol. 98, 3, pp. 305-313.

10. Deng, J., Guo, H., Zhang, H., Zhu, J., Wang, X., and Fu, P. 2020. Source apportionment of black carbon aerosols from light absorption observation and source-oriented modeling: An implication in a coastal city in China. *Atmospheric Chemistry and Physics*. 2020, Vol. 20, pp. 14419-14435.
11. Draxler, R. R., G. D. Hess. 1998. An overview of the HYSPLIT_4 modeling system for trajectories, dispersion, and deposition. 1998.
12. Han, S.-W., et al. 2022. Source Apportionment of PM_{2.5} in Daejeon Metropolitan Region during January and May to June 2021 in Korea Using a Hybrid Receptor Model. *Atmosphere*. 2022, Vol. 13, 1902.
13. Han, Y., et al. 2004. Identification of source location for atmospheric dry deposition of heavy metals during yellow-sand events in Seoul, Korea in 1998 using hybrid receptor models. *Atmospheric Environment*. 2004, Vol. 38, pp. 5353-5361.
14. Hanlin Li, Qing He and Xinchun Liu. 2020. Identification of Long-Range Transport Pathways and Potential Source Regions of PM_{2.5} and PM₁₀ at Akedala Station, Central Asia. 2020.
15. Haywood, J. and Boucher, O. 2000. Estimates of the Direct and Indirect Radiative Forcing Due to Tropospheric Aerosols: A Review. *Reviews of Geophysics*. 2000, Vol. 38, pp. 513-543.
16. Hopke, Philip K. 2002. Recent developments in receptor modeling. *Journal of chemometrics*. 2002, Vol. 17, pp. 255-265.
17. Hsu, Y.-K., Holsen, T. and Hopke, P. 2003. Comparison of hybrid receptor models to locate PCB sources in Chicago. *Atmospheric Environment*. 2003, Vol. 37, 545-562.
18. Jeon, Haneol, et al. 2018. Characteristic distributions and Source Identification of PM_{2.5} and Black carbon at Socheongcho Ocean Research Station in the Yellow Sea. *Geophysical Research Abstracts*. 2018, Vol. 20.
19. Jeong U, Kim J, Lee H, Jung J, Kim YJ, Song CH, Koo JH. 2011. Estimation of the contributions of long range transported aerosol in East Asia to carbonaceous aerosol and PM concentrations in Seoul, Korea using highly time

resolved measurements: a PSCF model approach. *J Environ Monit.* 2011, Vol. 13, 7, pp. 1905-1918.

20. Kabindra M. Shakya, Philip F. Place Jr., Robert J. Griffin and Robert W. Talbot. 2012. Carbonaceous content and water-soluble organic functionality of atmospheric aerosols at a semi-rural New England location. *Journal of geophysical research.* 2012 г.

21. Kovacs K., Ranson K. J., Sun G., et al. 2005. The Relationship of the Terra MODIS Fire Product and Anthropogenic Features in the Central Siberian Landscape. 2005.

22. Lain S., Sommerfeld M. 2003. Turbulence modulation in dispersed two-phase flow laden with solids. 2003.

23. Laurier, Poissant. 1999. Potential sources of atmospheric total gaseous mercury in the St. Lawrence River Valley. *Atmospheric Environment.* 1999, Vol. 33, 16, pp. 2537-2547.

24. Li, Chengming, et al. 2020. Transport Pathways and Potential Source Region Contributions of PM_{2.5} in Weifang: Seasonal Variations. *Applied Science.* 2020, Vol. 10, 2835.

25. Malm, W.C., Johnson, C.E. and Bresch, J.F. 1986. Application of principal component analysis for purposes of identifying source-receptor relationships. *Receptor methods for source apportionment.* 1986, pp. 127-148.

26. Mengying Bao, Fang Cao, Yunhua Chang, Yan-Lin Zhang, Yaqi Gao, Xiaoyan Liu, Yuanyuan Zhang, Wenqi Zhang, Tianran Tang, Zufe Xu, Shoudong Liu, Xuhui Lee, Jun Li, Gan Zhang. 2017. Characteristics and origins of air pollutants and carbonaceous aerosols during wintertime haze episodes at a rural site in the Yangtze River Delta, China. *Atmospheric Pollution Research.* 2017, Vol. 8, 5, pp. 900-911.

27. Polissar, A. V., P. K. Hopke, P. Paatero, Y. J. Kaufmann, D. K. Hall, B. A. Bodhaine, E. G. Dutton, and J. M. Harris. 1999. 1999: The aerosol at Barrow, Alaska: Long-term trends and source locations. *Atmospheric Environment.* 1999.

28. Polissar, A., Hopke, P.K. and Harris, J.M. 2001. Source Regions for Atmospheric Aerosol Measured at Barrow, Alaska. *Environmental Science and Technology*. 2001, Vol. 35, 11, pp. 4214-4226.
29. Putaud, J.P., Borowiak, A. and Cavalli, F. 2009. Standard Operating Procedure for the Determination of Organic, Elemental, and Total Carbon in Particulate Matter Using a ThermoOptical-Transmittance Carbon Analyzer. North Carolina: Research Triangle Institute, 2009.
30. Ren, B., Xie, P. and Xu, J. et al. 2021. Use of the PSCF method to analyze the variations of potential sources and transports of NO₂, SO₂, and HCHO observed by MAX-DOAS in Nanjing, China during 2019. *Science of The Total Environment*. 2021, Vol. 782.
31. Renchang Yan, Shaocai Yu, Qingyu Zhang, Pengfei Li, Si Wang, Bixin Chen, Weiping Liu. 2015. A heavy haze episode in Beijing in February of 2014: Characteristics, origins and implications. *Atmospheric Pollution Research*. 2015, Vol. 6, 5, pp. 867-876.
32. Ruckstuhl, A.F., et al. 2000. Baseline subtraction using robust local regression estimation. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*. 68, 2000, pp. 179-193.
33. Stein, A.F., et al. 2015. NOAA's HYSPLIT Atmospheric Transport and Dispersion Modeling System. 2015, Vol. 96, 12, pp. 2059-2077.
34. Tianyi Hao, Ziyang Cai, Shucheng Chen, Suqin Han, Qing Yao and Wenyan Fan. 2019. Transport Pathways and Potential Source Regions of PM_{2.5} on the West Coast Bohai Bay during 2009-2018. 2019.
35. Wang, D., Zhou, J. and Han, L. et al. 2023. Source apportionment of VOCs and ozone formation potential and transport in Chengdu, China. *Atmospheric Pollution Research*. 2023, Vol. 14, 5.
36. Xie, Y., et al. 1999. Locations and preferred pathways of possible sources of Arctic aerosol. *Atmospheric Environment*. 1999, Vol. 33, 14, pp. 2229-2239.

37. Zeng, Y. and Hopke, P. 1989. Study of the sources of acid precipitation in Ontario, Canada. *Atmospheric Environment*. 1989, Vol. 23, pp. 1499-1509.
38. Zhou, L., Hopke, P.K. and Liu, W. 2004. Comparison of two trajectory based models for locating particle sources for two rural New York sites. *Atmospheric Environment*. 2004, Vol. 38, pp. 1955-1963.
39. Власенко С.С, Волкова К.А., Д. В. Ионов, Т. И. Рышкевич. 2019. Изменчивость углеродсодержащей фракции атмосферного аэрозоля вблизи Санкт-Петербурга. *Известия РАН. Физика атмосферы и океана*. 2019 г., Т. 55, 6, стр. 147-156.
40. Воронова, О. С. 2020. Аномальные пожары на территории Сибири 2019 г. 2020 г.
41. Ивлев Л.С., Довгальок Ю.А. 1999. Физика атмосферных аэрозольных систем. Санкт-Петербург: НИИХ СПбГУ, 1999.
42. Михайлов Е.Ф., Миронова С.Ю., Макарова М.В., Власенко С.С., Рышкевич Т.И., Панов А.В., и Андреас М. О. 2015. Исследование сезонной изменчивости углеродсодержащей фракции атмосферного аэрозоля Центральной Сибири. *Известия РАН. Физика атмосферы и океана*. 2015 г., Т. 51, 4, стр. 484-492.
43. Сягло, И.С. 2000. Теоретическая механика. Минск, 2000.
44. Фукс, А Ф. 1955. Механика аэрозолей. Москва: Издательство АН СССР, 1955.
45. Шакиров, Р. Б., Валитов, М. Г. и Ли, Н. С. 2021. Геолого-геофизические и океанологические исследования западной части Южно-Китайского моря и прилегающего континента. Москва: ГЕОС, 2021. стр. 207, 239.
46. Шукуров, К.А. 2017. Регионы-источники нитрата аммония, сульфата аммония и природных силикатов в приземном аэрозоле западного Подмосковья. *Известия РАН. Физика атмосферы и океана*. 2017 г., Т. 53, 3.

Благодарность

Измерения проведены с использованием оборудования Ресурсного центра «Геомодель» научного парка СПбГУ.