ОПТИКА КЛАСТЕРОВ, АЭРОЗОЛЕЙ И ГИДРОЗОЛЕЙ

УДК 551.510.4

Результаты исследований физико-химических характеристик атмосферного аэрозоля в 71-м рейсе НИС «Академик Мстислав Келдыш»

С.М. Сакерин¹, П.Н. Зенкова¹, Д.М. Кабанов¹, Д.А. Калашникова², А.П. Лисицын³, В.И. Макаров⁴, В.В. Полькин¹, С.А. Попова⁴, Г.В. Симонова², О.В. Чанкина⁴, В.П. Шевченко^{3*}

¹Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН 634055, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1 ²Институт мониторинга климатических и экологических систем СО РАН 634055, г. Томск, пр. Академический, 10/3 ³Институт океанологии им. П.П. Ширшова РАН 117997, Москва, Нахимовский пр., 36 ⁴Институт химической кинетики и горения им. В.В. Воеводского СО РАН 630090, г. Новосибирск, ул. Институтская, 3

Поступила в редакцию 20.01.2020 г.

Летом 2018 г. на маршруте 71-го рейса НИС «Академик Мстислав Келдыш» в Северной Атлантике проведены измерения таких характеристик атмосферного аэрозоля, как аэрозольная оптическая толща, приземные концентрации аэрозоля и сажи, содержание в аэрозольных пробах химических элементов, органического и элементного углерода, а также изотопный состав сажевого углерода. Показано, что при переходе от Балтийского моря в Северную Атлантику (57–60° с.ш.) и затем в Норвежское море средние значения большинства характеристик уменьшаются в несколько раз. Например, средняя концентрация сажи уменьшилась от 83 до 29 нг/м³. Эпизодическое воздействие континентального аэрозоля отмечено даже в удаленных районах океана. Сильнее всего на характеристики аэрозоля повлиял вынос в район измерений (южнее Гренландии) дымов лесных пожаров с севера Канады. Средние концентрации химических элементов в составе аэрозоля над Северной Атлантикой в несколько раз больше, чем в арктическом районе, и меньше, чем в фоновом районе Сибири.

Ключевые слова: атмосфера Северной Атлантики, аэрозоль и сажа, содержание органического и элементного углерода, химический и изотопный состав; atmosphere of the North Atlantic, aerosol and black carbon, the content of organic and elemental carbon, chemical and isotopic composition.

Введение

Атмосферный аэрозоль относится к числу климатообразущих факторов [1, 2] и играет важную роль в процессах обмена веществом между континентом и океаном [3, 4]. Из-за высокой пространственно-временной изменчивости и многообразия физико-химического состава аэрозоля сохраняется неопределенность его характеристик в различных регионах планеты, особенно в высокоширотных районах океана. Несмотря на относительную однородность распределения собственных источников морского аэрозоля, изменчивость характеристик аэрозоля над океаном сопоставима с континентальными районами. Результаты исследований в Атлантическом океане показали, что диапазон изменения оптических и микрофизических характеристик аэрозоля составляет около двух порядков величины [5]. Большая пространственная и межсуточная изменчивость обусловлена влиянием циркуляционных процессов — выносов аэрозолей различного типа (антропогенного,

Виктор Викторович Полькин (viktor@iao.ru); Светлана Анатольевна Попова (popova@kinetics.nsc.ru); Галина Владимировна Симонова (galina_simonova@inbox.ru); Ольга Васильевна Чанкина (chankina@kinetics.nsc.ru); Владимир Петрович Шевченко (vshevch@ocean.ru).

© Сакерин С.М., Зенкова П.Н., Кабанов Д.М. и др., 2020

^{*} Сергей Михайлович Сакерин (sms@iao.ru); Полина Николаевна Зенкова (zpn@iao.ru); Дмитрий Михайлович Кабанов (dkab@iao.ru); Дарья Александровна Калашникова (terrezaprk@mail.ru); Александр Петрович Лисицын; Валерий Иванович Макаров (makarov@kinetics.nsc.ru);

пылевого, дымового) с континентов. То есть дисперсный и химический состав аэрозоля в том или ином районе океана зависит от географического распределения континентальных источников и преобладающих циркуляций.

В последние годы повышенное внимание уделяется изучению атмосферного аэрозоля в высокоширотных районах, где наблюдаются самые большие изменения природной среды. Первые измерения концентраций аэрозоля и аэрозольной оптической толщи (АОТ), выполненные ~ 40 лет назад (см. [6, 7] и ссылки в них), показали заметное влияние на арктическую атмосферу выносов аэрозоля из континентальных районов Евразии и Северной Америки. С 1990-х гг. количество измеряемых характеристик аэрозоля постоянно увеличивается. Объектами исследований становятся элементный и ионный состав аэрозоля, содержание в нем сажи, органического и элементного углерода, полиароматических углеводородов, а также других соединений, либо входящих в состав аэрозоля, либо влияющих на его образование (см., например, [8–12]). Результаты натурных измерений дополняются модельными расчетами переносов загрязняющих веществ в арктическую атмосферу от природных и индустриальных источников (см., например, [13, 14]).

Сложный состав аэрозоля требует широкого набора методов и средств измерений различных характеристик, что не всегда возможно даже в стационарных условиях. Поэтому в морских экспедициях редко удается организовать комплексные измерения физико-химических характеристик аэрозоля. Наиболее распространены отбор проб на фильтры для последующего определения химического состава и/или измерения концентраций аэрозоля и сажи [4, 15–22].

В настоящей работе обсуждаются результаты исследований комплекса оптических, микрофизических и химических характеристик аэрозоля на маршруте 71-го рейса НИС «Академик Мстислав Келдыш» в Северной Атлантике. Полученные данные в кратком виде представлены в [23, 24].

Заметим, что результаты отдельных экспедиций (или циклов измерений) сильно зависят от специфики погодных условий в относительно короткие периоды измерений в том или ином районе океана. Вследствие этого измеренные характеристики аэрозоля относятся лишь к конкретным атмосферным условиям и могут отличаться от типичных для района. То есть статистически обоснованные характеристики аэрозоля в исследуемых районах могут быть получены только на основе многолетних данных.

1. Характеристика экспедиционных измерений

С 25 июня по 14 августа 2018 г. в рамках программы 71-го рейса НИС «Академик Мстислав Келдыш» проводились измерения физико-химических характеристик аэрозоля в Северной Атлантике и европейском секторе Северного Ледовитого океана (СЛО). Маршрут экспедиции показан на рис. 1. Как и в других экспедициях [5, 25], использовались солнечный фотометр SPM, аэталометр МДА и фотоэлектрический счетчик частиц АЗ-10. С помощью этих приборов определялись счетная концентрация частиц аэрозоля (N_a) радиусом 0,2–5 мкм, концентрации частиц мелко- и грубодисперсной фракций (N_f и N_c радиусом больше/меньше 0,5 мкм), массовая концентрация поглощающего вещества (сажа – M_{bc}), АОТ атмосферы $\tau^a(\lambda)$ в диапазоне спектра 0,34–2,14 мкм, грубо- и мелкодисперсная (на длине волны 0,5 мкм) составляющие АОТ – τ^c и $\tau_{0,5}^f$, а также параметры Ангстрема α , β .



Рис. 1. Маршрут 71-го рейса НИС «Академик Мстислав Келдыш»: пунктирные линии — четыре анализируемых района; звездочки — места измерений АОТ; числа в квадратиках — номера проб для определения изотопного состава углерода (δ¹³С)

Кроме измерений вышеуказанных характеристик с помощью многоканальной вихревой воздуходувки ERSTEVAK EVL 22/11 (http://erstvak. com/catalog/vozdukhoduvka/vikhrevaya/) осуществлялся отбор проб аэрозоля на несколько типов фильтров. Особенности физико-химического анализа экспонированных фильтров уже рассматривались в [26]. Поэтому ограничимся их кратким описанием.

Первый канал (стекловолокнистые фильтры Whatman) использовался для оценки изотопного состава углерода, содержащегося в аэрозоле, методом изотопной масс-спектрометрии [27]. Анализ выполнялся в ТомЦКП (ИМКЭС СО РАН) с помощью масс-спектрометра DELTA VAdvantage. Второй канал (фильтры Whatman) — для определения концентраций в аэрозоле органического (ОС) и элементного (ЕС) углерода с помощью метода реакционной газовой хроматографии [28]. Третий канал (фильтры AФA-XA-20) — для оценки массовой концентрации аэрозоля (РМ) методом гравиметрии, а также элементного состава аэрозоля методом рентгенофлуоресцентного анализа с использованием синхротронного излучения [29].

Общий объем данных, полученных в экспедиции, представлен в табл. 1.

Таблица 1

Количество часов (дней) измерений характеристик аэрозоля и отобранных проб

Количество часов (дней) измерений			Количество проб (фильтров), в разных каналах			
$N_{ m a}$	$M_{ m bc}$	$\tau^a(\lambda)$	1-й (δ ¹³ C)	2-й (OC, EC)	3-й (РМ, элементы)	
891 (52)	858 (52)	24 (12)	11	12	21	

Основная часть измерений проводилась в Северной Атлантике на широтном разрезе Гольфстрима (57–59° с.ш.; 0–55° з.д.) и подходах/отходах судна к Исландии. В небольшом объеме получены данные в начале и конце маршрута (Балтийское, Северное и Баренцево моря).

2. Обсуждение результатов

2.1. Концентрации аэрозоля, сажи и АОТ атмосферы

Общий диапазон изменения концентраций аэрозоля и сажи за период экспедиции превысил два порядка при средних значениях $N_a = (N_f + N_c) =$ = 4,9 см⁻³, $M_{bc} = 77$ нг/м³. С целью оценки пространственных различий статистический анализ данных проведен для четырех участков маршрута: 1) Балтийское и Северное моря; 2) широтный разрез Гольфстрима (~59° с.ш.); 3) переход в СЛО через Исландию и Норвежское море (до 15° в.д.); 4) Баренцево море. Из табл. 2 и рис. 2, *а* видно, что средние концентрации аэрозоля в разных районах различаются более чем в 3,4 раза, сажи почти в 9 раз. Самое высокое содержание сажи (254 нг/м³) — в атмосфере над Балтийским и Северным морями, подверженной выносам антропогенного аэрозоля из Западной Европы. Полученное значение концентрации сажи близко к данным наших многолетних измерений в этом районе [30]: $M_{\rm bc} = 223$ нг/м³.

В более чистой атмосфере Северной Атлантики (район 2) средние концентрации аэрозоля и сажи уменьшились в 1,5 и 3 раза соответственно. При переходе на север — в район 3 — наблюдалось дальнейшее снижение концентраций. Однако в более высокоширотном Баренцевом море (70–80° с.ш.), содержание аэрозоля и сажи снова увеличилось. Средние значения $N_{\rm a}$ и $M_{\rm bc}$ в период измерений оказались в 1,5–2 раза больше, чем в шести предшествующих экспедициях [31]: $N_{\rm f} = 3,1~{\rm cm}^{-3},~N_{\rm c} = = 0,12~{\rm cm}^{-3},~M_{\rm bc} = 35-42~{\rm Hr/m}^3$.

Наряду с достаточно низким уровнем среднего содержания аэрозоля и сажи в Северной Атлантике отметим кратковременные (до суток) увеличения концентраций $M_{\rm bc}$ и $N_{\rm a}$ из-за континентальных выносов. 11 июля в западной части маршрута (южнее Гренландии) концентрация аэрозоля возросла до 15,5 см⁻³, а сажи — до 129 нг/м³. Еще больший всплеск концентраций сажи наблюдался 14 июля — до 588 нг/м³. Анализ обратных траекторий движения воздушных масс (HYSPLIT [32]) и карт лесных пожаров (http://fires.ru/) показал, что 11 и 14 июля в район измерений выносился дым лесных пожаров с севера Канады (рис. 3).

На рис. 2, б приведены средние объемные функции распределения частиц (dV/dr), полученные в четырех районах и в ситуации дымового выноса аэрозоля 11 июля. Видно, что распределение dV/dr по районам отражает основные особенности счетных концентраций $N_{\rm f}$ и $N_{\rm c}$ из табл. 2.

Для наиболее актуальной характеристики концентрации сажи — приведем результаты других измерений в Северной Атлантике. Исследования,

Таблица 2

(N – количество отобранных проб)							
Параметр	Район 1 (24.06–27.06)	Район 2, 57—59° с.ш. (28.06—19.07)	Район 3, ~62-72° с.ш. (19.07-7.08)	Район 4 (7.08–14.08)			
$\tau^{a}(0,5)$	$0,061 \pm 0,025$	$0,071 \pm 0,055$	$0,036\pm0,009$	0,054			
α	$0,85\pm0,17$	$0,52\pm0,41$	$0,66\pm0,17$	0,74			
$\tau^c (\approx \beta)$	$0,030 \pm 0,009$	$0,033 \pm 0,022$	$0,018\pm0,004$	0,025			
$\tau^{f}(0,5)$	$0,031 \pm 0,017$	$0,038\pm0,037$	$0,019\pm0,006$	0,029			
W , г/см 2	$1,96\pm0,11$	$1,55\pm0,62$	$0,95\pm0,21$	1,0			
$N_{ m f}$, см $^{-3}$	$8,51 \pm 3,66$	$5,53\pm4,73$	$2,50\pm1,96$	$6,25\pm4,91$			
$N_{ m c}$, см $^{-3}$	$0,15\pm0,09$	$0,13\pm0,12$	$0,08\pm0,08$	$0,10\pm0,06$			
$M_{ m bc}$, нг/м 3	254 ± 126	83 ± 166	29 ± 44	50 ± 28			
ЕС, нг/м ³	181 ± 108 (N = 2)	112 ± 75 (N = 6)	102 ± 94 (N = 4)	_			
ОС, нг∕м ³	540 ± 141	492 ± 170	411 ± 136	—			
PM, мкг/ м 3	$14,3\pm 2,9$ (N = 4)	$18,1\pm 5,7$ (N = 9)	$17,9 \pm 5,8$ (N = 7)	$ \begin{array}{l} 11,5 \\ (N = 1) \end{array} $			
$\delta^{13}C,\ \text{\scales}$	$-27,35 \pm 0,35$ (N = 2)	$-27,07 \pm 0,24$ (N = 4)	$-27,43 \pm 0,48$ (N = 4)	-27,6 (<i>N</i> = 1)			

Средние значения характеристик аэрозоля в четырех районах экспедиции (N – количество отобранных проб)

Сакерин С.М., Зенкова П.Н., Кабанов Д.М. и др.



Рис. 2. Средние концентрации N_a (светлые прямоугольники) и $M_{\rm bc}$ (заштрихованные прямоугольники) (*a*) и объемные функции распределения частиц (*б*) в различных районах и в ситуации дымового выноса 11 июля 2018 г.

выполненные летом 2015 и 2017 гг. примерно на том же маршруте (Балтийское море – Исландия – Гренландия — Баренцево море) [20, 21], показали, что в удаленных районах океана фоновое содержание сажи не превышает 10 нг/м³, а максимальные значения (до 260 нг/м³) характерны для Балтийского и Северного морей. Высокое содержание сажи (120 нг/м³) отмечено вблизи порта Рейкьявик. Эти данные в полной мере соответствуют результатам, полученным в 71-м рейсе. Хорошее согласие наблюдается также с данными измерений на западном побережье Ирландии [8] и в экспедиции [16], которая проводилась между Фарерскими островами и Исландией (соответствует району 3). По данным [8], концентрация сажи меняется от 17 до 70 нг/м³ при среднем значении 35 нг/м³. В [16] отмечена сильная зависимость концентраций от типа воздушных масс. В чистом морском и арктическом воздухе содержание сажи составляет 13-34 нг/м³, а при выносах воздуха с континента возрастает до 400-500 нг/м³.



Рис. 3. Траектории движения воздушных масс в район измерений 11 и 14 июля 2018 г.

С учетом данных, полученных в умеренных широтах Атлантики [5], можно сделать вывод, что в среднем широтном распределении сажи в Северной Атлантике наблюдается примерно 10-кратный спад концентраций в северном направлении: 150– 400 нг/м³ на широтах 45–50° с.ш. [5], 83 нг/м³ на широтах 57–59° с.ш. и 29 нг/м³ на широтах 62– 70° с.ш.

Из-за погодных условий (облачности) измерения АОТ атмосферы проводились в течение

небольшого количества дней (см. табл. 1). Кроме того, 14 июля в районе 2 наблюдалось экстремальное замутнение атмосферы: АОТ в коротковолновой части спектра стала в несколько раз больше, чем во всех других случаях. Как уже отмечалось, высокие значения АОТ в этот период были обусловлены выносом дымов лесных пожаров с севера Канады. За исключением этой ситуации, спектральные АОТ в разных районах экспедиции характеризовались низкими значениями и различались незначительно (рис. 4). Средняя АОТ (0,5 мкм) за общий период измерений составила 0,062, а показатель селективности $\alpha = 0,68$.



Рис. 4. Средние спектральные зависимости АОТ в четырех районах экспедиции и в ситуации дымового выноса 14 июля 2018 г.

Из сравнения различных характеристик аэрозоля (см. табл. 2) следует, что широтный спад АОТ при переходе из района 2 в район 3 согласуется с аналогичным изменением концентраций аэрозоля и сажи. В отличие от приземных характеристик аэрозоля в районе 1 получены низкие значения АОТ, так как измерения проведены только в условиях высокой прозрачности атмосферы.

Общее влагосодержание атмосферы в разных районах в основном соответствует зональному распределению: в умеренных широтах океана (районы 1, 2) средние значения W в 1,5—2 раза больше, чем в арктических широтах (районы 3, 4).

2.2. Концентрации РМ, ОС, ЕС и элементный состав аэрозолей

Рис. 5 дает общее представление об изменчивости концентраций ОС, ЕС и изотопного состава углерода, определенных в аэрозольных пробах на маршруте экспедиции. Положение и длина горизонтальных отрезков соответствуют периодам отбора конкретных проб. Средние значения характеристик (РМ, ОС, ЕС, δ^{13} С) в четырех районах экспедиции приведены в табл. 2. Из-за малого количества проб, отобранных в Баренцевом, Балтийском и Северном морях, средние значения характеристик в этих районах имеют оценочный характер.

Самые большие пространственная изменчивость и различие между отдельными пробами характерны для концентрации ЕС. Его распределение по районам согласуется с данными измерений концентраций $M_{\rm bc}$. При переходе от Балтийского/



Рис. 5. Вариации характеристик аэрозольных проб: *a* – ОС (сплошная кривая) и ЕС (штрихпунктирная кривая), *б* – δ^{13} С в период экспедиции (вертикальные линии – границы районов, горизонтальные отрезки – периоды отбора проб)

Сакерин С.М., Зенкова П.Н., Кабанов Д.М. и др.

Северного морей в Северную Атлантику (> 57° с.ш.) и затем в Норвежское море средние концентрации ЕС уменьшаются со 181 до 102 нг/м³.

Диапазон вариаций и пространственных различий массовых концентраций РМ и содержания в нем ОС оказался незначительным. Средние концентрации ОС в пробах, отобранных над Балтийским и Северным морями, лишь на 16% больше, чем над Северной Атлантикой (районы 2, 3). А средняя концентрация РМ над Балтийским и Северным морями (14,3 мкг/м³) оказалась даже ниже, чем в удаленных районах Атлантики (~18 мкг/м³). По-видимому, основной вклад в пробы вносил морской аэрозоль, а не континентальные выносы.

Тем не менее континентальное влияние все же проявляется, и его можно проследить по соотношению концентраций ОС/ЕС. В [33] показано, что отношение концентраций ОС/ЕС для выхлопных газов дизельных двигателей составляет ~1, для биотоплива — 4, а для сжигаемой биомассы — 9. Крайние из указанных значений ОС/ЕС соответствуют двум контрастным случаям наших измерений. Самое низкое соотношение OC/EC = 1,52, свидетельствующее о транспортных выбросах, получено вблизи порта Рейкьявик и берегов Исландии. Максимальные значения ОС/ЕС (от 4 до 16) регистрировались южнее Гренландии во время выноса дымов лесных пожаров из Канады. В других районах и ситуациях ОС/ЕС варьировалось в диапазоне промежуточных значений от 2,5 до 8,2, что указывает на смешанное воздействие различных источников углерода. Отметим также, что ситуации крайних значений ОС/ЕС хорошо согласуются с изменением изотопного состава углерода (см. подразд. 2.3): самый тяжелый изотопный состав ($\delta^{13}C = -26,8\%$) получен в период дымовых выносов, а легкий ($\delta^{13}C = -28,1\%$) – вблизи Рейкьявика.

Концентрации ЕС и ОС в Северной Атлантике согласуются с результатами измерений в других высокоширотных районах, но есть различия в диапазонах изменчивости. Диапазон изменения концентраций ЕС в 71-м рейсе (см. рис. 5, а) составил 20-257 нг/м³, на «Мысе Баранова» — 9—136 нг/м³ [26], в Тикси – 10–200 нг/м³ [34], а в северной Гренландии сезонные значения EC меняются от 19 нг/м³ осенью до 42 нг/м³ весной [35]. Есть отличия и в диапазонах изменения концентрации органического углерода: в 71-м рейсе OC = 325-745 нг/м³, Баранова» 209–917 нг/м³ «Мысе на [26], в Тикси 450-3500 нг/м³ [34], в Гренландии 144-245 нг/м³ [35].

В табл. З приведены результаты сравнения средних концентраций химических элементов в аэрозолях (C_i , нг/м³) в четырех районах экспедиции. Концентрации большинства элементов распределились в соответствии с удалением от континента (Европы) и ростом широты: максимальные C_i над Балтийским и Северным морями, промежуточные – на разрезе Гольфстрима и самые низкие – в высокоширотной части маршрута (районы 3, 4). По ряду элементов такое распределение нарушается. Основной район измерений (2) отличается от других максимальными концентрациями K, Cu, Br, Sr, Мо и минимальными – V, Y, Zr.

Таблица З

Элементы	Район 1 (N = 4)		Район 2 (N = 10)		Район 3 (N = 7)		Район 4 (N = 1)	
8	C_i	EF	C_i	EF	C_i	EF	C_i	EF
Ca	684 ± 290	3	534 ± 251	3	126 ± 175	1	3	2
K	432 ± 140	3	473 ± 236	3	167 ± 86	2	104	117
Fe	257 ± 92	1	243 ± 153	1	128 ± 152	1	2	1
Ti	65 ± 21	2	48 ± 39	2	20 ± 13	1	8	47
Zn	51 ± 25	133	50 ± 41	138	24 ± 10	125	0,1	25
V	14 ± 12	19	$1,4 \pm 1,6$	3	2 ± 1	6	1,6	364
Br	$12 \pm 2,5$	739	$26 \pm 14,5$	1737	11 ± 6	1367	10	96912
Mn	$12 \pm 4,4$	2	$8 \pm 3,4$	2	4 ± 2	2	2,3	75
Cr	$10 \pm 1,7$	19	$9 \pm 2,4$	19	4 ± 3	15	-	
Ni	$10 \pm 3,3$	27	$7 \pm 2,7$	21	$2 \pm 2,8$	12	-	
Cu	$9 \pm 7,2$	34	$11 \pm 5,3$	45	$3 \pm 2, 3$	23	0,7	422
Pb	$5,6 \pm 1,5$	76	$5,3 \pm 3,0$	76	$1,7\pm1,9$	46	0,55	1189
Sr	$4 \pm 1,7$	2	$6 \pm 3,8$	4	$3 \pm 2, 4$	3	1,2	116
Co	$2 \pm 0,9$	16	$2 \pm 1,2$	16	$0,9\pm0,9$	16	0,2	237
Se	$1,03\pm0,18$	3087	$0,7\pm0,5$	2279	$0,2 \pm 0,1$	1459	0,24	114191
Zr	$0,60\pm0,38$	1	$0,2 \pm 0,2$	0,3	$0,5 \pm 0,5$	1	0,02	3
Mo	$0,50\pm0,14$	62	$0,5 \pm 0,3$	69	$0,16\pm0,10$	43	0,09	1805
Rb	$0,50\pm0,22$	1	$0,30\pm0,16$	0	$0,2 \pm 0,1$	0,5	-	_
Nb	$0,13\pm0,03$	1	$0,07\pm0,06$	1	$0,06\pm0,02$	1	0,02	28
Υ	$0,10\pm0,07$	0,3	$0,02\pm0,02$	0,1	0,03	0,3	-	-

Средние (± СКО) концентрации химических элементов (С_i, нг/м³) в аэрозолях и коэффициенты обогащения ЕF в разных районах

В районах 1–3, где отобрано основное количество проб, концентрации элементов сгруппированы в одинаковой последовательности: самые высокие концентрации ($C_i > 10$ нг/м³) у элементов К, Са, Fe, Ti, Zn, Br; минимальные ($C_i < 1$ нг/м³) – у Nb, Y, Rb, Mo, Zr, Se; и промежуточные – у других элементов. Аналогичная группировка концентраций элементов получена нами в 2018 г. на «Мысе Баранова» (арх. Северная Земля) и в пос. Ключи вблизи Новосибирска [26]. Однако средние значения C_i в Северной Атлантике в несколько раз больше, чем в арктическом районе, и меньше, чем в Западной Сибири. Например, концентрация К в указанных районах составляет 167–473, ~120 нг/м³ и почти 2000 нг/м³ соответственно.

Кроме концентраций элементов, в табл. 3 приведены коэффициенты их обогащения (EF) относительно железа, которые рассчитывались по соотношению: EF = $(C_i/C_{Fe})/(C_i/C_{Fe})_{3K}$, где C_{Fe} – концентрация Fe в аэрозоле; $(C_i/C_{Fe})_{3K}$ – кларковое число *i*-го элемента в земной коре. Поясним, что низкие коэффициенты обогащения (EF < 10) свидетельствуют о почвенно-эрозионном источнике, а высокие (EF > 10) — об антропогенном или смешанном происхождении. Из табл. 3 следует, что на состав аэрозоля в период измерений влияли оба континентальных источника. Низкие коэффициенты EF у K, Ca, Ti, Mn, Fe, Rb, Sr, Y, Zr и Nb указывают на выносы в Атлантику почвенно-эрозионных частиц, а высокие EF y Se, Br, Pb, Mo, Zn, Ni, Cu, Со – на антропогенное воздействие. Обращают на себя внимание очень большие коэффициенты обогащения Se и Br, которые являются маркерами образования частиц при сжигании нефтепродуктов и древесины. Влияние таких событий на состав аэрозоля уже отмечалось при анализе других характеристик — $N_{\rm f}$, $M_{\rm bc}$, $\delta^{13}C$.

2.3. Изотопный состав углерода в аэрозоле

Исследования [36, 37] показали, что изотопный состав сажевого углерода, содержащегося в аэрозоле, может служить маркером исходных продуктов сгорания различных горючих веществ. Тяжелый изотопный состав углерода наблюдается при сжигании угля и древесины ($\delta^{13}C = -24 \div -27\%$), а более легкий — при сжигании жидкого топлива (от –28 до –29‰). Для оценки эффективности изотопной масс-спектрометрии в 2018 г. проведены эксперименты по отбору и анализу аэрозольных проб на арх. Северная Земля [26] и на маршруте 71-го рейса «Академик Мстислав Келдыш».

Диапазон изменчивости изотопного состава углерода в аэрозоле на маршруте экспедиции приведен на рис. 5, δ ; среднее значение составило $\delta^{13}C = (-27, 2 \pm 0, 4)$ %. Примерно такое же значение $\delta^{13}C = -27, 4$ % получено в период весенних измерений в арктическом районе [26].

Тяжелый изотопный состав ($\delta^{13}C = -26,8\%$), соответствующий горению древесины, зафиксирован

в первой декаде июля при движении судна южнее Гренландии. Полученный результат согласуется с данными траекторного анализа. В период отбора проб (особенно 11 июля) в район измерений выносился дым лесных пожаров из Северной Америки (см. рис. 3). Аналогичное изменение изотопного состава углерода наблюдалось на станции Caribou Poker Creek (Аляска) [38]: в ситуациях дымовых выносов $\delta^{13}C = -26,8\%$, а в обычных условиях $\delta^{13}C = -27,4\%$. В [39] показано, что потоки осаждения дымового аэрозоля играют важную роль в формировании климата арктической зоны. Сажевые частицы дымов лесных пожаров были ранее зафиксированы в ледяных кернах Гренландии [40].

Самое легкое значение изотопного состава сажевого углерода (δ^{13} C = -28,1‰), характерное для сжигания нефтепродуктов, получено вблизи порта Рейкьявик. Изотопный состав всех других проб (кроме вышерассмотренных) находится в относительно узком диапазоне промежуточных значений (δ^{13} C = -27÷-27,6‰). Такой результат свидетельствует о том, что сажа в атмосферном аэрозоле Северной Атлантики в среднем является смесью продуктов горения различных веществ. Малый диапазон вариаций δ^{13} C обусловлен также большим масштабом пространственно-временного усреднения из-за продолжительного времени экспозиции проб, необходимого для достижения порога чувствительности изотопной масс-спектрометрии.

Заключение

Анализ результатов измерений характеристик аэрозоля в 71-м рейсе НИС «Академик Мстислав Келдыш» показал, что самые высокие средние концентрации аэрозоля и сажи наблюдаются над Балтийским и Северным морями ($N_a = 8,7 \text{ см}^{-3}$; $M_{bc} = 254 \text{ нг/m}^3$). Переход из субарктического района 2 (57–59° с.ш.) в южную часть СЛО (62–72° с.ш.) характеризовался уменьшением значений N_a от 5,7 до 2,6 см⁻³; M_{bc} от 83 до 29 нг/м³; τ^a (0,5) от 0,071 до 0,036. Содержание аэрозоля и сажи над Баренцевым морем ($N_a = 6,7 \text{ см}^{-3}$; $M_{bc} = 54 \text{ нг/m}^3$) оказалось немного выше средних значений в предшествующих экспедициях.

Концентрации элементного углерода в пробах аэрозоля на маршруте от Балтийского до Норвежского моря уменьшаются аналогично концентрациям $M_{\rm bc}$ — от 181 до 102 нг/м³. Гораздо меньшая пространственно-временная изменчивость отмечена у концентраций РМ и ОС, в частности средние ОС в районах 1–3 уменьшаются от 540 до 411 нг/м³.

Средние концентрации элементов в аэрозоле над Северной Атлантикой в несколько раз больше, чем в арктической зоне [26], и меньше, чем в Западной Сибири. Однако распределение элементного состава (от максимальных C_i к минимальным) в этих районах имеет схожий вид.

Анализ коэффициентов обогащения различных элементов относительно железа показал, что на элементный состав аэрозоля влияют источники как почвенно-эрозионного, так и антропогенного происхождения. Особенно большие коэффициенты обогащения Se и Br в составе аэрозоля, вероятно, являются следствием сжигания нефтепродуктов и древесины.

Результаты определения изотопного состава углерода дали возможность идентифицировать источники поступления сажевого аэрозоля в атмосферу Северной Атлантики. Утяжеление изотопного состава (δ^{13} C = -26,86‰) южнее Гренландии свидетельствует о преобладании сажевого углерода, выделенного при горении древесины (лесные пожары). Самое легкое значение δ^{13} C = -28,1‰, зафиксированное вблизи порта Рейкъявик, указывает на то, что источником сажевого углерода являлись продукты нефтепереработки.

Авторы благодарят В.С. Козлова и В.П. Шмаргунова за подготовку и тестирование аппаратуры для проведения экспедиционных измерений. Для определения элементного состава аэрозоля использовалось оборудовании ЦКП «СЦСТИ» на базе УНУ «Комплекс ВЭПП-4 — ВЭПП-2000» в ИЯФ СО РАН, поддержанное проектом RFMEFI62119X0022.

Работа выполнена в рамках госзаданий ИОА СО РАН и ИХКГ СО РАН.

- 1. *IPCC*, 2013. Climate Change 2013: The Physical Science Basis, Fifth Assessment Report of the United Nations "Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC). Chapter 7, Clouds and Aerosols. Cambridge University Press, Cambridge. URL: http://www.climatechange2013. org/images/report/WG1AR5_ Chapter07_FINAL.pdf.
- Кондратьев К.Я., Москаленко Н.И., Поздняков Д.В. Атмосферный аэрозоль. Л.: Гидрометеоиздат, 1983. 224 с.
- Лисицын А.П. Современные представления об осадкообразовании в океанах и морях. Океан как природный самописец взаимодействия геосфер Земли // Мировой океан. Т. 2. Физика, химия и биология океана. Осадкообразование в океане и взаимодействие геосфер Земли. М.: Научный мир, 2014. С. 331–571.
- Шевченко В.П., Виноградова А.А., Лисицын А.П., Новигатский А.Н., Горюнова Н.В. Атмосферные аэрозоли как источник осадочного вещества и загрязнений в Северном Ледовитом океане // Система моря Лаптевых и прилегающих морей Арктики: современное состояние и история развития. М.: Изд-во Моск. ун-та, 2009. С. 150–172.
- Сакерин С.М., Кабанов Д.М., Полькин В.В., Радионов В.Ф., Holben В.N., Smirnov А. Вариации оптических и микрофизических характеристик аэрозоля на маршруте Российских антарктических экспедиций в Восточной Атлантике // Оптика атмосф. и океана. 2016. Т. 29, № 8. С. 666–678; Sakerin S.M., Kabanov D.M., Polkin V.V., Radionov V.F., Holben B.N., Smirnov A. Variations in aerosol optical and microphysical characteristics along the route of Russian Antarctic Expeditions in the East Atlantic // Atmos. Ocean. Opt. 2017. V. 30, N 1. P. 89–102.
- Бартенева О.Д., Никитинская Н.И., Сакунов Г.Г., Веселова Л.К. Прозрачность толщи атмосферы в видимой и ближней ИК-области спектра. Л.: Гидрометеоиздат, 1991. 224 с.
- 7. Tomasi C., Kokhanovsky A.A., Lupi A., Ritter C., Smirnov A., Mazzola M., Stone R.S., Lanconelli C., Vita-

le V., Holben B.N., Nyeki S., Wehrli C., Altonen V., de Leeuw G., Rodriguez E., Herber A.B., Stebel K., Stohl A., O'Neill N.T., Radionov V.F., Zielinski T., Petelski T., Sakerin S.M., Kabanov D.M., Xue Y., Mei L., Istomina L., Wagener R., McArthur B., Sobolewski P.S., Butler J., Kivi R., Courcoux Y., Larouche P., Broccardo S., Piketh S.J. Aerosol remote sensing in polar regions // Earth-Sci. Rev. 2015. V. 140. P. 108–157. URL: http://dx.doi.org/10.1016/j. earscirev.2014.11.001.

- Cavalli F., Facchini M.C., Decesari S., Mircea M., Emblico L., Fuzzi S., Ceburnis D., Yoon Y.J., O'Dowd C.D., Putaud J.-P., Dell'Acqua A. Advances in characterization of size-resolved organic matter in marine aerosol over the North Atlantic // J. Geophys. Res. D. 2004. V. 109. URL: http://dx.doi.org/10.1029/2004JD005137 (last access: 20.12.2019).
- Stone R.S., Sharma S., Herber A., Eleftheriadis K., Nelson D.W. A characterization of Arctic aerosols on the basis of aerosol optical depth and black carbon measurements // Elementa: Sci. Anthropocene. 2014. V. 2. DOI: 10.12952/journal.elementa.000027.
- Singh D.K., Kawamura K., Yanase A., Barrie L.A. Distributions of polycyclic aromatic hydrocarbons, aromatic ketones, carboxylic acids, and trace metals in Arctic aerosols: Long-range atmospheric transport, photochemical degradation/production at polar sunrise // Environ. Sci. Technol. 2017. V. 51. P. 8992–9004. DOI: 10.1021/acs.est.7b01644.
- Eleftheriadis K., Vratolis S., Nyeki S. Aerosol black carbon in the European Arctic: Measurements at Zeppelin station, Ny-Elesund, Svalbard from 1998–2007 // Geophys. Res. Lett. 2009. V. 36. DOI: 10.1029/2008GL 035741.
- Massling A., Nielsen I.E., Kristensen D., Christensen J.H., Sorensen L.L., Jensen B., Nguyen Q.T., Nojgaard J.K., Glasius M., Skov H. Atmospheric black carbon and sulfate concentrations in Northeast Greenland // Atmos. Chem. Phys. 2015. V. 15, N 16. P. 9681–9692.
- Виноградова А.А., Пономарева Т.Я. Атмосферный перенос антропогенных примесей в арктические районы России (1986–2010) // Оптика атмосф. и океана. 2012. Т. 25, № 6. С. 475–483; Vinogradova А.А., Ponomareva T.Ya. Atmospheric transport of anthropogenic impurities to the Russian Arctic (1986–2010). // Atmos. Ocean. Opt. 2012. V. 25, N 6. P. 414–422.
- 14. Виноградова А.А., Смирнов Н.С., Коротков В.Н., Романовская А.А. Лесные пожары в Сибири и на Дальнем Востоке: эмиссии и атмосферный перенос черного углерода в Арктику // Оптика атмосф. и океана. 2015. Т. 28, № 6. С. 512–520; Vinogradova А.А., Smirnov N.S., Korotkov V.N., Romanovskaya A.A. Forest fires in Siberia and the Far East: Emissions and atmospheric transport of Black Carbon to the Arctic // Atmos. Ocean. Opt. 2015. V. 28, N 6. P. 566–574.
- Leck C., Bigg E.K., Covert D.S., Heintzenberg J., Maenhaut W., Nilsson E.D., Wiedensohler A. Overview of the atmospheric research program during the International Arctic Ocean Expedition of 1991 (IAOE-91) and its scientific results // Tellus. 1996. V. 48B. P. 136-155.
- O'Dowd C.D., Smith M.H., Jennings S.G. Submicron aerosol, radon and soot carbon characteristics over the northeast Atlantic // J. Geophys. Res. 1993. V. 98. P. 1123–1135.
- Xie Z., Blum J.D., Utsunomiya S., Ewing R.C., Wang X. Summertime carbonaceous aerosols collected in the marine boundary layer of the Arctic Ocean // J. Geophys. Res. D. 2007. V. 112. DOI: 10.1029/2006JD007247.
- Stohl A., Klimont Z., Eckhardt S., Kupiainen K., Shevchenko V.P., Kopeikin V.M., Novigatsky A.N. Black

carbon in the Arctic: The underestimated role of gas flaring and residential combustion emissions // Atmos. Chem. Phys. 2013. V. 13. P. 8833–8855.

- Popovicheva O.B., Evangeliou N., Eleftheriadis K., Kalogridis A.C., Sitnikov N., Eckhard S., Stohl A. Black carbon sources constrained by observations in the Russian High Arctic // Environ. Sci. Technol. 2017. V. 51, N 7. P. 3871–3879. DOI: 10.1021/acs.est. 6b05832.
- 20. Schevchenko V.P., Kopeikin V.M., Evangeliou N., Lisitzin A.P., Novigatsky A.N., Pankratova N.V., Starodymova D.P., Stohl A., Thomson R. Atmospheric black carbon over the north Atlantic and Russian arctic seas in summer—autumn time // Химия в интересах устойчивого развития. 2016. Т. 24, № 4. С. 441–446. DOI: 10.15372/KhUR20160402.
- Шевченко В.П., Копейкин В.М., Новигатский А.Н., Малафеев Г.В. Черный углерод в приводном слое атмосферы над Северной Атлантикой и морями Российской Арктики в июле–сентябре 2017 г. // Океанология. 2019. Т. 59, № 5. С. 771–776. DOI: 10.31857/ S0030-1574595771-776.
- 22. Marsay C.M., Kadko D., Landing W.M., Morton P.L., Summers B.A., Buck C.S. Concentrations, provenance and flux of aerosol trace elements during US GEOTRACES Western Arctic cruise GN01 // Chem. Geology. 2018. V. 502. P. 1–14.
- Sakerin S.M., Zenkova P.N., Izosimova O.N., Kabanov D.M., Pol'kin V.V., Radionov V.F., Malafeev G.V., Shevchenko V.P. Measurements of aerosol optical and microphysical characteristics in 2018 expeditions onboard RV "Akademik Mstislav Keldysh" and RV "Akademik Tryoshnikov" // Proc. SPIE. 2019. V. 11208. DOI: 10.1117/12.2539793.
- 24. Popova S.A., Simonova G.V., Makarov V.I., Kalashnikova D.A., Zenkova P.N., Lisitzin A.P., Novigatsky A.N. Variations of the carbon isotope composition and of organic and elemental carbon concentrations of North Atlantic aerosols // Proc. SPIE. 2019. V. 11208. DOI: 10.1117/12.2538888.
- Sakerin S.M., Bobrikov A.A., Bukin O.A., Golobokova L.P., Polkin Vas.V., Polkin 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 Northern Sea Route // Atmos. Chem. Phys. 2015. V. 15, iss. 21. P. 12413–12443. DOI: 10.5194/acp-15-1-2015.
- 26. Сакерин С.М., Голобокова Л.П., Кабанов Д.М., Калашникова Д.А., Козлов В.С., Круглинский И.А., Макаров В.И., Макштас А.П., Попова С.А., Радионов В.Ф., Симонова Г.В., Турчинович Ю.С., Ходжер Т.В., Хуриганова О.И., Чанкина О.В., Чepнов Д.Г. Результаты измерений физико-химических характеристик атмосферного аэрозоля на «Ледовой базе "Мыс Баранова"» в 2018 г. // Оптика атмосф. и океана. 2019. Т. 32, № 6. С. 421-429; Sakerin S.M., Golobokova L.P., Kabanov D.M., Kalashnikova D.A., Kozlov V.S., Kruglinsky I.A., Makarov V.I., Makshtas A.P., Popova S.A., Radionov V.F., Simonova G.V., Turchinovich Yu.S., Khodzher T.V., Khuriganowa O.I., Chankina O.V., Chernov D.G. Measurements of physicochemical characteristics of atmospheric aerosol at research station Ice Base Cape Baranov in 2018 // Atmos. Ocean. Opt. 2019. V. 32, N 5. P. 511-520.
- 27. Лебедев А.Т. Масс-спектрометрия для анализа объектов окружающей среды. М.: Техносфера, 2013. 632 с.

- Makarov V.I., Koutsenogii K.P., Koutsenogii P.K. Daily and seasonal changes of organic and inorganic carbon content in atmospheric aerosol Novosibirsk region // J. Aer. Sci. 1999. V. 30. P. S255–S256.
- Piminov P.A., Baranov G.N., Bogomyagkov A.V., Berkaev D.E., Borin V.M., Dorokhov V.L., Karnaev S.E., Kiselev V.A., Levichev E.B., Meshkov O.I., Mishnev S.I., Nikitin S.A., Nikolaev I.B., Sinyatkin S.V., Vobly P.D., Zolotarev K.V., Zhuravlev A.N. Synchrotron radiation research and application at VEPP-4 // Phys. Proc. 2016. V. 84. P. 19–26. DOI: 10.1016/j. phpro.2016.11.005.
- 30. Sakerin S.M., Andreev S.Yu., Kabanov D.M., Polkin V.V., Turchinovich Yu.S., Chernov D.G. Database of aerosol expedition studies in marine and polar regions // Proc. SPIE. 2019. V. 11208. Part 2. DOI: 10.1117/ 12.2539891.
- Сакерин С.М., Голобокова Л.П., Кабанов Д.М., Козлов В.С., Полькин В.В., Радионов В.Ф., Чернов Д.Г. Сравнение средних характеристик аэрозоля в соседних арктических районах // Оптика атмосф. и океана. 2018. Т. 31, № 8. С. 640–646; Sakerin S.M., Golobokova L.P., Kabanov D.M., Kozlov V.S., Pol'kin V.V., Radionov V.F., Chernov D.G. Comparison of average aerosol characteristics in neighboring Arctic regions // Atmos. Ocean. Opt. 2019. V. 32, N 1. P. 33–40.
- 32. URL: https://tropo.gsfc.nasa.gov/aeronet/IMAGES/ Y15/M07/ktraj_tlk_7bck15071012.ps210001.gif (last access: 20.12.2019).
- 33. Lamarque J.-F., Bond T.C., Eyring V., Granier C., Heil A., Klimont Z., Lee D., Liousse C., Mieville A., Owen B., Schultz M.G., Shindell D., Smith S.J., Stehfest E., Van Aardenne J., Cooper O.R., Kainuma M., Mahowald N., McConnell J.R., Naik V., Riahi K., van Vuuren D.P. Historical (1850–2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols: Methodology and application // Atmos. Chem. Phys. 2010. V. 10. P. 7017–7039. DOI: org/10.5194/acp-10-7017-2010.
- Popovicheva O., Diapouli E., Makshtas A., Shonija N., Manousakas M., Saraga D., Uttal T., Eleftheriadis K. East Siberian Arctic background and black carbon polluted aerosols at HMO Tiksi // Sci. Total Environ. 2019. V. 655. P. 924–938.
- 35. Massling A., Nielsen I.E., Kristensen D., Christensen J.H., Sørensen L.L., Jensen B., Nguyen Q.T., Nøjgaard J.K., Glasius M., Skov H. Atmospheric black carbon and sulfate concentrations in Northeast Greenland // Atmos. Chem. Phys. 2015. V. 15. P. 9681–9692.
- 36. Widory D. Combustibles, fuels and their combustion products: A view through carbon isotopes // Combustion Theory and Modelling, UK. 2006. P. 831–841. DOI: 10.1080/13647830600720264.
- 37. Simonova G., Volkov Yu., Kozlov V., Shmargunov V., Kalashnikova D. Atmospheric air pollution studies using the isotope mass-spectrometry // 18th Intern. multidisciplinary scientific geoconference SGEM 2018. Bulgaria: Conf. proc. P. 343–348. DOI: 10/5593/ sgem2018/4.2.
- Mouteva G.O., Czimczik C.I., Fahrni S.M., Wiggins E.B., Rogers B.M., Veraverbeke S., Xu X., Santos G.M., Henderson J., Miller C.E., Randerson J.T. Black carbon aerosol dynamics and isotopic composition in Alaska linked with boreal fire emissions and depth of burn in organic soils // Global Biogeochem. Cycles. 2015. V. 29, N 11. P. 1977–2000. DOI: 10.1002/2015GB005247.
- 39. Doherty S.J., Warren S.G., Grenfell T.C., Clarke A.D., Brandt R.E. Light-absorbing impurities in Arctic snow

// Atmos. Chem. Phys. 2010. V. 10, N 23. P. 11647–11680. DOI: 10.5194/acp-10-11647-2010.
40. McConnell J.R., Edwards R., Kok G.L., Flanner M.G.,

Zender C.S., Saltzman E.S., Banta J.R., Pasteris D.R.,

Carter M.M., Kahl J.D. 20th-century industrial black carbon emissions altered Arctic climate forcing // Science. 2007. V. 317, N 5843. P. 1381–1384. DOI: 10.1126/ science.1144856.

S.M. Sakerin, P.N. Zenkova, D.M. Kabanov, D.A. Kalashnikova, A.P. Lisitzin, V.I. Makarov, V.V. Polkin, S.A. Popova, G.V. Simonova, O.V. Chankina, V.P. Shevchenko. Results of studying the physicochemical characteristics of atmospheric aerosol in 71th cruise of RV "Akademik Mstislav Keldysh". In summer 2018 along the route of 71th cruise of RV "Akademik Mstislav Keldysh" in the North Atlantic, we carried out measurements of atmospheric aerosol characteristics, in particular, aerosol optical depth, near-surface aerosol and black carbon concentrations, contents of chemical elements in aerosol samples and organic and elemental carbon, and isotopic composition of carbon. It is shown that the average values of most aerosol characteristics several-fold decrease during transit from the Baltic Sea to the North Atlantic (57–60°N) and then to the Norwegian Sea. For instance, the average black carbon concentration decreased from 83 to 29 ng/m³. Episodic impact of continental aerosol was noted even in remote regions of ocean. Outflow of smokes from forest fires in the north of Canada to the region of measurements (southward of Greenland) exerted the strongest effect on all aerosol characteristics. The average concentrations of chemical elements in aerosol composition over the North Atlantic were several times larger than in the Arctic region and smaller than in the background region of Siberia.